

文章编号:1001-4888(2021)01-0051-11

基于相敏瞬态热反射系统的 多层热界面材料的拟合研究*

童晨^{1,2}, 裴娱^{1,2}, 孟婷^{1,2}, 张鹏^{1,2}, 杨晓晨^{1,2}, 张熠远^{1,2}, 赵旻^{1,2}

(1. 中国科学院材料力学行为和设计重点实验室, 合肥 230026; 2. 中国科学技术大学精密机械与精密仪器系, 合肥 230026)

摘要: 厚度微米级热界面材料的热物性参数, 可通过相敏瞬态热反射测量法拟合得出。本文对该方法的原理进行了发展研究: 基于数据测量过程中, 不同调制频率区间对应样品中的热穿透深度不同(高频区间内热穿透深度小, 低频区间内热穿透深度大), 提出针对多层材料, 分频段依次对各层热参数拟合的方法。本方法的途径是通过不同频率区间的选择, 沿着热穿透方向依次对各层参数进行拟合, 从而减少后层材料未知参数对当前层参数拟合的影响, 同时减少对已知参数条件的要求, 提高了拟合结果的质量。用本文方法对四层材料样品做了测量及拟合数据对比, 结果表明拟合结果相对误差保持在 $\pm 8\%$ 之内, 同时对界面热导的信号敏感度进行了分析, 发现拟合参数的信号敏感度依赖于频率的选择。

关键词: 热界面材料; 相敏瞬态热反射系统; 多层材料; 热物性参数; 分层拟合

中图分类号: O34 **文献标识码:** A **DOI:** 10.7520/1001-4888-20-012

0 引言

近年来, 随着微纳加工技术的不断发展, 电子器件逐渐趋于微型化、集中化、高密度化的同时也导致了热流密度的不断增加, 器件内部出现热量的累积使得温度不断升高, 直接影响了电子器件的工作效率以及使用寿命^[1,2]。据调查研究表明, 芯片中的热流分布并不均匀, 存在很多“热点”, 热点部位的热流密度比平均热流密度高一个数量级, 使得“热点”部位的失效率大大提高, 因此如何降低器件内部温度, 尤其是“热点”部位的问题成为了一个限制集成电路发展的瓶颈^[3,4]。同时研究还发现, 在电子器件散热问题中, 界面热阻占据了总热阻的50%以上^[5,6], 已成为热管理问题中的关键问题。为了解决这一关键性问题, 热界面材料(Thermal Interface Materials, TIM)随之产生, 它能够填充在芯片封装粗糙界面空隙处, 形成低阻力的热通道, 增强界面处的热传输^[7], 同时能够抵抗一定热应力及振动变形的影响, 保证界面的有效传热以及结构的稳定性^[1]。传统的热界面材料, 主要包括导热油(胶)、相变材料、金属焊料等^[2]。作为新兴的热界面材料, 例如纳米管^[3,8]、纳米线^[5,9]等微纳米材料, 已引起了人们极大的关注, 因其材料本身的高热导率以及纳米结构的高机械适应性, 有望极大地改善芯片的散热问题。

为了评价各类热界面材料的性能, 热物性参数的测量就显得尤为重要。热界面材料的热物性参数测量一般包括材料本身的热导率以及该材料与上下界面的接触热阻。国内外已经有很多学者就热物性参数的测量方法进行了大量的研究, 主要可分为稳态热流法^[10,11]和瞬态热流法^[3,5,12]。稳态热流法中利

* 收稿日期: 2020-01-17; 修回日期: 2020-03-16

基金项目: 国家自然科学基金(11572311, 51732006)资助

通信作者: 赵旻(1972-), 女, 博士, 中国科学技术大学工程科学学院教授。主要从事微纳加工和热界面材料的研究。Email: yangzl@ustc.edu.cn

用公式 $R = \Delta T / Q$ (R 为热阻, ΔT 为温度差, Q 为热流密度) 来计算热阻, 一般在待测样品两端设定热源端和冷源端, 分别用来加热和冷却, 整体装置隔热处理, 避免与外界的热交换。测试过程中, 热端输入热流密度 Q , 利用温度传感器测定两端温差 ΔT , 从而最终获取样品总热阻 $R^{[1,5]}$ 。Qin Zipeng 等^[13] 利用稳态热流法对泡沫玻璃的热导率进行了研究, 结果表明对于给定孔隙率的泡沫玻璃, 热导率会随着孔径的增加而降低。刘家骅等^[14] 利用一维稳态纵向热流法对上海同步辐射装置光束线前端挡光元件的热导率进行了研究, 发现应变损伤累积对热导率的影响可以忽略。稳态热流法原理简单, 操作便捷, 成本低廉, 可实施性好, 但是该方法只能测得样品的总热阻, 无法将各段热阻区分开, 另外, 整体系统对隔热要求较高, 在微观尺度上难以达到高的精度^[1]。因此, 为了测得热界面材料的界面热阻, 提高测量参数的精度, 微纳结构一般无法采用稳态热流法, 而瞬态热流法^[15] 是一种非稳态测量方法, 测量时间短、精度高, 可以区分各部位热阻, 但是原理复杂, 涉及导热微分方程和边界条件的确定, 实验操作较为繁琐, 设备成本高。在众多的瞬态热流法中, 3ω 法和光热反射法是目前常见的用于微纳尺度传热的方法。其中, 3ω 法^[16-18] 主要用于块状或薄膜材料的测量, 它需要利用微纳技术在材料表面沉积金属电极然后加载交流电, 通过测量交流电产生的周期热流变化来获取材料的热物性参数。Yamane 等^[17] 利用 3ω 法分别测量了采用溅射、喷涂、热蒸以及化学沉积法制作的 SiO_2 膜的导热系数。Alvarez-Quintana 等^[18] 利用 3ω 法在 $30 \sim 300\text{K}$ 温度范围内测量了不同厚度的 Ge 膜与 Si 之间的界面热阻, 发现两者间的界面热阻随着温度的升高而降低。虽然 3ω 法测量精度高、装置较为简单, 但是在测量过程中需要对样品进行微纳加工, 在样品表面沉积金属导线, 金属线与样品之间的电阻会对测量精度产生一定的影响。因此我们希望寻求一种对样品本身性能影响最小的方法, 光热反射法是一种光学非接触测量方法, 可利用材料自身的热反射效应测定体态材料和薄膜材料的热物性参数。该方法一般可分为时域热反射法 (Time Domain Thermo-Reflectance, TDTR) 和频域热反射法 (Frequency Domain Thermo-Reflectance, FDTR)。时域热反射法一般采用的是具有超高时间分辨率的飞秒激光进行加热和探测, 成本高、系统复杂, 并且测量频率较高 (MHz 阶段), 热穿透深度一般为几微米, 更适用于纳米级别的材料^[19,20]。Zhang 等^[21] 利用时域热反射法对金属和氧化物之间的界面热导率进行了测量, 发现金属/SiO₂ 的界面热导略低于金属/Si 之间的界面热导。频域热反射法利用的是周期性光强调制的激光对样品进行加热^[22], 成本低, 系统较为简单, 一般测量频率在 100kHz 以下, 热穿透深度在几十到几百微米, 可适用微米级别的样品^[23]。本文所需测量的样品厚度在微米级别, 因此采用相敏瞬态热反射法进行热物性参数测量, 该方法属于频域热反射法, Yu Pei 等^[24] 曾利用该方法测量了接触压力对碳纳米管阵列界面热导率的影响, 发现一定的接触压力能够有效改善接触状态, 提高碳纳米管与目标界面的界面热导率。

