國立交通大學

物理研究所

碩士論文

單根錫掺雜氧化銦奈米線中量子干涉傳輸之研究

Quantum-Interference Transport in Individual Indium Tin

Oxide Nanowires

研究生:許耀文

指導教授:林志忠教授

中華民國九十九年七月

單根錫掺雜氧化銦奈米線中量子干涉傳輸之研究

Quantum-Interference Transport in Individual Indium Tin

Oxide Nanowires

研究生:許耀文

Student: Yao-Wen Hsu

指導教授:林志忠 教授

Advisor: Juhn-Jong Lin



July 2010

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國九十九年七月

單根錫掺雜氧化銦奈米線中量子干涉傳輸之研究

學生:許耀文

指導教授:林志忠 教授

國立交通大學物理研究所碩士班

摘要

ITO近年來由於它的高透射率、低電阻率等優點,被廣泛運用在的液晶顯示器,觸控面板和太陽能電池中。也因為ITO對人類的科技有很大的貢獻,所以它的導電機制及各種特性值得被深入的研究。

我們量測一系列無序程度不同的奈米線,電子的相位破壞長度(L_{φ})從弱 局域效應對磁電阻的分析中取得,其值隨著溫度上升而漸漸縮短,當 L_{φ} 跟樣品 的直徑差不多的時候,弱局域效應便會由一維轉到三維。我們在較有序(室溫電 阻率約200 $\mu\Omega-cm$)的樣品發現了很長的 L_{φ} ,從0.25 K到40 K約為520 nm到150 nm,在整個測量的溫區間都顯示出一維弱局域效應的行為。然而在較無序的樣品 中(室溫電阻率約1000 $\mu\Omega-cm$),我們得到的 L_{φ} 在0.26 K約為200 nm,當溫度升 高時, L_{φ} 在約12 K的時候變得小於我們奈米線的直徑,弱局域效應也因此由一 維轉到三維。值得一提的是,我們在兩個無序程度較高的奈米線中都看到了因無 序造成的自旋-軌道交互作用,並且在低溫出現了反弱局域效應,這證實了ITO 的相位破壞長度與自旋-軌道交互作用的強度可以藉由無序程度的改變而調控。

Quantum-interference transport in individual indium tin

oxide nanowires

Student: Yao-Wen Hsu

Advisor: Prof. Juhn-Jong Lin

Institute of Physics National Chiao Tung University

Due to its high optical transparency and low resistivity, ITO has been widely used in LCDs, touch panels and solar cells in the recent years. Because of its huge contribution to human's technology, the conduction mechanisms and electrical properties of ITO deserve more in-depth studies.

Abstrac

We have measured a series of ITO nanowires with different levels of disorder. The electron dephasing lengths, which decrease with increasing temperature, are extracted from weak-localization magnetoresistance measurements. When the dephasing length is close to the nanowire diameter, the weak-localization effect will cross over from being one-dimensional to being three-dimensional. In one low-resistivity ($200 \mu\Omega - cm$ at 300 K) nanowire, a long dephasing length was observed, which varied from about 500 nm at 0.25 K to 150 nm at 40K. Therefore, the nanowire revealed one-dimensional behavior over the whole measurement temperature range. In one high-resistivity ($1000 \mu\Omega - cm$ at 300 K) sample, we got a dephasing length of 200 nm at 0.26 K. When the temperature increased, L_{φ} became smaller than the diameter of the sample, and hence a crossover from one-dimensional to

three-dimensional weak-localization effect was observed. In particular, we found disorder-induced spin-orbit interaction in the high-resistivity sample. In this case, weak anti-localization occurred in the low temperature region. This result demonstrates that the dephasing length and the strength of spin-orbit interaction can be tuned by varying the level of disorder in ITO nanowires.



致 謝

首先感謝指導教授林志忠老師讓我進入這個研究團隊,提供非常豐沛的資源,並且在我遇到瓶頸的時候,可以指引我一個正確的方向能夠繼續前進,也讓 我學習到研究必須有的那份嚴謹的態度。

感謝口試委員鐘元良老師和林俊源老師對這份論文的建議,使這篇文章得以 更加完備。

感謝實驗室的邱紹斌學長,教了我很多研究需要的背景知識,除了給我很紮 實的理論教學外,身為實驗室的大家長,你待人處世那種謙虛的態度更是大家的 好榜樣,謝謝你兩年來的照顧。謝謝賴祐仁學長,你根本是實驗室的小叮噹,大 家不管遇到什麼雜七雜八的問題丟給你,你都會冷靜的給一些很有用的建議,不 曾有任何厭煩,而是很享受解決問題的過程,搏學的程度令人讚嘆。Thanks Vu Thanh Tra's experiment data support in this thesis and enjoy your life in Taiwan, hope next time we can chat in Chinese. ha~ha~.

感謝連安紹、王大衛、黃詠隆、陳奕甫學長特別是連安紹學長的奈米線製作 教學,祝你們離開後一切順利。 1896

謝謝陽光宅宅蔡林宗兩年來的陪伴,不論是碩一修課或者碩二實驗的過程中 你都幫了我很多的忙。謝謝連建期和李瑞康的加入,也使得實驗室多了些生力軍。

謝謝游凱復、楊秉諭、陳朝俊、林珮蓉學弟妹進來後使實驗室多了許多歡樂, 並且幫忙分擔了很多雜務,使我們可以更專心的在研究上,實驗的過程中或許有 很多辛苦的地方,祝福你們可以順利的渡過這一切。

謝謝許多大學或高中的朋友,尤其是室友龍哥和文佳,因為你們讓我回家後 感覺特別的輕鬆,也釋放了一天的壓力。

最後要謝謝我的家人,因為你們的支持,可以讓我專心在我的學業上。

目



	[次
中文提要	i
英文提要	ii
誌謝	iv
目錄	V
表目錄 ······ v	iii
圖目錄	ix
一、緒論・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	1
二、基本理論	6
2-1 弱局域效應	6
2-1-1 波動性與粒子性的相對強度與無序程度的關係	6
2-1-2 時間反演對稱性(Time Reversal Symmetry)	7
2-1-3 弱局域效應對導電率的修正	11
2-2 相位破壞機制	13
2-2-1a 外加磁場對弱局域效應相位破壞的影響	14
2-2-1b 電子-聲子非彈性碰撞	15
2-2-1c 電子-電子非彈性碰撞	17
2-2-2 電子自旋的影響	18
2-2-2a 自旋-軌道散射	19
2-2-2b 自旋-自旋散射·····	21
2-2-3 電子-電子交互作用	21
2-2-3a 粒子—空穴通道(Diffusion Channel)	22
2-2-3b 粒子—粒子通道(Cooper Channel)	23
2-2-3c 電子—電子交互作用對電導的修正	23
2-2-4 低磁場下的磁電阻率	24
三、 實驗方法與原理	27
3-1 樣品來源及製作	27

3-	1-1	光微影	27
3-	1-2	電子束微影	28
3-	1-3	熱蒸鍍	30
3-	1-4	掃描式電子顯微鏡	33
3-	1-5	離子束聚焦系統	35
3-	2	量測方法與低溫量測技術介紹	36
3-	2-1	二點量測	36
3-	2-2	四點量測	37
3-	2-3	強森雜訊	38
3–	2-4	雜訊隔離與靜電防護	39
3-	3-0	低溫量測儀器與原理介紹	40
3–	3	溫度計	41
3-	4	低温致冷器	44
3-	4-1	³ He構造說明Els	44
3-	4-2	降溫原理	47
3-	5	超導磁鐵1090	50
四、實專	<u><u></u></u> <u></u> <u></u> <u></u> <u></u> <u></u>	果與數據分析討論	51
4-	1	樣品資訊及實驗原始數據	51
4-	1-1	電阻率隨溫度變化的實驗數據	52
4-	1-2	磁場下的電阻隨溫度變化的實驗數據	55
4-	1-3	外加垂直磁場的磁電阻原始實驗數據	57
4-	2	垂直磁場下的磁電阻分析	60
4-	2-1	弱局域效應對樣品 ITO_r 磁電阻之擬合結果	60
4-	2-2	弱局域效應對樣品ITO_f磁電阻之擬合結果	63
4-	2-3	弱局域效應對樣品ITO_e磁電阻之擬合結果	69
4-	3	相位破壞長度分析	70
4-	3-1	樣品 ITO_r 的相位破壞長度分析	71
4-	3-2	樣品 ITO_f 的相位破壞長度分析	72
4-	3-3	弱局域效應對R-T的修正	73

	4 - 4	ITO 奈米線的普適電導漲落分析······	76
五、	結論…		81
附錄	••••••		82
參考	文獻 ··		84



表目錄

		頁次
表 2-1	電子分波對(electron partial wave pairs)的各種自旋態	18
表 3-1	各種溫度計特性表	41
表 3-2	本實驗室中各類低溫致冷器所搭配的溫度計	42
表 4-1	樣品資訊及室溫電阻率	51
表 4-2	樣品的溫度特性	54
表 4-3	ITO_r 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數	62
表 4-4	樣品 ITO_f 擬合後得到的 L _{so}	64
表 4-5	ITO_f 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數	66
表 4-6	樣品 ITO_e 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數	70
表 4-7	對樣品 ITO_r 相位破壞長度擬合得到的參數	71
表 4-8	對樣品 ITO_f 相位破壞長度擬合得到的參數	73
表 4-9	樣品 ITO_r 由電導擬合得到的各種參數	79
表 A-1	ITO 薄膜的熱電勢與溫度的關係圖	82

圖目錄

頁次

圖1-1	完美晶格與無序晶格在低溫下電阻率的變化	1
圖1-2	根據波茲曼理論推導電阻率與溫度的關係	3
圖1-3	其他量子理論對低溫電阻的修正	4
圖2-1	隨著不同的無序程度,電子的傳輸行為也會不一樣	7
圖2-2	電子在弱無序系統中移動時會有各種可能的路徑	8
圖2-3	電子在實際空間的散射情形	9
圖2-4	Bergmann在1983年提出來解釋弱局域效應的物理圖像	9
圖2-5	在完美晶格中電子空間各點的機率密度分佈情形	10
圖2-6	考慮弱局域效應的情況下,電子到空間各點的機率密度分佈情	
	形	10
圖2-7	單一電子波函數與自我共軛的項建設性干涉示意圖	11
圖2-8	單一電子波函數與非自我共軛的項建設性干涉示意圖	11
圖2-9	外加磁場時,造成波函數相位變化	14
圖2-10	美薄膜的磁電阻曲線 ·····	14
圖2-11	小磁場範圍的磁阻震盪曲線	15
圖2-12	電子波在各種晶格情況下的散射圖	16
圖2-13	反弱局域效應中,電子從原點出發一定時間後回到原點的機率	
	為1,由於電子-軌道散射影響,使得回到原點的機率只剩0.5…	20
圖2-14	電子-電子交互作用中之粒子-空穴通道之物理圖像	22
圖2-15	電子-電子交互作用中之粒子-粒子通道之物理圖像	23
圖2-16	當自旋-軌道散射率很大的時候,外加磁場無法影響自旋-軌道	
	散射時,電阻會隨著磁場而增強不斷加大	25
圖2-17	當高磁場下,自旋-軌道散射還來不及發生相位破壞的作用,	
	磁場就將電子波的相位破壞了。磁電阻又變回負的	26
圖3-1	光微影Si/Si02基板	27
圖 3-2	電子束微影步驟	28

圖 3-3	電子阻劑轉速 VS PMMA 厚度圖	29
圖3-4	蒸鍍方向造成電極斷路圖	30
圖3-5	光輝放電,利用高壓游離氧離子	31
圖3-6	蒸鍍機示意圖	31
圖3-7	蒸鍍機抽氣系統示意圖	32
圖3-8	電子顯微鏡示意圖	34
圖3-9	FIB沉積示意圖	35
圖3-10	兩點量測示意圖	36
圖3-11	四點量測示意圖	37
圖3-12	由於電表本身有輸入組抗與輸出組抗,所以可瞭解到電表量測	
	上的極限	38
圖3-13	二極體溫度計外觀與裝置使用示意圖	43
圖3-14	外加電流為10µA時,二極體溫度計量測電壓與溫度的關係圖	43
圖3-15	Cernox 溫度計的溫度與敏感度關係圖	43
圖3-16	³ He refrigerator 構造圖	45
圖3-17	HelioxVL 上端構造之上視圖	46
圖3-18	HelioxVL 上端構造之側視圖	46
圖3-19	樣品座,依照不同需求分為垂直與平行磁場兩種	46
圖3-20	³ He 與 ⁴ He 壓力對溫度的關係	48
圖3-21	將 cryo 放進液氦桶內的透視圖	48
圖3-22	³ He 冷凝裝置圖	49
圖3-23	超導磁鐵示意圖	50
圖4-1	Si/Si02 基板上的奈米線 4 點量測的 SEM 影像	51
圖4-2	樣品 ITO_n 的電阻率對溫度曲線	52
圖4-3	樣品 ITO_r 的電阻率對溫度曲線	52
圖4-4	樣品 ITO_f 的電阻率對溫度曲線	53
圖4-5	樣品 ITO_e 的電阻率對溫度曲線	53
圖4-6	樣品 ITO_n 外加垂直磁場下的 R-T 圖	55
圖4-7	樣品 ITO_r 外加垂直磁場下的 R-T 圖	56

圖4-8	樣品 ITO_f 外加垂直磁場下的 R-T 圖	56
圖4-9	ITO_n 的磁電阻原始數據	57
圖4-10	ITO_r 的磁電阻原始數據	57
圖4-11	ITO_f 的磁電阻原始數據	58
圖4-12	ITO_e的磁電阻原始數據	58
圖4-13	樣品 ITO_e 由於雜訊過大,蓋掉了原本的電性	59
圖4-14	樣品 ITO_r 不同溫度下的一維弱局域效應對磁電阻擬合曲線…	61
圖4-15	樣品 ITO_r 全部磁電阻與對應的擬合曲線	62
圖4-16	低温下的正磁阻擬合結果	63
圖4-17	樣品 ITO_f 低溫部分的磁電阻此圖為原始數據	64
圖4-18	樣品 ITO_f 在較高的溫度下一維弱局域效應對磁電阻擬合曲線	65
圖4-19	樣品 ITO_f 在 20K 以三維及一維的弱局域效應擬合結果	68
圖4-20	樣品 ITO_f 在 22K 以三維及一維的弱局域效應擬合結果	68
圖4-21	樣品 ITO_e 的磁電阻以一維弱局域效應擬合結果	69
圖4-22	樣品 ITO_r 相位破壞長度及其擬合曲線	71
圖4-23	樣品 ITO_f 相位破壞長度及其擬合曲線	72
圖4-24	在不同磁場下的電阻對溫度的變化	73
圖4-25	樣品 ITO_r 討論弱局域效應在低溫中對電阻的修正	74
圖4-26	l_{e-e} vs T	75
圖4-27	R vs \sqrt{T} 圖	75
圖4-28	樣品 ITO_r 各個溫度的 TDUCF	77
圖4-29	樣品 ITO_f 各個溫度的 TDUCF	77
圖4-30	樣品 ITO_r 的 &G 對溫度的變化	78
圖4-31	比較樣品 ITO_r 由 UCF 和弱局域效應理論分析出來的 L_{φ}	79
圖A-1	由熱電勢研究找出各種物理參數結果	82

