

DOI: 10.19650/j.cnki.cjsi.J2514365

基于频域热反射法的薄膜热物性多参数测量系统的设计与开发*

徐保峥, 谷佳奇, 胡春光, 李艳宁, 沈万福

(天津大学精密测试技术及仪器全国重点实验室 天津 300072)

摘 要:频域热反射法(FDTR)以其高灵敏度、操作简单等优点成为薄膜热物性非接触式测量的重要方法,随着样品多样化和多参数测量需求增长,其测量系统集成化与可视化重要性日益突出。传统频域热反射法热物性测量系统由于缺乏对误差和测量不确定度的量化分析,导致测量结果的可信度难以有效评估,重复性低。基于此,提出了新的系统设计方案:在基础测量模式基础上,引入多源噪声动态监测与抑制环节,实现对探测器噪声、激光噪声及信号传输噪声的实时分离。开发了基于频域热反射法的热物性多参数可视化分析系统,集成参数拟合、灵敏度分析、误差分析、不确定度分析功能,实现全流程操作。其中将误差分析与不确定度分析有效结合,不仅有助于识别与控制各类测量误差,还能够以标准化形式给出测量结果的可信度区间。实验数据证实,该系统具备热物性多参数测量能力与全参数蒙特卡罗模拟分析功能。对 Al 和 Si 两种标准薄膜材料的热物性测量结果显示,热导率等核心参数测量相对误差 $\leq \pm 2.38\%$,重复性 $\geq 98\%$,充分证明了系统可靠性与准确度。该系统通过抑制多源噪声干扰,并结合不确定度量化分析提升了热物性多参数测量系统的适应性,可在复杂薄膜体系下实现热物性的实时分析与精准测量。

关键词: 频域热反射法;热物性;多参数分析;薄膜;系统开发

中图分类号: TH741 文献标识码: A 国家标准学科分类代码: 460.30

Design and development of a multi-parameter measurement system for thin film thermophysical properties based on frequency-domain thermorefectance

Xu Baozheng, Gu Jiaqi, Hu Chunguang, Li Yanning, Shen Wanfu

(State Key Laboratory of Precision Measurement Technology and Instruments, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

Abstract: Frequency-domain thermorefectance (FDTR) has become an important non-contact method for measuring the thermophysical properties of thin films due to its high sensitivity. With the increasing demand for sample diversification and multi-parameter measurement, the integration and visualization of the measurement system are becoming increasingly important. Traditional FDTR systems lack quantitative analysis of errors and uncertainty, so it is difficult to effectively evaluate the reliability of measurement results. Based on this, a novel system design is proposed. A multi-source noise monitoring and suppression module is introduced to realize the real-time separation of detector noise, laser noise and signal transmission noise. A multi-parameter thermophysical property measurement and visualization system based on FDTR was developed. This system includes parameter fitting, sensitivity analysis, error analysis and uncertainty analysis. The effective combination of error analysis and uncertainty analysis can not only help control different kinds of measurement errors but also provide the confidence interval of measurement results. The system realizes multi-parameter thermophysical measurement and full-parameter Monte Carlo simulation analysis. Thermophysical properties of two standard thin-film materials, Al and Si, were measured. The relative error of key parameters such as thermal conductivity was $\leq \pm 2.38\%$, and the repeatability was $\geq 98\%$. By reducing multi-source noise interference and incorporating quantitative uncertainty analysis, the system enhances the performance of multi-parameter thermophysical measurement. It can realize real-time analysis and accurate measurement of thermo-

收稿日期: 2025-08-08 Received Date: 2025-08-08

* 基金项目: 国家自然科学基金委面上项目(52475566); 国家自然科学基金委青年基金项目(62205241); 天津市科技计划项目(24ZXZSS00400)资助

physical properties in complex thin-film systems.

Keywords: frequency-domain thermorefectance; thermophysical properties; multi-parameter analysis; thin films; system development

0 引言

薄膜在先进半导体器件、微电子机械系统和热电器件中广泛应用^[1],其热传输性能直接影响器件的散热效率、工作稳定性和寿命^[2-5]。然而,在微观尺度下,热传输行为受到尺寸效应及材料耦合等因素的显著影响,传统用于体材料的热物性测量技术难以准确捕捉这些细微差异^[6]。

激光闪光法在1961年由Parker等^[7]提出,可测热扩散系数,但对超薄薄膜需极窄激光脉宽和高频采集,系统性能难以满足^[8-9]。三欧米测量法(3 omega method, 3ω)最早是由Cahill等^[10]美国物理学家在1987年提出的,具备大范围导热系数测量能力,适用于带基底薄膜,但需沉积金属电极,因此精度降低^[11]。瞬态平面热源法最早在1991年由Gustafsson教授^[11]提出,具有快速测量优势,但仅限单一物质薄膜,不适用带基底半导体工艺薄膜^[12]。

上世纪80年代,美国通用汽车研究实验室物理系的Eesley教授^[13]最早使用瞬态热反射法开展热输运研究,随后布朗大学的Clson等^[14]、弗吉尼亚大学的Stevens等^[15]以及伊利诺伊大学的Wang等^[16]对瞬态热反射法进行了改进。麻省理工学院(Massachusetts Institute of Technology, MIT)的Schmidt等^[17]在2009年提出了频域热反射法(frequency-domain thermorefectance method, FDTR),与时域热反射法(time-domain thermorefectance method, TDTR)不同,FDTR法省略了机械延迟装置,简化了系统设计同时降低了仪器成本。因此相比于TDTR法,FDTR法搭建的系统更具备学术研究和商业应用的潜力。该方法主要监测样品热响应产生的反射信号,通过将反射率随频率变化的热响应与模型拟合,提取材料热物性参数。

近年来,FDTR方法在集成新技术、改进测量方法以及开发理论模型等方面取得了显著进展,并广泛应用于多种新型材料薄膜的热物性研究^[12,18-21]。然而,目前多数FDTR系统仍为临时搭建,缺乏标准化、模块化的集成设计,尤其在数据分析与处理流程中,尚未建立统一的误差评估和不确定度判定机制,导致测量结果在准确性和可重复性方面缺乏可信度,限制了该技术的推广与应用。

Shen等^[22]采用深度学习的方法改进数据分析,提高拟合精度并降低不确定性。该研究着重解决拟合算法导致的误差,针对多参数提取的误差进行优化。但误差分析未能充分考虑深埋界面的非线性热波动效应,导致不确定度量化不完整。Wang等^[23]通过参考样品相位比将

