

基于3-Omega法的各向异性热导率测量

陈涵阳*, 吉彦达

南京航空航天大学物理学院, 江苏 南京

收稿日期: 2024年1月19日; 录用日期: 2024年3月4日; 发布日期: 2024年3月11日

摘要

本文首先搭建了基于3-omega法的热导率测试系统并结合LabVIEW软件编写了仪器控制程序, 在测试电路中使用INA128P仪表放大器芯片实现样品两端电势差的获取, 确保了交流信号的准确测量。之后本文基于3-omega法的一维传热模型使用该测试系统对 SiO_2/Si 样品进行了 SiO_2 薄膜的平面外热导率测量, 得到 SiO_2 薄膜的热导率 $1.3444 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, 验证了该测试系统对交流信号测量的准确性, 为进一步实验奠定基础。但是一维传热模型不能满足实际高质量外延薄膜中不同晶向的热导率测量需求, 为此本文发展了一种适用于该需求的二维传热模型, 基于加热丝不同宽度的设计, 宽度更小的加热器可以调节面内焦耳热的运输情况, 从而获得面内方向上的热导率。本实验使用该二维传热模型测量了 $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 样品中 AlN 薄膜上[1010], [2110]和[0001]方向的热导率, 实验得到 AlN 薄膜在这三个方向上的热导率分别为 $7.32 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$, $9.57 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 和 $1.1612 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。另外实验也进行了COMSOL软件仿真交叉验证。

关键词

3-Omega法, AlN 薄膜, 热导率, LabVIEW, COMSOL

Measurement of Anisotropic Thermal Conductivity Based on the 3-Omega Method

Hanyang Chen*, Yanda Ji

College of Physics, Nanjing University of Aeronautics and Astronautics, Nanjing Jiangsu

Received: Jan. 19th, 2024; accepted: Mar. 4th, 2024; published: Mar. 11th, 2024

Abstract

This paper begins by constructing a thermal conductivity testing system based on the 3-omega method and developing an instrument control program using LabVIEW software. In the test circuit,

*通讯作者。

an INA128P instrumentation amplifier chip is employed to amplify the potential difference across the sample's two ends, ensuring accurate measurement of the alternating current signal. Subsequently, utilizing the one-dimensional heat transfer model based on the 3-omega method, the system is employed to measure the in-plane thermal conductivity of SiO₂ thin films on Si substrates. The obtained thermal conductivity of the SiO₂ film is 1.3444 W·m⁻¹·K⁻¹, validating the accuracy of the measurement system for alternating current signals and laying the foundation for further experiments. However, the one-dimensional heat transfer model fails to meet the requirements for measuring the thermal conductivity in different crystal directions in actual high-quality epitaxial films. Therefore, this study develops a two-dimensional heat transfer model suitable for such demands. Based on the design of heating wires with different widths, a narrower heater can adjust the transport of in-plane Joule heat, thereby obtaining the in-plane thermal conductivity. Using this two-dimensional heat transfer model, the experiment measures the thermal conductivity of AlN thin films on Al₂O₃ substrates in the [1010], [2110], and [0001] directions. The experiment yields thermal conductivities of 7.32 W·m⁻¹·K⁻¹, 9.57 W·m⁻¹·K⁻¹, and 1.1612 W·m⁻¹·K⁻¹ for the AlN film in these three directions, respectively. Additionally, the experiment undergoes cross-validation through simulation using COMSOL software.

Keywords

3-Omega Method, AlN Film, Thermal Conductivity, LabVIEW, COMSOL

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

对具有高平面热导率的薄膜材料的研究在各种应用中变得日益重要，其中包括在微电子学、通信、高功率器件、LED (Light Emitting Diode, 发光二极管) 等领域的应用[1]。这样的研究涉及对二维层状材料和各种具有各向异性属性的晶体的探索，例如薄膜、超晶格、石墨烯以及类似的平面材料[2]。它们的热性能是在工业应用上的一个关键考虑因素，促使了对这些材料的热导率进行实验性测量的研究。33-omega 方法相对于其他测量薄膜热导率的方法具有几个优势，包括其广泛的适用范围和通用的设备仪器[3]。它还能够区分各向异性材料的平面外(cross-plane)和平面内(in-plane)热导率[4]。3-omega 方法相对其他热导率测试方法来说，辐射和对流热损失[5]的误差影响较小。通常情况下，薄膜材料的热导率要小于它们体块对应物质的热导率，有时甚至相差很大。例如，在室温下，20 nm 厚的硅薄膜的热导率可能比其体块单晶对应物质小五倍[6]，而封装的石墨烯单层平面上的热导率至少比块材石墨的相应值小十倍[7]。所以对于薄膜各向异性热导率的测量是一项挑战。而 AlN 由于其高热导率而被广泛应用于电子器件散热、LED 封装以及微波和射频器件等领域，成为一个备受关注的材料。其能有效地将设备产生的热量传导出去，提高设备的稳定性和可靠性。因此，精确地测量 AlN 薄膜的热导率对 AlN 薄膜的实际应用来说尤为重要。

