國立交通大學機械工程學系 _{碩士論文}

快速雷射脈衝加熱金屬薄膜之光學特性及其對熱傳特

性逆算影響之研究

Analysis on Optical Property and Its Influence in Inverse Estimation of Heat Transport Characteristics for Thin Metallic Films Subjected to Ultra-fast Pulse Laser Heating

研究生:黃永賢

指導教授:林振德

中華民國九十三年七月

快速雷射脈衝加熱金屬薄膜之光學特性及其對熱傳特

性逆算影響之研究

學生:黃永賢

指導教授:林振德

摘 要

MILLER

由於快速雷射加熱時間極為短暫而造成直接量測電子溫度變化 的困難,以往研究都以量測薄膜的光學反射率變化來取代之,並設定 光學反射率與電子溫度呈線性關係。本文探討此線性關係的適用性, 重新建立光學反射率與電子溫度之間的關係式,並針對快速雷射加熱 金屬薄膜的過程,帶入同時能夠量測金屬熱傳導係數與電子-聲子連 結因子的逆運算程式,進一步分析其關係式對逆算結果之影響。逆運 算結果顯示,當金屬薄膜愈薄,所得到的熱傳導係數與連結因子和原 先設定反射率與電子溫度呈線性關係的結果相差愈大;顯示出此一光 學反射率與電子溫度的線性關係在電子溫度變化愈大時,適用性愈 低。此外,由於一段時間後薄膜內部電子溫度才會達到平衡,故達到 平衡前,薄膜內部電子溫度將會影響到我們估測值而導致其逆運算的

i

Analysis on Optical Property and Its Influence in Inverse Estimation of Heat Transport Characteristics for Thin Metallic Films Subjected to Ultra-fast Pulse Laser Heating

Student : Yeong-Shyan Huang

Advisor: Jenn-Der Lin

Abstract

This thesis investigates the applicability of the linear variation of the reflectivity with the electron temperature when the laser pulse duration is too short to measure the variation of electron temperature directly. A more exact relationship between optical reflectivity and electron temperature is derived, and is brought into an inverse analysis which is performed for simultaneous estimation of both thermal conductivity and the electron-phonon coupling factor for thin metal films subjected to ultra-fast laser heating. Results show that as the change range of the electron temperature is small the linear variation of the reflectivity with the electron temperature can be applied, while at small thickness the applicability of the linear relationship is questionable. Furthermore, the reflectance we get before electron temperature reaches balance between front surface and rear surface is too low at the front surface and is too high at the rear surface, the effect of electron temperature distribution on the reflectance should be addressed in order to obtain more accurate estimation of heat transfer characteristics. In the present study, the reflectivity distribution relates to the thickness of thin film, electron temperature, the photon energy and incident angle are also analyzed.

誌謝

當此篇論文付梓的同時,也代表著我即將踏出生活了六年的交 大。回首研究生兩年生涯,實驗室中生活的點點滴滴著實懷念。

這篇論文能夠完成,首先我要感謝林振德老師在這段期間的指導,老師對於理論觀念上適切的引導,幫助我在進行論文研究時能夠 有清晰的思路,此外老師也教導我們以較為嚴謹的邏輯來處理論文的 每一個環結,這樣的訓練相信對於將來在處理問題時的會有很大的幫 勵,在此再次謝謝老師。

感謝口試委員吳志陽教授、陳志臣教授、傅武雄教授以及蘇德欽 教授對於論文上的指正及建議,尤其感謝許隆結、黃怡彰學長在程式 上的幫助,使得論文能夠順利完成。

我非常珍惜在交大的每一個日子,感謝學長文福、文忠、耀鋒、 志銘、正華、彥翔、紀元以及志凱對於我的照顧,還有柏霖、勤暐、 盈立、永彬、淵文、家棟、家宏以及偉健等同窗好友在衝刺時的互相 打氣,還有學弟自皓、本權、昱宏、俞任你們的陪伴與鼓勵,雖然相 處的時間短暫,但沒有你們就沒有這樣一段值得回味的實驗室時光, 謝謝大家。

最後感謝我的家人以及怕補,有了你們的培養和支持,讓我充滿 信心去做任何事情,往後我也會盡力去做好自己,扮演好每一個角色。

iii

中文摘要		i
英文摘要		ii
誌謝		iii
目 錄		iv
表目錄		vi
圖目錄		vii
符號說明		xi
第一章	緒論	1
1.1	前言	1
1.2	文獻回顧	1
1.2.1	高能量快速雷射脈衝加熱過程	1
1.2.2	電子熱傳導率與電子溫度	4
1.2.3	光學反射率變化與電子溫度變化	5
1.3	本文目的	8
第二章	物理與數學模式	10
2.1	基本假設與物理模式	10
2.2	受脈衝雷射加熱之金屬薄膜的熱傳遞	10

	2.3		電子熱傳導率與電子溫度	13
	2.4		光學反射率與電子溫度的關係	16
第	Ξ	章	數值方法分析	23
	3.1		逆運算分析	23
	3.2		逆運算程式求解流程圖	24
第	四	章	結果與討論	26
	4.1		光學反射率的變化與電子溫度、影響因子討論分析	27
	4.2		光學反射率與電子溫度變化關係對熱傳導係數與電	
			子-聲子連結因子的影響	30
	4.3		熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況	32
第	五	章	結論	36
參	考文	獻	a a a a a a a a a a a a a a a a a a a	38
-				

表目錄

表一	雷射加熱模型之間的關係	42
表二	金的物理常數	43
表三	常見金屬在溫度 273K 下之光學常數	44
表四	針對不同厚度情況,以 PTS 逆運算得到的 Keq,G	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \text{ model }]$	45
表五	針對不同厚度情況,以 PTS 逆運算得到的 Keq,G	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l]$	46
表六	金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \mod 1]$	47
表七	金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \text{ model }]$	48
表八	以 PTS 逆運算得到的 Keq,G [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	
	(a)不考慮薄膜內部電子溫度之影響效應(b) 考慮薄膜	
	內部電子溫度之影響效應(一倍穿透厚度)	49
表九	以 PTS 逆運算得到的 Keq,G [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	
	(a)不考慮薄膜內部電子溫度之影響效應(b) 考慮薄膜	
	內部電子溫度之影響效應(兩倍穿透厚度)	50

圖目錄

圖一	實驗加熱與測量反射率之示意圖	51
圖	對於薄膜入射角與折射角之示意圖(a)無考慮基底(b)考	
	慮基底	52
圖三	考慮基底與否,金薄膜之光學反射率與電子溫度之比較	
	圖 (1000 $\overset{0}{A}$, $\phi_0 = pi/4$)	53
圖四	針對電子溫度在室溫到 700K 下正規化光學反射率示意	
	圖 a)500 $\overset{0}{A}$, ϕ_0 =0pi(b)1000 $\overset{0}{A}$, ϕ_0 =0pi	54
圖五	針對電子溫度在室溫到 700K 下正規化光學反射率示意	
	圖 (2000 $\overset{0}{A}$, $\phi_0 = 0pi$)	55
圖六	不同入射光子波長對反射率與薄膜厚度關係之影響關係	
	圖	56
圖七	不同 n 和 k 值對光學反射率與薄膜厚度關係比較圖(a)n	
	相同k不相同(b)n不相同k相同	57
圖八	關於不同金屬之反射率與薄膜厚度比較關係圖	58
圖九	不同薄膜厚度正規化光學反射率變化與電子溫度關係	59
圖十	薄膜厚度1000Å在不同入射角度正規化光學反射率變化	
	與電子	60

圖十一 不同薄膜厚度在光學反射率與入射角度關係圖...... 61

圖十二 針對金薄膜厚度為 500[°]A正表面的情況,比較電子溫度 針對金薄膜厚度為 500Å背表面的情況,比較電子溫度 圖十三 圖十四 針對金薄膜厚度為 1000 Å 正表面的情況,比較電子溫度 針對金薄膜厚度為 $1000\overset{0}{A}$ 背表面的情況,比較電子溫度 圖十五 圖十六 針對金薄膜厚度為 2000 A 正表面的情況,比較電子溫度 針對金薄膜厚度為 2000 Å 背表面的情況,比較電子溫度 圖十七 圖十八 針對金薄膜厚度為 500Å正表面的情況,比較電子溫度 變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT^2 + BT_e}$ model] 68 圖十九 針對金薄膜厚度為 500 Å 背表面的情況,比較電子溫度 變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_e}$ model] 69 針對金薄膜厚度為 1000 Å 正表面的情況,比較電子溫度 圖廿 變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT^2 + BT}$ model] 70

圖廿一	針對金薄膜厚度為 1000 $\stackrel{\scriptscriptstyle 0}{A}$ 背表面的情況,比較電子溫度	
	變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	71
圖廿二	針對金薄膜厚度為 2000 Å 正表面的情況,比較電子溫度	
	變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	72
圖廿三	針對金薄膜厚度為 2000 $\stackrel{\scriptscriptstyle 0}{A}$ 背表面的情況,比較電子溫度	
	變化的估算值與實驗值[$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	73
圖廿四	金 薄 膜 的 熱 傳 導 係 數 受 薄 膜 厚 度 影 響 的 情 況	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \text{ mode I}]$	74
圖廿五	金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況	
	$[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \text{ mode I}]$	75
圖廿六	膜厚 500Å,正表面與背表面電子溫度概況圖	76
圖廿七	膜厚 1000 Å,正表面與背表面電子溫度概況圖	77
圖廿八	膜厚 2000 Å, 正表面與背表面電子溫度概況圖	78
圖廿九	針對薄膜厚度 500Å正表面,考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	79
圖卅	針對薄膜厚度 500Å背表面,考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	80
圖卅一	針對薄膜厚度 1000 Å 正表面 , 考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	81

圖卅二	針對薄膜厚度 1000 Å 背表面 , 考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	82
圖卅三	針對薄膜厚度 2000 Å 正表面 , 考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	83
圖卅四	針對薄膜厚度 2000 Å 背表面 , 考慮薄膜內部電子溫度影	
	響前後比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model]	84
圖卅五	考慮與否薄膜內部電子溫度分佈影響金薄膜的熱傳導係	
	數受薄膜厚度影響的情況比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_q}$ model,	
	一倍穿透厚度影響]	85
圖卅六	考慮與否薄膜內部電子溫度分佈影響金薄膜的熱傳導係	
	數受薄膜厚度影響的情況比較圖 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_q}$ model,	
	兩倍穿透厚度影響]	86

符號說明表

- $\overset{0}{A}$ 埃(10⁻¹⁰m)
- a 粒子的加速度, ms⁻²
- C 體積熱容量, Jm⁻³K⁻¹
- *f* 由時間、位置與速度所決定的分布函數,*s*⁻¹
- *G* 電子-聲子連結因子,*Wm*⁻³*K*⁻¹
- *K* 熱傳導係數,*Wm*⁻¹*K*⁻¹
- *k_B* 波斯曼常數, *JK*⁻¹
- L 薄膜厚度, m
- m_e 電子質量,kg
- n_e 每單位體積的電子密度, m^{-3}
- *q* 熱通量,*Wm*⁻²
- *R* 總效應光學反射率
- r 界面的反射係數
- *s* 雷射脈衝加熱熱源項
- T 温度,K
- *t* 時間,*s*
- v 電子或聲子的運動速度, ms⁻¹
- α 吸收係數, m^{-1}



- Γ 總效應反射係數
- ^{E1} 介電常數中實部的熱調節光譜
- *ε*₂ 介電常數中虛部的熱調節光譜
- △ 平均自由路徑, m
- σ 導電率, $1/\Omega m$
- *τ* 弛豫時間, s
- *ω* 頻率, 1/s



- D 德拜(Debye)溫度
- *e* 電子
- ee 電子與電子
- eq 平衡狀態
- ep 電子與聲子
- *f* 薄膜
- *l* 晶格
- *p* 平行極化
- s 垂直極化



