

國立交通大學

物理研究所

碩士論文

微米穿隧接點之微分電導與溫度關係之研究

Temperature dependent differential conductance of
micron planar tunnel junctions



研究生：游凱復

指導教授：林志忠 教授

中華民國一百年七月

微米穿隧接點之微分電導與溫度關係之研究

Temperature dependent differential conductance of
micron planar tunnel junctions

研究生：游凱復

Student：Kai-Fu Yu

指導教授：林志忠

Advisor：Juhn-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 2011

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百年七月

微米穿隧接點之微分電導與溫度關係之研究

學生：游凱復

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

電子通過奈米尺度的接點之穿隧機制是一項不可或缺的研究課題。在本篇論文中，我們製作了一系列 Al/AlO_x/Y (鋁/氧化鋁/鈮)與 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au (鉻/金/氧化鋁/鉻/金)的穿隧接點(接點面積為微米尺寸)，藉由量測室溫到液氦溫度範圍的電阻隨溫度變化的關係，以及外加大偏壓下電流與電壓的關係，來探討穿隧接點(接點面積為微米尺寸)的穿隧機制。我們發現接點電阻率(specific contact resistivity)較小的樣品與較大的樣品，其兩者電阻隨溫度變化的趨勢不同且微分電導對電壓的關係也不同。接點電阻率較小的樣品，其電阻隨溫度變化的關係和大偏壓下的電流和電壓關係可以成功用 Fluctuation-induced tunneling conduction (FIT)分析；接點電阻率較大的樣品，其電阻隨溫度變化的關係可以成功用 Simmons model 分析。其導致差別的原因我們猜測是氧化層的厚度所影響，氧化層若太薄(接點電阻率較小)，電子會在電極間最靠近的區域穿隧，則兩電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積)，因為穿隧面積很小，導致為 FIT Model 的穿隧機制；氧化層若夠厚(接點電阻率較大)，則有層薄絕緣層隔絕著兩電極(意即穿隧面積約等於接點面積)，導致為一般的穿隧效應。

Temperature dependent differential conductance of micron planar tunnel junctions

Student : Kai-Fu Yu

Advisor : Prof. Juhn-Jong Lin

Institute of Physics
National Chiao Tung University

ABSTRACT

The electric conduction mechanism through the nano-contacts is an important study. Motivated by our previous work on metal nanowire contact, in this thesis, we fabricated a series of Al/AlO_x/Y and Cr/Au/AlO_x/Cr/Au micron planar tunnel junctions to address this issue. The temperature behavior of resistance and the current-voltage (*I-V*) characteristics in the high-bias non-ohmic regime have been measured from room temperature down to liquid-helium temperatures. We found that the tunneling behaviors in these junctions can be described in terms of two mechanisms. For samples of smaller specific contact resistivity, the temperature dependent zero-bias resistance and the high-bias non-linear *I-V* curves follow the fluctuation-induced tunneling (FIT) mechanism proposed by Sheng. For samples of larger specific contact resistivity, the corresponding behaviors follow the conventional elastic tunneling model proposed by Simmons. The thickness of the oxide layer is suggested to account for this difference. For the junction having a thinner oxide layer, the effective tunneling area leads to the FIT mechanism. On the other hand, for the junction having a thicker oxide layer, the effective tunneling area is close to the designed area and thus the conventional elastic tunneling results.

誌 謝

首先誠摯的感謝林志忠老師讓我進入資源如此充沛的實驗環境，在這兩年中我學習到研究所必須重視的嚴謹態度。在老師細心的指導下，這份論文才得以完成，謝謝林志忠老師。

感謝林永翰學長對於實驗技術的分享和理論分析的教導，有了你的寶貴經驗，使我可以有效率的完成工作，也使這份論文更加的完整。感謝賴祐仁學長對於課業和實驗上的教導，謝謝你總是很有耐心的帶我做實驗，不論遇到甚麼難題，你總是可以幫我迎刃而解，你真是我們實驗室的小叮噹阿！感謝邱劭斌學長對於實驗上的幫助，你寫程式(Labview)的功力真得是沒話講，若有需要你也會二話不說得幫我改程式，你謙遜的態度也是我學習的好榜樣。