緒論

電子在晶格內的傳輸行為一直是凝態物理中很重要的課題,最早開始討論微 觀電子的運動情形對於導電特性的影響,是想像導電電子在系統中被視為像氣體 分子般的粒子,這些電子即處在一個靜電位勢到處都一樣的空間中運動(假想系 統為完美的晶格構成),稱為自由電子氣模型(free electron gas model)。然而 在這樣的系統中,在低溫時,電子沒有釋放動量的機制,也就是電阻率為零。但 自然界的固體晶格大都不完美,結構的缺陷、不純的雜質使週期性的晶格被破壞 也就是所謂無序(disorder)的系統,造成電子在傳輸過程中因為這些缺陷造成動 量的改變。所以在低溫時,雖然電子和晶格的作用對電阻的貢獻趨近於零,但電 阻不為零而是趨近於一個殘餘電阻率就是因為電子和這些雜質與缺陷散射的影響。

而實驗發現在無序程度夠大的系統中,在低溫時電阻率並不會趨近於一個值 而是有隨溫度下降而上升的趨勢,這時候物理學家使用了兩種理論來修正:「弱 局域效應」與「因無序而增強的電子-電子交互作用」。這邊我們用一個簡單的 圖1-1來表示這些現象。



- 圖1-1 完美晶格與無序晶格在低溫下電阻率的變化 (a)完美晶格在低溫下電阻率為零
 - (b)無序晶格在低溫時電阻率會趨近一個定值
 - (c)殘餘電阻率
 - (d)無序系統下對電阻率的修正

如果要以波茲曼理論推導電阻率在低溫下的行為,可以先從最簡單的電子在 固體中行為模型-自由電子氣模型著手。以統計理論出發,我們知道在某時間內 古典粒子統計必須符合波茲曼分佈 f(r, p,t)。若在某時間內,電子間沒有任何的 碰撞,則電子分佈函數隨時間的變化量為零,也就是 $\frac{df(r, p, t)}{dt} = 0$ 。反之,當電 子間發生了碰撞事件,則電子的分佈函數隨時間的變化量不為零,所以 $\frac{df(r, p, t)}{dt}$ ≠ 0。此時波茲曼做了一個假設近似:

也就是

$$\frac{d(f-f_0)}{dt} = -\frac{f(r, p, t) - f_0(r_0, p_0, t_0)}{\tau}$$
(1-1)

分佈函數隨時間的微分等於分佈函數的變化量除以平均時間其中 fo為分佈函數 的初始態, f 為改變後的分佈函數, r 為回復時間。由此方程式可看成有一回復 力使其回復到原本的狀態。而(1-1)式可進一步改寫為:

$$\frac{d(f-f_0)}{dt} = \frac{\partial f}{\partial r} \frac{d}{dt} + \frac{\partial f}{\partial p} \frac{d}{dt} + \frac{\partial f}{\partial p} \frac{d}{dt} + \frac{\partial f}{\partial t} = -\frac{f(r, p, t) - f_0(r_0, p_0, t_0)}{\tau}$$
(1-2)
$$\frac{d(f-f_0)}{dt} = \frac{\partial f}{\partial t} + v \cdot \nabla_r f + F \cdot \nabla_p f = -\frac{f(r, p, t) - f_0(r_0, p_0, t_0)}{\tau}$$
(1-3)

波茲曼的第二個假設分佈函數是線性的: $f(r, p, t) = f_0(r_0, p_0, t_0) + f_1(r_1, p_1, t_1)$ 其中 $f_0(r_0, p_0, t_0)$ 是常數,帶入(1-3)式 其中 $\varepsilon = \frac{p^2}{2m} \Rightarrow \frac{d\varepsilon}{dp} = \frac{p}{m} = v$,所以

$$\frac{\partial p}{\partial f} = \frac{\partial (f_0 + f_1)}{\partial p} \approx \frac{\partial f_0}{\partial p} = \frac{d f_0}{d p} = \frac{\partial f_0 d \varepsilon}{\partial \varepsilon d p} = \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} v = \frac{d f_0}{d \varepsilon} v \qquad (1-4)$$

這邊我們假設f.很小(表示第一階修正很小)。而在一恆穩態的系統中(steady state),如考慮外加一直流通過系統F = -eE,則由(1-4)出發可推得電導與電 阻率為

$$\sigma = \frac{ne^2\tau}{m} ; \ \rho = \frac{m}{ne^2\tau} \tag{1-5}$$

不過 ρ 是統計電子總效應的表現,不同的散射事件對電阻的貢獻是相加,譬如電子-聲子散射率 $\frac{1}{\tau_{ep}}$ 、電子-雜質散射率 $\frac{1}{\tau_e}$ …等。所以在電阻率的表現上

$$\rho = \frac{m}{ne^2\tau} = \frac{m}{ne^2\tau_i} + \frac{m}{ne_2\tau_{en}}$$
(1-6)

在高溫時,電阻主要的來源是電子和聲子的非彈性碰撞。而電子聲子碰撞的機率 又和聲子的數目 (N_{ph}) 有關,又因為 N_{ph} 與溫度成正比,所以在高溫時,電阻率 會有 $\frac{m}{ne^{2}\tau_{ep}}$ =AT也就是跟溫度成正比的行為。而在高溫往低溫時 $\frac{m}{ne^{2}\tau_{ep}}$ =BT⁵的 行為會出現。綜合低溫與高溫的行為,電阻率與溫度的關係表示如圖1-2。



圖1-2 根據波茲曼理論推導電阻率與溫度的關係:在高溫時,電阻率由電子-聲子散射主導與溫度成正比;而低溫的部分,電阻率正比於溫度的五次 方。在接近絕對零度時,電阻率會逼近一個殘餘電阻值

但在上述物理情況中,我們未考慮到電子波動性與晶格缺陷所造成的影響, 且在低溫時隨著維度皆有不同的量子修正。當系統不再為完美的單晶,即系統中 存在缺陷、參雜其他元素,而導致系統的無序程度增加時,電子於低溫下的傳輸 行為,就不再如同波茲曼傳輸理論所預測,如圖1-3 所示。此時就需要借助量子 力學,考慮電子的波動性來修正。



圖1-3 其他量子理論對低溫電阻的修正電阻於低溫部份開始往上升,而非波茲曼 理論所預測的殘餘電阻率。各種尺寸的無序導線和無序塊材的溫度-電阻 圖。數據以12K的值做歸一化(Giordano et al., 1979¹)。

本篇論文主要結構如下

第一章、緒論

簡介電子波動性與粒子性,並說明波茲曼理論所遇到的問題。

第二章、基本理論

介紹弱局域效應與電子-電子交互作用,探討各種破壞相位機制的情況,並說明如何藉由磁電阻的分析,得到相位破壞時間。

第三章、實驗方法與原理

如何製作成功的樣品,以及介紹在低溫量測的方法。

第四章、實驗結果與分析

以第二章的理論當知識背景,對實驗結果加以分析與討論。

第五章、結論

總結我們這份論文結果,遇到的問題和尚待釐清的部分。



二、 基本理論

電子在週期性晶格中的傳輸行為,可由古典的波茲曼理論描述。隨著系統無 序程度的增加,電子碰到其他缺陷而散射的機率也增加,使得量子干涉的效應逐 漸重要。對於低溫無序系統中,波茲曼傳輸理論的修正,理論上有兩個成熟的量 子修正理論。一個是弱局域效應;另一個是電子-電子交互作用理論。簡單來說, 弱局域效應是單一電子波函數在無序系統中經過一連串不破壞相位記憶的碰撞 之後,回到原點,並發生自我干涉的過程,而電子-電子交互作用則是電子的多 體物理效應,其主要物理圖像是電子在無序系統中的擴散式運動使庫倫交互作用 的屏蔽效應變小,使得相隔較遠的兩電子之交互作用需要被考慮。影響費米能階 附近的費米能態密度異常的減少,而反應在電阻率對溫度的關係上。

2-1 弱局域效應 (Weak-Localization Effect)

如果電子的傳輸是在乾淨的材料中移動,而不會因為雜質或缺陷造成散射, 這種情況的電子是以彈道式傳輸,但若在無序度高的環境則是以隨機的布朗運動 (Brownian motion)用擴散式的傳輸,擴散式傳輸主要是電子在移動的過程中與 隨機的雜質或缺陷做彈性碰撞。在量子力學中,考慮電子的波動性,因受雜質缺 陷的散射使電子的波函數形成兩個互相干涉的建設性干涉波。這樣的量子干涉效 應使原本的行進波被限制於散射位置一區域內稱為「局域效應」。

2-1-1 波動性與粒子性的相對強度與無序程度的關係

我們必須先了解如何判斷電子傳輸時的粒子性與波動性的強弱,才能知道是 否有局域效應。而這時就要引進一個常數 k_tl。然而我們知道:

$$k_f = \frac{2\pi}{\lambda_f} ; E_f = \frac{(\hbar k_f)^2}{2m}$$
(2-1)

這裡可以知道當 k_f 小的時候, λ_f 大,而 λ_f 大則表示電子波動性越強,反之

 λ_{f} 小則表示電子的粒子性越強,所以我們可以經由 E_{f} 計算去找出 k_{f} 進而推測波 動性的強度。而1代表電子彈性碰撞的平均自由路徑,當1越大,代表電子在兩 個彈性碰撞間走了很長的距離,我們稱它彈道式傳輸,屬於粒子性。而當1小則 屬於波動。下面我們用一個簡單的表格表示:





擴散式

波動式





圖 2-1 隨著不同的無序程度,電子的傳輸行為也會不一樣,Δx是電子波包的特 性長度。也代表電子的位置不確定性。

當電子有波動性與粒子性共存的時候,此時是以擴散式移動,而在兩種特性 互相競爭的情況下會讓電子介於延展態與局域態之間,我們稱為弱局域態,而我 們主要討論的"弱局域效應"與"因無序而增強的電子-電子交互作用"就是在 弱局域態的情況下發生。

2-1-2 時間反演對稱性 (Time Reversal Symmetry)

在高溫時,電子傳輸的電性主要由電子和聲子的非彈性碰撞主導,但在低溫時(液氦溫度以下),因為聲子大量減少,傳輸電性主要由電子和雜質或缺陷的彈性碰撞主導,在弱無序的系統中,因為電子被雜質或缺陷散射的機率很高,造成電子傳輸時有很多種可能的路徑如圖 2-2,當電子要從A點走到B點時,有很多可能的路徑,而A點到B點運動的總機率為:

$$P(A, B) = \left| \sum_{i} A_{i} \right|^{2} = \sum_{i} |A_{i}|^{2} + \sum_{i \neq j} A_{i} A_{j}^{*}$$
(2-2)

其中其中A,是電子沿第 i 係路徑傳輸的機率振幅。這些路徑可以視為電子 從A到B這事件的各種解。電子沿著各路徑遇到是彈性散射,因此,散射後的雜 質離子仍維持其原來的量子態,而電子波函數仍是相位同調的。等號右邊的第一 項是電子沿各路徑傳輸的機率之和,等於古典框架下的 P(A,B);第二項是代表 不同路徑的波函數與非本身項的共軛相乘。因為電子和雜質的散射是隨機式的,

各路徑長度不同,所以各電子波的相位差異很大。由統計原理得知,干涉效應的 總和結果為 ()。



圖 2-2 電子在弱無序系統中移動時會有各種可能的路徑。

但還有另一種可能的路徑我們需要加以著墨的是如圖中的3號路徑。在3號路徑中有兩種可能,一是順時鐘迴圈,另一是逆時鐘迴圈。這兩種情況都是電子從 0點經過一連串碰撞回到0點的可能,且在0點時,動量大小與方向都是相同的 [3],但是發生的順序相反。這也就是時間反演對稱性。當3'與3"兩種分波回 到0點時,由於是在彈性碰撞的區域,相位記憶還在,這兩種波就會產生自我的 建設性干涉,此情況為單一電子的波發生自我干涉的現象,因此在0點發現電子 的機率提高為古典機率的兩倍:

$$P(O,O) = \sum_{i} |A_{i}|^{2} + \sum_{i \neq j} A_{i} A_{j}^{*}$$

= $\sum_{i} |A_{i}|^{2} + \sum_{i',i''} A_{i'} A_{i'}^{*}$
= $2\sum_{i} |A_{i}|^{2}$ (2-2)

在這種情況下電子在 0 點的機率變高,換句話說就是電子從 A 到 B 的機率降低, 而這裡機率降低反應在電性上的結果就是電阻會升高,這也是為什麼弱局域效應時會有電阻上升的原因。以下是在 1983 年, Bergman [2]提出的弱局域效應物理圖像。

我們假設進出迴圈的動量變化為正負方向的變化,如圖2-4所示,為電子在動量空間(k space)的示意圖。電子的動量變化可由逆時針或順時針的方向,分別為(2-3)式和(2-4)式,其中為造成散射的動量。

逆時針的路徑:

$$\vec{k} \to \vec{k} + \vec{q}_1 = \vec{k}_1' \to \vec{k}_1' + \vec{q}_2 = \vec{k}_2' \to \dots \to \vec{k}_{n-1}' + \vec{q}_n = \vec{k}_n' = \vec{k} + \sum_i \vec{q}_i = -\vec{k}$$
(2-3)

順時針的路徑:

$$\vec{k} \to \vec{k} + \vec{q}_n = \vec{k}_1 " \to \vec{k}_1 " + \vec{q}_{n-1} = \vec{k}_2 " \to \dots \to \vec{k}_{n-1} " + \vec{q}_1 = \vec{k}_n " = \vec{k} + \sum_i \vec{q}_i = -\vec{k}$$
(2-4)



圖 2-3 電子在實際空間的散射情形,相同路徑有兩種可能性。當它們碰到第一 個散射點後,一個往順時針方向繞行,另一個往返時針方向繞行。



圖 2-4 Bergmann 在 1983 年提出來解釋弱局域效應的物理圖像。它們的動量變 化次序有時間反演對稱性。



圖 2-5 在完美晶格中,固定時間 t,電子從 0 點到空間各點的機率密度分佈情形。



圖2-6 考慮弱局域效應的情況下,固定時間t,電子從0 點到空間各點的機率密度分佈情形。

2-1-3 弱局域效應對導電率的修正

接下來我們將用機率統計的原理來說明弱局域效應的導電率修正。設想電子 在隨機分佈的散射點中,做無規行走(random walk)的運動。所以我們可以用 古典的擴散理論來估計電子回到它的出發點的機率。

從時間 t=0,由原點出發後,在時間 t,位置F,單位體積內找到電子的機率為:

$$P(\vec{r}, t) = \frac{1}{(4\pi D t)^{d/2}} e^{-r^2/4Dt}$$
(2-4)

D 是擴散常數,d 是系統維度。而根據弱局域理論,電子回到原出發點 O(r = 0)的機率為:



圖 2-7 單一電子波函數與自我共軛的項建設性干涉示意圖



圖 2-8 單一電子波函數與非自我共軛的項建設性干涉示意圖

如圖 2-8,電子散射截面約為 λ_f^{d-1} ,電子在時間 dt內,以費米速度 v_f 掃過的體積是 $\lambda_f^{d-1}v_f dt$ 。電子相位同調的時間越長,掃過的體積就越多,它停留在 0 點的機率就越大。所以我們考慮電子在經歷非彈性散射前,所掃過的體積內,即可找到電子的機率為P(τ_{ϕ})。

$$\mathbf{P}(\tau_{\Phi}) = \int_{\tau}^{\tau_{\Phi}} \mathbf{P}(0,t) \cdot \lambda_{f}^{d-1} v_{f} dt = \int_{\tau}^{\tau_{\Phi}} \frac{2\lambda_{f}^{d-1} v_{f} dt}{(4\pi Dt)^{d/2}} = \frac{1}{g} \int_{\tau}^{\tau_{\Phi}} \left(\frac{\tau_{D}}{4\pi t}\right)^{d/2} \frac{dt}{\tau_{D}}$$
(2-6)