2. 3-Omega 法原理

3-omega 法主要利用了对样品施加交流电时产生的三次谐波。测试电路中三次谐波的产生依赖于如图 1 所示的电极结构，其中金属线既作为电流驱动的加热器，也作为感应 3ω 信号的感应器。在该实验中由函数发生器提供的交流电是正弦周期的，正弦交流电驱动样品上的加热器，进而产生焦耳热。正弦

电流加热导致的温度波动变化也应同样呈现与电流类似的周期性, 应呈现为 2ω 的频率。产生焦耳热之后引起的温度变化将导致加热器上的电阻变化, 将产生的温度变化幅度记为 ΔT , 电阻将随着温度变化改变。电路中的电压将呈现以下的形式:

$$U = R_0 I_0 \sin \omega t + \frac{R_0 I_0}{2} \alpha_R \Delta T \cos(\omega t + \phi) + \frac{R_0 I_0}{2} \alpha_R \Delta T \cos(3\omega t + \phi) = U_\omega + U_{3\omega} \quad (1)$$

由此得到在考虑焦耳热的情况下, 电压中会出现一部分 3ω 频率的项。其中, U 是总电压, R_0 是金属线未加热时的电阻, I_0 是函数发生器提供的电流, ω 是交流电的角频率, α_R 是金属线的电阻温度系数, U_ω 和 $U_{3\omega}$ 分别是角频率未 ω 和 3ω 的交流电信号。实验中需要将这一部分 3ω 信号用锁相放大器从混合信号中分离出来。获取 3ω 信号后, 需要将其转换为温度振荡的幅度 ΔT , 用于后续的热导率计算。理论上来说, 在金属线中产生的焦耳热以 2ω 的频率振荡, 以波的形式向周围扩散。该温度的波动 ΔT 通常与金属线下的样品有关, 其关系由以下公式给出[8]:

$$\Delta T = \frac{P}{\pi l k} \left(0.5 \ln \left\{ \frac{\alpha}{b^2} \right\} - 0.5 \ln \{ \omega \} + \eta \right) - i \left(\frac{P}{4 l k} \right) = \frac{P}{\pi l k} f_{linear} (\ln \omega) \quad (2)$$

其中, P 为电流的加热功率, l 为金属线加热器的长度。在公式(2)中, 只有 $\ln \omega$ 项是变化的量, 其他项都是常量, 因此只要得到温度振荡幅度与交流电角频率自然对数的斜率关系就可以得到前面的系数, 计算出热导率 k 。其中 η 是一个常量, f_{linear} 是关于 $\ln \omega$ 的线性函数。

然而公式(2)只能得到测试对象平面外的热导率, 本文发展了一种用于测试薄膜各向异性热导率的方法。通过采用不同的金属线加热器线宽, 使得二维热传播结果差异化, 宽度更窄的金属线加热器更趋向于向平面内方向上的传播热量。由此给出了以下的公式, 并考虑了薄膜 - 基底组合中基底的影响[8]:

$$\Delta T_F = T_{F+S} - T_S = \frac{pd_F}{2blk_{F_z}} CS \quad (3)$$

$$C = 1 - \frac{k_{F_x} k_{F_z}}{k_S^2} \quad (4)$$

$$S = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\sin^2 \lambda}{\lambda^3} \frac{\tanh(\lambda \beta_F)}{\left[1 + \left(\sqrt{k_{F_z} k_{F_x}} / k_S \right) \tanh(\lambda \beta_F) \right] \beta_F} d\lambda \quad (5)$$

$$\beta_F = \sqrt{k_{F_x}} (d_F / b) \quad (6)$$

其中, T_{F+S} 是薄膜 - 基底结构上加热器的温度变化, T_S 是单基底结构上加热器的温度变化, d_F 是薄膜的厚度, k_S 是基底的热导率, k_{F_z} 是薄膜平面外的热导率, k_{F_x} 是薄膜平面内的热导率。

