

3 ω 法加热/测温膜中温度波解析及其在微/纳米 薄膜导热系数测量中的应用^{*}

王照亮^{1)†} 唐大伟^{1)†} 贾涛^{1)‡} 毛安民³⁾

1) 中国科学院工程热物理研究所, 北京 100080)

2) 中国科学院研究生院, 北京 100039)

3) 中国科学院数学与系统科学研究院, 北京 100080)

(2006 年 3 月 30 日收到, 2006 年 5 月 18 日收到修改稿)

给出了 3 ω 法测试系统中描述薄膜表面加热/测温膜中温度波动的级数形式解, 并将复数温度波动的实部和虚部分开表示. 利用该解分析了交流加热频率、加热膜宽度和材料热物性的组合参数对加热膜温度波动幅度的影响. 并根据此解对测量原理的数学模型进行了修正, 建立了相应的 3 ω 测试系统, 首先测定了厚度为 500 nm SiO₂ 薄膜的导热系数, 验证了实验系统的合理性. 加大了测试频率, 利用级数模型在高频段直接得到 SiO₂ 薄膜的导热系数, 结合低频段的数据同时确定了 Si 基体的导热系数. 利用级数解分析测试了激光晶体 Nd:YAG 111 面上多层 ZrO₂/SiO₂ 增透膜的导热系数, 测试的 ZrO₂ 薄膜的导热系数比体材料小. 进行了不确定度分析, 结果表明, 提出的分析方法可以有效研究微器件表面薄膜结构的导热性能.

关键词: 3 ω 法, 微/纳米薄膜, 导热系数, 微尺度加热膜

PACC: 0720, 4450, 6500, 6860

1. 引 言

近年 3 ω 法已被应用于薄膜和体材料的导热系数测试^[1-7], 对于小样品的测量, 丰平等^[7]认为可以忽略热辐射影响. 此方法中, 用来确定衬底和薄膜导热系数的理论模型对于准确确定导热系数至关重要. 目前主要是根据交流加热产生的温度波动的实部随交流频率变化的对数曲线中直线段的斜率, 并结合导热模型的近似分析解计算衬底表面薄膜的导热系数^[1-6]. 但在实际材料的测试过程中, 上述简化模型会遇到一系列限制条件, 主要有: 斜率-3 ω 法和求差-3 ω 法要求衬底的导热系数要比沉积在其表面的薄膜的导热系数大的多, 否则薄膜的温度改变将会很小, 导致实验误差增大; 如果测试频率选择不合适或者交流加热的热作用深度与加热膜宽度之间不满足一定的要求, 测得的温度波动与对数频率的关系曲线中将不出现明显的直线段, 此时斜率-3 ω 法也会产生较大的误差.

Kim^[3]曾针对半无限大衬底表面多层各向异性薄膜系统给出了温度变化的分析解, 并研究了各向同性多层薄膜结构的温度变化特性. Olson 等^[4]采用集总热负载的概念, 提出一种 3 ω 法测试数据改进的处理方法, 利用优化算法同时确定多层薄膜结构的导热系数和热容, 但数学模型的求解比较复杂, 同时要求测试频率的范围比较大才能保证优化拟合结果具有比较好的精度.

本文针对有限厚度或半无限大衬底表面的薄膜系统, 提出一种描述加热/测温膜温度变化的级数模型, 首先对 3 ω 实验采用的试样进行了热分析, 并考虑加热膜热容和被测薄膜内可能出现的横向导热过程以及薄膜与衬底导热系数的比值等对温度变化的影响对数学模型进行了修正. 同时设计了相应的 3 ω 测试系统, 在 SiO₂ 薄膜-Si 衬底试样表面沉积一个 40 μm 宽的四焊盘微型加热膜. 通过加大测试频率的范围, 利用级数解模型和高频段的测量数据同时确定了 SiO₂ 薄膜和 Si 衬底的导热系数. 最后测试了激光晶体 Nd:YAG 111 面上多层 ZrO₂/SiO₂ 增透膜

^{*} 中国科学院“百人计划”及国家自然科学基金(批准号: 50376066)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: dwtang@mail.etp.ac.cn

膜系中单层 SiO_2 薄膜和 ZrO_2 膜膜的导热系数.

