

文章编号: 1001-4322(2006)07-1071-05

用 3ω 法测量非线性 KTP 晶体各向异性导热系数*

王照亮^{1,2}, 唐大伟¹, 陈焕焯¹

(1. 中国科学院 工程热物理研究所, 北京 100080; 2. 中国科学院 研究生院, 北京 100049)

摘 要: 非线性 KTP(KTiOPO₄)晶体的各向异性导热性能对于部分消除热应力以改善倍频效果具有重要作用。建立了 3ω 法测试系统,介绍了其测量各向异性材料的原理。测试了 SiO₂ 薄膜/Si 衬底试样的导热系数,验证了该实验方法及系统的合理性。应用此方法测试得到 KTP 晶体沿径向和倍频方向(轴向)的导热系数,得到其不均匀度为 0.737。结果验证了 KTP 晶体导热系数的各向异性。设计的实验系统可以有效测量各向异性晶体的导热性能。

关键词: KTP 晶体; 各向异性导热系数; 3ω 法

中图分类号: TN244 **文献标识码:** A

半导体激光(LD)泵浦的全固态绿光激光器在激光医学、信息存储、水下通信、光谱技术、彩色投影、导航、激光武器等许多领域有着重要应用。近几年,随着 kW 级 LD 阵列的出现,以 LD 泵浦的全固态绿光激光器的输出功率得到了大幅度提高^[1-2]。目前 KTP 晶体广泛用于 YAG 内腔倍频。沿 KTP 晶体的通光方向上,激光辐射的部分吸收引起局部温升及热形变,导致该区域的晶体折射率改变,影响倍频效率和输出光束质量。因此非线性光学晶体温度场分析和热物性参数的测量成为不容忽视的问题。为降低温升,通常将 KTP 晶体加工成圆柱形,以保证晶体沿径向冷却的均匀性。随着大功率激光器的开发和应用,激光晶体的冷却效果显得更为重要,因此,轴向和径向的导热系数测试对于激光晶体冷却系统热设计和非线性光学晶体温度场研究有着重要意义。目前对各向异性激光晶体导热系数测试的报道比较少,报道的测试主要采用间接方法,如先用闪光法分别测量各方向的热扩散率,然后算得导热系数^[3]。还没有一种比较通用的直接测试方法见诸报道。

3ω 法通常用来测试沿薄膜厚度方向或各向同性体材料的导热系数^[4-9]。 3ω 法测试过程中,加热膜的温度相对于测试环境温升一般小于 1 K,交流加热频率大于 100 Hz 时,测试材料受热作用影响的有效厚度一般小于 300 μm ,因此试样的尺度一般比较小,典型的试样表面积一般为 1 cm^2 ,厚度为几百 μm ~几 mm。周期性加热的固有特性使 3ω 法受辐射换热和对流换热的影响不明显,合理选择加热频率可以减小边界条件对测试结果的影响,在室温下测试时可以忽略辐射和其他热损失。该方法的上述优点对于直接测试微/纳米材料、功能材料的热物性十分有利。但由于传统测试原理的限制,很少用于各向异性材料的测量。

本文在同一个试样表面制备 2 个宽度不同的微型加热膜,同时用做测温器。每个加热器的温度波动包含了试样内部不同方向的导热作用。加热膜的宽度不同,不同方向的导热作用所占的比例不同。利用 2 个不同宽度的加热膜可以确定 KTP 激光棒轴向导热系数和径向平均导热系数。

1 测量原理

3ω 法是在待测材料表面制备一定尺度和形状的微型金属膜,该金属膜同时作为加热器和温度传感器。对金属膜加角频率为 ω 的交流电流,由于金属膜有一定的电阻,因焦耳效应产生的热量将以 2ω 的频率对金属膜和材料加热,金属膜和材料吸收热量后产生频率为 2ω 的温度波。对于纯金属,温度的上升使电阻增加,增加的电阻的变化频率也是 2ω ,增加的电阻与频率为 ω 的交流电共同作用产生频率为 3ω 的电压。采用欧姆定律,经过推导,加热膜两端的电压可以表示为

$$V = R_0 I \cos(\omega t) + \frac{R_0 \alpha I \Delta T_{2\omega}}{2} \cos(\omega t + \varphi) + \frac{R_0 \alpha I \Delta T_{2\omega}}{2} \cos(3\omega t + \varphi) \quad (1)$$