第一章 緒論

1.1 前言

過去四十幾年來,在皮秒級(10⁻¹² sec; picosecond)及飛秒級 (10⁻¹⁵ sec; femtosecond)的超快脈衝雷射技術不斷被發展,1981 年 CPM 環形染料雷射產生脈衝寬度 100 飛秒的次皮秒脈衝,後來利用 非線性壓縮 CPM 雷射產生脈衝寬度 6 飛秒的記錄。在 1990 年代,飛 秒脈衝的產生技術被證明可由固態雷射晶體來產生而進步更快。現在 飛秒固態雷射技術已經進步到可以直接產生脈衝寬度低於 6 飛秒的 等級。飛秒等級的雷射與第一代的超快雷射相比較,它的脈衝寬度小 了三個數量級,輸出功率也高了 20 到 50 倍。

快速雷射脈衝加熱固體的能量傳輸的研究是一個非常廣泛被應 用的領域,此種高能快速脈衝雷射具有精確控制加工深度及位置的優 點,在新的材料加工技術及微機電系統加工技術當中經常被使用,大 量的應用在複雜的微結構的製造如雷射微加工[1],以及雷射製模 (Laser Patterning)[2]等等。除了工業上的應用之外,近年來快速脈衝 雷射常用於微系統熱傳的基礎科學研究,這些基礎的研究,可以瞭解 雷射加工過程中詳細的加熱機制,更可進一步應用於改善製造加工技 術以及提升產品品質。

1.2 文獻回顧

1.2.1 高能量快速雷射加熱過程

傳統的雷射加熱過程,幾乎都是低熱通量及長時間的雷射加熱。

而傳統的巨觀熱傳理論(如傅立葉定律)也可以成功的預測模擬出其 加熱過程及溫度分布。然而,因為只考慮熱能在介質中傳遞,而對於 詳細的電子與晶格間的交互作用並沒有列入考慮;所以如傅立葉定律 等的巨觀熱傳理論將無法解釋一些的物理現象:例如薄膜中的彈道傳 輸特性[3];以及在快速雷射加熱金屬薄膜情況下,電子與晶格之間 的非平衡現象[4]。所以當應用在高熱能快速雷射加熱過程來說,傳 統的巨觀熱傳理論其適用性存有很大的疑問。

因為電子的熱容量與金屬材料之晶格的熱容量比較起來小很 多,約莫兩個次方等級,所以電子與晶格之間的熱傳遞存在著非平衡 的現象,在快速雷射加熱金屬薄膜的過程中,熱傳機制通常包括了三 個步驟:(1)輻射能量直接加熱電子使得電子溫度增加、(2)電子與晶 格之間的熱傳作用使電子及晶格溫度達到平衡以及(3)熱能在介質中 的傳遞。早期的理論[5-7]預測證明了:當快速雷射激發的時間小於 電子能量的弛豫時間時,金屬中的電子會脫離與晶格之間的平衡關 係,此時電子的溫度高於晶格的溫度。而在雷射激發之後,能量會經 由聲子的放射而使得電子回復到與晶格之間的平衡關係。

對於快速加熱過程中電子與晶格之間存在非平衡狀態溫度,遠在 十幾年前便已經有學者提出一些熱傳機制模型,其中提出了一套拋物 線型二階段數學模式(Parabolic Two-Step Model, PTS)來描述加熱過 程中電子與晶格之間的溫度分布,但是當初在提出此一熱傳機制模型 時並沒有嚴謹的理論背景作支持。一直到 1993 年的時候,Qiu 和 Tien[8]才由波茲曼傳遞方程式(Boltzmann Transport Equation)推導出 此一加熱過程,描述電子與晶格溫度分佈的統御方程式應該是一組雙 曲線兩階段數學模式(Hyperbolic Two-Step Model, HTS),並且經由實 驗證明此一模型的準確性。 Qiu 和 Tien[8]也提出:在快速加熱過程中,有兩個重要的特徵 時間:分別是(1)弛豫時間(relaxation time)以及(2)電子熱化時間 (thermalization time)。弛豫時間是電子在不同能階跳動變換其狀態所 需要的平均時間,這決定了電子傳輸是彈道傳輸或是散射的;而電子 熱化時間則是原本不同溫度的電子與晶格在經過交互作用後,最後達 到相同的溫度所需要的有限時間。對於金屬薄膜來說,這兩個特徵時 間都相當的小,以金薄膜或銅薄膜來說,弛豫時間大約只有在飛秒等 級,而電子熱化時間則是在幾個兆分之一秒的等級。

當加熱時間比起弛豫時間來的長時,雙曲線兩階段數學模式 (HTS)將會過渡成拋物線兩階段數學模式(PTS);而當弛豫時間和電 子熱化時間皆遠小於雷射脈衝時間時,雙曲線兩階段數學模式(HTS) 則將會過渡到巨觀的熱傳傳立葉模式。

已經有許多研究者藉由「暫態熱調節」或是「飛秒光電放射」所 得到的實驗結果,觀察到金屬在極短脈衝加熱過程中電子與晶格之間 的非平衡現象[5-7]。通常,實驗是經由使用加熱-探針(pump-probe) 系統而加以進行。在系統中, 雷射光束被分成兩個不同強度的光束。 其中強度較高的光束用來加熱試樣,稱為加熱光束(pump beam); 而 另一個強度較弱的光束(強度約在 pump beam 的三十分之一以下)則 用來檢測試樣溫度的改變,稱為探針光束(probe beam)。在實驗中, 探針光束也可以同時檢測反射率、穿透率的改變。

在雷射脈衝加熱時間大於電子熱化時間的情況下,電子有足夠的 時間與晶格達成熱平衡,也使得能量的傳遞可以使用傅立葉傳導模式 加以描述;反之,若對於非常短時間的雷射脈衝加熱金屬薄膜,傅立 葉傳導模式的使用將存有非常大的疑問。因為在剛開始的時間,電子 和晶格非平衡狀態溫度的情形應該要考慮進去。

3

1.2.2 電子熱傳導率與電子溫度

在高能量快速雷射加熱金屬的過程中,於前述之兩階段數學模式 裡,有兩個重要的物理參數影響著熱傳導速率與熱傳量,一個是電子 的熱傳導係數 K,另一個是電子-聲子連結因子 G (the electron phonon coupling factor)。

文獻上針對電子-聲子連結因子的量測估算進行的研究相當少, 其中 Brorson 等人應用最小平方法(Least square)來估算電子-聲子連 結因子的大小,但是在他們研究過程中,卻忽略了電子的傳遞作用; Orlande 等人[9]以 PTS 模型來描述加熱過程中電子與聲子的溫度變 化中,將金屬薄膜的熱傳導係數視為常數並且以塊狀材料的熱傳導係 數(Bulk thermal conductivity)代表,但之後在 Qiu 和 Tien[10]的理論 分析中顯示,在脈衝雷射加熱金屬的過程中,金屬薄膜的熱傳導係數 及電子-聲子連結因子二者均與薄膜的厚度有關,因此,估算G值大 小時將熱傳導係數視為常數,其結果的準確性是值得懷疑的。

Qiu 和 Tien[10]他們並推導出在極短時間規模條件下的熱傳導率,表示如下:

$$K = K_{eq}(T_l) \left(\frac{T_e}{T_l} \right)$$

在上式中, K_{eq}代表電子與聲子在熱平衡時,以很慢的加熱速率 量測的熱傳導率。

Smith 和 Norris[11]指出在電子溫度遠小於費米溫度(Fermi temperature,金屬材料≈10⁴°K)的情況下,我們可將熱傳導率視為常數,或隨著「電子溫度與晶格溫度的比值」而變化。然而,當電子溫度因為雷射脈衝加熱而隨之上升的同時,熱傳導率也會因為「電子-電子之間的散射」而減小。對過渡金屬來說,當電子溫度夠高(對金 來說約為 3400K), d 能帶的電子將會對電子熱容量、電子-聲子連結因子有貢獻。

Hohlfeld 等人[12] 根據 Ashroft 和 Mermin[13] 提出金屬的 Sommerfeld 理論,推導出電子的熱傳導率 K 與 T_e/v 成正比關係。其 中碰撞頻率v為「電子-電子碰撞頻率」加上「電子-聲子碰撞頻率」 的總合: $v = v_{ee}(T_e) + v_{ep}(T_l)$,而 v_{ee} 遠小於 v_{ep} ,只是在 8000K 之前依然 不能忽略其影響。而碰撞頻率與溫度的關係,只粗略知道 $v_{ee}(T_e) \propto T_e^2$ 及 $v_{ep}(T_l) \propto T_l$ 。Vadim 等人[14]則根據金薄膜的情況,用數值方法算出 $v_{ee}(T_e) = AT_e^2$ 與 $v_{ep}(T_l) = BT_l$ 中明確的 A 和 B 常數值。

Bernd[15]認為極短雷射脈衝的加熱,使得電子和聲子各自的次 系統產生不同溫度變化而破壞電子、聲子之間的熱平衡關係。此時若 將電子的熱傳導率視為與電子溫度成線性的關係,在一定的溫度以下 還算合理,但若是在較高溫度情況下將會產生嚴重偏差。此外,Bernd 將 Ashroft 等人[13]的 Sommerfeld 理論擴展至二階項,重新建立新的 電子熱傳導與電子溫度的關係式,表示如下:

$$K = K_{LTE} \frac{T_e G(T_e)}{T_l (1 + z(T_e, T_l))} \{ 1 + \frac{1}{G(T_e)^2} [\frac{\pi^2 k_B^2 T_e^2}{24\mu_0} + \frac{7\pi k_B^2 T_e^4}{480\mu_0^4}] \}$$

其中 $K_{LTE} = \frac{\pi^2}{3} \frac{k_B^2}{e^2} T_l \sigma$,為平衡時下的熱傳導係數, σ 為導電率, μ_0 為 真空磁導率, $z(T_e, T_l) = \tau 4\pi^2 \beta k_B^2 T_e^2$, $\beta = 2.4 \times 10^{13} s^{-1} eV^{-2}$ 。

1.2.3 光學反射率變化與電子溫度變化

以往許多學者均認為,若電子氣溫度在低至室溫、高至700K左右的範圍之間,則正規化的反射率變化與正規化的電子溫度變化會成 一定的比例關係,如文獻16和17中所述。稍後, Eesley[10]利用熱 調節量測的方法,將低頻的交流電通過光學薄膜厚度約 400 A 的試 樣,然後同步檢測因為加熱所造成的反射率變化。他發現光學反射率 的變化除了是光學波長的函數之外,還有其他許多因素會對反射率的 改變造成影響諸如熱膨脹(thermal expansion)、電子-聲子交互作用與 費米層(Fermi Level)的移動等因素之影響。

粒子遵守包利不相容原理(Pauli Exclusion Principle),也就是每 一個狀態僅允許存在一個電子。所以當有數個電子存在,第一個電子 從最低能量的能階開始填入,第二顆電子則必須填入能量稍高的能 階,而不能與第一顆電子相同,如此一來當最後一顆電子填入後其所 存在的能階可以說是能量最高者,此時該電子所具有的能量稱之為費 米能量。而費米層即為具有電子佔據的能階與未有電子佔據能階之分 界點。

Juhasz 等人[18]利用實驗結果證明,原本被認為「電子溫度的時 態變化」與「反射率的時態變化」成線性的關係在一般的情況並非如 此,即便是在反射率時態變化呈現指數衰減的情況。他們在有效電子 溫度與所觀察到的光學反射率變化之間建立非線性的經驗公式。

Elsayed-Ali 等人[7]觀察因為受雷射脈衝加熱,而隨著溫度變化 的穿透率和反射率。他們發現將暫態反射率和暫態穿透率的時態分佈 取一階近似,會呈現隨雷射能量指數變化的形式;而穿透率變化以及 反射率變化的最大值直接與雷射能量成比例。除此之外,在 200 Å 到 800 Å範圍之間,穿透率的變化幾乎與薄膜厚度無關,但是反射率的 變化則明顯會受薄膜厚度影響。對於 200 Å 的薄膜而言,Elsayed-Ali 等人認為此狀況下的雷射加熱是相當一致(uniform)的,此時薄膜厚 度相當於穿透深度(skin depth,金的穿透厚度為 153 Å),因此此時的

