

Перегрев или переохлаждение электронов в металле из-за влияния границы с диэлектриком

А. П. Мейлахс⁺, Е. Д. Эйдельман^{+*1)}

⁺ Физико-технический институт им. Иоффе, 194021 С.-Петербург, Россия

* С.-Петербургская государственная химико-фармацевтическая академия, 197376 С.-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 11 апреля 2014 г.

После переработки 2 июня 2014 г.

Показано, что при тепловом потоке через границу металла и диэлектрика температуры электронов и фононов различны. Это приводит к дополнительному вкладу в сопротивление Капицы из-за того, что электроны, переносящие тепло в металле, не переносят его через границу, а вовлечены в теплоперенос только на некотором расстоянии от нее. Поэтому перенос тепла вблизи границы оказывается менее эффективным. Эффект не зависит от того, с каким диэлектриком граничит металл. В линейном приближении найдено точное решение. Полученные результаты объясняют качественное различие предсказаний ранее принятых моделей и эксперимента в случае больших значений коэффициента прохождение фононов через границу.

DOI: 10.7868/S0370274X14140033

В [1] показано, что тепловое равновесие в каждой из основных подсистем металла (электронов и решетки) устанавливается быстрее, чем равновесие между подсистемами. До сих пор считалось, что данный эффект важно учитывать только при протекании мощных токов [1–3]. В этом случае оказывается, что температура электронного газа T_e больше температуры решетки – газа фононов T_{ph} . Из-за отсутствия теплового равновесия возникают поправки к законам Ома и Джоуля–Ленца.

Легко представить себе, что подобный эффект перегрева или переохлаждения электронов по сравнению с фононной составляющей будет иметь место и на границе металла с диэлектриком.

Предположим, что слой металла нагревается или охлаждается с одной стороны, а с другой стороны граничит с диэлектриком. При этом фононы из металла переходят в диэлектрик или фононы из диэлектрика переходят в металл. В силу закона Фурье этот тепловой поток понижает или повышает температуру решетки металла. Теплота от электронного газа непосредственно в диэлектрик не проходит и из диэлектрика электронный газ непосредственно тепло не получает. Электроны нагревают или охлаждают решетку в металле. Только затем теплота через фононную составляющую передается в диэлектрик. Этот ангармонический процесс и есть проявление разности температур электронной и фононной под-

систем, возникающей в металле из-за наличия границы с диэлектриком.

Описанная ситуация имеет место, например, при размещении металлической пленки на диэлектрической подложке или в углеродных структурах, где граничат алмазоподобные диэлектрические области и графитоподобные области с металлическими свойствами. Аналогичная ситуация имеет место в материалах, обладающих высокотемпературной сверхпроводимостью, а также во многих других случаях. Температура на границе двух сред всегда испытывает скачок ΔT , который в первом приближении можно считать пропорциональным тепловому потоку. Такая зависимость похожа на закон Ома. Поэтому коэффициент пропорциональности r между скачком температуры и тепловым потоком называется тепловым сопротивлением или сопротивлением Капицы. Теплосопротивление является характеристикой границы. Поэтому знать его при любых тепловых расчетах систем, в которых есть граница сред, чрезвычайно важно.

Схожая ситуация для случая сверхпроводника второго рода изучалась в работе [4]. В этой работе рассматривается влияние границ между сверхпроводящей и нормальной фазами на теплопроводность сверхпроводника. Релаксационный вклад в теплосопротивление на границе возникает из-за того, что в нормальной фазе вблизи границы тепло переносится только электронами с энергией, большей, чем ширина энергетической щели Δ в сверхпроводни-

¹⁾ e-mail: eidelman@mail.ioffe.ru

ке. За счет этого возникает вклад в тепловое сопротивление. Другими словами, неравновесный вклад в теплосопротивление обусловлен только неравновесностью функции распределения электронов. Перенос тепла фононами не учитывается. В случае границы металл–диэлектрик, рассматриваемом в данной работе, также имеет место отличие функций распределения электронов и фононов от функций распределения в однородной среде при постоянном тепловом потоке. Это вносит дополнительный вклад в релаксационное сопротивление, подобный рассмотренному в [4]. Вместе с тем, как показано в [1], равновесие в каждой из подсистем устанавливается быстрее, чем равновесие между ними. Поэтому в отличие от [4] основной вклад в релаксационное сопротивление дает обмен энергией между электронами и фононами. Это также позволяет описывать каждую из подсистем в терминах локальных температур.