其中 τ 是電子遭遇碰撞的最短時間,在低溫無序系統中接近於彈性散射時間。 τ_{0} 是同調相位破壞時間,也可以稱為相位同調時間,。 τ_{D} 是電子做擴散運動時感受到邊界的時間且 $\tau_{D} = L^{2}/D$,L是樣品邊界的長度。

利用計算發生非彈性碰撞前的電子存在機率等同於電導修正的負比值,也就是:



可以得到

負號是因為對電導的修正是負的。將不同的維度放入式子後 P. A. Lee 和 T.V. Ramakrishnan 提到對電導的修正為 [3] :

quasi-1d
$$\Delta G \sim -s \frac{e^2}{h} \times \frac{L_{\varphi}}{L}$$
 (2-9)

$$d = 2 \qquad \Delta G = -s \frac{e^2}{\pi h} \ln \frac{L_{\varphi}}{l_e} \qquad (2-10)$$

$$d = 3 \qquad \Delta G \sim -s \frac{e^2}{2\pi h} \left(\frac{L}{l_e} - \frac{L}{L_{\varphi}}\right) \qquad (2-11)$$

s 為電子的自旋,這邊我們 s =2, L 為樣品的長度, L_{ρ} 為相位破壞長度, l_{e} 為電子碰撞的平均自由路徑。另外 Eric Akkermans 和 Gilles Montambaux 對於弱局 域效應對導電率的修正,也有同樣的結果 [4]。

quasi-1d
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{h} \frac{1}{S} (L_{\varphi} - l_e)$$
(2-12)

$$d = 2 \qquad \Delta \sigma = -s \frac{e^2}{\pi h} \ln \frac{L_{\varphi}}{l_e} \qquad (2-13)$$

$$d = 3 \qquad \Delta \sigma = -s \frac{e^2}{2\pi h} \left(\frac{1}{l_e} - \frac{1}{L_{\varphi}}\right) \qquad (2-14)$$

2-2 相位破壞機制

由上面的式子可以知道弱局域的修正與相位破壞長度L_φ(或相位破壞時間 τ_φ)有很大的關係,所以我們對於探討在電子傳輸時所遭到各種非彈性碰撞造 成的相位破壞有很大的興趣,我們必須瞭解何種情況下電子相位會發生改變,或 者說有哪些機制可以讓電子碰撞前後能量改變使得電子被局域住的現象消失? 相位破壞時間受到各種機制影響有以下的關係:



式 2-15 為主要幾種破壞相位的因素,包括非彈性碰撞散射率(τ_{in}^{-1})、自旋軌 道散射率(τ_{so}^{-1})、自旋-自旋交互作用散射率(τ_{ss}^{-1}),其中非彈性碰撞主要包括電 子-聲子非彈性碰撞與電子-電子非彈性碰撞(式 2-16)。

除此之外,外加磁場也能破壞函數的同調性,相位破壞的結果使得弱局域效 應對電阻的修正逐漸散失,由於這個原因,磁電阻的量測對於弱局域效應的分析 有很強大的幫助。

所以以下我們要一一介紹各種相位破壞的機制。

2-2-1a 外加磁場對弱局域效應相位破壞的影響



圖 2-9 外加磁場時,造成波函數相位變化。

我們知道封閉的迴路外加磁場時,會造成一個相位差Δφ。藉由費曼路徑積 分和電磁學中積分與路徑無關的技巧,我們可以算出相位的變化量是:

$$\Delta \varphi = \frac{e}{\hbar} \oint_{l} \vec{A} \cdot d\vec{l} = \frac{e}{\hbar} \int_{S} \nabla \times \vec{B} \cdot d\vec{S} = \frac{e}{\hbar} \Phi = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_{0}}$$
(2-17)

 $\Delta \varphi$ 是外加磁場造成的相位差,S是被封閉路徑包圍的面積。 Φ 是磁場通過 S的磁通量, $\Phi_0 \equiv \frac{h}{e} = 4.135 \times 10^{-15}$ (Tesla-m²)是磁通量量子。

前面所說的弱局域效應為電子在經過几。的時間後回到原點做建設性干涉的

行為,在外加磁場破壞同調性後,兩分波回到原點有相位差2Δφ。因為每條路徑的形狀、長短不一,路徑構成的平面和磁場的夾角也不同,因此各路徑的相位差2Δφ幾乎都不相同,很多這種自我干涉的迴圈因此被破壞,破壞後電子留在原點的機率電小,導電度提高,也就是電阻率下降,所以在弱局域效應明顯的磁電阻中可以看到負磁阻的情況如圖2-10。



而在空心圓柱狀樣品,小磁場範圍中,可測量到電阻會有如上述(2-17)式所 描述週期性震盪的現象,以Φ₀做基本週期,當磁場不斷加大,不再有封閉的迴 路產生自我建設性干涉時,電阻值不會再改變下降,弱局域現象消失,電子的傳 導回復到波茲曼理論可預測的模型,圖2-11。



圖 2-11 小磁場範圍的磁阻震盪曲線 Al'tshuler et al.,1981[6] ; D.Y. Sharvin and Y.V. Sharvin, 1981[7]。

1896

2-2-1b 電子-聲子非彈性碰撞

聲子可以視為一種晶格受熱擾動造成的震盪,只要在溫度高於絕對零度時就 會存在。而電子-聲子的交互作用與金屬和超導體的許多性質有關,且電子受聲 子散射是產生電阻的主要原因。我們藉由圖 2-12 介紹各種電子-聲子的交互作 用。

如圖 2-12(a),有一個整齊排列的週期性晶格,且晶格靜止不動(無聲子), 一電子波動量 \vec{k} 由左進入,這個電子波被散射,產生一個基本波,當把所有的基 本波的振幅疊加起來,會發現其他方向都抵銷了,只剩下原來的 \vec{k} 方向和 $\vec{k}'=\vec{k}+\vec{G}$ (\vec{G} 為倒晶格向量)

圖 2-12(b)為一整齊排列的晶格,但此時他不再是靜止不動,而是以 w_{ph} 的頻率震動,並且以動量 \vec{q} 在晶格中傳遞。用相同電子波動量 \vec{k} 由左進入,則波的相位會被調整,調整範圍為 $\pm w_{ph}$,符合聲子的吸收與放射頻率,也就是說電子與聲子之間有能量的交換 $\tilde{k} = \vec{k} \mp \vec{q}$ 以及 $\vec{k}' = k \mp \vec{q} + \vec{G}$ 。



圖 2-12 電子波在各種晶格情況下的散射圖[8] Bergmann, G: (a)有序系統, 無 聲子(b)有序系統, 有聲子(c)無序系統, 無聲子(d)無序系統, 有聲子。

圖 2-12(c)為隨意排列的晶格(無序),且靜止不動(無聲子),一電子波動 量 *k* 從左方進入,在疊加所有散射的波之後,並沒有任何方向被抵銷,也就是電 子波可以散射到任何方向 *k*'。

圖 2-12(d)為電子在無序晶格中與聲子波發生隨機的散射,過程中電子和聲 子不再動量守恆,也就是 $\tilde{k}'+\bar{q} = \bar{k}' \neq \bar{k}$,因為是無序系統,所以 $\bar{k}' \approx \bar{k}$ 之間沒有 特定關係,不能再用 Bloch wave 展開計算,我們稱這個為 pseudo-umk lapp 散射。 然而,當聲子波長比電子平均自由徑大很多時(非常低溫下),不是所有聲子都 能有效地影響電子的能態。 而在電子-聲子理論發展上,Bergmann 在 1971 年[8]考慮圖 2-12(d)的模型, 這種 pseudo-umk lapp 的過程特別對低能量交換的作用有貢獻,而 Takayama(1973) [9]在不純的金屬中 T << Θ_p 時計算出和 Bergmann 相同的結果:

$$\frac{1}{\tau_{ep}} = \frac{2\pi^2 C}{k_F \ell} \frac{(k_B T)^2}{\hbar^2 \omega_D} = \frac{2\pi^2 C}{k_F \ell} \frac{(k_B T)^2}{\hbar \Theta_D} \propto T^2 \ell^{-1}$$
(2-18)

這裡
$$C = \frac{nmv_f^2 q_D^2}{6n_i M v_s k_f^2}$$
是個常數。其中n是電子密度, n_i是離子密度, m是電子

質量,M是離子質量, v_s 是聲速, Takayam 指出此式在 $(w/v_s)\ell < 1$ 的頻率範圍特別重要。

之後在1986 年Rammer 和Schmid[10]在理論計算上,考慮雜質的震動和其他 原子的震動頻率是相同的在低溫T<< Θ_p 時得到下列結果:

$$\frac{\hbar}{\tau_{ep}} = \frac{\pi^4}{30} \frac{\ell (k_B T)^4}{m M \hbar v_L^5} \propto T^4 \ell$$
(2-19)

令人驚訝的是,他們得到了完全不一樣的結果,而大多實驗的結果則是在他 們之間($T^2 \sim T^4$ 都有),研究者Reizer和Sergeyev (1986) [11]同意(2-19)的結 果,而包括我們實驗室和許多學者的實驗[12]都證實了(2-18)的結論

m

2-2-1c 電子-電子非彈性碰撞

在完美晶格中,電子-電子散射率的研究已有一致的結論。根據費米液理論 (Fermi liquid theory),電子-電子散射時間與準粒子能量ε的平方成反比 (Al'tshuler et al., 1987[13]):

$$\frac{1}{\tau_{ee}} \propto \frac{\varepsilon^2}{E_F} \tag{2-20}$$

將2-20式轉換為和溫度的關係可以得到(Ashcroft and Mermin, 1976[14]):

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \frac{\pi}{8} \frac{(k_B T)^2}{\hbar E_F} \propto T^2$$
(2-21)

但若是在無序系統中, Schmid等人(Schmid, 1974[15]; Al' tshuler, Aronov, 1979[16][17]),提出在無序系統的電子-電子散射率需修正為:

$$\frac{\hbar}{\tau_{ee}} \propto \frac{\varepsilon^{d/2}}{N(E_F)D^{d/2}}$$
(2-22)

其中 d=1,2,3 表示維度, N(Er)是費米能階的電子能態密度, D 是擴散常數。考慮三維系統,並將(2-22)轉換為和溫度的關係可以得到下式:

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \frac{\sqrt{3}}{2} (k_F \ell)^{-3/2} \frac{(k_B T)^{3/2}}{\hbar \sqrt{E_F}} \propto T^{3/2}$$
(2-23)

此外,對於二維系統, $\tau_{ee}^{-1} \sim T \ln T$;對於一維系統, $\tau_{ee}^{-1} \sim T^{2/3}$ 。

2-2-2 電子自旋的影響 ES

之前所考慮的電子封閉路徑的干涉,並沒有把電子的自旋影響考慮進來, 實際上電子波函數在相干反散射中, 所分成的兩個波,若電子自旋方向相同, 則所引起的干涉會較古典機率大,若電子自旋方向相反,則干涉機率將比古典的 機率小,同一路徑上繞行方向相反的兩個電子分波,有四種線性獨立的自旋函數 組合:(↑↑)、(↑↓)、(↓↓),其電子對的自旋排列組合有四種,如表2-1:

States	Combination	Eigenvalue	m
Triplet	$\begin{array}{c}(\uparrow\uparrow)\\2^{-1/2}[(\uparrow\downarrow)+(\downarrow\uparrow)]\\(\downarrow\downarrow)\end{array}$	$egin{array}{c} h \\ 0 \\ -h \end{array}$	$^{+1}_{0}_{-1}$
Singlet	$2^{-1/2}[(\uparrow\downarrow)-(\downarrow\uparrow)]$	0	0

表 2-1 電子分波對(electron partial wave pairs)的各種自旋態,箭頭方向 代表電子的自旋方向。φ代表自旋波函數,j 為總角動量,m 為磁量子 數

也因此,在電子的波函數自我干涉中,古典項仍不變,其干涉項可表示為:

$$I = \frac{1}{2} \{ |\psi_{11}|^2 + |\psi_{10}|^2 + |\psi_{1-1}|^2 - |\psi_{00}|^2 \}$$
(2-24)

若單純考慮自旋,而不考慮其他作用時, $|\psi_{11}| = |\psi_{10}| = |\psi_{00}|$,代回(2-24) 可以得到 $I = |\psi_{00}|^2$,與之前干涉項的結果相同,也就是古典項的機率。

2-2-2a 自旋-軌道散射

電子在原子核因為靜電勢的影響對原子核做軌道運動,從電子本身的運動座 標來看可視為原子核繞著電子運動,並且產生一個磁場,和電子發生作用。所以 可以看成電子受到一個等效磁場影響而繞旋著。簡化來看,則是兩個磁偶極的交 互作用。交互作用的大小受電子軌道角動量的大小以及它和自旋之間的夾角影 響。當電子本身自旋的磁矩與電子繞行軌道所造成的磁矩發生作用時,我們稱為 自旋-軌道作用 (spin orbital scattering)。Abrikosov 和 Gorkov (1962) [15]第一個提出自旋-軌道散射時間: 1896

$$\tau_{so} = \frac{\tau_e}{(\alpha Z_i)^4} + \frac{\tau_e}{(\alpha Z)^4} \quad , \alpha = \frac{e^2}{\hbar c} = \frac{1}{137}$$
(2-25)

其中α為精細結構常數,Z_i為雜質的原子序,Z為主要元素的原子序。由於角動 量守恆的關係,自旋-軌道散射跟溫度無關。

值得一提的是,在發生弱局域的效應中,如果存在自旋-軌道散射,電子回 到原點的相位改變便無法產生建設性干涉,因此式(2-24)中:

$$|\psi_{11}| = |\psi_{10}| = |\psi_{1-1}| \approx 0 \tag{2-26}$$

但電子自旋態為反對稱則不受影響,即|\yu00|2,所以(2-24)式可寫成:

$$I = -\frac{1}{2} |\psi_{00}|^2 \tag{2-27}$$

所以電子留在原點的大小變為原本的一半,造成系統電阻較古典預測電阻 值來的小,如圖2-13 所示;和弱局域效應在原點的機率為古典的兩倍,造成系 統電阻上升的作用幾乎相反。由此,在弱局域系統中考慮自旋軌道散射所造成的 現象,稱為反弱局域效應(Weak anti-localization effect)。



圖2-13 反弱局域效應中,令電子從原點出發一定時間後回到原點的機率為1,由 於電子-軌道散射影響,使得回到原點的機率只剩0.5。

由於回到原點的機率改變,電子停留在原點的機率變小,導電率提高了。若要更定量的計算此效應對導電率的影響,我們參考(2-6)式,把它重寫如下:

$$\frac{\Delta\sigma}{\sigma} \approx -\int_{\tau}^{\tau_{0}} \frac{\lambda^{2} v_{F} dt}{\left(4\pi D t\right)^{d/2}} \left(\frac{3}{2} e^{-t/\tau_{so}} - \frac{1}{2}\right)$$
(2-28)

其中括號內的第一項為兩電子自旋互換對稱(triplet)的修正,第二項則為 單態(singlet)的修正。當自旋軌道-散射項很小($\tau_{so} >> 1$),則括號內的指數 項趨近於1,則(2-28)式即為基本弱局域效應對電導的修正式。但若自旋-軌道 散射很強的時候(r_{so} <<1),括號內的指數項趨近於(),只剩下自旋單態對電 導的修正,這個修正會使得導電率變號,而這裡的反弱局域效應使得磁電阻也由 原本的負磁阻轉為正磁阻。

