

光音響法を用いた薄膜の熱拡散率の測定

高 島 信 也*・小 林 武*

Photoacoustic Method for Measuring the Thermal Diffusivity of Thin Films

Nobuya TAKABATAKE and Takeshi KOBAYASHI

Abstract

A simple photoacoustic method is demonstrated for measuring the thermal diffusivity of thin films. This method is applied to the measurement of the thermal diffusivity of an acrylic acid resin film deposited on a copper film. Measured values of the thermal diffusivity agree with our previous reported values^{1,2)} and tabulated values⁴⁾.

1. は し が き

基板に密着した状態の薄膜試料の熱拡散率を測定する方法として、筆者らは以前に光音響法を用いて測定する方法を報告した¹⁻³⁾。その中で透明な薄膜試料が不透明な基板の前面に密着した二層構造のとき参照用に単層の同じ不透明な基板を用意し、それぞれの表面に強度変調をした光を照射しての表面温度の位相差の強度変調周波数特性を通して薄膜試料の熱拡散率が測定できることを報告している^{1,2)}。この方法は薄膜試料が透明な場合に限られ不透明なときには応用できない。そこで任意の薄膜試料の熱拡散率の測定に応用できる方法を求めたので報告する。Fig. 1 に示すように光学的に厚くて熱的に薄い基板 (b) の後面の一部に試料 (s) を密着させ、基板+試料の二層部分および参照用の基板だけの単層部分をつくる。これらそれぞれの表面に強度変調光を照射し、それぞれの後面まで熱波を伝搬させて後面温度の位相差の強度変調周波数特性を測定する。この位相差の周波数特性を通して試料の熱拡散率を算出する。この方法の有効性を試料に透明アクリル樹脂、基板 (Backing 材) に銅箔を用いて検討した。その結果、測定される試料の熱拡散率は同じ試料を適当な特質で Backing したときに測定される値^{1,2)} と測

定誤差内で一致した文献値⁴⁾とも同様に一致した。

2. 測 定 原 理

Fig. 1 に示すような厚さ d_1 の Backing 材 b の後面の一部分に厚さ d_2 の試料を密着させた系を考える。いま、試料が密着されている部分の Backing 材の前面 A に角周波数 ω で正弦波状に変調された光ビームを照射してその部分に周期的に変動する熱源 $Q_0 e^{i\omega t}$ を発生させれば、そこから Backing 材、試料および周囲気体 (空気) の中に熱波が伝搬する。この熱波によって生ずる試料後面 A' の温度の交流成分 $T_{A'}$ と、次に試料のない参照用の基準用の Backing 材の前面 B に照射したときの後面 B' の温度の交流成分 $T_{B'}$ の位相

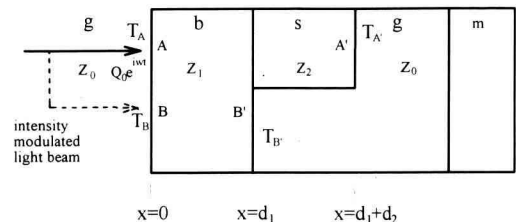


Fig. 1. Schematic configuration of a PA cell with a two-layer and a single layer samples. (g, air; b, backing material; s, sample; m, microphone)

1994年9月14日受理

* 電気工学科

差と試料の熱拡散率の関係を求めてみる^{5,6)}。

変調された光ビームの半径より PA セルの半径が十分に大きい場合には熱波の伝搬に伴う各媒質層内温度は一次元の熱拡散方程式の解として式 (1) で与えられる。

$$T_n(x) = A_n e^{-q_n x} + B_n e^{q_n x} \quad (n=0, 1, 2) \quad (1)$$

ここで添字 n は各媒質を指定するもので周囲気体、Backing 材および試料に対して 0, 1, 2 である。 q_n は熱波の伝搬定数で式 (2) で与えられる。

$$q_n = (1+i)/\mu_n \quad \mu_n = \sqrt{\frac{2\kappa_n}{\omega\rho_n c_n}} = \sqrt{\frac{2\alpha_n}{\omega}} \quad (2)$$

$$\alpha_n = \frac{\kappa_n}{\rho_n c_n}$$

ここで α_n : 熱拡散率, κ_n : 熱伝導率, ρ_n : 密度, c_n : 比熱, μ_n : 熱拡散長である。点 x における熱流 $Q_n(x)$ はその点の温度勾配に比例し式 (3) で与えられる。

$$Q_n(x) = -\kappa_n \frac{\partial T_n(x)}{\partial x} = \kappa_n q_n (A_n e^{-q_n x} - B_n e^{q_n x}) \quad (3)$$