在本文工作中, 主要研究的对象为相敏瞬态热反射系统 (频域热反射系统)。目前国内外对于频域热反射系统的研究较少, 主要集中在热物性参数敏感度研究。Schmidt 等^[25] 利用频域热反射系统对石英和蓝宝石两种低扩散率材料热物性参数的相位敏感度进行了研究, 发现样品的热扩散率越大, 界面热导率信号敏感度越高, 但同时更多的热量传向基底方向影响测量结果。Hopkins 等^[23] 对 FDTR 和 TDTR 两种光热反射系统的热导率信号敏感度进行了对比, 发现 TDTR 方法的信号敏感度一般高于 FDTR 方法, 但当界面热阻接近于基底热阻时, FDTR 方法有更高的信号敏感度。而关于频域热反射系统的数据拟合过程的研究极少, 若测量对象为多层样品时, 待拟合参数的个数就会增加, 就需要一次性拟合多个参数, 这样就会给拟合过程带来很大的难度, 同时也增加了拟合结果的不确定性。因此本文针对后期的数据拟合过程进行了改进, 提出了分频率段分层拟合的方法, 将多层模拟简化, 分频率段拟合各层参数, 减少了统一拟合过程中部分未知参数对拟合结果的影响, 同时也减少了对已知参数条件的要求, 并通过对四层材料样品 (镀 Cr/Au 玻璃-In-镀 Cr/Au 的 SiO_2 -Si) 的测量及数据拟合验证了该方法的可行性。

1 相敏瞬态热反射法原理

相敏瞬态热反射法 (Phase Sensitive Transient Thermo-Reflectance, PSTTR) 是一种频域范围内非接触式光学热测量方法。该方法基于样品的光热反射效应, 即样品表面反射率的变化依赖于样品温度

的变化,因此可以在选定频率范围(一般在 $100\sim 100000\text{Hz}$ 之内),利用连续的周期性加热激光对样品进行加热,使得样品表面产生周期性的温度振荡,光热反射效应的存在使得样品表面的反射率也产生周期性的振荡,这种反射率的振荡变化可以利用光电探测器捕获,材料的热物性参数信息就包含在接收的信号之中,可利用软件分析提取出来。

热界面材料的测试样品一般为多层结构,图 1(a)为四层待测样品示意图,第一层为镀 Cr/Au(10nm/100nm)的玻璃,其中 Cr 层作为黏附层,Au 薄膜由于具有较高的光热反射系数,作为测量吸收反射层,加热激光在该层 Au 薄膜中被吸收并产热,然后热量沿着热穿透方向向样品内部传导;第二层为电子封装中的常用材料钢(In);第三层为镀 Cr/Au(10nm/100nm) SiO_2 层,Cr/Au 薄膜的存在是为了封装的需要,加强 In 层与 SiO_2 层的键合效果,使两者的结合更加紧密;第四层为 Si 片。测试前,利用压力机将样品在高温高压(具体温度、压力视材料而定)条件下进行封装,使样品间紧密贴合,完成待测样品的制作并放置在样品框内进行后续测试。图 1(b)为相敏瞬态热反射系统实验装置的示意图。加热激光采用的是半导体激光器(RPMC,LDX3315-808,波长为 808nm,最大输出功率约为 3W),通过信号发生器(Rigol,DG1062)调制出角频率为 ω 的方波加热信号,信号被样品表面的 Au 薄膜吸收后,表面的热流沿着热穿透方向向样品内部扩散。探测激光采用的是恒定功率的氦氖激光器(HNR-IHT-5.0-P,波长 632.8nm),由于样品表面的 Au 膜具有光热反射效应,即样品表面反射率的变化依赖于温度的变化,因此样品表面产生的周期性的温度振荡,会使得 Au 膜的反射率也发生周期性的变化,该变化被光电探测器(Thorlabs,DET36A/M)所探测。加热激光通过凸透镜在样品表面聚焦成直径约为 3mm 的圆斑,同时对探测激光进行了扩束后再聚焦的处理,保证样品表面探测激光面积的最小化,探测激光的光斑直径大约为 0.5mm。由于探测激光光斑面积远小于加热激光的光斑面积,因此系统可以近似为一维传热模型。由样品反射出的探测激光信号被光电探测器接收,并利用滤镜屏蔽散射的加热激光信号,确保光电探测器送入锁相放大器(Stanford Research Systems,SR850)的信号仅为探测激光信号,而加热激光的调制信号也送入锁相放大器中作为参考信号进行相位比较,两种信号频率相同,但由于样品的热性质产生相位的滞后。

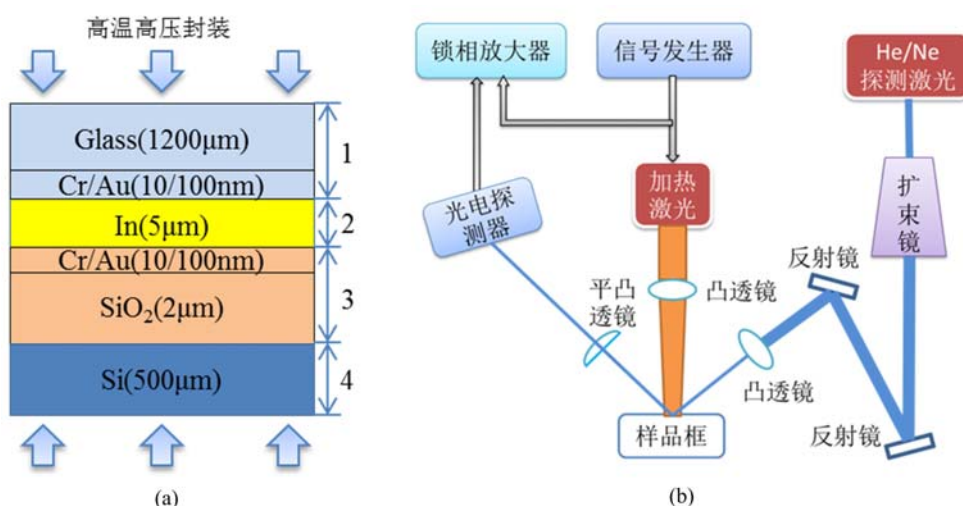


图 1 四层待测样品(a)和相敏瞬态热反射系统实验装置(b)的示意图

Fig. 1 Schematic of the four-layer sample to be tested (a) and the experimental device of phase-sensitive transient heat reflection system (b)