2. 3ω 法测试原理与斜率- 3ω 方法

如图 1 3ω 法是在待测材料表面制备一定尺度和形状的微型金属膜, 将该金属膜同时作为加热器和温度传感器, 然后根据热波振动频率与温度变化的关系求得待测材料的导热系数. 在实验过程中, 对金属膜加角频率为 ω 的交流电流, 由于金属膜有一定的电阻, 因焦耳效应产生的热量将以 2ω 的频率对金属膜和材料加热, 金属层和材料吸收热量后产生频率为 2ω 的温度波. 对于纯金属, 温度的上升使电阻增加, 增加的电阻的变化频率也是 2ω , 增加的电阻与频率为 ω 的交流电共同作用产生频率为 3ω 的电压. 加热膜两端的电压可以表示为

$$V = R_0 I \cos(\omega t) + \frac{R_0 \alpha I \theta_{2\omega}}{2} \cos(\omega t + \varphi) + \frac{R_0 \alpha I \theta_{2\omega}}{2} \cos(3\omega t + \varphi), \quad (1)$$

其中 R_0 为测试环境温度下加热膜的电阻; I 为交流电流的有效值; ω 为交流电信号的角频率; $\theta_{2\omega}$ 为加热膜复数温度波动幅度; α 为金属膜微型加热器的电阻温度系数; φ 是热信号和电信号之间的相位差. (1) 式说明加热膜两端电压的三次谐波成分只与热作用有关, 而基波是电和热信号的综合. 若热穿透深度的倒数和加热膜半宽度的乘积远小于 1, Cahill^[2] 给出的加热膜温度波动的近似解为

$$\theta_{2\omega} = \frac{P_1}{\pi \lambda} \left[0.5 \ln \frac{\lambda}{Cb^2} - 0.5 \ln(2\omega) + \eta - i \frac{\pi}{4} \right] \quad (2)$$

其中 P_1 为交流加热功率; λ 为材料的导热系数; C 为测试材料的热容; η 为常数. 由于材料的导热系数、热容和加热膜尺度与加热频率无关, 可以根据与频率的关系确定半无限大体材料的导热系数.

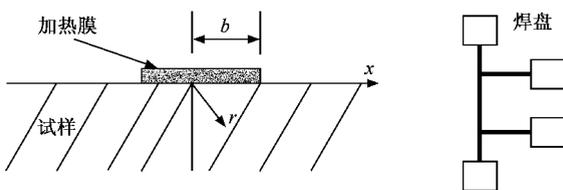


图 1 3ω 法实验采用的四焊盘微型加热膜的形状及位置

实际上, 在 3ω 法实验中直接测试的参数是三次谐波电压而不是温度波动信号. 理论上, 在 3ω 法实验中利用锁相放大器探测的三次谐波的实部和虚

部都可以用来确定试样的导热系数, 但是实际测试时由于虚部分量的数值很小, 一般采用下式和三次谐波实部分量计算加热膜温度波幅度的实部.

$$\theta_{2\omega, R} = \frac{2}{\alpha} \frac{V_{3\omega}}{V_{1\omega}}, \quad (3)$$

$$\lambda = \frac{\alpha P_1}{2\pi} \frac{\ln(\omega_2/\omega_1)}{(V_{3\omega, 1} - V_{3\omega, 2})}, \quad (4)$$

其中, $V_{3\omega}$ 和 $V_{1\omega}$ 分别是不同频率下锁相放大器测试的三次谐波和基波电压的有效值. (2) (4) 式为斜率- 3ω 法的计算公式.

对于衬底表面的薄膜结构, 若薄膜内部的热扩散时间小于加热周期, 可以认为薄膜内部不存在温度梯度而看作一个整体产生温度波动, 加热膜的温度由薄膜的温度改变和衬底的温度升高两部分组成.

$$\theta_F = \theta_{S+F} - \theta_S = \frac{P_1 d_F}{2b\lambda_F}, \quad (5)$$

其中, 下标 'F' 和 'S' 分别表示薄膜和衬底的参数; θ_S 由 (2) 式计算. (5) 式为测试衬底表面单层薄膜导热系数的求差- 3ω 法计算公式.

在传统的 3ω 法测试过程中, 加热膜的温度升高一般小于 1 K, 交流加热频率大于 100 Hz 时, 测试材料受热作用影响的有效厚度一般小于 200—300 μm , 因此试样的尺度一般比较小, 典型的试样表面积一般为 1 cm^2 , 厚度为几百 μm 至几 mm, 在室温下测试时可以忽略辐射和其他热损失.