3. 系统设计和功能实现

3.1. 硬件构成

本实验中首先将设计好的电极图案制作出掩模版, 再通过磁控溅射将 Pt/Ni 电极镀在样品表面。如图 1 所示, 金属线(Metal Wires)中间的宽度 $2b$ 为 $50 \mu\text{m}$, 接线处之间的间隔 l 为 7 mm 。之后电路的连接如图 2 所示, 函数发生器 Keysight33500B 提供一个激励交流电信号, 作为输入信号接入样品的接线处, 并串联一个可调电阻(variable resistance), 再从可调电阻另一端引出线接地, 构成交流电的回路。另外, 本实验使用了两个仪表放大器 INA128P, 来获取样品和可调电阻两端的电势差。将样品和可调电阻两端的电势差转换为单端信号之后即可接入锁相放大器(lock-in amplifier) SR830 的 A 端和 B 端。通过改变函数

发生器输入信号的频率可以获取三次谐波电压关于输入信号频率的关系。实验中仪器的控制与数据收集将由 LabVIEW 程序实现。

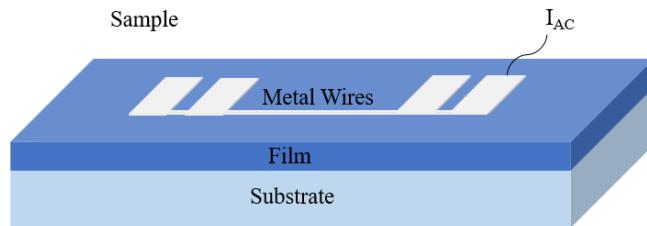


Figure 1. 3-omega method experimental schematic diagram
图 1. 3-omega 法实验示意图

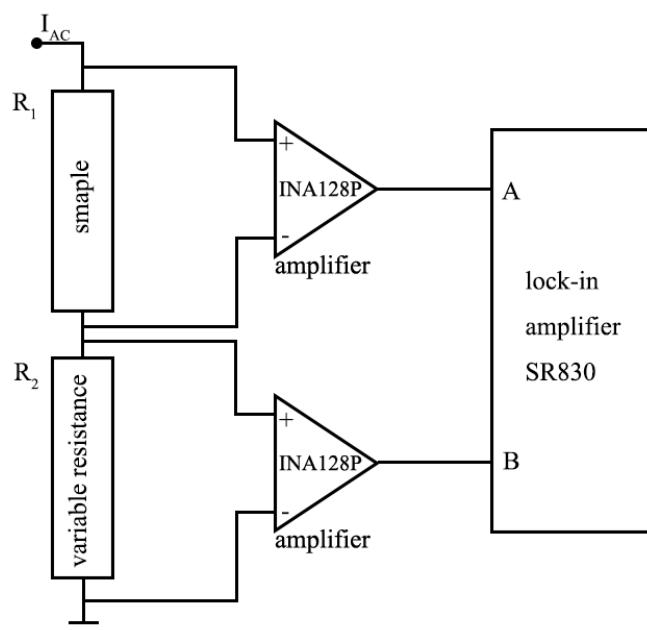
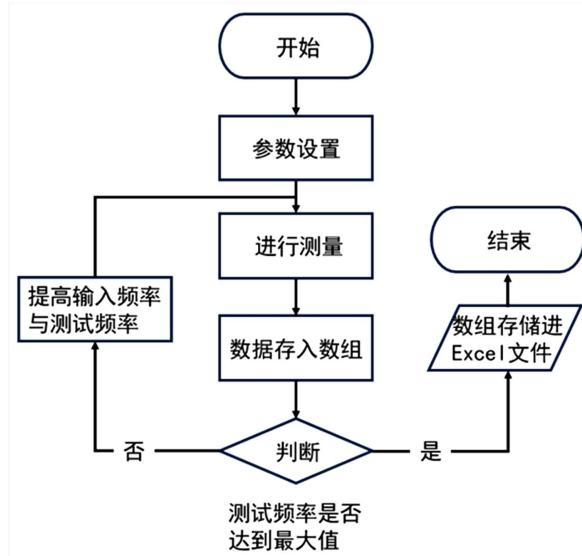


