

Abschätzung der Machbarkeit von 2- und 3-Schichtmessungen mittels LFA

Fabia Beckstein, Applikationslabor

Einleitung

Die Bestimmung der Wärmeleitfähigkeit von mehrschichtigen Proben ist nicht nur eine Herausforderung für die Messtechnik, sondern auch für den Bediener. Die *Proteus*[®]-LFA-Software bietet die Möglichkeit, 2- und 3-schichtige Proben zu messen. Die Analyse erfolgt nach Hartmann [1] bis *Proteus*[®] 7.03 und basierend auf Maillet [2] und Baba [3] für *Proteus*[®] 7.1 und höher.

Für eine erfolgreiche Messung und zuverlässige Ergebnisse sind allerdings einige Voraussetzungen nötig. Vor der eigentlichen Messung müssen die folgende Fragen geklärt werden:

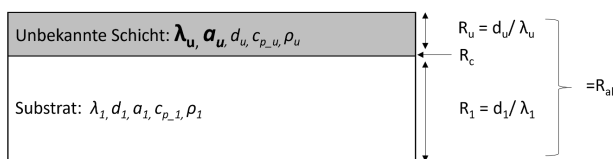
Welche Messgröße soll bei der 2- und/oder 3-Schichtmessung bestimmt werden?

Bei einer 2-Schichtmessung kann die Temperaturleitfähigkeit a_u und Wärmeleitfähigkeit λ_u einer unbekannt Schicht bestimmt werden, siehe Abbildung 1. Die andere

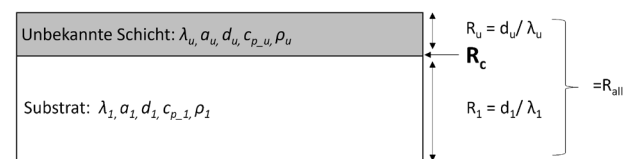
Schicht (=Substrat) muss bekannt sein. Dabei ist es wichtig festzuhalten, dass das Ergebnis der unbekannt Schicht immer den eventuell vorhandenen Kontaktwiderstand R_c zwischen den Schichten beinhaltet. Somit ist es nicht ungewöhnlich, wenn das Ergebnis aus einer 2-Schichtmessung nicht der Wärmeleitfähigkeit des reinen Materials entspricht.

Eine weitere Messgröße ist der Kontaktwiderstand R_c zwischen zwei Schichten, siehe Abbildung 2. Wenn die Wärmeleitfähigkeit von beiden Schichten bekannt ist, kann der Kontaktwiderstand zwischen den Schichten berechnet werden.

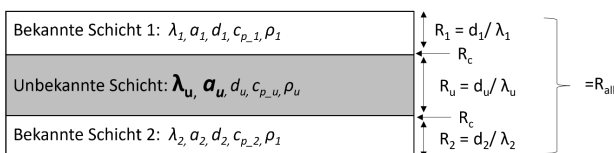
Bei einer 3-Schichtmessung können ausschließlich die Temperatur- und Wärmeleitfähigkeit einer Schicht bestimmt werden, siehe Abbildung 3. Auch hier gilt, dass das Ergebnis eventuell vorhandene Kontaktwiderstände beinhaltet. Die Bestimmung von Kontaktwiderständen zwischen den Schichten ist in dieser Messung nicht möglich.



- 1** Schema einer 2-Schichtprobe zur Bestimmung der Temperatur- und Wärmeleitfähigkeit der unbekannt Schicht.
Kursiv: Werte müssen vor der Messung bekannt sein;
Fett und groß: Werte unbekannt und sollen bestimmt werden



- 2** Schema einer 2-Schichtprobe zur Bestimmung des Kontaktwiderstandes zwischen zwei Schichten.
Kursiv: Werte müssen vor der Messung bekannt sein;
Fett und groß: Werte unbekannt und sollen bestimmt werden.



- 3** Schema einer 3-Schichtprobe zur Bestimmung der Temperatur- und Wärmeleitfähigkeit der unbekannt Schicht.
Kursiv: Werte müssen vor der Messung bekannt sein;
Fett und groß: Werte unbekannt und sollen bestimmt werden.

