

Распространение теплового импульса в ограниченной проводящей среде: термоэлектрическое детектирование

© Альваро Ф. Карбалло Санчес, Ю.Г. Гуревич, Г.Н. Логвинов*, Ю.В. Дрогобицкий*, О.Ю. Титов**

Centro de Investigacion y de Estudios del I.P.N.,
Mexico D.F. 07000, Mexico

*Тернопольский государственный педагогический университет,
282009 Тернополь, Украина

**Bar-Ilan University, Department of Physics,
Ramat-Gan 52900, Israel

E-mail: gurevich@fis.cinvestav.mx

E-mail: logvinov@ecolab.ternopil.ua

E-mail: titovo@biu.ac.il

(Поступила в Редакцию 18 мая 1998 г.)

В окончательной редакции 3 сентября 1998 г.)

Вычислено одномерное нестационарное температурное поле, возникающее в результате поглощения на поверхности ограниченного проводящего образца прямоугольного теплового импульса произвольной продолжительности. Показано, что пространственные распределения температур для длинных и коротких импульсов принципиально различны: после "выключения" короткого теплового импульса в образце возникают области локального разогрева, отсутствующие в случае длительного импульса. Рассчитан термоэлектрический отклик и указана возможность получения в рамках одного эксперимента данных о величинах коэффициентов тепло- и температуропроводности.

В последние годы заметно возрос интерес к исследованию разнообразных свойств материалов, в частности полупроводников, при возбуждении в них нестационарных тепловых процессов. В экспериментальных условиях эти процессы возбуждают либо с помощью модулированных во времени непрерывных энергетических пучков, либо единичных импульсов энергии. И в первом, и во втором случае в качестве источника внешнего возбуждения используется, как правило, лазерное излучение.

При поглощении этого излучения его энергия частично расходуется на нагревание носителей заряда и частично на генерацию электронно-дырочных пар (если энергия кванта превышает ширину запрещенной зоны). Энергетически неравновесные носители за счет электрон-фононного взаимодействия передают энергию колебаниям кристаллической решетки, в результате чего и в подсистеме носителей тока, и в фононной подсистеме возникают нестационарные тепловые потоки. Неравновесные носители тока, диффундируя в глубь образца, рекомбинируют, вызывая появление вторичных источников нестационарного нагрева.

В общем случае в этих условиях имеются три энергетически неравновесные подсистемы квазичастиц — электроны, дырки, фононы. Если все характерные времена (период модуляции или длительность импульса светового потока, времена жизни неравновесных носителей и времена энергетического взаимодействия электронов с фононами) существенно превышают характерные времена установления температурных распределений [1], то все три подсистемы квазичастиц должны описываться своей собственной неравновесной температурой.

Детектирование тем или иным способом температурных откликов вещества на воздействие внешнего из-

лучения позволяет получить обширную информацию о различных параметрах вещества, и в первую очередь, о тепловых, релаксационных и оптических. В настоящее время в режиме модулированного излучения наиболее распространенными методами являются фототермические, основанные на измерении фотоакустических, температурных, пьезоэлектрических, фотолюминесцентных и других явлений (см., например, [2,3]).

Детектируемый стационарный сигнал в общем случае формируется всеми указанными выше процессами, причем все эти процессы проявляют себя одновременно. Поэтому выделить вклад каждого из них довольно затруднительно. В связи с этим для изучения отдельных энергетических релаксационных процессов нам представляется более перспективным использование единичных тепловых импульсов.

При поглощении энергии этого импульса в образце возникают переходные релаксационные процессы, каждый из которых характеризуется своим временем релаксации, причем последние зачастую имеют разный масштаб. По этой причине каждый из них можно в принципе изучать в отдельности.

Вопросы, связанные с экспериментальным изучением переходных релаксационных процессов в полупроводниках, обсуждались в работах [4,5]. В них описана новая методика, основанная на измерении переходной термо-эдс, возникающей в полупроводниковом образце после лазерного импульсного облучения.