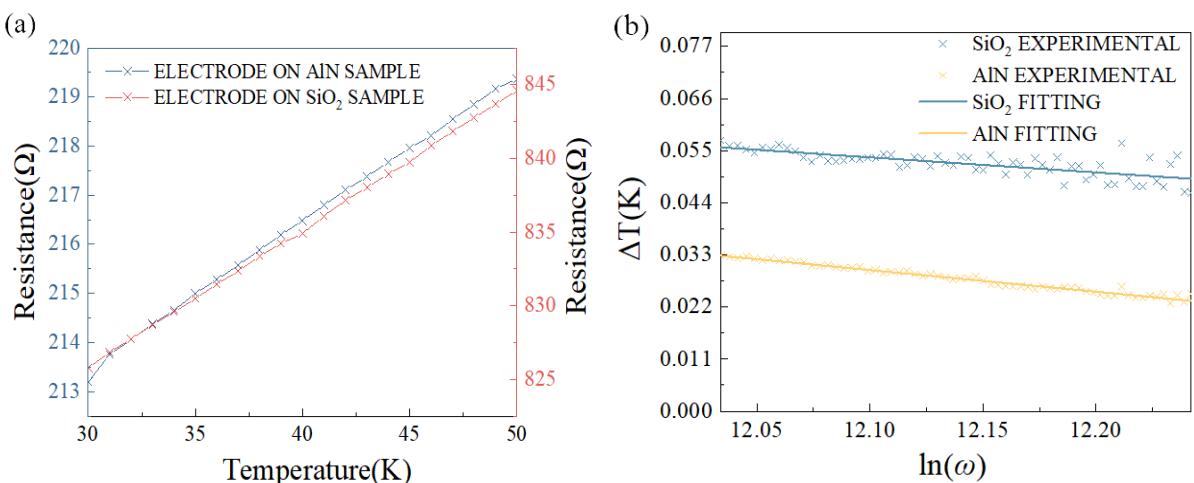
Figure 2. Circuit diagram
图 2. 电路示意图

3.2. 软件设计

在 $U_{3\omega}$ 的测量实验中计算机作为上位机同时控制函数发生器 Keysight 33500B 输出正弦交流信号 I_{AC} 的频率以及锁相放大器 Stanford Research Systems SR830 的测量频率。本文使用了 LabVIEW 软件来编写自动测试程序，该程序的作用是测量随输入正弦交流电频率变化的三次谐波电压有效值大小，流程图如图 3 所示。程序使用了 LabVIEW 中的 VISA 模块(串口通信模块)，通过 VISA 写入函数和 VISA 读取函数向仪器发送指令和读取数据。程序总体分为仪器参数设定，循环测试，数据保存这三个部分。首先程序进行仪器参数设定，通过计算机向仪器发送参数设定的指令，设定好函数发生器的交流电参数以及锁相放大器的测量参数。之后程序进入循环测试步骤，在该过程中，计算机向仪器发送指令，设定输入电流的频率，等待数秒后完成一次测量并将数据保存进数组变量中，即完成一次循环，下一次循环将调高输入电流的频率直到测试循环至 11 kHz (锁相放大器 SR830 测量 $U_{3\omega}$ 的极限频率只能到 33 kHz)。最后程序的数据保存部分将数组变量中的数据转换形式后保存为 Excel 文件。

**Figure 3.** Software flow chart of measuring $U_{3\omega}$ **图 3.** $U_{3\omega}$ 测量软件流程图

4. 实验与结果

**Figure 4.** (a) The resistance temperature relationship of metal wires on AlN/Si and SiO₂/Si; (b) The temperature fluctuation of AlN/Si and SiO₂/Si in the natural logarithmic relationship of AC angular frequency**图 4.** (a) AlN/Si 和 SiO₂/Si 上金属线的电阻 - 温度关系; (b) AlN/Si 和 SiO₂/Si 的温度波动 - 交流电角频率自然对数关系

首先, 实验采用了 3-omega 法最基本的测试方式, 主要测试 SiO₂ 薄膜的平面外热导率并验证测试系统测量电信号的准确性, 计算热导率使用的理论公式是公式(2)。在 3-omega 法测热导率的过程中, 电极材料的电阻温度系数 α_R 是 $U_{3\omega}$ 电压幅值推算到温度振荡幅度 ΔT 的关键, 电阻温度系数 α_R 可通过电阻与温度的关系计算, 如图 4(a) 所示。得到 α_R 之后, 再通过公式(1)将锁相放大器测得的 $U_{3\omega}$ 换算为温度振荡 ΔT 。从公式(2)中可以看出温度振荡幅值 ΔT 与角频率自然对数 $\ln\omega$ 的线性关系的斜率与热导率 k 紧密相关。最终通过图 4(b) 中的关系可计算得出该 SiO₂/Si 样品中 500 nm 厚度 SiO₂ 薄膜的平面外热导率, 通过调研文献, 实验测出的 SiO₂ 薄膜热导率符合文献所描述的 SiO₂ 薄膜的热导率范围 [9] [10] [11], 验证了本研究搭建的 3-omega 法测试系统的可靠性。同时通过图 4(b) 同样计算得到 AlN/Si 样品的 500 nm 厚度 AlN