Welche Eigenschaften der Schichten müssen bekannt sein?

Sowohl bei der 2- als auch 3-Schichtmessung ist zur Bestimmung der Temperaturleitfähigkeit der zu analysierenden, unbekanntes Schicht, die Kenntnis über die spezifische Wärmekapazität $c_{p,u}$, die Dichte ρ_u und die Dicke d_u dieser Schicht notwendig. Die Wärmeleitfähigkeit kann anschließend aus diesen Daten berechnet werden. Ebenfalls bekannt sein müssen die Temperaturleitfähigkeit a_i , die spezifische Wärmekapazität $c_{p,i}$, die Dichte ρ_i und die Dicke d_i der bekannten Schicht(-en).

Soll der Kontaktwiderstand zwischen zwei Schichten bestimmt werden, so ist von allen Schichten sowohl die Temperaturleitfähigkeit, als auch die spezifische Wärmekapazität, Dichte und Dicke erforderlich.

Welche Anforderungen gibt es an die Schichten?

Alle Schichten müssen planparallel und homogen sein. Die ideale Dicke der Schichten hängt von deren thermischen Widerstand R im Vergleich zum gesamten thermischen Widerstand R_{all} ab.

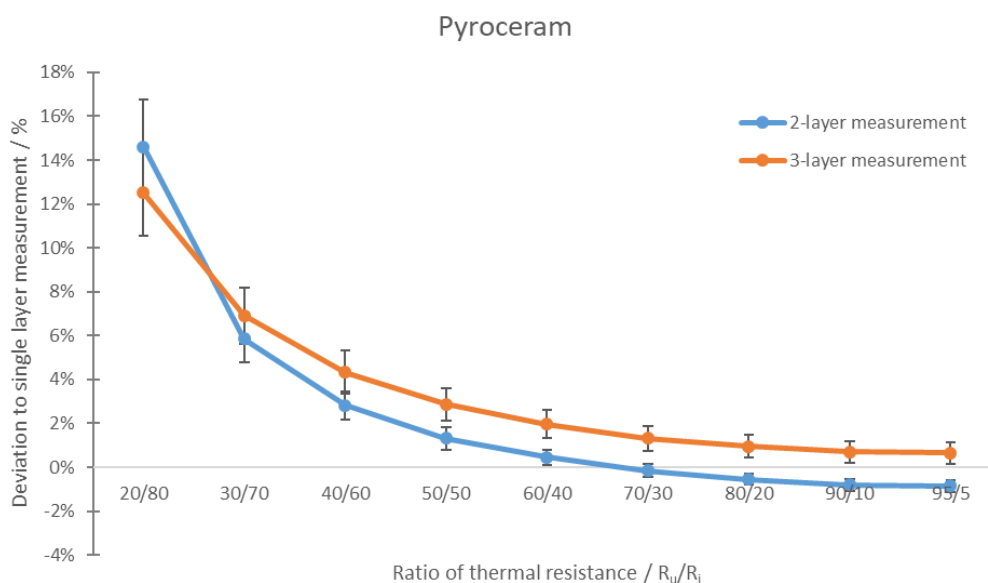
Im Folgenden werden die Möglichkeiten und die Grenzen dieser Methode anhand von Messungen idealer Proben (Pyroceram 9606, reines Kupfer und PE) aufgezeigt. Es geht dabei vor allem um die Abschätzung der Machbarkeit von Mehrschichtmessungen und im Anschluss um die Interpretation und Plausibilität der Ergebnisse.

1) Thermischer Widerstand der unbekanntes Schicht R_u

Es wurden 2- und 3-Schichtmessungen an 1-schichtigen Referenzmaterialien durchgeführt. Der Kontaktwiderstand ist faktisch nicht vorhanden. Die Ergebnisse der 2- und 3-Schichtanalysen müssen also den gleichen Messwert liefern wie die Messung des Referenzmaterials als 1-Schichtprobe. Für diese Tests wurden die zwei Referenzmaterialien Pyroceram 9606 (\varnothing 12,7 mm; Dicke: 2,51 mm) und reines Kupfer (\varnothing 12,7 mm; Dicke: 2,46 mm) verwendet. Diese Referenzmaterialien wurden aufgrund ihrer sehr unterschiedlichen Temperaturleitfähigkeit ausgewählt: Kupfer (bei 25 °C) \sim 117 mm²/s [4], Pyroceram 9606 (bei 25 °C) \sim 1,926 mm²/s [5].

