

Un accès privilégié aux transferts de chaleur dans le palladium

Joëlle Fréchette-Viens

12 août 2016

Résumé

La chaleur : un concept tellement familier qu'on le vit chaque jour sans se poser de questions. Mais qu'est-ce que la chaleur exactement ? De quelle façon se transfère-t-elle dans les métaux ? Je me suis intéressée à cette dernière question dans le cadre d'un stage T0 dans l'équipe du Pr. Bertrand Reulet, au Département de physique de l'Université de Sherbrooke. J'ai étudié les transferts de chaleur dans des micro-fils de palladium, un métal rare aux propriétés surprenantes.

L'équipe de recherche du Pr. Reulet se spécialise dans l'étude du bruit électronique. Le bruit électronique est une fluctuation du signal électrique mesuré aux bornes d'un matériau causée par plusieurs phénomènes, dont l'agitation aléatoire des électrons due à la température. Ce bruit est facilement mesurable avec une diode et un simple multimètre. Puisqu'il est directement relié à la température des électrons, on peut s'en servir comme thermomètre. Les phénomènes de transfert de chaleur qui nous intéressent ici sont invisibles à « haute » température, c'est-à-dire qu'ils sont trop rapides pour être perceptibles à plus de quelques degrés au-dessus du zéro absolu. Pour pouvoir les étudier, il faut travailler à froid : on doit utiliser des cryostats refroidis à l'hélium liquide pouvant atteindre jusqu'à 7 millikelvins, c'est-à-dire $-273,14$ °C.

1 Quelques concepts essentiels

Lorsqu'un flux d'énergie est envoyé dans un fil de métal, les électrons à l'intérieur de celui-ci se réchauffent d'un certain nombre de degrés. L'énergie nécessaire pour faire augmenter la température du fil d'un degré se nomme la *capacité calorifique*. Cette grandeur représente la quantité de chaleur stockée dans les électrons.

Après l'arrêt du chauffage, les électrons ont besoin d'un certain temps pour relâcher la chaleur emmagasinée. Ce temps se nomme le *temps de relaxation*. Deux mécanismes de relaxation ont lieu dans les fils que j'ai étudiés cet été. Le premier est la relaxation par diffusion : les électrons chauds se déplacent jusqu'au bout du fil et sortent, laissant de la place pour des électrons froids. Ce processus dépend évidemment de la longueur L du fil :

plus il est long, plus les électrons mettent du temps à en sortir. On représente le temps de relaxation associé par τ_D .

Le deuxième mécanisme de relaxation des électrons est l'émission de phonons. Les phonons sont des vibrations des atomes de palladium qui forment un réseau cristallin sous-jacent dans le fil. Un électron chaud peut perdre de l'énergie en interagissant avec le réseau. L'énergie transférée au cours de l'interaction crée une onde, qui est par la suite transmise et dissipée dans le substrat sous l'échantillon. Ici, le substrat est une plaquette de silicium. On peut aussi associer un temps de relaxation à ce phénomène, qu'on note τ_{eph} . Comme nous le verrons un peu plus bas, ce temps dépend de la température, ce qui n'est pas le cas du temps τ_D .

2 Méthode de détermination des temps de relaxation

Pour mesurer les temps de relaxation, il suffirait de chauffer les électrons et de mesurer le temps nécessaire pour qu'ils retrouvent leur température initiale. Cependant, les mesures dans le domaine temporel posent plusieurs problèmes techniques, dont celui de la calibration. J'ai donc adapté l'expérience afin de mesurer les fréquences de relaxation plutôt que les temps.

L'idée est simple : on envoie une puissance de chauffage oscillant à une fréquence f_p et on regarde si la température des électrons suit cette oscillation. Si la fréquence de chauffage est plus petite que la fréquence de relaxation, les électrons auront le temps de refroidir avant d'être chauffés de nouveau (voir figure 1a). Dans le cas contraire, c'est-à-dire si f_p est plus élevée, ils n'auront pas le temps (voir figure 1b). L'amplitude de variation de leur température selon le temps, δT , sera donc plus faible. Si on mesure l'amplitude de la variation de température en fonction de la fréquence, δT_f , on pourra repérer la fréquence de coupure f_c où l'amplitude se met à chuter. Cette fréquence dépend des phénomènes de relaxation en jeu.