薄膜的纵向热导率, 结果表示在表 1 中。

Table 1. Cross-plane thermal conductivity from experimental
表 1. 实验得到的平面外热导率

样品	热导率($\text{Wm}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)
AlN 薄膜($d = 500 \text{ nm}$, Si 基底)	2.842
SiO_2 薄膜($d = 500 \text{ nm}$, Si 基底)	1.344

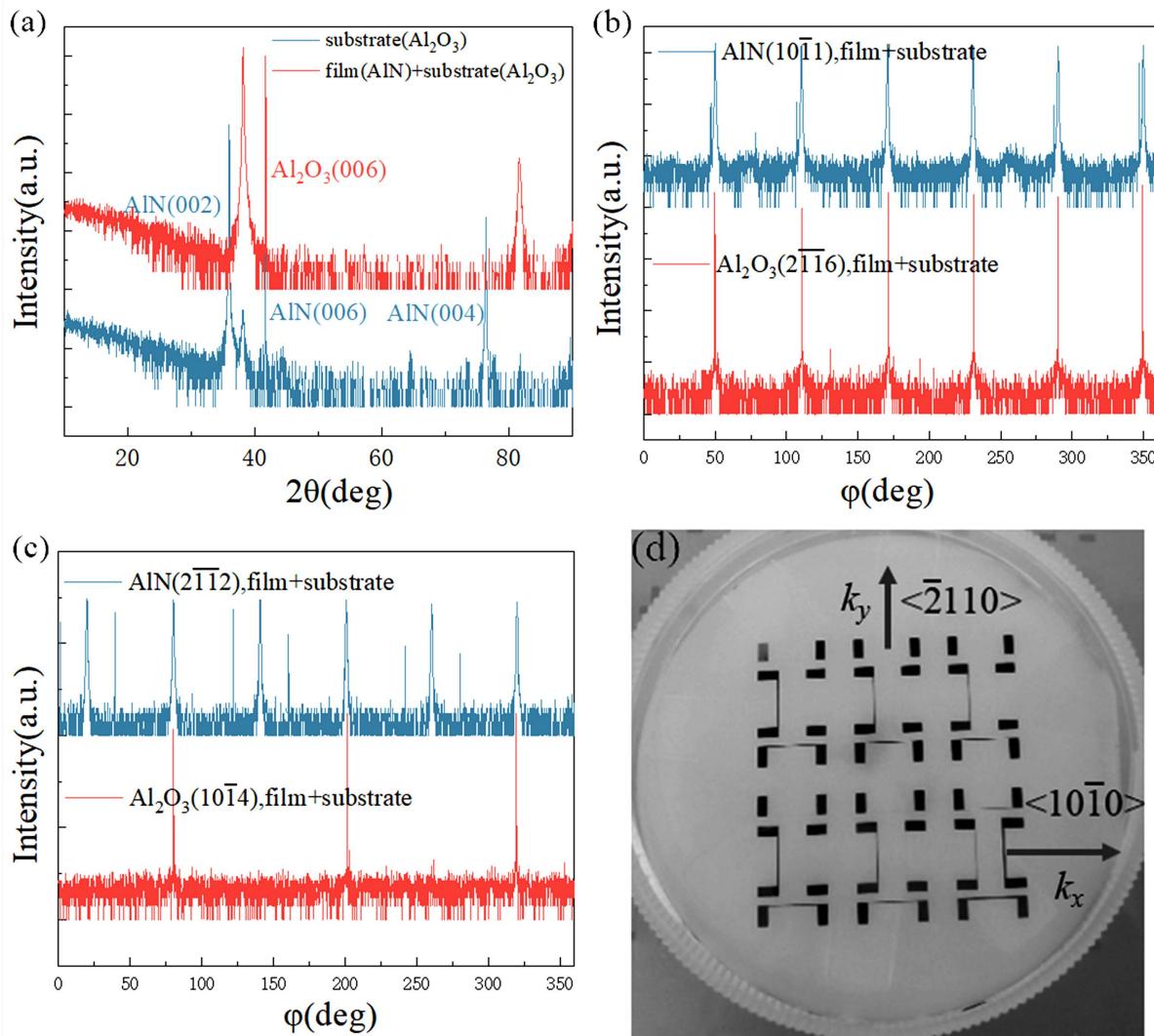


Figure 5. (a) XRD 2Theta testing of $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (obtained [0001] and defined as z -direction); (b) XRD phi testing of $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (obtained $[10\bar{1}0]$ and defined as the x -direction); (c) XRD phi test of $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (obtained $[21\bar{1}0]$ and defined as y -direction); (d) The AlN crystal orientation is represented on the sample