Измерение термо-эдс как выходного сигнала в фототермических экспериментах в полупроводниках представляется весьма перспективным по причине своей простоты, высокой точности измерений, отсутствии промежуточных сред для превращения одного вида сигнала

в другой, возможности зондирования температуры вдоль образца.

В последние годы появились сообщения и о других импульсных методиках. Так, например, в работе [6] с помощью измерения моментальных значений пироэлектрических откликов удается сравнительно просто получить данные о величине температуропроводности для различных полимерных пленок. Однако измеряемый моментальный отклик удовлетворительно согласуется с теоретическими результатами лишь при достаточно длительных импульсах, что, по словам самих же авторов, снижает эффективность измерений.

Развитие импульсных тепловых методик и полученные с их помощью экспериментальные результаты явились стимулом для построения адекватной теории соответствующих тепловых процессов в полупроводниках, первая часть которой и представляется данной работой.

С теоретической точки зрения решение задачи о переходных тепловых релаксационных процессах в полупроводниках в общем виде не представляется возможным из-за своей сложности. В связи с этим в данном сообщении ограничимся наиболее простой моделью. Будем считать, что в изучаемом образце неравновесные температуры всех квазичастиц одинаковы, а поглощение импульса энергии происходит на поверхности. Такая модель может быть реализована, например, в полупроводниках с n - или p -типом проводимости с достаточно сильным электрон-фононным энергетическим взаимодействием при плотном контакте полупроводника с металлической пленкой, поглощающей энергию падающего излучения и трансформирующей ее в тепло. Заметим, что сформулированная модель является точной для описания распространения теплового импульса в металлах и непрозрачных диэлектриках.

1. Вычисление нестационарного температурного поля $T(x)$

В отсутствие объемных источников тепла плотность потока тепла \mathbf{Q} и локальная температура $T(r, t)$, где r — радиус-вектор, t — время, обычно связываются между собой известным соотношением Фурье

$$\mathbf{Q} = -\kappa \nabla T, \quad (1)$$

где κ — коэффициент теплопроводности.

Само же уравнение теплопроводности, отражающее закон сохранения энергии, относится к параболическому типу и в одномерном случае имеет следующий вид:

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}, \quad (2)$$

где $D = \frac{\kappa}{\rho c}$ — коэффициент температуропроводности, ρ — плотность материала, c — его удельная теплоемкость.

Заметим, что имеется много работ (см., например, [7,8]), где утверждается, что уравнение (2) предполагает бесконечную скорость распространения тепла и

поэтому в общем случае неверно. Учет конечности этой скорости указанными авторами предполагает модификацию соотношения (1)

$$\mathbf{Q} + \tilde{\tau} \frac{\partial \mathbf{Q}}{\partial t} = -\kappa \nabla T, \quad (3)$$

которое совместно с законом сохранения энергии приводит к уравнению теплопроводности "телеграфного вида"

$$\frac{\partial T}{\partial t} + \tilde{\tau} \frac{\partial^2 T}{\partial t^2} = D \frac{\partial^2 T}{\partial x^2}. \quad (4)$$

Здесь $\tilde{\tau}$ — некоторый параметр, имеющий размерность времени.

Во всех работах, посвященных обсуждению этого вопроса, не раскрывается, однако, физический смысл параметра $\tilde{\tau}$; указывается только, что это некое время релаксации, связанное со свойствами материала. В том случае, когда оно стремится к нулю, уравнение (4) трансформируется в уравнение (2). Это означает, что, если продолжительность импульса τ или характерное время модуляции много больше $\tilde{\tau}$, можно пользоваться уравнением (2); если указанные времена меньше или порядка $\tilde{\tau}$, необходимо использовать уравнение (4). С нашей точки зрения, однако, последнее утверждение неверно, так как время релаксации $\tilde{\tau}$ не может быть не чем иным, как временем установления температуры в системе. Поэтому, если продолжительность импульса или период модуляции меньше или порядка $\tilde{\tau}$, температура в образце не успевает установиться и тепловые процессы не описываются в терминах температуры вообще.

