國立交通大學

物理研究所

碩士論文

單晶氧化釘奈米線的普適電導漲落

Universal Conductance Fluctuations in Single-crystalline RuO₂ Nanowires

896

研究生:連安劭

指導教授:林志忠 教授

中華民國九十八年七月

單晶氧化釘奈米線的普適電導漲落 Universal Conductance Fluctuations in Single-crystalline RuO₂ Nanowires

> 研究生:連安劭 指導教授:林志忠

Student : An-Shao Lien Advisor : John-Jong Lin

國 立 交 通 大 學 物 理 研 究 所 碩 士 論 文 A Thesis Submitted to Institute of Physics College of Science National Chiao Tung University in partial Fulfillment of the Requirements for the Degree of Master In

Physics

July 2009

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十八年七月

單晶氧化釘奈米線的普適電導漲落

學生:連安劭

指導教授:林志忠

國立交通大學物理研究所碩士班

摘 要

近年來電腦工業進步快速,電子元件越做越小,然而在微小的尺寸下,古典的波茲曼傳輸理論已不適用,電子的傳輸性質必須加入量子力學的修正,因此量子相位相干現象一直是 科學家研究的重點,其中弱局域效應已被研究相當一段時間,並且已被作為決定相位相干時 間的有力工具。普適電導漲落屬於另一種量子相位相干現象,相對上有關的文獻較少,然而 相關文獻已指出,普適電導漲落具有相當大的研究價值,由於其對雜質移動敏感性,使原子 級或次原子級的雜質移動事件可被直接觀察到,可被運用在許多領域。

我們以電子束微影製程製作四點量測電極,量測單一單晶 RuO2 奈米線的低溫電性,我們 看到低溫下電導漲落隨溫度下降而增大的普適電導漲落現象,經分析顯示電導漲落應屬於一 維系統,但是在加入熱平均效應的考量後理論與實驗沒有完全一致。另外理論指出在一定磁 場下隨時變的普適電導漲落大小應該減小,但是我們沒有發現這個現象。

由電阻隨溫度的變化分析顯示低溫下電阻的異常上升量遠大於弱局域效應與電子-電子 相互作用的貢獻,由電阻行為推測可能是二能級近藤效應造成。

我們認為造成普適電導漲落的原因應為奈米線中的點缺陷形成的二能級系統,由電阻隨 溫度變化的分析結果也支持此一論點。 Universal conductance fluctuations in single-crystalline RuO₂ Nanowires

student : An-Shao Lien

Advisors : Prof. Juhn-Jong Lin

Institute of Physics National Chiao Tung University

ABSTRACT

Recently, as progresses in computer instustry, the electronic devices are made smaller and smaller. In such small systems, classical Boltzmann transport theorem is not applied and quantum modification must be added. As a result, quantum interference phenomena have been important topics in physics. The weak localization effect has been studied for a long time and has become a convenient tool to determine the dephasing time. On the other hand, there are less articles about universal conductance fluctuations, which has been pointed out having great potential for researches. Due to its sensitivity to mobile impurities, direct observations to atomic or even subatomic movements of impurities is possible and can be applied in many fields.

Using the e-beam lithography process to make four-porbe contacts, we measured the electric properties of individual single-crystalline RuO_2 nanowires at low temperature. We observed increasing conductance fluctuations as temperature decreased, which has been thought as a feature of universal conductance fluctuations. By analysis, the UCF should come from a one dimension system. But with thermal averaging effect, the data can't be fit very well. We didn't observe the reduction of fluctuation magnitude in the present of magnetic field.

In R-T data, the increasing resistivity at low temperature was much more larger than the contribution of weak localization effect and electron-electron interaction, and maybe caused by two-level system Kondo effect.

We suppose that the universal conductance fluctuations are due to the two-level systems formed by point defects in nanowires. Results of R-T data also support this argument.



誌 謝

首先我要感謝我的指導教授林志忠老師讓我加入低溫與介觀物理實驗室的研究團隊,使 我有機會能接觸各種貴重的儀器與豐富的實驗資源,老師兩年的指導開拓了我在物理的視 野,讓我有幸能一窺當今先進的物理研究,並且在老師的方向指引下讓我能完成這份論文。

感謝我的口試委員朱仲夏老師、林立弘老師、張正宏老師在口試時或者是口試前給我的 指點與討論,使我的論文能更趨完善。

感謝林永翰學長、王兆祈學長細心指導我樣品的製作與量測,讓我在碩一時打下良好的 實驗基礎。感謝邱劭斌學長、葉勝玄學長在實驗細節與理論上無私的分享,讓我在研究上有 強大的靠山。感謝黃律堯學長耐心的與我討論實驗分析結果。感謝黃旭明學長、林伯聰學長、 孫羽澄學姐與王詩雯學姐的經驗傳承。感謝賴祐仁學長提供建議協助我解決許多難題。

感謝王大衛、陳奕甫與黃詠隆陪我同甘共苦,一起面對各種挑戰。感謝蔡林宗與許耀文 學弟協助分擔實驗室工作,感謝 Vu Thanh Tra 為實驗室增添歡樂氣息。

最後我最感謝的是我的父母,由於你們的支持我才能毫無顧忌地向前邁進。

目

錄

中文提要		i
英文提要		ii
誌謝		iv
目錄		v
表目錄		vii
圖目錄		viii
- `	緒論	1
1-1	氧化釘(RuO ₂)的傳導特性	1
1-2	RuO ₂ 奈米線的電性量測	3
二、	基本理論	5
2-1	金屬中的電導漲落	5
2-1-1	普適電導漲落	5
2-1-1(a)	單一雜質的移動對電導的影響	6
2-1-1(b)	比例 p 的可移動雜質對電導造成的雜訊與飽和效應	10
2-1-1(c)	考慮熱平均效應	12
2-1-1(d)	考慮磁場、自旋軌道耦合的影響	12
2-1-2	Local Interference Noise	14
2-1-3	1/f noise	16
2-2	量子理論對電阻的修正	17
2-2-1	弱局域效應	17
2-2-2	電子-電子交互作用	18
2-2-3	二能級系統	19
三、	樣品製作與低溫量測方法	22
3-1	樣品製作	22
3-2	低溫電性量測	27
3-2-1	靜電防護	27
3-2-2	³ He 低溫恆溫儀 HelioxVL	27
3-2-3	降温前準備工作	30
3-2-4	降溫原理及流程	30
四、	實驗結果與數據分析	33
4-1	樣品基本資訊與實驗原始數據	33
4-1-1	電阻在隨溫度的變化	34
4-1-2	電阻隨磁場的變化	38
4-1-3	電阻隨時間的變化	41
4-2	電導漲落大小隨溫度變化的分析	43

v

4-2-1	計算電導漲落大小δG	43
4-2-2	以一維與三維 UCF 隨溫度的變化分析數據 (未考慮熱平均	
	效應)	48
4-2-3	一維飽和 UCF:考慮熱平均效應	54
4-2-4	一維未飽和 UCF:考慮熱平均效應	59
4-3	$\delta G 隨磁場的變化$	62
4-4	電阻率隨溫度變化的分析	64
4-4-1	弱局域效應與電子-電子交互作用對電阻的修正量分析	65
4-4-2	二能級近藤效應對電阻的修正	67
4-5	Power Spectrum Density	68
五、	結論	71
參考文獻		72



表目錄

表 4-1	樣品尺寸參數與室溫電阻	33
表 4-2	樣品殘餘電阻率與 R-T 特性	36
表 4-3	樣品物理參數表	38
表 4-4	$\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 擬合結果	52
表 4-5	$\delta G(T)$ 對加入熱平均效應修正的一維飽和 UCF 大小的擬合	
	結果	56
表 4-6	以熱平均效應下一維未飽和UCF作擬合估計之n的數量級	61
表 4-7	各樣品的電阻對溫度的相依關係與溫度區間	64



圖 1-1	RuO ₂ 的晶格結構[11]	1
圖 1-2	雙原子晶格的色散關係[22]	1
圖 1-3	單晶RuO2與IrO2塊材的歸一化電阻隨溫度的變化與理論擬合	•
	曲線[1]	3
圖 1-4	VLS 機制示意圖[2]	4
圖 1-5	RuO ₂ 奈米線的(a) R(T)實驗數據與(b) 理論擬合分析[4]	4
圖 2-1	以LI model 解釋雜質移動造成電導漲落:(a)孤立雜質不會產	
	生漲落 (b)兩相鄰雜質移動可能造成電導漲落	6
圖 2-2	(a) 奈米環與(b) 奈米線隨磁場變化的普適電導漲落	8
圖 2-3	在不同極限下 $\alpha(x)$ 有以下關係: $\begin{cases} \alpha \approx x^2 & \text{for } x << 1 \\ \alpha \approx 1 & \text{for } x >> 1 \end{cases}$	11
圖 2-4	巨觀系統下單一雜質移動造成的漲落大小	11
圖 2-5	戶觀系統下比例n的雜質移動造成的漲落大小	13
圖 2-6	(a) Diffusion channel 與(b) Copperon channel 示意圖[9]	15
圖 2-7	不同無序程度下電子的傳輸行為	17
圖 2-8	雷子波函數經由不同路徑由A點至B點,其中3號路徑可能	
H = -	在〇點發生建設性干涉	17
圖 2-9	二能極系統的構造示意圖[12]	19
圖 2-10	二能級系統導致原子在雙位能井間跳躍[12]	19
圖 2-11	由T ₄ 與△關係的不同,電阻隨溫度的變化有不同的行為[12]	21
圖 3-1	光微影製程流程	22
圖 3-2	Pre-patterned Si/SiO2 基板	23
圖 3-3	(a)已壓有奈米線的基板的 SEM 影像 (b) 指定奈米線與定位	
	點位置 (c) 以 AutoCAD 定位出奈米線位置	25
圖 3-4	旋轉塗佈機工作方式	26
圖 3-5	旋轉塗佈機轉速對時間的關係	26
圖 3-6	(a)以 AutoCAD 設計電極與(b)以電子束微影製程完成的樣品	26
圖 3-7	(a)HeloixVL 外觀與(b)IVC 內部構造	28
圖 3-8	HelioxVL 的 sample holder 簡圖,由於磁場方向固定,樣品擺	
	放位置可分為垂直與平行磁場	29
圖 3-9	HelioxVL 放進液氦桶內的透視圖	29
圖 3-10	³ He 與 ⁴ He 的蒸氣壓對溫度的變化曲線[21]	31
圖 3-11	圖 3-11 Heliox VL 以 3He 冷卻至 base temperature 的示意圖。	
	第一步,加熱 sorb 使 3He 冷凝至 3He pot 中。	

圖 目 錄

		第二步,冷卻 sorb 使 sorb pump 開始抽冷凝在 3He pot 中的	
		3He •	
圖	4-1	RuO ₂ 奈米線元件的 SEM 影像	33
圖	4-2	樣品 081003a_DEFG 的 R-T 曲線	34
圖	4-3	樣品 081002a_ABCD 的 R-T 曲線	35
圖	4-4	樣品 081002a_EFGH 的 R-T 曲線	35
圖	4-5	樣品 081116d_HGED 的 R-T 曲線	36
圖	4-6	樣品 081003a_DEFG 的磁電阻數據	38
圖	4-7	樣品 081002a_ABCD 的磁電阻數據	39
圖	4-8	樣品 081002a_EFGH 的磁電阻數據	39
圖	4-9	樣品081116d_HGED平均前(上)與平均後(下)的磁電阻數據	40
圖	4-10	樣品 081002a_ABCD 的隨時變電阻數據	42
圖	4-11	樣品 081116d_HGED 的隨時變電阻數據	42
圖	4-12	Telegraph noises	43
圖	4-13	決定δG的步驟	45
圖	4-14	樣品 081003a_DEFG 的δG 對溫度的變化	46
圖	4-15	樣品 081002a_ABCD 的 δG 對溫度的變化	46
圖	4-16	樣品081002a_EFGH的δG對溫度的變化	47
圖	4-17	樣品 081116d_HGED 的 δG 對溫度的變化	47
圖	4-18	所有樣品的δG對溫度的變化	48
圖	4-19	樣品 081002a_ABCD 的 $\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 大小作擬合	50
圖	4-20	樣品 081002a_EFGH 的 $\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 大小作擬合	51
圖	4-21	樣品 081002a_EFGH 的 δG(T) 對一維與三維 UCF 大小作擬合	51
圖	4-22	由D計算各個樣品的L _r 對溫度的變化	54
圖	4-23	$\delta G(T)$ 對加入熱平均效應修正的一維飽和 UCF 大小作擬合	55
圖	4-24	各個樣品的δG(T)對Eq.(4.10)作擬合	58
圖	4-25	由樣品 081002a_ABCD 的 δG(T) 對一維未飽和 UCF 大小作擬	
		合所得 $L_{\phi}(T)$	60
圖	4-26	由樣品 081002a_EFGH 的 δG(T) 對一維未飽和 UCF 大小作擬	
		合所得 $L_{\phi}(T)$	60
圖	4-27	由樣品 081116d_HGED 的 δG(T) 對一維未飽和 UCF 大小作擬	
		合所得 $L_{\phi}(T)$	61
圖	4-28	樣品 081116d_HGED 以 0.006 Tesla/min 的磁場增加速率所測	
		量的磁電阻	63
圖	4-29	對圖 4-28 以 60sec 為時間尺度作標準偏差計算所得到的	
		$\delta G^2(B)$	63