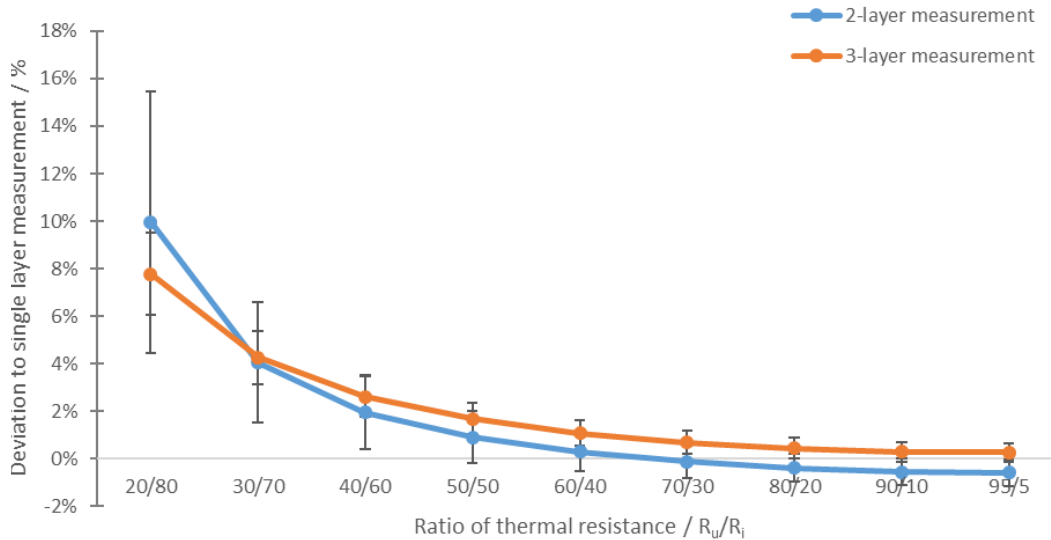
Abbildung 4 und 5 zeigen die Abweichung der 2- und 3-Schichtmessungen an Pyroceram 9606 und Kupfer vom Messergebnis der gleichen Proben als 1-Schichtmessung. Die x-Achse gibt das Verhältnis des thermischen Widerstandes der unbekanntes Schicht zum thermischen Widerstand der bekannten Schicht(-en) an. Die Fehlerbalken repräsentieren die Standardabweichung von jeweils fünf Einzelmessungen.

Sowohl Schichten mit einer niedrigen als auch mit einer hohen Temperaturleitfähigkeit können mit einer Genauigkeit besser als 8 % gemessen werden, wenn der thermische Widerstand der unbekanntes Schicht \geq 30 % des gesamten thermischen Widerstandes ist.



4 Abweichung der 2- und 3-Schichtmessung von der 1-Schichtmessung an Pyroceram 9606 in Abhängigkeit des Verhältnisses der thermischen Widerstände der unbekanntes und bekannten Schicht(-en)

Copper



5 Abweichung der 2- und 3-Schichtmessung von der 1-Schichtmessung an Kupfer in Abhängigkeit des Verhältnisses der thermischen Widerstände der unbekannt und bekannten Schicht(-en)

2) Dicke der einzelnen Schichten

Eine weitere Grundvoraussetzung für ein genaues Ergebnis ist die präzise Ermittlung der Dicke der einzelnen Schichten. Ein Fehler in der Dicke kann bei mehrschichtigen Proben in Anbetracht einer ungenügend genauen Dickenbestimmung, aufgrund von nicht-Planparallelität oder angesichts einer hohen Rauigkeit der Oberfläche, hervorgehen. Der Dickenfehler bei LFA-Messungen ist immer kritisch zu bewerten. Die Dicke geht quadratisch ins Messergebnis ein [6]:

$$a = 0,1337 \cdot d^2 / t_{1/2}$$

Auch mehrschichtige Proben bilden hier keine Ausnahme. Jedoch stellt die Dickenbestimmung bei mehrschichtigen Proben eine besondere Herausforderung dar und muss ggf. durch Techniken wie Rasterelektronenmikroskopie unterstützt werden. Da mindestens eine der Schichten sehr dünn sein kann (nur wenige 100 µm), macht bereits beispielsweise ein Fehler von ± 10 µm in der Dickenbestimmung einen Fehler von bis zu ± 20 % im Ergebnis.