6

電子傳遞能夠使得穿過薄膜的電子溫度變化快速的達到平滑。反之, 對於薄膜厚度大於穿透深度的情況,Elsayed-Ali 等人預期反射率的變 化會有較快的衰減速率。因為「穿透深度中的熱電子集中」與「其餘 未受激發部分的熱電子集中」最初有熱梯度存在,在經過極短時間之 後一些在穿透深度中的電子會傳遞能量至薄膜其他未受激發的部 分,而這時原本儲存在穿透深度中的能量有一部分隨之散失。

Brorson 等人[19]觀察不同厚度情況下,金薄膜的光學反射率衰 減情況。當極短時間的雷射脈衝加熱金薄膜的正表面時,會改變佔據 費米層(Fermi Level)附近的電子狀態。在 d 能帶與費米層之間能量的 變遷速率,便會受佔據費米層附近的電子影響。介電函數(dielectric function, $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$)中的虛數部分 ε_2 ,對於 d 能帶與費米層之間的能 量變遷速率非常敏感。此外,反射率又會隨著介電函數而變化。所以 當電子溫度因為極短雷射脈衝加熱金屬薄膜而產生變化的時候,可以 經由實驗量測光學反射率變化得知。雖然還有其他很多因素會影響隨 著電子溫度變化的光學反射率,但是在飛秒的時間規模之下這些因素 都顯得不是很重要。

Hohlfeld 等人[12]認為反射率變化與電子溫度變化之間並非成線性關係。他們認為必須將一些足以影響介電函數、與電子溫度有關係的因素考慮進模型中。受電子溫度變化影響的介電函數,是受費米分佈的擴大(broadening of the Fermi distribution)所支配。費米分佈的擴大,會影響產生或結束於費米層附近的能帶間能量的變遷。此外, 體積熱膨脹(volume thermal expansion)會減少電漿頻率並造成電子能帶的變動或扭曲。在薄膜中,熱膨脹(thermal expansion)會產生剪應 力(shear strain),雖不至於影響自由電子氣(free- electron gas),但卻 會切開衰退的能帶、扭曲能帶結構;電子的弛豫時間會隨著聲子總數

7

的增加而減少,隨之而來的電子-聲子間的交互作用也會變動或扭曲 能帶。

Hohlfeld 等人並重新建立較為複雜的模型,能夠描述隨著電子溫 度變化的介電函數 $\varepsilon(\omega)$ 。Hohlfeld 等人認為有如下因素影響著 $\varepsilon(\omega)$, 而這一些影響因素則都與溫度有關:費密分布的擴大,會影響產生或 結束於費密層附近的能帶間能量的變遷。此外,體積熱膨脹(volume thermal expansion)會減少電漿頻率並造成電子能帶的變動或扭曲;在 薄膜中,熱膨脹(thermal expansion)會產生剪應力(shear strain),雖不 至於影響自由電子氣(free-electron gas)但卻會切開衰退的能帶、扭曲 能帶結構;電子的弛豫時間會隨著聲子總數增加而減少,隨之而來的 電子-聲子間的交互作用也會變動或扭曲能帶。受電子溫度變化影響 的介電函數,是受到費密分布的擴大(broadening of the Fermi distribution)所支配。

根據 Hohlfeld 等人[12]的推導,光學反射率與電子溫度之間的關係可以重新描述成如下形式:

$$R(T_e, \omega) = \frac{2A(T_e, \omega) + A^2(T_e, \omega) + \varepsilon_2^2(T_e, \omega) - (2A(T_e, \omega))^{\frac{3}{2}}}{2A(T_e, \omega) + A^2(T_e, \omega) + \varepsilon_2^2(T_e, \omega) + (2A(T_e, \omega))^{\frac{3}{2}}}$$

$$\not \pm \psi \qquad A(T_e, \omega) = \varepsilon_1(T_e, \omega) + \sqrt{\varepsilon_1^2(T_e, \omega) + \varepsilon_2^2(T_e, \omega)}$$

1.3 本文目的

在此篇論文中,我們針對極短暫雷射脈衝加熱金屬薄膜的過程做 討論。Huang[20]用更明確的方程式代替 Sheu[21]的程式,針對快速 雷射加熱金屬薄膜的過程,建立可以同時估算熱傳導係數與電子-聲 子連結因子的逆運算技巧,並將 Brorson 等人[19]針對不同厚度的金 薄膜所做的實驗數據帶入逆運算程式,其在厚度 2000[°]A 的情況下所逆 運算得到的熱傳導率卻與 Sheu 雷同,出現大於塊狀材料熱傳導係數 (Bulk thermal conductivity)的不合理結果。

由於 Sheu[21]和 Huang[20]皆把實驗值中的正規化反射率變化 直接當做正規化的電子溫度變化帶入程式作逆運算,故本文目的係將 Huang 修正過後的逆運算程式當中,重新代換實驗值的反射率與電子 溫度的關係,以更合理的電子溫度代替,且探討薄膜的光學特性,然 後重新針對快速雷射加熱金屬薄膜的過程做逆運算,並進一步的分析 逆運算的結果。



第二章 物理與數學模式

2.1 基本假設與物理模式

在固體中的熱傳遞過程,對金屬而言是由電子-聲子交互作用所 支配,而對介電材料而言則是由聲子的散射所支配。無論是電子或是 聲子都具有波的特性,所以電子-聲子之間的交互作用傳遞可視為波 傳遞中的一個問題。

但是在時間規模大於碰撞時間或是長度規模大於熱載子(Heat Carriers)之波長的情況下,干涉、繞射等現象就顯得不是那麼的重要。因此,電子或是聲子的傳遞在這些情況下可視為粒子傳遞。而粒子的傳遞可用波茲曼傳遞方程式(Boltzmann transport equation, BTE) 加以處理:

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \cdot \nabla f + a \frac{\partial f}{\partial v} = \left(\frac{\partial f}{\partial t}\right)_{scatt}$$
(2.1)

其中a為粒子的加速度,v為粒子的速度,f為由時間t、粒子位 置與速度所決定的分布函數。在方程式(2.1)式右邊,代表因為散射 所造成的f改變率。接下來我們從 BTE 開始討論受到快速雷射脈衝 加熱金屬薄膜的熱傳數學模式。

2.2 受脈衝雷射加熱之金屬薄膜的熱傳遞

Qiu 和 Tien[8]考慮受極短脈衝雷射加熱之金屬的熱傳機制。在 近似平衡的基礎上,由量子力學求解 BTE 的電子散射項,因此建立 一個受脈衝雷射的金屬材質中電子與聲子之間的能量傳遞的雙曲線 兩階段模型(Hyperbolic two step model, HTS):

$$C_e(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial t} = -\nabla q - G(T_e - T_l) + S(x,t)$$
(2.2)

$$C_{l}(T_{l})\frac{\partial T_{l}}{\partial t} = G(T_{e} - T_{l})$$
(2.3)

$$\tau_e \frac{\partial q}{\partial t} + K \nabla T_e + q = 0 \tag{2.4}$$

上式中,T為溫度,C為體積熱容量,而下標符號e與l則分別代 表電子與晶格,q為熱通量,K為電子氣的熱傳導率,T。為電子之間 碰撞與下次碰撞之間的平均時間,S(x,t)則為依空間與時間而變的熱 源項以代表雷射脈衝的影響。方程式(2.2)描述光子的能量由電子來 吸收;方程式(2.3)代表加熱金屬晶格的情形。對金屬來說,因為熱 通量主要都是由自由電子所搬運,所以在晶格中的能量傳遞被忽略。

在電子與聲子之間的熱傳速率是由電子-聲子連結因子所支配, 並且可經由自由電子理論加以計算。Qiu 和 Tien[8]提到,如果晶格 溫度比起德拜(Debye)溫度T_D(以金來說其德拜溫度為 165K,銅的德 拜溫度為 343K)不會顯得過小的話,則 G 可以大致上以下列方程式 描述:

$$G = \frac{\pi^2 m_e N v^2}{6\tau_e T_e}$$
(2.5)

上式中m_e代表電子質量,N代表每單位體積的電子密度(濃度), v則為聲速。在Wiedemann-Franz`s law的使用限制之內,G由Qiu和 Tien進一步推導成如下:

$$G = \frac{\pi^4 (Nvk_B)^2}{18K_{eq}}$$
(2.6)

上式中 k_B 為波茲曼常數(Boltzmann constant)。威德曼法藍斯定律 (Wiedemann-Franz`s law)是經由實驗所觀察出的定律。對於大部分的 金屬而言,溫度範圍在幾百 K 時,電子傳導率 σ 與熱傳導率 K 之間 會有下列的關係:

 $C_{\rho}(T_{\rho}) = \gamma \cdot T_{\rho}$

$$\frac{K}{\sigma} = Lorenz \times T \tag{2.7}$$

其中 Lorenz 在這裡為 Lorenz number。

如果電子的弛豫時間比起雷射脈衝時間要小的許多的話,則雙曲 線兩階段模型(Hyperbolic two-step model, HTS)可以過渡成拋物線兩 階段模型(Parabolic two-step model, PTS):

$$C_e(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (K\nabla T_e) - G(T_e - T_l) + S(x,t)$$
(2.8)

$$C_{l}(T_{l})\frac{\partial T_{l}}{\partial t} = G(T_{e} - T_{l})$$
(2.9)

在本文中,我們考慮一維的幾何形狀。而我們把晶格的體積熱容量C,假設成常數。因為電子溫度在預期情況下明顯小於費米溫度,所以我們可以假設電子氣的熱容量C_e(T_e)與電子氣的溫度成一線性比例,表示如下:

(2.10)

我們對於雷射強度的空間分布假設是均勻一致的,而雷射脈衝的 時間分布則假設呈高斯分佈的型態。藉著進一步忽略隨著溫度而變化 的光學特性,我們可以得到在(2.2)和(2.8)式中的雷射加熱源項,並 考慮多重反射的效應之後所得結果如下:

$$S(x,t) = (1-R_1)\dot{q}\alpha \cdot e^{-\psi(\frac{t}{t_p})^2} \left(e^{-\alpha x} \frac{1}{1-R_1R_2e^{-2\alpha L}} + R_2e^{\alpha x} \frac{e^{-2\alpha L}}{1-R_1R_2e^{-2\alpha L}}\right) \quad (2.11)$$

在上式中, R_1 、 R_2 為介面 1、2的反射率,q為最大雷射熱通量, α 為吸收係數,x 為距離薄膜表面的距離,L為金屬薄膜的厚度, ψ 為 一常數,而 t_p 為雷射脈衝的半峰全幅值(full width at half maximum(FWHM))加熱時間。我們定義雷射脈衝加熱源的頂點到達 薄膜表面的那一剎那在t=0的時候。 在式(2.11)中,金屬薄膜表面的多次反射被忽略不計。為了滿足 多次反射效應可忽略不計之條件讓它合理化,我們定義在厚度大於 500Å的時候,我們將其光學厚度α×L估計大於3。

在雷射脈衝加熱的極短暫過程當中,我們假設在金屬薄膜正反表 面的熱散失為小到可以被忽略的值,因此在快速雷射脈衝加熱金屬表 面的邊界條件如下:

$$\frac{\partial T_e(x,t)}{\partial x}\Big|_{x=0} = \frac{\partial T_e(x,t)}{\partial x}\Big|_{x=L} = 0$$
(2.12)

$$\frac{\partial T_l(x,t)}{\partial x}\Big|_{x=0} = \frac{\partial T_l(x,t)}{\partial x}\Big|_{x=L} = 0$$
(2.13)

其中,L代表薄膜厚度。而對於電子與金屬晶格的起始溫度則都假設 與室溫T₀一樣都是 300K:

 $T_e(x,-3t_p) = T_l(x,-3t_p) = 300K$ (2.14) 上式中,我們將時間 $-3t_p$ 定義為初始時間。因為雷射脈衝在時間型態 成高斯分布,雷射加熱源項的頂點到達金屬薄膜時定為t=0,故相較 起來,熱源項的值足足可以增加到10⁴的級數之多,所以在時間 $-3t_p$ 之 前的影響可以小到足以忽略不計。

由於溫度受熱物理性質影響的緣故,不論是 HTS 或 PTS 的初始 條件和邊界條件都是非線性的。也因此,我們將以有限差分法來求解 非線性方程式。

2.3 電子熱傳導率與電子溫度

Sheu[21]針對快速脈衝雷射加熱金屬薄膜的過程,建立可以同時 量測熱傳導係數與電子-聲子連結因子的逆運算程式。對於電子熱傳 導率與電子溫度的關係,則採用如下 Qiu 和 Tien[10]所推導出的比例 關係。 Qiu和Tien[10]證明在雷射脈衝加熱金屬薄膜表面的時候,熱傳 導係數與過程參數有關。他們並推導出在極短時間規模條件下的熱傳 導率,表示如下:

$$K = \left(\frac{T_e}{T_l}\right) K_{eq}(T_l)$$
(2.15)

在上式中, K_{eq}代表電子與聲子在熱平衡時,以很慢的加熱速率 量測的熱傳導率。

Smith 等人[11]提出在電子溫度遠小於費米溫度的情形下, 吾人 可以將熱傳導率視為常數, 或隨著「電子溫度與晶格溫度的比值」而 變化。然而, 當電子溫度因為雷射脈衝的加熱而隨之上升的同時, 熱 傳導率也會因為「電子與電子之間的散射」而減小。

於是在快速雷射脈衝加熱金屬薄膜的過程之中,將電子熱傳導率 視為和電子溫度與晶格溫度的比值成比例的關係令人存疑。故 Huang 在其逆運算中的步驟,重新建立電子熱傳導率與電子溫度之間的關係 式,採用之式子推導如下。

Ashcroft 等人[12]提到利用基本動力學推導出的熱傳導率為:

$$K = \frac{1}{3}C_{\nu}v_{F}\Lambda \qquad (2.16)$$

上式中, C_ν為每單位體積的熱容量, v_F為擔任熱傳導任務電子的 平均速度,也就是費米能階的電子速度, Λ為平均自由路徑。而平均 自由路徑可以用下列式子表示之:

$$\Lambda = \tau \cdot v_F \tag{2.17}$$

其中τ為平均碰撞時間,也就是弛豫時間。 式(2.17)可以改寫成:

$$K = \frac{1}{3}C_{v}v_{F}^{2}\tau$$
 (2.18)

此外 $C_v = \frac{3}{2}Nk_B$, $\frac{1}{2}m_e v_F^2 = \frac{3}{2}k_B T$

上式中N為電子濃度, k_B 為波斯曼常數(Boltzmann constant), m_e 為自由電子的質量。我們將繼續推導下去可以得到:

$$K = \frac{1}{3}C_{\nu}v_{F}^{2}\tau$$

$$= \frac{1}{3}(\frac{3}{2}Nk_{B})v_{F}^{2}\tau$$

$$= \frac{1}{3}(\frac{3}{2}Nk_{B})(\frac{3k_{B}T}{m_{e}})\tau$$

$$= \frac{3Nk_{B}^{2}}{2m_{e}}\cdot T \cdot \tau$$
(2.19)

另一方面,Hohlfeld 等人[12]根據 Ashcroft[13]所提出的撒門費 德(Sommerfeld)模型,認為電子熱傳導率如下關係:

$$K \propto \frac{T_e}{v}$$
 (2.20)

其中碰撞頻率v為電子與電子之間的碰撞頻率以及電子與聲子之間的碰撞頻率兩者的總合,亦即:896

$$v = v_{ee}(T_e) + v_{ep}(T_l)$$
 (2.21)

上式中的 v_{ee} 和 v_{ep} 與溫度之間的關係為 $v_{ee}(T_e) \propto T_e^2$, $v_{ep}(T_l) \propto T_l$ 。

Vadim 等人指出電子弛豫時間 $\tau_e = (\tau_{ee}^{-1} + \tau_{ep}^{-1})^{-1} = (AT_e^2 + BT_l)^{-1}$ 。而碰 撞頻率與弛豫時間呈倒數關係,亦即 $v_{ee}(T_e) = AT_e^2$, $v_{ep}(T_l) = BT_l$ (對金來 說, $A = 1.2 \times 10^7 K^{-2} s^{-1}$, $B = 1.23 \times 10^{11} K^{-1} s^{-1}$)。將式中常數的數值分別帶 入 $(k_B = 1.38 \times 10^{-23} J/K$, $m_e = 9.11 \times 10^{-31} kg$, $N = 5.9 \times 10^{28} m^{-3}$),再將弛豫 時間關係式帶進去。則我們可以得到電子熱傳導率 K 與電子溫度、 碰撞時間有如下列關係式:

$$K = (1.85005 \times 10^{13}) \cdot T_e \cdot (\frac{1}{1.2 \times 10^7 \cdot T_e^2 + 1.23 \times 10^{11} \cdot T_l})$$

$$K = cond \cdot \frac{T_e}{(\frac{1.2}{1.23 \times 10^4})T_e^2 + T_l}$$
(2.22)

分子中除了電子溫度以外的常數部分 cond,我們歸因於受材質厚度的影響的熱傳導率。

2.4 光學反射率與電子溫度的關係

在 Sheu[21]和 Huang[20]的逆運算程式當中,皆把實驗值的反 射率變化結果當作其電子溫度變化的結果,這一個假設其線性關係並 非完全正確,另,我們試著考慮介面的多次反射與入射角度等影響因 素,重新導出更明確的反射率與電子溫度的關係式,並據以重新對熱 傳導係數與電子-聲子連結因子做逆運算。

在文獻回顧中我們提到,由於直接測量電子溫度的變化有其困難 性,再加上一般認為電子溫度變化直接正比於光學反射率的變化。於 是對於雷射加熱金屬薄膜的實驗,一般是以量测光學反射率的變化值 來取代電子溫度的變化值,一般是以如下形式表示:

$$\frac{\Delta R}{\left(\Delta R\right)_{\max}} \approx \frac{\Delta T_e}{\left(\Delta T_e\right)_{\max}} \tag{2.23}$$

Juhasz 等人在 1992 年因為發現光學反射率、電子溫度隨時間變 化的程度並非成一定的比例關係, 而提出對於光學反射率變化直接正 比於電子溫度變化關係的質疑。Hohlfeld 等人[12]重新建立較為複雜 的模型, 能夠描述隨著電子溫度變化的介電函數 $\varepsilon(\omega)$, 並推導出下一 形式的式子來描述光學反射率與電子溫度之間的關係:

$$R(T_{e},\omega) = \frac{2A(T_{e},\omega) + A^{2}(T_{e},\omega) + \varepsilon_{2}^{2}(T_{e},\omega) - (2A(T_{e},\omega))^{\frac{3}{2}}}{2A(T_{e},\omega) + A^{2}(T_{e},\omega) + \varepsilon_{2}^{2}(T_{e},\omega) + (2A(T_{e},\omega))^{\frac{3}{2}}}$$
(2.24)

其中
$$A(T_e, \omega) = \varepsilon_1(T_e, \omega) + \sqrt{\varepsilon_1^2(T_e, \omega) + \varepsilon_2^2(T_e, \omega)}$$

如圖一所示,實驗時量測反射率的探針光束(probe beam)並非垂 直入射,而是存在著一個入射的角度,但是 Hohlfeld 等人[12]並沒有 考慮到量測反射率的探針光束(probe beam)入射角度,也沒有考慮金 屬薄膜表面與外界的介面之間多次反射的效應,在下面章節我們就進 一步的推導來更精確的反射率與電子溫度之間的關係式子。

我們從電磁學的角度去考慮,首先,我們考慮一個入射的電磁 波,其波長為 λ ,入射角度為 ϕ_0 , ϕ_0 為入射電磁波與垂直其薄膜平板 之間的夾角,薄膜厚度為L,薄膜的光學性質可藉由其折射係數n與 吸收係數 β_i 來表示,兩者合而表示為 $\hat{n}(\hat{n}=n-ik)$,也就是其薄膜的 複數折射係數,而 $k = \beta_i \lambda / 4\pi$ 。我們也一併假設薄膜兩側的表面皆為 理想的光滑表面,兩側外界介質的折射係數為 n_0 、 n_2 ,其圖示如圖二 (a)所示,我們也把在兩個介面之間的多重反射也考慮進去(空氣-薄 膜,薄膜-空氣)。

根據 Heavens[22]中的符號標示, r及t為法斯諾(Fresnel)係數, 分別表示為入射電磁波從一介質傳遞到另一介質的反射與入射以及 透射與入射的電場振幅之比值,而法斯諾反射係數與穿透係數為垂直 極化與平行極化組合而成,接下來我們著重在反射率方面來探討。

根據 Heavens[22]之推導,當加入考慮薄膜厚度多重反射效應, 我們得到平行極化與垂直極化的反射係數:

$$\Gamma_{\mu} = \frac{r_{1p} + r_{2p}e^{-i2\delta_1}}{1 + r_{1p}r_{2p}e^{-i2\delta_1}}$$
(2.25)

$$\Gamma_{\perp} = \frac{r_{1s} + r_{2s}e^{-i2\delta_1}}{1 + r_{1s}r_{2s}e^{-i2\delta_1}}$$
(2.26)

其中 δ_i 為電磁波在薄膜中改變的相變化,

$$\delta_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \hat{n}_1 L \cos \phi_1 \tag{2.27}$$

 $exp(-i\delta_1)$ 表示在薄膜中由於吸收率導致的相變化和能量衰減,其 中 ϕ_1 為電磁波傳遞從介質 n_0 到折射係數為 \hat{n}_1 之介質的夾角,我們可由 史涅定律(Snell's law) $\hat{n}_1 \sin \phi_1 = n_0 \sin \phi_0$ 得知其值; L為薄膜厚度, r_{1s} 、 r_{1p} 分別為介面 1 的垂直、平行極化反射係數, r_{2s} 、 r_{2p} 分別為介面 2 的垂直、平行極化反射係數,分別表示如下:

$$r_{1s} = \frac{n_0 \cos \phi_0 - \hat{n}_1 \cos \phi_1}{n_0 \cos \phi_0 + \hat{n}_1 \cos \phi_1}$$
(2.28)

$$r_{1p} = \frac{n_0 \cos \phi_1 - \hat{n}_1 \cos \phi_0}{n_0 \cos \phi_1 + \hat{n}_1 \cos \phi_0}$$
(2.29)

$$r_{2s} = \frac{\hat{n}_1 \cos \phi_1 - n_2 \cos \phi_2}{\hat{n}_1 \cos \phi_1 + n_2 \cos \phi_2}$$
(2.30)

$$r_{2p} = \frac{\hat{n}_1 \cos \phi_2 - n_2 \cos \phi_1}{\hat{n}_1 \cos \phi_2 + n_2 \cos \phi_1}$$
(2.31)

我們考慮薄膜兩側的介質皆為空氣,即n₀=n₂=1,進而帶入式 (2.25)到式(2.31),我們可以得到垂直與平行極化的反射率表示為:

$$R_{\perp} = \left| \Gamma_{\perp} \right|^2 \tag{2.32}$$

$$\boldsymbol{R}_{\prime\prime\prime} = |\boldsymbol{\Gamma}_{\prime\prime}|^2 \tag{2.33}$$