3. 加热/测温膜的温度波解析解

3.1. 温度波动级数形式解析解

如前所述, 如果在实际测量时测试条件不满足简化解的条件, 3ω 法确定导热系数的简化解会产生较大的误差, 甚至可能导致温度或三次谐波与频率对数的曲线不出现直线段或常斜率段对应的频率范围比较小的情况. 而下面导出的加热/测温膜温度波动级数形式的完全解可以直接拟合实验数据, 从而避免上述问题发生.

对于图 1 所示的半无限大试样表面沉积的加热/测温膜, 近似看成无限薄、无限长线热源时, 其中的温度波动幅度在频域内的稳态解为

$$\delta\theta_{2\omega}(r) = \frac{P_1}{\pi \lambda} K_0(qr), \quad (6)$$

$$q = \sqrt{i(2\omega C/\lambda)}, \quad (7)$$

其中, $r = \sqrt{x^2 + y^2}$; K_0 为零阶修正的贝塞尔函数,

它的级数展开形式为

$$K_0(z) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{1}{m!} \left(-\ln \frac{z}{2} + \psi(m+1) \right) \left(\frac{z}{2} \right)^{2m}. \quad (8)$$

由于加热带具有有限的宽度 $2b$, 试样内部由于交流加热作用产生的温度改变区域并不是线热源作用下的圆柱形对称区域, 3ω 法实验主要是测试加热膜的三次谐波电压进而达到测试试样表面温度改变量的目的, 因此令 $y=0$, 加热膜的温度改变可以看成线热源温度的叠加, 则根据(6)式有

$$\Delta T = \frac{P_1}{4b^2} \int_{-b}^b \int_{-b}^b \frac{P_1}{\pi\lambda} K_0(\alpha(x-x')) dx' dx, \quad (9)$$

将(8)式代入并积分得

$$\Delta T = \frac{P_1}{\pi\lambda} \sum_{m=0}^{\infty} i^m F(m) \left[\alpha(m, |qb|) - i \frac{\pi}{4} \right], \quad (10)$$

其中

$$F(m) = \frac{(-1)^m |qb|^{2m}}{(2m+1)\Gamma(m+1)\Gamma(m+2)}, \quad (11)$$

$$\alpha(m) = [\psi(m+1) - \psi(m+1/2) + \psi(m+2) + \psi(m+3/2)]/2 - \ln|qb|, \quad (12)$$

z 是复数变量; $\psi(x)$ 是 ψ 函数, $\psi(x) = \frac{d\Gamma(x)}{\Gamma(x)dx}$.

由于在 3ω 法实验中我们主要是通过锁相放大器测试三次谐波电压实部的有效值来确定加热膜复数温度波动幅度的实部, 所以有必要根据(10)式把复数温度波动幅度的实部和虚部分开表示, 形式如下:

$$\Delta T = \text{Re}(\Delta T) + i \text{Im}(\Delta T)$$

$$= \frac{P_1}{\pi\lambda} \left\{ \begin{array}{l} \sum_{m=0}^{\infty} F(m) [\pi/4 + i\alpha(m, |qb|)], \\ \quad (m = 4k + 1) \\ \sum_{m=0}^{\infty} F(m) [-\alpha(m, |qb|) + i\pi/4], \\ \quad (m = 4k + 2) \\ \sum_{m=0}^{\infty} F(m) [-\pi/4 - i\alpha(m, |qb|)], \\ \quad (m = 4k + 3) \\ \sum_{m=0}^{\infty} F(m) [\alpha(m, |qb|) - i\pi/4], \\ \quad (m = 4k + 4) \end{array} \right. \quad k = 0, 1, 2, \dots \quad (13)$$

定义无量纲参数 $\beta = |qb| = \frac{b}{\sqrt{1/q}}$. 显然, 根据热穿透深度 TPD 的定义, $TPD = |1/q|$, β 表示加热膜半