图 5. (a) $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 XRD 2theta 测试(得到[0001]并定义为 z 方向); (b) $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 XRD phi 测试(得到 $[10\bar{1}0]$ 并定义为 x 方向); (c) $\text{AlN}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 的 XRD phi 测试(得到 $[21\bar{1}0]$ 并定义为 y 方向); (d) AlN 晶向在样品上表示

表 1 是通过 3-omega 法的一维热传导模型得出的平面外热导率, 使用的金属线加热器宽度是 $50 \mu\text{m}$ 。为了解决测量各向异性热导率的问题, 本文发展了测量不同方向热导率的方法, 使用了 $3 \mu\text{m}$ 至 $100 \mu\text{m}$

多种宽度的金属线加热器。首先该实验在 AlN/Al₂O₃ 样品上定义了互相垂直的三个方向 x , y , z , 并测定了这三个方向上的晶向, 如图 5(a)~(d) 所示。通过图 5(a) 的 2theta 扫描可以知道样品的 z 轴方向上晶向是 [0001], 之后选取了 AlN 衍射峰强度较强的 [1011] 和 [2112] 方向进行 phi 测试。[1011] 与 z 轴的方向 [0001] 作矢量相减后可以得到 [1010] 的方向, 将其定义为 x 方向。同理通过 [2112] 与 [0001] 的矢量相减可以得到 [2110] 的方向, 将其定义为 y 方向。具体方向如图 5(d) 所示。

实验计算热导率使用的模型是公式(3)~(6)。可以看出, 公式中待解的两个未知量分别是薄膜平面外的热导率和薄膜平面内的热导率, 为此需要两组数据构建两个方程来求解。在图 6(a) 中获得了两个宽度 $2b = 3 \mu\text{m}$ 和 $100 \mu\text{m}$ 对应的 ΔT_F (ΔT_F 取的是测量频率范围内的平均值), 通过 Matlab 程序使用穷举法进一步计算 AlN 的 [2110] 方向热导率 k_y 和 [0001] 方向热导率 k_z , 其中 d_F 为 $3 \mu\text{m}$, k_s 是基底的热导率, 仍通过一维传热模型来获得, 为 $1.5 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。 l 为电极长度 5 mm , P 为加热的功率, 通过电压和电阻计算得。将相关参数代入后就得到了如表 2 所示的结果。同时, 另一个方向电极的实验结果可以获得 AlN [1011] 方向的热导率 k_x 和 [0001] 方向的热导率 k_z 。根据两个宽度 $2b$ 和对应的 ΔT_F 在 Matlab 程序中进行计算。其他参数不变, 用 $2b$ 为 $3 \mu\text{m}$, ΔT_F 为 0.04781 K 计算出所有 k_x 和 k_z 的解, 之后再将 $2b$ 为 $100 \mu\text{m}$, ΔT_F 为 -0.04715 K 的条件代入来筛选出符合的 k_x 和 k_z 。对 AlN/Al₂O₃ 样品测量结果同样表示在表 2 中, AlN 薄膜厚度为 $3 \mu\text{m}$ 。