圖	4-30	各樣品平均後的電阻對溫度的logT作圖	64
圖	4-31	各樣品平均後的電阻對溫度的√T作圖	65
圖	4-32	樣品 081116d_HGED 的 R(T)與弱局域效應、電子-電子交互作	66
		用的貢獻作比較	
圖	4-33	樣品 081116d_HGED 的 R(T)中√T 依屬的溫度區段對 Eq.4-18	
		作擬合	68
圖	4-34	樣品 081002a_ABCD 的 PSD diagram	69
圖	4-35	樣品 081002a_EFGH 的 PSD diagram	69
圖	4-36	樣品 081116d_HGED 的 PSD diagram	70



第一章、緒論

1-1 氧化釘(RuO2)的傳導特性

氧化釘(RuO₂)屬於過渡金屬氧化物,為少數具有良好導電性的氧化物之一,晶格結構為 寶石結構(rutile structure,圖 1-1),除了良好導電性外,RuO₂還具有熱穩定性佳、化學穩定性 佳、表面活性等優點,可被運用在許多領域。

> z[001] Ru 0 с . y[010] a a x [100] 1-1 RuO2 的晶格結構[11] 光頻支 $\left[2C\left(\frac{1}{M_1}+\frac{1}{M_2}\right)\right]^{1/2}$ $(2C/M_2)^{1/2}$ $M_1 > M_2$ $(2C/M_1)^{1/2}$ 聲頻支 - K π a

圖 1-2 雙原子晶格的色散關係[22]

RuO₂的傳導性質類似金屬,導電電子主要由 Ru 原子的 d 軌域電子提供,電子的傳輸可 以半古典的波茲曼傳輸理論來描述,在高溫下(室溫至 100K 左右)電阻主要由電子與聲子的散 射造成,然而不同於一般金屬由單一種原子構成晶格,RuO₂的晶格為兩種原子所組成,對於 某一方向聲子的偏振模式, ω對 K 的色散關係會發展出兩種支線:聲頻支(acoustic phonon) 與光頻支(optical phonon),如圖 1-2,因此電子與聲子的散射須分別考慮這兩種支線的聲子。

聲頻支的聲子行為主要以 Debye model 描述,電子與聲頻支聲子的彈性與非彈性碰撞對電阻的貢獻,由 Bloch-Grüneisen model 可得電阻率隨溫度的變化為

$$\rho_{BG}(T) = \beta_{BG} T \left(\frac{T}{\Theta_D}\right)^4 \int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})}$$
(1.1)

其中 β_{BG} 為跟材料有關的參數, Θ_D 為 Debye 溫度,由 Eq. (1.1)可知在較高溫時, ρ_{BG} 會正比於T,在低溫時, ρ_{BG} 則會正比於 T^5 。

由圖 1-2 可知光頻支聲子的頻率接近一常數,由 Einstein model 近似,可以得到電子與光頻支聲子的散射所造成的電阻率對溫度的變化為

$$\rho_{E}(T) = \beta_{E}T \left[\frac{89\Theta_{E}/2T}{\sinh(\Theta_{E}/2T)} \right]$$
(1.2)

其中 Θ_D 為 Einstein 溫度,相當於單一光頻支聲子的能量, β_E 為跟材料有關的參數。

除了電子-聲子散射外,電子-電子相互作用也會對電阻造成影響,所貢獻的電阻率對溫度的關係可寫成

$$\rho_{ee}(T) = A_{ee}T^2 \tag{1.3}$$

不過在過渡金屬中 A_{ee} 差不差不多只有 10^{-5} K⁻² $\mu\Omega$ cm,因此若溫度不是太高(300K 以下), ρ_{ee} 遠小於電子-聲子散射所造成的影響,故可忽略不計。

總和以上結果,根據 Matthiessen's rule 我們再加上由電子與雜質散射所造成的殘餘電阻率 ρ_0 ,RuO₂的電阻率隨溫度的變化可寫成

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{BG}(T) + \rho_E(T) \tag{1.4}$$



1-2 RuO2 奈米線的電性量測

本論文所使用的 RuO₂ 奈米線為清華大學開執中教授與陳福榮教授提供,使用的方法為化 學氣相傳輸法,主要是利用高溫加熱成長源使其氣化,藉由載氣將反應氣體輸送到低溫基板 處,以奈米金顆粒為催化劑透過 VLS 成長機制(圖 1-4)製備出單晶的奈米線[3]。

本實驗已對 RuO₂ 奈米線的較高溫的導電特性做過相當的研究,圖 1-5 為 RuO₂ 奈米線電 阻對溫度變化的曲線,在高溫的部分(100K 至 300K)電阻對溫度的變化仍然可以 Eq.(1.4)來描述,但在低溫(100K 以下)RuO₂ 奈米線呈現與塊材不同的電阻行為,電阻出現一極小值,之後 隨溫度變低電阻開始上升,違反 Matthiessen's rule,可見尚有其他物理機制會影響電阻隨溫度 的變化,使其在低溫下不會趨近一常數而是隨溫度變小而變大,造成此一現象的物理機制主 要有弱局域效應、電子-電子相互作用、近藤效應等,本論文將對這些物理機制逐一討論。

除了低溫電阻上升這一反常的現象外,在量測電阻的過程中,我們另外注意到一明顯的 特徵,那就是樣品具有很大的雜訊,有別於一般量測儀器所產生的雜訊或熱雜訊,這種雜訊 明顯與溫度有關而且在極低溫下會明顯的增強,我們認為應該是樣品本身所造成的雜訊,針 對樣品的雜訊我們做了一系列的量測,並嘗試以普適電導漲落的理論來分析。





圖 1-5 RuO₂ 奈米線的(a) R(T)實驗數據與(b) 理論擬合分析[4]

第二章、基本理論

2-1 金屬中的電導漲落

2-1-1 普適電導漲落

當系統中含有大量的雜質並且處於相對較低的溫度,此時 $\tau << \tau_{\phi}$ ($L << L_{\phi}$),我們稱此狀態為無序金屬(dirty metal regime),電阻傳輸為擴散運動,必須把電子波函數的相干性也一併考慮進去。

1985 年 Patrick A. Lee 與 A. D. Strone [5]的理論指出,在一任一維度的長度相當或小於相位相干長度 L_{ϕ} 的微觀系統中(single coherent system),電導隨磁場 B 與化學位能 μ 的變化有一普適的波動大小

$$\left< \delta G \right> = C e^2 / h \tag{2.6}$$

其中C僅與系統的維度有關(一維:0.73, 二維:0.86, 三維:1.09),這種擾動稱為普適電導 漲落(universal conductance fluctuation, UCF)。此理論的提出解釋了當時在奈米線(如圖 2-2(a)) 與奈米環(圖 2-2(b))等奈米結構在低溫下的磁電阻量測中得到的複雜漲落現象[24],這類漲落 現象大多在極低溫下的奈米結構中發生,磁電阻擾動的行為雖然是不規則變化,但通常具有 可重複性,其結構主要由系統中的雜質分佈方式決定,因此不同的樣品行為也不同,因此又 被稱為 magnetofingerprint,並且電導擾動的大小有一普適的量δG~e²/h,然而這裏所指的漲 落並非隨時變的漲落。

1986 年 S. Feng、Patrick A. Lee 與 A. D. Stone [7]提出在相位相干的系統中,少量雜質的 移動也會造成巨大的隨時變普適電導漲落(time dependent universal conductance fluctuation, TDUCF)。本論文主要應用該理論來解釋我們的所看到的現象。

本章節所考慮的系統均設定在弱局域的條件下 $(k_F l \ge 1)$,且系統中的雜質不至於過多而導 致絕緣,且樣品處在低溫下,即 $l << L_{\phi}$ 。簡單起見我們設定系統為一立方體,截面為 $A = L_x L_y$, 長度 L_a 為平行電流的方向。



2-1-1(a) 單一雜質的移動對電導的影響

第一步我們考慮若僅單一雜質移動對電導產生的影響,首先把系統簡化在介觀尺度下, 即 $l << \max(L_x, L_y, L_z) << L_{\phi}$ 。

從一較簡單的物理論點出發,我們可先以 Eq.(2.6)來趨近我們所要的結果,由 Landauer 的理論,電導可表示為 Landauer formula

$$G = \frac{e^2}{h} \sum_{i,j=1}^{N} \left| t_{ij} \right|^2 , \qquad (2.7)$$

其中*t_{ij}*為電子經由某一傳輸通道的穿透機率(transmission probability), Eq.(2.7)表示電子流經樣 品可分解為許多費曼路徑(Feyman path)的疊加,電導正比於所有費曼路徑穿透機率的總和, 而在無序的系統中費曼路徑可視作以 mean free path *l*為單一步距的隨機移動(random walk), 由此可知系統中的雜質位置將對電導造成影響, Eq.(2.6)的結果可視為系統中所有的雜質對所 有的電子傳輸路徑所造成的擾動,若僅移動一個雜質,將有 (L/l)^{2-d} 比例的費曼路徑遭遇到 被移動的雜質,因此我們可以簡單歸納出單一雜質移動所造成的擾動大小為 [7]

$$\delta G_{l} \approx \frac{e^{2}}{h} \left(\frac{L}{l}\right)^{(2-d)/2} \tag{2.8}$$

Eq.(2.8)的結果已假設遭遇移動雜質的費曼路徑與其他路徑為互相獨立的,然而實際上不同的費曼路徑事會互相干涉,較嚴密的理論計算結果為[8]:

(1) Quasi-1D case:
$$l \ll L_x \sim L_y \ll L_z \ll L_{\phi}$$

$$\delta G_{1}^{2} = 0.88 \frac{e^{4}}{h^{2}} \frac{\alpha \left(k_{F} \delta R\right)}{\left(k_{F} l\right)^{2}} \frac{lL_{z}}{L_{x} L_{y}}$$
(2.9)
(2) Quasi-2D case: $l << L_{x} << L_{y} = L_{z} << L_{\phi}$

$$\delta G_{1}^{2} = 0.96 \frac{e^{4}}{h^{2}} \frac{\alpha \left(k_{F} \delta R\right)}{\left(k_{F} l\right)^{2}} \frac{l}{L_{x}}$$
(2.10)
(3) 3D case (cube): $l << L_{x} = L_{y} = L_{z} = L << L_{\phi}$

$$\delta G_{1}^{2} = 0.96 \frac{e^{4}}{h^{2}} \frac{\alpha \left(k_{F} \delta R\right)}{\left(k_{F} l\right)^{2}} \frac{l}{L}$$
(2.11)

其中

$$\alpha(k_F \delta R) = 1 - \frac{\sin^2(k_F \delta R/2)}{(k_F \delta R/2)^2} \quad , \tag{2.12}$$

δR代表雜質所移動的距離,由圖 2-3 可知,只要雜質移動的距離夠長(δR>several Å),則 α(k_FδR)~1。由 Eq.(2.9)-Eq.(2.11)我們可知,在介觀系統中,當移動的雜質減少到只有一個, 電導的漲落並不會趨近於零,而是一固定比例的大小乘上所有雜質均移動時所造成的漲落, 表示在量子干涉效應的作用下,雜質位置的改變會相當敏銳的反映在電導上。

由介觀系統所得到的理論結果可進一步延伸到巨觀系統,此時條件為L>>L,,理論計算

的結果如下[8]:

(1) Quasi-1D case: $l \ll L_x \sim L_y \ll L_{\phi} \ll L_z$

$$\delta G_1^2 = 72\pi \frac{e^4}{h^2} \frac{\alpha (k_F \delta R)}{(k_F l)^2} \frac{lL_{\phi}}{L_x L_y} \frac{L_{\phi}^4}{L_z^4}$$
(2.13)

(2) Quasi-2D case: $l \ll L_x \ll L_\phi \ll L_y = L_z$

$$\delta G_{1}^{2} = 48 \frac{e^{4}}{h^{2}} \frac{\alpha \left(k_{F} \delta R\right)}{\left(k_{F} l\right)^{2}} \frac{l}{L_{x}} \frac{L_{\phi}^{4}}{L_{z}^{4}}$$
(2.14)

(3) 3D case (cube): $l \ll L_{\phi} \ll L_x = L_y = L_z \equiv L$

$$\delta G_{1}^{2} = 8 \frac{e^{4}}{h^{2}} \frac{\alpha \left(k_{F} \delta R\right)}{\left(k_{F} l\right)^{2}} \frac{l}{L_{\phi}} \frac{L_{\phi}^{4}}{L_{z}^{4}}$$
(2.15)

Eq.(2.13)-Eq.(2.15)若忽略前面的常數,可寫成

$$\delta G_1^2(L_z) \approx \delta G_1^2(L_\phi) \frac{L_\phi^4}{L_z^4}$$
(2.16)

其中δG₁²(L_φ)為介觀系統下單一雜質移動所造成的漲落大小。Eq.(2.16)我們可以以一簡單的 模型來理解,如圖 2-4,我們把巨觀的系統視為許多邊長為L_φ的子系統並聯或串聯組成,每 個子系統具有各自的電阻與電導漲落,因為量子干涉效應僅在L_φ以內發生,每個子系統間我 們可以以古典的方式處理。由 network theory 我們知道

$$\delta G_{1}^{2}(L_{z}) = \frac{1}{V^{4}} \sum_{i} v_{i}^{4} \delta G_{1}^{2}(L_{\phi})_{i}$$
(2.17)

其中V為整個系統的平均壓降, v_i j為第i個子系統的壓降。若整個系統只有一個移動雜質表 示僅一個子系統具有電導的漲落,Summation內僅剩一項,再以 $v_i/V \sim (L_{\phi}/L_z)$ 的近似代入, 即可得到 Eq.(2.16)。



圖 2-4 巨觀系統下單一雜質移動造成的漲落大小。

2-1-1(b) 比例 p 的可移動雜質對電導造成的雜訊與飽和效應

在介觀(L << L_a)的系統中,由系統中一比例 p 的雜質移動所造成的電導漲落可寫成

$$\delta G_n^2 = p N_i \delta G_1^2 \tag{2.18}$$

其中 δG_1 為介觀中單一雜質移動所造成的漲落, N_i 為系統中總雜質數目,但是隨著p增 $m\delta G_p$ 不會無限制的增加,由 Eq.(2.10)可知介觀系統中所有雜質對所有費曼路徑造成影響為 $\delta G_1^2 \sim e^4/h^2$,因此 Eq.(2.6)可視為一個飽和的上限,其飽和的條件為 $p \sim l^2/L_z^2$ 。當 $p >> l^2/L_z^2$ 時,電導漲落會趨近飽和

$$\delta G_p^2 \approx \delta G_{_{UCF}}^2 \approx e^4 / h^2 \tag{2.19}$$

若考慮巨觀系統中一比例 p 的雜質移動所造成的漲落,此時的飽和條件則為

- $p \sim (l/L_{\phi})^{2}, \ \mathbb{P} \Rightarrow \ 1 \Rightarrow$
 - (2) Quasi-2D case: $l \ll L_x \ll L_\phi \ll L_y = L_z$

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 18\pi p\bar{\alpha} \frac{1}{k_F^4 l^4} \frac{L_{\phi}^4}{L_x^2 L_y L_z}$$
(2.21)

(3) 3D case (cube): $l \ll L_{\phi} \ll L_x = L_y = L_z \equiv L$

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = \frac{9\pi}{2} p \bar{\alpha} \frac{1}{k_F^4 l^4} \frac{L_{\phi}^3}{L^3}$$
(2.22)

Eq(2.20)~(2.22)中 $\overline{\alpha}$ 來自 $\alpha(k_F \delta R)$ 對所有移動雜質的平均。

(b) Saturated regime: $p >> (l/L_{\phi})^2$

(1) Quasi-1D case: $l \ll L_x \sim L_y \ll L_{\phi} \ll L_z$

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 177.7 \frac{1}{k_F^4 l^2 L_{\phi}^2} \frac{L_{\phi}^4}{L_x^2 L_y^2} \frac{L_{\phi}}{L_z}$$
(2.23)

(2) Quasi-2D case: $l \ll L_x \ll L_{\phi} \ll L_y = L_z$

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 18\pi \frac{1}{k_F^4 l^2 L_x^2} \frac{L_\phi^2}{L_x L_y}$$
(2.24)

(3) 3D case (cube): $l \ll L_{\phi} \ll L_x = L_y = L_z \equiv L$

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 28.2 \frac{1}{k_F^4 l^2 L_{\phi}^2} \frac{L_{\phi}^3}{L^3}$$
(2.25)



圖 2-5 巨觀系統下比例 p 的雜質移動造成的漲落大小

2-1-1(c) 考慮熱平均效應

熱平均效應(thermal averaging effect)來源於費米面附近 k_BT 範圍內的能量平均,導電帶附近能階的電子在一能量寬度內有很強的關聯性,該能量寬度為 Thouless energy 或 Thouless width

$$E_c \equiv \frac{\hbar D}{L_{\phi}^2} \tag{2.26}$$

當 $k_BT > E_c$ 時,導電電子所能達到的能量 k_BT 大於一個 E_c ,而不同 Thouless width 之間的傳輸 性質為獨立的,因此實際上是 k_BT/E_c 個不相干的傳輸通道混合,這種條件下所導致隨機的平 均效應稱熱平均效應。

定義一特徵長度 thermal diffusion length

$$L_T = \sqrt{\frac{\hbar D}{k_B T}} \tag{2.27}$$

則 $k_B T > E_c$ 可等價為 $L_{\phi} > L_T$,在此條件下先前理論所得的 UCF 大小須考慮熱平均效應而做修 正,在非飽和狀態 $p << (l/L_{\phi})^2$, $\delta G_p^2 / G^2$ 要再多乘上一 thermal smearing factor $(L_T / L_{\phi})^2$;在 飽和狀態下 $p >> (l/L_{\phi})^2$, thermal smearing factor 為 $(L_T / L_{\phi})^d$,其中 d 為系統的維度。

2-1-1(d) 考慮磁場的影響

由於 UCF 與弱局域效應的物理機制基本相同,因此同樣會隨磁場發生變化,為了解釋 UCF 與隨磁場的變化,我們使用 cooperon 與 diffuson 的概念[9]。

圖 2-6(a)、2-6(b)分別為 diffuson channel 與 cooperon channel 中兩個粒子形成建設性干涉 的四條費曼路徑。Diffuson channel 又稱為粒子-空穴(particle-hole)通道,如圖 2-6(a),封閉區 域中實線與虛線的方向相同,在磁場下封閉區域會產生相同的相位移 $(e/\hbar)\int \overline{A} \cdot dI$,其中 \overline{A} 為 vector potential,干涉結果不會改變,因此 diffuson channel 不受到磁場影響。相反的, cooperon channel(又稱為粒子-粒子(particle-particle)通道) 容易受到磁場影響,如圖 2-6(b)所示,在封閉 區域實線與虛線的路徑行進方向相反,在垂直磁場下將會導致不相同的相位移,導致其建設 性干涉不成立,此物理機制與弱局域效應極為類似。

Diffusion channel 與 cooperon channel 對 UCF 大小的貢獻相同,我們假設在零磁場時有 $\delta G_p^2 = \delta G_{p0}^2$,考慮自旋軌道散射(spin-orbit scattering)不強的情況,在一弱磁場

$$H_{c1} \approx \phi_0 / A_B \tag{2.28}$$

 $(\phi_0 = h/2e, A_B$ 為 coherent area, 如在一維情況下為 $A_B = L_x L_\phi, L_x$ 為線寬)作用下,由於 cooperon channel 的貢獻消失,隨磁場增加電導漲落將慢慢減小為 $\delta G_p^2 = \frac{1}{2} \delta G_{p0}^2$ 。若磁場繼續增大為

$$H_{c2} \approx 2\hbar D / g \mu_B L^{*2} \tag{2.29}$$

其中 g 為 g-factor, μ_B 為波耳磁元, L^* 為樣品各維度邊長最小值,由於 Zeeman splitting 導致 spin-symmetry breaking,電導漲落會進一步減少為 $\delta G_p^2 = \frac{1}{4} \delta G_{p0}^2$ 。



圖 2-6 (a) Diffusion channel 與(b) Cooperon channel 示意圖[9]

2-1-2 Local Interference Noise

在相對而言較乾淨的金屬中,雜質在系統中的移動所造成的雜訊可以 local interference model [6]來解釋。在此所指的乾淨金屬,主要是符合 $l >> L_{\mu}$ 的條件,表示電子在兩彈性碰撞 事件之間,已喪失相位的同調性,電子在系統中的運動為彈道傳輸(ballistic transport)。除了在 較乾淨的金屬中符合此一條件外,另一方法是系統處在較高溫的環境,因為在沒有磁性雜質 的條件下,高溫時與電子的非彈性碰撞事件主要由聲子所提供,而電子與聲子非彈性散射時 間 τ_a 隨溫度的增加而以1/T的形式減少,因此在高溫時較無序的金屬中 $l >> L_a$ 也有可能成立。

Local interference(LI) model 的基本假設為:忽略電子波函數的相干性,由雜質移動所造 成的總電阻雜訊可以電子對個別移動雜質的散射截面的擾動來疊加。

首先我們考慮在金屬性的系統中電阻率可表示為

$$\begin{aligned}
\rho &= \left(\frac{m^*}{e^2 n}\right) \frac{1}{\tau_{tot}}
\end{aligned}$$
(2.1)

其中1/ τ_{tot} 為總散射率並且可寫成1/ $\tau_{tot} = 1/\tau + 1/\tau_{\phi}$, 1/ τ 可以系統中電子對雜質的散射截面

(cross-section)來表示:

$$\frac{1}{\tau} = \frac{v_F}{\Omega} \sum_{i} \sigma_i
\end{aligned}$$
(2.1)

其中Ω為樣品體積,接著我們假設一比例p的雜質是可移動的,且每個移動的雜質有一平均 的散射截面擾動為 $\delta\sigma \sim \beta\langle\sigma\rangle$, β 為一小於1的常數(一代表性的值為 0.2), $\langle\sigma\rangle \approx 4\pi/k_F^2$ 為 平均 s-wave 散射截面,則彈性散射率的相對擾動為

$$\frac{\delta (1/\tau)^2}{(1/\tau)^2} \approx p\beta^2 / N_i$$
(2.3)

(2.2)

N;為系統裡所有雜質的總量。

針對 Eq.(2.3)中 β 我們做一些討論,在完美晶格中若一單一孤立雜質在等價的兩個位置間 移動,如圖 2-1(a),應該不會對彈性碰撞截面產生任何擾動,因雜質的位置在晶格向量的轉 換上沒有改變,在此一狀況下 $\beta=0$ 。然而若有兩相鄰雜質移動,如圖 2-1(b),又或者是移動 的雜質鄰近 grain boundary,如此一來前後兩個亞穩態在晶格向量的轉換下為非等價,如此我 們會得到一不為零的 β ,這就是 local interference model 的主要概念。

在 local interference model 中,可移動雜質的互相鄰近與在晶格中區域對稱性扮演關鍵的 角色,因此我們定義的 p 只考慮所謂 locally interefering impurities。

由 Eq. (2.2)與 Eq. (2.3)並假設 $\tau_{\phi} \ll \tau$ 我們可以得到電阻的相對擾動為

$$\frac{\delta\rho^2}{\rho^2} = \frac{p\beta^2 \left(\tau_{\phi} / \tau\right)^2}{N_i}$$
(2.4)

最後 Eq. 2.4 可推導為

$$N_0 \frac{\delta \rho^2}{\rho^2} = \left(n l \beta \sigma\right)^2 \left(\frac{n_{ml}}{n}\right)$$
(2.5)

其中 $l = v_F \tau_{tot}$, $n = N_0 / V$, $\sigma \approx 4\pi / k_F^2$, $n_{ml} = p(N_i / V)$ 。