2-2-2b 自旋-自旋散射

電子自旋直接受到磁性雜質(localized spin)自旋的散射反向(flip),產生 微擾而破壞相干反散射的時間反演對稱,不管原先兩個分波的自旋方向是平行或 反平行的,一連串散射後都會造成隨機無規則的自旋方向並導致相位的混亂。與 自旋-軌域不同的是,電子自旋是直接反向不受軌域角動量的影響,和原子大小 無關。而波函數也只有triplet的貢獻。1981年,Fukuyama[19]提出自旋-自旋散 射率1/7,可以表示成:



(2-29)

N(E_F)為費米能態密度,n_i是磁性雜質的密度。一般而言因為角動量守恆,所以 電子自旋-自旋作用與溫度無關。但假若是屬於Kondo effect 的話,其散射率會 與Tix有關且會是溫度的函數。

2-2-3 電子-電子交互作用

前面提到的弱局域效應是單一電子的自我干涉效應,而電子-電子交互作用 是屬於多體物理的現象,由於傳導電子間的庫倫力作用,電子會互相碰撞影響, 此系統稱為費米液體(Fermi liquid),在乾淨的系統時常用費米液體之蘭道理論 (Landau theory)來描述但與在乾淨系統中Landau 費米液體理論不同的是, Altshuler 和Aronov[16][17]在1979 年發現在無序系統中,由於電子行擴散運 動的緣故,使得不同電子間的屏障作用變弱,假如應用費米液體理論(準粒子的 觀念)來推導,會導致在費米能球面附近有明顯的奇異點出現,導致電導率和比熱必須出現修正項。我們簡單說明電子電子交互作用中的兩個通道,粒子-空穴通道與粒子-粒子通道。

2-2-3a 粒子—空穴通道(Diffusion Channel)

如圖2-14,圖中所描繪的線條分別為兩電子的波函數路徑,兩電子從C和D 入射,從E和F離開,箭頭所指的是運動的方向,且兩入射電子的動量十分接近 ($\bar{k}_1 = \bar{k}_2$),而兩波函數在空間中十分靠近的部分有兩個地方,分別在A和B兩 點,於此交叉點兩電子就有可能發生能量和動量的交換,令能量和動量的交換分 別為ħω和q。假如電子從A點到B點的所需花去的時間小於 ω^{-1} ,那麼兩電子之波 函數不只在A 點產生建設性干涉,而是在空間中A和B之間的路徑上,都可以產 生建設性干涉,因此此干涉效應由此被增強。當然,在A和B之間必須不能存在 任何相位破壞的事件才行。



圖2-14 電子-電子交互作用中之粒子-空穴通道之物理圖像。

2-2-3b 粒子一粒子通道(Cooper Channel)

粒子-粒子通道之物理圖像如圖2-15所示,兩電子從D 和E 入射,從F 和C 離 開,箭頭所指的是運動的方向,且兩入射電子的動量絕對值十分接近。兩個電子 在A與B點發生交互作用,雖然兩個電子經過A,B點的順序不同,但是如果電子從A 到B的時間t_{AB}比電子本身的量子力學測不準時間Δt = ħ/ε小,則兩電子波函數在 A 和B 之間就可以產生建設形干涉,此干涉效應由此被增強。其中當電子對自旋 相反時,就如同超導電性中的cooper pair 一樣。



圖2-15 電子-電子交互作用中之粒子-粒子通道之物理圖像。

2-2-3c 電子—電子交互作用對電導的修正

P. A. Lee(1985)[3]在他的論文中提到三維電子-電子交互作用對電導的修正為:

$$\Delta\rho(T) = \frac{-1.3e^2}{4\pi^2\hbar} \rho^2 a \sqrt{\frac{K_B T}{2\hbar D}}$$
(2-30)

其中 $a = \frac{4}{3} - \frac{3}{2}\tilde{F}$, \tilde{F} 為電子等效屏障係數且 $0 < \tilde{F} < 0.929$, 而電子電子交互作用
的維度則是依照樣品尺寸與電子-電子交互作用的有效維度 $l_{e-e} = \left(\frac{\hbar D}{k_B T}\right)^{1/2}$ 大小

比較而得知。

2-2-4 低磁場下的磁電阻率

我們知道在低溫的環境中,非彈性散射率越小,弱局域效應的強度越強,藉 由外加磁場量測磁電阻的方式,可以對弱局域效應中的相位破壞時間(長度)作定 量的分析, Trionfi, 2005 [21]和Pierre, 2003 [22]都有提到的一維磁電阻公式為:

$$\frac{\Delta R(B)}{R(0)} = \frac{e^2}{2\pi\hbar} \frac{R}{L} \left\{ 3 \left[\left(L_{\varphi}^{-2} + \frac{4}{3L_{SO}^2} + \frac{1}{12} \left(\frac{W}{L_B^2}\right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} - \left(L_{\varphi}^{-2} + \frac{4}{3L_{SO}^2} \right)^{-\frac{1}{2}} \right] - \left[\left(L_{\varphi}^{-2} + \frac{1}{12} \left(\frac{W}{L_B^2}\right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} L_{\varphi} \right] \right\}$$
(2-31)

2-31式是考慮自旋-軌道散射的影響,其中 $\Delta R(B) = R(B) - R(0) \cdot L_B = \sqrt{\frac{\hbar}{2eB}}$ 為magnetic length、W為樣品的截面積、 L_{so} 為自旋-軌道散射長度,若不考慮自旋-軌道散射,則(2-31)式可簡化為:

$$\frac{\Delta R(B)}{R(0)} = \frac{e^2}{\pi \hbar} \frac{R}{L} \left\{ \left(L_{\varphi}^{-2} + \frac{1}{12} \left(\frac{W}{L_B^2} \right)^2 \right)^{-\frac{1}{2}} - L_{\varphi} \right\}$$
(2-32)

對於沒有超導效應的非磁性系統 ($\beta \rightarrow 0$, $B_{so} \rightarrow 0$), 且不考慮 Zeeman 分裂時, 我們比較 $B \sim B_{\phi}$ (= B_{in})以及 B_{so} 的大小,對磁電阻曲線的行為做以下的分類 (Dugdale, 1995[23], p.226):

1. $(B_{\Phi} >> B \& B_{so})$

在自旋-軌道散射率很小甚至可以忽略的時候,外加一個小磁場後,弱局域效 應的相位相干隨磁場增大破壞越多,此時會有如圖2-10、2-11負的磁電阻出現。

$$\frac{\Delta\rho}{\rho^2} \sim -\frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{e}{\hbar}} \frac{1}{B_{\phi}^{3/2}} \frac{B^2}{96}$$
(2-33)

2. $(B_{so} >> B_{\Phi} >> B)$

若是在自旋-軌道散射強度相當大的時候,反弱局域效應很強,加入的磁場相對小的時候($B_{\phi} \ll B$),會看到電阻隨著磁場上升時仍然不斷上升。(如圖2-16、2-17)

$$\frac{\Delta\rho}{\rho^2} \sim \frac{e^2}{2\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{e}{\hbar}} \frac{1}{B_{\Phi}} \frac{B^2}{192}$$
(2-34)

3. $(B_{so} >> B >> B_{\phi})$

若自旋-軌道散射強度很強,即使外加磁場遠大於非彈性碰撞特徵磁場 B_{0} ,仍然 無法影響自旋-軌道散射,則磁電阻會隨著磁場加大不斷上升(如圖2-16)。

$$\frac{\Delta\rho}{\rho^2} \sim \frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} (0.605)$$
(2-35)



圖 2-16 當自旋-軌道散射率很大的時候,外加磁場無法影響自旋-軌道散射時, 電阻會隨著磁場而增強不斷加大。



圖 2-17 當高磁場下,自旋-軌道散射還來不及發生相位破壞的作用,磁場就將電 子波的相位破壞了。磁電阻又變回負的。

4. $(B >> B_{\Phi} \& B_{so})$

若有自旋-軌道散射,且非彈性碰撞的特徵磁場B₀很小,外加磁場進入時起初會 有自旋-軌道散射主導的正磁阻出現,但當磁場漸漸加大,在發生自旋-軌道散射 前,就已經破壞相位,因此磁電阻又變為負的磁電阻。(如圖 2-17)

$$\frac{\Delta\rho}{\rho^2} \sim \frac{e^2}{4\pi^2\hbar} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} (0.605)$$
(2-36)

26

三、 實驗方法與原理

接著我們要討論如何將我們的 ITO 奈米線準確定位在矽基板上,並且製作四點電極來量測樣品的電性。

3-1 樣品來源及製作

我們的奈米線是由清大工科所提供,將銦的顆粒置於以處理好的基版上,在 基板上用高溫爐管成長氧化銦奈米線,再用串級式加速器以離子佈值的方式將錫 離子參雜在奈米線中。

我們要測量奈米線的電性,必須在奈米線上製作數個奈米尺度的電極,因為 它的尺寸很小,所以我們要用微影的方法來製作,而依照不同的需要,分成光微 影和電子束微影。

3-1-1 光微影 (photolithography)

首先將昇美達公司提供的矽晶圓洗淨,成長400nm 的氧化層,再把此晶圓用 交大奈米中心的光罩對準曝光機去曝光,光罩的圖案是用 AutoCAD 設計,曝光後 再用電子槍沉積 10nm 的鈦和 60nm 的金,先鍍鈦的原因是因為金跟 SiO₂ 的附著 力不好,直接鍍金的話容易使得金從基板上脫落,而鈦對兩邊的附著力都極佳可 以用來讓金穩固的在基板上面。

鍍完之後用丙酮舉離,之後再用晶圓切割機將整個晶圓切成 7mm × 7mm 的大小(圖 3-1),之後我們就是將奈米線灑在這個基板上作接下來的製程。



圖 3-1 光微影 Si/SiO2 基板

3-1-2 電子束微影 (E-Beam lithography)

電子束微影(圖 3-2)大致與光微影相同,但是將光微影使用的光阻換成對電 子束敏感的電子阻劑、將光罩用程控的屏蔽板取代。此裝置架設在熱游離式電子 掃描顯微鏡(electron scanning microscopy, SEM),由於電子的波長相較於光 的波長小很多,所以用光微影時容易產生的繞射較不會出現,所以可以擁有更好 的解析度,但缺點是電子束微影需要電子束在設計的圖案上一點一點掃過,所以 所花的時間跟光微影比起來會長許多。

在電子束微影之前,首先我們要將 ITO 奈米線灑在基板的中心,方法是先將 佈滿 ITO 奈米線的基板對準已做好電極的光微影基板上輕壓,藉由基板本身的凡 得瓦耳力,奈米線會隨機落在基板上的任何位置,我們在 SEM 下挑選適合的奈米 線來製作電極。

由於電極是從 AutoCAD 上來設計,所以從 SEM 上找到適合的奈米線後,我們 必須將奈米線的位置精準的從 SEM 定位到 AutoCAD 上面,方法是 SEM 圖中奈米線 的四周會有定位點(圖 3-1),藉由奈米線的兩端與四個定位點的相對位置,再將 位置的像素轉換成座標,即可將這條奈米線畫在 AutoCAD 上,然後就可以用 AutoCAD 開始設計電極。電極設計完將 AutoCAD 的程式轉換成電子束微影適用的 程式後就可以開始。



圖 3-2 電子束微影步驟

接下來我們使用旋轉塗佈機將電子阻劑均勻塗佈在壓好奈米線的基板上,旋 轉塗佈機會設定兩種轉速分別為:1500rpm 15 秒和 5500rpm 35 秒。第一個轉速 是要將多餘的電子阻劑旋走,第二個轉速較長的時間是要達到我們所希望電子阻 劑的目標厚度。由轉速對應到電子阻劑厚度圖來看(圖 3-3),5500rpm 所達的厚 度大約 300nm 左右。然後把基板放在加熱板上以攝氏 180 度烤 1 分鐘,這個過程 稱為軟烤,目的是使液態的電子阻劑硬化成固態薄膜,並蒸發掉其他的液體且增 加電子阻劑和基板的附著力。然後就可以放進 SEM 準備電子束微影的工作。



950PMMA A Resists Solids: 2% - 7% in Anisole

圖 3-3 電子阻劑轉速 VS PMMA 厚度圖

因為這個時候基板上有一層光阻,所以在 SEM 中會發現影像相較之前的會很 不清楚,模糊的影像會讓我們花很多時間在 SEM 中找定位點,而電子束微影又是 靠著找定位點來移動,所以定位點的清晰與否會決定微影出來的圖案和我們設計 的有多少的偏移,又因為我們的奈米線通常很短,在接上四點以上的電極時能容 忍的誤差其實非常小。為了使影像清晰,在放入 SEM 之前我們會用鎢鋼筆在基板 周圍刻個刮痕,利用刮痕上銳利的邊緣來幫助對焦。

接著就開始用程控的屏蔽板,屏蔽板原理是外加一個偏壓去使電子束偏移, 再由 AutoCAD 上設計的圖案決定哪些區域的電子阻劑需要電子束照射,我們使用 的是正型電子阻劑甲基丙烯酸甲脂(Polymethyl methacrylate, 950K PMMA A5)。正型電子阻劑受到電子束照射後會破壞內部分子的鍵結,因為電子阻劑鍵 結的破壞使其對於顯影液的溶解度增加,這時再用顯影液就可以將被電子束照射 過的區域的 PMMA 給清除掉。

電子束微影過後,再來需要顯影的步驟,我們是使用顯影液以濕蝕刻的方 式,藉由被電子束打過的電子阻劑溶解度增高,來溶解掉電子阻劑。我們的顯影 液主要是由甲基異丁基酮(Methelisobutyl, MIBK):異丙醇(Isopropylalcohol, IPA)=1:3 的比例先泡一分鐘,再用異丙醇泡 30 秒來清除殘留的 MIBK,顯影後 用光學顯微鏡看顯影成果如何,電子阻劑圖案是否和我們設計在 AutoCAD 的圖案 吻合,沒有太多的偏移,並且確定在不該有電子阻劑的區域它們的電子阻劑已被 蝕刻乾淨。接下來就可以開始用蒸鍍機鍍我們要的電極上去。

就過往的經驗來說,其實用顯影液顯影過後,仍然會有些許殘留的電子阻劑 存在,鍍上電極後電子流動時容易被這些殘留的電子阻劑散射,造成較大的接點 電阻和雜訊。所以在蒸鍍之前我們會使用氧離子來清掉殘留的電子阻劑。接著鍍 上10nm 鉻和100nm 的金作為電極,這邊10nm 的鉻跟光微影製程時所用的鈦扮演 相同的角色,也就是避免掉金與基板的附著力不佳的問題。

蒸鍍完後就是舉離(lift-off),將整個基板泡在丙酮中12小時,使金的表 面產生皺折,此時附著在電子阻劑上的金就很容易脫落,剩下來的部分就是我們 的電極。再用場發射式電子顯微鏡確認電極是否如我們在AutoCAD上所設計的圖 案,然後就完成我們的樣品。

3-1-3 熱蒸鍍

熱蒸鍍為物理氣象沉積(physical vapor deposition)的一種,是薄膜製程 中常用的技術,圖 3-6 為蒸鍍機的示意圖。工作原理是在高真空(2×10⁻⁶ torr 以下)的環境中將我們要鍍的靶材放在鎢舟上,而我們樣品放在上方,再通電流 加熱鎢舟使靶材蒸發,被蒸發的金屬會往上沉積在我們的基板上面。