光斑尺寸不确定度贡献进行了有效抑制,但该研究灵敏度分析未考虑参数相关性,因此实验误差难以充分量化。Warzoha等^[24]提出的微尺度限制技术提高了对深埋界面热阻的测量灵敏度,提升了低信噪比场景的测量精度。但低频噪声影响未纳入不确定度模型,参考样本引入的新误差未充分讨论。Hoque等^[25-26]的有限元模型实现了热渗透深度模型优化并实现复杂结构反演,但理论误差未整合至实验不确定度,噪声敏感性与实验脱节,研究聚焦光束半径的不确定度传播,但未解决其他不确定度源(如热容或厚度误差)的传播途径,因此通用性受限。

本工作旨在设计一套基于FDTR的热物性多参数分析与处理系统,测量系统采用多环节协同测量实现对测量噪声的动态抑制,同时系统可实现参数拟合、灵敏度分析、误差评估、不确定度分析及结果判定的全流程集成操作。

通过将误差分析与不确定度分析相结合,识别与控制各类测量误差的同时,还能对可信度区间进行量化分析。初步拟合仅提供拟合参数的估计值,其不确定度由误差分析得到。而蒙特卡罗模拟通过参数随机抽样获得均值,将已知参数的不确定度传播至最终结果获得标准差。最终两者均输出“均值±标准差”形式,其一致性反映了测量结果的准确性和重复性,体现测量系统的可靠性与应用价值。

1 理论分析

1.1 传热模型

建立热传输模型,该模型包括 n 层样本,采用热扩散方程,如图1所示。在假设表面热流边界条件和绝热或半无限底层的条件下,对表面温度进行了数值求解^[13,27-28]。

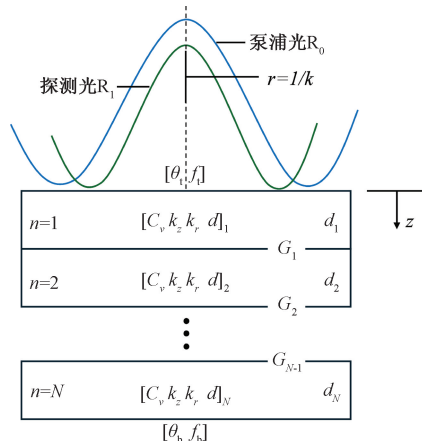


图1 薄膜传热模型示意图

Fig. 1 Schematic of heat transfer model for thin films

热量沿与样品表面垂直的方向传播,在频域中定义平行结构上表面的温度为 θ_i ,热流密度为 f_i ,平行结构下表面的温度为 θ_b ,热流密度为 f_b ,它们之间的关系可由式(1)表示,即:

$$\begin{bmatrix} \theta_b \\ f_b \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cosh(qd) & -\frac{1}{\lambda q} \sinh(qd) \\ -\lambda q \sinh(qd) & \cosh(qd) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_i \\ f_i \end{bmatrix} = \mathbf{M} \begin{bmatrix} \theta_i \\ f_i \end{bmatrix} \quad (1)$$

式中: d 为样品厚度,将矩阵 $\begin{bmatrix} \cosh(qd) & -\frac{1}{\lambda q} \sinh(qd) \\ -\lambda q \sinh(qd) & \cosh(qd) \end{bmatrix}$ 简写为 $\mathbf{M}$,其中 q 由式(2)决定,即:

$$q^2 = \frac{k_t k_z^2 + pci\omega}{k_z} \quad (2)$$

式中: k_z 为样品沿 z 方向的热导率; k_t 为样品沿面内方向的热导率; θ_b 和 f_b 分别为 n 层平行结构底层下表面的温度和热流密度; θ_i 和 f_i 分别为平行结构顶层上表面的温度和热流密度。通过式(2)进一步推导出 n 层平行结构上表面和下表面的温度与热流密度之间的关系如式(3)表示:

$$\begin{bmatrix} \theta_b \\ f_b \end{bmatrix} = \mathbf{M}_n \mathbf{M}_{n-1} \cdots \mathbf{M}_2 \mathbf{M}_1 \begin{bmatrix} \theta_i \\ f_i \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \theta_i \\ f_i \end{bmatrix} \quad (3)$$

对 n 层平行结构的每一层自上而下进行编号,依次为 $1, 2, \dots, n-1, n$ 。将 $\mathbf{M}_n \mathbf{M}_{n-1} \mathbf{M}_2 \mathbf{M}_1$ 相乘后得到的矩阵简写为 $\begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix}$,其中 $ABCD$ 分别指矩阵第1行第1列的元素,矩阵第1行第2列的元素,矩阵第2行第1列的元素,矩阵第2行第2列的元素。

设泵浦激光和探测激光聚集到样品表面的光斑半径分别为 R_0 和 R_1 ,通过利用采样定理并对上式进行汉克尔逆变换可得样品表面温度的频率响应^[17]:

$$H(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^\infty k \left(-\frac{D}{C} \right) \exp\left(-\frac{k^2(R_0^2 + R_1^2)}{8} \right) dk \quad (4)$$

1.2 灵敏度分析

敏感度是对选定参数 x 的微小扰动(1%)计算出的相位响应^[29],这里的 x 既可以是输出参数也可以是输入参数。可以定义为:

$$S_x(\omega) = \frac{\partial \varphi(\omega)}{\partial \ln x} \quad (5)$$

灵敏度本质上是将在 x 的相对变化的传播量化为 $S_x(\omega)$ 的变化。在进行测量之前计算灵敏度可判断薄膜系统中哪些未知参数易于提取,在哪些频率范围内对参数最敏感,以及哪些参数可以同时拟合。实验条件(如泵

浦光斑或探测光斑尺寸等)可在测量前优化,以提高对目标参数的灵敏度。在进行测量之前计算灵敏度可判断薄膜系统中哪些未知参数易于提取,在哪些频率范围内对参数最敏感,以及哪些参数可以同时拟合。实验条件(如泵浦光斑或探测光斑尺寸等)可在测量前优化,以提高对目标参数的灵敏度。图2展示了本系统计算硅(Si)薄膜的热物性参数灵敏度计算结果。其中各个测量参数的标准值由文献获得^[30]。