ここで, n 層の媒質の特性熱波インピーダンスを

$$Z_n = \kappa_n q_n \quad (4)$$

で定義する。また点 x における熱流と温度の比を点 x における入力熱波インピーダンス Z^{in} として定義すれば Z^{in} は式 (5) で示される。

$$Z^{in}(x) = \frac{-\kappa_n \frac{dT_n(x)}{dx}}{T_n(x)} = Z_n \frac{1 - \frac{A_n}{B_n} e^{2q_n x}}{1 + \frac{A_n}{B_n} e^{2q_n x}} \quad (5)$$

A_n/B_n は各層の境界面における温度ならびに熱流の連続条件から求めることができる。いま, Backing 材の前面 A , B において右側を見た入力熱波インピーダンス Z_{1A}^{in} , および Z_{1B}^{in} をそれぞれ式 (6) および (7) で表すことができる。

$$Z_{1A}^{in} = Z_1 \frac{Z_2^{in} + Z_1 \tanh(q_1 d_1)}{Z_1 + Z_2^{in} \tanh(q_1 d_1)} \quad (6)$$

$$Z_{1B}^{in} = Z_1 \frac{Z_0 + Z_1 \tanh(q_1 d_1)}{Z_1 + Z_0 \tanh(q_1 d_1)} \quad (7)$$

Z_2^{in} : $x = d_1$ (試料 S の表面) で右側を見た入力熱波インピーダンス

Backing 材は光学的に不透明で, 光ビームの吸収がその表面だけで行われるものとするれば Backing 材の前面の熱流は式 (8) で示される。

$$-\kappa_0 \left. \frac{dT_0(x)}{dx} \right|_{x=0} + \left(-\kappa_1 \left. \frac{dT_1(x)}{dx} \right|_{x=0} \right) = Q_0 \quad (8)$$

式 (8) で左辺の第一項と第二項はそれぞれ周囲気体と Backing 材へ流れる熱流である。前面 A および B における表面温度 T_A と T_B はそれぞれ式 (9) および (10) で与えられる。

$$T_A = \frac{Q_0}{Z_0 + Z_{1A}^{in}} \quad (9)$$

$$T_B = \frac{Q_0}{Z_0 + Z_{1B}^{in}} \quad (10)$$

Backing 材の前面 A および B のそれぞれの温度 T_A と T_B から試料後面 A' の温度 $T_{A'}$ および Backing 材の後面 B' の温度 $T_{B'}$ を導くことができ式 (11), (12) で与えられる。(付録参照)

$$T_{A'} = \frac{Q_0 Z_1 Z_2 e^{-q_1 d_1} e^{-q_2 d_2} (1 + \tanh q_1 d_1) (1 + \tanh q_2 d_2) / \{ 2Z_0 Z_1 Z_2 + (Z_0^2 Z_1 + Z_1 Z_2^2) \tanh q_2 d_2 + (Z_0^2 Z_2 + Z_1^2 Z_2) \tanh q_1 d_1 + (Z_0 Z_1^2 + Z_0 Z_2^2) \tanh q_1 d_1 \tanh q_2 d_2 \}}{\quad} \quad (11)$$

$$T_{B'} = \frac{Q_0 Z_1 e^{-q_1 d_1} (1 + \tanh q_1 d_1)}{2Z_0 Z_1 + (Z_0^2 + Z_1^2) \tanh q_1 d_1} \quad (12)$$

それぞれ二つの後面の温度比 $R = T_{A'}/T_{B'}$ を求めると式 (13) となる。

$$R = \frac{T_{A'}}{T_{B'}} = \frac{e^{-q_2 d_2} (1 + \tanh q_2 d_2)}{1 + \frac{Z_0/Z_2 + Z_2/Z_0 + (Z_2/Z_1 + Z_1/Z_2) \tanh q_1 d_1}{2 + (Z_0/Z_1 + Z_1/Z_0) \tanh q_1 d_1} \tanh q_2 d_2} \quad (13)$$