Пусть на левую поверхность $x = 0$ однородного и изотропного образца, выбранного в форме параллелепипеда с единичной площадью поперечного сечения, падает прямоугольный тепловой импульс длительностью τ и интенсивностью Q_0 . Правая поверхность $x = l$ контактирует с окружающей средой с фиксированной температурой T_0 . Боковые грани образца считаются теплоизолированными.

В общем случае тепловой поток через поверхность $x = l$ должен определяться ньютоновским граничным условием

$$Q(x=l) = h[T(x=l) - T_0],$$

где h — параметр, определяющий интенсивность теплообмена между образцом и окружающей средой; $T(x=l)$ — температура образца в точке $x=l$.

В предельных случаях $h \rightarrow 0$ и $h \rightarrow \infty$ записанное выше соотношение определяет соответственно адиабатический [$Q(x=l) = 0$] и изотермический [$T(x=l) = T_0$] контакты. Заметим, что в рассматриваемой задаче адиабатическое граничное условие несовместимо с граничным условием на поверхности $x=0$. Это следует из того, что по истечении действия теплового импульса ($t > \tau$) тепловой поток слева равен нулю, и поэтому его вытекание возможно только через поверхность $x=l$, что невозможно при адиабатическом граничном условии.

Второй предельный случай изотермического контакта полностью совместим с граничным условием на поверхности $x = 0$ для любого момента времени. Именно он и рассматривается в данной работе.

Для определения температурного поля $T(x, t)$, формирующегося под влиянием падающего теплового импульса, разобьем весь временной интервал на два

$$\text{а) } 0 < t \leq \tau,$$

$$\text{б) } t > \tau.$$

Далее считается, что интенсивность Q_0 , а значит изменения температуры в образце достаточно малы, так что все кинетические коэффициенты зависят только от температуры T_0 , и поэтому исходное уравнение (2) предполагается линейным.

В интервале $0 < t \leq \tau$ граничные и начальные условия к уравнению (2), согласно постановке задачи, имеют следующий вид:

$$\left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} = -\frac{Q_0}{\kappa}, \quad (5)$$

$$T(x, t) \Big|_{x=l} = T_0, \quad (6)$$

$$T(x, t) \Big|_{t=0} = T_0. \quad (7)$$

Общее решение уравнения (2) с граничными и начальными условиями (5)–(7) имеет следующий вид:

$$T(x, t) = T_0 + \frac{Q_0}{\kappa}(l-x) - \frac{8l}{\pi^2} \frac{Q_0}{\kappa} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\cos \left[(2k+1) \frac{\pi x}{2l} \right]}{(2k+1)^2} \times \exp \left[-(2k+1)^2 \frac{\pi^2 D}{4l^2} t \right]. \quad (8)$$

Заметим, что решение (8) соответствует установлению статического температурного распределения после включения теплового потока [9].

В момент времени $t = \tau$ приток тепла в образец прекращается и решение (8) для этого момента времени служит начальным условием к уравнению (2) для интервала $t > \tau$. Граничные условия для этого временного интервала задаются такими соотношениями

$$\left. \frac{\partial T}{\partial x} \right|_{x=0} = 0, \quad (9)$$

$$T(x, t) \Big|_{x=l} = T_0. \quad (10)$$

Решение в этом случае описывается функцией

$$T(x, t) = T_0 + \frac{8l}{\pi^2} \frac{Q_0}{\kappa} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\cos \left[(2k+1) \frac{\pi x}{2l} \right]}{(2k+1)^2} \times \left\{ \exp \left[(2k+1)^2 \frac{\pi^2 D}{4l^2} \tau \right] - 1 \right\} \times \exp \left[-(2k+1)^2 \frac{\pi^2 D}{4l^2} t \right]. \quad (11)$$