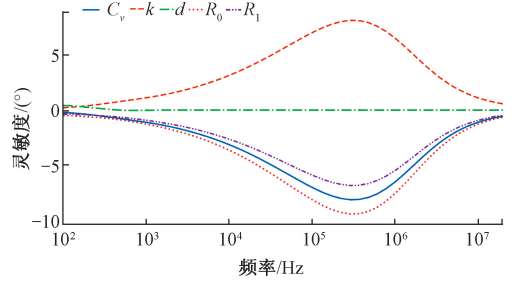


图2 Si薄膜的热物性灵敏度分析

Fig. 2 Sensitivity analysis of thermophysical properties of Si

计算结果表明,热导率(k)和体积比热容(C_v)在 $1 \sim 100$ kHz频段呈现显著的变化趋势,表明此区间对这两类参数高度敏感,因此系统应在 $1 \sim 100$ kHz频段设置扫频以提取这两类参数。厚度(d)在整个带宽范围(100 Hz ~ 100 kHz)灵敏度趋近于0,当前系统无法对厚度进行有效拟合。其次,泵浦光斑半径(R_0)和探测光斑半径(R_1)灵敏度较高,说明光斑半径对系统测量影响较大,因此光斑半径需精确测量。

1.3 误差分析

该系统存在的误差可以分为3类,分别是系统误差、随机误差和归一化误差。其中系统误差包括由控制参数引入的误差和泵浦相位噪声与探测相位噪声之和。随机误差包括拟合残差以及数值积分误差。归一化误差是将实际误差与某个具有代表性的参考值进行标准化处理后得到的误差形式,通常用于消除量纲和量级的影响,使不同条件或不同数据间的误差具有可比性。

控制参数的不确定性是由固定模型参数引入的,这些参数包括材料的热物理性质等^[31]。其不确定性通常来源于文献值或制造商规格。计算控制参数的不确定性贡献的公式为:

$$\text{Var}[y] = \mathbf{J}_x \text{Var}[x] \mathbf{J}_x^T \quad (6)$$

式中: x 是输入变量; y 是输出变量; $\mathbf{J}_x$ 是控制参数的雅可比矩阵,雅可比矩阵是目标函数对参数的偏导数的集合,雅可比矩阵表示相位关于控制参数和未知参数的偏导数,用于估计测量参数对目标函数的敏感性。 $\text{Var}[x]$ 是控制参数的方差矩阵,通用公式为:

$$\text{Var}[x_c] = \begin{bmatrix} \sigma^2(x_1) & 0 & \cdots & 0 \\ 0 & \sigma^2(x_2) & \cdots & 0 \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ 0 & 0 & \cdots & \sigma^2(x_c) \end{bmatrix} \quad (7)$$

泵浦相位和探测噪声是由激光器噪声引起的不确定性。这包括泵浦和探测激光器的噪声。计算泵浦相位和探测噪声的不确定性贡献的公式为:

$$\text{Var}[\varphi_l] = \sigma_l \sigma_l^T \quad (8)$$

式中: σ_l 由激光噪声引起的相位测量不确定度的协方差矩阵。这是激光泵浦相位与探测相位噪声共同带来的不确定度分量。本系统分别采用信号差分环节和噪声抑制环节以消除泵浦噪声和探测噪声对测量结果的影响,因此该环节忽略不计。

拟合残差是通过统计方法获得的误差,这类不确定性随着观测次数的增加而趋于0,即:

$$\text{Var}[\epsilon] = \frac{E^T E}{M - P - 1} \quad (9)$$

式中: E 是残差向量; M 是测量点的数量; P 是要拟合的参数数量。计算残差向量需要计算观测相位值和预测相位值。

数值积分误差是由数值积分过程中的截断和近似引起的不确定性。计算数值积分误差的不确定性贡献的公式为:

$$\text{Var}[\theta E] = \sum_{i=1}^N N \text{Var}[\theta_{E,i}]^2 \quad (10)$$

式中: $\text{Var}[\theta_{E,i}]$ 是在第 i 个频率点的数值积分误差的方差。本研究采用高斯-勒让德积分法,积分点和权重可以通过牛顿-拉弗森方法来计算,当积分上限 $L = 16\sqrt{w_0^2 + w_1^2}$ 时,积分结果的误差可以忽略不计。

归一化误差是一种用来评估测量值与参考值之间差异的统计量。它考虑了测量值和参考值的不确定性,通过将误差归一化来提供一个无量纲的误差指标,即:

$$E_n = \frac{|\mu_R - \mu_F|}{\sqrt{(2\sigma_R)^2 + (2\sigma_F)^2}} \quad (11)$$

式中: μ_R 是参考值的均值; μ_F 是测量值的均值; σ_R 是参考值的标准不确定性; σ_F 是测量值的标准不确定性。参考值均值来自于科学文献、技术手册或者国际标准中已经确定的值,测量值的均值和标准不确定性都是由蒙特卡罗模拟得到的。归一化误差小于1表示测量值与参考值之间的差异在它们的不确定度范围内,即测量值是准确的。如果归一化误差大于1,则表示测量值与参考值之间的差异超出了它们的不确定度范围,即测量值可能不准确。

1.4 不确定度分析

不确定度分析是数据处理过程中的重要环节^[32]。其中蒙特卡罗模拟方法通过对输入参数在其已知不确定度范围内进行随机采样^[33],迭代运行非线性最小二乘拟合,通常进行1000次模拟,从而得到热导率等参数的多组拟合结果。随后,对这些大量拟合得到的参数值进行统计分析,将其分布拟合为正态分布,以此确定各参数的均值与标准差,分别作为参数的最可能值及其不确定度的量化依据。绘制拟合参数的分布直方图,并在其上叠加正态分布曲线,利用曲线与直方图的匹配程度评估模拟结果的合理性与收敛性。若参数分布与正态曲线拟合良好,表明蒙特卡罗模拟结果具有良好的统计规律性,且参数波动符合高斯分布,有助于使用标准统计方法进行置信区间估计和不确定度分析。

最终,测量参数以“均值±标准差”的形式报告,满足测量科学关于不确定度表达的标准规范,不确定度分析示意图如图3所示。

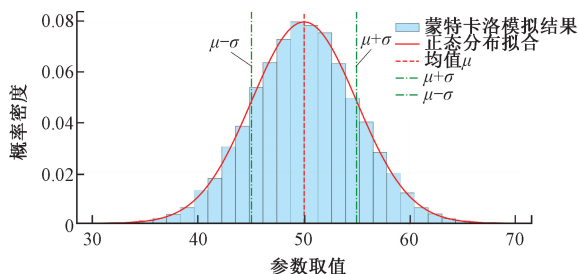


图3 最佳拟合值的1000次迭代蒙特卡罗模拟直方图代表图

Fig. 3 Representative histogram of 1000 Monte Carlo iterations of the best-fit values

其中,测量参数均值为:

$$\mu = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N A_j \quad (12)$$

式中: N 为蒙特卡罗模拟迭代次数; A_j 为迭代得到的参数结果。计算标准差为:

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{N-1} \sum_{j=1}^N (A_j - \mu)^2} \quad (13)$$

最终报告参数时采用式(14)的形式,即:

$$\theta = \mu \pm \sigma \quad (14)$$

通过输入参数不确定度引入的扰动在多轮拟合中的传播,结合正态分布拟合,进而实现对系统参数不确定度的定量评估。

最小二乘拟合用于高效获得最佳拟合参数^[34],而蒙特卡罗不确定性分析则用于评估初步拟合结果的统计稳定性与可信度,并给出可报告的扩展不确定度^[35]。当两者结果高度一致时,表明测量参数具有较高的准确性,系统误差处于可控范围,且整体结果具备较好的可靠性。

2 系统结构设计

基于频域热反射法的热物性多参数测量系统包括硬件系统和软件系统两个部分,该系统以 Malen 等^[36]提出的测量系统为基础进行设计与优化,并结合仪器自动化和可视化^[19,37]的设计原则,对系统架构与功能进行了集成与开发。

硬件系统通过 3 个环节协同测量,分别是样品热反射信号测量环节、光电探测器信号差分环节、多源噪声抑制环节。硬件系统采用的元器件包括:

- 1) 泵浦激光器:用于样品加热,使被测样品表面发生温度变化。
- 2) 探测激光器:用于感知样品表面由温度变化引起的反射率变化。
- 3) 光纤环形器:对泵浦激光和探测激光进行合束,使两束激光以相同的路径进行传输。
- 4) 光纤准直器:用于对光纤中出射的激光进行准直,使其具有较小的发散角并出射到自由空间光路。
- 5) 分束镜:用于对激光进行分束,从准直后的激光中分离出一定比例的参考激光。
- 6) 中性密度滤光片:通过改变激光的透射率来对激光能量进行衰减。
- 7) 带通滤光片:用于滤除泵浦激光,保留探测激光,以避免泵浦激光在光电探测器对探测激光进行检测时产生干扰。
- 8) 光电探测器:用于对光路中的探测激光信号进行检测。
- 9) 物镜:用于将泵浦和探测激光汇聚到样品表面,以完成对样品的加热和探测。
- 10) 样品台:为待测样品提供稳定的承载,精准的定位与调控。
- 11) 光阑:用于屏蔽样品方向反射激光。

12) 激光控制器:接收来自锁相的频率信号,用于调节泵浦激光的出射频率。

13) 锁相放大器:信号控制和处理的核心仪器,用于对光电探测器输出的信号进行解调。

2.1 样品热反射信号测量环节

该系统配备了两个光纤耦合型连续波(CW)激光器。其中泵浦光纤耦合激光器(MRL-III-660D)中心波长为 660 ± 5 nm,输出功率最大可达 1 W。锁相放大器(Zurich HF2LI)可以设定不同频率的 TTL 信号并通过激光控制器对泵浦激光进行调制,以改变样品的加热条件。探测光纤耦合激光器(MRL-III-635L)中心波长为 635 ± 5 nm,输出功率最大为 10 mW。两个激光器分别耦合了芯径为 200 和 100 μm , NA 为 0.22 的多模光纤,并通过与光纤环形器(Thorlabs WMC3L1F)进行耦合的方式将探测激光和受调制的泵浦激光进行合束,使两束激光以相同的路径进行传输。

合束后的激光从光纤中通过光纤准直器(Thorlabs CFC5-A)进入自由空间光路之后,首先经过透、反射率均为 50% 的立体分光棱镜(Thorlabs BS070)实现光束分离。透射部分作为参考光束,由光电探测器 B(PDA36A2)进行实时监测,以用于后续信号校准与参考。反射部分的激光则经显微物镜(MKS)聚焦至被测样品表面,实现泵浦光与探测光的同轴入射。泵浦激光对样品表面进行周期性加热,导致表面温度变化并引起局部反射率变化。该反射率变化通过样品表面反射的探测激光表现为微弱信号变化,并由光电探测器 A(PDA36A2)完成信号采集。系统在两组光电探测器前均配置了带通滤光片(synoptidae 198702),有效屏蔽泵浦激光的干扰,仅允许探测激光信号透过。由光电探测器输出的微弱电信号经锁相放大器提取与处理后,传输至上位机系统,实现参数拟合及后续数据分析操作。该操作过程称为仪器的样品热反射信号测量环节,如图 4 所示。

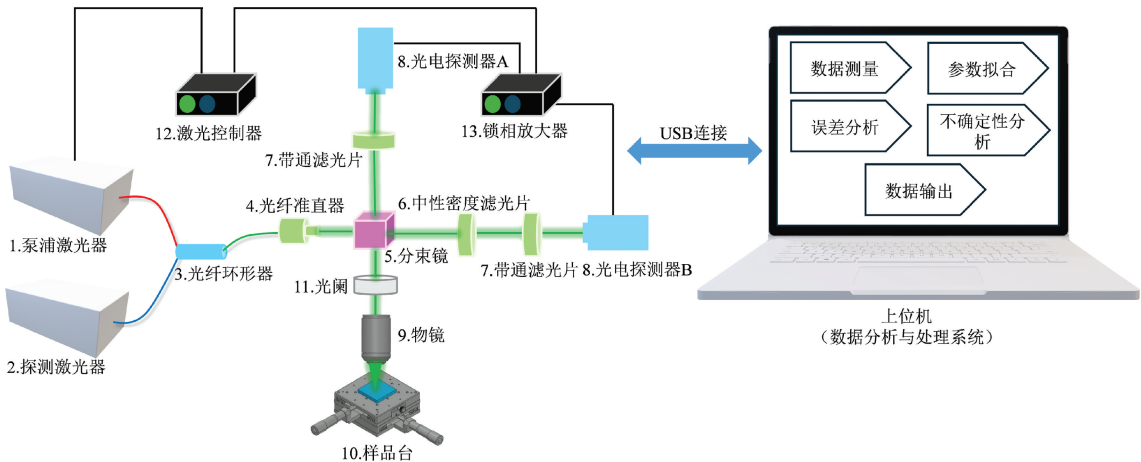


图 4 基于频域热反射法的组合光束路径

Fig. 4 Combined beam path diagram of the FDTR system

2.2 光电探测器信号差分环节

光电探测器 PD-A 采集后的输出信号为:

$$V_{A,\omega} = V_{\text{response}} \sin(\omega t + \phi_{\text{response}} + \phi_{\text{pump laser}} + \phi_{\text{PD-A}}) + V_{\text{probe noise-A}} \sin(\omega t + \phi_{\text{probe noise}} + \phi_{\text{PD-A}}) \quad (15)$$

