

低维材料热导率测试方法的研究进展

邓建兵 何小瓦 徐辉 沈江立

(航天材料及工艺研究所,北京 100076)

文 摘 综述了近年来低维材料热导率测试方法的研究发展状况,介绍了几种典型测试方法,并对低维材料热导率测试结构的应用和未来发展进行了展望。

关键词 测试方法,热导率,低维材料,微尺度

Measurement Methods of Thermal Conductivity for Low Dimensional Materials

Deng Jianbing He Xiaowa Xu Hui Shen Jiangli

(Aerospace Research Institute of Materials & Processing Technology, Beijing 100076)

Abstract Study and development of measurement methods of thermal conductivity for low dimensional materials are summarized. Several typical measuring methods are introduced in this paper. The application and development trends of measuring structure in the future are also analyzed.

Key words Measurement methods, Thermal conductivity, Low dimensional materials, Microscale

1 前言

低维材料被广泛应用于半导体器件和微机械系统(MEMS)器件中^[1]。在设计器件时,低维材料的热导率是一个重要参数,近些年来,研究人员做了大量的工作研究低维材料的热导率,发现并证实低维材料的热导率与其体材料相比有很大差别^[2]。传统的热导率测试方法已不适用于低维材料热导率的测量,由于低维材料厚度较小,通过材料表面辐射的能力与通过材料传输的热量相比,不能忽略,辐射的热量对热导率测量影响较大,这就要求对这些传统实验方法进行改进,使它们能更好更精确地测量各种条件下低维材料的热导率。

2 测试方法概述

目前,已发展了多种低维材料热导率测试技术:静态法^[3~4]、3-ω方法^[5]、瞬态反射测量法^[6]、扫描热显微镜技术^[7]、光热偏转法^[8]、红外成像技术^[9]、全息干涉法^[4]以及平行热导率法^[10~11]等等,下面就几种代表性测试方法作简单介绍。

2.1 静态法

静态法是一种绝对测量方法,其基本结构是在一个自由膜上集成薄膜材料加热器和温度传感器。目

前这种结构已发展为梁结构、方膜结构和圆膜结构三种^[4]。静态法是利用一维傅里叶传热方程求解热导率的稳态方法,其关系式为:

$$q = -k \frac{T}{x} \quad (1)$$

在微尺度传热学理论中,当材料的传热尺度 d 及传热时间 t 可以和声子的平均自由程 c ($10^{-8} \sim 10^{-7}$ m)及平均自由时间(10^{-12} s)可以比拟时,将不满足傅里叶传热定律。因此用这种方法测量低维材料热导率,要求被测低维材料的厚度 $d \gg c$,即在微米数量级。最常见的一种测试结构如图1所示,利用半导体工艺依次在绝缘衬底上(如 SiO_2)生长底层金属桥A、被测试样层和顶层金属桥B,金属桥所用材料一般是Al或Pt。金属桥A通大电流,同时作加热器和测温元件;金属桥B通小电流作测温元件。在顶层金属桥A的1、2电极上加一恒流 I ,金属条上产生热,其温度升高,热流穿过试样介质层到达底层金属桥B,最后流入衬底中。边界热损失与传导的热量相比很小,可以近似认为满足一维传热模型。当系统传热达到稳定状态时,顶层金属桥和底层金属桥的温度分别为 T_A 和 T_B ,为了保证热导率的常规测量,应使顶层

收稿日期:2008-01-16;修回日期:2008-02-19

作者简介:邓建兵,1980年出生,硕士,主要从事材料热物性等方面的研究工作。E-mail: xishuimand@163.com

宇航材料工艺 2008年 第3期

— 15 —

金属桥温度升高在 10 K 以内。由式 (1) 可以推导出热导率的表达式:

$$k = \frac{dU}{lw(T_A - T_B)} \quad (2)$$

式中, U 为电极 3、4 上的电压值, d 为介质层的厚度, l 和 w 分别为介质层的长度和宽度, T_A 和 T_B 可由电压-电流四端法求得。

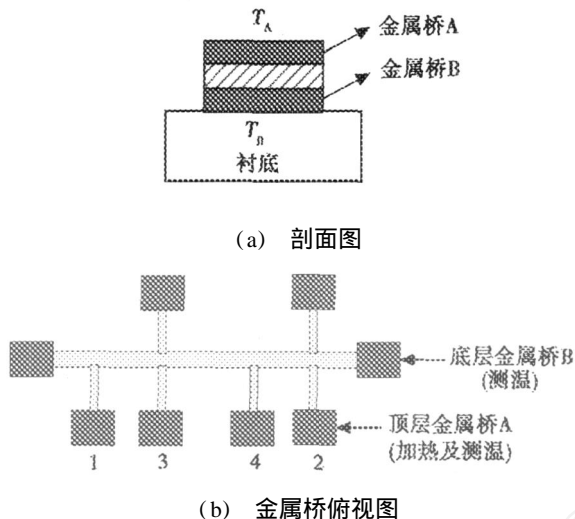


图 1 静态法测试示意图

Fig 1 Schematic view of static test method

文献 [4] 提到采用这种方法测得的 SiO_2 材料的热导率与体材料热导率大小相比, 结果大约减少了 20%, 并指出 SiO_2 和金属界面热阻很小, 其影响可以忽略。这种方法具有精度较高, 数据容易分析处理的特点, 误差大约在 5% 左右, 它适用于绝缘材料和不良导体材料中低维材料热导率的测量。

2.2 瞬态反射法

瞬态反射法的原理是在试样上淀积一层金属膜, 用激光脉冲打在金属膜上, 然后通过探测器监视试样温度随时间的瞬态变化, 从中求出热导率。在这种方法中, 通过高精度窄脉冲打在试样后试样温度随时间衰减的函数来求得热导率, 这种方法不需要热通量的测量和温度的校对, 只需要一高功率窄脉冲的加热激光束, 测量原理如图 2 所示。

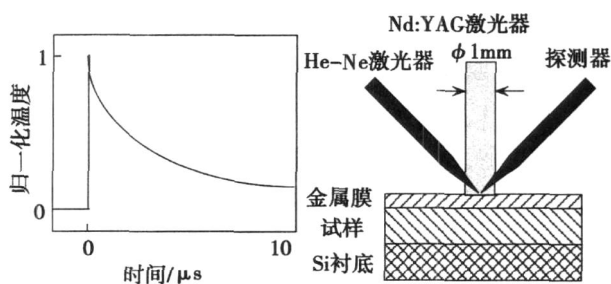


图 2 瞬态反射法测试原理图

Fig 2 Thermoreflectance method for measuring thermal conductivity

采用瞬时反射法测量热导率, 克服了由导线带走热量而造成测试误差。其最大的优点是不必准确地测出温度值, 只需测出温度相对时间的变化即衰减周期即可。然而, 此方法对实验条件要求比较严格, 主要体现在:

(1) 对激光器的最小脉冲宽度探测器响应时间要求比较严格, 激光脉冲要短, 能量要大, 同样对探测器响应时间也一样严格;

(2) 光路比较复杂, 校准也较为困难;

(3) 提取探测的信号非常复杂, 需要高精度的锁相放大器;

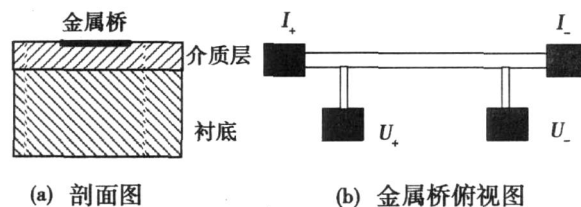
(4) 测量结果受黑体辐射影响较大;

(5) 为了达到试样在其表面吸收脉冲能量的要求, 常需加表面吸收涂层, 这会对测量准确度造成影响。

2.3.3 3 法

在试样上淀积一层金属膜电阻, 再在上面加以角频率的交流电, 通过测量电阻的微小变化捕捉温度的变化, 金属条的温度变化是通过淀积在低维材料上金属膜电阻三次谐波分量的幅值来测量, 因而称作 3 法。3 法主要原理是温度振荡随加热电流频率的变化, 利用流过金属条的辐射热流进行热导率的测量, 金属条起着加热器和量热器双重作用, 实验时用锁相放大器提取微弱的有用信号, 通过 GPB 接口总线, 完成信号的自动测试和数据处理。作为交流测量技术的 3 方法是测量纵向热导率有效的方法之一, 当被测膜厚小于 $10 \mu\text{m}$ 时, 3 方法是测量膜厚热导率很有用的方法, 即使厚度为 10 nm 数量级低维材料的热导率也能用这种方法来测量。优点是它对辐射损失不敏感而能有效的降低黑体辐射引起的误差; 而且测量所用的时间短; 适用温度范围宽, 可在室温或更高的温度下进行测量。

3 方法的测量结构如图 3 所示, 在良热导体衬底 (如 Si) 上生长一层厚度为 d 的绝缘待测薄膜 (如 SiO_2), 薄膜上面制成如图 3 所示形状的金属桥, 金属桥同时作为热源和测温装置。这种方法只适合测量热导率远小于衬底热导率的薄膜材料, 并且只能测量垂直于薄膜方向的热导率。