式中: R_0 为测试环境温度下加热膜的电阻; I 为交流电流的有效值; ω 为交流电信号的角频率; $\Delta T_{2\omega}$ 为加热膜复

* 收稿日期:2006-02-27; 修订日期:2006-04-11

基金项目:国家自然科学基金资助课题(50376066);中国科学院“百人计划”资助课题

作者简介:王照亮(1971—),男,博士生,从事微纳米热物性测试评价研究;

联系作者:唐大伟(1964—),男,博士,研究员,从事微尺度传热及热物性,激光作用下材料的热行为研究; dwtang@mail.etp.ac.cn.

数温度波动幅度; α 为金属膜微型加热器的电阻温度系数; φ 是热信号和电信号之间的相位差。式(1)说明加热膜两端电压的三次谐波成分只与热作用有关, 而基波是电和热信号的综合。如果加热膜的长度与试样尺度相当, 可以用 2 维的导热模型模拟加热膜的平均温升。Borca-Tasciuc 等人^[7]给出了不同边界条件下各向异性结构表面加热膜复数平均温升的解析解。表面加热膜复数平均温升为

$$\Delta T_{2\omega} = -\frac{P_l}{\pi \sqrt{\lambda_x \lambda_y}} \int_0^\infty \frac{\sin^2(b\beta)}{A_0(\beta^2 + i2\omega C/\lambda_x)^{1/2} (b\beta)^2} d\beta \quad (2)$$

式中: P_l 为加热膜单位长度交流加热功率的幅值; b 为加热膜的半宽度; x 和 y 分别为膜方向和厚度方向, 分别对应于本试验使用的 KTP 晶体试样的径向和倍频方向; λ_x, λ_y 分别为径向和倍频方向的导热系数; C 为体积热容; β 为积分变量。

对于各向异性半无限大固体, 根据 Cahill 的假设^[5], 若热作用深度大于 5 倍加热膜的半宽度, 即若满足 $z = qb/\sqrt{\lambda_x/\lambda_y} < 0.2$, 则近似满足 $\sin(b\beta)/b\beta \approx 1$, 得到斜率- 3ω 法的简化公式^[5,7], 这里, q^{-1} 为交流热作用深度, $q = (2\omega C/\lambda_x)^{1/2}$ 。本文在上述 Cahill 的假设条件下, 把式(2)右边的积分展开成无穷级数的形式, 取级数的第 1 项, 得到与文献^[5,7]类似的简化公式

$$\Delta T_{2\omega} = \frac{P_l}{\pi \sqrt{\lambda_x \lambda_y}} \left[0.5 \ln \frac{\lambda_x}{Cb^2} + \eta - 0.5 \ln(2\omega) - i \frac{\pi}{4} \right] \quad (3)$$

本实验中的 KTP 晶体沿倍频方向的厚度为 2 mm, 而在测试频率范围内, 最大热作用深度为几百 μm , 因此试样尺度满足半无限大条件, $A_0 = -1$ 。式(2)和(3)中表面加热膜复数平均温升的实部是交流加热信号的同相分量, 表示温度波动特性与测试材料热物性参数和交流加热频率之间的关系; 虚部是交流热作用信号的异相分量, 表示温度波动信号与交流电信号之间的相位滞后特性^[5]。

实际上, 在 3ω 法实验中直接测试的参数是三次谐波电压而不是温度波动。理论上, 在 3ω 法实验中利用锁相放大器探测的三次谐波的实部和虚部都可以用来确定试样的导热系数, 但是实际测试时由于虚部分量的变化比较复杂, 一般采用下式^[5]和三次谐波实部分量计算加热膜温度波幅度的实部。

$$\Delta T_{2\omega, R} = \frac{2}{\alpha} \frac{V_{3\omega}}{V_{1\omega}} \quad (4)$$