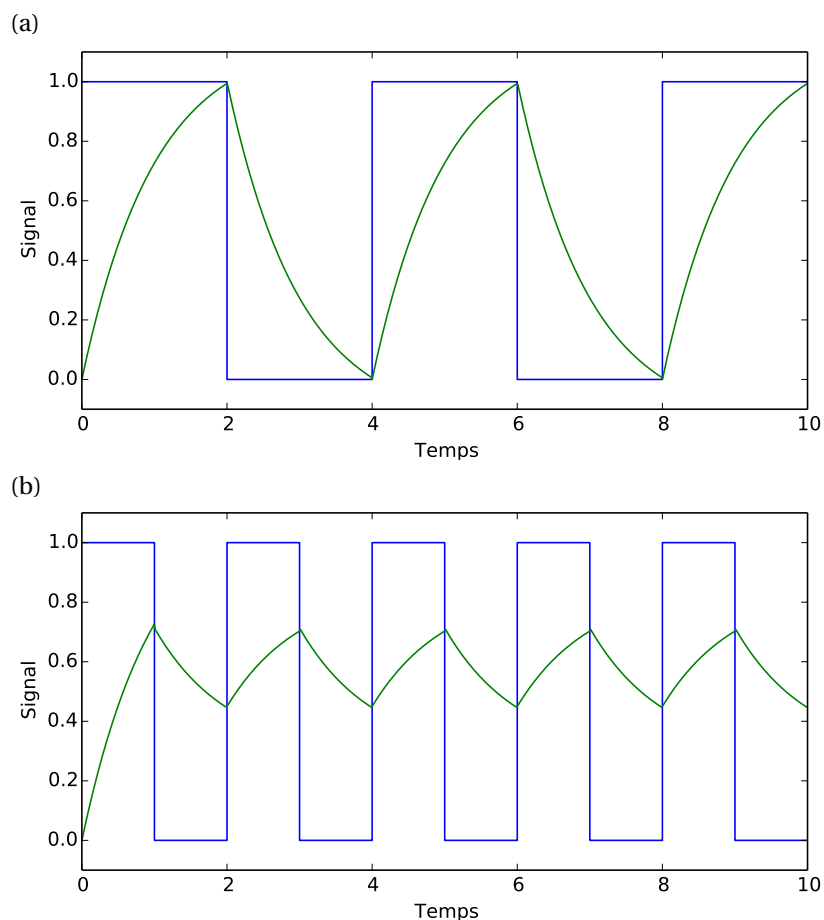


FIGURE 1 – En vert : évolution de la température des électrons dans le temps lorsque (a) $f_p < f_c$ (b) $f_p > f_c$. La puissance de chauffage est illustrée en bleu.

Mais comment mesurer l'amplitude de la température? On peut utiliser le bruit des électrons comme thermomètre ultra-rapide. En effet, les fluctuations de tension S aux bornes du fil de palladium sont proportionnelles à la température T_e des électrons. C'est ce qu'on appelle le bruit de Johnson :

$$S = 2Rk_B T_e \quad (1)$$

k_B est la constante de Boltzmann et R la résistance du fil. On a donc une relation entre la tension en sortie et la température des électrons.

Et comment envoyer de la « chaleur alternative »? Il suffit d'envoyer une tension alternative V dans l'échantillon. Par effet Joule, les électrons seront soumis à une puissance alternative de chauffage $P = \frac{V^2}{R}$ suivant la tension.

Le schéma de l'expérience est présenté à la figure 2. J'envoie une puissance de chauffage dans l'échantillon à l'aide des sources de tension. Le diplexeur permet d'empêcher la tension

de chauffage (basse fréquence) de se rendre jusqu'au canal de mesure. Le bruit de l'échantillon est donc mesuré à haute fréquence (entre 1 et 5 GHz). Il est amplifié par la chaîne de mesure puis redressé avec une diode, pour finalement être mesuré avec un voltmètre.