2 热学模型和数据拟合

2.1 热学模型

依据一维传热模型,热量在第一层 Au 薄膜处被吸收,然后沿着纵向方向传导。图 2 为四层传热模型示意图,在每一层和界面之间都会存在热阻,而界面间不储存热量,不存在热容。对于样品中存在的

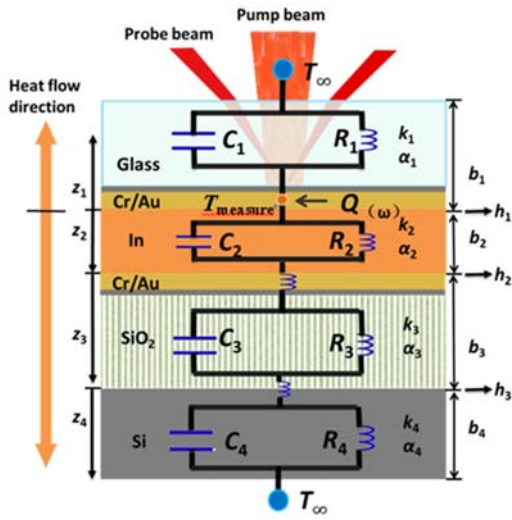


图2 四层模型结构的示意图

Fig. 2 Schematic of the four-layer model structure

两层 Au 薄膜,由于 Au 的热导率是非常高的,而且 Au 的厚度仅为 100nm,在我们考虑的实验频率下,Au 薄膜内的热穿透深度远大于薄膜的实际厚度,该层引起的相位滞后是可以忽略的,因此两层 Au 薄膜在热学模型分析中不做层数设定,Au 薄膜自身的热阻以及与两侧的界面热阻不做单独考虑,包含在某层总的热阻进行考虑^[26]。

对于多层材料,每层材料的傅里叶热扩散方程为

$$\frac{1}{\alpha_i} \frac{\partial T_i(z, t)}{\partial t} = \frac{\partial^2 T_i(z, t)}{\partial z_i^2} \quad (1)$$

其中, i 表示第 i 层; z 表示沿热传导方向的法向坐标; t 为时间(s); T 为温度(K); α 为热扩散率(m^2/s)。针对于每层材料的上下界面均有对应的边界条件,分别为

$$-k_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial z_1^2} \Big|_{z_1=b_1} = 0 \quad (2)$$

$$-k_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial z_1^2} \Big|_{z_1=0} + h_1 [T_1(0) - T_2(0)] = Qe^{-i\omega t} \quad (3)$$

$$-k_2 \frac{\partial^2 T_2}{\partial z_2^2} \Big|_{z_2=0} = h_1 [T_1(0) - T_2(0)] \quad (4)$$

$$-k_2 \frac{\partial^2 T_2}{\partial z_2^2} \Big|_{z_2=b_2} = h_2 [T_2(b_2) - T_3(0)] \quad (5)$$

$$-k_3 \frac{\partial^2 T_3}{\partial z_3^2} \Big|_{z_3=0} = h_2 [T_2(b_2) - T_3(0)] \quad (6)$$

$$-k_3 \frac{\partial^2 T_3}{\partial z_3^2} \Big|_{z_3=b_3} = h_3 [T_3(b_3) - T_4(0)] \quad (7)$$

$$-k_4 \frac{\partial^2 T_4}{\partial z_4^2} \Big|_{z_4=0} = h_3 [T_3(b_3) - T_4(0)] \quad (8)$$

$$-k_4 \frac{\partial^2 T_4}{\partial z_4^2} \Big|_{z_4=b_4} = 0 \quad (9)$$

其中, k 表示第 i 层有效热导率($\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$); Q 和 ω 分别表示加热激光的热量(W)和频率(Hz); h 表示第 i 层和第 $i+1$ 层的界面热导率($\text{W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$); 样品上下表面($z_1 = b_1$ 及 $z_4 = b_4$)被简化为绝热边界条件。

2.2 分频率段分层拟合

数据拟合过程中需要借助 MATLAB 软件,首先将每层的热扩散方程进行求解,然后分别代入各边界条件中,得到 T_{measure} 的通解,将 T_{measure} 的通解和其中涉及的热物性参数值同时输入到 MATLAB 中,即可利用软件获得材料的相位滞后随频率变化的关系,从而与实验数据进行最小二乘法拟合。拟合过程中需要对参数进行赋值得到初始相位随频率的变化曲线,然后对待拟合参数(热导率、厚度、界面热导等)初值大小进行调整使得拟合结果逼近测量结果,从而获取最贴合实验结果的曲线,此时待拟合参数所对应的数值则为拟合结果。

多层材料的拟合过程中会涉及很多参数,包括每一层的厚度、热导率、热扩散系数等等,这些参数互相影响,因此材料的层数越多,需要拟合的未知参数就越多,数据拟合过程的不确定性越大,同时对初始预估值的选取也越敏感,极大地影响了待拟合参数的准确性。基于这种一次性拟合多层材料所有未知参数的困难性,我们需要寻求一种简化模型的方法,例如,四层材料的拟合过程中,首先将四层材料简化

为二层材料,拟合这两层未知参数,然后再简化为三层材料,拟合第三层未知数,最后拟合第四层参数,这样就可以依次拟合各层参数。

根据热穿透深度理论可知,当固体表面被施加一个周期性的热源时,固体内部的温度也会产生周期性的振荡,这种振荡的幅度会随着热穿透深度的增加而不断衰减,直至降低到某一可以忽略的阈值,此时可认为热量不再继续穿透。通常当总体衰减的幅度降低到初始值的 e^{-1} (e 为自然常数,其值约为 2.71828) 时,可认为此时达到了热穿透阈值,热信号停止向下传导,而这个距离被定义为热穿透深度。在本文样品中,由于加热激光的热量是在镀 Cr/Au 玻璃的 Au 薄膜处被吸收并产热,然后会沿着玻璃、In 层两个方向进行传热,因此会存在双向传热的问题,但是在实际分析中,样品的热物性参数是未知的,只能根据以往的工作在一定范围内预估一个大概的热穿透深度,并且实际沿着玻璃基底方向的传热占比较少^[25],故忽略了此方向上的热传输,将双向传热问题简化为单向传热问题。根据已有的热扩散方程和边界条件,利用 MATLAB 对式(1)~(9)进行处理可以得到样品内部的温度随着深度的变化趋势,如图 3(a)所示,在不同层之间由于界面热阻的存在会产生温度的骤降,在每一层中,温度的振荡幅度会随着深度的增加而不断衰减,热穿透曲线与热穿透阈值的交点所在位置即热穿透极限,穿透的总长度为热穿透深度。