宽度与交流加热热穿透深度的比值. 根据级数形式解析解的表达(10)~(13)式可以看出, 加热功率一定时, 试样表面加热膜温度波动的幅度 ΔT 是无因次组合参数 β 的函数, 并且 ΔT 随 β 的增大而减小. 可以证明, 当满足 $\beta \ll 1$ 时, 级数形式的解(10)的第1项正是 Cahill 的近似简化解. 并且(2)式中的常数 η 并不是常数, 而是与加热频率、加热膜结构参数和测试材料热扩散系数有关的变量, 利用(13)式可以比较方便的确定 η 随这些参数的变化. 但是目前利用近似解处理实验数据时一般在测试频率范围内取 η 为常数, 并且为了使测试结果的误差尽可能接近合理结果而不断调整 η , 无法实现实验结果的自动拟合. 图2中给出了根据级数解析解确定的复数温度波动的实部和虚部随测试频率和加热膜宽度组合参数 β 的变化曲线, 对应的加热功率为 28 W/m , 加热频率为 $0.1 \text{ Hz} \sim 100 \text{ kHz}$, 加热膜宽度为 $20 \mu\text{m}$, 测试材料导热系数为 $140 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$. 由图2可见, 当 $\beta > 0.5$ 时, 温度波动的实部与 Cahill 的近似解开始出现明显的偏离, 而当 $\beta > 0.2$ 时, 温度波动的虚部与近似解就开始出现明显的偏离.

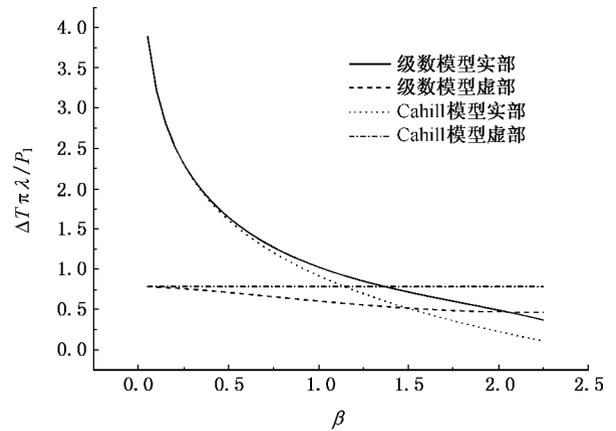


图2 不同模型下加热膜温度波动随 $\beta = |qb|$ 的变化

3.2. 温度的修正

对于薄膜/衬底试样结构, 由于薄膜的厚度与加热膜的厚度相当, 同时加热膜有一定的宽度, 因此加热膜本身也要吸收一定的热量. 加热频率比较高时, 加热膜的热容可能产生一定的误差. 另外, 加热膜的四个焊盘与外接导线之间也会存在散热. 因此有必要对加热膜热容对温度波动的影响进行修正. 在频域内对加热膜建立如下能量平衡方程:

$$P_1/2b = -k_{tp}\Delta T^* + i2\omega C_h d_h \Delta T^* + P_1/2b \quad (14)$$

可以得到实际测试的温度改变为

$$\Delta T^* = \frac{\Delta T}{1 - k_{1-p} d_F / \lambda_F + i 2 \omega C_h d_h d_F / \lambda_F}, \quad (15)$$

其中 k_{1-p} 为焊盘与外接导线之间的传热系数; C_h 为加热膜热容; d_h, d_F 分别为加热膜和薄膜厚度; P_1 为实际散失到薄膜中的加热膜单位长度功率。(15) 式中的 ΔT 由(13)式计算。

此外, 由于加热膜的宽度与被测试薄膜的厚度相比并不是无限大, 薄膜内部的导热并不是严格的一维过程, 因此还需要考虑对薄膜内部横向导热过程的影响; 无论是采用斜率- 3ω 法还是利用温度波动级数模型 3ω 法测试衬底表面薄膜的导热系数最终是根据薄膜本身的温差来确定, 要求衬底导热系数远大于薄膜导热系数, 如果衬底和表面沉积的薄膜导热系数比较接近, 同时衬底的厚度比薄膜大的多, 那么薄膜自身的温差可能很小. 为此引入以下系数对薄膜内部的温差做进一步修正:

$$\theta_F^* = \theta_F \xi = (\theta_{S+F} - \Delta T^* \{1 - (\lambda_F / \lambda_S)\} \xi), \quad (16)$$

$$\xi = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\sin^2 k}{k^3} \frac{\tanh(k \epsilon)}{\epsilon} dk,$$

其中 $\epsilon = d_F / b$. 由(15)(16)式分别对计算的衬底和薄膜内部温度差的修正可以看出, 由于加热膜热容等因素的影响, 与简化模型相比, 薄膜内部的温差减小。