Изучению сопротивления Капицы на границе металла и диэлектрика посвящено множество работ. Последними из них являются работы [5–8]. В каждой из этих работ строится особая модель прохождения тепла через границу. Однако во всех построенных моделях учет указанного выше ангармонического процесса внутри металла вблизи границы с диэлектриком отсутствует. В данной работе сопротивление Капицы вычислено с учетом ангармонического процесса и проведено сравнение с экспериментом. Оказалось, что в предлагаемой модели сопротивление Капицы не зависит от характеристик диэлектрика, а полностью определяется характеристиками металла. Этот эффект наблюдался в [9].

Рассмотрим плоскую границу металл–диэлектрик (рис. 1). Каждый из материалов занимает полупространство. Начало координат размещается на границе. Ось x перпендикулярна границе. Считается, что тепловые потоки распространяются только по оси x . Введя теплопроводности электронной (κ_e) и фононной (κ_{ph}) подсистем, запишем уравнение Фурье для каждой из них:

$$q_e = -\kappa_e T'_e; \quad (1)$$

$$q_{ph} = -\kappa_{ph} T'_{ph}. \quad (2)$$

Штрих здесь и далее обозначает производную по x . В стационарном уравнении теплопроводности необходимо учесть передачу тепла от одной подсистемы к другой. Это означает, что

$$q'_e = \theta(T_e - T_{ph}); \quad (3)$$

$$q'_{ph} = \theta(T_{ph} - T_e). \quad (4)$$

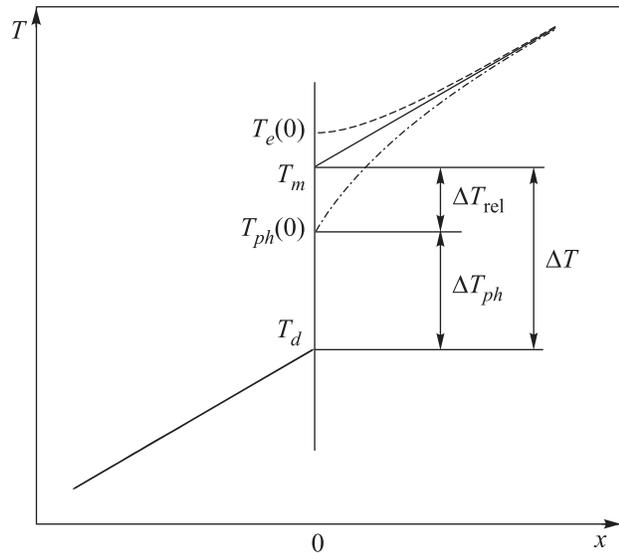


Рис. 1. Профиль температур на границе диэлектрика (слева) и металла (справа). Нагревается внешняя граница металла. Температура диэлектрика на границе T_d . В металле пунктиром изображена температурная зависимость электронов; $T_e(0)$ – температура электронного газа на границе. Пунктиром с точками изображена температура фононов; $T_{ph}(0)$ – температура фононов металла на границе. Сплошная линия – экстраполяция, приводящая к температуре металла на границе T_m . Обозначено: ΔT_{ph} – разница температур фононов на границе; ΔT_{rel} – релаксационный вклад в скачок температур. Считается, что экспериментально измеряемый скачок температур ΔT