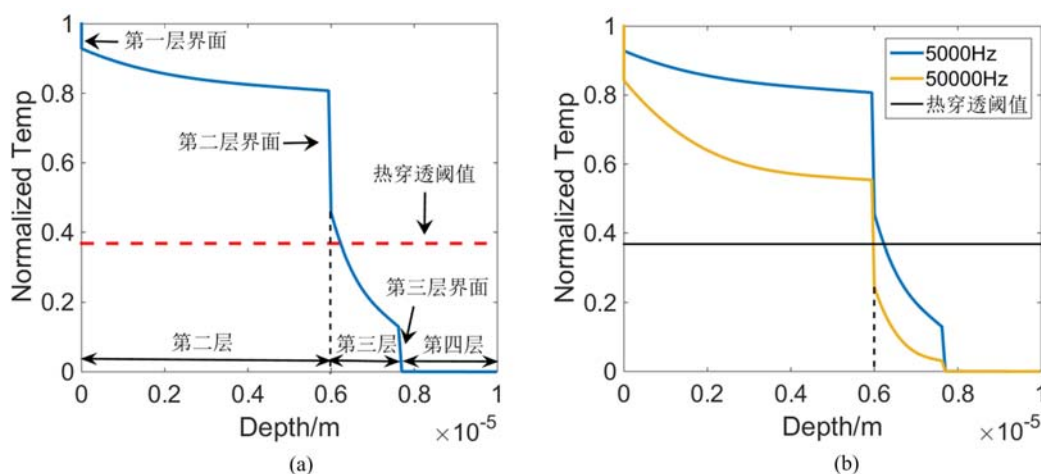


图 3 四层模型热穿透深度示意图(a)和不同频率点热穿透深度曲线(b)

Fig. 3 Schematic of thermal penetration for four-layer model (a) and schematic of thermal penetration for high and low frequency (b)

模型热传导趋势的变化依赖于频率的变化,不同频率所对应的热穿透深度不同。图 3(b)为不同频率点对应的热穿透深度曲线,通过对比可以发现,频率为 5000Hz 时的热穿透阈值停留在第三层,而频率为 50000Hz 时的热穿透阈值停留在第二层界面,频率越高,热穿透阈值的位置越靠前,热穿透的距离越短。利用这一特点,我们就可以在全频率段记录数据,然后筛选不同的频率区间使得热穿透深度分别在第二层、第三层等,实现沿着热穿透方向依次拟合各层参数的目的,减少了后层材料未知参数对当前层参数拟合的影响,同时减少了对已知参数条件的要求,提高了拟合结果的正确性。例如对应 50000Hz 时,图 3(b)所示热穿透阈值停留在第二层界面,说明在此频率处,第三层材料的热性质对信号的影响非常微弱,因此可以通过高频率(50000Hz)信号的拟合,首先确定第一、二层材料的热参数。在第一、二层材料热参数确定的前提下,通过对低频率(5000Hz)信号的拟合,进一步确定第三层材料的热参数。一般这种拟合方法,拟合计算过程相对复杂,误差分析较为困难,拟合过程是一层一层递后的,后面几层参数的拟合会受到前面几层的影响,因此我们在评估误差的时候一般是整体评估的,将拟合值与真实值进行相对误差分析,相对误差公式为

$$\delta = \frac{x_{\text{fit}} - x_{\text{real}}}{x_{\text{real}}} \times 100\% \quad (10)$$

其中, δ 表示拟合值与真实值之间的相对误差; x_{fit} 表示拟合值; x_{real} 表示真实值。

3 实验验证

3.1 样品制备

针对本文提出的分频率段分层拟合的方法,设计制作了一个四层样品(镀 Cr/Au 玻璃-In-镀 Cr/Au 的 SiO₂-Si),具体样品示意图可参见图 2,第一层为镀 Cr/Au 玻璃,玻璃厚度 $z_1 = 1200\mu\text{m}$,然后利用磁控溅射的方式在玻璃表面制备 Cr/Au(10/100nm)薄膜,第二层为 In 层,预计热蒸厚度 $z_2 = 5\mu\text{m}$,第三层为镀 Cr/Au 的 SiO₂ 层,预计 SiO₂ 生长厚度 $z_3 = 2\mu\text{m}$,Cr/Au(10/100nm)薄膜同样采用磁控溅射的方法制备,第四层为 Si 片,厚度 $z_4 = 500\mu\text{m}$ 。该样品利用真空键合的方式进行封装,其中半边材料为热蒸镀有 $5\mu\text{m}(z_2)$ In 层的镀 Cr/Au 玻璃,另外半边材料为附有 $2\mu\text{m}(z_3)$ SiO₂ 层(等离子体增强化学的气相沉积法 PECVD 生长所得)的 Si 片, SiO₂ 层上利用磁控溅射的方式制备 Cr/Au(10/100nm)薄膜,最后在真空、140℃的环境下,施加 40N 的力将两块材料键合在一起, SiO₂ 层上的 Au 薄膜可以有效加强键合的效果,使样品结合得更加紧密。由于在该样品中, Au 薄膜的厚度仅为 100nm,而其他层的厚度均在微米(μm)以上级别,因此可以忽略 Au 薄膜的热阻对信号的影响,不做单独考虑。

3.2 拟合过程及拟合结果

利用相敏瞬态热反射系统对样品进行热物性参数测定,总频率区间设为 33~45000Hz,为确保得到足够的数点,选择 300Hz 作为采样间隔。根据以往工作,多层样品每一层所对应的频率区间长度不同,且 3000Hz 以下频率区间内数据变化较大,因此为了确保低频率区间拟合有足够的数点,在 33~3033Hz 频率段选择 30Hz 作为采样间隔,扩大数据点数量。30Hz、300Hz 采样间隔的选择使得每段区间都有足够的数点。