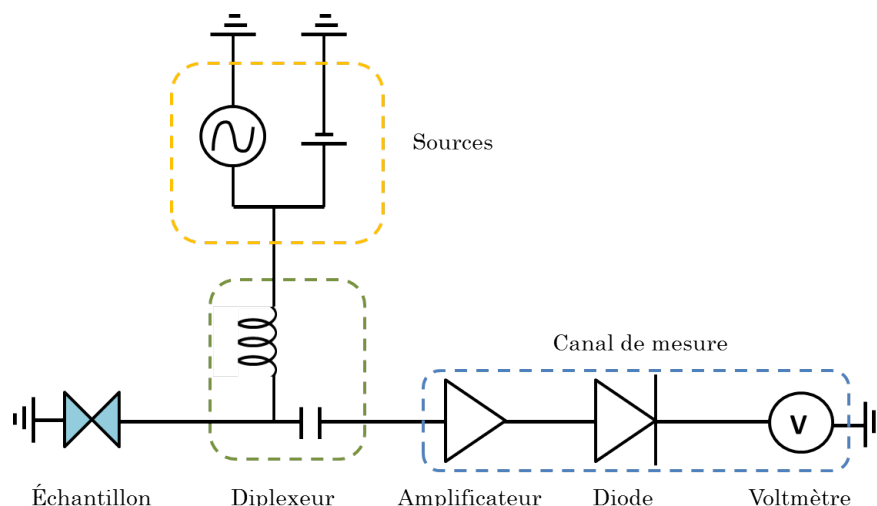


FIGURE 2 – Schéma du montage utilisé. Un diplexeur est utilisé à l'intersection pour séparer les hautes et les basses fréquences. Les sources permettent de chauffer l'échantillon avec une puissance alternative. La chaîne de mesure permet d'obtenir l'amplitude de variation de température des électrons.

3 Résultats expérimentaux

J'ai appliqué cette technique à un micro-fil de palladium de $25\ \mu\text{m}$ (voir l'annexe A pour les détails de la fabrication de l'échantillon). La mesure de δT_f en fonction de la fréquence permet d'obtenir une courbe telle que celle représentée sur la figure 3. On peut bien distinguer les deux types de régime qu'on avait vus sur la figure 1. Le plateau dans la région (a) correspond au régime $f_p < f_c$, tandis que la chute de l'amplitude dans la région (b) correspond au régime $f_p > f_c$.

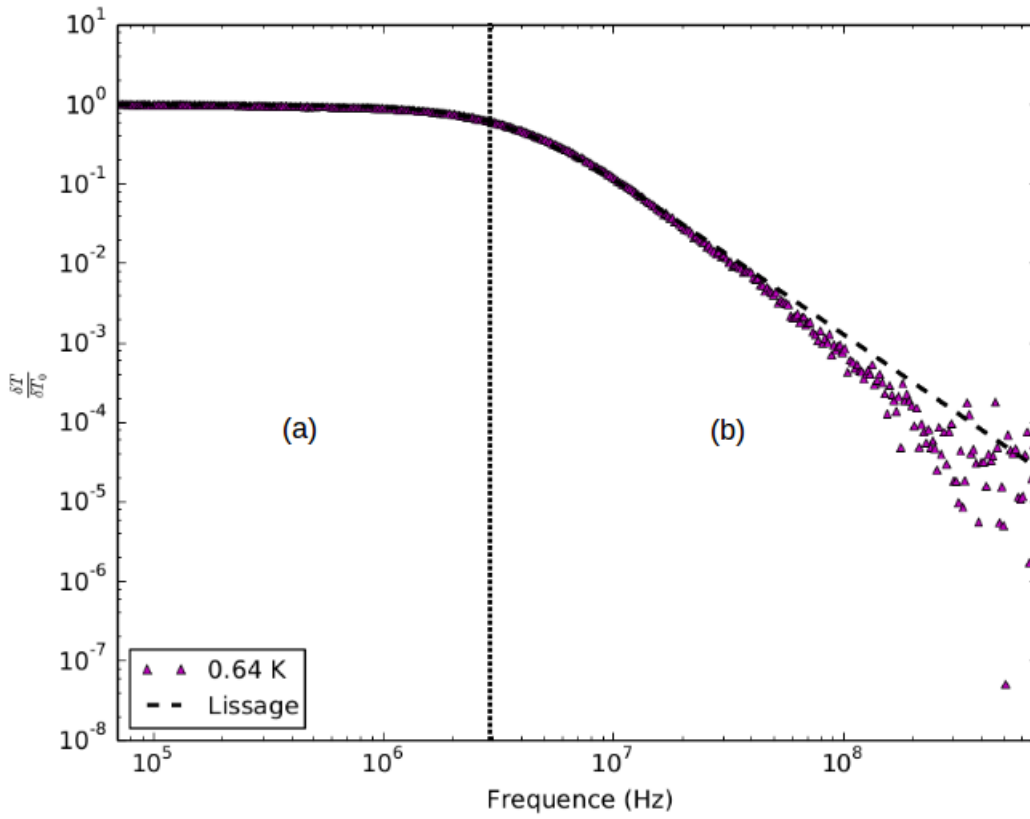


FIGURE 3 – Amplitude de variation de la température normalisée à basse fréquence. Ici, f_c vaut environ 5,2 MHz.