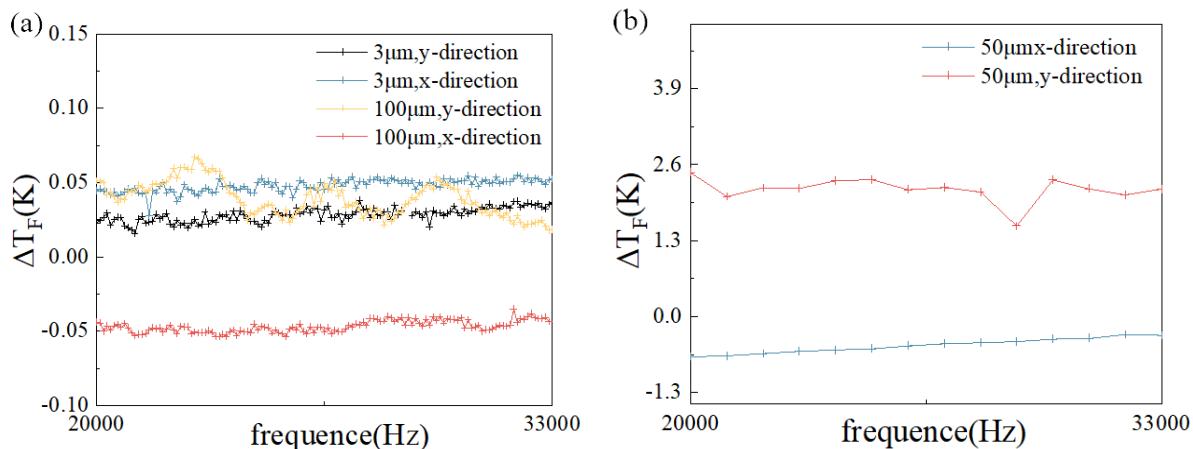


Figure 6. (a) The relationship between ΔT_F and AC frequency under different heater widths (for calculating thermal conductivity); (b) The relationship between ΔT_F and AC frequency with $50 \mu\text{m}$ width heater (for reference)

图 6. (a) 不同加热器宽度下 ΔT_F 与交流电频率的关系(用于计算热导率); (b) $50 \mu\text{m}$ 宽度加热器的 ΔT_F 与交流电频率的关系(用作参考)

Table 2. Anisotropy thermal conductivity of AlN thin film

表 2. AlN 薄膜各向异性热导率

平面外 [0001] 方向热导率 k_z	平面内热导率	平面内方向
$1.1608 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1} \sim 1.1738 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	$7.60 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1} \sim 7.02 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	[1011] 热导率 k_x
$1.1574 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1} \sim 1.1671 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	$9.81 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1} \sim 9.13 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$	[2110] 热导率 k_y

另外本研究制作了 COMSOL 软件仿真程序, 效果如图 7(a)、图 7(b)。从图 7(b) 的仿真结果可以看出在同样的交流电功率下, 宽度更大的电极温度振荡幅度 ΔT 更大, 这与实验中的趋势相同。同样仿真程序得到的温度振荡幅度 ΔT 数值在数量级上与实际实验得到的数值是相同的, 因此该 COMSOL 软件仿真程序的仿真结果较理想, 与 3-omega 法热导率测试实验进行了交叉验证。

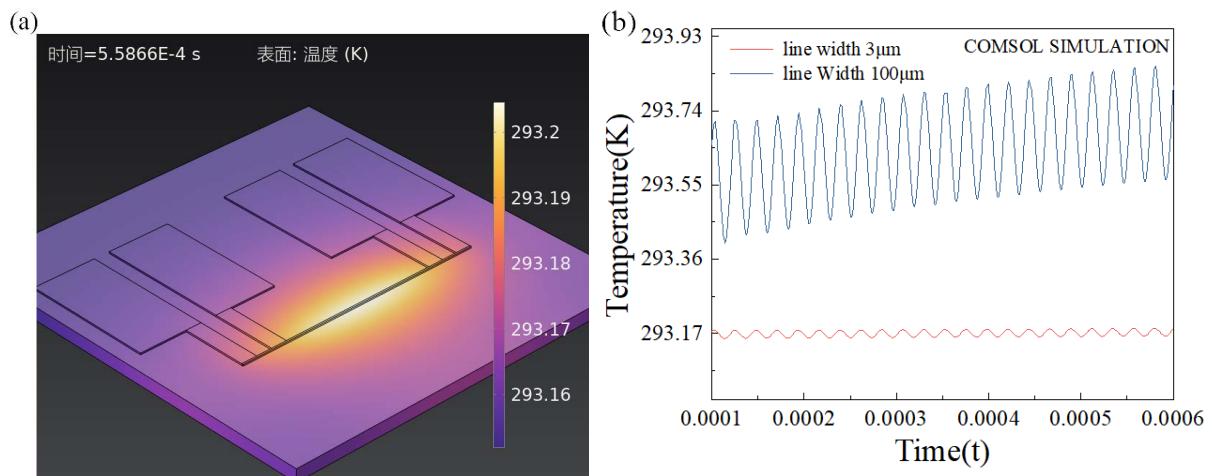


Figure 7. (a) Temperature distribution diagram of COMSOL software experimental simulation; (b) Temperature oscillation under different heater widths by COMSOL software simulation (same AC power)