感謝李瑞康、蔡林宗、許耀文、連健期學長對於實驗上的教學及修課經驗的分享，尤其是蔡林宗和許耀文學長待人處事的態度真是值得我學習，祝你們將來工作順利，也祝李瑞康學長研究順利。

謝謝楊秉諭、陳朝俊、林佩蓉同學的陪伴，不論是修課或熬夜做實驗，有你們的陪伴和幫忙，讓我在研究路上不孤單，因為你們，實驗室總是充滿著歡樂，我想我這一輩子也不會忘記這段日子。

謝謝黃宗熙、徐唯哲、喻祖祥、汪瑞泰學弟，有你們幫忙管理實驗室，使我能更專心的在實驗上，本人能如期畢業你們是一大功臣，也祝福你們能早日畢業。

謝謝大學同學，邱先生夫婦、維莘、正淇、聖仁、聖文、小不點、小花…等，有你們在使煩躁的研究生活變得多采多姿。

最後感謝我的家人和宣，謝謝我的家人提供我衣食無缺的環境，讓我能專心的在研究上。謝謝弟弟，只要看到你煩惱都不見了。謝謝宣，有妳在使我能很安心。最後再謝謝所有幫助過我的人。

目 錄

中文摘要	i
英文摘要	ii
誌謝	iii
目錄	iv
表目錄	vi
圖目錄	vii
一、	緒論.....	1
1-1	穿隧效應的簡介.....	1
1-2	研究動機與方向.....	2
二、	基本理論.....	5
2-1	穿隧電流.....	5
2-2	穿隧電流和偏壓的關係.....	7
2-3	穿隧電流與溫度的關係.....	10
2-4	BDR (Brinkman, Dynes, Rowell)模型.....	11
2-5	熱擾動致發之穿隧效應 (Fluctuation-Induced Tunneling Conduction).....	12
2-5-1	熱擾動所導致之接面壓差(thermal voltage fluctuations).....	13
2-5-2	FIT Model 中，電阻隨溫度變化的行為.....	14
2-5-3	FIT Model 中，高偏壓下 $I-V$ 之關係.....	15
三、	樣品製作流程與量測方法.....	16
3-1	樣品的製作.....	16
3-1-1	光微影技術.....	16
3-1-2	電子束微影(e-beam lithography technique).....	18
3-1-3	熱蒸鍍.....	19
3-1-4	氧化層的製作.....	20
3-2	穿隧接點(微米尺寸)的製作流程.....	21
3-3	量測方法.....	23
3-4	低溫致冷器(cryostat).....	25
3-4-1	降溫前的準備程序.....	26
3-4-2	降溫原理及流程.....	26
四、	實驗結果與分析.....	29
4-1	鋁/氧化鋁/鋁($Al/AIO_x/Al$)穿隧接點的特性.....	29
4-2	鋁/氧化鋁/鈮($Al/AIO_x/Y$)穿隧接點的特性.....	31
4-2-1	樣品資訊及實驗數據.....	32
4-2-2	實驗數據分析及討論.....	38

4-3	鉻/金/氧化鋁/鉻/金(Cr/Au/AlO _x /Cr/Au)穿隧接點特性.....	44
4-3-1	樣品資訊及實驗數據.....	45
4-3-2	實驗數據分析及討論.....	47
五、	結論.....	55
參考文獻	56



表 目 錄

表 4-1-1	Al/AlOx/Al 樣品資訊	29
表 4-2-1	Al/AlOx/Y 樣品資訊	32
表 4-2-2	樣品 Y_I, Y_J 以 FIT Model 分析得到的參數	40
表 4-2-3	將代入分析的穿隧面積值減少所得到的位壘寬度和高度	40
表 4-3-1	Cr/Au/AlOx/Cr/Au 樣品資訊	45
表 4-3-2	Cr/Au/AlOx/Cr/Au 樣品以 FIT Model 分析得到的參數	48
表 4-3-3	將代入分析的穿隧面積值減少所得到的位壘寬度和高度	49
表 4-3-4	利用 FIT Model 分析不同溫度下 I - V curves 線性區域和非線性區域 結的果比較	52