若沒有考慮特定的入射電磁波極化性質,則反射率為平行極化與 垂直極化的效應總和平均值,即:

$$R = \frac{1}{2}(R_{//} + R_{\perp}) \tag{2.34}$$

由於實驗時金屬薄膜會鍍在一基底上,我們也考慮基底對光學反 射率與電子溫度之關係式的影響。我們不考慮基底為吸收性的材質, 單單只考慮其折射率,我們根據 Heavens[22]中推導出的式子加以簡 化,式子如下,並參考圖二(b):

$$\Gamma_{\perp} = \frac{r_{1s} + r_{2s}e^{-i2\delta_1} + r_{3s}e^{-i2\delta_1} + r_{1s}r_{2s}r_{3s}}{1 + r_{1s}r_{2s}e^{-i2\delta_1} + r_{1s}r_{3s}e^{-i2\delta_1} + r_{2s}r_{3s}}$$
(2.35)

$$\Gamma_{\prime\prime\prime} = \frac{r_{1p} + r_{2p}e^{-i2\delta_1} + r_{3p}e^{-i2\delta_1} + r_{1p}r_{2p}r_{3p}}{1 + r_{1p}r_{2p}e^{-i2\delta_1} + r_{1p}r_{3p}e^{-i2\delta_1} + r_{2p}r_{3p}}$$
(2.36)

$$\Gamma_{\perp} = \frac{r_{2s} + r_{3s} + r_{1s}e^{-i2\delta_1} + r_{1s}r_{2s}r_{3s}e^{-i2\delta_1}}{1 + r_{2s}r_{3s} + r_{1s}r_{3s}e^{-i2\delta_1} + r_{1s}r_{2s}e^{-i2\delta_1}}$$
(2.37)

$$\Gamma_{\prime\prime\prime} = \frac{r_{2p} + r_{3p} + r_{1p}e^{-i2\delta_1} + r_{1p}r_{2p}r_{3p}e^{-i2\delta_1}}{1 + r_{2p}r_{3p} + r_{1p}r_{3p}e^{-i2\delta_2} + r_{1p}r_{2p}e^{-i2\delta_1}}$$
(2.38)

上式中,式(2.35)、(2.36)為入射電磁波從一側外界介質其折射率n₀入射所得,而式(2.37)、(2.38)為入射電磁波從另側外界介質其 折射率n₃入射所得,基底介質折射率為n₂,在本文中我們考慮基底為 藍寶石(折射係數n₂為1.77)。

接著,我們試著經由介電函數來了解反射率與電子溫度之間的關係,並合併之間關係得到我們所需的關係式。

複數介電函數表示如下: $\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) + i\varepsilon_2(\omega)$ (2.39)

 $<math>
 \epsilon_1(\omega)
 與 \epsilon_2(\omega)
 分別為實部的介電函數與虛部的介電函數,材料的
 複數折射率即是介電函數的平方根 <math>\sqrt{\epsilon} = \hat{n} = n - ik$ 。當我們知道了複數
 折射率的實數部分與虛數部分之後,我們就可以很簡單的去得到薄膜
 的反射率為電子溫度的函數了。

首先,我們遇到的困難就是去找出介電函數 ε 與電子溫度 T_e 與晶 格溫度 T_i 的關係式。Andrew 和 Pamela 等人[23]提到介電函數主要是 與吸收率有關,在金屬當中,牽扯到能帶內部與能帶之間的過渡。光 子的能量必須接近或者大於電子能帶間距的能量時,能帶間過渡的吸 收能量才會發生;相對的,能帶內部的吸收總是在持續發生,並沒有 光子能量的限制。所以對每個材料來說,電子的能帶架構與光子能量 的大小是否大於或接近能帶間的過渡能量關係到吸收機制的發生。

當入射的光子能量接近能帶間過渡能量的時候,反射率對能帶間 過渡非常敏感。Rosei和 Lynch 等人[16]曾約略的描述由於能帶間的 過渡而造成複數介電函數的模型,他們也發現當電子溫度改變量在 100K之內把反射率與電子溫度當線性比例關係是非常合理的。

Andrew和 Pamela 等人[23]提到入射光子的能量若低於能帶間第 一過渡變遷能量時,則暫態熱反射的改變主要是由於能帶內部過渡變 遷所影響(對金來說,能帶間第一過渡變遷能量為 2.45eV)。此時就 可以利用朱德(Drude)模型來表示介電函數的關係式。

朱德(Drude)模型被用來說明由於在能帶內部過渡的傳導帶中的 自由電子對於金屬的介電函數的貢獻,其形式如下:

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\omega_\tau)}$$
其中 ω 為 八射輻射的頻率, ω_p 為電漿頻率, 可表示成
$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m_e \varepsilon_0}}$$
(2.40)
(2.41)

N 為電子濃度, e為電子庫倫電量, m_e 為電子質量, ε_0 為真空下 所得到的電容率, 其中電子濃度 N 表示如下:

$$N = \frac{1}{3\pi^2} \left(\frac{2m_e}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \left(E_F\right)^{\frac{3}{2}}$$
(2.42)

 \hbar 為正規化的普蘭克常數, E_F 為費米能量, E_F 和電子溫度的關係 可表示如下:

$$E_F = E_{F0} \left[1 - \frac{\pi^2}{12} \left(\frac{k_B T_e}{E_{F0}} \right)^2 \right]$$
(2.43)

其中E_{F0}為在零K下的費米能量,k_B為波茲曼常數。

這個模型只適用於在入射輻射的光子能量低於其能帶間的第一 過渡變遷能量時;而對於更高的入射輻射光子能量時,能帶與能帶之

間的吸收則為其介電函數改變的主導因素,所以對於較高的入射電磁 波能量時,朱德模型並不適用。

當溫度高於德拜溫度的時候,電子與聲子碰撞頻率與晶格溫度呈 比例;電子與電子碰撞頻率和室溫關係很小,通常我們表示和電子溫 度平方成比例:

$$\omega_{\tau} \approx \frac{1}{\tau} = AT_e^2 + BT_l \tag{2.44}$$

也就是我們在文獻回顧中所提到的電子之間的碰撞頻率時間的 倒數。

而朱德模型進一步推導可分成實部與虛部兩部份,即 $\varepsilon = \varepsilon_1 - i\varepsilon_2$, $\varepsilon_1 \pi \varepsilon_2$ 表示如下:



其中n、k和介電係數 ε_1 、 ε_2 的關係如下:

 $n = \sqrt{\frac{1}{2}(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} + \varepsilon_1)}$ (2.48)

$$k = \sqrt{\frac{1}{2}(\sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} - \varepsilon_1)}$$
(2.49)

最後,我們將以上的介電係數與電子溫度的關係式,式(2.25) 至式(2.38),與式(2.41)至式(2.49)結合,我們可以重新得到反射率 與入射頻率、薄膜厚度、電磁波入射角度以及電子溫度之間的關係函 數,即R=R(Ø, 0, T_e, L)。若我們將式子考慮為垂直入射且厚度無窮大, 則式子將演化成 Hohlfeld 等人[12]所推導的式子。在本研究中我們將 在逆運算當中以此關係式來代替原先假設反射率變化與電子溫度變 化呈線性比例的關係式來估算電子溫度。



第三章 數值方法分析

3.1 逆運算分析

在逆運算分析中,我們根據已知反射率變化的瞬間量測值,依之 前第二章所推導出來與電子溫度的關係式來推算出其真實的電子溫 度,然後採用最小平方誤差法來同時估算不同反射率情況下的電子-聲子連結因子 G 以及熱傳導率 Keq。

在本篇論文中,我們利用推導出來的反射率與電子溫度的關係 式,將實驗值正規化的反射率變化轉換成正確的正規化電子溫度變 化:



式(3.1)的右半邊,亦即電子氣中暫態過程的正規化溫度變化, 可經由先前所描述的直接問題合併推導出的反射率與電子溫度關係 式來加以計算;式(3.1)的左手邊,則經由加熱-探針光束(pump-probe) 系統的實驗量測出來。

我們定義一平方誤差函數 E。藉由減小「反射率變化的實驗值」 與「電子溫度變化的理論值」之間的平方誤差 E,而加以求解此逆運 算問題。

$$E(k_{eq},G) = [Y - \theta(k_{eq},G)]^{T}[Y - \theta(k_{eq},G)]$$

$$= \vec{X} + :$$

$$[Y - \theta(k_{eq},G)]^{T} = [Y(x,t_{1}) - \theta(x,t_{1};k_{eq},G),...,Y(x,t_{n}) - \theta(x,t_{n};k_{eq},G)]$$

$$Y(x,t_{i}) = \frac{R(x,t_{i}) - R(x,-3t_{p})}{R(x,t_{x,\max}) - R(x,-3t_{p})}$$

$$(3.4)$$
$$\theta(x,t_i;K_{eq},G) = \frac{T_e(x,t_i;K_{eq},G) - T_e(x,-3t_p)}{T_e(x,t_{x,\max};K_{eq},G) - T_e(x,-3t_p)}$$
(3.5)

(3.3)式中, Y(x,t_i)代表所量測之反射率的正規化之變化,之前 在 Huang[20]當中,由於其把電子溫度變化與反射率變化當作線性關 係,故把 Brorson 等人[19]實驗中得到的反射率變化值帶入並求解 之,而在本文當中,我們重新代換線性關係,用更明確的關係式來得 到明確的電子溫度變化代入,θ(x,t_i;K_{eq},G)則是電子溫度的正規化值變 化,其為利用直接求解 PTS 所得到的電子溫度變化。t_{x,max}則代表在位 置x上的電子溫度達到最高溫所需的時間。

我們欲求出最小的 E 時之 Keq 和 G 值,將 E 對參數 Keq、G 微分,我們得到下式條件:

$$\nabla_{\beta} E(K_{eq}, G) = 2[-\nabla_{\beta} \theta^{T}(K_{eq}, G)][Y - \theta(K_{eq}, G)] = 0 \qquad (3.6)$$

$$\nexists \ \psi :$$

$$\nabla_{\beta} = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial K_{eq}} \\ \frac{\partial}{\partial G} \end{bmatrix} \qquad (3.7)$$

$$\beta = \begin{bmatrix} K_{eq} \\ G \end{bmatrix} \qquad (3.8)$$

當 $\nabla_{\beta}E = 0$ 時, E有最小值。

對於金屬而言,K值大約是幾百的數量級,而G大約是10¹⁶次方的數量級。因為兩者數量級相差非常的大,所以在造成逆運算求解的因難時,我們將用 Levenberg-Marquardt 法來修正高斯法。

3.2 逆運算程式求解流程

在進行逆運算之前,我們先給定一個假設 K 和 G 值,經由直接

解 PTS 模型估測薄膜正表面與表面電子溫度的最高溫值,再利用我 們先由前章節得到的電子溫度與反射率關係式,得到一個新的明確實 驗所得到的電子溫度分佈情形,代入式(3.4)並進行逆運算,得到一 個新的 K 與 G 值,再度進行先前的步驟,直到收斂為止,流程圖如 下。



第四章 結果與討論

在本論文中,我們針對 Brorson 等人[19]實驗所示的數據作為主要討論案例,入射電磁波波長λ為630nm,用來測量反射率的探針光 束入射角度φ為45度,並利用 Qiu 和 Tien[24]所用的一些金的物理 常數如表二所示帶入逆運算當中進行分析。

針對 PTS model 和 HTS model 之應用性分析,我們進一步帶入 Brorson 等人[19]的數據以逆運算 Keq 和 G,我們根據 Qiu 和 Tien[ref 24]所提出:當雷射脈衝加熱的時間大於電子弛豫時間的情況之下, 則雙曲線型二階段數學模式(HTS)將會簡化成拋物線型二階段數學 模式(PTS)。我們參考 Brorson 等人實驗設備的雷射加熱時間為 96 飛 秒(9.6x10⁻¹⁴sec.);並根據 Ashcroft[13],估算電子的弛豫時間如下:

$$\tau = \left(\frac{0.22}{\rho_{\mu}}\right) * \left(\frac{r_s}{a_0}\right)^3 * 10^{-14} \qquad (\text{sec})_{\text{SG}}$$