圖 2-1 以 LI model 解釋雜質移動造成電導漲落:

(a)孤立雜質不會產生漲落 (b)兩相鄰雜質移動可能造成電導漲落。

2-1-3 1/f Noise

1/f noise 是一種普遍存在的雜訊,在許多不同研究領域與日常生活中均可發現,其特徵 是在 Power spectrum 中頻率越小強度越大,並且大致上會有 1/f 的相依關係,而在無序的金屬 電性量測中,前面所提到的普適電導漲落與 local interference model 都可能產生 1/f noise。

在講 1/f noise 的成因前我們要先提 Lorentzian noise,若有一個隨機事件伴隨著一個單一 特徵時間 τ ,則我們會得到 Lorentzian spectrum

$$S \sim \frac{\tau}{\tau^2 (2\pi f)^2 + 1}$$
, (2.30)

在無序金屬中單一雜質移動的事件可對應到一個 Lorentzian spectrum,由於系統中還有許多雜質, τ 不會是常數而是一分布 $D(\tau)$,因此總體的 power spectrum 可寫成

$$S \sim \int \frac{\tau D(\tau)}{\tau^2 (2\pi f)^2 + 1} d\tau \quad \circ \tag{2.31}$$

在高溫的區域,雜質的移動主要的主要形式為 thermal activation,因此 τ 可寫成
$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{\Delta E}{k_B T}\right), \tag{2.32}$$

其中 ΔE 為雜質跳躍至另一位置所需的能量,一般而言 ΔE 為一平坦的分布,由 $D(\Delta E)d(\Delta E) = D(\tau)d\tau$ 的關係,經推導 Eq.(2.31)最後會趨近於 1/f 的形式。

在低温區域,因為溫度所提供的熱能已不足以使雜質跳躍,雜質移動機制主要為量子穿 隧效應,穿隧時間τ在高度V寬度d位能障礙中有以下關係

$$\tau = \tau_0 \exp\left[\left(\frac{2md^2V}{\hbar^2}\right)^{1/2}\right] \quad , \tag{2.33}$$

假設V為一平坦分布,代入Eq.(2.31)最後也可被推導為1/f的形式。

2-2 量子理論對電阻的修正

2-2-1 弱局域效應

當金屬中存在許多雜質,電子頻繁地與雜質作彈性散射,導致電子的運動為擴散性傳輸, 而非在乾淨金屬中電子所作的彈道性傳輸,此時電子的波函數既不是完全的延展態,也不是 完全的局域態,我們稱之為弱局域態。一般我們以 $k_{F}l$ 值來判斷金屬的無序程度,在乾淨的金 屬中 $k_{F}l >>1$,強無序時 $k_{F}l <<1$,而弱局域效應主要發生在弱無序區域 $k_{F}l \ge 1$,如圖 2-12。



圖 2-8 電子波函數經由不同路徑由 A 點至 B 點,其中 3 號路徑可能 在 O 點發生建設性干涉。

當電子做的是擴散運動,在多次的彈性散射後電子才會經歷一次非彈性散射而導致其相 位破壞,過程中電子波函數都是相位同調的,因此量子相位相干效應須被考慮,在一般傳輸 路徑中量子相位相干效應不會影響電阻,僅有某些特殊路徑會造成影響,例如圖 2-8 中 3 號 的路徑,在封閉區域中順時針向與反時針向的電子波函數於 O 點發生建設性干涉,使電子在 O 點的機率增加,等效上將使電子容易被侷限在 O 點,因此樣品的電阻將增加。經理論推導, 弱局域效應對電導率的修正為[18]

quasi-1D
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{h} \frac{1}{S} (L_{\phi} - l)$$

2D
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{\pi h} \ln \frac{L_{\phi}}{l}$$

3D
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{2\pi h} \left(\frac{1}{l} - \frac{1}{L_{\phi}} \right)$$
(2.34)

其中 spin degeneracy s = 2, S 為樣品截面, L 為相位相干長度。



2-2-2 電子-電子相互作用

弱局域效應是著眼於單電子的自我干涉效應,然而在無序系統中,電子的運動方式由原 本近似古典粒子的彈道式運動變為擴散式運動,電子和電子之間的庫倫相互作用(多體物理 的問題)也會因為電子運動方式的改變而受到影響,在無序的金屬中電子-電子相互作用對電 導率的修正如下[19]:

$$\delta\sigma_{\rm d}^{\rm (D)}(T) = \frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \left(\frac{4}{d} + \frac{3}{2}F\right) \left(\frac{k_B T}{\hbar D}\right)^{d/2-1} \times \begin{cases} -4.91, \ d=1\\ \ln\frac{T\tau}{\hbar}, \ d=2\\ 0.915, \ d=3 \end{cases}$$
(2.35)

其中 d 為系統有效維度,由 thermal diffusion length $L_T = \sqrt{\hbar D / k_B T}$ 決定, F 是等效的庫倫作 用參數,一般在金屬中 F ~ 0。



圖 2-9 二能極系統的構造示意圖[12] 圖 2-10 二能級系統導致原子在雙位 能井間跳躍[12]

圖 2-9 為二能級系統(Two-level system, TLS)的示意圖,簡單說即是一個原子處在兩個緊 1896 鄰的位能井結構(雙位能井),兩個位能井的距離 d 約在1Å以內,若原子於雙位能井中的基態 (ground state)的能量差(energy splitting)Δ很小,原子可能在兩位能井之間來回跳躍(圖 2-10)。

在沒有外來刺激作用情況下,原子在兩個亞穩態間跳躍的機制主要有兩種:

(1) 熱激發(thermal activation):

在較高溫的區域,原子容易吸收熱能由較低的位能井跳躍至較高的位能井,其躍遷率一般 可寫成[12]

$$\frac{1}{\tau_{thermal}\left(T\right)} \approx \omega_0 \exp\left(-\frac{E_{ex}}{k_B T}\right) \quad , \tag{2.36}$$

ω₀為其中一個位能井的特徵振盪頻率,激發能 E_{ex} 可由隨時變電導量測實驗中被決定,一般大概在數十至數百 kelvins 這個範圍。

(2) 量子穿隧(quantum-machanical tunnelling)

當溫度較低時,聲子所提供的能量已不足以導致躍遷,因此低溫下主要的躍遷機制為量子 穿隧效應,原子發生自發性穿隧(spontaneous tunnelling)的躍遷率為[12]

$$\frac{1}{\tau_{quantum}^{s}} \approx \omega_{0} \exp\left(-w\left(\frac{2MV_{B}}{\hbar}\right)^{1/2}\right) = \omega_{0} \exp\left(-\lambda\right) \quad , \tag{2.37}$$

其中位能障以寬w高 V_B 的矩形位能障近似, M 為原子值量, λ 為 Gamow factor, 由躍遷時間 $\tau_{auantum}^s$ 的長短可大致區分為三類:

- (a) Slow tunnelling $(\tau_{quantum}^{s})^{-1} < 10^{8} \text{ s}^{-1}$: 在此區間 λ 較大, energy splitting Δ 較小,單一穿隧事件所導致的電導漲落可能由電導 對時間的變化直接量測到。
- (b) Fast tunnelling $10^8 < (\tau_{quantum}^s)^{-1} < 10^{12} \text{ s}^{-1}$: 此區間 energy splitting Δ 約在 1mK 至 10K,當其小於由 electron-assisted tunnelling process 所對應的近藤溫度 T_K 時近藤效應(Kondo effect)才可能發生。在此區間是最有可 能導致 TLS Kondo effect 的區間。

(c) Ultrafast tunnelling 10¹² s⁻¹ < (τ^s_{quantum})⁻¹: 在此區間 energy splitting △ 較大,導致原子幾乎都被侷限在其中一個位能井中,因此 TLS Kondo effect 不會發生,也可說由 TLS 所形成的擬似自旋(pseudo-spin)在此區完全 被極化了。

近藤效應(Kondo effect)為 1964 年 Kondo 所提出導電電子與 localized spin 交互作下的多體 問題,該效應導致含有微量磁性雜質的金屬在低溫下有 logT 相依的電阻上升。近年來研究指 出若同時有兩個電子庫(electron reservior)與磁性雜質作用下將會有二通道近藤效應 (two-channel Kondo effect),該效應已由 2007 年 Potok 等人以實驗證實。

TLS 雖然不是磁性雜質,然而當 energy splitting △ 很小時,兩個位能井的基態可近似為一個擬似自旋(pseudo-spin),導電電子與 TLS 交互作用下的能量形式可類比為二通道近藤問題,此類由 TLS 導致的近藤效應通稱 TLS Kondo effect。

由 TLS Kondo effect 導致電阻率對溫度的修正目前還未有完整的理論結果,定性上由 T_{K} 與 Δ 的關係,電阻隨溫度的變化大致上如圖 2-11。當 $T_{K} < \Delta$ 時,TLS Kondo effect 不會發生, 低溫下僅有 Fermi-liquid behavior 並呈現1- T^{2} 的飽和行為;當 $T_{K} > \Delta$ 時可看到近藤效應下的 logT 關係,並在 T_{K} 以下呈1- T^{2} 飽和;當 $T_{K} >> \Delta$ 時除了高溫有 logT 與低溫1- T^{2} 飽和外,中 間多了一段1- $T^{1/2}$ 相依的 non-Fermi-liquid 行為,此為二通道近藤效應的特徵,針對此區 1991 年 Affleck 與 Ludwig 提出其電阻率隨溫度的變化為[25]

$$\rho_{2CK}\left(T\right) = \frac{3n_i}{4\pi\hbar \left[eN\left(0\right)v_F\right]^2} \left[1 - 4\lambda\sqrt{\pi T}\right]$$
(2.38)

其中 n_i 為TLS的密度,N(0)為費米面附近的能態密度, $\lambda \approx (T_{2CK})^{-1/2}$ 。



圖 2-11 由 T_{K} 與 Δ 關係的不同,電阻隨溫度的變化有不同的行為[12]。

第三章、樣品製作與低溫量測方法

3-1 樣品製作

為了要量測單一 RuO₂ 奈米線的導電性質,我們必須要在奈米線上製作至少四個電極,而 每根奈米線的長度只有數個微米,要在這麼短的距離內製作電極,就必須靠微影技術,我們 使用的微影技術有兩種:光微影與電子束微影。

首先我們使用光微影製程製作較大的電極,以 AutoCAD 繪圖軟體編輯光罩圖案,透過奈 米中心的雷射圖形產生器製作成光罩。我們使用已長了 400nm 氧化層(SiO₂)的矽基板,以確 保良好的絕緣性,透過標準的光微影製程(圖 3-1)我們在矽基板上依序鍍 10nm 的鈦與 60nm 的金,其中 10nm 的鈦為二氧化矽與金的黏著層,經舉離、切割後,我們可以的到許多如圖 3-2 的基板。光微影的優點是容易大量生產相同的圖形,然而由於我們奈米線在基板上的位置 每次都不一樣,且奈米中心的雷射圖形產生器的最小線寬為 5 微米, 無法跨接四個電極在僅 數個微米長的奈米線, 因此在大的電極與奈米線之間的電路連接, 必須要依靠電子束微影製



圖 3-1 光微影製程流程



電子束微影的基本原理與光微影大致相同,不同之處僅在於電子束微影以電子替代光 源,以程式控制屏蔽板取代光罩。我們使用正型電子阻劑聚甲基丙烯酸甲酯(950K PMMA A5),主要由感光劑、樹脂及溶劑構成,電子束經聚焦後入射電子阻層,與阻劑分子產生交互 作用,就正型電子阻劑 PMMA 而言,經電子曝光後會造成阻劑分子的分子鏈斷裂,使其對於 顯影液的溶解度增加,經顯影後電子阻層消失的即為曝光區域。由於電子的物質波波長一般 而言遠較光波波長短,因此電子束微影可減少繞射效應達到比光微影更佳的解析度,缺點是 電子束微影必須逐點掃描整個曝光區域,曝光過程較光微影費時許多。

將已長有奈米線的基板在做好光微影製程的 Si/SiO2 基板上輕壓, 奈米線會藉由凡德瓦力

附著在基板上,須注意此時壓的力道若過大,可能會把 Si/SiO2基板上的電極刮傷,且納米線 容易過多造成電極製作上的困難,若力道過小則納米線不易附著,另外也可藉由靜電貼紙讓 基板帶有靜電,使細小的奈米線更容易附著在基板上。