圖 目 錄

圖 1-1	氧化鋁(AlO_x)位能壘高度對寬度的關係.....	2
圖 1-2	RuO_2 奈米線電阻隨溫度的關係圖.....	3
圖 1-3	兩點量測 RuO_2 奈米線的數據 ($R \approx 2R_C$).....	3
圖 2-1	穿隧接點的示意圖.....	6
圖 2-2	位能壘在不同外加偏壓下的示意圖	9
圖 2-5-1	(a) 兩大導電導體與其最易發生穿隧效應區域 (紅線處) 示意圖 (b) 穿隧接面電路近似示意圖.....	12
圖 2-5-2	穿隧接面的等效電路示意圖.....	13
圖 3-1-1	光微影流程圖.....	17
圖 3-1-2	Si/SiO_2 基板上 Ti/Au 電極示意圖.....	17
圖 3-1-3	電子束微影流程圖.....	18
圖 3-1-4	左圖是 AutoCAD 設計的電極;右圖是兩次電子束微影製程完成的 樣品.....	19
圖 3-1-5	蒸鍍機示意圖.....	20
圖 3-1-6	輝光放電示意圖.....	21
圖 3-2-1	$\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點 SEM 圖.....	21
圖 3-2-2	$\text{Cr}/\text{Au}/\text{AlO}_x/\text{Cr}/\text{Au}$ 穿隧接點的 SEM 圖.....	22
圖 3-2-3	$\text{Cr}/\text{Au}/\text{AlO}_x/\text{Cr}/\text{Au}$ 穿隧接點的 SEM 圖.....	22
圖 3-3-1	兩點量測示意圖.....	23
圖 3-3-2	四點量測示意圖.....	23
圖 3-3-3	圖 3-3-2 的簡化圖.....	24
圖 3-3-4	左圖為以四點量測量測穿隧接點;右圖為以兩點量測量測穿隧接 點示意圖.....	24
圖 3-4-1	^4He cryostat 示意圖.....	25
圖 3-4-2	^4He 低溫系統的抽氣降溫示意圖.....	27
圖 4-1-1	$\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Al}$ 穿隧接點示意圖.....	29
圖 4-1-2	樣品 Al_C 在室溫的 $dI/dV - V$ 圖.....	30
圖 4-1-3	樣品 Al_D 在室溫的 $dI/dV - V$ 圖.....	30
圖 4-2-1	$\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點示意圖.....	31
圖 4-2-2	$\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Al}$ 的 $R - T$ 圖.....	33
圖 4-2-3	樣品 Y_D 的 $R - T$ 圖,插圖為 $\log R - T^{-1}$ 圖.....	33
圖 4-2-4	樣品 Y_F 的 $R - T$ 圖,插圖為 $\log R - T^{-1}$ 圖.....	34
圖 4-2-5	樣品 Y_H 的 $R - T$ 圖,插圖為 $\log R - T^{-1}$ 圖.....	34
圖 4-2-6	樣品 Y_I 的 $R - T$ 圖,小圖為 $\log R - T^{-1}$ 圖和 $\log R - \log T$ 圖.....	35
圖 4-2-7	樣品 Y_J 的 $R - T$ 圖,小圖為 $\log R - T^{-1}$ 圖和 $\log R - \log T$ 圖.....	35
圖 4-2-8	$\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點的示意圖.....	36