Из выражения (8) можно получить критерий, выполнения которого обеспечивает линейность уравнения (2). Зависимостью кинетических коэффициентов κ , ρ , c от координат можно пренебречь, если $T(x, t) - T_0 \ll T_0$, т.е. интенсивность падающего импульса должна удовлетворять соотношению

$$Q_0 \ll \frac{\kappa T_0}{l}. \quad (12)$$

2. Анализ температурных распределений

Из полученных результатов (8) и (11) видно, что характер температурных распределений зависит от параметра $\tau_0 = \frac{4l^2}{\pi^2 D}$, имеющего размерность времени. По своему физическому смыслу это макроскопическое время релаксации температурной флуктуации во всем объеме образца, возникающей под влиянием теплового возмущения.

Как следует из формул (8) и (11), на характер температурной зависимости от координаты и времени существенно влияет соотношение между временами τ и τ_0 . Поскольку эти параметры независимы, то может реализоваться как ситуация $\tau \gg \tau_0$ (длительные импульсы), так и $\tau \ll \tau_0$ (короткие импульсы). Заметим, что при фиксированных физических параметрах вещества критерий длительность импульса существенно зависит от геометрических размеров образца (в данном случае от его длины).

Характерная двумерная зависимость функции $\Theta(\eta, \zeta) = \frac{\kappa}{Q_0 l} [T(\eta, \zeta) - T_0]$, где $\eta = \frac{x}{l}$, $\zeta = \frac{t}{\tau}$, для, например, короткого импульса представлена на рис. 1. Хорошо видно, что в этом случае функция $\Theta(\eta, \zeta)$, а значит и функция $T(x, t)$, является нелинейной по обоим аргументам. Более того, она является немонотонной по переменной t . Очевидно, что эта особенность должна отразиться на особенностях термоэлектрического сигнала, появляющегося в образце.

При длительных импульсах образец экспоненциально быстро (за время $\sim \tau_0$) нагревается и долгое время ($\sim \tau$) находится в состоянии, близком к стационарному. После "выключения" теплового импульса температура $T(x, t)$ экспоненциально быстро (также за время $\sim \tau_0$) стремится к своему равновесному значению T_0 . При $\tau_0 < t$ температура с большой степенью точности является линейной функцией координат. Процессы нагрева и релаксации сопровождаются монотонным возрастанием и убыванием температуры во времени в каждой точке образца.

Иная картина наблюдается при прохождении через образец короткого импульса ($\tau \ll \tau_0$) рис. 2 и 3. В данном случае в процессе нагрева ($0 < t \leq \tau$) квазистационарные состояния отсутствуют, а пространственное распределение температур существенно нелинейно в каждый из моментов времени (рис. 2, а). При $\tau/\tau_0 \ll 1$ ряд (11), определяющий релаксационный процесс, медленно сходится, и k -ой гармонике можно сопоставить