式中: ω 为调制信号频率; V_{response} 和 ϕ_{response} 分别为样品表面热响应信号的幅值和相位; $V_{\text{pump laser}}$ 为样品表面泵浦激光与用于泵浦激光调制的 TTL 信号之间的相位差, 包括对泵浦激光器调制过程的延迟和光学元器件引入的相位差; $\phi_{\text{PD-A}}$ 为 PD-A 时间响应引入的相位差; $V_{\text{probe noise-A}}$ 和 $\phi_{\text{probe noise}}$ 分别为 PD-A 检测的探测激光中噪声的幅值和相位。PD-B 的输出信号为:

$$V_{B,\omega} = V_{\text{probe noise-B}} \sin(\omega t + \phi_{\text{probe noise}} + \phi_{\text{PD-B}}) \quad (16)$$

式中: $V_{\text{probe noise-B}}$ 为 PD-B 检测的探测激光中噪声的幅值; $\phi_{\text{PD-B}}$ 为 PD-B 时间响应引入的相位差。差分环节只开启探测激光而关闭泵浦激光, 通过选用低延时且性能一致的 PD 来实现 $\phi_{\text{PD-A}} = \phi_{\text{PD-B}}$ 。通过调节 PD-B 之前的中性密度滤光片来改变 $V_{B,\omega}$ 的幅值来实现 $V_{\text{probe noise-A}} = V_{\text{probe noise-B}}$, 使差分信号的输出接近为 0, 实现最佳噪声抑制效果, 该环节称为光电探测器信号差分环节。

2.3 多源噪声抑制环节

差分模式结束后对薄膜样品进行测量时, PD-A 和 PD-B 检测的信号差分之后的输出 V_{diff} 为:

$$V_{\text{diff}} = V_{\text{response}} \sin(\omega t + \phi_{\text{response}} + \phi_{\text{pump laser}} + \phi_{\text{PD-A}}) \quad (17)$$

式中: ϕ_{response} 为样品表面热响应信号相位; $\phi_{\text{pump laser}}$ 为样品表面泵浦激光与用于泵浦激光调制的 TTL 信号之间的相位差; $\phi_{\text{PD-A}}$ 为 PD-A 时间响应引入的相位差。此时利用系统得到 ω 频率下的相位为:

$$\Phi_1 = \phi_{\text{response}} + \phi_{\text{pump laser}} + \phi_{\text{PD-A}} \quad (18)$$

而在最终数据拟合时需要使用的相位拟合数据仅为 ϕ_{response} , 因此需要对 $\phi_{\text{pump laser}}$ 和 $\phi_{\text{PD-A}}$ 进行剔除。此时切换至多源噪声抑制环节, 该环节只开启泵浦激光, 关闭探测激光, 并且通过光阑屏蔽样品反射信号的影响。

该环节下仅使用 PD-A 对样品表面处的泵浦激光进行探测, 此时 PD-A 的输出为:

$$V_{A,\omega} = V_{\text{response}} \sin(\omega t + \phi_{\text{pump laser}} + \phi_{\text{PD-A}}) \quad (19)$$

此时系统得到 ω 频率下的相位为:

$$\Phi_2 = \phi_{\text{pump laser}} + \phi_{\text{PD-A}} \quad (20)$$

因此, 对不同频率下检测得到的 Φ_1 和 Φ_2 做差, 从而得到不同频率下样品表面热响应信号的相位 ϕ_{response} , 最终这些相位数据用于与理论模型进行拟合, 进而得到薄膜样品的拟合曲线和热物性参数。

3 实验验证

为了验证所建立测量系统的准确性与可靠性, 选取

铝 (Al) 和硅 (Si) 两种标准材料薄膜作为测试对象, 对其热物性多参数进行了测量和评估。

本研究将扫频区间设置为 1 ~ 100 kHz, 以保证测量参数在该频域范围内具有良好的测量灵敏度。实际测试中, 样品表面光斑大小受入瞳光斑直径及样品位置变化影响, 因此需根据不同实验条件对光斑直径进行单独测量, 以确保光斑尺寸的准确性。本系统在测量光斑直径时采用 90/10 刀口法, 即取 $P(x_1) = 0.9P_0$ 、 $P(x_2) = 0.1P_0$ 这两个位置进行测量。90/10 刀口法的修正系数为 1.56, 即通过该方法测量的光斑半径可由 $\omega = 1.56 \times (x_1 - x_2)/2$ 计算获得。

参数测量与计算分别通过初步拟合和蒙特卡罗模拟获得, 这是两种互补的数据分析方法。初步拟合法采用非线性最小二乘优化方法, 用于快速拟合实验数据结合热模型, 输出最佳拟合值, 但仅考虑数据拟合本身的不确定性, 未纳入输入参数 (如换能器厚度、热容) 的不确定性传播。其对应的不确定度区间通过误差分析方法计算得出。蒙特卡罗模拟通过大量迭代 (1 000 次) 随机抽样已知参数在其不确定性范围内, 生成拟合参数的分布。计算时间较长 (约 20 min), 输出均值作为最佳估计值, 并根据所有输入参数的不确定性计算得到扩展不确定性。二者数值一致程度将会体现系统测量的可靠性与重复性。

Al 金属薄膜热导率初步拟合曲线如图 5 所示, 结果显示, 薄膜的热导率为 232.94 W/(m·K)。Al 金属薄膜热导率 1 000 次蒙特卡罗模拟结果如图 6 所示, 蒙特卡罗计算值的直方图具有高斯分布, 均值为 232.18 W/(m·K), 标准差为 9.17 W/(m·K)。同时展示了 Al 金属薄膜热导率拟合结果及其正态分布拟合曲线, 模拟均值与初步拟合结果高度对应。Si 半导体薄膜热导率初步拟合曲线如图 7 所示, 结果显示, 薄膜的热导率为 157.56 W/(m·K)。Si 薄膜热导率 1 000 次蒙特卡罗模拟结果如图 8 所示, 蒙特卡罗计算值的直方图具有高斯分布, 图中还代表性展示了 Si 半导体薄膜热导率拟合结果及其正态分布拟合曲线, 模拟均值与初步拟合结果高度对应。均值为 158.08 W/(m·K), 标准差为 5.98 W/(m·K), 模拟均值与初步拟合结果高度对应。