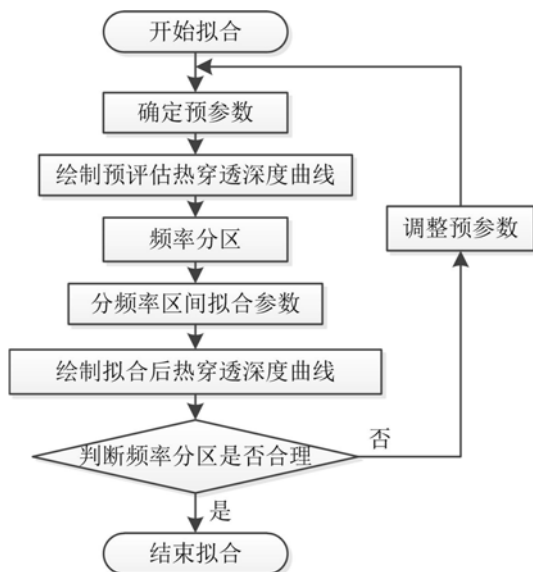


图 4 数据拟合过程流程图

Fig. 4 Flow chart of data fitting process

图 4 为数据拟合过程流程图,首先需要根据样品实际情况和文献查询结果确定样品的热物性参数初值,并根据初值绘制预评估热穿透深度曲线;然后根据预评估热穿透深度曲线进行频率区间的分段与选择,在每段区间内对样品进行分层拟合,依次得到各层未知参数;最后根据拟合出的参数重新绘制热穿透深度曲线并与预评估曲线进行比对,若各频率区间内两者的热穿透深度大致停留在同一层,则说明预评估频率分段合理,结束拟合,否则需要调整预参数,重新开始绘制预评估热穿透深度曲线进行分层拟合直至循环结束。

预评估热穿透深度曲线的变化依赖于样品的各项参数(厚度、比热等),因此在频率区间选择前,需要根据已有的条件确定样品热物性参数初值,包括每一层的热导率(k)、热扩散系数(α)、厚度(m),以及四层间的界面热导率(h_1 、 h_2 、 h_3)。其中,玻璃、In、SiO₂ 和 Si 的热导率以及热扩散系数

通过传热学文献^[27]查询确定,每一层的厚度以样品预计制备的厚度确定,镀 Cr/Au 玻璃和 In 层之间的界面热导率(h_1)设定为金属与金属间的接触热导率 $10^9 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ ^[28], In 层与镀 Cr/Au 的 SiO₂ 层间的界面热导率(h_2)参考值取 Zhang 等^[21]测定的 Au/SiO₂ 间的界面热导率 $5.3 \times 10^7 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$, SiO₂ 和 Si 之间的界面热导率(h_3)取 Zhu 等^[29]测定的 SiO₂/Si 间的界面热导率 $1.5 \times 10^7 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 。参数初值设定结束后即可利用 MATLAB 绘出预评估热穿透深度曲线。

频率区间的分段与选择基于各频率段内样品热穿透深度曲线停留的位置。在软件中调整频率大小,分别绘制各频率处热穿透深度曲线,选择合适频率区间使得四层模拟能够依次简化为二层、三层和四层模型。图 5 表示的是预评估不同频率点对应的热穿透曲线图,通过多次绘图发现,频率越低,热穿

透深度越长,根据绘图结果可将频率区间分为 333~15000Hz、15000~25000Hz 和 25000~45000Hz 三段进行后续拟合,其中 33~333Hz 频率区间由于频率过低,热穿透深度过短,不符合一维传热模型的要求,此频率区间不参与拟合。45000Hz 和 25000Hz 时的热穿透阈值停留位置均为第二层界面(即 In 层与镀 Cr/Au 的 SiO₂ 层界面间)处,因此可在 25000~45000Hz 间拟合第二层界面之前的各部位参数,第一层为镀 Cr/Au 玻璃,第二层为 In 层,设定待拟合参数为 In 层厚度 b_2 ,镀 Cr/Au 玻璃和 In 层界面热导率 h_1 、In 层与 SiO₂ 层界面热导率 h_2 ,通过软件分别调整三个参数的大小进行最小二乘法拟合,直至获得最贴近实验数据曲线,此时的参数值即为拟合结果。

15000Hz 时的热穿透阈值停留在第三层界面(即镀 Cr/Au 的 SiO₂ 层与 Si 片界面处)初始端,因此在 15000~25000Hz 区间内第三层界面以后的材料对信号的影响较为微弱,进而可利用此频率区间拟合第三层 SiO₂ 层的参数,设定待拟合参数为 SiO₂ 层的厚度 b_3 和热导率 k_3 ,获取拟合结果;333Hz 时的热穿透阈值仍停留在第三层界面处,可知该样品 SiO₂ 层与 Si 片间的界面热阻 h_3 过大,使得热穿透深度最大仅能达到该界面处,热量很少达到第四层材料,无法拟合第四层材料参数,因此在 333~15000Hz 区间仅拟合参数 h_3 。分段拟合过程的详细参数如表 1 所示,包括各模型已知参数和未知拟合参数的汇总。

表 1 四层样品分段拟合过程参数表

Tab. 1 Parameter table for four-layer sample segmental fitting process

序号	频率区间/Hz	模型层数简化	已知参数	拟合参数
1	25000~45000	二层	$b_1, k_1, \alpha_1, k_2, \alpha_2$	B_2, h_1, h_2
2	15000~25000	三层	$b_1, k_1, \alpha_1, k_2, \alpha_2, b_2, h_1, h_2, \alpha_3$	B_3, k_3
3	333~15000	四层	$b_1, k_1, \alpha_1, k_2, \alpha_2, b_2, h_1, h_2, \alpha_3, b_3, k_3$	h_3