3) Interpretation von Messergebnissen und Messsignalen

In Punkt 1) wurden ideale Proben untersucht, bei denen es keinen Kontaktwiderstand gibt. Dies ist bei realen Proben jedoch nicht immer der Fall. Je nachdem wie zwei Schichten miteinander verbunden sind, ist der Kontaktwiderstand mehr oder weniger ausgeprägt. Bei stoffschlüssigen Verbindungen (z.B. Schweißverbindungen) ist der Kontaktwiderstand meist kleiner als bei formschlüssigen Verbindungen (z.B. Klemmen). Die 2- und 3-Schichtanalyse mittels LFA funktioniert nur, wenn der Kontaktwiderstand im Vergleich zu der zu untersuchenden Schicht hinreichend klein ist. Dies kann mit einer Messung bei Raumtemperatur und der Übereinstimmung von Messsignal mit dem mathematischem Fit überprüft werden. Eine Polyethylen Probe (PE), bestehend aus zwei 2 mm-dicken Einzelschichten, und eine Pyroceram 9606 Probe, ebenfalls bestehend aus zwei 2 mm-dicken Einzelschichten, wurden analysiert. Die Auswertung der Messungen erfolgte auf drei Arten: Berechnung der Temperaturleitfähigkeit als Einschichtprobe (inkl. Kontaktwiderstand), Berechnung der Temperaturleitfähigkeit einer unbekannt Schicht (inkl. Kontaktwiderstand) und Berechnung des Kontaktwiderstands zwischen zwei bekannten Schichten.