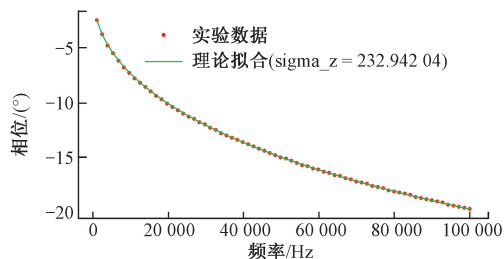


图5 Al薄膜热导率初步拟合结果

Fig. 5 Preliminary fitting results of thermal conductivity for Al thin film

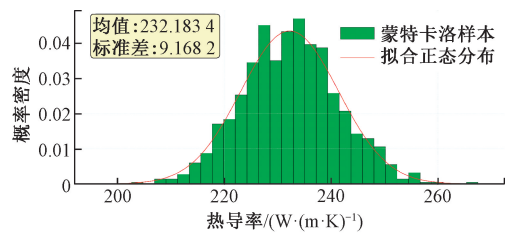


图 6 Al 薄膜热导率 1 000 次迭代蒙特卡罗模拟直方图
Fig. 6 Histogram of 1 000 iteration Monte Carlo simulation for thermal conductivity of Al thin film

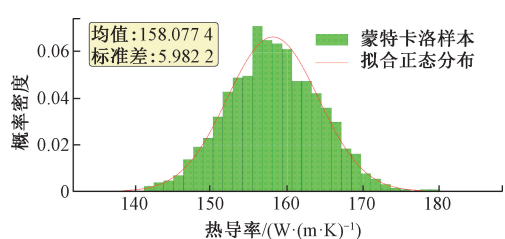


图 8 Si 薄膜热导率 1 000 次迭代蒙特卡罗模拟直方图
Fig. 8 Histogram of 1 000 iteration Monte Carlo simulation for thermal conductivity of Si thin film

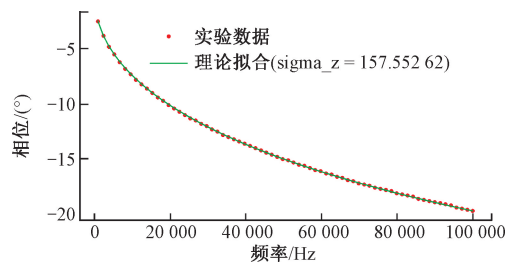


图 7 Si 薄膜热导率初步拟合结果
Fig. 7 Preliminary fitting results of thermal conductivity for Si thin film

最终对两种样品的热物性参数参考值、初步拟合值与误差分析结果、蒙特卡罗模拟与不确定度分析结果进行总结,并通过相对差异和测量准确度评估仪器性能。依据文献标准值(见表 1),得到铝和硅两种薄膜的热导率、比热容、体积比热容和热扩散率的参考值,这为后续拟合与误差分析提供了基准依据。

首先,采用初步拟合方法对两种样品的热物性参数进行了拟合,并计算了各参数的归一化误差,见表 2。热导率拟合值与参考值基本一致,归一化误差均在 0.7 以内。比热容单参数拟合值与参考值较为接近,其中体积

表 1 两种样品热物性参数参考值

Table 1 Reference values of thermophysical parameters for two samples

样品	热导率/ (W·(m·K) ⁻¹)	比热容/ (J·(kg·K) ⁻¹)	体积比热容/ (MJ·(m ³ ·K) ⁻¹)	热扩散率/ (mm ² ·s ⁻¹)
Al 薄膜	237.0±5.0 ^[38]	900±10 ^[39]	2.43±0.03 ^[39]	97.5±2.5 ^[39]
Si 薄膜	154.4±11.4 ^[30]	712±20 ^[30]	1.65±0.05 ^[30]	88.5±2.0 ^[30]

表 2 两种样品热物性参数初步拟合值与误差分析结果

Table 2 Preliminary fitting values and normalized error of thermophysical parameters for two samples

样品	热导率/ (W·(m·K) ⁻¹)	归一化误差	比热容/ (J·(kg·K) ⁻¹)	归一化误差	体积比热容/ (MJ·(m ³ ·K) ⁻¹)	归一化误差	热扩散率/ (mm ² ·s ⁻¹)
Al 薄膜	232.94±4.57	0.65	923.8±28.78	0.39	2.45±0.06	0.16	95.08±4.19
Si 薄膜	157.56±3.62	0.69	695.1±20.15	0.04	1.65±0.16	0.05	95.49±11.46

比热容双参数拟合结果与参考值一致性更高,且归一化误差小于 0.2。两种薄膜热扩散率的计算结果分别为 95.08 和 95.49 mm²/s,在允许误差范围内。整体拟合参数的归一化误差均较小,验证了模型拟合的合理性。

然后,进一步采用蒙特卡洛方法结合不确定度分析对热物性参数进行了统计评估,见表 3。蒙特卡洛模拟结果显示,Al 薄膜热导率 232.18 ± 9.17 W/(m·K),Si 薄膜热导率为 158.08 ± 5.98 W/(m·K),与初步拟合值高度一致。各参数均呈现良好的正态分布特征,标准不确定度控制在合理范围内,表明所测热导率结果具有

良好的统计稳定性与重复性。比热容与体积比热容的分析结果与初步拟合结果高度一致,其中 Al 薄膜的体积比热容为 2.45 ± 0.17 MJ/(m³·K),Si 薄膜体积比热容为 1.65 ± 0.26 MJ/(m³·K),进一步验证了双参数拟合的可靠性。在热扩散率方面,铝薄膜和硅薄膜的测量值分别为 94.8 ± 7.6 mm²/s 与 95.8 ± 15.5 mm²/s,其均值与初步拟合值保持良好一致,表明在当前测量条件下,系统对于热扩散率参数的提取具有稳定性。实验结果验证了基于频域热反射法的薄膜热物性多参数分析系统具备多参数测量与分析能力。

表 3 两种样品热物性参数蒙特卡罗模拟与不确定度分析结果

Table 3 Results of Monte Carlo simulation and uncertainty analysis of thermophysical parameters for two samples

样品	热导率/ (W·(m·K) ⁻¹)	比热容/ (J·(kg·K) ⁻¹)	体积比热容/ (J·(m ³ ·K) ⁻¹)	热扩散率/ (mm ² ·s ⁻¹)
Al 薄膜	232. 18±9. 17	910. 65±35. 32	2. 45±0. 17	94. 8±7. 6
Si 薄膜	158. 08±5. 98	713. 03±27. 96	1. 65±0. 26	95. 8±15. 5

获取两种拟合方法的分析结果后,对二者开展差异计算,该过程的核心在于求解两种拟合方法所得结果的相对差异。两种方法的拟合结果越趋近,对应的相对差异值则越小。经计算,初步拟合结果与蒙特卡罗模拟结果高度一致,二者结果的相对差异一致性小于 3%,其中热导率差异仅 0. 33%,充分证实了测量系统的高可靠性,见表 4 所示。