由於在蒸鍍的過程中,整個腔體是在很高溫的環境,為了防止有其他的東西 被蒸發沉積進我們的電極中,除了在高真空的環境下工作,內部所有的組件在蒸 鍍前都會先以丙酮酒精擦拭,並且腔體內的四周會加裝鋁板,實驗室中欲鍍不同 的金屬就會放進不同的鋁板,如此才能確保蒸鍍時不會交互感染。

在蒸鍍機腔體內有一石英膜厚偵測器,其原理為石英原始的震盪頻率為 6M Hz ,當金屬被鍍上去的時候會改變它的震盪頻率,因此我們可以依照頻率的 改變,並配合一些參數設定來得之現有的膜厚,並且也可以算出目前蒸鍍的速 率。當通過鎢舟的電流越大時,蒸發上去的氣體就有越高的動能,蒸鍍的速率也 會越快,不同的速率也會影響到薄膜的無序性。在開始蒸鍍之前,靶材和樣品之 間有一個檔板(shutter),依照不同的需求,調整到不同的蒸鍍速率之後,就可 以把檔板打開開始蒸鍍,當膜厚到達我們的要求時,關閉檔板,阻止氣體繼續沉 積,蒸鍍結束。接下來還不能馬上通入氣體破真空,因為腔體內部還是很高溫, 必須過一小時冷卻後,在通入氮氣,取出樣品。

值得注意的是,由於蒸鍍時的蒸氣有方向性,所以與薄膜製程不同的是我們 還必須注意蒸鍍的方向如圖 3-4,因為有奈米線在上面,所以金屬會沉積在一 端,造成另一端沒有鍍到,形成斷路,一個基板通常有兩條奈米線可以設計電極, 所以在用 AutoCAD 設計圖案時,要讓兩組電極可以用同一個方向鍍。

蒸鍍方向



圖 3-4 蒸鍍方向造成電極斷路圖

先前提到的氧離子也是在蒸鍍機中使用,我們利用輝光放電(glow discharge)的技術(圖 3-5),先在腔體中通入氧氣一段時間,並且持續用機械 幫浦抽氣,使內部盡量除了氧氣外沒有其他氣體,接著讓氧維持在 0.1 torr 的 壓力下,在基板與線圈間加高電壓使腔體內的氧氣游離,此時帶有電荷的氧離子 (plasma) 會往基板移動,與上方的電子阻劑反應,並以每分鐘數百埃的速率侵 蝕電子阻劑,經由這個方法可以將不該有電子阻劑的地方清乾淨。



圖 3-6 蒸鍍機示意圖



圖 3-7 蒸鍍機抽氣系統示意圖。工作流程: 0

1. 開 V4 破真空後,以酒精丙酮擦拭內部組件,裝好鋁板,開機械幫浦(MP)和 V2 粗抽腔體。

2. 當壓力到達 5×10⁻²後關 V2,開 V1 和渦輪幫浦(TP),讓渦輪幫浦熱機,並 達到最高轉速。

3. 此時腔體壓力會有些回升,關 V1、開 V2 抽回 5×10⁻²以下後,關 V2 開 V1 與 V3 用機械幫浦和渦輪幫浦開始抽腔體,我們目標抽到 2×10⁻⁶以下(約4至5 小時),就可以開始蒸鍍。

4. 蒸鍍完後,先關 TP 和 V3,待腔體內部冷卻一小時,並持續以 MP 抽 TP(因為 此時 TP 尚未完全停止轉動)。

5. 開 V4 通入氮氟破真空,取出樣品,關 TP、關 V1、關 MP,工作完成。

3-1-4 掃描式電子顯微鏡

掃描式電子顯微鏡(scanning electron microscopy, SEM)主要是由電子 槍、電子鏡柱、真空系統、腔體偵測系統、顯示及紀錄系統所組成如圖 3-7。

電子槍

利用高電壓(~10⁸V/cm)或熱游離使燈絲在真空中放出電子,放出之電子強度 即為 SEM 之主要光源。電子槍的必要特性是亮度要高、電子能量散佈 (Energy Spread) 要小。而我們實驗室中型號 JSM-7000 的 SEM 是屬於場發射型,而 JSM-6380 則是屬於熱游離型。

• 電子鏡柱

電子槍發散出來的電子由兩組透鏡聚焦,也可用來控制電子束的尺寸,掃描 線圈的作用在偏折電子束使其能在試片的表面作二維的掃描工作。電子束經過物 鏡就如同光學顯微鏡原理一樣,但此時是調整項圈(coil)所造成的磁場來控制電 子束做最後的對焦動作完成對焦後,即可進行最後的轟擊試片表面。

• 真空系統

為保持整個系統之真空狀態,使電子束的聚集不受干擾,真空系統是最基本的要求。由旋轉幫浦(Rotary Pump)及真空擴散幫浦(diffusion Pump)組成,真空度可達 10⁻⁶ torr。此系統清潔與否直接影響到整個系統的真空度,故需經常保持這 部份之清潔,使用時任何可能污染的 sample 都不得進入,也需要定期維護保養。

• 腔體及偵測系統

腔體內需密閉並維持良好的真空度,以利電子束照射樣品。樣品置放作台有 外控之水平、垂直、旋轉、高低之調整鈕。這裡可以增加偵測器或其他特殊功能 之組件如:EDS、 EWDS、CL、E-Beam writer。電子束照射樣品所產生之反應訊 號,可裝置不同偵測器檢收,我們常用的為:二次電子偵測器,背像散射電子偵 測器。

• 顯示及紀錄系統

SEM 之顯示系統為陰極射線管(CRT)偵測系統在樣品上做二維的掃描並且此 動作與 CRT 上的掃瞄動作同步。電子被偵測到後,經過訊號處理放大後送到 CRT, 由於樣品表面任意點所產生的強度,是一一對應到 CRT 上的亮度,所以,樣品表 面的形貌、特徵可藉由此種同步成像的方式,而一一表現出來。 • 成像原理

電子束照射在樣品上,會產生二次電子、反射電子、吸收電子、Auger 電子、 特性 X 光…等,而在 SEM 上主要是偵測二次電子,及反射電子,以形成影像。

表面的二次電子被擊出時,其能量約 < 50eV。由於是低能量電子,所以只 有在距離試片表面約 50~500 埃深度範圍內所產生之二次電子,才有機會逃離試 片表面而被偵測到。由於二次電子產生的數量,會受到試片表面起伏狀況影響, 所以二次電子影像可以觀察出試片表面之形貌特徵。

當二次電子脫離試片表面時,二次電子偵測器(E-T detector)表面上的金屬 網會通以 250V 正電壓,藉以吸引二次電子進入偵測器內撞擊閃爍器。因為閃爍 器上含有 Eu 可將電子轉換成光子,這些光子經過光電倍增導管傳送並轉換放大 成電子脈衝訊號(約放大 10⁵-10⁶ 倍)後再經 PC 處理後顯示在螢幕上,即完成二 次電子成像。



- 圖 3-8 電子顯微鏡示意圖。結構主要分成:
 - 1. 電子槍
 - 2. 電子鏡柱
 - 3. 真空系統
 - 4. 腔體
 - 5. 偵測系統
 - 6. 顯示及記錄系統

3-1-5 離子束聚焦系統(Focus Ion Beam, FIB)

我們使用的機台是交大貴重儀器中心的聚焦離子束與電子束顯微系統(FEI Dual-Beam NOVA 200),其主要的原理是利用鎵離子被加速成離子束,並聚焦於一非常小之區域,再做各種工作。

FIB的功能很多,可直接在高倍率的電子掃瞄成像的情況下,以高度聚焦之 離子束做精確的切割或修復元件的工作。對我們來說,最大的優點是其離子束也 可與局部供應的氣體反應,而直接在試片上鍍上不同層之物質如圖3-8。在奈米 線製程中的微影、蝕刻、沉積等繁複的過程都可以直接跳過,增加樣品製作的效 率,但是其注入的氣體被加速後有比較大的動能,也有可能會將我們的奈米線壓 壞





圖3-9 FIB沉積示意圖。我們通常是使用含有鉑成分的攜帶氣體至樣品上方,再 以加速至30kV、10pA的離子束加速,就可以利用離子束帶有的能量分解攜帶氣體 進而沉積鉑在樣品上 做好一個成功的樣品後,接著就是放進低溫的環境下做電性量測。這邊我們 要介紹在低溫做精密量測的時候,有哪些需要注意的細節,並且說明如何使樣品 降到我們的最低溫度。

3-2-1 二點量測



圖3-10 兩點量測除了量測樣品電阻外,還會量到導線電阻與接觸電阻的訊號

丙點量測為傳統測量電阻的方式。最常見的例子即為用三用電表直接測量, 其外送電流與量測電壓皆為同一條導線,簡單快速。但在精密量測中有其缺點。 如圖所示,其所量測到的電阻 Ret表 = R ##+ R ## + R ## > R ## 。 會將導線電阻 與接點電阻給一起算進去。而接點電阻因為製程的關係常常遠大於樣品本身的電 阻,是實驗結果常常不一致的主要因素,故需要更精密的量測方式來避免,四點 量測。而兩點量測可以藉由一些簡單的聯立方程式來推測樣品本身的電阻,與樣 品跟電極的接點電阻。

在這邊我簡介一下各種方法所得到的接點電阻值(並非精確值,而是給一個 大約的數量級,且不同材料時其值也會不同),如果是用E-Beam後用熱蒸鍍做電 極,接點電阻約20K~500KΩ,若是用FIB時約10K~200 KΩ,若是E-Beam後用E-gun 做電極約50~500Ω。

3-2-2 四點量測



four-wire resistance measurement !



HI & Sense LO) 分為兩組來看,並同時跨接在樣品身上。我們知道當電流 I 從電 流源流出,並流入樣品時,除非遇到分流通路,不然電流[大小不會改變。當電 流 I 流經Sense Hi時,由於伏特計的內電阻極大,故分流流入Sense Hi 的電流 極小(其等級約為pA)。也因為流過Sense HI & Sense LO 兩端的電流極小,故這 段導線造成的電壓降貢獻小(V ##=0),所以伏特計量到的電壓V=V ##+V # 品÷V #品,也因此四點量測量測到的電阻幾乎就是樣品本身的電阻。

3-2-3 強森雜訊 (Johnson noise)

強森雜訊是量測必會遇到的雜訊,目前我們無法藉由其他方式來消除強森雜 訊,當我們實驗所量到的雜訊大小和強森雜訊大小一樣時,便代表我們已經幾乎 沒有其它多於雜訊來干擾我們的量測,即量到的訊號便是樣品本身電性訊號。理 論推導是用古典普郎克的量子統計所得的,如下所示:

$$P = 4k_BTB = \frac{V_{rms}^2}{R} = I_{rms}^2 R$$

$$V_{rms} = \sqrt{4k_BTBR} \implies \text{noise voltage \uparrow as R \uparrow}$$

$$I_{rms} = \sqrt{\frac{4K_BTB}{R}} \implies \text{noise current \downarrow as R \uparrow}$$
部所造成的功率
這座上的強森雜訊
這流上的強森雜訊
常數

P: 強森雜訊所造成的功率

$$V_{rms}$$
: 量測電壓上的強森雜訊
 I_{rms} : 量測電流上的強森雜訊
 $KB: 波茲曼常數$
T: 溫度
B: 量測時的訊號頻寬
R: 待測物的電阻值
將上式取對數 會發現
 $\log V_{rms} = const + \frac{1}{2}\log B$; $\log I_{rms} = const + \frac{1}{2}\log B$

2

如下圖所示:



圖3-12 由於電表本身有輸入組抗與輸出組抗,所以可瞭解到電表量測上的極限。

3-2-4 雜訊隔離與靜電防護

當樣品在低溫下做精密的電性量測的時候,我們要知道電阻隨著不同外在條件(改變磁場、改變溫度...)下產生了什麼樣的變化,但若這些變化很小的時候, 我們必須確保測量到的data會不會被外界的雜訊影響,而下面我們介紹雜訊的來 源和隔離雜訊的方法:

1. 量測儀器配有獨立的不斷電系統(Uninterruptible Power Supply, UPS)

其電源波形和原先電力公司送來的不同,且UPS有濾波的功能,相較於電力 公司,他能提供很穩定的電源。然而UPS平常為開啟充電的狀態,但是在實驗的 過程,此電池為一強大的雜訊源,因此我們在實驗過程中,會將此UPS 改為不充 電狀態。

2. 注意實驗室中與量測系統共用相同接地的儀器

當很多儀器共用相同的接地時,會在地下形成一個迴路(Ground loop), 造成每個儀器互相干擾,尤其是在儀器剛開啟時的突波更為明顯。其中頻率相近 的電表也開著的時候,對訊號也有一定程度的干擾,所以在量測的過程中,須避 免這些儀器的影響。

3. 注意元件製程的細節並確定樣品與儀器的接觸良好

雜訊的來源有時來自電子隨機被某些散射點散射所導致,所以在製程中要注 意製程的環境是否乾淨,避免雜質進到元件裡,譬如蒸鍍過程中的真空度夠低、 鍍電極前是否清除乾淨。此外,樣品與儀器的接觸包含了樣品和銅線間的銀膠還 有銅線和樣品座的接觸是否牢固。

4. 外界電磁波的干擾

通常來自日常生活的環境和實驗室中某些儀器所產生,良好的接地並且將量 測儀器屏蔽起來有助於防止這類的雜訊干擾。

5. 使用雜訊隔離器(Isolator)

在電表和溫控計連接到電腦之間,使用雜訊隔離器ISO488,利用光學訊號來 代替電表與電腦之間傳遞的訊號,防止電腦的電子訊號對電路有所干擾,消除接 地迴路的產生,此外還能濾掉較高頻的雜訊。

6. Johnson noise

在前面討論的雜訊來源為Johnson noise,此雜訊為基本熱擾動所引起的雜訊,在無法避免的情況下,我們希望訊號解析可以逼近Johnson noise。

隔絕雜訊後,量測時還有另一項要注意的就是靜電防護的工作,由於奈米線 是非常脆弱的元件,他只能在極小的電流下工作,外界的靜電一旦超出他能負荷 的範圍,整個樣品就會燒毀,功虧一簣,所以我們只能小心做好各種靜電防護的 措施:

- 1. 實驗全程佩帶靜電手環,隨時將身上的電荷導掉。
- 任何探針或電表在接上樣品之前須先接地,避免可能累積的電荷進入,尤其是 尖狀的物品特別容易有電荷的累積。
- 樣品製作完成後的基板,放在導電的樣品盒內,整個盒子中等電位,且不容易 有電荷的累積。
- 4. 儀器所使用的任何接頭插拔時不可太快,避免可能因摩擦產生的電荷影響。
- 5. 實驗過程中,將樣品的外殼接地,導掉可能累積的電荷。
- 6. 任何電表在測量先都先開好,避免測量開始時產生的突波進入樣品。

3-3-0 低溫量測儀器與原理介紹

我們所使用的低溫量測系統,包括溫度計和低溫致冷器的介紹,和掛載超導磁鐵外加垂直磁場,並且介紹其降溫原理與操作的流程。

3-3 溫度計 (thermometer)

温度計依制訂温度的協定,可以分為兩種溫度計:

1. 原始溫度計 (primary thermometer)

原始溫度計是指可用來制訂溫度用的溫度計,且依據熱力學相關的理論式, 來定作出溫度的物理環境,故只要架設好是不需要經過校正。

2. 從屬溫度計 (secondary thermometer)