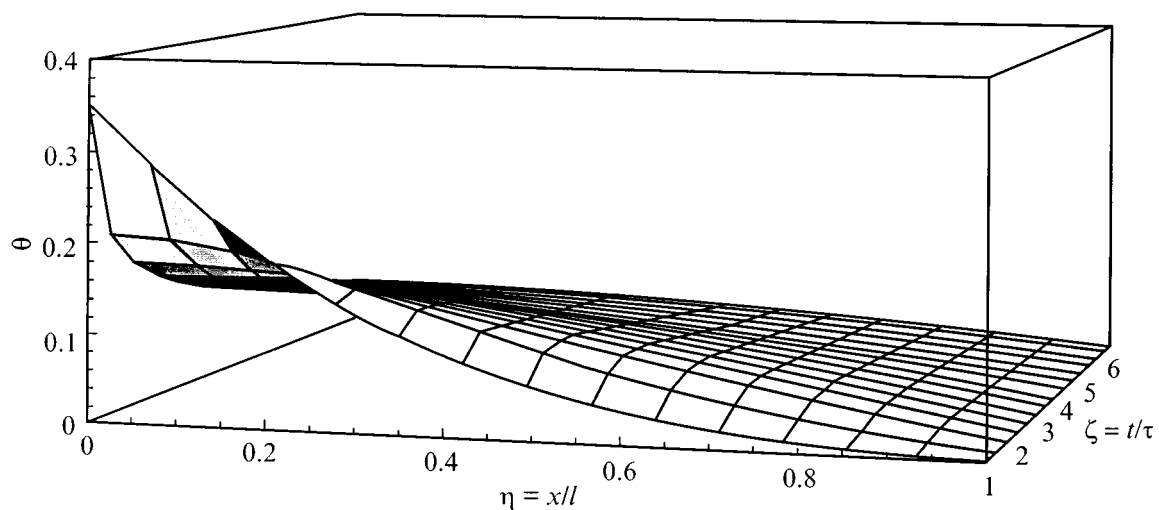


Рис. 1. Двумерная зависимость функции $\Theta(\eta, \zeta)$ для короткого импульса ($\tau = 0.1\tau_0$) после его выключения.