表 4 初步拟合和蒙特卡罗模拟结果相对差异

Table 4 Relative differences between preliminary fitting and Monte Carlo simulation results (%)

样品	热导率	比热容	体积比热容	热扩散率
Al 薄膜	0. 33	1. 43	0	0. 29
Si 薄膜	0. 33	2. 55	0	0. 32

最后,通过计算测量系统蒙特卡罗模拟测量值与文献参考值的偏差,可获得系统测量准确度。该指标是衡量 FDTR 系统性能的核心标准,最终计算结果如表 5 所示,相对误差最低仅为±0. 82%。

表 5 系统测量值与参考值的相对差异

Table 5 Relative difference between the measurement and the reference value (%)

样品	热导率	比热容	体积比热容	热扩散率
Al 薄膜	2. 03	1. 18	0. 82	2. 77
Si 薄膜	2. 38	0. 14	0	8. 25

此外,误差分析与不确定度分析的有效结合,有助于同时控制测量误差并规范给出测量结果的可信度范围,从而实现科学可靠的测量数据表达。

4 结 论

针对传统频域热反射法热物性测量过程中由于缺乏误差评估和不确定度判定机制,导致测量结果在准确性和可重复性方面缺乏可信度的问题,设计并开发了一套基于频域热反射法热物性多参数分析系统,硬件系统采用创新性多环节协同测量的多源噪声抑制方案,软件系

统可实现参数拟合、灵敏度分析、误差评估、不确定度分析及结果判定的全流程集成操作。其中数据分析系统面向用户,具备集成化和可视化,且该系统可进行全参数蒙特卡罗分析。

改进前系统对 Al 和 Si 两种薄膜材料热导率测量结果的重复性<96%,相对误差>6%,且仅能实现单参数测量。改进后的多参数测量系统兼具高精度与强可靠性,核心参数相对误差≤±2. 38%,重复性≥98%,蒙特卡罗模拟(1 000 次)与初步拟合结果的相对差异一致性≤3%(热导率差异仅 0. 33%),标准不确定度≤6%。目前,对薄膜热物性多参数测量开展了系统研究,并提出了高精度和高重复性的测量方案。下一步将针对更复杂的薄膜体系,建立新的分析模型,改进测量技术,开展各向异性材料薄膜热物性多参数分析与研究。

参考文献

[1] HUANG R, YE L, LIAO H L. Microelectronics technologies in renewable energy internet[J]. Science China: Information Sciences, 2014, 44(6): 728-742.

[2] LIU B W, ZHANG Y R, ZHANG L J, et al. Excellent HZO ferroelectric thin films on flexible PET substrate[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2022, 919: 165872.

[3] NGUYEN B Y, SCHWARZENBACH W, SELLER M, et al. How FD-SOI is revolutionizing next-gen microelectronics: IoT, automotive and mobile connectivity applications[C]. 2018 International Conference on Advanced Technologies for Communications, 2018: 382-386.

[4] 施嘉昊. 功率半导体器件热管理[J]. 电子世界, 2018(7): 59, 61.

SHI J H. Thermal management of power semiconductor devices[J]. Electronics World, 2018(7): 59, 61.

[5] 张健,王春富,王贵华,等. 薄膜有机集成电容的制作工艺[J]. 电子工艺技术, 2022, 43(2): 71-73, 80.

ZHANG J, WANG CH F, WANG G H, et al. Fabrication process of thin film organic integrated capacitors[J]. Electronic Process Technology, 2022, 43(2): 71-73, 80.

[6] ZHAO D L, QIAN X, GU X K, et al. Measurement techniques for thermal conductivity and interfacial thermal conductance of bulk and thin film materials[J]. Journal

- of Electronic Packaging, 2016, 138(4): 040802.
- [7] PARKER W J, JENKINS R J, BUTLER C P, et al. Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity, and thermal conductivity [J]. Journal of Applied Physics, 1961, 32(9): 1679-1684.
- [8] 蔡岸. 薄膜材料热物性及其测试新装置的研究[D]. 上海:上海交通大学, 2012.
- CAI AN. Research on the thermophysical properties and new measuring apparatus development for thin films[D]. Shanghai: Shanghai Jiao Tong University, 2012.
- [9] 唐大伟, 荒木信幸. 应用激光闪光法测量薄膜材料的热扩散率[J]. 锦州师范学院学报(自然科学版), 2002(1): 1-7.
- TANG D W, ARAKI N Y. Measurement of thermal diffusivity of thin film materials using laser flash method[J]. Journal of Jinzhou Normal University (Natural Science Edition), 2002(1): 1-7.
- [10] CAHILL D G, POHL R O. Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau[J]. Physical Review B, 1987, 35(8): 4067.
- [11] GUSTAFSSON S E. Transient plane source techniques for thermal conductivity and thermal diffusivity measurements of solid materials[J]. Review of Scientific Instruments, 1991, 62(3): 797-804.
- [12] TROFIMOV A A, ATCHLEY J, SHRESTHA S S, et al. Evaluation of measuring thermal conductivity of isotropic and anisotropic thermally insulating materials by transient plane source (Hot Disk) technique [J]. Journal of Porous Materials, 2020, 27(6): 1791-1800.
- [13] EESLEY G L, PADDOCK C A, CLEMENS B M, et al. Transient thermoreflectance studies of thermal transport in compositionally modulated metal films[C]. International Conference on Ultrafast Phenomena. Washington: Optical Publishing Group, 1986: TuB5.
- [14] OLSON D H, BRAUN J L, HOPKINS P E, et al. Spatially resolved thermoreflectance techniques for thermal conductivity measurements from the nanoscale to the mesoscale[J]. Journal of Applied Physics, 2019, 126(15): 150901.
- [15] STEVENS R J, SMITH A N, NORRIS P M, et al. Measurement of thermal boundary conductance of a series of metal-dielectric interfaces by the transient thermoreflectance technique[J]. Journal of Heat Transfer, 2005, 127(3): 315-322.
- [16] WANG X J, LIMAN C D, TREAT N D, et al. Ultralow thermal conductivity of fullerene derivatives[J]. Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics, 2013, 88(7): 075310.
- [17] SCHMIDT A J, CHEAITO R, CHIESA M, et al. A frequency-domain thermoreflectance method for the characterization of thermal properties [J]. Review of Scientific Instruments, 2009, 80(9): 094901.
- [18] CHEN T, JIANG P. Decoupling thermal properties in multilayered systems for advanced thermoreflectance experiments [J]. Physical Review Applied, 2025, 23(4): 044004.
- [19] KIRSCH D J, MARTIN J, WARZOHA R, et al. An instrumentation guide to measuring thermal conductivity using frequency domain thermoreflectance (FDTR) [J]. Review of Scientific Instruments, 2024, 95(10): 103006.
- [20] SUN J CH, LYU G X, CAHILL D G, et al. Frequency-domain probe beam deflection method for measurement of thermal conductivity of materials on micron length scale[J]. Review of Scientific Instruments, 2023, 94(1): 014903.
- [21] ZHU J, TANG D W, 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.
- [22] SHEN W Q, VACA D, KUMAR S, et al. Reconsidering uncertainty from frequency domain thermoreflectance measurement and novel data analysis by deep learning [J]. Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering, 2020, 24(3/4): 138-149.
- [23] WANG X M, JEONG M, MCGAUGHEY A J H, et al. Reducing the uncertainty caused by the laser spot radius in frequency-domain thermoreflectance measurements of thermal properties[J]. Review of Scientific Instruments, 2022, 93(2): 023001.
- [24] WARZOHA R J, WILSON A A, DONOVAN B F, et al. Measurements of thermal resistance across buried interfaces with frequency-domain thermoreflectance and microscale confinement [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2024, 16(31): 41633-41641.
- [25] HOQUE M S B, KOH Y R, ARYANA K, et al. Thermal conductivity measurements of sub-surface buried substrates by steady-state thermoreflectance [J]. Review of Scientific Instruments, 2021, 92(6): 064906.
- [26] KOH Y R, CHENG ZH, MAMUN A, et al. Bulk-like intrinsic phonon thermal conductivity of micrometer-thick AlN films [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2020, 12(26): 29443-29450.
- [27] WARZOHA R J, WILSON A A, DONOVAN B F, et al. A numerical fitting routine for frequency-domain