对于 10 mm \times 10 mm \times 2 mm 的试样结构, 加热频率比较低时, 试样内部的热作用区域相对比较大, 厚度为 180 nm, 宽度为 8 μm 和 40 μm 的金加热膜的热容的影响可以忽略, 加热膜的温升取决于试样的热物性参数; 加热频率比较高时, 加热膜有一定的宽度, 本身也要吸收一定的热量, 加热膜的热容可能产生一定的误差, 因此有必要对加热膜热容对温度波动的影响进行修正。本文在频域内对加热膜建立如下能量平衡方程

$$P_l = i4\omega C_h b d_h \Delta T_{2\omega}^* + k_s \Delta T_{2\omega}^* \quad (5)$$

经过推导可以得到实际测试的温升为

$$\Delta T_{2\omega}^* = P_l / (k_s + i4\omega C_h b d_h) \quad (6)$$

式中: C_h 为加热膜体积热容; d_h 为加热膜厚度; k_s 为试样受交流加热作用区域的有效导热系数, $k_s = P_l / \Delta T_{2\omega}$ 。

综上所述, 根据式(2)和(3)可知, KTP 晶体表面加热膜的温度波动主要与交流加热频率、径向和倍频方向的导热系数及加热膜宽度等因素有关。如果测量出不同宽度加热膜在不同交流加热频率下的三次谐波, 由式(4)可得到对应的温度波动信号。如果窄加热膜的宽度和加热频率满足式(3)的条件, 首先根据式(3), (5)和(6), 拟合窄加热膜温度波动实部的测量值得到 $\sqrt{\lambda_x \lambda_y}$, 然后利用宽加热膜的测试结果和式(2)拟合得到径向平均导热系数 λ_x , 最后得到倍频方向的导热系数 λ_y ; 如果两个加热膜的宽度和加热频率不满足式(3)的条件, 则根据式(2)和两个不同宽度加热膜的测量结果直接拟合出 λ_x 和 λ_y 。

2 实验系统

图 1 为验证性实验试样和 KTP 晶体试样的结构图。KTP 晶体(10 mm \times 10 mm \times 2 mm)的切割方向为 $\theta = 90^\circ$, $\phi = 23.5^\circ$ 。验证实验采用的试样为厚 500 μm 的 Si 基体+厚为 500 nm SiO_2 薄膜(采用高温热氧化工艺制备)。在 SiO_2 薄膜表面采用紫外曝光工艺和磁控溅射工艺直接制备附着性比较好的厚度为 200 nm 的 4 焊盘微型 Pt 加热膜。对于 KTP 晶体试样, 由于 Pt 等金属在其表面附着性不好, 通常采用的先涂光刻胶再加工金属膜, 最后采用紫外曝光工艺成型的步骤很难制备附着性强的加热金属膜。经过多次尝试, 首先采用磁控溅

射工艺在 KTP 晶体的表面沉积厚度为 5 nm 的金属 Ti 以增强加热膜的附着强度,再沉积一层厚度为 180 nm 的 Au 膜,然后采用紫外曝光工艺制作出加热膜的形状。最后利用光刻法得到宽度分别为 $8\ \mu\text{m}$ 和 $40\ \mu\text{m}$ 、长度为 $1\ 800\ \mu\text{m}$ 的 2 个 4 焊盘微型 Au 加热/测温膜,结构如图 1(b) 所示。加热膜的 4 个焊盘通过直径为 $30\ \mu\text{m}$ 的 AlSi 丝采用压焊工艺与外围电路连接。