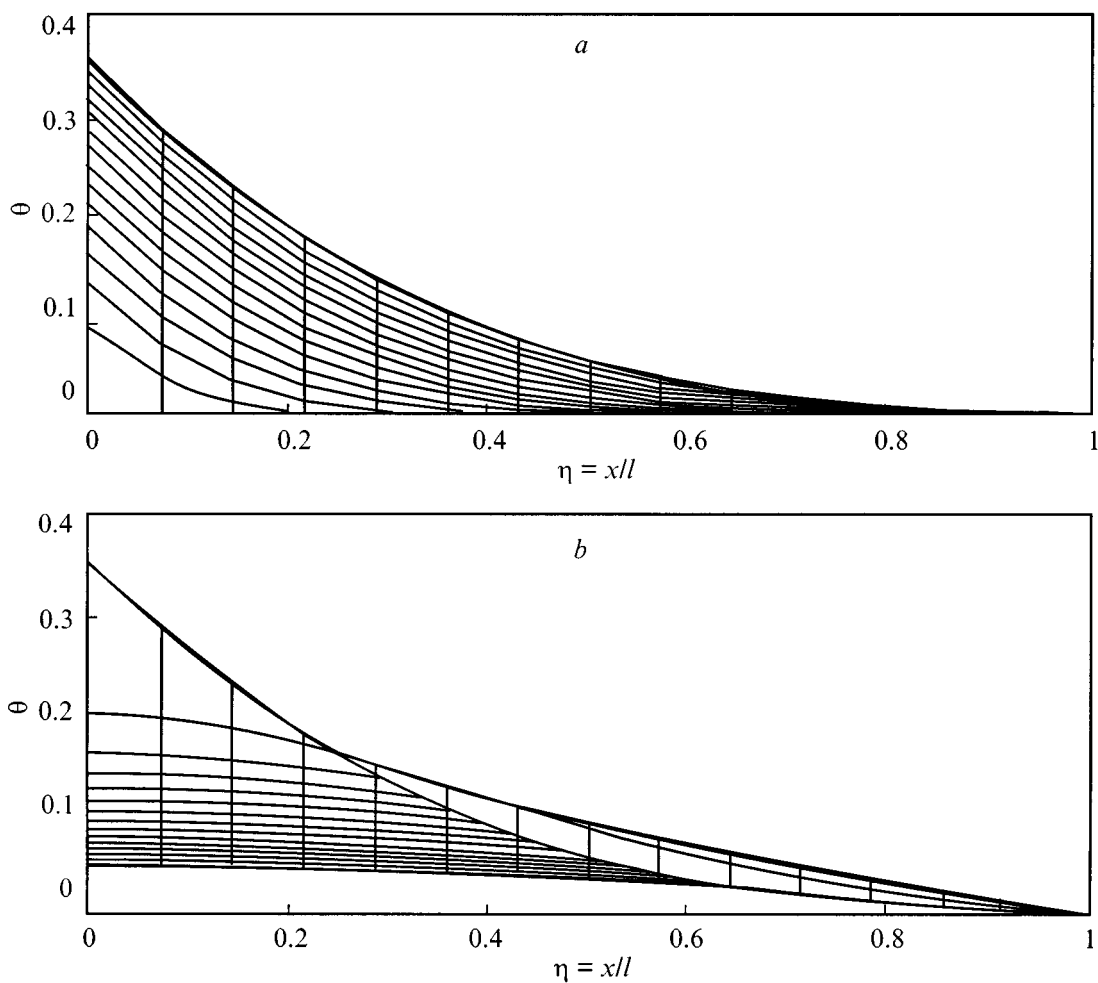


Рис. 2. Динамика пространственных распределений функции $\Theta(\eta, \zeta)$ для короткого импульса ($\tau = 0.1\tau_0$). *a* — в интервале времени $0 < t \leq \tau$; *b* — в интервале времени $t > \tau$.

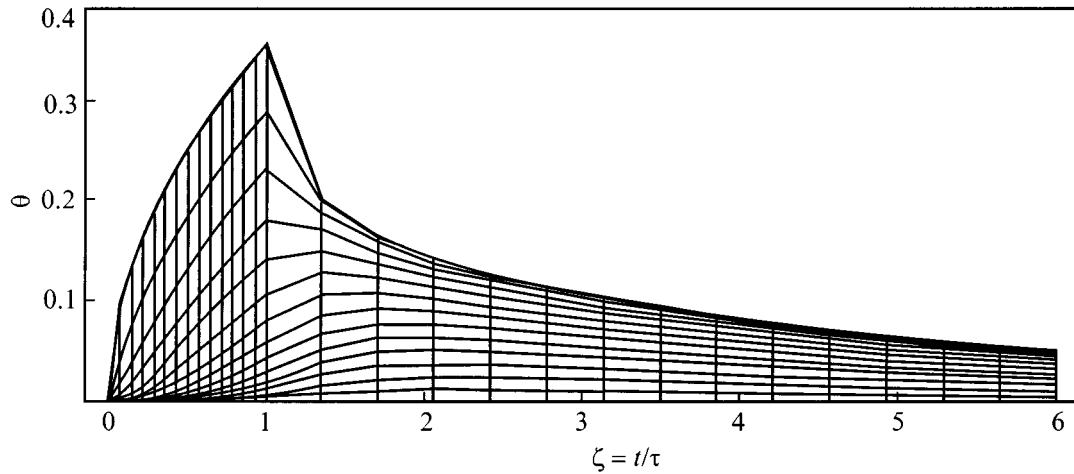


Рис. 3. Зависимость функции $\Theta(\eta, \zeta)$ от безразмерного параметра $\zeta = t/\tau$ в различных точках образца для короткого импульса ($\tau = 0.1\tau_0$).

свое время релаксации $\tau_k = \frac{\tau_0}{(2k+1)^2}$. Поскольку $\tau_k < \tau_0$, то каждая последующая гармоника затухает быстрее предыдущей, и поэтому весь релаксационный процесс в образце после выключения импульса характеризуется временем τ_0 (рис. 3).

Существенным отличием от предыдущего случая является наличие областей пространства, в которых наблюдается немонотонное во времени поведение температуры в процессе релаксации теплового возмущения (рис. 2, b). С физической точки зрения это поведение можно понять следующим образом. Выделим в образце слой, лежащий между плоскостями $x = 0$ и $x' = \frac{\pi}{2}\sqrt{D\tau}$. При $\tau < \tau_0$ (x' при этом лежит между 0 и 1) в течение действия теплового импульса в этом слое успеет установиться квазистационарное температурное распределение. Поэтому после "выключения" импульса функция $T(x, t)$ в этом слое для всех моментов времени $t > \tau$ будет качественно вести себя так же, как и во всем образце при длительном импульсе ($\tau > \tau_0$), т.е. сохранять свой монотонный характер, будучи при $t = \tau$ линейной функцией координат. При $x > x'$ постоянство градиента температуры нарушается, в результате чего в любом слое с поверхностями $x > x'$ вытекающие потоки тепла превышают вытекающие, и происходит локальный разогрев при общем тепловом релаксационном процессе.

