

通信情報機器や自動車搭載用電装品に代表される電子機器は、高速処理化や多機能化のため、さらなる小型化、高集積化が望まれている。なかでも動作中に発熱するものや、高温環境下で使用されるような電子機器に対しては、熱による動作不良を防ぐための熱設計が不可欠となっている。数値計算を用いた熱設計の精度を高めるには、より正確な材料物性値が必要である。

本稿では薄膜材料を対象とした熱物性評価技術について、周期加熱サーモリフレクタンス法を中心に、最近当社で開発した薄膜および局所領域における熱伝導率評価技術について紹介する。



技術本部
エレクトロニクス事業部
技術部
三宅 修吾

B-1 熱伝導率・熱拡散率の測定方法

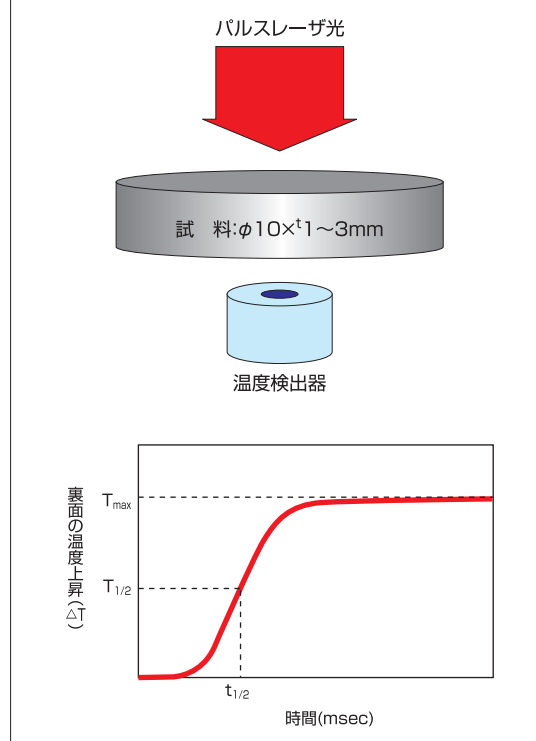
熱伝導率とは熱エネルギーが温度勾配に従って物質内部を伝わる速度パラメータであり、熱拡散率とは瞬時的温度変化に対し温度が均一化する速度パラメータである。これら熱伝導率・熱拡散率の測定方法は第1図に示すように大きく2つに分類される。定常法は直接熱伝導率を求めることができる便利な手法であるが、測定試料に定常的な温度勾配を与える必要があるため、ほとんどの測定方法においてセンチメートルオーダーの大きさの試料が必要となる。したがって定常法は、バルク材料としての平均的な熱伝導率を評価する目的で広く用いられている。一方、小さな、あるいは薄い試料の場合、計測できる有効な温度勾配を定常的に与えることが困難となり、非定常法による測定が有利となってくる。

非定常法とは時間的な温度応答を測定する方法である。代表的な非定常法の1つにレーザーフラッシュ法が挙げられる。各種バルク材料に広く適用できる汎用的な手法である。第2図にレーザーフラッシュ法の概要を示す。パルス幅数100 μ sec程度のレーザー光を試料表面に照射し、裏面の温度上昇を検出する。えられた特性時間から熱拡散率を算出し、別途測定した比熱、密度から熱伝導率を求めることができる。レーザーフラッシュ法の場合、バルク材料には有効であるが、たとえば厚さ100 μ mの銅箔では、裏面までの到達時間が速くなり過ぎ、一般的なレーザーフラッシュ装置の検出器では計測できない。とくに近年では薄膜材料を評価対象とする必要性が高まっており、極短時間に生じる温度変化を計測・解析する技術開発が盛んとなっている*1)。非定常的に温度を与える方法は、レーザー光方式とジュール熱方式に大別できる。同様に温度変化の捉え方もレーザー光検出法と電気的検出法がある。次章に非定常法による薄膜材料を対象とした熱物性評価技術について、当社が開発した技術を中心に、いくつかの測定方法を含めて説明する。

第1図 主な熱伝導率・熱拡散率測定法

定常法	非定常法
<ul style="list-style-type: none"> 平板直接法 平板熱流法 同心円筒直接法 同心円筒比較法 縦型比較法 など 	<ul style="list-style-type: none"> レーザーフラッシュ法 熱線法 周期加熱法 サーモリフレクタンス法 3ω法 acカロリメトリ法 など

第2図 レーザフラッシュ法の概要



参考文献

*1) I.Hatta : International Journal of Thermophysics, vol.11 (1990) No.2, p.293.