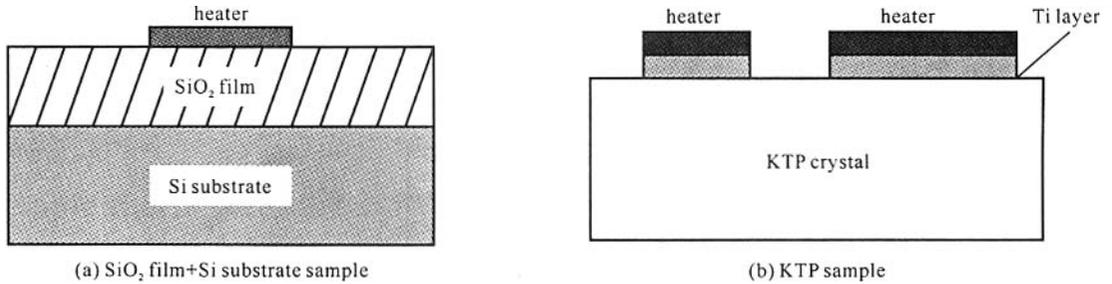


Fig.1 Sample structure
图 1 试样结构图

图 2 所示的测试系统中,主要的仪器为 Signal Recovery 7280 锁相放大器,频带范围为 $0.5\ \text{Hz}\sim 2\ \text{MHz}$;频率信号合成器 A33220A,正弦交流信号失真度为 0.03% 。一般情况下,三次谐波电压分量为基波电压的 $10^{-3}\sim 10^{-4}$ 。同时由于锁相放大器的动态存储有限,为了准确测试三次谐波分量,必须采用电桥电路尽可能滤除加热膜和可调电阻上的基波电压。频率信号合成器提供的交流信号驱动加热膜和可调电阻。由于交流电流的微弱加热作用,加热膜产生微弱的三次谐波和两端的基波混在一起。为了使输入锁相放大器的信号稳定,首先使加热膜和可调电阻两端的电压进入两个单增益差动放大器 AMP03,然后分别进入锁相放大器的 A,B 输入端。

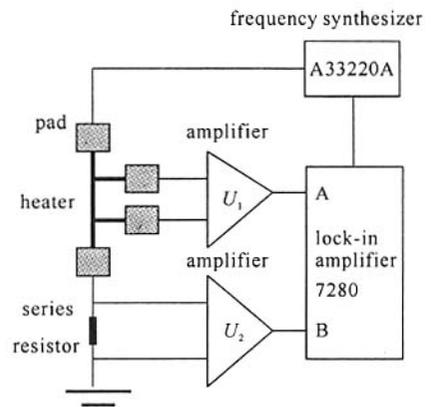


Fig.2 3ω measurement system
图 2 3ω 法测试系统

开始测试时,首先采用比较小的输出电压,一般为几十 mV,避免加热膜产生比较大的电阻改变,调节可调电阻使电桥平衡,对应可调电阻的大小等于加热膜的电阻 R_0 ;增大信号发生器的输出电压,加热膜被加热,电阻发生微小改变。由于此时加热膜和可调电阻两端的基波接近相等,通过锁相放大器的差动输入可以滤除基波,进而测试出给定频率下的三次谐波电压的实部和虚部分量;由小到大改变频率合成器输出信号的频率,测试不同频率下对应的三次谐波实部分量,然后由大到小改变频率,重复上述步骤,同一个测试频率下的谐波信号取平均值。

3 实验验证和测试结果

为了验证实验系统的可靠性,首先测试了 $500\ \mu\text{m}$ 厚 Si 衬底表面厚度为 $500\ \text{nm}$ SiO_2 薄膜的导热系数。

表 1 SiO_2 薄膜导热系数测试结果的对比

Table 1 Comparison of tested thermal conductivity of SiO_2 film

	film thickness/nm	substrate thickness/ μm	deposition process	thermal conductivity / $(\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1})$
Kim ^[8]	488	380	thermo-oxidation	1.33
Yamane ^[9]	500	500	thermo-oxidation	1.34
this paper	500	500	thermo-oxidation	1.31

利用斜率- 3ω 法和求差- 3ω 法测试衬底表面薄膜导热系数的原理与方法已经有比较详细的论述^[5]。采用各向异性分析方法,得到 $500\ \text{nm}$ 厚 SiO_2 薄膜法向和面向的导热系数分别为 1.31 和 $1.24\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ 。与其他采用 3ω 法实验测试 SiO_2 薄膜法向导热系数的结果对比见表 1(面向导热系数尚无报道)。可见,对于相同的制膜工艺,本文设计的 3ω 实验系统是合理可靠的。