Величина θ характеризует эффективность теплопередачи между подсистемами. Теперь необходимо поставить граничные условия. На большом расстоянии от границы существует тепловое равновесие. Температуры электронов и решетки там совпадают, $T_e = T_{ph} = T$, и одинаково изменяются, обуславливая постоянный тепловой поток $q = -\kappa T'$, в металле с теплопроводностью κ . Потоки q_e и q_{ph} являются составляющими этого общего потока. Поэтому при $x \rightarrow \infty$ имеем $\kappa = \kappa_e + \kappa_{ph}$ и

$$q_e = \frac{\kappa_e}{\kappa} q, \quad q_{ph} = \frac{\kappa_{ph}}{\kappa} q. \quad (5)$$

На границе металл–диэлектрик весь поток тепла обусловлен только распространением фононов. Следовательно, при $x = 0$

$$q_{ph} = q, \quad q_e = 0. \quad (6)$$

Уже из постановки задачи видно, что свойства диэлектрика не влияют на температуры электронов и фононов в металле и все дальнейшие результаты

должны быть одинаковы для границы заданного металла с различными диэлектриками. Это подтверждает и эксперимент. Поставленная задача легко решается. В результате мы получаем зависимость температур подсистем в металле:

$$T_{ph} = T_m - \frac{1}{\kappa}qx + \frac{\Lambda\kappa_e q}{\kappa\kappa_{ph}} \exp - \frac{x}{\Lambda}, \quad (7)$$

$$T_e = T_m - \frac{1}{\kappa}qx - \frac{\Lambda q}{\kappa} \exp - \frac{x}{\Lambda}. \quad (8)$$

В решение вошло характерное расстояние Λ от границы, на котором происходит выравнивание температур электронного газа и решетки:

$$\Lambda = \sqrt{\frac{\kappa_{ph}\kappa_e}{\theta(\kappa_{ph} + \kappa_e)}}. \quad (9)$$

Вошла в него и постоянная T_m . Она выбрана так, чтобы при линейной экстраполяции T_e и T_{ph} из удаленной от границы области они бы при $x = 0$ совпали.

Используя полученное решение, легко построить профили температуры. Обычно в эксперименте нагревается металл [9–11]. Именно такой случай изображен на рис. 1. В эксперименте исходят из линейной зависимости температуры от координаты внутри как диэлектрика, что верно, так и металла, что неверно. Обозначая температуры на границе, полученные при линейной экстраполяции температур из удаленных областей, через T_d для диэлектрика и T_m для металла, видим, что то, с чем сравнивают результаты измерения, $\Delta T = T_d - T_m$, может существенно отличаться от реальности. В действительности разница температур фононов на границе $\Delta T_{ph} = T_m - T_{ph}(0)$. Эта величина больше той, которая, как считается, должна получиться экспериментально:

$$\Delta T_{ph} = T_m - \frac{\Lambda\kappa_e q}{\kappa\kappa_{ph}}. \quad (10)$$

Очевидно, что указанная разность меньше той, которую хотят увидеть при измерении. Если же измерять температуру электронов в металле на границе, то скачок температуры $\Delta T_e = T_m + T_e(0)$ или

$$\Delta T_e = T_m + \frac{\Lambda q}{\kappa}. \quad (11)$$

Рассчитанные величины позволяют определить теплосопротивление Капицы r , которое также можно разделить на теплосопротивление r_{ph} , обусловленное скачком на границе температуры фононов и теплосопротивление r_{rel} , обусловленное скачком на границе температуры из-за ангармонического медленного

процесса передачи тепла от решетки к электронам. Интервал, в котором должны лежать различия теплосопротивления, выраженный через характерную длину имеет вид

$$r_{rel} = \frac{\Lambda\kappa_e}{\kappa\kappa_{ph}}. \quad (12)$$

Выраженный же через эффективность теплопередачи от решетки к электронам в металле он принимает вид

$$r_{rel} = (\kappa_{ph}\theta)^{-1/2} \left(\frac{\kappa_e}{\kappa_{ph} + \kappa_e} \right)^{3/2}. \quad (13)$$

Обычно в металле $\kappa_e \gg \kappa_{ph}$. Поэтому теплосопротивление Капицы, обусловленное релаксацией энергии, можно выразить через два кинетических параметра металла:

$$r_{rel} = (\kappa_{ph}\theta)^{-1/2}. \quad (14)$$

Несомненно, что соответствующие скачки температуры должны иметь место при прохождении теплового потока через любую границу металл–диэлектрик. Однако для проверки существования релаксационного механизма скачка температуры на границе металла и диэлектрика удобно анализировать тепловой скачок на такой границе, на которой скачок температуры ΔT_{ph} , обусловленный фононами, мал.