4. 实验系统与测试

我们建立了如图 3 所示的 3ω 测试系统, 其中加热/测温膜如图 4 所示. 采用高温氧化法在厚度为 $500 \mu\text{m}$ $2 \text{ cm} \times 2 \text{ cm}$ 的 Si 衬底表面沉积厚度为 500 nm 的 SiO_2 薄膜. 然后采用磁控溅射工艺在 SiO_2 薄膜的表面首先沉积厚度为 5 nm 的金属 Ti 以增强加热膜的附着强度, 再沉积一层厚度为 300 nm 的 Pt 膜, 采用紫外曝光工艺制作出加热膜的形状, 最后利用光刻法得到一个形状和尺度如图 4 的四焊盘微型 Pt 加热膜, 同时用做感温器. 为尽量减小外界干扰, 功率放大电路中的电阻温度系数为 5 PPM ; 两个差动放大器的性能应尽可能匹配; Pt 加热膜的四个焊盘通过直径为 $30 \mu\text{m}$ 的 AlSi 丝采用压焊工艺与外围电路连接。

3ω 法实验对仪器的精度有很高的要求. 通常加热膜中间两个取压焊盘之间的基波电压为几伏, 而基波中由于金属加热膜温度改变产生的三次谐波最大一般为几十 μV 到几 mV . 要求锁相放大器的谐波

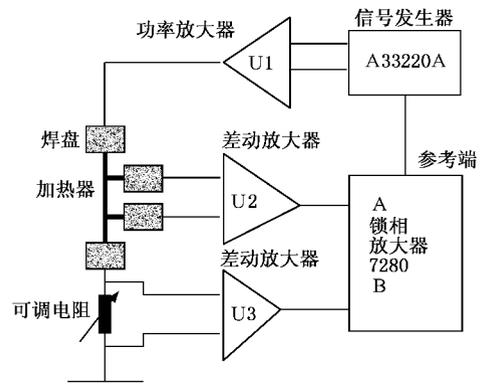


图 3 3ω 法测试系统

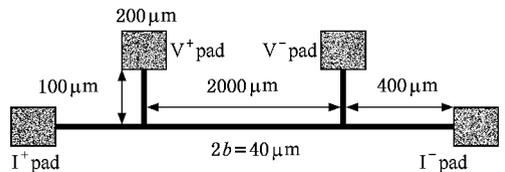


图 4 加热膜的形状和尺度

测试精度达到 10^{-7} V . 在 Cahill 的 3ω 法测试线路中, 需要设计一个三倍频器以给锁相放大器提供参考信号, 测试频率比较大时三倍频器的倍频效果不稳定. 此外由于 Cahill 的实验中采用一个乘法运算器 DAC, 高频时也可能引入干扰信号. 本文中的测试系统中用一个精度为 0.01Ω 的金属绕线可调电阻代替 DAC. 采用的锁相放大器为 7280, 有一个内置的倍频器, 可以测试高达 32 次谐波。

在图 3 中的测试系统中, 主要的仪器为 Signal Recovery 7280 锁相放大器, 频带范围为 $0.5 \text{ Hz} - 2 \text{ MHz}$ 频率信号合成器 A33220A, 正弦交流信号失真度为 0.03% . 一般情况下三次谐波电压分量为基波电压的 $10^{-3} - 10^{-4}$ 倍, 同时由于锁相放大器的动态存储有限, 为了准确测试三次谐波分量, 必须采用电桥电路尽可能滤除加热膜和可调电阻上的基波电压. 因此采用图 3 所示的测试电路, 频率信号合成器提供的交流信号由于电流很小, 首先通过专门设计的功率放大器 AMP01 转变为电流信号(电流信号最大可输出 20 mA), 然后驱动加热膜和可调电阻. 由于交流电流的微弱加热作用, 加热膜产生微弱的三次谐波和两端的基波混在一起. 为了使输入锁相放大器的信号稳定, 首先使加热膜和可调电阻两端的电压进入两个单增益差动放大器 AMP03, 然后分别进入锁相放大器的 A, B 输入端. 由于选取的可调电