上式中 r_s 為自由電子的半徑, a_0 為波耳(Bohr)半徑, ρ_μ 為電阻率。我們得到的金的電子弛豫時間與溫度有如下的關係:

	77K	273K	373K
金的電子弛豫時間(sec)	12E-14	3E-14	2.1E-14

由此可知,隨著雷射脈衝加熱所造成的金薄膜電子溫度上升的影響,會讓金薄膜的電子弛豫時間更小,與之前得知的電子弛豫時間 τ_e = (AT_e² + BT_l)⁻¹所得之趨勢與結果大致相同。換言之,由於 Brorson 等人[19]的雷射脈衝加熱時間大於我們所查出的金薄膜的電子弛豫 時間,所以我們僅需用 PTS 模型,應適用於 Brorson 等人的實驗數 據來進行逆運算即可。 並由第二章所建立的物理模式與數學模式,本文主要利用推導出 的新的光學反射率與電子溫度的關係式,重新代入以 PTS 模型為主 的逆運算程式,來進一步分析其熱傳導係數與連結因子。

4.1 光學反射率的變化與電子溫度及其他影響因子之關係分析

在進行逆運算分析之前,我們先對光學反射率與電子溫度關係及 其他的影響因子來做討論,在附圖中,我們定義的光學反射率變化表 示如下:

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(T_e) - R_{300}}{R_{300}} \tag{4.1}$$

上式當中,R300 為室溫下的反射率,R(Te)為在當時電子溫度下 所代表的反射率。

首先,我們先以文獻 19 為例子,我們探討關於基底為藍寶石的 時候與考慮薄膜兩側皆為空氣,兩者對於光學反射率與電子溫度的關 係是否有影響,由於藍寶石吸收性我們不計,我們可以知道若是量測 光學反射率的探針光束為垂直入射,則是否有基底藍寶石(630nm 下 折射率為 1.77)並不造成影響,但當考慮有一入射角的時候(我們以 45 度為例),我們可以估算得到,若從介質n₃入射所得到的反射率和 只考慮一薄膜的結果為相同,以1000⁶為例,反射率皆為0.92517; 而從介質n₀入射所得到的反射率卻有所不同,反射率較大一些為 0.92549。但是我們從圖三得知,若觀察光學反射率與電子溫度關係 的時候,結果是完全相同的,也就是說若我們想去藉由觀察光學反射 率變化去得知暫態電子溫度的變化時,若基底沒有吸收性,重要性幾 乎不用在乎,不用去考慮其存在與否,且即使我們改變其他不同大小 的折射率(如在 630nm 下紅寶石折射率為 1.71)之後我們從圖中依舊

得到相同不變的反射率與電子溫度關係圖,故接下來我們不去考慮基 底藍寶石的效應影響。

接著,因為由於直接測量電子溫度的變化有其困難性,再加上一 般認為電子溫度變化直接正比於光學反射率的變化。於是對於快速雷 射脈衝加熱金屬薄膜的實驗,一般是以量測光學反射率的變化值來取 代電子溫度的變化值,一般是以如下型式表示:

$$\frac{\Delta R}{\left(\Delta R\right)_{\max}} \approx \frac{\Delta T_e}{\left(\Delta T_e\right)_{\max}} \tag{4.2}$$

通常式(4.2)此關係式被認為電子溫度在室溫至 700K 之間成 立,我們利用新推導出的關係示所得到的結果來看此一關係是否適 用。由圖四與圖五中,與線性關係做比較,我們可知在金薄膜厚度不 管是在 500Å、1000Å,甚至在 2000Å之下,式(4.2)皆不適用,故不 可以把正規化的光學反射率變化值直接來當作正規化電子溫度的變 化值;倘若我們若是使用式(4.2)直接去推算電子溫度,則會低估其 電子溫度的正確值。

再者,我們發現在附圖當中,當考慮為電子溫度與反射率之間的 關係時,當電子溫度升高時,正規化的光學反射率變化皆為負值,這 現象是由於當入射電磁波若是低於其能帶間過渡能量(對金來說 2.45eV)時,因電子溫度的增加,費米能階的電子佔據狀態會有所變 動,位在費米層之下的電子數量會減少,導致入射的電磁波能量被吸 收的能量變多,也因此吸收率變大,進而的光學反射率會降低,故我 們得到的光學反射率變化結果為負值;相對的,位在費米層上的電子 數目會增多,入射的電磁波能量吸收減少,吸收率的減少進而影響到 光學反射率的增加,而在我們探討的情況當中,入射輻射的能量約為 1.969eV,低於金的能帶間過渡能量 2.45eV,故附圖當中所得到的光 學反射率變化為負值。 由我們推導出的光學反射率與電子溫度的關係式,當其不考慮電磁波入射的角度與薄膜厚度所造成的介面多重反射影響,可演化成 Hohlfeld 等人[12]所推導出的模型,所以我們將以 Hohlfeld 等人所推 導出的模型和之前重新推導出所得到的關係式作比較。

圖六為考慮不同入射光子波長下,對反射率與薄膜厚度關係之影 響關係圖,我們可以知道當入射光子波長若是越長時,也就是能量越 低時,反射率要達到不再受其薄膜厚度影響的厚度將會愈厚;圖七為 考慮不同 n 和 k 值對光學反射率與薄膜厚度關係比較圖,觀察可以得 知複數折射率的實數部分與虛數部分皆會影響到反射率的大小,實數 部分愈大或虛數部分愈小皆會使得反射率降低,而虛數部分卻除了影 響其反射率高低以外,對需不需要考慮受薄膜厚度的影響也造成影 響,即當虛數部分愈大的時候,也就是吸引係數愈大時,其需要考慮 到薄膜界面的多重反射效應的厚度愈薄,圖八為關於不同金屬之反射 率與薄膜厚度比較關係圖,依表三數值所得,而其反射率結果與圖七 預測的相同。

圖九為考慮不同厚度,電磁波垂直入射(如=0)時的光學反射率 變化與電子溫度之間的關係圖,我們可以觀察得知在金薄膜厚度大於 2000Å以上之後,其結果曲線與 Hohlfeld 等人[12]所推導出的模型完 全重合,我們並不用再考慮多重反射的效應,原因我們可以歸咎於能 量在多次反射後,被金薄膜吸收到能量小到可以忽略不計,也就是說 不必再考慮到薄膜厚度尺寸對反射率與電子溫度之間關係的影響,在 此圖當中我們也可以得知在金薄膜愈薄的時候光學反射率變化對電 子溫度的變化愈敏感,有較大的變化,所以我們也可以得知在相同的 光學反射率變化範圍中,薄膜愈薄的情況下所得到的電子溫度將會比 薄膜較厚的結果來的要小。

而圖十中,由於不管金薄膜厚度為多少,趨勢皆相同,所以在此 我們以金薄膜厚度為1000A為例,我們可由圖中得知,當入射的電磁 波入射角度越大的時候,光學反射率變化對電子溫度的改變會越敏 感,故式(4.2)中的線性比例關係也會因探針光束入射角度的不同而 有不同的差異大小,所以之前 Hohlfeld 等人 [12] 所推導出的光學反射 率與電子溫度關係式沒有考慮到入射角度也是有待商確的,所以我們 一併的考慮進去並應用於逆算分析是更加完善的。圖十一中,我們觀 察光學反射率和入射電磁波的入射角度、金薄膜厚度之間的關係,此 圖中,我們是取用金在273K下的數據(n=0.21; k=3.24)[25]所得到 的關係圖,我們觀察到,隨著電磁波入射的角度改變,其光學反射率 的變化在45度之前沒什麼變動,67度為最低值,隨後急速升高直到 90度,反射率為1,且在2000A左右與平常我們不考慮薄膜厚度但有 考慮入射角度的關係式完全重合相同,而此趨勢也與 Palik Edward 等 人[26]所呈現的結果相符合,但反射率的數值變動則不大。也可以更 進一步得知在考慮一薄膜時,其兩側外界介質皆為空氣時,反射與吸 收、穿透之間互相作用之下,反射率隨著厚度增大而增大,這一個趨 勢也和 Heavens 等人[22]所呈現的結果相符合, 且約在 1500 A 以上反 射率即不再受其薄膜厚度的影響,但若要連帶的將電子溫度的影響考 盧進去的話,則大約在金薄膜厚度 2000 A 以上才可以不再考慮薄膜厚 度的影響。

4.2 光學反射率與電子溫度變化關係對熱傳導係數與電子-聲子連結因子的影響

在圖十二、圖十三中,是在金薄膜厚度為 500°_{A} 、 $K = K_{eq} \cdot T_{e}/T_{l}$ 模

型情況下,我們重新利用新得到的光學反射率與電子溫度關係式替換 之前把正規化的光學反射率變化當做正規化的電子溫度變化後所得 到新的數據,重新帶入逆運算程式所得到 Keq 與 G 值,之後再帶回 直接解程式當中得到該情況下的正規化電子溫度變化情形,然後再與 之前 Huang [20]所得到的正規化的電子溫度變化結果圖與 Brorson 等人[19]的實驗數據所做的比較圖。同理,圖十四與圖十五、圖十六 與圖十七分別為金薄膜厚度為 $1000^{\circ}A$, $2000^{\circ}A$ 、 $K = K_{eq} \cdot T_e / T_i$ 模型情 況下,與 Huang 所得到的正規化的電子溫度變化結果圖與 Brorson 等 人實驗數據做的比較圖。相對的;圖十八與圖十九、圖廿與圖廿一、 圖廿二與圖廿三分別為金薄膜厚度為 $500^{\circ}A$, $1000^{\circ}A$, Q $2000^{\circ}A$ 的正 表面與背表面、電子熱傳導率模型為 $K = K_{eq} \cdot T_e / [(A/B)T_e^2 + T_i]$ 的情況之 下,再與Huang[20]所得到的正規化的電子溫度變化結果圖與 Brorson 等人[19]實驗數據所做的比較圖。反觀 Brorson 等人在金薄膜厚度為 $1000^{\circ}A$, $2000^{\circ}A$ 的正表面情況,在 $\theta = 0, 2$ 以下的實驗數據會有些為振 盪的情況,我們歸咎於其原因為實驗所造成的誤差。

在逆運算的過程當中,對於薄膜的背表面,在薄膜厚度 2000Å的 情況下,若將實驗數據全取所逆運算得到的熱傳導係數與只取背表面 上升部分的實驗數據來逆運算的熱傳導係數相比較,Keq 會大上接近 20 個單位之多。所以我們針對背表面情況皆只取上升部分的實驗數 據,也因此在帶回直接解之後,結果如圖所示會有與實驗數據不相吻 合的情況發生。

在表四與表五中,我們可以發現在薄膜厚度為2000^A的情況下, 不管是在 $K = K_{eq} \cdot T_e / T_l$ 模型下或是在 $K = K_{eq} \cdot T_e / [(A/B)T_e^2 + T_l]$ 的模型 下,利用新的反射率與電子溫度的關係式重新代換的結果比較之後來

說和原本利用線性關係所做的逆運算之值相差不大,而薄膜厚度在 1000 A 與 500 A 的情況之下,觀察得到薄膜越薄則與之前利用線性關 係所做的逆運算之值相差越來越大,觀察圖十二至圖廿三,其結果呈 現更明白;會有這樣的結果是因為當外界加熱的加熱源相同大小的情 況之下(穿透過薄膜的能量很小,影響到電子溫度變化的效益可以忽 略不計),我們從直接解當中可以推知在薄膜愈薄時正表面與背表面 得到的電子溫度相較之下會比薄膜厚的電子溫度較高,而由於金屬薄 膜有著很大的吸收率,故正表面也會較背表面的電子溫度較為偏高; 且我們可以從之前光學反射率與電子溫度關係圖中可知,在電子溫度 變化愈大時則與式(4.2)的線性關係會有愈大的差異,所以我們在逆 運算得到的結果在薄膜厚度愈厚下與利用式(4.2)的關係去得到的結 果比較相差愈小;也就是說當電子溫度改變量愈小,則光學反射率與 電子溫度的線性關係愈可以採信。我們也再一次的得知在快速雷射脈 衝加熱金屬薄膜當中,若電子溫度提高的量並不是太高的時候,電子 熱傳導率與電子溫度關係式所造成的影響並不重要。此外,逆運算的 結果與之前 Huang [20] 結果比較皆為熱傳導係數增大、連結因子減小 的情形發生,而熱傳導係數的增大代表著電子的熱能傳遞到薄膜背表 面速率較快,連結因子變小代表著電子與晶格溫度達到平衡的時間將 會拉長,所以若將光學反射率與電子溫度當作線性變化則將會低估電 子熱傳遞的速率,高估電子與晶格溫度的傳遞速率。