L'évolution de δT_f en fonction de la fréquence a été prédite théoriquement et suit une fonction lorentzienne de la forme suivante :

$$\frac{\delta T}{\delta T_0} = \frac{1}{1 + \left(2\pi \frac{f}{f_c}\right)^2} \quad (2)$$

Grâce à un lissage des données avec cette fonction, je peux extraire la fréquence de coupure f_c , qui correspond à la fréquence de relaxation des électrons. On constate un très bon accord entre la théorie et l'expérience.

Je répète ensuite la mesure en changeant la température d'équilibre. Ceci permet d'obtenir une courbe de la fréquence de relaxation en fonction de la température d'équilibre des électrons (figure 4).

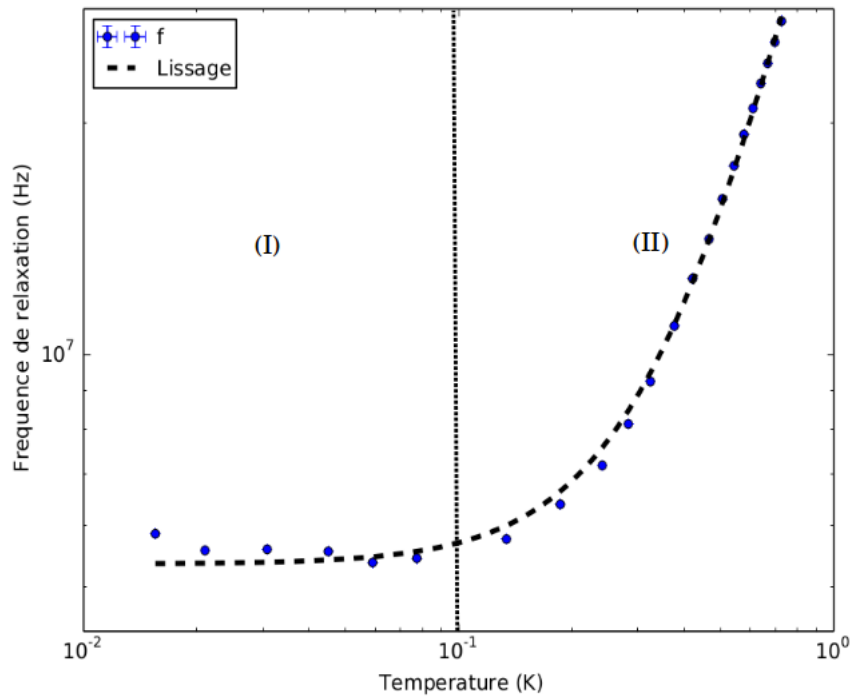


FIGURE 4 – Fréquence de relaxation des électrons en fonction de leur température d'équilibre

Dans la région (I), c'est-à-dire pour des températures inférieures à 0,1 K, on observe que la fréquence de relaxation des électrons est indépendante de la température, tel qu'attendu dans le cas de la relaxation par diffusion. Dans ce régime, on obtient une mesure directe de $\tau_D = \frac{1}{f_D}$.

Dans la région (II), au contraire, la fréquence de relaxation augmente avec la température et tend vers une loi de puissance. Ce comportement est caractéristique d'une relaxation par électron-phonon. L'étude de ce régime permet de déterminer l'exposant associé, qui dépend du matériau utilisé et qui cause bien des débats dans la communauté.

À l'heure actuelle, il n'y a pas de théorie qui permette le calcul de f_c dans le régime intermédiaire. En première approximation, on peut supposer qu'en présence de deux phénomènes de relaxation, les fréquences de relaxation s'additionnent :

$$f_c = f_D + f_{eph} = \frac{1}{\tau_D} + \frac{1}{\tau_{eph}} = \frac{1}{\tau_D} + AT^n \quad (3)$$

A est une constante de couplage entre les deux régimes et n est un exposant dont la valeur se situe entre 2 et 4. Dans notre cas, on obtient $\tau_D = 18,6$ ms et $n = 2,1$.