B-2 周期加熱サーモリフレクタンス法

(1) 基本原理

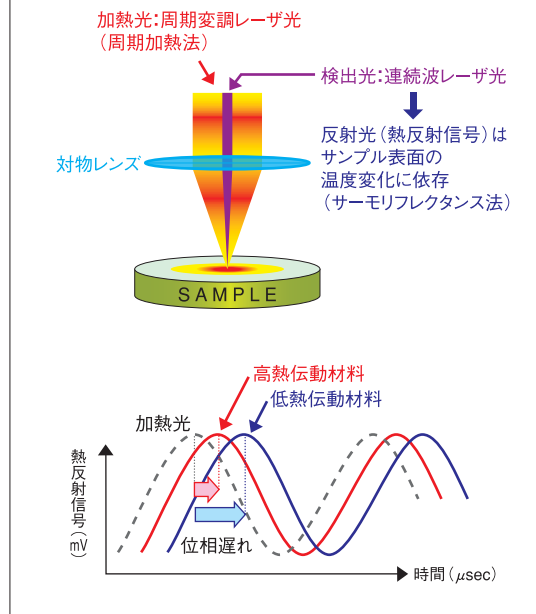
本法は加熱、検出ともにレーザー光を用いた計測方法である。鏡面状態の金属試料表面に、たとえばsin波変調したレーザー光を照射すると、レーザー光は試料表面で一部吸収され熱エネルギーへと変換される。この熱エネルギーは金属表面の温度を上昇させ、試料内部へ拡散する。拡散距離は熱拡散長 L_{th} と呼ばれ、次式(1)で示される。

$$L_{th} = \sqrt{\frac{D}{\pi f}} \quad (1)$$

ここで D は熱拡散率、 f は変調周波数を示す。変調周波数を高くすることで、より表面に限定された情報をえる事ができる。たとえば2MHzにおける銅の熱拡散長は約 $4.3 \mu\text{m}$ であり、レーザーフラッシュ法では測定できない薄膜試料の熱物性値を評価することが可能である。熱拡散率と変調周波数にもよるが、通常の周期加熱サーモリフレクタンス法では膜厚 $1 \mu\text{m}$ 以上の材料が測定対象となる。本法では対物レンズでレーザー光を絞込むことができ、局所領域における物性評価や、ステージスキャンによる物性値のマッピングも可能である。

試料表面における加熱光中心位置の温度応答は、加熱する周期と試料の熱物性値に依存する。金属表面における反射率は温度に依存して変化することが知られており^{*2)}、加熱光と同軸上に検出用レーザー光を照射すると、試料表面で反射した検出光は、試料の温度応答性に対応した周期的な信号(熱反射信号)として計測される。第3図に周期加熱サーモリフレクタンス法の概念図を示す。熱の拡散が速い試料の場合、加熱周期に対する温度応答の位相遅れは小さく、逆に熱の拡散が遅い試料の場合は位相遅れが大きくなる。したがって、この位相遅れを解析することで、試料の物性値を評価することができる。表面の温度応答が試料表面から板厚方向への熱の拡散が支配的である条件下において、基板の熱浸透率を評価する方法が開発されている^{*3)}。熱浸透率とは熱の奪いやすさの指標であり、熱伝導率の平方根に比例する。ここでの試料は薄膜/基板の2層構造であり、薄膜は熱反射信号を安定してえるためのMo膜、基板は未知試料として取扱っている。本法では一次元熱拡散モデルをベースに位相遅れを熱浸透率の関数として解析しており、熱拡散率、熱伝導率を直接的には評価できないが、定積比熱を与えることで熱拡散率、熱伝導率を算出することが可能である。