Оказывается, что такими парами являются границы нитрида титана (TiN) с оксидом марганца (MgO) и того же нитрида титана с оксидом алюминия (Al₂O₃) [9]. Известно [10], что на границах этих материалов для кристаллографических плоскостей (001) и (111) оксида марганца и (0001) оксида алюминия практически не возникает отражения фононов. Поэтому в соответствии с формулой, представляющей тепловую аналогию формулы Ландауэра [12], скачка температуры при прохождении фононов не возникает ($\Delta T_{ph} \approx 0$). В таком случае измеряемая разность температур оказывается равной ΔT_{rel} и определяется только релаксационным теплосопротивлением r_{rel} .

В соответствии с вышеизложенным для определения теплосопротивления r_{rel} требуется знать фоннную теплопроводность κ_{ph} и эффективность теплопередачи θ между решеткой и электронным газом в TiN. Мы проведем эту оценку при 300 К. Только при этой температуре в TiN известны, с одной стороны, сопротивление Капицы r [9], одинаковое для всех трех диэлектриков, а с другой стороны, фоннная теплопроводность $\kappa_{ph} = 14$ Вт/МК [13]. Таким образом, можно будет провести сравнение.

Величину κ_{ph} можно оценить из отклонения общей теплопроводности металла κ от закона Видемана-Франца. По закону Видемана-Франца электронная теплопроводность κ_e и электропроводность σ в “хорошем” металле [14] связаны соотношением

$$\kappa = \frac{\pi^2 k^2}{3e^2} \sigma T. \quad (15)$$

Здесь использованы стандартные обозначения: e – заряд электрона, k – постоянная Больцмана.

Отклонения от этого закона связаны, во-первых, с тем, что электроны могут испытывать неупругое рассеяние, и, во-вторых, с переносом тепла фононами. В “плохом” металле, каковым является нитрид титана, вторая из указанных причин важнее [15]. Таким образом, получаем, что

$$\kappa_{ph} = \kappa - \frac{\pi^2 k^2}{3e^2} \sigma T. \quad (16)$$

Электропроводность для образца, используемого авторами [15], имеет значение $\sigma = 0.08$ (мкОм·см) $^{-1}$. Фононная теплопроводность TiN при комнатной температуре $\kappa_{ph} = 14$ Вт/мК [14]. Для определения величины эффективности ангармонической теплопередачи между фононной и электронной подсистемами в металле используем соотношение из [2]:

$$\theta = \frac{\pi^2 s^2 n_0 m}{6\tau T_d}. \quad (17)$$

Выразим время свободного пробега и эффективную массу электрона в TiN через электропроводность:

$$\sigma = \frac{e^2 \tau n_0}{m}. \quad (18)$$

Окончательно для величины теплопередачи между электронами и фононами имеем

$$\theta = \frac{\pi^2 s^2 e^2 n_0^2}{6\sigma T_D}. \quad (19)$$

В этой формуле $s = 9300$ м/с – скорость звука [16], $T_D = 740$ К – температура Дебая [17], $n = 5.5 \cdot 10^{22}$ м $^{-3}$ – плотность электронов проводимости [18]. (Все величины соответствуют нитриду титана.) В результате для TiN найдем $\theta \approx 8 \cdot 10^{18}$ Вт/м 3 К.

Окончательно получим $r_{rel} = 0.2 \cdot 10^{-9}$ м 2 К/Вт.