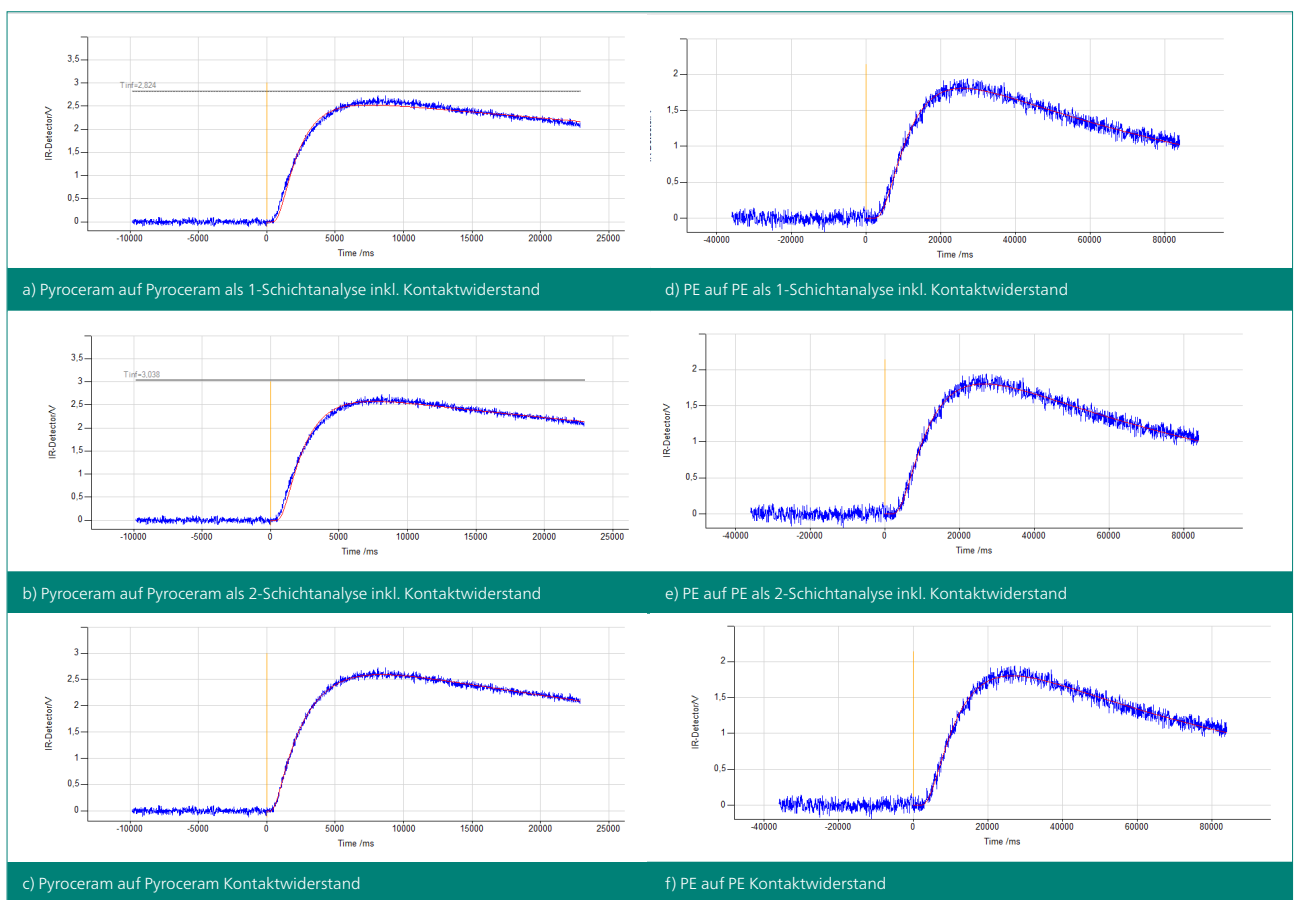
Abbildung 6 fasst die Messsignale und das Ergebnis von Pyroceram 9606 und PE zusammen. Die blauen Kurven stellen jeweils die aufgenommene Detektorkurve dar, die rote Linie den mathematischen Fit (Modell). Eine gute Übereinstimmung zwischen Detektorkurve und mathematischem Fit ist Grundvoraussetzung für ein aussagekräftiges Ergebnis.

Pyroceram 9606 hat eine höhere Wärmeleitfähigkeit als PE. Bei gleicher Probendicke ist daher der thermische Widerstand geringer. Somit spielen vorhandene Kontaktwiderstände eine größere Rolle.

Bei den Messungen an Pyroceram auf Pyroceram als 1-Schicht ausgewertet (Gesamtdicke 4 mm) zeigt sich der vorhandene Kontaktwiderstand darin, dass der mathematische Fit keine gute Übereinstimmung mit dem

Messsignal hat (Abbildung 6(a)). Das Messergebnis ist somit mit einem hohen Fehler behaftet (vgl. Ergebnisse aus Tabelle 1). Bei der 2-Schichtanalyse stimmt der Fit ebenfalls nicht ganz mit dem Detektorsignal überein. Das Ergebnis (einzelne, 2 mm dicke Pyroceram-Schicht; Abbildung 6(b)) beinhaltet jetzt den vorhandenen Kontaktwiderstand, der jedoch zu dominant ist. Die berechnete Temperaturleitfähigkeit wird durch den Kontaktwiderstand reduziert. Bei der Berechnung des Kontaktwiderstandes ist der Fit deutlich besser (Abbildung 6(c)).

Die Messsignale von PE auf PE hingegen zeigen immer eine gute Übereinstimmung (siehe Abbildungen 6 (d), (e), (f)). Hier hat der vorhandene Kontaktwiderstand zwar weiterhin einen Einfluss (siehe Tabelle der Messergebnisse), aber er ist nicht dominierend.