4.3 熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況

我們在表四與表五所得到的逆運算結果中的熱傳導係數相對於 薄膜厚度與在室溫 300K 下,電子的自由平均路徑來做一個比較,我 們估算其值如下:

$$\Lambda = v_F \cdot \tau = 1.39 \cdot \frac{1}{1.2 \times 10^7 \cdot 300^2 + 1.23 \times 10^{11} \cdot 300} = 365.982199 \overset{0}{A}$$

比較結果如表五與表六所示,並作圖於圖廿三與圖廿四,分別表 示兩種不同模型的比較結果。我們可以更明白的看到修正反射率與電 子溫度的關係式前後結果互相比較後得知,薄膜厚度為 500Å時相差 最大、1000Å次之,2000Å最小,原因為前段提到,當加入的熱源相 同時,薄膜愈薄,電子平均吸收到的能量也愈大,相對的電子溫度變 化也愈大,造成的結果就是若把式(4.2)當作正確值,則得到的結果 誤差也就相對的愈大。

由表五、表六我們也可觀察出,隨著薄膜厚度的減少,金薄膜的 熱傳導率也會隨之下降。顯然,從圖廿四與圖廿五中我們可以看到, 對於薄膜厚度分別為 500Å,1000Å的情況下,所逆運算得到的 Keq 皆落在 Kumar 等人[26]與 Qiu 和 Tien[27]的估計範圍之間,但是我 們依舊發現,在修正之後,薄膜厚度為 2000Å的時候依然高過於塊狀 材料的熱傳導係數這一不合理的情況發生。Kumar 等人[26]研究受表 面散射(Surface Scattering)影響的尺寸效應(Size Effect)但是並未考 慮顆粒邊界散射(Grain Boundary Scattering);而 Qiu 和 Tien[27]則同 時考慮正表面與背表面兩面的表面散射與顆粒邊界散射。

在圖廿四與圖廿五中,針對薄膜厚度為2000Å的情況所繪出的圖點,在修正光學反射率與電子溫度關係之後,依然明顯的超出Kumar 等人[26]以及Qiu和Tien[27]所估計的範圍之外,結果依然不合理。 細就其中原因,觀察圖廿六到廿八,其為我們利用逆運算所得到的 K、G值去估算電子溫度在不同金薄膜厚度正表面與背表面的分佈情 形,我們可以發現雖然在一段時間之後正表面與背表面的電子溫度差 將達到平衡,但在剛開始的時間區段當中,正表面與背表面的最大溫 度差隨著薄厚的增加而增大,且並非為線性關係衰減,所以我們合理 懷疑我們所得到的電子溫度會因為薄膜內部電子溫度的不均勻分佈 而導致反映出來的電子溫度會有所偏差;也就是說我們得到的電子溫 度在正表面與背表面的電子溫度達平衡後時應為正確值,但在剛剛開 始所得到的電子溫度並非正確。

為了探究其上述原因影響程度,卻又不清楚金屬薄膜內電子溫度 影響的真正情況,故我們首先假設在穿透厚度內的電子溫度變化才會 影響到得到的電子溫度誤差(金薄膜的穿透厚度為 153°_{A}),取穿透厚 度內電子溫度的平均,重新去對先前從 Brorson 等人 [19] 所得到的正 規化反射率實驗值估測其變化,並繪出成圖廿九到圖卅四表示。觀察 其結果,在正表面所得到的電子溫度因為受更深層的電子溫度影響, 得到的電子溫度會比實際的正表面的電子溫度低,即我們可能低估了 其真正電子溫度,導致在繪出正規化的電子溫度變化時,在達到電子 温度平衡之前為低估值,應較原先的電子溫度較高,然而平衡後得到 的電子溫度應為正確值,但在做正規化的運算之後,電子溫度平衡後 的正規化電子溫度變化將會下降;相對的,背表面的電子溫度在達到 電子溫度平衡之前為過高值,應較原先低,而在平衡之後電子溫度變 化值在經過正規化運算後得到的值將比原先的要高,我們藉由這一結 果利用逆運算再次去估算得到值如表八(針對 $K = K_{eq} \frac{T_e}{AT^2 + BT}$ 模型, 考慮一倍穿透厚度會影響)和表九(針對 $K = K_{eq} \frac{T_e}{AT^2 + BT}$ 模型,考慮兩 倍穿透厚度會影響)所呈現,並和之前結果比較如圖卅五與圖卅六,

倍牙透厚及曹影普)所主现, 亚和之前結末比較如圖卅五與圖卅八, 得到電子熱傳導係數與連結因子都會因此而改變, 電子熱傳導係數降 低而連結因子提高, 有助於消除不合理的結果; 由於在剛開始的時間 區段當中, 正表面與背表面的最大溫度差隨著薄厚的增加而增大, 也 就是說在溫差大的時間區段裡得到的電子溫度變化隨著薄膜厚度愈 大,差異愈多,故造成的逆運算值誤差將會越大,也可以得知若電子 溫度變化量愈小,則修正前後正規化電子溫度改變值則變大,所以倘 若我們可以清楚瞭解金屬薄膜內電子溫度影響的真正情況,對其加熱 變化情形會更加明確。



第五章 結論

本文針對快速雷射脈衝加熱金屬薄膜的過程,探討電子熱傳導率 與電子溫度之間的關係,並且利用 Huang [20] 對於此非平衡過程所建 立的逆運算程式,以及 Brorson 等人 [19] 的實驗數據,估算不同厚度 情況下之金薄膜的熱傳導係數 Keg 以及電子-聲子連結因子 G。由於 雷射加熱時間極為短暫而造成直接量測電子溫度變化的困難,以往研 究都以量測薄膜的光學反射率變化來取代之,亦即光學反射率與電子 溫度呈線性關係。本文中,加入考慮薄膜厚度與量測反射率 probe beam 的入射角度影響,修正光學反射率與電子溫度的關係,取代原 先利用正規化光學反射率變化估算正規化電子溫度變化的線性關 係,並重新帶入逆運算量測分析,再次觀察對金屬薄膜熱傳導係數與 電子-聲子連結因子之影響。光學反射率部份,結果顯示在薄膜厚度 愈薄,光學反射率對電子溫度變化愈敏感,入射輻射的入射角度越 大,其光學反射率對電子溫度變化也會愈敏感;另一方面,逆運算結 果顯示,當金屬薄膜愈薄,所得到的熱傳導係數與連結因子和原先的 結果相差愈大;顯示出把光學反射率與電子溫度當成線性關係在電子 溫度變化量愈大,適用性愈低;並且會低估電子的熱傳導係數及高估 電子聲子連結因子。結果顯示,唯對於薄膜厚度為2000A的情況下, 逆運算所得的熱傳導係數 Keg 仍與 Huang 所得結果遇到同樣大於金 的塊狀熱傳導係數(Bulk thermal Conductivity)不合理之處。探究其原 因可能是在薄膜正表面與背表面電子溫度未達到平衡時,會有一溫 差,並非均溫,故得到的電子溫度會有所誤差,有其所必須修正的必 要;正表面中,在達到電子溫度平衡之前電子溫度為低估值,而背表 面的電子溫度在達到電子溫度平衡之前為高估值,本文針對此一關係 式,建議更為精確的修正方式。



參考文獻

- Knapp, J. A., Borgesen, P. and Zuhr, R. A., "Beam-Solid Interactions Physical Phenomena : Materials Research Society Symposium Proceedings", Pittsburgh, 1990.
- Elliott, D. J. and Piwczyk, B. P., "Single and Multiple Pulse Ablation of Polymeric and High Density Materials with Ex-Cimer Laser Radiation at 193 nm and 248 nm", Mater. Res. Soc. Symp. Proc., Vol.129, pp.627, 1989.
- Casimir, H. B. G., "Note on the conduction of Heat in Crystals", Physical, Vol.5, pp.495-500, 1938.
- Kaganov, M. I. Lifshitz, I. M. and Tanatarov, M. V., "Relaxation Between Electron and Crystalline Lattices", Soviet Physics JETP, Vol.4, pp.173-178, 1957.
- Eesley, G. L., "Observation of Nonequilibrium Electron Heating in Copper", Physical Review Letters, Vol.51, pp.2140-2143, 1983.
- Elsayed-Ali, H. E., Norris, T.B., Pessot, M.A., and Mourou, G.
 "Time-Resolved Observation of Electron-Phonon Relaxation in Copper", Physical Review Letters, Vol. 58, pp. 1212-1215, 1987.
- Elsayed-Ali, H. E., Juhasz, T., Smith, G. O., and Bron, W. E., "Femtosecond Thermo-reflectivity and Thermo-transmissivity of Polycrystalline and Single-Crystalline Gold Films", Physical Review B, Vol.43, pp.4488-4491, 1991.
- 8. Qiu, T. Q. and Tien, C. L., "Heat Transfer Mechanisms during Short-pulse Laser Heating of Metals", ASME Journal of Heat

Transfer, Vol.115, pp.835-841, 1993.

- Orlande, H. R. B., Ozisik, M. N., and Tzou, D. Y., "Inverse Analysis for Estimating the Electron-Phonon Coupling Factor In Thin Metal Films", Journal of Applied Physics, Vol.78, pp.1843-1849, 1995.
- Qiu, T. Q. and Tien, C. L., "Size Effects on Non-equilibrium Laser Heating of Metal Films", ASME Journal of Heat Transfer, Vol.115,pp.842-847,1993.
- Smith, A. N. and Norris, P. M., "Numerical Solution for the Diffusion of High Intensity, Ultrashort Laser Pulses Within Metal Films", Proceedings of the 1998 International Heat Transfer Conference, Vol.5, pp.241-246, 1998.
- 12. Bennemann, K. H., "Nonlinear Optics in Metals", Oxford Science Publications, Oxford, 1998.
- Ashcroft, N. W. and Mermin, N. D., "Solid State Physics", Saunders College Publishing, Philadelphia, 1976.
- Vadim, K., Markus, N., Jurgen, J., Wolfgang. S., Ernst, W. and Reinhart P., "Heat And Mass Transfer Induced by Picosecond Laser Pulses" Proc. High Power Lasers and Laser Machining, SPIE, Santa Fe, SPIE Proceedings, Vol.3343, pp.971-982, 1998.
- 15. Bernd, H., "On the Temperature Dependence of the Electronic Thermal Conductivity In Metals When the Electron and Phonon Subsystems Are Not in Local Equilibrium", Journal of Physics: Condensed Matter, Vol.10, pp.6121-6126, 1998.
- Rosei, R. and Lynch, D. W., "Thermodulation Spectra of Al, Au, and Cu", Physical Review B, Vol.5, pp.3883-3893, 1972.
- 17. Guerrisi, M., and Rosei, R., "Splitting of the Interband Absorption

Edge in Au," Physical Review B, Vol.12 pp.557-563, 1975.