- thermoreflectance measurements of nanoscale material systems having arbitrary geometries [J]. *Journal of Applied Physics*, 2021, 129(3): 035103.
- [28] YANG J, MARAGLIANO C, SCHMIDT A J, et al. Thermal property microscopy with frequency domain thermoreflectance[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2013, 84(10): 104904.
- [29] GUNDRUM B C, CAHILL D G, AVERBACK R S, et al. Thermal conductance of metal-metal interfaces [J]. *Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics*, 2005, 72(24): 245426.
- [30] ZIADE E. Wide bandwidth frequency-domain thermoreflectance: Volumetric heat capacity, anisotropic thermal conductivity, and thickness measurements[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2020, 91(12): 124901.
- [31] MALEN J A, BAHETI K, TONG T, et al. Optical measurement of thermal conductivity using fiber aligned frequency domain thermoreflectance[J]. *Journal of Heat Transfer*, 2011, 133(8): 081601.
- [32] 陈文浩,丁垠冶,宋仁成,等. 测量不确定度评定方法新进展:从统计方法到神经网络间接评定法[J]. *仪器仪表学报*, 2025, 46(11): 1-19.
CHEN W H, DING Y Y, SONG R CH, et al. Advances in measurement uncertainty evaluation: From statistical methods to neural network indirect evaluation [J]. *Chinese Journal of Instrument and Measurement*, 2025, 46(11): 1-19.
- [33] 温秀兰,李国成,宋爱国,等. 自适应蒙特卡洛法用于机器人标定定位精度可靠性分析研究[J]. *仪器仪表学报*, 2025, 46(8): 341-350.
WEN X L, LI G CH, SONG AI G, et al. Analysis and study on the positioning accuracy reliability of calibrated robots based on adaptive Monte Carlo simulation [J]. *Chinese Journal of Instrument and Measurement*, 2025, 46(8): 341-350.
- [34] 付乐天,李鹏,高莲. 考虑样本异常值的改进最小二乘支持向量机算法[J]. *仪器仪表学报*, 2021, 42(6): 179-190.
FU L T, LI P, GAO L. Improved LSSVM algorithm considering sample outliers [J]. *Chinese Journal of Scientific Instrument*, 2021, 42(6): 179-190.
- [35] 温秀兰,宋爱国,冯月贵,等. 基于最优位姿集的机器人标定及不确定度评定[J]. *仪器仪表学报*, 2022, 43(9): 276-283.
WEN X L, SONG AI G, FENG Y G, et al. Robot calibration and uncertainty evaluation based on optimal pose set [J]. *Chinese Journal of Scientific Instrument*, 2022, 43(9): 276-283.
- [36] MALEN J A, BAHETI K, TONG T, et al. Optical measurement of thermal conductivity using fiber aligned frequency domain thermoreflectance[J]. *Journal of Heat Transfer*, 2011, 133(8): 081601.
- [37] BRANDT R, NEUER G. Electrical resistivity and thermal conductivity of pure aluminum and aluminum alloys up to and above the melting temperature[J]. *International Journal of Thermophilic*, 2007, 28(5): 1429-1446.
- [38] TOULOUKIAN Y S, MAKITA T. Thermophysical properties of matter—the TPRC data series. Volume 6. Specific heat—nonmetallic liquids and gases[M]. New York: IFI/Plenum, 1970.
- [39] SHANKS H R, MAYCOCK P D, SIDLES P H, et al. Thermal conductivity of silicon from 300 to 1 400 K[J]. *Physical Review*, 1963, 130(5): 1743.

作者简介



徐保峥, 2021 年于济宁学院获得学士学位, 2024 年于天津工业大学获得硕士学位, 现为天津大学博士研究生, 主要研究方向为精密测量技术。

E-mail: xbz_9907@tju.edu.cn

Xu Baozheng received his B.Sc. degree from Jining University in 2021, and his M.Sc. degree from Tiangong University in 2024. He is currently a doctoral candidate at Tianjin University. His main research interests include precision measurement technologies.



沈万福 (通信作者), 2013 年于兰州交通大学获得学士学位, 2019 年于天津大学获得博士学位, 现为天津大学副教授, 主要研究方向为微纳测试技术与仪器, 包括椭圆偏振光谱、原位光谱测量、表面/界面测量和纳米光子器件等。

E-mail: wfshen@tju.edu.cn

Shen Wanfu (Corresponding author) received his B.Sc. degree from Lanzhou JiaoTong University in 2013, and his Ph.D. degree from Tianjin University in 2019. He is currently an associate professor at Tianjin University. His main research interests in micro-nano testing technologies and instrumentation. His research encompasses ellipsometry, in-situ spectroscopic measurements, surface/interface characterization, and nanophotonic devices.