Очевидно, что в точке $x > x'$ температура максимальна в момент времени

$$t'' = \tau + \frac{4}{\pi^2} \frac{(x'' - x')^2}{D}. \quad (13)$$

В том случае, когда $x' \geq 1$ ($\tau > \tau_0$, длительный импульс), области локального разрыва естественно отсутствуют, так как за время действия импульса во всем образце успевает установиться квазистационарное температурное распределение.

3. Расчет термоэлектрического отклика

Хорошо известно, что пространственная неоднородность температуры в замкнутой неоднородной цепи приводит к появлению в ней термо-эдс. Наиболее ощутимо этот эффект проявляется в полупроводниках из-за большого значения дифференциального коэффициента термо-эдс α по сравнению с другими проводящими материалами [10] и сильной зависимостью химического потенциала носителей заряда от температуры. В условиях разомкнутой цепи термо-эдс, измеряемая между торцевыми поверхностями образца,

$$E(t) = - \int_0^l \alpha \frac{dT(x, t)}{dx} dx = \alpha [T(x=0, t) - T_0]. \quad (14)$$

Принимая во внимание первоначальные условия задачи и используя выражения (8) и (11), легко можно получить, что

$$E(t) = \alpha \frac{Q_0 l}{\kappa} \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\exp\left(- (2k+1)^2 \frac{t}{\tau_0}\right)}{(2k+1)^2} + \Theta(t-\tau) \times \alpha \frac{Q_0 l}{\kappa} \left\{ 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\exp\left(- (2k+1)^2 \frac{t-\tau}{\tau_0}\right)}{(2k+1)^2} \right\}, \quad (15)$$

где $\Theta(t-\tau) = \begin{cases} 0, & t \leq \tau \\ 1, & t > \tau \end{cases}$ — функция Хевисайда [11].

Термо-эдс, рассчитанная на единицу теплового потока $\varepsilon(t) = \frac{E(t)}{Q_0} [\frac{\mu V}{Q_0} \times 10^{-3}]$ для различных соотношений между τ и τ_0 приведена на рис. 4 (в расчетах приняты параметры Si: $\alpha = 0.4 \frac{\mu V}{K}$ [12], $\kappa = 0.96 \frac{W}{cmK}$ [13], $T_0 = 300 K$, $\tau = 10^{-8} s$, $l = 1 cm$).

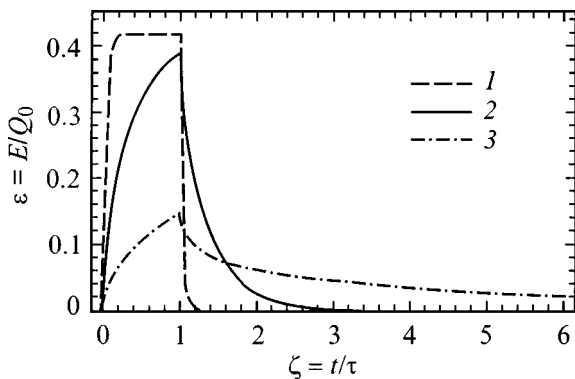


Рис. 4. Термоэлектрический отклик для различных по длительности тепловых импульсов. τ : 1 — $10\tau_0$; 2 — τ_0 ; 3 — $0.1\tau_0$.

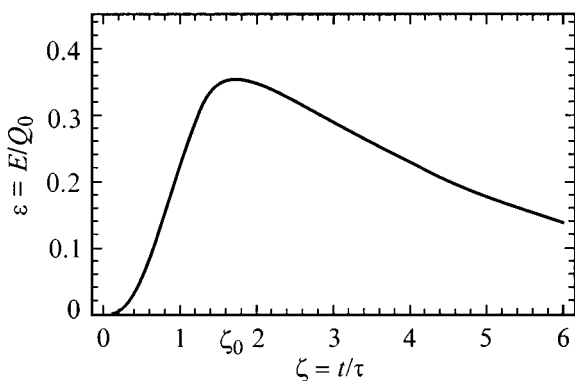


Рис. 5. Термоэлектрический отклик на короткий импульс ($\tau = 0.1\tau_0$) при измерении термо-эдс между сечениями $x = x''$ и $x = l$; $\zeta_0 = 1 + \frac{(x'' - x')^2}{D\tau}$.