接著要為奈米線定位,我們使用場發射掃描式電子顯微鏡 JSM-7000F 以確保較好的影像 品質,在許可的倍率下盡可能讓四個定位點在畫面中,再以高解析度掃圖,根據奈米線與四 個定位點的相對位置,以像素換算座標,我們可以在 AutoCAD 圖檔中精確定位出奈米線的位 置,如圖 3-3。根據奈米線的位置,我們以 AutoCAD 設計適當的電極,如圖 3-6(a)。

以旋轉塗佈機(圖 3-4)在撒有奈米線的基板上塗佈上一層電子阻劑,圖 3-5 顯示一個典型 的光阻塗佈的轉速對時間曲線,首先轉速加速到約 1500 rpm 維持 15 秒,以甩掉基板上過多 的電子阻劑,第二階段加速到約 5500 rpm 維持 35 秒,此階段目的是要塗佈出想要的厚度, 因此轉速較快時間也較長,如此基板上的光阻厚度約在 250 nm 到 300 nm,緊接著把基板放 在加熱板上加熱 180 度一分鐘,這個過程為軟烤,目的是要將驅除電子阻劑中的溶劑,使電 子阻劑由原來的液態,經軟烤後成為固態的薄膜,並加強電子阻層對基板表面的附著力。

我們使用 Xenos 公司的電子束微影系統 XeDrew,以熱游離掃描式電子顯微鏡 JSM-6380 來做電子束微影,首先先在微影區域附近的起始點把圖像的焦距、XY 像差調校至影像清楚, 以確保曝光時電子束的焦距是正確的,將繪製完成的電極圖案轉檔輸入到圖形產生器,以電 腦程式控制屏蔽板(Beam blanker),當電子束在不須曝光的區域時,屏蔽板會加一個偏壓讓電 子束不會打在樣品上,最後電子束在微影區域掃出正確的圖像。曝光完後的基板需經過顯影 的步驟,先浸泡以甲基異丁基酮(Methelisobutyl, MIBK):異丙醇(Isopropylalcohol, IPA)=1:3 混 合的顯影液1分鐘,再浸泡 IPA 清除殘留的顯影液,此時基板上僅留下未經曝光的電子阻層。

針對我們所使用的 PMMA 電子阻劑,須找到一最佳的劑量(Doze),即單位面積內入射電子的數目,此劑量與電子束曝光每一點的步進距離(increment)、停留時間(dewell time)和電子 束電流(beam currwnt)有關。第一次使用電子阻劑須先測試其最佳劑量,即依序以不同大小的 劑量曝光,經顯影後以濺鍍機鍍上一層 Pt 增加表面導電性,使其在 SEM 下可清楚觀察從而

24
決定出適用的電子劑量。若使用劑量太高,則細微的結構可能會全部連在一起;若劑量太低, 則可能造成過多的電子阻劑殘留,可能提高奈米線的接點電阻,或直接造成細小電極的失敗。

已做好光微影的基板,我們以熱蒸鍍的方式在基板上依序鍍上 10 nm 的鉻與 100 nm 的 金,不直接鍍金是因為金對於二氧化矽的附著力不理想,直接鍍上的金膜容易從基板上脫落, 而鉻對於金與二氧化矽的附著力都不錯,因此先鍍上一層鉻作為黏著層。

把蒸鍍好的基板以丙酮浸泡約半天至一天的時間,樣品表面的金膜會產生皺摺,表示底下的電子阻層已被丙酮溶解,此時可以丙酮把表面的金膜沖掉,剩下的就是我們以 AutoCAD 製作的電極圖形,最後再以電子顯微鏡檢查電極是否完整以及奈米線是否成功跨接四個電 極,如圖 3-6(b)。





圖 3-6 (a)以 AutoCAD 設計電極與(b)以電子束微影製程完成的樣品。

3-2 低溫電性量測

3-2-1 靜電防護

由於我們量測的 RuO₂ 奈米線為金屬性奈米線,電阻率很小,只要在兩端加很小的電壓差 就會在奈米線上產生有很大的電流密度,導致奈米線燒毀,因此在我們以電子束微影製程在 奈米線上接上電極後,整個基板就是一個非常脆弱的奈米元件,即使是生活周遭常見的靜電 都可能使樣品損壞,因此防靜電的措施是非常重要的,我們主要採取以下措施:

(1)實驗過程全程戴上防靜電手環,隨時把身上產生的靜電導走。

(2) 樣品在未量測時存放在可導電的樣品盒內,以保持整個樣品是等電位。

_	
	(6)盡量避免任何碰撞及震動。 1896
	(5)增加實驗室的濕度有助於防止靜電產生。
	(4)準備與量測過程中所使用的低溫恆溫器外殼接地。
	(3)接上任何電子儀器前先把儀器電源打開,以免開闢時產生的突波燒壞樣品。

我們所用來降溫並控制溫度的儀器一般稱為低溫恆溫器(cryostat),本實驗所使用的 cryostat為Oxford公司的HelioxVL系統,主要外觀如圖 3-7(a),主要降溫媒介為液態氮、液 態氦以及系統內部儲存的³He,最低可降至約 0.3K,並且可掛載超導磁鐵對樣品加 0 到 4 Tesla 的磁場。



圖 3-7 (a)HeloixVL 外觀與(b)IVC 內部構造



圖 3-8 HelioxVL 的 sample holder 簡圖,由於磁場方向固定,樣品擺放位置可分為垂直與平行 磁場。



圖 3-9 HelioxVL 放進液氦桶內的透視圖

3-2-3 降溫前準備工作

首先我們先以銀膠把銅線連接在所要量測的基板電極上,等約12小時銀膠乾了以後,以 導熱良好的 N-grease 把基板固定在 Heliox VL 的 sample holder 垂直磁場的面上,如圖 3-8。為 避免產生靜電的可能,我們不使用銲槍與焊錫來連接銅線與 sample holder 上的接腳,而是以 纏繞的方式把銅線繞在接腳上。

參考圖 3-7(b), HelioxVL 的 sample holder 位於 IVC(inner vacuum chamber)中,下低溫前, 整個 IVC 要抽真空,在封 IVC 前,我們會活性炭以攝氏 150 度烤 2 小時以上,使其釋放出內 部吸附的氣體,再把活性碳放在 IVC 內,活性碳由於其多孔的結構,在低溫下時會吸附氣體 分子,使 IVC 內保持高真空狀態。在低溫時 IVC 是否保持良好真空度關係到我們能否降溫至 最低溫約 0.3K(base temperature),因為在 4.2K 以下 IVC 外面的液態氦像當於熱源,由於我們 主要靠傳導的方式來冷卻我們的樣品,若 IVC 中有過多的氣體分子導致 sample holder 與外界 (4.2K 的液態氦)有過多的熱交換,使溫度無法再往下降。

3-2-4 降溫原理及流程

HelioxVL 由室溫 300K 至 base temperature 的降溫過程根據溫度區間的不同分為數個階段。第一個階段我們把 HelioxVL 插在裝有液態氮的杜瓦爾容器中,靠液態氮 77K 的溫度作 pre-cooling 的動作,約 30 分鐘可從室溫 300K 降溫至約 80-100K。不直接放入液態氦是因為液態氦相對液態氮昂貴許多,且液態氮的潛熱(latent heat)為160kJ/l 遠大於液態氦的 2.56kJ/l,因此在 80K 以上以液態氮作 pre-cooling 可節省下大量的液態氦。

896

80K 以下我們把 HelioxVL 放入液態氦桶中, 如圖 3-9, 藉由與 4.2K 的液態氦做熱平衡, 一般平衡溫度約在 6~7K。

若要降溫至液態氦平衡溫度以下,就必須要使用減壓降溫的方法。圖 3-10 為⁴He 及³He 的蒸氣壓對溫度的曲線,由圖可知 ⁴He 的蒸氣壓隨溫度降低,故當我們減少壓力,液面附近 的液態氦會加速蒸發而帶走更多熱量,使系統冷卻至更低溫。使用機械幫浦我們可把液態氦 由管路抽進 HelioxVL,液態氦管路會經過一針閥(needle valve)到 1K plate 纏繞數圈,途中經 過 3He pot 後再被抽出 HelioxVL,當液態氦經過針閥壓力會驟減,可使 1K plate 降至 1K 左右。

然而壓力越低,也代表了降溫效率越低,即 cooling power 越低,因此以 4He 作減壓降溫 我們最低只能讓樣品降溫至約 1.2K 左右。比較圖 3-10⁴He 與 ³He 的曲線可發現,在同樣的蒸 氟壓下 ³He 的溫度較 ⁴He 更低,也就是說若同時使用 ⁴He 與 ³He 就壓降溫,可使系統至更低 溫。然而 ³He 相當稀有且昂貴,不能使用外接的機械幫浦來減壓,因此雖然原理差不多,方 法卻大不相同。圖 3-11 為 HelioxVL 位於 IVC 內的構造示意圖,³He 儲存在 HelioxVL 中央的 封閉管路中,在 1K plate 上方較粗的部分稱為 sorb,裡面有作為 sorb pump 的活性碳,1K plate 下方是 ³He pot, sample holder 以導熱良好的無氧鋼製成,連接在 ³He pot 下方。在我們要降 溫至 base temperature 前,須先做 condense 的動作,方法是在以 ⁴He 減壓降溫同時,加熱 sorb 至約 30K,並維持約 30 分鐘,此時 1K plate 及下方的 ³He pot 仍會維持在約 2K 左右,在一大 氟壓時 ³He 的沸點約 3.19K,因此管路中的 ³He 幾乎都會凝聚成液體並儲存在 ³He pot 中。 Condense 完後我們把 sorb pump 的 heater 關掉,此時 sorb 中的活性碳因為溫度下降會開始吸 附 ³He 氟體分子,達到減壓降溫的效果,在此階段可以降溫至 base temperature 約 0.25K。



圖 3-10³He 與 ⁴He 的蒸氣壓對溫度的變化曲線[21]。



第二步,冷卻 sorb 使 sorb pump 開始抽冷凝在 ³He pot 中的 ³He。

第四章、實驗結果與數據分析

4-1 樣品基本資訊與實驗原始數據



081003a_DEFG



081002a_EFGH



081002a_ABCD





圖 4-1 RuO₂ 奈米線元件的 SEM 影像

Sample No.	Sample name	Length (µm)	Diameter (nm)	R _{300K} (Ω)	ρ _{300κ} (μΩ cm)
1	081003a_DFGH	1.027±0.366	47	3710	781±205
2	081002a_ABCD	0.691±0.412	54	1405	583±218
3	081002a_EFGH	0.73±0.521	120	102	200±83
4	081116d_HGED	1.493±0.277	67	605	182±29

表 4-1 樣品尺寸參數與室溫電阻

我們成功量測的 RuO₂ 奈米線一共有四條,為確保樣品的一致性,所有奈米線均是來自於 同一片奈米線基板,由高倍率的 SEM 影像我們可以大略估算奈米線的線徑與長度。在線徑方 面,由於 RuO₂ 奈米線的截面為四方形,我們由 SEM 圖像所看到的線徑作為邊長,以正方形 的截面來計算。較難決定的是在長度方面, 奈米線長度由兩個量 V 電極所量測到的奈米線段 長度決定,但我們不能保證所鍍上的鉻金電極是完全接觸到奈米線,因此無法確定量 V 電流 是由電極的哪個位置流入奈米線,客觀上我們僅能以兩電極的中點的距離為基準,將電極的 寬度當成誤差,由於樣品製作上的困難,往往奈米線長度與電極尺度相差不大,有時甚至電 極的的寬度比奈米線長度還大,造成長度決定上的困難,也造成電阻率計算上難以避免的誤 差。

在量測上,在以 Keithley 6430 source meter 確定其電阻正常後(<10 Kohm),所有奈米線均使用 LR700 交流電阻橋量測,不論是量 R(T)、磁電阻或電阻隨時間的變化,均統一使用 100nA 的 excitation current,以確保量測上的一致性。

89

4-1-1 電阻在隨溫度的變化



圖 4-2 樣品 081003a_DEFG 的 R-T 曲線 34



圖 4-4 樣品 081002a_EFGH 的 R-T 曲線



Sample No.	Sample name	ρ _{min} (μΩ cm)	T(R _{min})(K)	R(300K) / R _{min}	R _{0.3K} /R _{min}
1	081003a_DFGH	594±147	42	1.34	1.039
2	081002a_ABCD	442±165	39	1.34	1.091
3	081002a_EFGH	164±68	59	1.23	1.024
4	081116d_HGED	122±19	66	1.49	1.096