阻的电阻温度系数接近 5 PPM,远小于加热膜的电阻温度系数,可以忽略可调电阻产生的谐波信号。

开始测试时,首先采用比较小的信号发生器的输出电压,一般为几十 mV,避免加热膜产生比较大的电阻改变,调节可调电阻,使得锁相放大器的基波差动输入接近几个 μV ,此时可以认为电桥电路达到平衡状态,对应可调电阻的大小等于加热膜的电阻 R_0 ,可以在几十 mV 的范围内调节信号发生器的输出电压,而信号发生器的频率尽可能采用比较大的频率,多次测试得到冷态电阻的平均值,增大信号发生器的输出电压,加热膜被加热,电阻发生微小改变,由于此时加热膜和可调电阻两端的基波接近相等,通过锁相放大器的差动输入可以滤除基波,进而测试出给定频率下的三次谐波电压的实部分量;由小到大改变频率合成器输出信号的频率,测试不同频率下对应的三次谐波实部分量,然后由大到小改变频率重复上述步骤测试,同一个测试频率下的谐波信号取平均值。

5. 结果与讨论

图 5 为根据建立的 3ω 法测试系统测试的三次谐波和(3)式得到的加热膜温度升高的测试结果和

分别利用温度波动级数模型及简化模型计算的衬底温度随频率的变化。对于实验中采用的测试材料和加热膜的尺度,根据(5)式和无因次数 β 的定义可以确定,在本实验的测试频率范围内, $\beta \approx 0.8$ 。在衬底内部,热穿透深度最大为 $266 \mu\text{m}$,小于 Si 衬底的厚度,因此在测试频率范围内可以把衬底近似看成半无限大,满足本文级数模型和 Cahill 模型的假设。由于衬底导热系数比较大,级数模型与薄膜温度改变量的预测结果比简化模型的预测结果最大差别为 8%,但是由于 SiO_2 膜的温度改变在测试的加热膜温升中的比重比较大,对 SiO_2 膜的导热系数的测试结果影响比较小。如果薄膜和衬底的导热系数比较接近,利用简化模型会产生比较大的误差。级数模型拟合实验数据得到 SiO_2 膜的导热系数为 $1.31 \text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})$,基于简化模型的斜率- 3ω 法计算的 SiO_2 膜的导热系数为 $1.26 \text{ W}(\text{m}\cdot\text{K})$,与级数模型相比,简化模型的结果偏小 4%。与其他采用 3ω 法实验测试 SiO_2 薄膜导热系数的结果对比见表 1。可见,对于相同的制膜工艺,本文提出的温度波动级数模型及其修正方法和设计的实验系统是合理可靠的。由于热氧化制备的 SiO_2 薄膜的致密性比化学沉积法好,前者的导热系数也高于后者。

表 1 SiO_2 薄膜导热系数测试结果的对比

	薄膜厚度/nm	衬底厚度/ μm	测试温度/K	制膜工艺	测试导热系数/ $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$
Kim ^[3]	488	380	300.7	热氧化	1.33
Yamane ^[5]	500	500	298	热氧化	1.34
Eraudzis ^[6]	500	525	298	化学沉积	1.06
本文实验	500	500	293	热氧化	1.31