Характерной особенностью графиков является наличие острых максимумов термо-эдс для коротких и промежуточных по продолжительности тепловых импульсов. Для длительных импульсов острые максимумы вырождаются в горизонтальное плато, что вполне согласуется с физическими представлениями. При $\tau \gg \tau_0$ задачи схожи с нахождением термо-эдс при постоянно действующем внешнем возмущении.

Из графиков хорошо видно, что увеличение продолжительности импульсов сопровождается увеличением максимальных значений термоэлектрических откликов. Времена же их релаксации (при выполнении соотношения (12)) остаются неизменными.

Измерение времени релаксации термоэлектрического отклика и величины его максимальной амплитуды дает возможность определения в рамках одного эксперимента таких важных тепловых параметров, как коэффициент температуропроводности D и коэффициент теплопроводности κ .

Как указывалось выше, при $t > \tau$ в сечении $x = 0$ температура, а вместе с ней и термо-эдс являются монотонно убывающими функциями времени. Если же термо-эдс измерять между точками $x'' > x'$ и $x > l$, то

в случае коротких импульсов ($\tau < \tau_0$) на зависимости термо-эдс от времени появляется максимум, координата которого определяется не моментом времени $t = \tau$, а соотношением (13) (рис. 5). Благодаря этому возникает возможность прямого и значительно более точного (чем в предыдущем случае) определения величины D .

Один из авторов (Г.Н.Л.) выражает благодарность доктору Герардо Гонзалезу де ла Крузу и доктору Ю.Г. Гуревичу, а также сотрудникам департамента физики твердого тела CINVESTAV (г. Мехико) за гостеприимство.

Список литературы

- [1] Ф.Г. Басс, В.С. Бочков, Ю.Г. Гуревич. Электроны и фононы в ограниченных полупроводниках. Наука, М. (1984). 287 с.
- [2] A. Rosencwaig, A. Gersho. J. Appl. Phys. **47**, 64 (1976).
- [3] A. Mandelis. Photoacoustic and Thermal Waves Phenomena in Semiconductors. North-Holland (1987).
- [4] M. Sasaki, H. Negishi, M. Inoue. J. Appl. Phys. **59**, 796 (1986).
- [5] V.A. Kolbachinski, Z.M. Dashevskii, M. Inoue, M. Sasaki, H. Negishi, W.X. Gao, P. Lostak, J. Horak, A. De Visser. Phys. Rev. **B52**, 10915 (1995).
- [6] S. Bauer, A.S. De Reggi. J. Appl. Phys. **80**, 6124 (1996).
- [7] D.D. Joseph, L. Presiosi. Rev. Mod. Phys. **61**, 41 (1989).
- [8] M.A. Olivares-Robles, L.S. Carsia-Colin. J. Non-Equil. Thermodyn. **21**, 361 (1996).
- [9] H.S. Carslaw, J.C. Jaeger. Conduction of Heat in Solids. Clarendon, Oxford (1947).
- [10] А.Ф. Иоффе. Полупроводниковые термоэлементы. Изд-во АН СССР, М.-Л. (1960). 188 с.
- [11] Г. Корн, Т. Корн. Справочник по математике для научных работников и инженеров. Наука, М. (1973). 831 с.
- [12] T.H. Gebal, C.W. Hull. Phys. Rev. **98**, 940 (1955).
- [13] П.И. Баранский, В.П. Клачков, И.В. Потыкевич. Полупроводниковая электроника. Справочник. Наук, думка, Киев (1975). 704 с.