- Juhasz, T., Elsayed-Ali, H. E., Hu, X. H. and Bron, W. E., "Time-Resolved Thermoreflectivity of Thin Gold Films and Its Dependence On the Ambient temperature", Physical Review B, Vol.45, pp.13819-13822, 1992.
- Brorson, S. D., Fujimoto, J. G. and Ippen, E. P., "Femtosecond Electronic Heat Transport Dynamic in Thin Gold Films", Physical Review Letters, Vol.59, pp.1962-1965, 1987.
- 20. Huang, Y. C. "Analysis on Heat Transport Characteristics of Thin Metallic Films Subjected to Non-equilibrium Pulse Laser Heating(快 速雷射脈衝加熱之金屬薄膜熱傳特性研究)" M. S. Thesis, National Chiao Tung University, Department of Mechanical Engineering, 2001.
- Sheu, L. J. "Thermophysical characteristics of Microscale System and Inverse Estimation of Thermophysical Parameters" Ph.D. Dissertation, National Chiao Tung University, Department of Mechanical Engineering, 2000.
- 22. Heavens, O.S., "OPTICAL PROPERTIES OF THIN SOLID FILMS", Butterworths, London, 1995.
- 23. Andrew N. Smith and Pamela M. Norris "Influence of intraband transitions on the electron thermoreflectance response of metals", Applied Physics Letters, Vol.78, pp. 1240-1242, 2001.
- Qiu, T. Q. and Tien, C. L., "Short-Pulse Laser Heating On Metals", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.35, pp.719-726, 1992.

- 25. Rolf E. Hummel "Electronic Properties of Materials", 1985.
- 26. Kumar, S., and Vradis, G. C., "Thermal Conduction by Electrons Along Thin Films: Effects of Thickness According to Boltzmann Transport Theory", Micromechanical Sensors, Actuators, and Systems, D. Cho et al., eds., ASME DSC-Vol.32, pp. 89-101, 1991.
- 27. Qiu, T. Q. and Tien, C. L., "Femtosecond Laser Heating of Multilayer Metals-I. Analysis", International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol.37,pp.2789-2797,1994.





表二 金的物理常數(Qiu and Tien[8])

Lattice heat capacity (C_l)	$2.5 \times 10^6 (J/m^3 K)$
Constant for electron heat capacity (γ)	$70(J/m^3K)$
Reflectivity (ρ)	0.927
Absorption coefficient (α)	$6.54 \times 10^7 (m^{-1})$
Laser pulse duration (t_p)	96(<i>fs</i>)
Maximum laser power flux (q)	$1.04 \times 10^{14} (W/m^2)$
Constant (ψ)	1.0

金屬名稱	n	k
金(Gold)	0. 21	3. 24
銀(Silver)	0.05	4.09
銅(Copper)	0.14	3. 35
鋁(Aluminum)	0.97	6.0



表四 針對不同厚度情況,以PTS 逆運算得到的 Keq,G

$$\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \bmod 1\right]$$

Huang's Results [20]

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{0}{A}$	76.991	2.9586	
$1000\overset{\scriptscriptstyle 0}{A}$	187. 329	2. 8382	
$2000\overset{\scriptscriptstyle 0}{A}$	363. 638	1. 8898	
	E 1896	THUN	

Present Study

case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{0}{A}$	125.897	2. 3202	
1000 [°] A	237.011	2.0249	
2000 [°] A	385.856	1.5092	

表五 針對不同厚度情況,以 PTS 逆運算得到的 Keq,G

$$\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \bmod \right]$$

Huang's Results [20]

case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{\mathrm{o}}{A}$	86.740	2.9044	
$1000\overset{0}{A}$	203. 313	2. 8158	
$2000\overset{0}{A}$	386. 533	1.9075	
	ERITINI 1896	L.L.	

Present Study

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{0}{A}$	143. 413	2. 2839	
1000 [°] A	258.836	2.0225	
2000 [°] A	409.810	1.5314	

表六 金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況 [$K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l}$ model]

	$\beta = \frac{d}{\Lambda_e}$				
	d:薄膜厚度				
	Λ_e : electron				
	mean-free-path	Pres	sent Study	Huang's	Results[20]
	during electrical	(<i>K</i>	$\cdot 320W/mK$	(<i>K</i>	$\cdot 320W/mK$
薄膜	conduction in bulk	(A eq,bulk	. 520W / MIX)	(A eq,bulk	· 52007 mix)
厚度	materials				
$500\overset{0}{A}$	1.366186665	$K_{_{eq,film}}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$	$K_{_{eq,film}}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		125.897	0.393428	76.991	0.240596
$1000 \overset{0}{A}$	2. 732373331	K _{eq, film}	$K_{eq, film} / K_{eq, bulk}$	$K_{\it eq,film}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		237.011	0.740659	187.329	0.585403
2000 ⁰ _A	5. 464746661	$K_{eq, film}$	$K_{eq, film} / K_{eq, bulk}$	$K_{eq, film}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		385.856	1.205800	363.638	1.136368

表七 金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況

$$\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \text{ model} \right]$$

	$\beta = \frac{d}{\Lambda_e}$				
	d:薄膜厚度				
	Λ_e : electron				
	mean-free-path	Pres	sent Study	Huang's	Results [20]
	during electrical	(K	$\cdot 320W/mK$	(K	$\cdot 320W/mK$
薄膜	conduction in bulk	(A eq,bulk	· 52007 mix)	(H eq,bulk	· 52007 mix)
厚度	materials				
500 A	1.366186665	$K_{_{eq,film}}$	$K_{eq, film}$ / $K_{eq, bulk}$	$K_{\it eq,film}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		143. 413	0. 448165	86.740	0.271062
$1000 \overset{0}{A}$	2. 732373331	$K_{eq, film}$	$K_{eq, film} / K_{eq, bulk}$	$K_{\it eq,film}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		258.836	0.808862	203.313	0.635353
2000 ⁰ _A	5. 464746661	$K_{_{eq,film}}$	$K_{_{eq, film}} / K_{_{eq, bulk}}$	$K_{eq, film}$	$K_{\it eq, film}$ / $K_{\it eq, bulk}$
		409.810	1.280656	386.533	1.207915

表八 以 PTS 逆運算得到的 Keq,G $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod]$ (a)不考慮薄膜內部電子溫度之影響效應(b)考慮薄膜內部電子溫度 之影響效應(一倍穿透厚度)

(a)

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{\scriptscriptstyle 0}{A}$	143. 41385	2.283988	
$1000\overset{0}{A}$	258. 83646	2. 022583	
$2000\overset{0}{A}$	409. 81078	1. 531445	
	EITHIN TROG		

(b)

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
500 [°] A	131.38106	2.324756	
$1000 \overset{0}{A}$	255. 32367	2.058429	
2000 [°] A	408. 515137	1.552013	

表九 以 PTS 逆運算得到的 Keq,G $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod]$ (a)不考慮薄膜內部電子溫度之影響效應(b)考慮薄膜內部電子溫度 之影響效應(兩倍穿透厚度)

(a)

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G		
厚度	Keq	G/10 ¹⁶	
$500\overset{\mathrm{o}}{A}$	143. 41385	2.283988	
$1000\overset{0}{A}$	258. 83646	2. 022583	
$2000\overset{\mathrm{o}}{A}$	409. 81078	1. 531445	
	EITHIN TROG		

(b)

Case	以正表面及背表面之電子溫度變化來同時估算 Keq,G	
厚度	Keq	G/10 ¹⁶
500 [°] A	111.1414	2. 423499
$1000\overset{0}{A}$	246. 56833	2.143367
2000 [°] A	407.68943	1.535847



圖一 實驗加熱與測量反射率之示意圖



圖二 對於薄膜入射角與折射角之示意圖(a)無考慮基底(b)考慮基底



圖三 考慮基底與否,金薄膜之光學反射率與電子溫度之比較圖 $(1000\overset{o}{A}, \phi_0=\mathrm{pi}/4)$



(b)

圖四 針對電子溫度在室溫到 700K 下正規化光學反射率示意圖 (a)500[°]A, ϕ_0 =0pi (b)1000[°]A, ϕ_0 =0pi



圖五 針對電子溫度在室溫到 700K 下正規化光學反射率示意圖

$$(2000\overset{0}{A}, \phi_0=0\text{pi})$$



圖六 不同入射光子波長對反射率與薄膜厚度關係之影響關係圖

($\phi_0 = 0 \text{pi}$)



圖七 不同 n 和 k 值對光學反射率與薄膜厚度關係比較圖(a)n 相同 k



圖八 關於不同金屬之反射率與薄膜厚度比較關係圖(ø =0 pi)



圖九 不同薄膜厚度正規化光學反射率變化與電子溫度關係圖

($\phi_0 = 0 \text{pi}$)


圖十 薄膜厚度 1000 A 在不同入射角度正規化光學反射率變化與電子

温度關係圖



圖十一 不同薄膜厚度在光學反射率與入射角度關係圖



圖十二 針對金薄膜厚度為 $500\overset{o}{A}$ 、正表面的情況, 比較電子溫度變化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \mod l]$



圖十三 針對金薄膜厚度為 $500\overset{0}{A}$ 、背表面的情況, 比較電子溫度變化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \mod l]$



圖十四 針對金薄膜厚度為 1000°_{A} 、正表面的情況,比較電子溫度變 化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \mod l$



圖十五 針對金薄膜厚度為 $1000\overset{o}{A}$ 、背表面的情況,比較電子溫度變 化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \mod l$



圖十六 針對金薄膜厚度為 2000^{0}_{A} 、正表面的情況,比較電子溫度變 化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_{e}}{T_{l}} \mod 1$



圖十七 針對金薄膜厚度為 2000^{0}_{A} 、背表面的情況,比較電子溫度變 化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_{e}}{T_{l}} \mod 1$



圖十八 針對金薄膜厚度為 500^{0} 、正表面的情況, 比較電子溫度變化 的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1]$



圖十九 針對金薄膜厚度為 500^{0}_{A} 、背表面的情況, 比較電子溫度變化 的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_{e}}{AT_{e}^{2} + BT_{l}} \mod 1]$



圖廿 針對金薄膜厚度為 $1000\overset{0}{A}$ 、正表面的情況,比較電子溫度變化 的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l$



圖廿一 針對金薄膜厚度為
$$1000\overset{0}{A}$$
、背表面的情況,比較電子溫度變
化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1]$



圖廿二 針對金薄膜厚度為 2000
$$\stackrel{0}{A}$$
、正表面的情況,比較電子溫度變
化的估算值與實驗值 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1]$



圖廿三 針對金薄膜厚度為 2000 $\stackrel{0}{A}$ 、背表面的情況,比較電子溫度變 化的估算值與實驗值 $\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod I\right]$



圖廿四 金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況

$$\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{T_l} \text{ model}\right]$$



圖廿五 金薄膜的熱傳導係數受薄膜厚度影響的情況

$$\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1\right]$$



圖廿六 膜厚 500Å,正表面與背表面電子溫度概況圖



圖廿七 膜厚 1000[°]A,正表面與背表面電子溫度概況圖



圖廿八 膜厚 2000[°]A,正表面與背表面電子溫度概況圖



圖廿九 針對薄膜厚度 500 $\stackrel{0}{A}$ 正表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後 比較圖 $\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l \right]$

79



圖卅 針對薄膜厚度 500 $\stackrel{0}{A}$ 背表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後比 較圖 $\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l \right]$



圖卅一 針對薄膜厚度 $1000\overset{0}{A}$ 正表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後比較圖 $\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1\right]$



圖卅二 針對薄膜厚度 $1000\overset{0}{A}$ 背表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後比較圖 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1]$



圖卅三 針對薄膜厚度 2000 $\stackrel{0}{A}$ 正表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後比較圖 $\left[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l \right]$



圖卅四 針對薄膜厚度 2000 $\stackrel{0}{A}$ 背表面,考慮薄膜內部電子溫度影響前後比較圖 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod 1]$



圖卅五 考慮與否薄膜內部電子溫度分佈影響金薄膜的熱傳導係數受 薄膜厚度影響的情況比較圖 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l} \mod l, -eerror error err$

蠁]



圖卅六 考慮與否薄膜內部電子溫度分佈影響金薄膜的熱傳導係數受 薄膜厚度影響的情況比較圖 $[K = K_{eq} \frac{T_e}{AT_e^2 + BT_l}$ model,兩倍穿透厚度影

蠁]