ここで R の位相は $T_{A'}$ の $T_{B'}$ の位相差を与える。式 (13) は複雑な式であるが分母の第 2 項が 1 と比較して十分に小さく無視できる場合無視できる場合には R の位相角は分子のみで決定される。したがってこのような場合には R は式 (14) で表される。

$$R \cong e^{-q_2 d_2} (1 + \tanh q_2 d_2) \quad (14)$$

このような近似ができる時の条件は次のような場合である。試料と Backing 材の熱拡散長がそれぞれの厚さより厚い変調周波数領域および空気に対する特性熱波インピーダンス比が大きいことである ($Z_1/Z_0 \gg 1$, $Z_2/Z_0 \gg 1$)。式 (14) の位相角 θ は式 (15) で与えられる。

$$\theta = -\tan^{-1}\left(\tan \frac{d_2}{\mu_2} \tanh \frac{d_2}{\mu_2}\right) \quad (15)$$

式(15)を d_2/μ_2 の関数として展開し ω の関数で表すと式(16)となる。

$$\begin{aligned} \theta &= -\left(\frac{d_2}{\mu_2}\right)^2 + \frac{8}{45}\left(\frac{d_2}{\mu_2}\right)^6 + \dots \\ &\approx -\left(\frac{d_2}{\sqrt{2a_2}}\right)^2 \omega + \frac{8}{45}\left(\frac{d_2}{\sqrt{2a_2}}\right)^6 \omega^3 \end{aligned} \quad (16)$$

θ を光強度変調周波数の関数として測定し、その結果を最小自乗法を用いて式(16)で近似を行い一次関数 A_1 と試料の厚さから試料の熱拡散率 a_2 が式(17)で算出できる。

$$a_2 = \frac{1}{2A_1} d_2^2 \quad (17)$$

3. 実 験

本実験に用いた測定系のブロック図を Fig. 2 に示す。光源には波長 333~529 nm, 最大出力 500 mW のアルゴンイオンレーザーを使用した。レーザーからの光を音響光変調器 (AOM) を用いて正弦波で強度変調をする。焦点距離 200 mm のレンズを用いて試料の表面に光ビームを集光した。このときの光ビームスポット径は約 100 μm であった。PA 信号の検出は試料後面の近くに置いたマイクロフォンで検出した。使用したマイクロフォンはエレクトレット型コンデンサーマイクロフォンで感度は -65 dB/0.1 Pa である。前面に試料を密着させた PA セルを X ステージに取付、X

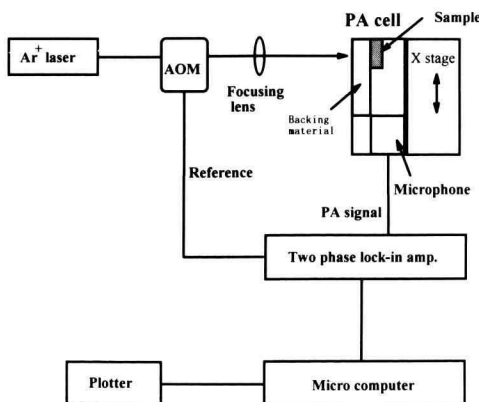


Fig. 2. Block diagram of experimental setup.

ステージを移動させることによって A と B に光ビームを交互に照射する。各試料からの PA 信号をロックインアンプを用いて測定し、振幅と位相のデータをパソコンに入力し所定のデータ処理を行った後プロットに出力する。本測定法は測定原理で述べたように次の二つの条件が整う範囲で近似をおこなって熱拡散率を求めている。

- 1) $Z_2/Z_0 \gg Z_1/Z_2 \tanh((1+i)d_1/\mu_1)$,
- 2) $2 \ll Z_1/Z_0 \tanh((1+i)d_1/\mu_1)$

条件の 1, 2) は Backing の厚さと変調周波数の範囲を制限している。ここで Backing 材に銅のように熱波特性インピーダンスが空気および試料と比較して十分大きな値 ($Z_1/Z_0 = 7000$, $Z_1/Z_2 = 200$) のものを利用すればこの条件は容易に実現できる。Backing 材に銅、試料にアクリル樹脂を用いる場合での d_1/μ_1 の範囲を見積もってみると近似式(16)で近似した場合の位相角の誤差が 1% 以内の範囲は $5 \times 10^{-2} > d_1/\mu_1 > 3 \times 10^{-2}$ となる。この誤差範囲の変調周波数は $d_1 = 10 \mu\text{m}$ においては 298~812 Hz, $d_1 = 50 \mu\text{m}$ においては 12~32 Hz となる。またより薄い Backing 材を用いれば使用できる周波数は高くなるが PA 信号は小さくなり S/N 比が悪くなり測定が困難になる可能性がある。