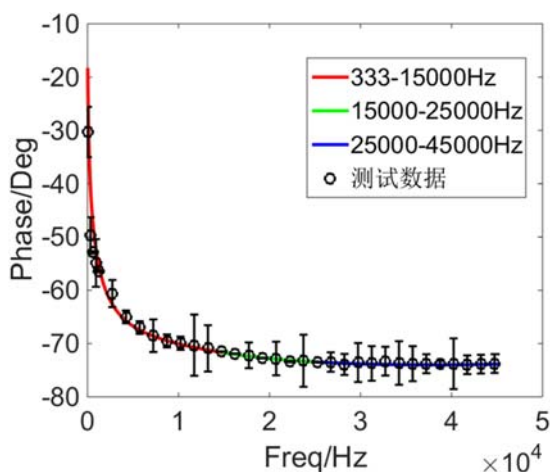


图 6 四层样品数据拟合图

Fig. 6 The data fitting diagram of four-layer sample

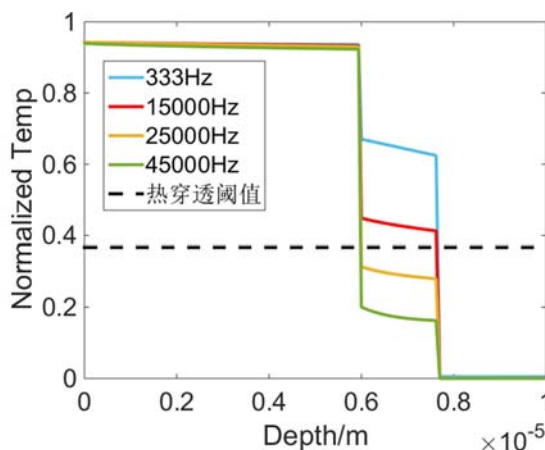


图 5 预评估不同频率热穿透曲线

Fig. 5 Pre-evaluation of thermal penetration curves for different frequencies

最终拟合的数据图如图 6 所示,33~333Hz 频率区间虽然已经不在拟合范围内,但是实际作图时考虑到曲线的完整性,仍然放在了图中作参考。实验数据采样频率间隔为 30Hz 和 300Hz,但是由于实验数据点过多,为了清晰展示拟合结果,并未将所有原始数据点画出。对测量数据点进行处理,在 33~1233Hz 频率区间内每隔 300Hz 取点绘图,在 1233~44733Hz 频率区间内每隔 1500Hz 取点绘图,确保整体数据分布均匀。误差棒对应的是该频率点所测的 500 个样本数据点的标准偏差,对比最终拟合曲线和实验测量数据可发现,各段频率区间内实验数据点几乎贴近拟合曲线,说明拟合结果达到了较为理想的效果。

表 2 为待拟合参数汇总表,包含各参数初

始值、拟合值,其中 In 层厚度 b_2 可以利用台阶仪多次测量获取真实值, SiO_2 层厚度 b_3 可以利用椭偏仪多次测量获取真实值,同时, SiO_2 薄膜的热导率一般为 $1.3\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$ 左右^[29],通常作为热测量中的标准样品,用于对测量系统的标定,因此在本实验中作为一个标定参数与结果进行比较。将拟合结果与实验/文献获取的结果做对比,得到三个参数的相对误差均保持在 $\pm 8\%$ 之内,可证实拟合结果具有一定可信度。另外,界面热导(h_1 、 h_2)比初值^[21,29]要小 2 个数量级主要是由于样品制备过程中镀膜和封装工艺的原因,由于文献中的 In 薄膜是磁控溅射法镀膜的^[21],而实际制备中采用的是热蒸法,薄膜表面均匀性较差,较为粗糙,因此影响了界面热导。

第一次循环拟合结束后需要将拟合后的热穿透深度曲线与预评估热穿透深度曲线作对比,验证频率区间的分段与选择是否合理。图 7 为最终拟合热穿透深度曲线,取预拟合频率区间($333\sim 15000\text{Hz}$ 、 $15000\sim 25000\text{Hz}$ 和 $25000\sim 45000\text{Hz}$)进行分析,发现虽然预拟合热穿透曲线与最终热穿透曲线存在一定差异,但是各频率区间的热穿透深度在样品中的位置分析基本符合原始分析,说明初始频率域的选取基本合适。

表 2 四层样品拟合数据对比表

Tab. 2 Comparison of four-layer sample fitting data

参数	初值	拟合结果	测量/文献结果	相对误差
b_2	$5.0\mu\text{m}$	$6.0\mu\text{m}$	$5.75\pm 0.75\mu\text{m}$	4.34%
b_3	$2.0\mu\text{m}$	$1.75\mu\text{m}$	$1.95\pm 0.01\mu\text{m}$	-7.69%
k_3	$1.3\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	$1.2\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	$1.3\text{W}/(\text{m}\cdot\text{K})$	-7.69%
h_1	$10^9\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	$6\times 10^7\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	—	—
h_2	$5.3\times 10^7\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	$1.28\times 10^5\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	—	—
h_3	$1.5\times 10^7\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	$5.5\times 10^5\text{W}/(\text{m}^2\cdot\text{K})$	—	—

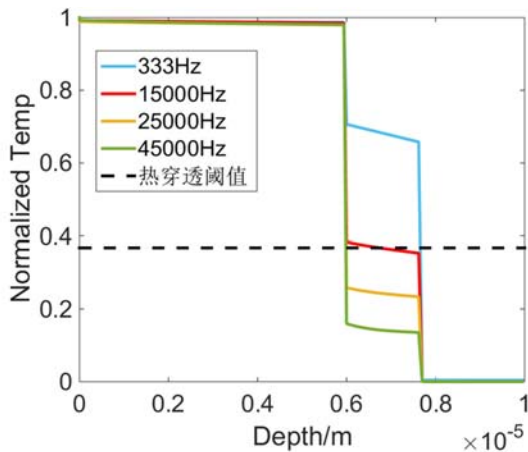


图 7 最终拟合对应不同频率热穿透曲线
Fig. 7 The final thermal penetration curves for different frequencies

3.3 参数敏感度分析

实验参数敏感度的分析能够评价实验的精确度,若测量信号对热物性参数敏感度越高,则说明该实验精确度越高。针对本实验的相敏瞬态热反射系统,主要采用图像法对界面热导率进行信号敏感度分析,将界面热导率拟合值改变 $\pm 30\%$ 绘制的拟合曲线与原始拟合曲线作对比,若拟合值改变 $\pm 30\%$ 对应的拟合曲线越偏离初始拟合曲线,则说明参数对信号灵敏度高,实验精确度越高。图 8(a)、(b)、(c) 分别为 h_1 、 h_2 和 h_3 的最佳拟合曲线灵敏度表征,分别将 h_1 、 h_2 和 h_3 改变 $\pm 30\%$ 绘制对应的拟合曲线与最佳曲线进行对比,发现三个热物性参数在不同频率区间内的信号敏感度不同, h_1 、 h_2 和 h_3 参数分别对应的敏感频率区

间: $h_1 > h_2 > h_3$,这也证实了多层材料内,不同部位的热物性参数信号敏感度的大小依赖于频率的选择,频率越低,热穿透深度越长,沿着热穿透方向越靠样品内部的热物性参数敏感度越高。因此,该参数的敏感度分析表明了不同频率下,样品的热穿透深度不同,处于样品内部不同位置参数的敏感度也不同,可在拟合前,借助热穿透深度理论预分析该参数信号敏感度较强的频率区间进行拟合,这样就可实现分频率区间分层拟合热物性参数的想法。