(a) 剖面图

(b) 金属桥俯视图

图 3 3 方法示意图

Fig 3 3 method

2.4 扫描热显微技术

近几年发展起来的扫描热显微技术使微尺度的结构热导率测试成为了可能,扫描热显微镜 (SThM)是在原子力显微镜 (AFM)基础上发展起来的用于微表面热测量装置 (图 4),其分辨率能达到纳米数量级。

SThM 性能决定于热探针的好坏,热探针分为热电偶型和热电阻型两大类,每一种又可按线型和薄膜分类,有线型热电阻型、薄膜热敏电阻型、线型热电偶型及薄膜热电偶探针等。目前热电阻型探针已经商品化,热电偶型探针还在研究中。SThM 能够探测微区表面的温度特性,但所得到的热像图只包含试样温度和热导率,要获得定量的温度和热导率还有很大的距离。

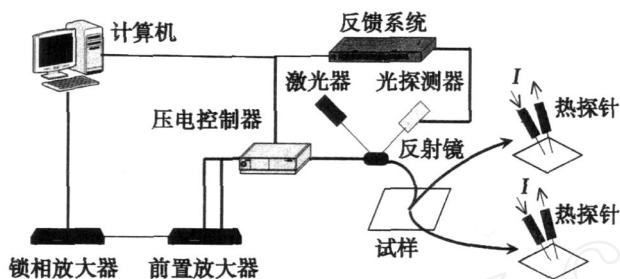


图 4 SThM 测量装置

Fig 4 SThM measurement devices

2.5 PTC 测试方法

PTC 测试方法由两线方法演变而来的,一般用来测量小试样 $[(1.0 \sim 3.0 \text{ mm}) \times 0.05 \text{ mm} \times 0.1 \text{ mm}]$,如针尖状碳纤维材料,这种稳态方法看起来直接、简单,实际上减少测试中的热损是相当困难的,必须尽可能的减少热电偶、引线带来的辐射和热传导以及气体介质的热对流来提高测量的准确度 (图 5、图 6)。

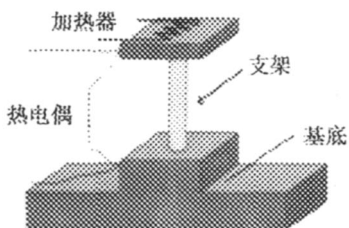


图 5 试样架结构图

Fig 5 Sample holder alone

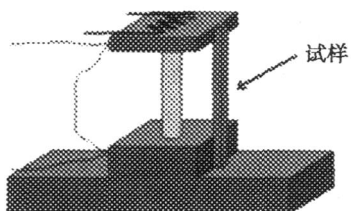


图 6 试样与试样架结构图

Fig 6 Sample holder with sample

由于试样不能支撑起加热器、热电偶和试样,因此引入了试样架起支撑作用。首先要测量图 5 中试样架自身的热导,这将决定图 6 中安装试样后系统的热导和热损失的大小;其次是先把待测试样安装到测试系统中,再测量新系统的热导,假设平行热导受到的影响只来自试样,而不是接触处,那么就可以直接得到测试试样的热导率值。但是,实验中测量的热导率值会受到试样本身、热触处和来自试样的黑体辐射的影响,辐射热损失是由系统里热表面造成的。

由于平行热导测试系统是双探针装置,试样的热阻就得比接触处的热阻大得多,为了得到较准确的结果,测试试样热导值至少是试样架热导值的 1/10。试样架的设计非常关键,确保试样架的热导尽可能的小,这样可以尽量减少测试误差;最小化加热源表面以避免过多的黑体辐射;加热器端头的绝对热容也要最小化,这样可以避免过多的阻尼时间;试样的热阻还应该比接触热阻大得多。

美国的 B. Zawilski 等^[10-11]一直致力于该测试方法的实验研究,图 7 是测试装置图,在实验研究中使用了一台 APD 闭式循环低温冷却装置,可以在 1.5 h 内从室温降到 10 K,测量过程较简单,且测量速度较快。整个测试过程大约需要 24 h,包括安装工序和冷却时间。被测试样的长度至少 1 mm,试样和接触处的热导 (室温时接触处 $K_{\text{Contact}} = 5 \text{ mW/K}$) 都是可以测量的,且试样热导至少是试样架的 1/10 (室温时 $K_{\text{BL}} = 0.1 \text{ mW/K}$)。

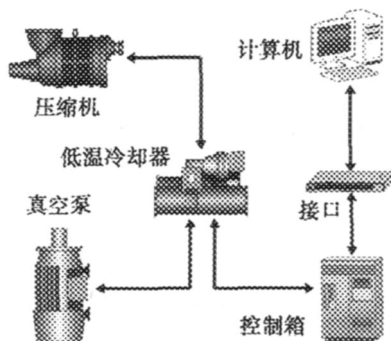


图 7 PTC 测试装置图

Fig 7 Scheme of PTC experimental set-up

3 结语

尽管低维材料热导率的测试方法发展很快,但低维材料热导率测试结构在设计、制造和测试等方面还存在很多困难,例如如何选择边界条件建立合理的数学模型、如何设计合理的测试结构、如何尽量减小测试环境对测量低维材料热导率的影响以及如何尽量减小各种不确定因素对热量的损耗等,从而满足对各种微小器件中低维材料热导率测量的精确度要求,