前述の近似が成り立つ範囲で Backing 材として厚さ 50 μm の銅箔を、試料として透明なアクリル塗料を用いその熱拡散率の測定を行った。アクリル塗料を直径 30 mm の銅箔の後面半分に噴霧法で必要な厚さに

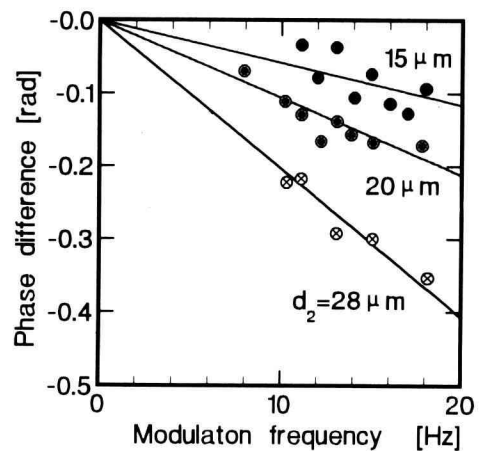


Fig. 3. Phase difference of PA signal versus modulation frequency.

Table 1. Experimental results on the thermal diffusivity of Acrylic acid resin film with three different thickness of sample.

$d_2 \mu\text{m}$	A_1	Thermal diffusivity $10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$	Literature value $10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$	
			I ^{1,2}	II ⁴
15	0.5811	1.2		
20	1.062	1.2	1.3	1.2
28	2.036	1.2		

塗布した。これを PA セルの前面に真空用のグリスで密着させた。アクリル樹脂と金属はよく密着するので Backing 枠とアクリル樹脂の間で完全な二層系が形成できる。厚さ 15, 20, 28 μm の試料について位相差 θ の変調周波数特性を測定した結果を Fig. 3 に示す。測定データを θ の展開式に fitting して求めた一次係数 A_1 と別に測定した厚さ d_2 から α_2 を算出した結果を表 1 に示す。I は筆者らが同じアクリル樹脂の薄膜で光音響法を用いて測定した値^{2,3)} で、また II は文献値⁴⁾ の値である。これらを本測定と合わせて 3 つの熱拡散率の値は試料の厚さ測定に起因する誤差の範囲で一致した結果となっている。この測定法は次のような特徴がある。二つの PA 信号の位相差を測定するために Backing 材の表面の光吸収強度に依存しないので Backing 材の表面の汚れ等に影響されない。

4. む す び

Backing 材の後面に試料を密着させた二層部分とさせない単層部分 (基準) をつくり、それぞれの部分の前面に正弦波で強度変調した光を照射させて表面を周期的に加熱すると後面の熱波はそれぞれ異なる。これらの熱波 (PA 信号) の位相差の変調周波数特性を測定し、その周波数特性から試料の熱拡散率が測定できることを述べた。また別の測定法による熱拡散率と本測定法による熱拡散率は試料の厚さ測定に起因する誤差の範囲で一致した。本測定法は光ビームを表面で吸収する Backing 材の後面に試料を密着させるために試料はいかなる物質にでも応用ができる。この場合に試料中を熱波が通過するので試料の厚さがその熱拡散長よりも十分薄いことが測定条件である。

文 献

- 1) 小林, 高島; 神奈川県工科大学紀要 18, 136 (1994).
- 2) 高島, 小林; 「第 14 回日本熱物性シンポジウム」79 (横浜, 1993).
- 3) 小林, 高島; 神奈川県工科大学紀要 16, 235 (1992).
- 4) 日本熱物性学会「熱物性ハンドブック」(養賢堂 1990).
- 5) J. Opsal, A. Rosencwaig; J. Appl. Phys. 53, 4240 (1982).
- 6) R.S. Quimby, W.M. Yen; J. Appl. Phys. 52, 1252 (1980)