利用建立的测试系统分别测试了 KTP 晶体表面的 2 个宽度分别为 $40\ \mu\text{m}$ 和 $8\ \mu\text{m}$ 微型金属膜加热器中

间 2 个焊盘之间的三次谐波。不同频率下三次谐波的实部和虚部分的测试结果见图 3 和 4。加热频率小于 1 kHz 时,与宽度为 40 μm 的加热膜相比,宽度为 8 μm 的加热膜的三次谐波测试信号与对数频率的关系具有比较明显的线性关系。首先根据宽度为 8 μm 的加热膜的三次谐波测试信号的实部计算加热膜温升的实部,根据最小二乘法采用式(3)拟合得到组合参数 $\sqrt{\lambda_x \lambda_y} = 13.228 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,与文献[2]给出的平均导热系数 $13 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 接近;然后利用式(2)拟合宽度为 40 μm 的加热膜温度波动的实部,得到 KTP 晶体激光棒径向平均导热系数 $\lambda_x = 11.36 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,进而得到倍频方向的导热系数 $\lambda_y = 15.4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$,所以 KTP 激光棒径向和倍频方向导热系数的不均匀度 $\lambda_x/\lambda_y = 0.737$ 。根据上述 2 个加热膜的尺度以及热作用深

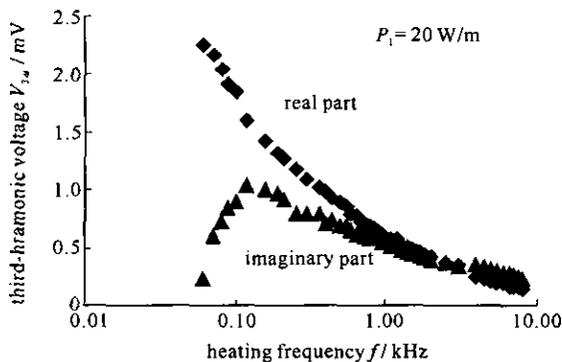


Fig. 3 Third-harmonic voltage vs frequency for 40 μm -heater

图 3 宽度为 40 μm 加热膜三次谐波与频率的关系

度的定义,简化计算公式(3)的假设条件, z 的取值与加热膜宽度、测试材料导热系数、体积热容和加热频率有关。计算中材料的径向和倍频方向导热系数采用上述实验测试结果,采用扫描电镜(SEM)测量两个加热膜的宽度,采用量热法测量得到 KTP 晶体试样的体积热容 $C = 2.15 \text{ MJ} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ 。 z 随加热频率的变化关系如图 5 所示。由图 5 可见,对于宽度为 8 μm 的加热膜,当加热频率小于 1 kHz 时,满足 $z < 0.2$ 。对于宽度为 40 μm 的加热膜,只有当加热频率小于 0.04 kHz 时才满足 $z < 0.2$ 。实际上,在 3ω 实验过程中,由于实验仪器频带宽度的限制,加热频率不能太小。所以上述选取不同计算公式分别拟合得到不同参数的过程是合理的。

4 结 论

本文提出 3ω 法测量 KTP 晶体导热系数的原理,对 KTP 晶体试样表面沉积的微型加热膜/测温器的温度波动进行了修正。建立了 3ω 测试系统,测试了 500 μm 厚 Si 衬底表面厚度为 500 nm SiO_2 薄膜的导热系数,验证了建立的实验系统是合理的。将建立的 3ω 测试系统用于测试各向异性 KTP 晶体的导热系数。测试出沿 KTP 激光棒倍频方向和径向的导热系数分别为 15.4 和 11.36 $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 。该测试系统可以用于测试其他光学晶体各向异性导热系数以及晶体表面薄膜的热参数。

致 谢 感谢美国伊利诺斯大学 D. G. Cahill 教授对本研究建立的 3ω 实验系统提供的帮助,同时感谢休斯顿大学 F. Chen 博士、韩国延世大学 Han Na Cho 博士和东南大学陈云飞教授提出的宝贵意见。

参考文献:

- [1] 李隆,凌亚文,史彭,等. 水冷式激光系统中非线性晶体 KTP 的温度场研究[J]. 激光与红外, 2005, 35(1):51-54. (Li L, Ling Y W, Shi P, et al. Nonlinear optical crystal KTP temperature field in water-cooling laser system. *Laser and Infrared*, 2005, 35(1):51-54)
- [2] 姚建铨. 非线性光学频率变换及激光调谐技术[M]. 北京: 科学出版社, 1995:69-140. (Yao J Q. The frequency conversion and laser tuning technology in nonlinear optics. Beijing: Science Press, 1995:69-140)
- [3] Zhang J. Anisotropic thermal properties of monoclinic $\text{Yb:KLu(WO}_4)_2$ crystals[J]. *Appl Phys Lett*, 2005, 87(6):061104.

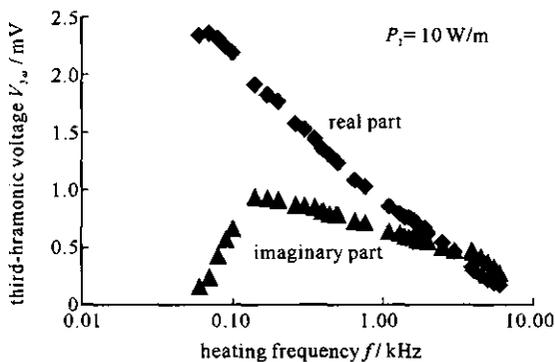


Fig. 4 Third-harmonic voltage vs frequency for 8 μm -heater

图 4 宽度为 8 μm 加热膜三次谐波与频率的关系

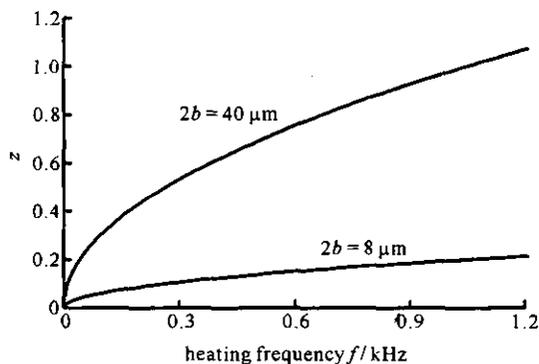


Fig. 5 z vs frequency for different film width

图 5 不同加热膜宽度下 z 与加热频率的关系

- [4] Cahill D G, Pohl R O. Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau[J]. *Phys Rev B*, 1987, **35**(8):4067-4073.
- [5] Cahill D G. Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K: the 3ω method[J]. *Rev Sci Instrum*, 1990, **61**(2):802-808.
- [6] Lee S M, Cahill D G. Heat transport in thin dielectric films[J]. *J Appl Phys*, 1997, **81**(6):2590-2595.
- [7] Borca-Tasiuc D A, Kumar A R, Chen G. Data reduction in 3ω method for thin-film thermal conductivity determination[J]. *Rev Sci Instrum*, 2001, **72**(4):2139-2147.
- [8] Kim J H, Feldman A, Novotny D. Application of the three omega thermal conductivity measurement method to a film on a substrate of finite thickness[J]. *J Appl Phys*, 1999, **86**(7):3959-3963.
- [9] Yamane T, Nagai N, Katayama S, et al. Measurement of thermal conductivity of silicon dioxide thin films using a 3ω method[J]. *J Appl Phys*, 2002, **91**(12):9772-9776.

Anisotropic thermal conductivity measurement of KTP crystal using 3ω method

WANG Zhao-liang^{1,2}, TANG Da-wei¹, CHEN Huan-zhuo¹

(1. *Institution of Engineering Thermophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China;*

2. *Graduate School of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

Abstract: It is important to evaluate the anisotropic thermal characteristics of nonlinear KTP crystal for improving the harmonic generation effect to reduce thermal stress produced by laser beam and the 3ω setup is developed. The thermal conductivity of SiO₂ film on Si substrate is measured and the result shows that the system is valid. The thermal conductivities of KTP crystal in the harmonic generation and radial direction are determined using the 3ω technique. The results show a strong anisotropy of thermal conduction in the KTP crystal.

Key words: KTP crystal; 3ω method; Anisotropic thermal conductivity