表 4-2 樣品殘餘電阻率與 R-T 特性

由之前對 RuO₂塊材以及 RuO₂奈米線的量測,我們對於高溫區域(100K 以上)RuO₂奈米線的傳導性質已有相當的了解,因此本實驗量測的溫度區間著重在 80K 以下至 base temperature 0.3K 的溫度區間。

根據 RT 原始數據我們可以初步得到以下資訊:

- (1) RT 的行為與之前的量測結果類似,電阻在低溫下約 40K 至 70K 左右有一最小值,之後隨 溫度下降電阻開始上升,在更低溫約 5K 至開始飽和而趨近一常數。
- (2) 在所有樣品中編號第4的081116d_HGED 其奈米線長度與電極寬度相差最多,因此在奈米線長度決定上誤差是最小的,所得到的殘餘電阻率(ρ_{min})約為122 μΩ cm,與濺鍍的多晶 RuO₂薄膜[23]的殘餘電阻率約300~400 μΩ cm 左右相比較小,由於濺鍍的多晶 RuO₂薄膜的雜質缺陷應該較 RuO₂單晶奈米線多,故殘餘電阻率比較高是合理的。
- (3) 室溫電阻與電阻最低點比值(R(300K)/R_{min})在 1.3 至 1.5 之間,在 RuO₂ 單晶塊材量測中所得到的R(300K)/R_{min}大約在 100 左右,由此可知雖然我們的奈米線同樣為單晶,但是其中可能含有大量的雜質或缺陷。由(2)與(3)判斷我們的 RuO₂奈米線樣品的無序程度應該介於 RuO₂ 單晶塊材與濺鍍的多晶 RuO₂ 薄膜之間[23]。
- (4) 量測 RT 的過程中可發現 RuO₂ 奈米線電阻的隨時間隨機的跳動相當大,且雜訊的大小隨 溫度下降而增加。參照圖 4-5 樣品 081116d_HGED 的 RT 數據中,不同顏色的編號代表量 測的順序,由於雜訊中還包含較大跳動的 telegraph noise(圖 4-12),導致每次量測的 RT 行 為都不太一樣,也無法藉由平均消除,多次量測放在一起看猶如許多不同行為的 RT 曲線 疊加在一起,值得一提的是在最低溫下不同顏色的點之間的差距大約為 10Ω ,換算為電 導 $\Delta G \sim e^2/h$ 。
- (5) 加了磁場後的 RT 行為與零磁場的 RT 行為變化不大,由樣品 081002a_ABCD 與 081002a_EFGH 可大略判斷在低溫下樣品會有負的磁電阻,且變化的量隨溫度下降而增加。
- (6) 我們以低溫下電阻最小值近似為殘餘電阻率,由殘餘電阻率可計算出該 RuO₂ 奈米線的一些相關參數,如表 4-3,其中我們使用 Fermi energy~1.7eV,有效質量 m*/m_e~1.4[11]。

No.	Sample name	D (m ² /s)	l (nm)	k _F *I
1	081003a_DFGH	7.08E-05	0.33	2.6
2	081002a_ABCD	9.51E-05	0.44	3.5
3	081002a_EFGH	2.57E-04	1.18	9.4
4	081116d_HGED	3.46E-04	1.59	12.6

表 4-3 樣品物理參數表

4-1-2 電阻隨磁場的變化

在量測 R(T)的過程中我們知道樣品的電阻隨時間會有很大的漲落,在量測磁電阻時這些 隨時變的漲落仍然存在,電阻隨時間的漲落大小與隨磁場的變化量相差不大,且磁場變化量 與隨時變漲落的大小同樣會隨溫度下降而增加,基於以上原因,我們很難將磁電阻的變化從 隨時變的電阻變化中獨立出來。在研究弱局域效應的實驗中,低溫下的 dephasing length L_g -般可由磁電阻的分析得到,但是在我們量測的磁電阻數據由於伴隨著隨時變的漲落而難以實 行。



圖 4-6 樣品 081003a_DEFG 的磁電阻數據



圖 4-8 樣品 081002a_EFGH 的磁電阻數據



圖 4-9 樣品 081116d_HGED 平均前(上)與平均後(下)的磁電阻數據

4-1-3 電阻隨時間的變化

控溫在不同的溫度下,待溫度穩定後量測電阻,每隔固定的時間量測一次電阻,我們會 得到不同溫度下電阻隨時間的變化,其中記錄電阻的頻率稱為取樣頻率(sampling rate),四個 樣品中的前三個樣品(081003a_DEFG、081002a_ABCD、081002a_EFGH)在量測隨時變電阻時 採用的取樣頻率為1Hz,即每一秒量一個值,而第四個樣品(081116d_HGED)的取樣頻率為 5Hz,即為每0.2 秒量一個值,對電阻隨時間變化的行為紀錄較為完整。

由電阻隨時變的數據,漲落隨溫度下降而增大的現象更為明顯。基於以下兩個原因我們 認為這種漲落應為樣品本身造成的:

- (1) 漲落大小明顯與溫度有關,且行為與一般熱雜訊(thermal noise)隨溫度上升而增大的行為相反。當隨溫度上升到 30K 以上時,電阻漲落會變小,即使到了室溫 300K 熱雜訊較大時電 阻漲落也遠小於最低溫(0.3K)時的漲落大小,因此我們可以排除低溫下的電導漲落為儀器 量測所產生之雜訊的可能性。
- (2)以同樣的量測設備量測其他非奈米結構的材料時,電阻漲落均遠小於我們量測的 RuO2奈 米線,也沒有雜訊隨溫度下降而增大的現象,因此我們認為此一電阻漲落現象為 RuO2在 奈米結構(奈米線)下才具有的行為。

我們所觀察到的隨時變電阻漲落大致上可分為以下幾種類型,一種為較快的漲落,電阻 的值在一固定平均值附近上下隨機跳動,這種漲落大小隨溫度的變化比較明顯。另一種如圖 4-12,稱為 telegraph noise,發生的頻率較低,電阻的值在相差較大的兩值之間不連續的變化, 也可能在數個固定的值之間來回跳躍,跳躍的大小隨溫度的變化較不明顯,一般認為若系統 中的存在二能級系統(two-level system;TLS),則量測時很可能會有 telegraph noise [7][12], 這也是我們認為 RuO2 奈米線中存在大量 TLS 的證據之一。除了以上兩種外,電阻的值也有 可能以較慢的速度上下浮動,可能的原因很多,例如電力來源不穩定造成訊號的起伏即是可 能原因之一。我們所量測到的電阻漲落主要是以上幾種疊加在一起,因此往往行為不是那麼 單純,增加了分析上的困難。



圖 4-11 樣品 081116d_HGED 的隨時變電阻數據



4-2 電導漲落大小隨溫度變化的分析

由於我們樣品中的 telegraph noise 發生頻率極不規則,且大小有時也沒有規律可言,伴隨 其他漲落後分析相當困難,因此我們對電導漲落的分析著重在較快速的漲落。我們首先以較 定量的方式決定電導漲落的大小 δG 隨溫度的變化,之後以隨時變 UCF 的理論來分析其行為。

4-2-1 計算電導漲落大小δG

在每一固定的溫度我們量測至少10000秒的隨時變電阻數據,倒數後換算成電導,我們 將電導的標準偏差定義為電導漲落大小

$$\delta G^2 = \left\langle \left(G - \left\langle G \right\rangle \right)^2 \right\rangle \quad , \tag{4-1}$$

由於隨時變電導漲落中包含 telegraph noise,選取不同時間區間的數據來計算所得到的 δG 變 化很大,為了更定量決定 δG ,我們採取以下步驟:

(1) 首先指定一個時間尺度(time scale)為計算標準偏差的時間範圍,接著由 G(t)的數據從 t=0

開始每隔一固定時間間隔選取一時間尺度範圍的數據計算其標準偏差,如圖 4-13 為時間 尺度 200 sec、間隔 2 sec 的例子,如此我們會得到一包含有許多不同大小的標準偏差之集 合,如圖 4-13(b)。

- (2)由(1)計算得到的標準偏差集合,我們根據大小統計其分佈,並找出分布最大值所在的標準偏差大小,作為在此時間尺度下最有可能的δG,如圖4-13(c)。
- (3) 改變不同的時間尺度以相同的時間間隔計算標準偏差並統計其分布,如圖 4-13(d)為標準 偏差大小在不同時間尺度下的分布密度圖,在不同時間尺度下分布最大值δG如圖 5-13(e),當時間尺度太大導致數據區間內包含太多 telegraph noise 會使δG變大,因此我們 只取時間尺度較小的δG,如圖 4-13(e)中的例子時間尺度最大取到 1200 秒。

由於 telegaph noise 發生的頻率較低,因此包含在時間尺度內的機率也較低,由以上方法 我們可以避免 telegraph noise 對計算標準偏差造成影響,僅針對快速漲落的標準偏差分析。由 不同溫度的隨時變電導數據,我們可以得到不同時間尺度下的δG對溫度的關係,如圖 4-14 至圖 4-18。





圖 4-13 決定 δG 的步驟



圖 4-15 樣品 081002a_ABCD 的 δG 對溫度的變化



圖 4-17 樣品 081116d_HGED 的δG 對溫度的變化



由於編號第1的樣品 081003a_DEFG 量測隨時變電阻的溫度較少,數據相對較不完整,因此本節僅針對編號第2至第4的樣品做分析,其中編號第4的樣品 081116d_HGED 其取樣頻率為5Hz,相較其他樣品的取樣頻率為1Hz 其數據較為可靠,且在長度的誤差也較小,因此我們的分析會以樣品4的結果為主要參考指標。

4-2-2 以一維與三維 UCF 隨溫度的變化分析數據 (未考慮熱平均效應)

我們首先考慮單一雜質所造成的漲落大小與可動雜質比例飽和情況下所造成的漲落大小,由於我們的系統為奈米線,系統可能維度為一維或三維。

單一雜質移動所造成的漲落大小為:

$$- \pounds : \delta G_1^2 = 72\pi \frac{e^4}{h^2} \frac{\alpha (k_F \delta R)}{(k_F l)^2} \frac{lL_{\phi}}{L_x L_y} \frac{L_{\phi}^4}{L_z^4}$$
(4.2)

其中 $\alpha(k_F \delta R) \sim 1(假設雜質移動距離夠大)。$

可動雜質比例飽和時所造成的漲落大小為:

$$- \pounds : \frac{\delta G_p^2}{G^2} = 177.7 \frac{1}{k_F^4 l^2 L_{\phi}^2} \frac{L_{\phi}^4}{L_x^2 L_y^2} \frac{L_{\phi}}{L_z}$$
(4.4)

$$\frac{1}{\tau_{\phi}} = \frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_{in}(T)} , \qquad (4.6)$$

其中 τ_s 為與溫度無關的 residual scattering time,與溫度有關的項可寫成 $1/\tau_{in}(T) = AT^P$,源自於電子的非彈性碰撞。因此我們可以把 L_a 寫成以下形式

$$L_{\phi} = \sqrt{\frac{D}{B + AT^{P}}} \tag{4.7}$$

代入漲落大小的公式中,對我們量測所得到的 δG 隨溫度的變化做擬合決定出參數A、B與P, 得到 L_{ϕ} 對溫度的變化。

由於在公式中唯一隨溫度變化的 L_{ϕ} 所假設的數學形式在低溫下會飽和,與我們實驗結果

一致,因此理論曲線均可與實驗數據擬合的相當好,我們主要從 L_o的大小與 P 的值是否合理 來判斷我們所觀察到的漲落適用於何種條件下的 UCF。



圖 4-19 樣品 081002a_ABCD 的 $\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 大小作擬合



圖 4-21 樣品 081002a_EFGH 的 $\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 大小作擬合

•			
From 1D saturated UCF fitting	В	А	Р
081002a_ABCD	1.64E+11	1.97E+10	2.28
081002a_EFGH	1.95E+10	8.76E+08	2.11
081116d_HGED	5.92E+09	4.21E+08	2.14
From 3D saturated UCF fitting			
081002a_ABCD	1.10E+11	2.00E+10	4.12
081002a_EFGH	7.38E+08	8.58E+06	4.44
081116d_HGED	9.80E+05	3.96E+04	4.29
From 1D single impurity UCF fitting			
081002a_ABCD	6.32E+09	5.26E+08	1.94
081002a_EFGH	9.16E+08	4.62E+07	1.69
081116d_HGED	5.29E+08	3.09E+07	1.76
From 3D single impurity UCF fitting			
081002a_ABCD	6.24E+11	7.49E+10	2.28
081002a_EFGH	1.39E+07	7.53E+05	2.09
081116d_HGED	2.11E+06	1.50E+05	2.14