付 録

Fig. A に示すようにそれぞれに異なった熱特性を持つ多層膜を仮定する。このそれぞれの膜の厚さは熱的に薄いものとする。

n 層内の x における温度 $T_n(x)$ は式 (1) で与えられる。

$$T_n(x) = A_n e^{-q_n x} + B_n e^{q_n x} \tag{1}$$

式 (1) で A_n, B_n は以下に述べる層の境界条件から決定される定数である。 q_n は熱波の伝搬定数であり式 (2) で与えられる。

$$q_n = (1+i)/\mu_n = (1+i)\sqrt{\frac{\omega}{2\alpha_n}} = (1+i)\sqrt{\frac{\omega \rho_n c_n}{2\kappa_n}} \tag{2}$$

式 (2) で μ : 熱拡散長, α : 熱拡散率, ρ : 密度, c : 比熱, κ : 熱伝導率で n は各層を示す添字である。

熱の伝搬において密着した各層の境界での温度と熱流は連続なので、これらが境界条件となる。この条件を式 (3) ~ (6) に示す。

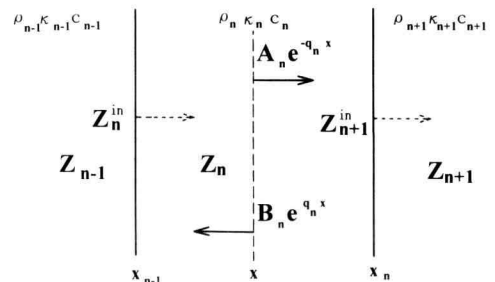


Fig. A. Thermal wave in n th layer of multilayer with nonhomogeneous thermal conductivity.

$$T_{n-1}(x_{n-1}) = T_n(x_{n-1}) \quad (3)$$

$$T_n(x_n) = T_{n+1}(x_n) \quad (4)$$

$$-\kappa_n \frac{dT_{n-1}(x)}{dx} \Big|_{x=x_{n-1}} = -\kappa_n \frac{dT_n(x)}{dx} \Big|_{x=x_{n-1}} \quad (5)$$

$$-\kappa_n \frac{dT_n(x)}{dx} \Big|_{x=x_n} = -\kappa_{n+1} \frac{dT_{n+1}(x)}{dx} \Big|_{x=x_n} \quad (6)$$

ここで n 層の特性熱波インピーダンスとして Z_n を式 (7) で定義する。

$$Z_n = \kappa_n q_n \quad (7)$$

任意の点 x における熱流と温度の比を入力熱波インピーダンス Z^{in} として定義する。

$$Z^{in} = \frac{-\kappa \frac{dT(x)}{dx}}{T(x)} \quad (8)$$

したがって $x=x_{n-1}$ での入力熱波インピーダンス Z_n^{in} 式 (9) で与えられる。

$$Z_n^{in} = \frac{-\kappa_n \frac{dT_n(x)}{dx} \Big|_{x=x_{n-1}}}{T_n(x)} = \frac{Z_n(A_n e^{-q_n x_{n-1}} - B_n e^{q_n x_{n-1}})}{A_n e^{-q_n x_{n-1}} + B_n e^{q_n x_{n-1}}} \quad (9)$$

n 層の厚さを d_n とすれば $x_{n-1} = x_n - d_n$ となるので式 (9) は変形されて式 (10) で表される。

$$Z_n^{in} = Z_n \frac{e^{q_n d_n} - \frac{B_n e^{q_n x_n}}{A_n e^{-q_n x_n}} e^{-q_n d_n}}{e^{q_n d_n} + \frac{B_n e^{q_n x_n}}{A_n e^{-q_n x_n}} e^{-q_n d_n}} \quad (10)$$

また $x=x_n$ での入力熱波インピーダンス Z_{n+1}^{in} は式 (11) となる。

$$Z_{n+1}^{in} = \frac{Z_n(A_n e^{-q_n x_n} - B_n e^{q_n x_n})}{A_n e^{-q_n x_n} + B_n e^{q_n x_n}} \quad (11)$$

$$\therefore \frac{B_n e^{q_n x_n}}{A_n e^{-q_n x_n}} = \frac{Z_n - Z_{n+1}^{in}}{Z_n + Z_{n+1}^{in}} \quad (12)$$