6 Detektorkurven und mathematischer Fit von Pyroceram/Pyroceram und PE/PE Proben bei verschiedenen Auswertungszuständen

Tabelle 1 Analyseergebnisse von Pyroceram 9606 auf Pyroceram 9606 und PE auf PE

Probe	Referenzwert	Temperaturleitfähigkeit / mm ² /s		Thermischer Widerstand /m ² ·K/W
		2-Schichtprobe als 1-Schichtanalyse	2-Schichtprobe als 2-Schichtanalyse	aus 2-Schichtanalyse
Pyroceram 9606 auf Pyroceram 9606	1,926	1,039	0,641	8,45E-04
PE auf PE	0,239	0,213	0,172	1,87E-03

Je geringer der thermische Widerstand der zu analysierenden Schicht (bedingt durch eine hohe Wärmeleitfähigkeit und/oder eine geringe Dicke), desto größer kann der Einfluss des Kontaktwiderstandes sein. Der Kontaktwiderstand kann zudem von der Materialpaarung, und wie die einzelnen Schichten gefügt sind, abhängen, sodass eine generelle Aussage über die Größe des Kontaktwiderstandes und dessen Einfluss auf eine bestimmte Probe schwierig ist.

Zusammenfassung

Eine Abschätzung der Machbarkeit einer Mehrschichtanalyse kann über die Beschränkung des thermischen Widerstandes der unbekannt Schicht ($R > 30\% R_{all}$) erfolgen. Eine endgültige Aussage über die Machbarkeit einer Mehrschichtanalyse kann aufgrund der vorhandenen und nicht bekannten Kontaktwiderstände allerdings nur über eine tatsächliche Messung und Interpretation der Messsignale erfolgen.

(Stand: bis SW 8.0.3)

Literaturverzeichnis

- [1] J. Hartmann, O. Nilsson, J. Fricke: *Thermal Diffusivity measurements on two- and three-layered systems using laser-flash method*; Report ZAE 2 – 0593 – 1 (1993)
- [2] D. Maillet, S. Andre, J.-C. Batsale, A. Degiovanni: *Thermal Quadrupoles*, Wiley, (2000)
- [3] T. Baba: *Analysis of One-Dimensional Heat Diffusion after Light Pulse Heating by the Response Function*, Jpn. J. Appl. Phys., 48 (2009)
- [4] Y.S. Touloukian: *Thermophysical Properties of Matter – Volume 10 – Part 1 – Thermal Diffusivity*
- [5] D. Salmon, G. Roebben, A. Lamberty, R. Brandt: *Certification of thermal conductivity and thermal diffusivity up to 1025 K of a glass-ceramic reference material BCR-724*; Report EUR 21764 EN (2007)
- [6] W.J. Parker, R.J. Jenkins, C.P. Butler, G.L. Abbott: *Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity*; Journal of Applied Physics 32 (9): 1679-1684 (1961)

Temperaturleitfähigkeit der unbekannt Schicht:	a_u
Wärmeleitfähigkeit der unbekannt Schicht:	λ_u
Kontaktwiderstand:	R_c
spezifische Wärmekapazität der unbekannt Schicht:	$c_{p,u}$
Dichte der unbekannt Schicht:	ρ_u
Dicke der unbekannt Schicht:	d_u
Temperaturleitfähigkeit der bekannt Schicht(-en):	$a_{1,2}$
spezifische Wärmekapazität der bekannt Schicht(-en):	$c_{p,1,2}$
Dichte der bekannt Schicht(-en):	$\rho_{1,2}$
Dicke der unbekannt Schicht(-en):	$d_{1,2}$
$i = 1$ für 2-Schichtmessung	
$i = 1$ oder 2 für 3-Schichtmessung	
thermischen Widerstand der unbekannt Schicht:	R_u
thermischen Widerstand der bekannt Schicht:	$R_{1,2}$
gesamter thermischen Widerstand:	R_{all}
Halbzeit:	$t_{1/2}$

Die Autorin

Fabia Beckstein studierte Materialwissenschaften an der Universität Bayreuth mit der Vertiefung Metalle und Polymere. Seit ihrem Masterabschluss 2013 arbeitet sie als wissenschaftliche Mitarbeiterin im Applikationslabor. Seither beschäftigt sie sich mit der Bestimmung der thermophysikalische Eigenschaften und ist Expertin für die Methoden LFA, GHP und HFM.