第3図 周期加熱サーモリフレクタンス法の概要



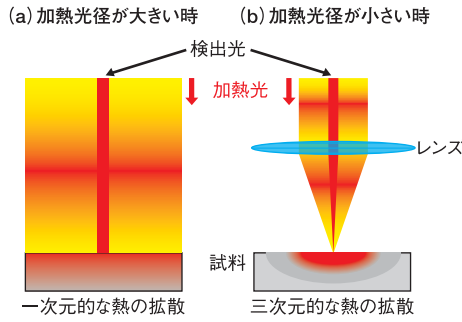
(2) 熱伝導率の評価

当社では周期加熱サーモリフレクタンス法による薄膜材料の熱伝導率を評価する技術を開発した^{*4)}。上述の通り加熱用レーザー光径が大きい状態では、試料表面から基板方向への熱の拡散が支配的となるが、レーザー光径が小さくなると三次元熱拡散の影響を受け始める(第4図)。そこで我々は加熱光径にともなう位相遅れの変化について、光学計測技術と数値計算技術による解析を行い、位相遅れから熱伝導率を評価する方法を検討した。市販されている熱浸透率測定装置(株式会社ベテル製TM3)に独自改良を加え、加熱光径を任意に変化でき、かつ高精度に熱反射信号を検出する計測装置を開発した。また数値解析は有限要素法を用いて、任意の物性値を持つ材料に対し、位相遅れの加熱光径依存性をシミュレーションする技術を構築した。第5図に示すように加熱光径が $5 \mu\text{m}$ と小さい場合には、位相遅れは熱拡散率と熱浸透率に依存して変化する。熱浸透率、熱拡散率と熱伝導率は相互に関係していることから、一次元熱拡散状態で熱浸透率を、三次元熱拡散状態で熱拡散率を評価することで未知試料の熱伝導率が評価できる。

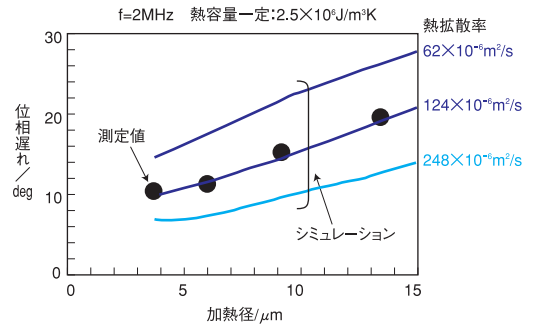
参考文献

- *2) Allan Rosencwaig et al.: Appl. Phys. Lett. vol.46(1985)No.11, p.1013.
- *3) N. Taketoshi et al.: in proceeding of 10th Int.Conf.of Photoacoustic and Photothermal Phenomena,(1999), p.315.
- *4) 三宅綾ほか: 第54回応用物理学会関係 連合講演会,28p-B-12 (2007).