À partir des temps de relaxation, on cherche à obtenir la capacité calorifique du palladium. Souvenons-nous que celle-ci représente la quantité de chaleur stockée dans les électrons. Lors d'une mesure de transport thermique, elle est liée à la conductivité thermique du matériau et au temps de relaxation τ :

$$C = G_{th}\tau \quad (4)$$

J'ai calculé la capacité calorifique du palladium dans le régime où la relaxation est dominée par le temps de diffusion τ_D déterminé plus haut. Pour ce faire, il a fallu que je détermine la valeur de G_{th} .

À très basse température, les électrons transportent à la fois la chaleur et la charge. Il y a donc un lien entre la conductivité thermique G_{th} de l'échantillon et sa conductivité électrique G_e . Ce lien est donné par la loi de Wiedemann-Franz :

$$G_{th} = LTG_e \quad (5)$$

L est la constante de Lorentz et T est la température. J'ai déterminé G_e par une mesure de résistance. Il ne reste plus qu'à multiplier la valeur obtenue par τ_D pour obtenir la capacité calorifique qui doit être proportionnelle à la température ($C = \gamma T$).

J'ai obtenu $\gamma = 730 \text{ J.K}^{-2}.\text{m}^{-3}$ comparativement à la valeur expérimentale $\gamma = 1062 \text{ J.K}^{-2}.\text{m}^{-3}$ obtenue dans la littérature. La différence entre les deux résultats peut s'expliquer par la présence d'impuretés dans l'échantillon.

J'ai pu déterminer grâce à cette méthode les temps de diffusion et d'interaction électron-phonon dans le palladium, qui sont des paramètres importants dans les cristaux. J'ai aussi pu déterminer la capacité calorifique en combinant les mesures de relaxation à des mesures de résistivité. Cette grandeur est très importante, car elle donne de l'information sur la masse des électrons dans les cristaux qui peut être différente de celle des électrons dans le vide. En présence d'interaction, les électrons se comportent comme s'ils avaient une masse différente qu'on appelle « masse effective ». Dans le palladium, par exemple, les électrons sont alourdis par des interactions avec le réseau. Mais ça ne s'arrête pas là : le palladium est également un matériau magnétique. En présence d'un champ magnétique, on voit apparaître des corrélations magnétiques qui vont modifier la masse effective. Ce sera l'objet des prochaines mesures sur ce drôle de métal.

Annexe A : Fabrication de l'échantillon

J'ai fabriqué l'échantillon de palladium étudié en salle propre dans le Département de physique de l'Université. Une salle propre est un endroit où le nombre de particules dans l'air est très faible afin de permettre la fabrication de micro-composants sans impuretés. L'échantillon que j'ai fabriqué est un fil de $25 \mu\text{m} \times 1.32 \mu\text{m} \times 30 \text{ nm}$ bordé par deux « réservoirs » d'électrons. Les réservoirs sont une grande quantité de métal permettant de délimiter le fil.

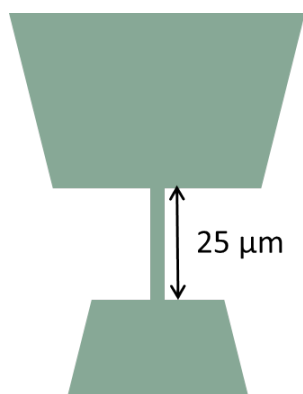


FIGURE 5 – Échantillon utilisé (n'est pas à l'échelle). En réalité, le fil est de taille négligeable par rapport aux réservoirs.

Un échantillon d'aussi petite taille se fabrique à l'aide d'un appareil de photolithographie (« impression par lumière »). Sur une petite plaquette de silicium, il faut déposer de la résine sensible aux rayons ultraviolets (UV). Puis, je dessine mon échantillon dans un fichier et l'appareil le reproduit en rayons UV sur la résine. Je trempe ensuite l'échantillon dans un produit qui dissout la résine atteinte par les UV. Cela forme un « trou » dans la résine de la forme de l'échantillon voulu. Ainsi, la plaquette de silicium est entièrement masquée par la résine, sauf aux endroits où on voudra mettre du métal.

La dernière étape consiste à évaporer du palladium sur toute la surface de l'échantillon, puis à le tremper dans un produit qui dissout la résine restante. On conserve ainsi l'échantillon voulu, évaporé directement sur la plaquette de silicium, prêt à être étudié.