したがって式 (10) の $x=x_{n-1}$ での入力熱波インピーダンス Z_n^{in} は式 (13) で表される。

$$Z_n^{in} = Z_n \frac{Z_{n+1}^{in} + Z_n \tanh q_n d_n}{Z_n + Z_{n+1}^{in} \tanh q_n d_n} \quad (13)$$

次に $x=x_{n-1}$ での温度 $T_n(x_{n-1})$ は

$$T_n(x_{n-1}) = A_n e^{-q_n x_{n-1}} + B_n e^{q_n x_{n-1}}$$

であり、この式(12)から定数 A_n と B_n は式(14), (15)

で与えられる。

$$A_n = T_n(x_{n-1}) \frac{(Z_n + Z_{n+1}^{in}) e^{-q_n x_{n-1}}}{(Z_n + Z_{n+1}^{in}) e^{-2q_n x_{n-1}} + (Z_n - Z_{n+1}^{in}) e^{-2q_n x_n}} \quad (14)$$

$$B_n = T_n(x_{n-1}) \frac{(Z_n - Z_{n+1}^{in}) e^{-q_n x_{n-1}} e^{-2q_n x_n}}{(Z_n + Z_{n+1}^{in}) e^{-2q_n x_{n-1}} + (Z_n - Z_{n+1}^{in}) e^{-2q_n x_n}} \quad (15)$$

したがって $x=x_n$ での温度と $x=x_{n-1}$ の温度の関係は式 (16) で表される。

$$T_n(x_n) = T_n(x_{n-1}) \frac{2Z_n}{(Z_n + Z_{n+1}^{in}) e^{q_n(x_n - x_{n-1})} + (Z_n - Z_{n+1}^{in}) e^{-q_n(x_n - x_{n-1})}} \\ = T_n(x_{n-1}) \frac{Z_n e^{-q_n d_n} \{1 + \tanh(q_n d_n)\}}{Z_n + Z_{n+1}^{in} \tanh(q_n d_n)} \quad (16)$$

以上のことにより $T_n(x_{n-1})$ の温度が決定できれば次の境界の温度 $T_n(x_n)$ がもとめられる。したがってある境界の温度が求まれば、これを繰返すことによって任意の境界の温度が求められる。したがって Fig. 1 において前面の温度 (T_A) と後面の温度 (T_B) は式 (17) で関係づけられる。

$$T_A = T_A \frac{Z_1 Z_2 e^{-q_1 d_1} e^{-q_2 d_2} (1 + \tanh q_1 d_1) (1 + \tanh q_2 d_2)}{(Z_1 + Z_2^{in} \tanh q_1 d_1) (Z_2 + Z_0 \tanh q_2 d_2)} \\ Z_2^{in} = Z_2 \frac{Z_0 + Z_2 \tanh q_2 d_2}{Z_2 + Z_0 \tanh q_2 d_2} \quad (17)$$

前面の温度 (T_A) は表面で吸収される熱量を Q_0 として式 (18) で示される。

$$T_A = \frac{Q_0}{Z_0 + Z_1^{in}} \\ Z_1^{in} = Z_1 \frac{Z_2^{in} + Z_1 \tanh q_1 d_1}{Z_1 + Z_2^{in} \tanh q_1 d_1} \quad (18)$$

したがって後面の温度 T_B は式 (19) で表される。

$$T_B = \frac{Q_0 Z_1 Z_2 e^{-q_1 d_1} e^{-q_2 d_2} (1 + \tanh q_1 d_1) (1 + \tanh q_2 d_2)}{\{2Z_0 Z_1 Z_2 + (Z_0^2 Z_1 + Z_1 Z_0^2) \tanh q_2 d_2 \\ + (Z_0^2 Z_2 + Z_2^2 Z_0) \tanh q_1 d_1 \\ + (Z_0 Z_1^2 + Z_0 Z_2^2) \tanh q_1 d_1 \tanh q_2 d_2\}} \quad (19)$$

試料のない部分の後面の温度 T_B は式 (19) で $d_2=0$ とおけばもとめられて式 (20) で表される。

$$T_B = \frac{Q_0 Z_1 e^{-q_1 d_1} (1 + \tanh q_1 d_1)}{2Z_0 Z_1 + (Z_0^2 + Z_1^2) \tanh q_1 d_1} \quad (20)$$