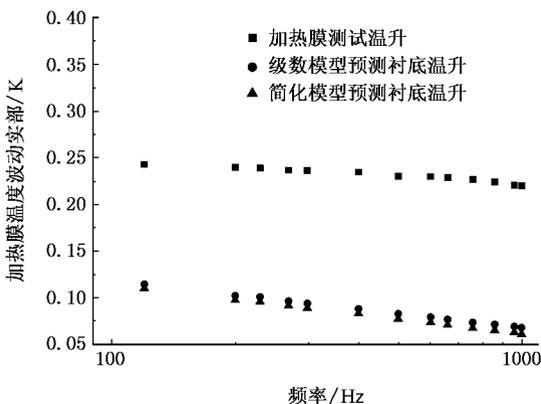


图 5 低频段加热膜温度波动的实部与频率的关系

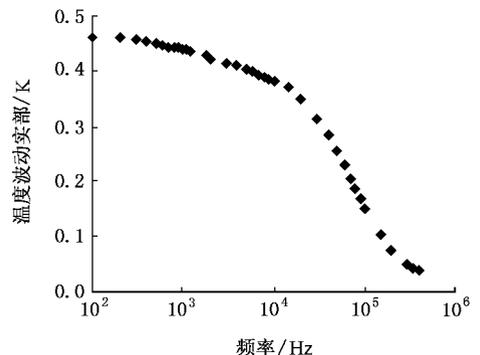


图 6 高频段加热膜温度波动的实部与频率的关系

如果测试频率比较大,根据前述热作用深度的定义,热作用深度很可能与基体表面薄膜的厚度相当甚至小于薄膜厚度,此时交流加热作用引起的加热/测温膜的温度波动可以近似认为只与薄膜的厚度和热参数有关,而薄膜本身可近似满足厚度半无限大的条件.由图6的测试结果可见,当交流频率大于2000 Hz后,高频段的温度波动实部与频率的关系曲线已经没有了直线段或斜率为常数的区域,此时Cahill的简化解的条件显然不再满足,斜率- 3ω 法不再适用.利用本文提出的加热膜温度波动级数解以及温度波动修正方法,直接在高频段拟合实验数据得到上述Si基体表面500 nm厚SiO₂薄膜的导热系数为1.32 W/(m·K)(与表1中利用Cahill简化解在低频段测量的结果接近),然后利用低频段测量的温度波动的实部并结合Cahill的简化解,可以直接拟合得到测试温度为293 K时Si基体的导热系数为138 W/(m·K)(与体材料的导热系数接近).说明本文提出的加热膜温度波动级数解适合整个测试频率区间,而Cahill的简化解只可能适用于频率比较低的测试范围或者温度波动与对数频率关系曲线出现直线段的情形.

采用溶胶凝胶工艺在直径为10 mm、厚度为2 mm的Nd:YAG激光晶体的(111)面上制备ZrO₂/SiO₂多层增透薄膜可以提高大功率激光对Nd:YAG晶体的损伤阈值.但是目前尚未见到测试激光晶体表面增透膜导热系数的报道.对于ZrO₂/SiO₂增透膜,其表面与Pt的附着效果很差,经过多次尝试,上述先旋涂光刻胶后溅射微型加热膜的工序很难制备比较理想的加热膜,最后采用先溅射厚度为180 nm,宽度为8 μm的Au加热膜,然后再旋涂光刻胶的工艺可以制备附着性强的加热膜.采用溶胶凝胶工艺制备的ZrO₂/SiO₂增透膜多层膜系为:总厚度为5 μm,第1层为SiO₂膜,之后ZrO₂和SiO₂膜层相互交替,周期为6,最后一层为SiO₂膜,SiO₂膜每层的厚度为532 nm,ZrO₂膜每层厚度为266 nm,Nd:YAG晶体的平均导热系数为13 W/(m·K).利用上述建立的测试系统在温度为298 K下对该多层膜系进行测试,在整个测试频率范围内(100 Hz—8 kHz),直接利用本文的级数解拟合加热膜温度波动的实部测试数据,可以同时拟合出ZrO₂和SiO₂单层膜的导热系数分别为3.6和1.14 W/(m·K).ZrO₂膜的导热系数比文献[8]中体材料的导热系数小,而SiO₂膜的导热系数也比上述Si基体表面采用高温氧化制备的

500 nm SiO₂膜的导热系数小.进一步的分析可以发现,由于该多层增透膜与Nd:YAG晶体的导热系数比较接近,在低频段,利用(5)式计算得到的多层膜系的温度改变量很小,利用Cahill的简化解只能得到整体膜系的导热系数,误差达23%,更不能分别得到单层ZrO₂和SiO₂膜的导热系数.

3ω 法实验中涉及的测量参数比较多,实验结果的数据处理也比较复杂,因此详细的不确定度分析也十分复杂,本文只给出实验结果不确定度的粗略估计值.根据不确定度传播定律, 3ω 法测试SiO₂薄膜导热系数总的不确定度表示为

$$\delta\lambda = \left[\sum_{i=1}^N \left(\frac{\partial\lambda}{\partial x_i} \right)^2 [\delta\lambda]_{x_i} \right]^{1/2}, \quad (17)$$

其中 $\delta\lambda$ 为测试薄膜导热系数 λ 的不确定度 $[\delta\lambda]_{x_i}$ 为测试量 x_i 的不确定度,并且 x_i 互不相关.根据上述实验过程的描述可知,SiO₂薄膜导热系数的不确定度主要来源于加热膜结构尺度 b 和 l ,薄膜厚度 d_F ,加热功率 P 及温度升高 ΔT 的不确定度,具体表示如下:

$$\delta\lambda = \sqrt{[\delta\lambda]_b + [\delta\lambda]_l + [\delta\lambda]_{d_F} + [\delta\lambda]_P + [\delta\lambda]_{\Delta T}}. \quad (18)$$

加热膜的宽度用显微镜确定,薄膜厚度用表面光度计、干涉仪和扫描电子显微镜确定.用各个尺度测试量的最大值与平均值的偏差确定各个尺度测试量的不确定度: $\delta b/b = 2\%$, $\delta d_F/d_F = 3\%$, $\delta l/l = 0.2\%$.温度测试的不确定度主要取决于加热膜电阻温度系数的不确定度,而电阻温度系数测试量的最大值与平均值之差约为平均值的3.5%,所以粗略估计温度的不确定度为3.5%.考虑到本实验中采用的锁相放大器7280的基波和谐波探测精度,加热功率不确定度的估算值为0.34%.因此,本文 3ω 法测试SiO₂薄膜导热系数总的相对不确定度为5.4%.