图 7. (a) COMSOL 软件实验仿真的温度分布图; (b) COMSOL 软件实验仿真的不同加热器宽度下温度振荡(交流电功率相同)

5. 结论

本实验主要通过测量 SiO_2 薄膜的热导率验证了自主搭建的 3- ω 法热导率测试系统，并做了进一步研究，发展了 3- ω 法测量薄膜材料各向异性热导率的实验。实验测得了 AlN 薄膜三个方向 [2110]、[1010]、[0001] 上的热导率，结果取平均后分别为 $9.57 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 、 $7.32 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 和 $1.1612 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ ，展现了 AlN 单晶较强的各向异性。通常情况下，与大块单晶相比，许多薄膜合成技术会导致更多的杂质、无序和晶界，这些因素都倾向于降低热导率。其次，即使是杂质较少的薄膜也会由于边界散射、声子泄漏等因素而导致热导率的降低。这两种基本机制通常对平面内和平面外热导率的影响不同，因此薄膜的热导率常为各向异性。同时本研究给出了自主设计的 COMSOL 程序仿真结果，由于各种测量或设定因素，从仿真中得到的数值很难与实际实验完全符合，但在结果的变化趋势以及数值的数量级上与实验接近，这也另一方面验证了 3- ω 法测量热导率实验的成功。

参考文献

- [1] Hoque, M.S.B., Koh, Y.R., Braun, J.L., et al. (2021) High In-Plane Thermal Conductivity of Aluminum Nitride Thin Films. *ACS Nano*, **15**, 9588-9599. <https://doi.org/10.1021/acsnano.0c09915>
- [2] Choi, D., Poudel, N., Cronin, S.B., et al. (2017) Effects of Basal-Plane Thermal Conductivity and Interface Thermal Conductance on the Hot Spot Temperature in Graphene Electronic Devices. *Applied Physics Letters*, **110**, 073104. <https://doi.org/10.1063/1.4976511>
- [3] Liu, P., Wen, Y., Siah, C.F., et al. (2023) A Dual-Domain 3ω Method for Measuring the In-Plane Thermal Conductivity of High-Conductive Thin Films. *Applied Physics Letters*, **122**, 252201. <https://doi.org/10.1063/5.0154177>
- [4] Bhardwaj, R.G. and Khare, N. (2022) 3ω Technique for Thermal Conductivity Measurement—Contemporary and Advancement in Its Methodology. *International Journal of Thermophysics*, **43**, Article Number 139. <https://doi.org/10.1007/s10765-022-03056-3>
- [5] Cahill, D.G. (1990) Thermal Conductivity Measurement from 30 to 750 K: The 3ω Method. *Review of Scientific Instruments*, **61**, 802-808. <https://doi.org/10.1063/1.1141498>
- [6] Liu, W. and Asheghi, M. (2006) Thermal Conductivity Measurements of Ultra-Thin Single Crystal Silicon Layers. *ASME Journal of Heat and Mass Transfer*, **128**, 75-83. <https://doi.org/10.1115/1.2130403>
- [7] Jang, W., Chen, Z., Bao, W., et al. (2010) Thickness-Dependent Thermal Conductivity of Encased Graphene and Ultrathin Graphite. *Nano Letters*, **10**, 3909-3913. <https://doi.org/10.1021/nl101613u>
- [8] Borca-Tascic, T., Kumar, A.R. and Chen, G. (2001) Data Reduction in 3ω Method for Thin-Film Thermal Conduc-

- tivity Determination. *Review of Scientific Instruments*, **72**, 2139-2147. <https://doi.org/10.1063/1.1353189>
- [9] Martin, E., Ori, G., Duong, T.Q., et al. (2022) Thermal Conductivity of Amorphous SiO₂ by First-Principles Molecular Dynamics. *Journal of Non-Crystalline Solids*, **581**, 121434. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2022.121434>
- [10] Anufriev, R., Tachikawa, S., Gluchko, S., et al. (2020) Cross-Plane Thermal Conductivity in Amorphous Si/SiO₂ Superlattices. *Applied Physics Letters*, **117**, 093103. <https://doi.org/10.1063/5.0023782>
- [11] Chen, W., Feng, Y., Qiu, L., et al. (2020) Scanning Thermal Microscopy Method for Thermal Conductivity Measurement of a Single SiO₂ Nanoparticle. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, **154**, 119750. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2020.119750>