從屬溫度計是指大部分實驗室或是一般量測溫度時所用的溫度計。此溫度計 有方便使用、可覆線性、更敏捷感受溫度變化的特性,故從屬溫度計有大熱導、 小熱容、優良的熱接觸等特性,但最好必須經過原始溫度計的校正。一般實驗室 所用的從屬溫度計以熱電偶溫度計及電阻式溫度計居多。其中電阻式溫度計主要 以送電流量電壓或送電壓量電流的方式來量測電阻,有以下幾種:鉑溫度計、二 極體溫度計、鍺溫度計、碳溫度計、碳玻璃溫度計、Cernox 溫度計、RuO2 溫度 計。特性如下表所列:

主 3-1	久插四府针性州丰	
	石裡血及可行任衣	

thermometers Overview	Temperature Range	Standard Curve	Below 1 K	Can be used in radiation	Performance in magnetic field			
Positive Temperature Coefficient RTDs								
Platinum	14 K to 873 K	0		0	Fair above 30 K			
Diodes								
Silicon	1.4 K to 500 K	0			Fair above 60 K			
	Negative Temperature Coefficient RTDs							
Germanium	0.05 K to 100 K		0	0	Not recommended			
Carbon	1.4K to 300K(A-B) 0.28 to 6.2K(S)				Good			
Carbon-Glass	1.4 K to 325 K			0	Good			
Cernox TM	0.10 K to 325 K		0	0	Excellent above 1 K			
Ruthenium oxide*	0.01 K to 40 K	0	o	o	Good below 1 K			
		Othe	-	2				
Thermocouples	1.2 K to 1543 K	0			Fair			

				be calibrated
Facilities	sensor position	sensor name	be calibrated?	temperature range
		silicon diode		
	sample holder(ch1)	DT-470-CU-13	o(1998/2)	1.4K~325K
		silicon diode		
CRYO I		DT-470-CU-13	x	
	sample holder	Cernox-1050-CU-1.4L	o(2002/7)	1.4K~325K
		thermal couple	x	
CRYO II		thermal couple	x	
		silicon diode		
	sample holder (B)	DT-670-CU-13	o(2006/11)	1.4K~325K
		silicon diode		
CRYOI	DT-670-CU-13		x	
		Allen-Bradley sensor		
	sorb	270Ω (carbon resistor)	x	
		Speer 470 Ω sensor		
1K pot		(carbon resistor)	x	
3He-pot		CGR-1-1000	o(1995/8)	$1.5K \sim 300K$
Old ³ He	3He-pot	RuO ₂	0	$0.3 \mathrm{K} \sim 3.8 \mathrm{K}$
		Allen-Bradley sensor		
	sorb	270Ω(carbon resistor)	x	
1K pot		RuO ₂	x	
	3He-pot	Cernox-1050-AA-1.4L	o(2003/5)	1.4K~325K
	3He-pot	3He-pot RuO ₂		25mK ~ 4.2K
$New \ ^3{\rm He}$	3He-pot	RuO ₂	x	
and the second se				

表3-2 本實驗室中各類低溫致冷器所搭配的溫度計



圖3-13 二極體溫度計silicon diode DT-670-CU-13 外觀與裝置使用示意圖



圖3-14 外加電流為10µA 時,二極體溫度計量測電壓與溫度的關係圖



圖3-15 Cernox 溫度計的溫度與敏感度關係圖

3-4 低溫致冷器(Cryostats)

低溫致冷器是量測低溫時需要用到的低溫系統,我們是使用Oxford公司的 ³He cryostats,名稱為HelioxVL,其最低溫可降至0.25 K。以下會先依照降溫 的流程,說明HelioxVL 的主要構造,接著介紹各溫度區間的降溫原理,再敘述 降溫前的準備動作,最後一部分為整個降溫的操作流程。

3-4-1 ³He構造說明

如圖3-14所示,HelioxVL 基本形體為一長管狀,主要構造分為三個部分, 第一部分位於儀器最上方,如圖3-14的A段,包含存放³He的³He dump及其上方 的針閥電動馬達、超導磁鐵電極、訊號線接頭、1K plate pumping line and valve、IVC pumping line and valve。

第二部分在儀器的中間,如圖3-14的B段,外觀為中空的不鏽鋼管,內部連結了第一段到第三段的訊號線。此部分的長度甚長,和外殼為不鏽鋼,都有一樣的原因:減少到IVC的熱源。當此低溫儀浸入液態氦時,A部分還是在室溫300 K,300 K 的熱會由導線傳到樣品,若此導線從300 K 到樣品所走的路徑很長,那麼熱阻就會變大,其導熱和導電都不容易,因此B部分以不鏽鋼做外殼也可減少IVC 的熱源。

第三部分在儀器的最下方,如圖3-14的C,此為一個腔體,我們稱它IVC (Inner Vacuum Chamber),控制C 部分抽氣的閥門、測量樣品的電子訊號、磁 鐵的電流輸入端…等,即此低溫儀對外的接點皆位於A部分,如圖3-15、3-16 所 示。拆下IVC後就是核心的部分(如圖3-14右),其中有³He sorb、³He pot、1K plate、樣品座、五顆溫度計及3顆加熱器,IVC封上後會有一根不鏽鋼管路在外 頭,為1K plate 管路,它的功用是將外面的液氦抽進IVC內的管路,管子末端接 到針閥 (needle valve)且可以由A區的步進馬達控制針閥的大小,也就是控制 液氦進出的量,抽進來的液氦由IVC上方進入IVC內,通過³He sorb、1K plate、 ³He pot。而樣品座如圖3-17位於³He pot下方,樣品座為實驗室自行製作,由無 氧銅製成。由於無氧銅導熱良好,容易與³He pot達成熱平衡,所以我們可以將 樣品座的溫度視為和³He pot相同,且可以依照實驗的需求放置來決定外加垂直 磁場或平行磁場。

而我們使用的³He平常是放在A段的³He dump,有一條管路通過B到達C段, ³He pot被包覆在其管路內,1K plate連接包裹在其管路的外側,最後連接到³He pot內形成封閉的管路,此為³He pot密閉系統。



圖3-16 ³He refrigerator 構造圖。



圖3-17 HelioxVL 上端構造之上視圖。



圖3-18 HelioxVL 上端構造之側視圖。



圖3-19 樣品座,依照不同需求分為垂直與平行磁場兩種。

3-4-2 降溫原理

在從室溫降到最低溫度時,各個階段的溫區有不同的降溫方式,下面我們將 一一介紹它們的原理和技術。

1. 300K~90K先使用液態氮預冷(Pre-cooling)

一大氣壓下,液態氮的沸點(boiling point)為77.4 K,熔點(melting point) 為63.3K。在此溫度區間,我們將低溫儀放入液態氮中利用熱傳導的方式來降低 溫度。這部分我們不使用液態氦是因為溫度太高,直接使用液氦會造成液氦蒸發 太快,就經濟層面考量會先用液氮預冷,而這裡要注意的是液氮可能會漏進管路 中,在溫度低於它的熔點的時候很容易造成管路阻塞。在90K左右就可以準備將 cryo換到液氦中(如圖3-19)。

2. 90K~5K 藉由液氦傳導降温

液態氦的沸點為 4.2K,對於 IVC 來說外在的液氦是我們的冷源,而此時 IVC 降溫的方式是藉由液氦對 IVC 由傳導的方式做熱交換來進行,真空度低的 IVC 容易降到液氦溫度,但到了低溫的時候外面的液氦反而是熱的來源,所以真空度 的高低在這邊影響很大,在我們下低溫之前會放約 10mtorr 的氦氣當作交換氣 體,通常液氦和 IVC 熱交換平衡溫度在 5~6K。

3. 5K~1.5K 利用 ⁴He 減壓降溫

由於液氦的沸點隨著壓力降低也會跟著降低(如圖 3-18),而液氦的溫度 也會跟著降低,所以我們可以藉由抽氣讓 IVC 到達更低的溫度,理論上越低的壓 力就會到達越低的溫度,但這時 IVC 外的液氦為一熱源,並且在 2K 左右液氦的 超流特性也會影響,所以減壓降溫大約能降到 1.5K 左右。

4. 1.5K~base temperature 由³He 降溫

由於⁴He能降的溫度有一個極限,如果要再到更低的溫度就需要靠他的同位 素—³He,大自然界中存在含量極少的³He,因為³He也可與氘進行核反應,所以 被嚴格管制取得不易,所以³He必須是在一個封閉的迴路中運作(如圖3-20),一 大氣壓下,液態³He 的沸點為3.19 K,³He 和⁴He 的特性不太一樣,如圖3-18為 ³He 和⁴He 的沸點隨壓力變化圖,可發現³He不需到和⁴He 一樣的環境壓力,便可 和⁴He 有一樣的沸點。



圖 3-20³He 與 ⁴He 壓力對溫度的關係。



圖 3-21 將 cryo 放進液氦桶內的透視圖。液氦高度需高於超導磁鐵

如同前面所說,³He 一開始被存放在圖 3-14 的 A 處的 ³He dump 中,當整根 cryo 被插到液氦中時,A 處仍在室溫,但C 處降到液氦溫度附近,造成 cryo pumping 的效果,這時候原本儲存在A 段 ³He dump 的 ³He 會往下跑。但此時 ³He sorb 也是在低溫的情況下,由於 sorb 內的活性炭有低溫吸收氣體、高溫放出氣 體的特性,sorb 會吸附 ³He 的氣體,這時 ³He pot 溫度大概在 2.2K 左右時,我 們加熱 ³He sorb 到 30K, sorb 就會放出 ³He pot 溫度大概在 2.2K 左右時,我 們加熱 ³He sorb 到 30K, sorb 就會放出 ³He 和於 ³He pot 的溫度已經低 於 ³He 的沸點, ³He 就會開始在 ³He pot 冷凝(condense)如圖 3-20 左,在冷凝一 段時間後(約半小時),液態 ³He 在 ³He pot 累積了一定的量,這時把 ³He sorb 的加熱器關掉, ³He sorb 開始降溫,並開始對 ³He pot 抽氣,如同一個天然的幫 浦,對液態 ³He 做減壓降溫的動作,此時會慢慢降到我們的基溫(base temperature),約 0.25K 左右。



圖 3-22 ³He 冷凝裝置圖。

3-5 超導磁鐵

超導磁鐵主要由超導線圈和轉換加熱器(switch heater)組成(如圖 3-21), 圖中間粗線也是超導材質,藉由 switch heater 的加熱可以破壞此區的超導, 而超導線圈的材質為 NbTi,在低溫下最高可通入 48.165 安培的電流,可產生 4T 的磁場,通入電流最高上升速率為 12.041 安培/分鐘。其超導溫度約為 11K,所 以必須確定整個超導磁鐵浸泡在液氦中,成為超導態,否則離開超導態時電流產 生的溫度會讓液氦快速揮發,整個氦桶壓力會升高,有氣爆的危險。依照不同的 需求,超導磁鐵工作有兩種模式:

1. Sweep mode

在輸入電流到超導線圈前,先將 switch heater 打開一段時間(約 40 秒), 再將超導超導線圈電源打開,藉由改變輸入電流,我們可以得到不同的磁場,得 到在不同磁場下的電性。

2. Persistence mode

將電流加到需要的磁場。將加熱器關掉,等待40秒,再把電流源降為0, 面板會顯示為 persistence 模式。此時電流所走的迴路為(2)號,由於是在超導 迴路中,一開始的電流在這條路徑不會有能量的損失,所以可以將磁場固定。若 要取消此模式,打開電流源,再將加熱器打開,等40秒,把電流降回0即可。



圖 3-23 超導磁鐵示意圖。

四、實驗結果與數據分析討論

4-1 樣品資訊及實驗原始數據



ITO_f

ITO_e

圖 4-1 Si/Si02 基板上的奈米線 4 點量測的 SEM 影像

	Length(µm)	Diameter(nm)	$R_{300K}(\Omega)$	$\rho_{300K}(\mu\Omega-cm)$
ITO_n	0.79	150	33.1	74
ITO_r	1.52	60	1085	202
ITO_f	2.83	72	6940	997
ITO_e	2.89	109	3752	1210

表 4-1 樣品資訊及室溫電阻率



圖 4-3 樣品 ITO_r 的電阻率對溫度曲線



圖 4-5 樣品 ITO_e 的電阻率對溫度曲線

	$\rho_{300K}(\mu\Omega-cm)$	$\rho_{10K}(\mu\Omega-cm)$	$D_{10K} ({\rm cm}^2/{\rm s})$	$k_{f}l$	$T_{\min}(K)$	$R_{(0.3K)}$ / R_{\min}
ITO_n	74	59.2	68.8	68.2	63.5	1.002
ITO_r	202	185	24.9	24.7	106.4	1.04
ITO_f	997	1030	5.93	5.88	211.1	1.09
ITO_e	1210	1690	5.04	5	>300K	>1.14

表 4-2 樣品的溫度特性。D 為擴散常數。

其中樣品 ITO_n 和 ITO_r 電極是用電子束微影製作,而 ITO_f 和 ITO_e 是用聚焦離子束(Focus Ion Beam)製作。

從表 4-1 來看,依照樣品的無序程度排列依序是:ITO_n → ITO_r → ITO_f → ITO_e。

這裡最有序的材料就是 ITO_n。 Natsuki Mori(1993) [24]與 Ohyama 等人 (1985) [25]在研究 ITO 薄膜時發現越小的電阻率的 ITO 薄膜中越能在低溫看到超 導的現象,在我們 ITO_n 的樣品中,電阻也有出現同樣的情形,可以解釋為何圖 4-2 在低溫時會有往下的趨勢。

然而前面第二章的基本理論中提到,弱局域效應並不會發生在完美(有序)的 晶格中,從ITO_n的電阻率對溫度曲線圖來看(圖 4-2),電阻率從最低點的溫度 到一直降到低溫時,上升幅度非常的小, R_(0.3K)/R_{min}=1.002,這代表這中間並 沒有太多弱局域效應對電阻率的修正。

從表 4-2 可以看出當無序程度越來越高時,最低電阻率所屬的溫度T_{min}一直 增高,到 ITO_e 的樣品已經高於室溫的電阻,所以從圖 4-5 的曲線圖會看到電阻 率從室溫開始降溫時都會一值上升。

由於我們是用 He³ 降溫,降溫的過程中,可能由於交換氣體的量過多,導 致藉由交換氣體傳導過快,加上沒有控溫的步驟,所以有些訊號會不穩圖 4-3、 圖 4-5,所以在測量磁電阻時,必須把低溫部分的 R-T 圖給補上。

為了計算弱局域效應在低溫時對電阻率的貢獻,我們會先加一強大的磁場將 弱局域效應給破壞掉,所以接下來是低溫下外加磁場的電阻率對溫度變化圖。

4-1-2 磁場下的電阻隨溫度變化的實驗數據

我們使用超導磁鐵在垂直方向外加一個 4 Tesla 的強磁場,然後在強磁場下 測量電阻對溫度的變化,從圖 4-6、圖 4-7、圖 4-8 來看,磁場的加入造成 R-T 圖中電阻隨溫度下降而上升的幅度有明顯減少的趨勢。

由前面的理論提到,在低溫下電阻的上升原則上主要由弱局域效應和電子-電子交互作用貢獻,而電子-電子交互作用並不會因為外加磁場有明顯的改變, 所以在加了大於特徵磁場的強磁場之後,弱局域效應已經被破壞,低溫部分的上 升只剩下電子-電子交互作用的貢獻。