6. 结 论

(1)导出了 3ω 法实验中加热/测温膜温度波动的级数形式解析解,把温度变化的实部和虚部分开表示以便于实验数据分析处理,分析了材料热物性参数、加热膜宽度和加热频率的组合参数对温度波动特性的影响,考虑了加热膜的热容等因素的影响对温度变化进行了修正.

(2) 设计了 3ω 法测试系统, 测试了 SiO_2 薄膜导热系数并进行了不确定度分析, 结果与文献数据吻合, 这说明设计的实验系统和方法是可靠的.

(3) 增大了测试频率, 利用提出的级数解可以同时得到 Si 基体和 500 nm 厚 SiO_2 薄膜的导热系数.

(4) 测试了 Nd:YAG 激光晶体表面上制备的 $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ 多层增透薄膜系中单层 ZrO_2 和 SiO_2 膜的

导热系数, 分别小于体材料的导热系数.

致谢 感谢美国伊利诺伊大学 D. G. Cahill 教授对本研究建立的 3ω 实验系统提供的帮助, 同时感谢美国休斯顿大学 F. Chen 博士、韩国延世大学 H. N. Cho 博士和东南大学陈云飞教授提出的宝贵意见.

-
- [1] Cahill D G , Pohl R O 1987 *Phys. Rev. B* **35** 4067
- [2] Cahill D G 1990 *Rev. Sci. Instrum.* **61** 802
- [3] Kim J H , Feldman A , Novotny D 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 3959
- [4] Olson B W , Graham S , Chen K 2005 *Rev. Sci. Instrum.* **76** 1
- [5] Yamane T , Nagai N , Katayama S , Todoki M 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 9772
- [6] Raudzis C E , Schatz F 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 6050
- [7] Feng P , Wang T H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2249 (in Chinese)
- [丰 平、王太宏 2002 物理学报 **52** 2249]
- [8] Wu J , Padture N P 2002 *J. Mater. Res.* **17** 3193

Analytical solution for temperature oscillation in the heater/thermometer film in 3ω method and its application to thermal conductivity measurement of micro/nanometer-films^{*}

Wang Zhao-Liang^{1 2)} Tang Da-Wei^{1)†} Jia Tao^{1 2)} Mao An-Min³⁾

1) (*Institute of Engineering Thermophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*)

2) (*Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100039, China*)

3) (*Academy of Mathematics and Systems Science, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China*)

(Received 30 March 2006 ; revised manuscript received 18 May 2006)

Abstract

Analytical solution in terms of series for temperature oscillation in the heater/thermometer film is derived for 3ω measurements. The complex temperature solution is separated into the real and imaginary parts. Analysis is performed to show the effect of the combined parameters of ac frequency, heater width and sample thermal properties on the temperature oscillation. The mathematical model for the measurement is corrected based on the solution. Accordingly, a 3ω setup is developed to determine thermal conductivity of 500 nm-thick thin film on Si substrate. Uncertainty analysis and comparison with the results of differential- 3ω methods and published values are made, the results show good mutual agreement. The thermal conductivities of SiO_2 film and Si substrate are determined simultaneously with the series solution and by extension to high frequency. The method is also employed to measure the thermal conductivity of the multi-layer antireflective coating of $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ deposited on Nd:YAG surface. The ZrO_2 film has a thermal conductivity smaller than the volume value. The established 3ω setup and analytical method can be applied to investigate the thermal performance of thin film-substrate structures for use with micro-systems such MEMS.

Keywords : 3ω method, micro/nano film, thermal conductivity, microscale heating film

PACC : 0720, 4450, 6500, 6860

^{*} Project supported by One Hundred Person Project of Chinese Academy of Sciences and the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 50376066).

[†] Corresponding author. E-mail : dwtang@mail.etp.ac.cn