Важно, что сопротивление Капицы, вычисленное в соответствии с (15), не зависит от характеристик диэлектрика. В [9] приведены результаты измерений сопротивления Капицы для системы TiN, граничащей с разными диэлектриками, при различных кристаллографических плоскостях на границе. Во всех

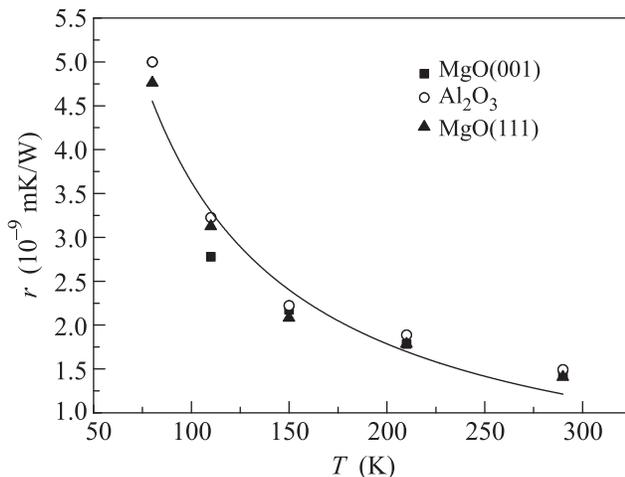


Рис. 2. Зависимость сопротивления Капицы от температуры на границе TiN с различными диэлектриками. Видно, что сопротивление Капицы не зависит от характеристик диэлектрика, а полностью определяется характеристиками металла. Данные из работы [9]. Температурная зависимость на рис. 2 получена экстраполяции данных из [13]

случаях оно оказалось одинаковым, что подтверждает предсказанный нами эффект (см. рис. 2). Однако величина сопротивления Капицы в семь раз превышает вычисленное выше значение. Последнее, по видимому, связано с тем, что электроны в металле в основном рассеиваются на дефектах. Об этом говорит тот факт, что проводимость TiN существенно меняется от образца к образцу. Например, в статье [18] указано значение $\sigma = 0.025$ (мкОм см) $^{-1}$, а работе [19] значение $\sigma = 0.056$ (мкОм см) $^{-1}$. Из-за этого формальное применение формулы (19) может приводить к результатам, которые различаются на порядок. В сделанных выше расчетах считается, что электроны рассеиваются только на фононах, а рассеяние на дефектах не учитывается. Таким образом, сравнивая экспериментальные и вычисленные в соответствии с (19) значения теплосопровитления, можно оценить относительные вклады рассеяния электронов на фононах и на дефектах. Это может служить одним из методов установления количества дефектов в металле.

Электроны для металлов, теплопроводность которых определяется в основном теплопроводностью электронного газа, оказываются вовлечены в перенос тепла только на расстоянии порядка

$$\Lambda = \sqrt{\frac{\kappa_{ph}}{\theta}}. \quad (20)$$

Как и следовало ожидать, чем больше эффективность передачи тепла между подсистемами, тем

меньше расстояние, на котором происходит выравнивание температур этих подсистем. Для нитрида титана это расстояние составляет порядка одного нанометра. Из-за малого расстояния, на котором происходит установление равновесия температур решетки и электронов, возникает дополнительная неточность в расчете релаксационного сопротивления, поскольку закон Фурье при таких масштабах становится неточным.

Нами показано, что около границы металл-диэлектрик существует эффект релаксационного ангармонического взаимодействия электронного газа и колебаний решетки. Этот эффект обеспечивает дополнительный вклад в скачок температуры на границе. Эффект возникает из-за того, что электроны не переносят тепло через границу и не получают на границе тепло от диэлектрика. В результате они оказываются холоднее, чем решетка.

Учет релаксационного вклада позволяет избежать трудностей, к которым приводит расчет теплосопротивления с использованием только формулы Ландауэра [12]. Действительно, из этой формулы следует, что теплосопротивление резко меняется при малом изменении коэффициента прохождения фононов, если данный коэффициент близок к единице. Это противоречит эксперименту. В указанной области коэффициент теплосопротивления, определяемый по формуле Ландауэра, мал и при учете релаксационного вклада может быть отброшен. Это и позволяет избежать указанной выше трудности.