藉由磁電阻 R(B)的量測,我們可以解析出弱局域效應中重要的參數 L_o,後 面我們會藉由 L_o的分析可以定量的計算出弱局域效應對於低溫部分的電阻上升 的貢獻。



圖 4-6 樣品 ITO_n 外加垂直磁場下的 R-T 圖



圖 4-8 樣品 ITO_f 外加垂直磁場下的 R-T 圖



圖 4-10 ITO_r 的磁電阻原始數據。



圖 4-12 ITO_e 的磁電阻原始數據。

在圖 4-9~圖 4-12 的磁電阻數據可以發現,由於各個樣品磁性雜質或缺陷的 位置不同,使得在不同磁場下的磁電阻有隨機的漲落,尤其是在低溫下的漲落特 別明顯。因為這種漲落的可重複性與獨特性,它也被稱為磁指紋(magneto finger print)。

由於每個樣品都有特殊的磁指紋的漲落,控制這種漲落的因素在於雜質或缺陷的位置,而我們知道當到達越高溫的時候這些雜質或缺陷移動的機率會提高, 移動後磁阻漲落的重複性就會被破壞,尤其以低溫的磁電阻特別明顯。所以為了 確保我們的磁電阻在相同的材料中,量測的過程中最好從低溫開始,且從第一個 溫度量到最後一個的過程中不要中斷。

在圖 4-9 中,ITO_n 的磁電阻放了 3 個溫度的數據,在這裡只有看到一般磁指紋的漲落,如同該樣品的 R-T 圖一樣,這裡也是解析不出弱局域效應對於磁電阻的影響。

在圖 4-10 中,ITO_r 在小磁場(≈0.17)的時候發現了負的磁電阻,我們可以 預測可能是弱局域效應的出現。而在圖 4-11 中,在小磁場的地方發現了正磁阻, 且如同前面的理論所描述,正磁阻的情況隨著溫度的上升而開始變的不明顯,然 後到約 4K 後開始變負的磁電阻。可以推測這是自旋-軌道散射造成的反弱局域效 應。而圖 4-12 也發生同樣的正磁阻的情況,但比較可惜的是,在量完 2K 的磁電 阻之後,可能由於接點的不穩導致雜訊開始擴大(如圖 4-13),在重新測量後發現



圖 4-13 樣品 ITO_e 由於雜訊過大,蓋掉了原本的電性。
已經和原本的數據不同,無法測量,所以這個樣品僅能以有限的數據做簡單的分析。

所以後面我們會主要會對於樣品 ITO_r 與 ITO_f 的磁電阻做進一步的分析, 取得各種有意義的物理量。

4-2 垂直磁場下的磁電阻分析

現在我們利用前面的理論提到的一維弱局域效應的磁電阻公式(2-31)去擬 合磁電阻的數據。



其中 $\Delta R(B) = R(B) - R(0)$,由於這個樣品我們並沒有看到正磁阻的現象,因此我們可以判斷這裡幾乎沒有自旋-軌道散射的作用,所以在此 我 們 可 以 令 $L_{so} >> L_{\varphi}$ 。

為了避免高磁場下有其他效應影響,像是電子-電子交互作用,或是古典的 Lorentz 力,最小平方法擬合所套用的範圍和溫度相關,通常是B/T≤0.5 Tesla/K [26], (Lindquist, 1990),所以在低溫的時候,磁阻擬合的範圍會比較小, 當到高溫的時候,幾乎整條磁電阻數據都能與理論預測吻合。

4-2-1 弱局域效應對樣品 ITO_r 磁電阻之擬合結果

下一頁的圖 4-14 列出了從低溫 0.25K 到高溫 40K 的幾條磁電阻數據,並且以 2-30 式做擬合,我們可以看出擬合的很好,並且藉由這邊的結果來得到相位破壞長度 L_o。



圖 4-14 樣品 ITO_r 不同溫度下的一維弱局域效應對磁電阻擬合曲線。



表 4-3 ITO_r 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數

表 4-3 列出了各個溫度對於一維弱局域效應擬合後得到的各種參數,其中我 們得到的 L_a皆大於樣品的尺寸,表示這是確實的一維弱局域效應結果。

比較各種溫度的相位破壞長度 L_o後可以發現,隨著溫度增加,L_o會一值變短,但是 0.25K 的值除外,而我們的解釋是,由於磁電阻的漲落在低溫會更明顯, 也就是在最低溫的時候有其他的效應加入,所以在單純分析弱局域效應時,會有 些誤差。

4-2-2 弱局域效應對樣品 ITO_f 磁電阻之擬合結果

接下來我們要用相同的方法分析樣品 ITO_f,不同的是,由於這個樣品有正 磁阻的情形,所以我們試著加入自旋-軌道交互作用下去分析。

前面的理論提到,自旋-軌道交互作用並不會隨著溫度而改變,所以我們會 先擬合幾個自旋-軌道交互作用明顯的磁電阻,再將擬合結果中的自旋-軌道散射 長度做平均,然後將此平均後的自旋-軌道散射長度定住,再開始擬合。



63

	0.26K	0.5K	1K	2K
L _{so} (nm)	124.3	127.7	125.8	123.6

表 4-4 樣品 ITO_f 擬合後得到的 L_{so}

對於正磁阻的擬合後,得到 L_{φ} 與 L_{so} ,但是由於 L_{so} 尚未固定,所以得到的 L_{φ} 僅供參考。現在我們將4組溫度平均後的 L_{so} (約為125nm)固定,再去擬合出 L_{φ} 。如圖4-17,可以看出 L_{so} 固定後,當 L_{φ} 隨著溫度升高而變短時,自旋-軌道 交互作用的影響漸漸變的不明顯,一直到4K以後 $L_{\varphi} < L_{so}$,自旋-軌道交互作用 產生的正磁阻完全消失。



圖 4-17 樣品 ITO_f 低溫部分的磁電阻此圖為原始數據(圖 4-11)每 0.01 Tesla 平均 一次後得到,並以零磁場做歸一。



圖 4-18 樣品 ITO_f 在較高的溫度下一維弱局域效應對磁電阻擬合曲線。

T (K)	B_{φ} (Tesla)	$ au_{\phi}$ (s)	L_{φ} (nm)
0.26	0.00246	1.1333E-10	185.3075
0.5	0.00272	1.02579E-10	176.29885
1	0.00294	9.49553E-11	169.6215
2	0.00386	7.24381E-11	148.15107
3	0.00482	5.79387E-11	132.49694
4	0.00525	5.32029E-11	126.9665
5	0.00686	4.06974E-11	111.0465
6	0.00796	3.50757E-11	103.09185
7	0.0091	3.07033E-11	96.4525
8.5	0.01091	2.55921E-11	88.05905
10	0.01341	2.08298E-11	79.44455
12	0.01721	1.62292E-11	70.1245
15	0.0211	1.32391E-11	63.33605
18	0.02632	1.06124E-11	56.7059
20	0.0299	9.34073E-12	53.2
22	0.0407	6.86257E-12	45.6
25	0.04351	6.41851E-12	44.1
28	0.07342	3.80397E-12	33.95
30	0.06548	4.26535E-12	35.95
32	0.08012	3.48597E-12	32.5
35	0.08907	3.13591E-12	30.825
38	0.0867	3.22163E-12	31.24344
40	0.1095	2.55063E-12	27.8

表 4-5 ITO_f 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數。

擬合的結果如表 4-5,我們可以看出 L_o相較 ITO_r 的樣品短了許多,這是由 於在這個比較無序的樣品中,傳輸電子發生非彈性碰撞造成相位破壞的機率提 高,導致相位同調的長度縮短。

L_p隨著溫度變化從 0.26K 的 185nm 縮短到 40K 的 27.8nm,但是由於樣品的 直徑是 72nm,所以由樣品尺寸來判斷,弱局域效應在高溫的時候已經不是嚴格 的一維,在約 12K 的時候會由一維過渡到三維。 所以我們試著在L_o屬於三維的地方用三維弱局域效應的公式擬合,對於沒 有超導效應的非磁性系統,三維弱局域效應磁電阻率可表示成:

$$\frac{\Delta\rho(B)}{\rho^{2}(0)} = \frac{e^{2}}{2\pi^{2}\hbar} \sqrt{\frac{eB}{\hbar}} \left\{ \frac{1}{2\sqrt{1-\gamma}} \left[f_{3}(\frac{B}{B_{-}}) - f_{3}(\frac{B}{B_{+}}) \right] - f_{3}(\frac{B}{B_{-}}) - \sqrt{\frac{4B_{so}}{3B}} \left[\frac{1}{\sqrt{1-\gamma}} (\sqrt{t_{+}} - \sqrt{t_{-}}) + \sqrt{t} - \sqrt{t+1} \right] \right\}$$
(4-1)

其中

$$\gamma = \left[\frac{3g^* \mu_B B}{8eDB_{so}}\right]^2$$

$$B_{\pm} = B_{\Phi} + \frac{2}{3}B_{so}(1\pm\sqrt{1-\gamma})$$

$$t = \frac{3B_{\Phi}}{4B_{so}}$$

$$t_{\pm} = t + \frac{1}{2}(1\pm\sqrt{1-\gamma})$$

$$B_2 = B_{\phi} + \frac{4}{3}B_{so}$$

$$f_3 \notin \mathbb{M} \oplus \mathbb{K} \oplus \mathbb{K}$$

其近似的表示式由 Baxter et al. (1989 [28]) 推導如下:

$$f_3(z) \approx 2 \left[\sqrt{2 + \frac{1}{z}} - \sqrt{\frac{1}{z}} \right] - \left[\left(\frac{1}{2} + \frac{1}{z} \right)^{-1/2} + \left(\frac{3}{2} + \frac{1}{z} \right)^{-1/2} \right] + \frac{1}{48} \left(2.03 + \frac{1}{z} \right)^{-3/2}$$
(4-3)

下面圖 4-19 及 4-20 放了 20K 及 22K 分別以三維及一維做擬合,我們可以 發現,雖然在小 L_o的高溫區理論上應該用三維的弱局域效應來解釋。但是當我 們用三維的弱局域效應擬合的時候,磁電阻的行為與理論曲線有很大的差異,仍 然比較屬於一維弱局域效應的行為。

而且用三維的弱局域效應擬合之後,除了擬合的不好之外,得到L_a的值也



圖 4-20 樣品 ITO_f 在 22K 以三維及一維的弱局域效應擬合結果。

很明顯地不合理,所以我們後面的分析仍然會以一維弱局域效應擬合得到的結果 為主。

但這樣我們就遇到一個問題,一維弱局域效應得到的L_o在一維過渡到三維時,使我們在維度上的判斷出現不一致的情況,且三維的理論沒有辦法擬合,這部分尚未有一個很合理的解釋。

4-2-3 弱局域效應對樣品 ITO_e 磁電阻之擬合結果

接下來我們也對樣品 ITO_e 以一維弱局域效應做擬合,擬合的結果如圖 4-21,與上一個樣品 ITO_f 相同的是,同樣因為無序程度較高,得到較小的 L_{φ} ,並且在低溫有自旋-軌道散射造成的正磁阻現象,所以同樣的我們必須先擬合出 自旋-軌道散射長度 L_{so} ,並且將其固定後再開始擬合 L_{φ} ,而我們這裡得到的 L_{so} 約為 94.88nm。而我們知道 $1/\tau_{so} \propto Z^4/\tau_e$,從樣品在低溫的電阻率來計算 ITO_f 與 ITO_e 其 L_{so} 的比值為 1.6 而這裡我們得到的值是 125/94.88=1.3,證明擬合



圖 4-21 樣品 ITO_e 的磁電阻以一維弱局域效應擬合結果。

T (K)	B_{φ} (Tesla)	$ au_{arphi}$ (s)	L_{arphi} (nm)
0.25	0.00577	5.66217E-11	168.93
0.5	0.00654	5.00094E-11	158.76
1	0.00809	4.0392E-11	142.68
2	0.00985	3.31819E-11	129.32

表 4-6 樣品 ITO_e 對不同溫度的磁電阻擬合得到的各種參數。

如上表 4-6 為樣品 ITO_e 的磁電阻擬合得到的結果,雖然這個樣品的數據不夠,但是依照 L_e 隨溫度上升而減少的趨勢來看,在較高溫的地方也能預期有類 似樣品 ITO_f 的一維弱局域效應過渡到三維的情況。

4-3 相位破壞長度分析

弱無序導體系統的相位破壞時間由很多物理機制影響,這裡可以表示成 式 4-4 [29]: ES

$$\frac{1}{\tau_{\varphi}(T)} = \frac{1}{\tau_{0}} + \frac{1}{\tau_{ee}(T)} + \frac{1}{\tau_{ep}(T)}$$
(4-4)

其中 τ_0 為絕對零度時的相位破壞時間與溫度無關, τ_{ee} 為電子-電子散射時間, τ_{ep} 為電子-聲子散射時間,其中我們知道在弱無序系統中電子-聲子的散射時間的倒數約正比於 T^2 [30],所以可以寫成:

$$\frac{1}{\tau_{ep}(T)} = A_{ep}T^2 \tag{4-5}$$

並且我們將電子-電子散射時間的倒數令為: $\tau_{ee}^{-1} = A_{ee}T^{p}$, A_{ee} 為電子-電子散射強度,所以式 4-4 變為:

$$\frac{1}{\tau_{\varphi}(T)} = \frac{1}{\tau_0} + A_{ee}T^p + A_{ep}T^2$$
(4-6)

再依照 $L_{\varphi} = \sqrt{D\tau_{\varphi}}$ 的關係式,我們可以對相位破壞長度做擬合,找出 $\tau_0 \cdot A_{ee} \cdot A_{ep}$ 和p值,做更定量的分析。

4-3-1 樣品 ITO_r 的相位破壞長度分析

我們用式 4-6 對磁電阻數據得到的 L_{φ} 做擬合如下圖 4-22,並且將擬合得到的結果列在表 4-7



圖 4-22 樣品 ITO_r 相位破壞長度及其擬合曲線。

	$\tau_0(s)$	$A_{ee}(K^{-2/3}s^{-1})$	$A_{ep}(K^{-2}s^{-1})$	р
ITO_r	1.24×10^{-10}	2.97×10^{9}	3.97×10^{7}	0.679 ± 0.10

表 4-7 對樣品 ITO_r 相位破壞長度擬合得到的參數。

由於 ITO 已被證實其導電載子是在自由電子氣體模型下移動,所以我們引用 電子-電子散射強度其理論的預測為[31]:

$$\frac{1}{\tau_{ee}} = \left(\frac{e^2 \sqrt{D}RK_B T}{2\sqrt{2}\hbar^2 L}\right)^{\frac{2}{3}} = A_{ee}T^{\frac{2}{3}}$$
(4-6)

 A_{ee} 為 $6.9 \times 10^{9} (K^{-\frac{2}{3}}s^{-1})$,與我們實驗值得到的 $2.97 \times 10^{9} (K^{-\frac{2}{3}}s^{-1})$ 十分接近,且 溫度的指數項 p 的實驗值為 0.679 ± 0.10 ,也與理論值2/3非常靠近。

4-3-2 樣品 ITO_f 的相位破壞長度分析

同樣的我們也對樣品 ITO_f 的 L_o做擬合如下圖 4-33,由於這個樣品在前面 分析的結果,弱局域效應會在約 12K 的時候由一維過渡到三維,所以在這裡我 們一維弱局域效應的擬合只針對 12K 以下的溫度,如圖 4-33 實線部份。紅色的 虛線則為 12K 前的擬合結果做延伸,黑色較細的虛線則是依樣品尺寸標示出一 維與三維的分界