第4図 加熱領域が及ぼす温度応答への影響



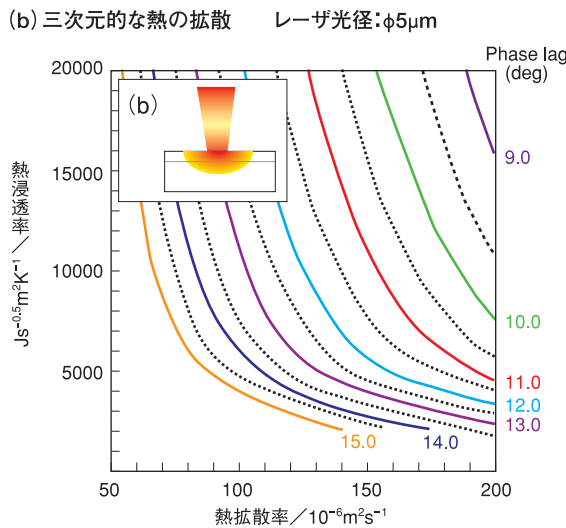
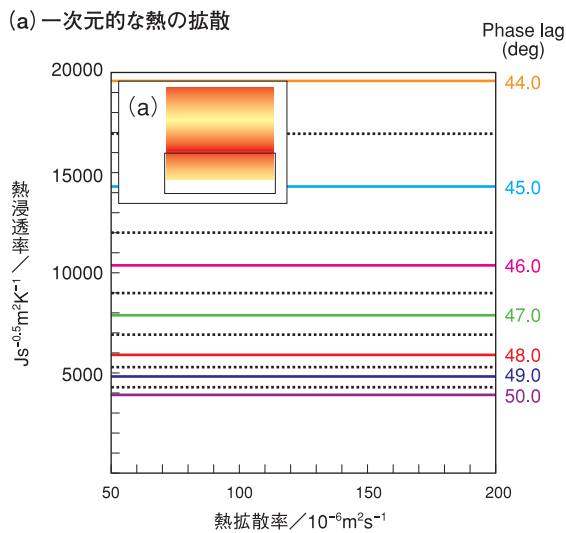
第6図 金膜の熱伝導率評価例



参考文献

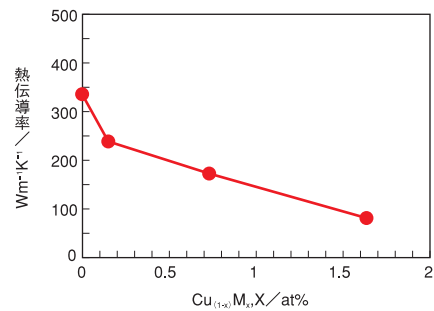
*5) 三宅修吾ほか：第54回応用物理学会関係連合講演会, 28p-B-13 (2007).

第5図 熱浸透率と熱拡散率が位相遅れに及ぼす影響

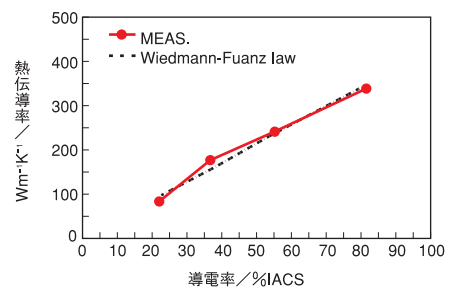


第7図に銅合金膜の熱伝導率を評価した例を示す*5)。試料はガラス基板上に成膜した厚さ300nmの銅合金膜である。この場合は、ガラス基板の熱拡散率、熱容量をレーザーフラッシュ法と示差熱分析法であらかじめ測定しておき、銅膜を未知試料兼反射膜として評価を行っている。合金元素の増加にともない熱伝導率が低下する傾向が認められる。本法の妥当性を検証するため、直流四探針法による電気伝導度の測定を行った。電気伝導度と熱伝導率の関係を第8図に示す。電気伝導度と同様に熱のキャリアが自由電子である金属材料ではWiedemann-Franz則が成立するとされており、第8図に示すように電気伝導度と熱伝導率の良好な相関が認められた。

第7図 銅合金の熱伝導率測定結果



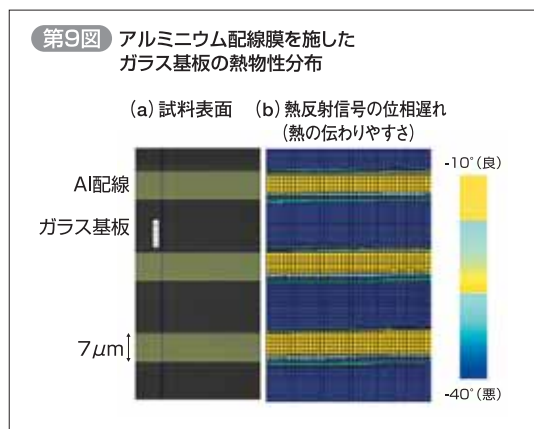
第8図 熱伝導率と電気伝導度の関係



第6図に膜厚10 μmの金膜の熱伝導率を評価した例を示す。点が測定値、線がシミュレーション結果である。熱容量が一定の条件下でも熱拡散率の違いによって位相遅れが大きく変化していることがわかる。解析の結果、試料の熱伝導率は310 ± 20 W/(m·k)であった。これはバルクの純金の室温における熱伝導率317 W/(m·k)とほぼ同じレベルである。