 $\frac{1}{\tau_{\phi}} = \frac{2}{\tau_s} + \frac{1}{\tau_{in}(T)} = B + AT^P$

表 4-4 $\delta G(T)$ 對一維與三維 UCF 擬合結果

我們首先對與溫度有關的非彈性散射時間與溫度的次方項 P 值稍做討論,由弱局域效應 的研究中,不同的物理機制所造成的 dephasing 可能導致不同的 P 值,若 dephasing 由電子-聲子交互作用造成,可能造成 P=2、3 或 4 [14,15,16],若是由電子-電子相互作用所造成 dephasing,則 P=2/3 (一維)或 P=3/2 (三維) [17],當然 dephasing 也有可能同時由一種以上的 物理機制造成,綜合來看,較合理的 P 值應該不會超過 5。

由表 4-4 我們得到的 P 值大小似乎都還算合理,值得注意的是以相同的方程式作擬合不同樣品的 P 值似乎都差不多,由於擬合所得的 P 值與方程式中的 L_{ϕ} 的次方有關,這表示我們 樣品的非彈性散射時間隨溫度變化的 power law 都差不多,這或許意謂著造成非彈性散射的 物理機制是一樣的,由 δG 對溫度變化的 log-log 作圖也可看出此一趨勢(圖 4-18)。

考慮圖 4-21 第四個樣品 081116d_HGED 低溫下 L_g對溫度的變化,除了對一維飽和 UCF 擬合所得到的 L_g在最低溫飽和值約在 240nm 左右較合理外,其他條件下 L_g的長度都太大,同

樣在樣品 081002a_EFGH 也是以一維飽和 UCF 較合理。

以上討論均尚未考慮熱平均效應。在 $L_{\phi} << L_{r}$ 的條件下,可忽略熱平均效應,其中 thermal diffusion length

$$L_T = \sqrt{\frac{D\hbar}{k_B T}} \quad \circ \tag{5.8}$$

但我們樣品可能沒有滿足此一條件,由樣品的 diffusion constant 我們可以計算 thermal diffusion length 對溫度的變化,如圖 4-22,可以發現我們樣品的 thermal diffusion length 實際上很小,若 dephasing length 大小如我們之前擬合的結果,例如樣品 081116d_HGED 以一維飽和的 UCF 擬合出低溫下 L_{ϕ} 約 100nm 至 200nm,不滿足 $L_{\phi} << L_{T}$,應該要考慮熱平均效應才合理,因此 接下來的分析我們嘗試加入熱平均效應來解釋我們的數據。





4-2-3 一維飽和 UCF:考慮熱平均效應

 $L_{\phi} >> L_{T}$ 的條件下,考慮熱平均效應後對一維飽和 UCF 的修正為[8]

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 177.7 \frac{1}{k_F^4 l^2 L_{\phi}^2} \frac{L_{\phi}^4}{L_x^2 L_y^2} \frac{L_{\phi}}{L_z} \times \left(\frac{L_T}{L_{\phi}}\right) , \qquad (4.9)$$

以同樣方法做擬合結果如圖 4-23。



圖 4-23 $\delta G(T)$ 對加入熱平均效應修正的一維飽和 UCF 大小作擬合

081002a_ABCD	В	А	Р
Fit to 0.3K	3.20E+11	3.96E+08	4.62
Fit to 1K	1.67E+11	3.08E+10	2.00

081002a_EFGH	В	А	Р
Fit to 0.3K	1.14E+10	9.31E+05	5.10
Fit to 1K	8.82E+09	4.65E+06	4.44

081116d_HGED	В	А	Р
Fit to 0.3K	1.79E+09	6.64E+05	4.45
Fit to 1K	1.31E+09	1.25E+07	3.06

表 4-5 $\delta G(T)$ 對加入熱平均效應修正的一維飽和 UCF 大小的擬合結果

由擬合的結果可以發現,由於加入一維飽和條件下的 thermal average factor L_T/L_{ϕ} ,方程式 隨溫度變化會多了一個 $T^{-1/2}$ 項,因此漲落行為在低溫下不會飽和,而是會持續上升,與我們 的實驗結果行為不一致,因此理論的曲線很難與我們實驗的數據擬合的很好。

1896

由於加入熱平均效應會導致漲落變小為原來的 L_r/L_{ρ} 倍,導致所需的 L_{ρ} 變大。比較加入 熱平均效應修正前一維飽和 UCF 的 L_{ρ} 擬合結果與修正後結果,修正前 L_{ρ} 較長的 081116d_HGED 在修正後增加最多,而原來 L_{ρ} 最小的 081002a_ABCD 修正後和原來差不多。

考慮 thermal diffusion length 在低溫時會劇烈上升,在低溫時 $L_{\phi} < L_{T}$ 的情況可能會發生, 所以我們也嘗試只對較高溫(>1K)的漲落大小作擬合,擬合結果 L_{ϕ} 低溫飽和大小與擬合至最低 溫的結果差不多,低溫下除了 081002a_ABCD 外沒有 $L_{\phi} < L_{T}$ 的情形發生,由於不同樣品 P 值 變化很大,且擬合的數據點數太少,因此可信度還有待商榷。

以上分析是考慮La >> Lr 條件下的熱平均效應,若考慮La 與Lr 大小差不多時,在一維飽

和條件下我們使用 Beenakker 的公式[13]

$$\delta \mathbf{G}^2 \approx C \left(\frac{e^2}{h}\right)^2 \left(\frac{L_{\phi}}{L}\right)^3 \left(1 + \frac{9}{2\pi} \left(\frac{L_{\phi}}{L_T}\right)^2\right)^{-1} , \qquad (5.10)$$

為了符合我的數據,除了 L_p外,我們設定 C 為一可變的參數,並觀察不同大小的 C 對應的擬合狀況。

由擬合的結果(圖 4-24)可以看到,當C較大時,理論的曲線與實驗數據較相符,但擬合 出來的L_a < L_T,且會小於奈米線的線寬,導致一維的假設不符合。當我們嘗試減小C的值, 則L_a會增加而有L_a > L_T,但此時函數形式會趨近為

$$\delta G^2 \approx C' \left(\frac{e^2}{h}\right)^2 \left(\frac{L_{\phi}}{L}\right)^3 \left(\frac{L_{\tau}}{L_{\phi}}\right)^2 \propto \frac{L_{\phi}}{T} , \qquad (4.11)$$

在低溫時不會有飽和的情況發生, 與實驗數據不符, 因此當 C 值越小, 擬合的曲線會慢慢偏 離實驗結果, 且得到的參數也較不合理(P>5)。1896







圖 4-24 各個樣品的 $\delta G(T)$ 對 Eq.(4.10)作擬合

4-2-4 一維未飽和 UCF:考慮熱平均效應

我們考慮另一種情況下的熱平均效應,也就是可動雜質濃度還未飽和時的情況。首先我 們使用一維微觀系統中單一雜質移動造成的漲落大小

$$\delta G_1^2 \approx \left(\frac{e^2}{h}\right)^2 \left(k_F l\right)^{-2} \left(\frac{L_{\phi} l}{L_x L_y}\right) \alpha \left(k_F l\right) , \qquad (4.12)$$

若考慮多個可動雜質,在未飽和情況下假設雜質濃度為n_a(T),微觀系統中漲落大小為

$$\delta G_{\phi}^{2} \approx \delta G_{1}^{2} n_{s}(T) \Omega_{\phi}, \ \Omega_{\phi} = \begin{cases} L_{x} L_{y} L_{z} & 1D \\ L_{x} L_{\phi}^{2} & 2D \\ L_{\phi}^{3} & 3D \end{cases}$$
(4.13)

把巨觀系統視為多個微觀系統組合而成,總體的漲落大小會有以下關係

$$\left(\frac{\delta G}{G}\right)^2 = \frac{1}{N} \left(\frac{\delta G_{\phi}}{\delta G_{\phi}}\right)^2, \qquad (4.14)$$

考慮非飽和下的熱平均效應的影響,一維系統中的電導漲落可寫為

$$\delta G^2 \approx \left(\frac{e^2}{h}\right)^2 n_s(T) (k_F l)^{-2} \left(\frac{lL_F^2 L_{\phi}^3}{L_z^3}\right) \alpha (k_F \delta r) \quad , \tag{4.15}$$

其中可動雜質(二能級系統)濃度 $n_s(T)$ 一般而言可能有跟溫度成正比的關係,因此我們假設 $n_s(T) = nT \text{ m}^3$,我們嘗試以不同數量級的n代入,擬合出相對應的 L_{ϕ} ,由 L_{ϕ} 的大小合理與否可估計可能的雜質濃度所在數量級。

由於 $n_s \propto T$,與 $L_T^2 \propto T^{-1}$ 剛好相抵消,因此 Eq.(4.15)中與溫度有關的項只剩 L_{ϕ}^3 ,與一維 雜質濃度飽和的 UCF 相同,因此曲線均可與數據擬合的很理想,擬合出來 P 值大小也都差不 多。



圖 4-26 由樣品 081002a_EFGH 的 $\delta G(T)$ 對一維未飽和 UCF 大小作擬合所得 $L_{\phi}(T)$ 。


圖 4-27 由樣品 081116d_HGED 的 $\delta G(T)$ 對一維未飽和 UCF 大小作擬合所得 $L_{\phi}(T)$ 。

我們假設樣品在低溫下 L_{ϕ} 飽和的大小約在100nm 至300nm,由擬合得到的 L_{ϕ} 估計樣品n

的數量級如下表 4-6。

sample	$n ({ m m}^{-3}/{ m K})$
081002a_ABCD	$10^{23} \sim 10^{25}$
081002a_EFGH	$10^{25} \sim 10^{27}$
081116d_HGED	$10^{26} \sim 10^{28}$

表 4-6 以熱平均效應下一維未飽和 UCF 作擬合估計之 n 的數量級。

作為比較,我們計算 RuO₂的原子密度約為10²⁹ m⁻³[11],若假設全為雜質,並且假設低 溫下 $L_{\phi} \sim 100 \text{ nm}$, $l \sim 1 \text{ nm}$,達到飽和所需的可移動雜質最多只需10²⁹× $\left(l/L_{\phi}\right)^{2} \sim 10^{25} \text{ m}^{-3}$, 比較之下我們所估計未飽和的移動雜質濃度 $n_{s} = nT$ 數量級都太大,由此推測我們所觀測到的 UCF應該已經飽和,且樣品中可動雜質濃度可能很高。

4-3 δG 隨磁場的變化

由理論我們知道磁場會抑制粒子-粒子通道對電導漲落的貢獻,當磁場大於 $H_{c1} \approx \phi_0 / A_B$ 時 有 $\delta G^2 = \frac{1}{2} \delta G_0^2$,其中 δG_0^2 為零磁場下的電導漲落大小, A_B 為 coherent area ($A_B = L_x L_{\phi}$ in quasi-1D case),若假設 0.3K 時 $L_{\phi} \sim 100$ nm,則 $H_{c1} \sim 0.4$ Tesla。

為了分析隨時變電導漲落對磁場的變化,針對樣品 081116d_HGED 我們以較慢的速率增加磁場大小(sweep rate = 0.005 Tesla/min)同時量測電阻隨時間的變化,如圖 4-28。取時間尺 度為1分鐘,則在時間尺度內的磁場變化量約只有 0.005 Tesla,假設 0.005 Tesla 的磁場變化 量對δG的改變不大,每隔 20 秒對1分鐘內的數據計算一次標準偏差,我們可大略得到δG²對 磁場的關係,如圖 4-29。

圖 4-29 中 δG^2 出現較大峰值起因於計算的數據中包含了較大的跳躍,忽略這些較大峰值 我們可以約略看出當磁場由 0 Tesla 增加到 1 Tesla, δG^2 僅有些微增加的行為,顯然不符合理 論的預測 $\delta G^2 = \frac{1}{2} \delta G_0^2$,其他樣品雖然磁場變化的速率較快(0.06 Tesla/min),從磁電阻的數據 1896 中也沒有發現雜訊明顯變小的情況,可能的原因目前還有待研究。