(下转第 25 页)

4 结论

对陶瓷基复合材料脆性断裂过程进行了有限元研究,探讨了界面因素对复合材料增韧、力学性能的影响,分析结果表明:在界面结合强度适中的情况下,较大的基体弹性模量,会产生较大的断裂应变能,有利于改善材料的韧性。

参考文献

- 1 Bao G A micromechanical model for damage in metal matrix composites *Damage Mechanics and Localization*, 1992; AMD - V01142/MD - V0134: 1 ~ 12
- 2 Walter M E, Ravichandran G, Ortiz M. Computational modeling of damage evolution in unidirectional fiber reinforced ceramic matrix composites *Comput Mech*, 1997; 20: 192 ~ 198
- 3 Hashin Z, Rosen B W. The elastic moduli of fiber reinforced materials *ASME J App. Mech*, 1964; 31: 223 ~ 232
- 4 Jones J P, Whither J S Waves at flexibly bonded interface *J App. Mech*, 1967; 34: 905 ~ 909

- 5 Achenbach J D, Zhu H. Effect of interfacial zone on mechanical behavior and failure of fiber-reinforced composites *J. Mech Phys Solids*, 1989; 37(3): 381 ~ 93
- 6 Needleman A. A continuum model for void nucleation by inclusion debonding *J Appl Mech*, 1987; 54: 525 ~ 531
- 7 Lissenden C J, Herakovich C T. Numerical modelling of damage development and viscoplasticity in metal matrix composites *Comp. Meth Appl Mech Eng*, 1995; 126: 289 ~ 303
- 8 Ferrante J, Smith J R, Rose J H. Universal binding energy relations in metallic adhesion *Microscopic Aspects of Adhesion and Lubrication*, Elsevier, Amsterdam, 1982: 19 ~ 30
- 9 Nimmer R P, Bankert R J, Russel E S et al. Micromechanical modeling of fiber/matrix interface effects in transversely loaded SiC/Ti - 6 - 4 metal matrix composites *J Comp. Tech Res*, 1991; 13: 3 ~ 13

(编辑 李洪泉)

(上接第 17 页)

达到监控器件制造工艺,指导、监测器件设计的目的,是今后的研究方向。

参考文献

- 1 Mcconnel A, Uma S, Goodson K. Thermal conductivity of doped polysilicon layers *Journal of Micro Systems*, 2001; 10(3)
- 2 Boudenne A, Ibois L, Gehin E et al. A simultaneous characterization of thermal conductivity and diffusivity of polymer materials by a periodic method *J. Phys D: Appl Phys*, 2004; 37: 132 ~ 139
- 3 宋青林等. 薄膜热导率测试结构的研究. *仪器仪表学报*, 2004; 25(4): 228 ~ 229
- 4 张建刚,陈绍凤等. 微尺度薄膜热导率测试技术. *物理学进展*, 2002; 22(3): 283 ~ 295
- 5 张立伟等. 一种用于测量 SiO_2 薄膜热导率的测试方法. *测控技术*, 2001; 20(8): 25 ~ 27
- 6 Dachen C, Goodson K, Babin S et al. Thermal conductivity measurements of thin-film resist *J. Vac. Sci Technol B*, 2001;

19(6): 2 874 ~ 2 877

- 7 顾敏沁,晋宏师等. 用扫描热显微镜测量微小区域热导性质的探讨. *工程热物理学报*, 2000; 21(4): 456 ~ 460
- 8 崔景彪,方容川. 热厚衬底上薄膜材料热导率测量. *科学通报*, 1996; 41(3): 280 ~ 282
- 9 缪正宇,张青川等. 双材料微梁阵列室温物体红外成像. *物理学报*, 2006; 55(7): 3 208 ~ 3 214
- 10 Zawilski B, Littleton R, Tritt T. Description of the parallel thermal conductance technique for the measurement of the thermal conductivity of small diameter samples *Rev. Sci. Instruments*, 2001; 72(3): 1 770 ~ 1 774
- 11 Zawilski B, Littleton R, Tritt T. Investigation of the thermal conductivity of the mixed pentatellurides $Hf_{1-x}Zr_xTe_5$. *Applied Physics letters*, 2000; 77(15): 2 319 ~ 2 321

(编辑 吴坚)