圖 4-23 樣品 ITO_f 相位破壞長度及其擬合曲線。

	$\tau_0(s)$	$A_{ee}(K^{-\frac{2}{3}}s^{-1})$	$A_{ep}(K^{-2}s^{-1})$	р
ITO_ f	6.85×10^{-11}	6.42×10 ⁹	4.93×10 ⁸	0.69 ± 0.12

表 4-8 對樣品 ITO_f 相位破壞長度擬合得到的參數。

4-3-3 弱局域效應對 R-T 的修正

由第二章的理論中提到,在一維的系統中,弱局域效應在低溫中對電阻的修 正可以表示成:

quasi-1d
$$\Delta \sigma = -s \frac{e^2}{h} \frac{1}{S} (L_{\varphi} - l_e) \qquad (2-12)$$

其中 s 為電子自旋 s=2、S 為截面積、l。為電子彈性碰撞的平均自由路徑。 由於實驗室中的超導磁鐵能提供最高的磁場為 4 Tesla,所以我們外加 4 Tesla 的磁場希望能將弱局域效應的效果完全抑制。

1111/

圖 2-24 為 0 磁場下與 4Tesla 磁場下的 R-T 圖,首先我們將 0T 的電阻減掉



圖 4-24 在不同磁場下的電阻對溫度的變化

4T 的電阻,因為假設 4T 時已經沒有弱局域效應的影響,剩下的為其他效應對電 阻的修正,而這不是我們目前要討論的,所以將他去除,減去的結果如圖 4-25。

將前面磁電阻擬合到的 L_{ρ} 帶入式 2-12,其中 $\Delta \sigma = -\frac{\Delta \rho}{\rho^2} = -\frac{\Delta R}{R}\frac{1}{\rho_0}$,所以:

$$\frac{\Delta R}{R} = s \frac{e^2}{h} \frac{\rho_0}{S} (L_{\varphi} - l_e)$$
(4-7)

圖 4-25 即為比較實驗和理論的結果



圖 4-25 樣品 ITO_r 討論弱局域效應在低溫中對電阻的修正,並且比較實驗和理論的結果,其中符號 □ 表示實驗值中 R(B=4T)-R(B=0)的結果,而符號 △ 表示用式 4-7 的理論計算的結果。

另外由式 2-30 我們知道三維的電子-電子交互作用對電導的修正為

$$\Delta \rho(T) = \frac{-1.3e^2}{4\pi^2 \hbar} \rho^2 a \sqrt{\frac{K_B T}{2\hbar D}}$$
(2-30)

為了了解電子-電子交互作用在各個溫區的維度,因為 $l_{e-e} = \left(\frac{\hbar D}{k_B T}\right)^{1/2}$,由於擴散 常數我們已經知道,所以可以畫出圖 4-26。



圖 4-26 *l_{e-e}* vs *T*。我們發現在 6K 以上的溫度電子-電子交互作用會變成三維。 虛線為樣品尺寸

我們想知道電阻在低溫的上升是否由(2-30)式三維的電子-電子交互作用主 導的。我們知道,當電子是在三維的電子-電子交互作用的系統中,R會跟 \sqrt{T} 成 正比,所以我們對加了4T 垂直磁場的電阻對 \sqrt{T} 做圖4-27發現很明顯的線性區 域,而我們由式 2-30 的理論推論圖 4-27 的斜率應為7×10⁻⁵(其中 $\rho_0 = 17 \& \mu \Omega - cm$)、 $D = 25(cm^2/s)$,但在我們擬合後得到的值為2×10⁻³差了 約兩個數量級,所以猜測這段上升有其他與 \sqrt{T} 相依的電阻修正項的影響,譬如 無磁性的二通道近藤效應(nonmagnetic two channel Kondo effect)[37]。



圖 4-27 R vs \sqrt{T} 圖。可以看出電阻的上升有 \sqrt{T} 的關係,箭號為擬合的溫區

而其中二通道近藤效應對電阻率的修正如下:

$$\rho_{2CK} = \frac{3n_i}{4\pi\hbar [eN(0)\nu_f]^2} \left[1 - 4\lambda\sqrt{\pi T} \right]$$
(4-8)

其中 n_i 為缺陷濃度、N(0)為能態密度、 v_f 為費米速度、 $\lambda = T_{2CK}^{-1/2}$,由於 n_i 與 λ 我們沒辦法得到其精確值,所以我們從這個樣品去推測它們的值,我們的結果是 $n_i \times \lambda = 5.1 \times 10^{24}$,與之前的實驗結果在同一個數量級 $n_i = 10^{23} - 10^{25}$ [39]。

4-4 ITO 奈米線的普適電導漲落分析

普適電導漲落(Universal Conductance Fluctuations, UCF)屬於另一種量子的相位干涉現象,有別於一般熱雜訊或儀器產生的雜訊,L. Meisenheimer 和N. Giordano (1989)[32]的研究成果顯示,UCF 在低溫時跟溫度有關,並且其振幅會隨著溫度降低而越來越大。 1896

所以我們也對兩個樣品做隨時變普適電導漲落(Time Dependence UCF)的量 測如圖 4-28、4-29。

圖 4-28 為樣品 ITO_r(ρ_{300K} =74($\mu\Omega$ -cm)),在這個較有序的樣品中,我們 明顯看到 UCF 對溫度的變化,從高溫到低溫時,電導漲落會開始變大。而圖 4-29 為樣品 ITO_f(ρ_{300K} =997($\mu\Omega$ -cm))的 UCF。但跟上一個不同的是,從這個樣品 中我們比較看不出 TDUCF 有對溫度的變化,所以接下來我們會對 ITO_r 進行進一 步的分析。

76



圖 4-29 樣品 ITO_f 各個溫度的 TDUCF。

S. Feng(1991)指出,在 $L_{\varphi} >> L_{T}$ (thermal length)的情況下,考慮熱平均 效應後對一維飽和 UCF 的修正為[33]:

$$\frac{\delta G_p^2}{G^2} = 177.7 \frac{1}{k_f^4 l^2 L_{\varphi}^2} \frac{L_{\varphi}^4}{L_x^2 L_y^2} \frac{L_{\varphi}}{L_z} \times \left(\frac{L_T}{L_{\varphi}}\right)$$
(4-9)

其中我們知道 $L_{\varphi} = \sqrt{D\tau_{\varphi}}$,並且藉由前面的結果將 τ_{φ} 令為:

$$\tau_{\varphi} = A_0 + A_{ee}T^{2/3} + A_{ep}T^2 \tag{4-10}$$

然後接著對圖 4-28 分析出來的電導做擬合如圖 4-30,由於這個樣品的 UCF 的變化在低溫時比較明顯,所以我們利用 0.3K、0.5K、1K、1.5K、2K、3K、6K、 10K 這此低溫的溫度。



圖 4-30 樣品 ITO_r 的 ♂ 對溫度的變化

我們將電導的標準差定義為電導漲落的大小:

$$\partial G^{2} = \left\langle \left(G - \left\langle G \right\rangle \right)^{2} \right\rangle \tag{4-10}$$

我們用了不同的時間尺寸(Time scale)去分析各個溫度[34],不同的時間尺 寸對得到的 &G 會有些微的影響,所以圖 4-30 每個溫度都有幾個不同的值。

至於圖 4-30 用式 4-9 和式 4-10 擬合的結果列於下表:

	$A_0(s^{-1})$	$A_{ee}(K^{-\frac{2}{3}}s^{-1})$	$A_{ep}(K^{-2}s^{-1})$
ITO_r	6. 46×10^{11}	5. 49×10^{11}	6. 95×10^{10}

表 4-9 樣品 ITO_r 由電導擬合得到的各種參數



圖 4-31 比較樣品 ITO_r 由 UCF 和弱局域效應理論分析出來的 L_o

圖 4-31 我們可以比較兩種分析結果得到的相位破壞長度,雖然他們有類似的行為,但是其值卻相差了約一個數量級。我們仍然在尋找這個問題的來源,或者是有其他的測量或分析的方法。



五、結論

我們測量了幾组無序程度不同的 ITO 奈米線,在室溫電阻率約 200 (μΩ-cm) 的樣品 ITO_r 中,我們經由弱局域效應對磁電阻的擬合發現了很長的相位破壞長 度 L_φ,從 0.25K 到 40K 其值約為 520nm 到 180nm,由於它在各個溫區其值都大於 奈米線的直徑,所以我們得到很嚴謹的一維弱局域效應的結果。我們對得到的 L_φ 擬合後找出電子-電子散射時間和電子-聲子散射時間與溫度的關係,並且比較理 論計算的結果發現電子-電子散射強度接近一維金屬中的電子-電子散射理論。

而我們在另外較無序而其室溫電阻率比較大的樣品中(約1000($\mu\Omega - cm$)), 得到較短的相位破壞長度,在 0.25K 的值約為200nm,隨著溫度增高 L_{φ} 縮短後, 在較高溫的地方會出現一維弱局域效應過渡到三維的行為,比較我們一維弱局域 效應擬合出來的結果,得到較矛盾的結論,並且用三維弱局域效應擬合的結果不 太好。而我們去擬合樣品 ITO_f 12K 以下的 L_{φ} ,這部分仍在一維的範圍,而我 們也比較了電子-電子散射時間其實驗值得到的結果也接近一維金屬中的電子-電子散射。

然而在我們的奈米線也測量另一種量子干涉現象:普適電導漲落,發現在較 有序的樣品 ITO_r 中,其隨時變的普適電導漲落對溫度有很明顯的關係,我們進 而從這個結果分析出 L_o 與溫度的關係,不過跟弱局域效應得到的結果差了約一 個數量級,這個問題可能需要更多的討論和研究。

錄 附

由於 ITO 奈米線在分析實驗結果時,很多參數必須要用到一個很重要的物理 量:費米能量(Fermi Energy),所以我們利用實驗室中量測 15nm 的 ITO 薄膜, 因為:

$$S = -\frac{\pi^2 k_B^2 T}{3|e|E_f} \tag{1}$$

所以藉由熱電勢(thermo power)的研究我們可以得到費米能量,以下實驗結 果為 Vu Thanh Tra 學長量測。



圖 A-1 ITO 薄膜的熱電勢與溫度的關係圖

	$\rho_{300K}(\mu\Omega-cm)$	$E_f(eV)$	$n\left(\frac{1}{m^3}\right)$	$\frac{S}{T}\left(\frac{\mu V}{K^2}\right)$
ITO#0	150	0.72	7.08×10 ²⁶	-3.4×10^{-8}

表 A-1 由熱電勢研究找出各種物理參數結果

因為這個樣品的室溫電阻率為 $149(\mu\Omega - cm)$, 很接近我們的樣品 ITO_r, 所以我們樣品 ITO_r 的費米能量即參考這邊的結果。同樣的我們也參考之前實驗 室學長的論文[35][38], 找出接近我們樣品 ITO_f 的費米能量約為 0.4eV。然後 我們的 Fermi velocity、diffusion constant …等常數皆可得到。



参考文獻

- [1] Giordano, N. W. Gilson, and D. E. Prober, Phys. Rev. Lett. 43,725 (1979)
- [2] G.Bergmann, Phys. Rev. B 28, 2914 (1983)
- [3] P. A. Lee and T.V. Ramakrishnan, Rev. Mod. Phys. 57, 287 (1985).
- [4] Eric Akkermans and Gilles Montambaux, <u>Mesoscopic Physics of Electrons</u> and Photons. (2007)
- [5] Bergmaim, G., Phys. Rev. Lett. 48, 1046(1982)
- [6] B.L.Altshuler, A.G.Aronov, B.Z.Zpivak, JETP Lett. 33, 94(1981)
- [7] D.Y.Sharvin, Y.V.Sharvin, JETP Lett. 34, 272(1981)
- [8] Bergmann, G. ., Phys. Rev. B 3. 3797 (1971).
- [9] H.Takayama, Z.Phys. 263, 329(1973)
- [10] J.Rammer, Aschmid, Phys. Rev. B 34, 1352(1986)
- [11]M.Yu.Reizer,A.V.Sergeyev,Zh.Eksp.Teor.Fiz.,Sov.Phys.JETP,63,616 (1986)
- [12] A.G.Aronov, M.E. Gershenson and Zuravlev Sov.Phys.JETP 60,554 (1984)
- [13] Al'tshuler, B L. A.G Aronov, M.E. Gershenson.and Y.u. V. Sharvin, Sov. Sci. Rev. A 9, 223 (1987)
- [14] Ashcroft and Mermin, solid state physics, (1976)
- [15] Schmid, A., Z. Phys. 271,251(1974)
- [16] B.L.Altshuler, A.G.Aronov, Sov. phys. JETP, 50, 968 (1979)
- [17] B.L.Altshuler, A.G.Aronov, Solid State Commun. 36, 115(1979)
- [18] Abrikosov and L. P. Gorkov, Sov. Phys. JEPT 15., 1088 (1962)
- [19] H.Fukuyama, In Electron-Electron Interaction in disordered

Systems, edited by A.L.Efros and M.Pollak, Elsevier, Amsterdam (1985)

- [20] Fukuyama H and Hoshino K 1981 J. Phys. Soc. Japan 50 2131
- [21] A. Trionfi, et al. Phys. Rev. B 72, 035407 (2005)
- [22] F. Pierre, et al, Rev. B 68, 085413 (2003)
- [23] Dugdale, J. S., :The electrical properties of disordered metals."(1995)

- [24] Mori N 1993 J. Appl. Phys. 73 1327
- [25] Ohyama T, Okamoto M and Otsuka E 1985 J. Phys. Soc. Japan 54 1041
- [26] P. Lindqvist, Ö. RappA, Sahnoune and J. O. Ström-Olsen. Phys. Rev. B 41, 3841–3843 (1990)
- [27] A. Kawabata, Solid State Commun. 34, 431 (1980)
- [28] D.V. Baxter, R. Richter, M.L. Trudeau, R.W. Cochrane and J.O. Strom Olsen, J. Phys. France 50, 1673 (1989)
- [29] J J Lin and J P Bird 2002 J. Phys.: Condens. Matter 14 R501(2002).
- [30] Zhong, Y. L.; Sergeev, A.; Chen, C. D.; Lin, J. J. Phys. Rev. Lett. 2010, 104, 206803.
- [31] P.M. Echternach, M.E. Gershenson, H.M. Bozler, A.L. Bogdanov, and B. Nilsson, Phys. Rev. B 48, 11 516 (1993)
- [32] L. Meisenheimer and N. Giordano, Phys. Rev. B 39, 9929. (1989).
- [33] S. Feng. Mesoscopic Phenomena in Solids, edited by B. L. Al'tshuler, P. A. Lee, and R. A. Webb North-Holland, New York, 1991.
- [34] 連安紹,「單晶氧化釘奈米線的普適電導漲落」,國立交通大學,碩士論文, 民國九十八年。
- [35] 陳奕甫,「透明 ITO 導體與 ZnO 半導體薄膜之熱電勢研究」,國立交通大學, 碩士論文,民國九十八年。
- [36] 邱紹斌,「金銘合金之電子-聲子散射時間之研究」,國立交通大學,碩士論 文,民國九十八年。
- [37] Aliev F G, Moshchalkov V V and Bruynseraede Y 1998 *Phys.Rev.* B 58 3625
- [38] B.-T. Lin, et al., Thin Solid Films (2010),
- [39] Chiu, S. P.; Lin, Y. H.; Lin, J. J. Nanotechnology 2009, 20, 015203.