圖 4-29 對圖 4-28 以 60sec 為時間尺度作標準偏差計算所得到的 $\delta G^2(B)$ 。

4-4 電阻率隨溫度變化的分析

由於 telegraph noise 的跳動,導致我們重複量測 R(T)行為都不太相同,更進一步也可以 說 telegraph noise 中每個可跳躍的電阻值亦隨溫度變化,各自反映一條 R(T)。我們由原始數 據中截取出較連續數據作為 R(T),取平均後如圖 4-30 (logT scale)與圖 4-31 (T^{1/2} scale)。

定性上描述,四個樣品的 R(T)行為上大致類似,在較高溫區域 R(T)具有對數依屬關係, 在略低於對數依屬的的溫度區間,約略有 \sqrt{T} 的依屬關係,在接近 base temperature 附近,電 阻均趨於飽和。

No.	sample	\sqrt{T} dependence	logT dependence
1	081003a_DEFG	0.8K~2.5K	1K~8.5K
2	081002a_ABCD	0.7K~3K	1.2K~8.6K
3	081002a_EFGH	8K~37K	22K~40K
4	081116d_HGED	1K~5K	1.4K~8.8K

表 4-7 各樣品的電阻對溫度的相依關係與溫度區間



圖 4-30 各樣品平均後的電阻對溫度的 logT 作圖



4-4-1 弱局域效應與電子-電子相互作用對電阻的修正量分析

對於電阻率低溫下隨溫度下降而上升的行為的分析,我們首先考慮電子-電子相互作用與弱局域效應的貢獻。由於4號樣品 081116d_HGED 的電阻率較合理,且樣品尺寸較能明確決定,在此我們僅針對 081116d_HGED 討論。

在一維與三維的無序金屬系統中,電子-電子相互作用對電阻的修正為[19]:

$$\delta\sigma_{\rm d}^{\rm (D)}(T) = \frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \left(\frac{4}{d} + \frac{3}{2}F\right) \left(\frac{k_B T}{\hbar D}\right)^{d/2-1} \times \begin{cases} -4.91, \ d=1\\ 0.915, \ d=3 \end{cases}$$
(4-16)

其中 d 為有效維度,用以判斷維度的特徵長度為 thermal diffusion length L_T , F 為等效屏蔽參數, 一般在金屬中 F~0。

準一維與三維弱局域效應對電阻的修正為[18]

quasi-1D
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{h} \frac{1}{S} \left(L_{\phi} - l_e \right)$$

3D $\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{2\pi h} \left(\frac{1}{l_e} - \frac{1}{L_{\phi}} \right)$, (4-17)

其中電子自旋簡併 s=2,S 為奈米線截面積,L₀我們使用一維飽和下 UCF 的擬合結果來估計 其大小(低溫下飽和值約 200 nm)。



圖 4-32 樣品 081116d_HGED 的 R(T)與弱局域效應、電子-電子相互作用的貢獻作比較。

由圖 4-32 的結果顯示,電子-電子相互作用與弱局域效應對低溫下電阻上升的貢獻都在 0.5%以下,而 RuO2奈米線低溫下電阻上升量可高達約 10%,由此可見顯然有其他效應造成 低溫下電阻的上升,我們推測很有可能是 RuO2奈米線中存在二能級系統所造成的非磁性近藤 效應。

4-4-2 二能級近藤效應對電阻的修正

二能級系統中,雙位能井能量差 Δ 的不同,可能對電阻隨溫度的變化造成不同的影響(圖 2-16),由前面的觀察,RuO₂奈米線的電阻由高溫至低溫大致上都有對數依屬轉 \sqrt{T} 依屬的行 為,與 $\Delta << T_{\kappa}$ 的情況(圖 2-16 右)相似。

在 $\Delta << T_K$ 的情況,二能級系統與導電電子相互作用下,其能量的型式可類比為雙通道近藤效應,導致在低溫 strong-coupling 極限下會出現 non-Fermi-liquid 行為,此時電阻對溫度會 $f\sqrt{T}$ 的依屬關係,1993 年 Affleck 與 Ludwig 提出其電阻率隨溫度的變化為[13]

$$\rho_{2CK}(T) = \frac{3n_i}{4\pi\hbar \left[eN(0)v_F\right]^2} \left[1 - 4\lambda\sqrt{\pi T}\right]$$
(4-18)

其中 n_i 為TLS的密度;N(0)為費米面附近的能態密度,由RuO₂的理論計算得到約為 1.7 states eV⁻¹ spin⁻¹ cell⁻¹[11],換算後約為 3.4×10^{47} states J⁻¹ m⁻³; $\lambda \approx (T_{2CK})^{-1/2}$,可由溫度由 高而低開始出現 \sqrt{T} 依屬的起始溫度約為 $\frac{1896}{4}T_{2CK}$ 來估計[20]。

針對 081116d_HGED 的 ρ -T曲線,我們以 ρ =A+BT^{1/2}的形式對 \sqrt{T} 相依區間作擬合, 如圖 4-33,由B可得到 TLS 的濃度 $n_i \sim 10^{28}$ m⁻³,與 4-2-4 節時由未飽和 UCF 所估計的可移 動雜質密度剛好差不多在同一個數量級,然而這裡也同樣存在估計出來密度過高的問題,有 待進一步的修正與分析。



圖 4-33 樣品 081116d_HGED 的 R(T)中 √T 依屬的溫度區段對 Eq.4-18 作擬合。

4-5 Power Spectrum Density

為了更進一步了解 RuO₂的電導漲落特性,我們將隨時變的電導漲落數據透過離散傅立葉 轉換(Discrete Fourier Transform),轉換為 Power Spectrum Density (PSD)。

由離散數據的頻譜分析原理,PSD 所能分析的頻率上限受限於取樣頻率,為取樣頻率的 一半,又稱 Nyquist frequency,因此樣品 081002a_ABCD 與 081002a_EFGH 的 PSD 頻率上限 為 0.5 Hz,樣品 081116d_HGED 的 PSD 頻率上限為 2.5 Hz,而轉換前的隨時變數據大部分量 測時間都在 10000 秒,因此在 PSD 數據中能參考的頻率範圍在10⁻³ Hz 與 Nyquist frequency 之間,由於可分析的頻率範圍很小,我們僅定性上分析 PSD 的結果,為了更清楚觀察 PSD 的行為,以下 PSD 數據均經過平均的處理。







由三個樣品的 PSD diagram 我們有以下討論:

- (1) 隨著頻率下降 PSD 均有上升的趨勢,且大致上有 1/f 的依屬關係,符合無序金屬中低頻電導雜訊為 1/f noise 的理論預測,作為比較我們在室溫下量測一 5 kohm 電阻的 PSD,並沒 有發現 1/f noise 行為,顯示 1/f noise 應源自於樣品,而發非儀器造成。
- (2) 在 081116d_HGED 的 PSD diagram 中 0.97 Hz 與 1.30 Hz 的位置有明顯的峰值,對照 5 kohm 電阻的 PSD 在相同位置也有峰值,我們判斷該峰值的來源應為儀器所造成。
- (3) PSD 的斜率發生變化而偏離 1/f noise,可能是由於 Lorentzian noise 的影響造成,但是因為 頻率範圍太小,無法藉由擬合得到其特徵時間τ。

第五章、結論

我們量測 RuO₂ 奈米線的低溫電性,發現在 10K 左右以下的低溫電導漲落隨溫度降低而 有明顯的增大,為普適電導漲落的特徵現象之一,我們認為可能是 RuO₂ 奈米線中的二能級系 統導致雜質移動造成的現象,針對快速的漲落大小隨溫度的變化我們嘗試做定量的分析,在 未考慮熱平均效應下,理論可與實驗擬合的很好的,以一維飽和的 UCF 所得到的 L₀ 最合理, 但是由於 L₀ < L_T,必須考慮熱平均效應的影響。考慮熱平均效應後我們做了以下分析:

- (1) 在 L_φ >> L_T 條件下考慮熱平均效應後的一維飽和 UCF 理論曲線與實驗做擬合,理論曲線 行為與實驗數據不符。
- (2) 以L,與L,大小差不多為前提修正的一維飽和 UCF 公式也難以與實驗結果吻合。
- (3) 若假設 UCF 未飽和,在一維系統考慮熱平均效應的條件下雖然理論能和實驗數據擬合的 很好,但擬合結果會得到過高的可移動雜質濃度,不符合 UCF 未飽和的條件 $p < (l/L_{\phi})^2$, 因此我們認為所量測到的 UCF 應已飽和。

目前考慮熱平均效應後的分析還未有一個理想的結果,有待進一步的討論與分析。另外 在隨時變電導漲落隨磁場變化量測中,我們得到磁場增加電導漲落也跟著增加的結果,與UCF 理論指出漲落大小在磁場下應減小的敘述不符,這方面有待進一步的討論。

在 R(T)的量測中,我們發現低溫電阻上升的變化量遠高於電子-電子相互作用與弱局域效應可能造成的修正量,且電阻隨溫度的下降約略有 logT 相依轉 \sqrt{T} 相依的行為,與 TLS Kondo effect 可能導致的行為一致,因此我們認為低溫電阻的異常上升現象為 RuO₂ 奈米線中的二能級系統造成的。

總和電導漲落與 R(T)量測,雖然以自生長機制所製造的 RuO2 奈米線為單晶奈米線,但 是我們認為內部含有大量點缺陷並且形成二能級系統,造成低溫下特殊的傳輸行為。

參考文獻

- J J Lin, S MHuang, YH Lin, T C Lee, H Liu, X X Zhang, R S Chen, and Y S Huang, J. Phys.: Condens. Matter 16 (2004) 8035–8041.
- [2] R. S. Wagner, W. C. Ellis, Appl. Phys. Lett., 4, 89 (1964).
- [3] 黄植正,「氧化釘奈米線之合成與電性研究」,國立清華大學,碩士論文,民國九十一年。
- [4] 王兆祈,「氧化釘奈米線的電性傳輸」,國立交通大學,碩士論文,民國九十七年。
- [5] P. A.Lee, and A. D.Stone, Phys. Rev. Lett. 55, 1622 (1985).
- [6] Jonathan Pelz, and John Clarke, Phys. Rev. B 36, 4479 (1987).
- [7] Shechao Feng, Patrick A. Lee, and A. Douglas Stone, Phys. Rev. Lett. 56, 1960 1963 (1986)
- [8] Shechao Feng, in *Mesoscopic Phenomena in Solids*, edited by B. L. Altshuler, P.A. Lee, and R. A. Webb (Elsevier, New York, 1991).
- [9] A. Douglas Stone, Phys. Rev. B 39, 10736 (1989).
- [10] Aaron James Trionfi, PhD. Thesis, Rice university (2006).
- [11] Keith M. Glassford and James R. Chelikowsky, Phys. Rev. B 47, 1732 (1993).
- [12] D. L. Cox and A. Zawadowski, Advances in Physics, Vol. 47, No. 5, 599-942 (1998).
- [13] C. W. J. Beenakker and H. van Houten, Phys. Rev. B 37, 6544 (1988).
- [14] J. Rammer and A. Schmid, Phys. Rev. B 34, 1352 (1986).
- [15] M. Yu. Reizer and A. V. Sergeyev, Zh.E 'ksp. Teor. Fiz. 90, 1056 (1986) [Sov. Phys. JETP 63, 616 (1986)].
- [16] D. Belitz, Phys. Rev. B 36,2513 (1987).
- [17] B. L. Al'tshuler, A. G. Aronov, M. E. Gershenson, and Yu. V. Sharvin, Sov. Sci. Rev., Sect. A 9, 223 (1987).
- [18] *Mesoscopic physics of electrons and photons*, by Eric Akkermans and Gilles Montambaux.
- [19] Electron-electron interaction in disordered system, edited by A. L. Efros and M. Pollak.
- [20] Sheng-Shiuan Yeh, and Juhn-Jong Lin, Phys. Rev. B 79, 012411 (2009).
- [21] F. Pobell, Matter and Methods at Low Temperatures (Springer, 1996).
- [22] Charles Kittel, Introduction to Solid State Physics 8th ed. (WILEY, 2005)

- [23] J. J. Lin, W. Xu, Y. L. Zhong, J. H. Huang, and Y. S. Huang, Phys Rev. B 59, 344 (1999).
- [24] C. P. Umbach, S. Washburn, R. B. Laibowitz, and R. A. Webb, Phys Rev. B 30, 4048 (1984).
- [25] Ian Affleck, Andreas W. W. Ludwig, Phys Rev. B 48, 7297 (1993).

[26] 莊達人, VLSI 製造技術,民國八十七年四版,高立圖書。