(3) 熱物性値分布測定

局所領域評価の例として、第9図にガラス基板上に施された線幅7 μm のアルミニウム膜の熱反射信号をマッピングした結果を示す。(a)はデジタルマイクロスコープによる表面状態、(b)は約65 \times 40 μm の領域を1 μm ピッチで熱反射信号の位相分布を示した結果である。ここではわかりやすいように熱の伝わりやすさとして、黄色から青までの色で表示した。アルミニウム部分はガラスと比べ熱伝導率が高いため、熱反射信号の応答性がよく、位相遅れは小さくなるが、逆にガラス基板の位相遅れは大きくなる。アルミニウム部分とガラス部分についてそれぞれ加熱光径依存性を評価し、定量的に熱伝導率分布として評価することも可能である。



B-3 その他の測定方法

(1) 3 ω 法

ジュール熱による加熱と温度変化にともなう交流抵抗成分を解析する手法である。試料表面に数10 μm \times 数mm程度の細線状金属薄膜を成膜し、そこに周波数 ω の電流を流す。この時の細線状金属の温度変化を、細線状金属膜両端の電圧の3 ω 成分を用いて検出する。細線状金属膜(熱源、検出器)／薄膜未知試料／基板で構成される試料において、いくつかの制約と特徴があげられる。

- a) 基板での熱拡散長が細線幅と比較しじゅうぶん短いこと。
- b) 薄膜未知試料の熱伝導率が基板と比較し小さいこと。

これらは細線状金属膜で生じた熱の拡散について、基板方向に一次的に取扱うための制約条件となる。また、得られる結果は細線状金属薄膜直下における平均値である。さらに、

- c) 基本的に絶縁性材料が対象となるが、導電性材料の場合には絶縁処理を施すことで測定できる。
- d) 熱伝導率が直接求められる。

また3 ω 法では膜厚数10nmから数 μm まで測定可能であるなど、とくに層間絶縁膜のような極薄絶縁材料の評価や、超格子構造を持つ材料への適用例が多いようである。

(2) acカロリメトリ法

周期変調したレーザー光を試料表面の一部に照射し、裏面側の一定距離離れた位置における温度変化を熱電対で計測する方法である。計測された任意の2点における交流温度の振幅比と位相差を用い、一般的な熱伝導方程式に基づいて熱拡散率が求められる。試料は自立膜が対象となり、厚さ数10 μm から1mm程度まで測定できる。また基板上的の薄膜試料を測定する場合には、薄膜の熱伝導率が基板よりもじゅうぶん大きいことが必要である。多層モデルによる解析を用いても評価できる。

これら以外にも、光音響法や極短パルスレーザーによるサーモリフレクタンス法、2 ω 法など、対象材料の形状や厚さ、熱伝導率に応じて様々な手法が開発されている。

本稿では、周期加熱サーモリフレクタンス法を用いた薄膜材料の熱物性評価技術について、当社開発技術を含めて紹介した。周期加熱サーモリフレクタンス法による熱伝導率評価技術は適用範囲も広く、多分野で期待される技術であり、さらに開発を進めて高度化を図っていく必要がある。本稿で紹介したようにこれら熱物性評価手法はそれ

ぞれ一長一短があり、対象材料に最適な評価手法を選択することが重要である。

また、さらなる薄膜化、微細化が進むなか、新しい測定技術、解析技術の開発は必須である。我々はお客様のご要望にお応えすることが技術の高度化を推進すると考えており、今後も様々な分野に貢献できるように技術開発を行っていく。