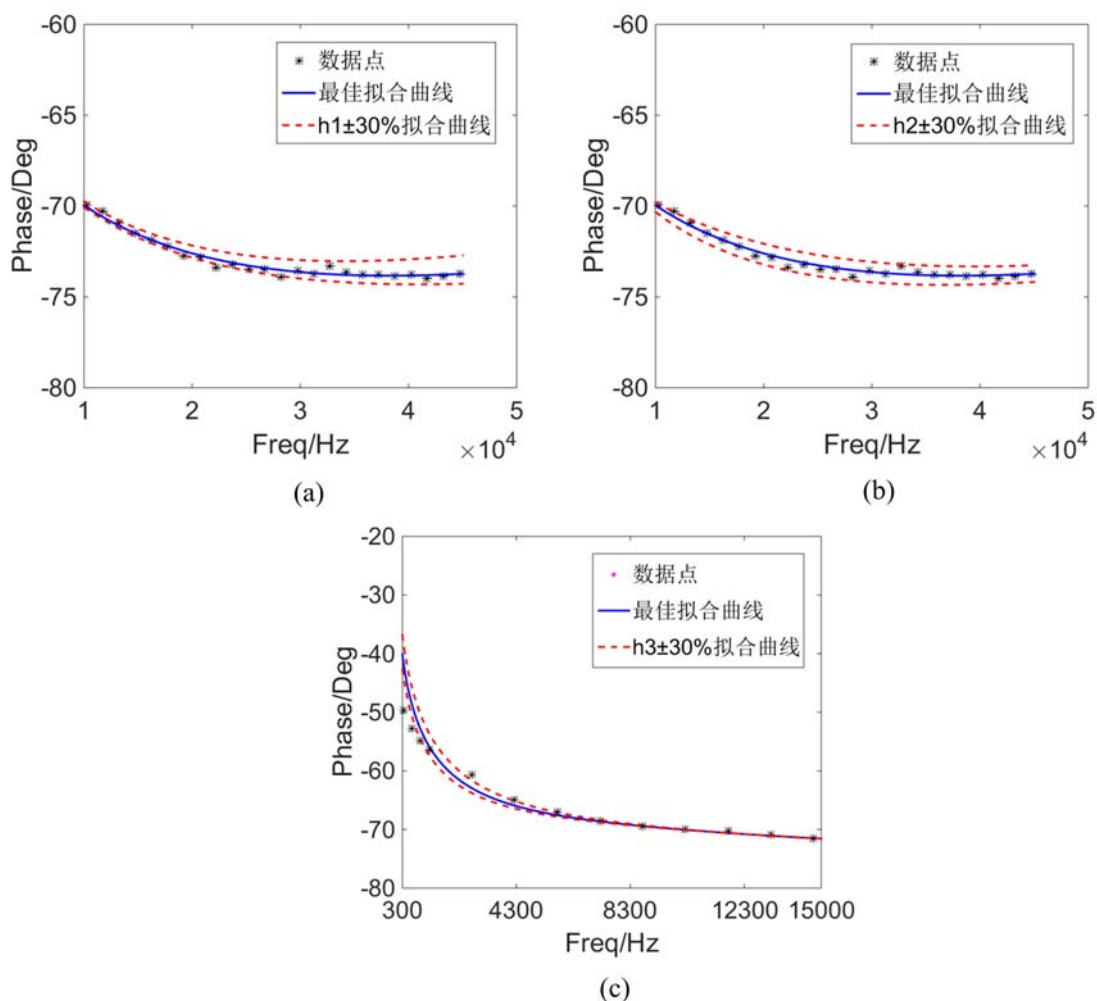


图 8 拟合参数最佳拟合曲线灵敏度表征:(a) h_1 ; (b) h_2 ; (c) h_3

Fig. 8 Sensitivity characterization of the best fitting curve for (a) h_1 ; (b) h_2 ; (c) h_3

4 结论和展望

随着电子器件的发展,热管理问题成为了一个亟待解决的问题,热界面材料的研究受到广泛的关注,确定材料的热参数成为了评价热界面材料性能的重要环节。相敏瞬态热反射法是一种常见的非接触式测量微米级热界面材料热参数的方法,它不会对样品本身产生损害,成本较低,操作较为简单。但是针对于多层材料,现有拟合模型较为复杂,后续的参数拟合过程较为繁琐,涉及每一层和界面间参数的确定,难以保证较高的拟合度,影响了待求参数的精度,因此本文对拟合过程进行了合理的简化和改进。

本文首先利用 MATLAB 对拟合过程中的导热方程及边界条件进行了分析,绘制了多层材料热穿透深度曲线。发现高频区间内,热穿透深度较短,后层材料的热性质对信号的影响较小。据此,在区间内可将原有的多层材料层数进行简化,忽略后层参数的影响,简化模型。这种分频率分层拟合的方法,通过对加热激光调制频率区间的选择,控制加热信号在多层热界面结构中的穿透深度,从而实现对样品的逐层探测。作为实例,制作了一个四层样品(镀 Cr/Au 玻璃-In-镀 Cr/Au 的 SiO_2 -Si),置于系统中进行了 33~45000 Hz 大频率区间的数据测量。采用本文提出的分频率分层拟合的方法,将全频率段分为 25000~45000 Hz、15000~25000 Hz、333~15000 Hz 三个区间段进行各层参数拟合,并与文献/测量数据进行了对比,拟合相对误差保持在 $\pm 8\%$ 之内,验证了该拟合方法所得拟合结果的可信性。同时对 h_1 、 h_2 和 h_3 三个热物性参数的信号敏感度进行了分析,发现参数信号敏感度依赖于频率的选择,验证了分频率分层拟合方法的可行性。对于多层材料,分段拟合的方法更加严谨科学,减少了未知参数对拟

合参数的影响,提高了拟合的成功率和准确性。但是该方法还存在一定的问题,例如预评估热穿透深度分析仅考虑了单向传热、无法精确获取挑选的频率段等,这些问题值得更进一步的研究。

参考文献:

- [1] 裴娱. 碳纳米管/铜纳米线阵列热界面材料研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2019 (PEI Yu. Thermal interface materials for carbon nanotubes/copper nanowires arrays [D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2019 (in Chinese))
- [2] 刘长青, 陈茂, 于伟. 热界面材料的研究进展[J]. 中国基础科学, 2018, 20(3):13-27, 64 (LIU Changqing, CHEN Mao, YU Wei. Research progress of thermal interface materials[J]. Basic Science of China, 2018, 20(3): 13-27, 64 (in Chinese))
- [3] Tong T, Zhao Y, Delzeit L, et al. Dense vertically aligned multiwalled carbon nanotube arrays as thermal interface materials[J]. IEEE Transactions on Components and Packaging Technologies, 2007, 30(1):92-100.
- [4] 王梦宇. 基于纳米管/线的热界面材料热性能研究[D]. 合肥: 中国科学技术大学, 2017 (WANG Mengyu. Research on thermal properties of thermal interface materials based on nanotubes/wires[D]. Hefei: University of Science and Technology of China, 2017 (in Chinese))
- [5] Gong W, Li P, Zhang Y, et al. Ultracompliant heterogeneous copper-tin nanowire arrays making a supersolder [J]. Nano Letters, 2018, 18(6):3586-3592.
- [6] Prasher R. Thermal interface materials: historical perspective, status, and future directions[J]. Proc IEEE, 2006, 94:1571-1586.
- [7] Chung D D L. Materials for thermal conduction[J]. Applied Thermal Engineering, 2001, 21(16):1593-1605.
- [8] Kim P, Shi L, Majumdar A, et al. Thermal transport measurements of individual multiwalled nanotubes[J]. Physical Review Letters, 2001, 87(21):215502.
- [9] Wang S, Cheng Y, Wang R, et al. Highly thermal conductive copper nanowire composites with ultralow loading: toward applications as thermal interface materials[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2014, 6(9):6481-6486.
- [10] Woodland S, Crocombe A D, Chew J W, et al. A new method for measuring thermal contact conductance-experimental technique and results[J]. Journal of Engineering for Gas Turbines and Power, 2011, 133(7): 071601.
- [11] Sponagle B, Croulx D. Measurement of thermal interface conductance at variable clamping pressures using a steady state method[J]. Applied Thermal Engineering, 2016, 96:671-681.
- [12] Kading O W, Skurk H, Goodson K E. Thermal conduction in metallized silicon-dioxide layers on silicon[J]. Applied Physics Letters, 1994, 65(13):1629.
- [13] Qin Zipeng, Li Gang, Tian Yan, et al. Numerical simulation of thermal conductivity of foam glass based on the steady-state method. [J]. Materials (Basel, Switzerland), 2018, 12(1):54.
- [14] 刘家骅, 焦冬生, 王桂娟, 等. 半寿命低周疲劳 Glidcop 材料导热系数的测量[J]. 实验力学, 2009, 24(2):108-114 (LIU Jiahua, JIAO Dongsheng, WANG Guijuan, et al. Thermal conductivity measurement of Glidcop in a half-life low-cycle fatigue stste[J]. Journal of Experimental Mechanics, 2009, 24(2):108-114 (in Chinese))
- [15] Guo Q, Wen Z, Dou R. Experimental and numerical study on the transient heat-transfer characteristics of circular air-jet impingement on a flat plate[J]. International Journal of Heat and Mass Transfer, 2017, 104:1177-1188.
- [16] Borca-Tasciuc T, Kumar A R, Chen G. Data reduction in 3ω method for thin-film thermal conductivity determination[J]. Review of Scientific Instruments, 2001, 72(4):2139.
- [17] Yamane T, Nagai N, Katayama S, et al. Measurement of thermal conductivity of silicon dioxide thin films using a 3ω method[J]. Journal of Applied Physics, 2002, 91(12):9772-9776.
- [18] Alvarez-Quintana J, Rodriguez-Viejo J. Interfacial effects on the thermal conductivity of a-Ge thin films grown on Si substrates[J]. Journal of Applied Physics, 2008, 104(7):074903-074903-4.
- [19] Jiang P, Qian X, Yang R. Tutorial: Time-domain thermoreflectance (TDTR) for thermal property characterization of bulk and thin film materials[J]. Journal of Applied Physics, 2018, 124(16):161103.
- [20] Jiang Puqing, Qian Xin, Yang Ronggui. A new elliptical-beam method based on time-domain thermoreflectance

- (TDTR) to measure the in-plane anisotropic thermal conductivity and its comparison with the beam-offset method [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2018, 89(9):094902.
- [21] Zhang C W, Bi K D, Wang J L, et al. Measurement of thermal boundary conductance between metal and dielectric materials using femtosecond laser transient thermoreflectance technique[J]. *Science China Technological Sciences*, 2012, 55(4):1044–1049.
- [22] Schmidt A J, Cheaito R, Chiesa M. A frequency-domain thermoreflectance method for the characterization of thermal properties[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2009, 80(9):094901.
- [23] Hopkins P E, Serrano J R, Phinney L M. Comparison of thermal conductivity and thermal boundary conductance sensitivities in continuous-wave and ultrashort-pulsed thermoreflectance analyses [J]. *International Journal of Thermophysics*, 2010, 31(11-12):2380–2393.
- [24] Pei Y, Zhong H, Wang M, et al. Effect of contact pressure on the performance of carbon nanotube arrays thermal interface material[J]. *Nanomaterials*, 2018, 8(9):732.
- [25] Schmidt A J, Cheaito R, Chiesa M, et al. Characterization of thin metal films via frequency-domain thermoreflectance[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107(2):024908.
- [26] 祝捷. 飞秒激光抽运探测法纳米材料及界面热输运机理研究[D]. 北京: 中国科学院研究生院, 2011 (ZHU Jie. Study on thermal transportation mechanism of nano-scale materials and interfaces by femtosecond laser pump and probe method[D]. Beijing: Graduate School of Chinese Academy of Sciences, 2011 (in Chinese))
- [27] Bergman T L, Incropera F P, Lavine A S, et al. *Introduction to heat transfer*[M]. John Wiley & Sons, 2011.
- [28] Gundrum B C, Cahill D G, Averback R S. Thermal conductance of metal-metal interfaces[J]. *Physical Review B*, 2005, 72(24):245426.
- [29] Zhu J, Tang D, Wang W, et al. Ultrafast thermoreflectance techniques for measuring thermal conductivity and interface thermal conductance of thin films[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108(9):094315.

Study on the fitting of multilayered thermal interface materials based on the phase-sensitive transient thermal reflection system

TONG Chen^{1,2}, PEI Yu^{1,2}, MENG Ting^{1,2}, ZHANG Peng^{1,2},
YANG Xiaochen^{1,2}, ZHANG Yiyuan^{1,2}, ZHAO Yang^{1,2}

(1. CAS Key Laboratory of Mechanical Behavior and Design of Materials, Hefei 230026, China; 2. Department of Precision Machinery & Precision Instrumentation, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: The thermophysical parameters of micron-scale thermal interface materials can be fitted by phase-sensitive transient thermal reflection measurement. For transient measurement method, the thermal penetration depth is directly related to the modulation frequency of the heating pulse. Therefore, for multilayered structure, a layered probing method is proposed by carefully adjusting the modulation frequency range. By controlling the probing depth, the thermal properties of each layer along the direction of propagation of thermal wave can be determined sequentially. This method can effectively reduce the influence of unknown parameters of the rear layers on the probed layer, and thus limit the fitting parameters and improve the accuracy of the fitting results. In this work, a four-layer thermal interface structure (Cr/Au plated glass-indium-Cr/Au plated silicon oxide-silicon) is measured and the fitting results are compared with standard values. The fitting relative error is found to be within $\pm 8\%$. The signal sensitivity of interfacial thermal conductivity is analyzed, and it is found that the signal sensitivity of the parameters relies on the choice of frequency.

Keywords: thermal interface material; phase-sensitive transient thermal reflection system; multilayered material; thermophysical parameters; layered probing