Согласно формуле Ландауэра при температурах, близких к комнатной, сопротивление Капицы от температуры не зависит [10]. Наблюдаемая температурная зависимость сопротивления Капицы отличается от предсказываемой этой формулой. Экстраполяция данных из [13] указывает на обратно пропорциональную температуре зависимость (рис. 2), что согласуется с данными [9]. Это свидетельствует о существовании релаксационного сопротивления.

Главный результат настоящей работы состоит в установлении независимости граничного теплосопротивления от материала диэлектрика, граничащего с металлом, при условии, что коэффициент прохождения фононов на границе близок к единице. Граничное теплосопротивление зависит только от внутренних свойств металла. Разные температуры электронов и фононов имеют место и для неоднородных углеродных наноструктур, которые состоят из алмазоподобных областей с sp^3 -гибридизованными атомами углерода, являющихся диэлектриком, и гра-

фитоподобных областей с sp^2 -гибридизацией атомов, являющихся полуметаллом. Эффект, обсуждающийся в этой работе, несомненно, должен учитываться при анализе, например, эмиссии из таких структур [20, 21].

Авторы благодарны А. Я. Вулю за внимание к работе. Работа выполнена при частичной поддержке РФФИ (грант # 12-08-00174а) и фонда Династия.

1. В. Л. Гинзбург, В. П. Шабанский, ДАН СССР **100**, 445 (1955).
2. М. И. Каганов, И. М. Лифшиц, Л. В. Танатаров, ЖЭТФ **31**, 232 (1956).
3. Ш. М. Коган, ФТТ **4**, 2474 (1962).
4. А. Г. Аронов, А. С. Иоселевич, ЖЭТФ **81**, 1839 (1981) [A. G. Aronov and A. S. Ioselevich, Sov. Phys. JETP **54**, 974 (1981)].
5. G. D. Mahan, Phys. Rev. B **79**, 075408 (2009).
6. L. Zhang, P. Keblinski, J.-S. Wang, and B. Li, Phys. Rev. B **83**, 064303 (2011).
7. Z. Tian, K. Esfarjani, and G. Chen, Phys. Rev. B **86**, 235304 (2012).
8. А. П. Мейлахс, Е. Д. Эйдельман, Письма в ЖЭТФ **97**(1, 2), 42 (2013) [A. P. Meilakhs and E. D. Eidelman, JETP Lett. **97**, 38 (2013)].
9. R. M. Costescu, M. A. Wall, and D. G. Cahill, Phys. Rev. B **67**, 054302 (2003).
10. R. J. Stoner and H. J. Maris, Phys. Rev. B **48**, 16373 (1993).
11. H.-K. Lyeo and D. G. Cahill, Phys. Rev. B **73**, 144301 (2006).
12. A. M. van den Brink, Phys. Rev. B **51**, 17842 (1995).
13. R. E. Taylor and J. Morreale, J. Amer. Ceram. Soc. **47**, 2 (1963).
14. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Физическая кинетика*, Наука, М. (1979), с. 528 .
15. B. W. Karr, D. G. Cahill, I. Petrov, and J. E. Greene, Phys. Rev. B **61**, 16173 (2000).
16. W. J. Meng and G. L. Eesley, Thin Solid Films **27**, 108 (1995).
17. D. W. Field, Phys. Stat. Sol. B **123**, 479 (2006).
18. P. Patsalas and S. Logothetidis, J. Appl. Phys. **90**, 4725 (2001).
19. Р. А. Андриевский, З. М. Дашевский, Г. В. Калинин, Письма в ЖТФ **30**(22), 1 (2004).
20. А. Ю. Бабенко, А. Т. Дидейкин, Е. Д. Эйдельман, ФТТ **51**, 410 (2009) [A. Yu. Babenko, A. T. Dideikin, and E. D. Eidelman, Phys. Sol. Stat. **51**, 435 (2009)].
21. E. D. Eidelman and A. Ya. Vul', J. Phys./Cond. Matt. **19**, 266210 (2007).