圖 4-2-9	Al/AlO _x /Y 穿隧接點 $\log \rho_c - T$ 圖	37
圖 4-2-10	Al/AlO _x /Y 穿隧接點歸一化的接點電阻率對溫度的關係圖	37
圖 4-2-11	FIT model 穿隧機制的示意圖	38
圖 4-2-12	樣品 Y_I, Y_J 電阻對溫度的關係圖，實線為 FIT model 擬合的結果	39
圖 4-2-13	樣品 Y_I, Y_J 的 $R - \log T$ 圖，實線為 FIT model 擬合的結果	39
圖 4-2-14	位能壘寬度為 17 Å，高度為 0.8 eV 的電導與溫度的關係圖	41
圖 4-2-15	Al/AlO _x /Al 的電阻與溫度的關係圖，實線為 Simmons model 擬合的結果	41
圖 4-2-16	樣品 Y_D 電阻與溫度的關係圖，實線為 Simmons model 擬合的結果	42
圖 4-2-17	樣品 Y_F 電阻與溫度的關係圖，實線為 Simmons model 擬合的結果	42
圖 4-2-18	樣品 Y_H 電阻與溫度的關係圖，實線為 Simmons model 擬合的結果	42
圖 4-3-1	Cr/Au/AlO _x /Cr/Au 穿隧接點的側視圖	44
圖 4-3-2	Cr/Au/AlO _x /Cr/Au 穿隧接點 $\log \rho_c - T$ 圖	46
圖 4-3-3	Cr/Au/AlO _x /Cr/Au 穿隧接點歸一化的接點電阻率對溫度的關係圖	46
圖 4-3-4	樣品 2c, 11a, 15b, 22d 歸一化的電阻與溫度的關係圖，實線為 FIT model 擬合的結果。小圖為 $R - \log T$ 圖	47
圖 4-3-5	樣品 31g_1, 31g_3 歸一化的電阻與溫度的關係圖，實線為 FIT model 擬合的結果。小圖為 $R - \log T$ 圖	48
圖 4-3-6	左圖是樣品 31g_1 在不同溫度下的 $I-V$ curves，右圖是利用 2.56 式擬合不同溫度下的 $I-V$ curves 非線性區域的結果	50
圖 4-3-7	左圖是樣品 31g_3 在不同溫度下的 $I-V$ curves，右圖是利用 2.56 式擬合不同溫度下的 $I-V$ curves 非線性區域的結果	50
圖 4-3-8	樣品 31g_1, 31g_3 參數 a 隨溫度變化的關係圖。實線為利用 2.57 式擬合參數 a 隨溫度變化的結果；虛線為利用 2.53 式擬合 $R(T)$ 得到的參數 T_1 和 T_0 所畫出的 $a(T)$	51
圖 4-3-9	樣品 31g_1, 31g_3 電阻隨溫度變化的關係圖。紅線為利用 2.53 式擬合的結果；藍線為 2.57 式得到的 T_1 和 T_0 值帶入 2.53 式擬合的結果	51
圖 4-3-10	樣品 32g_2 電阻隨溫度變化的關係圖。小圖為 $\log R$ 與 $\log T$ 的關係圖，實線為 Simmons model 擬合的結果	53
圖 4-3-11	樣品 32g_2 在 $T = 2.65$ K 的 $dI/dV - V$ 圖。實線則是用二次多項式所擬合的曲線	53
圖 4-3-12	樣品 15b 不同溫度的 $dI/dV - V$ 圖	54
圖 4-3-13	樣品 Y_J 在 $T = 1.8$ K 的 $dI/dV - V$ 圖	54

一、緒論

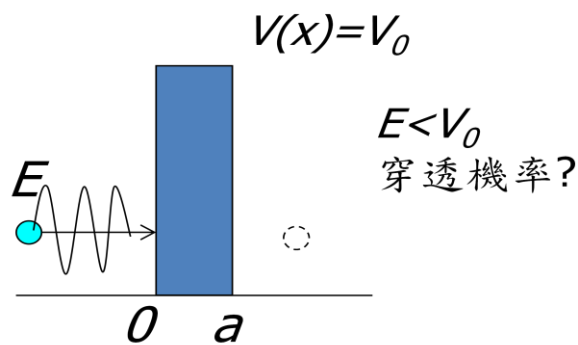
1-1 穿隧效應的簡介

根據量子力學，電子除了具有粒子的性質，也具有波(wave)的性質。雖然電子在微米世界中仍具有波性質，但因電子太小而無法顯現其波特徵，到了奈米尺度，電子的波(wave)性質就不能被忽略。

在量子力學裡，穿隧效應為一種量子特性，是如電子等微觀粒子能夠穿越一位能比粒子能量還高的位能障壁的現象。這是根據量子力學，微觀粒子具有波的性質，有機率穿越位能障壁。

穿隧效應的例子：原子核的 α 衰變就是因為 α 粒子穿透了強力的束縛而逃出原子核。在古典力學裡，粒子會被牢牢的束縛在原子核內，主要是因為粒子需要超大的能量，才能穿透出原子核的位能障壁。因此，古典力學無法解釋 α 衰變。在量子力學裡，粒子不需要擁有比位能障壁還高的能量，就能逃出原子核；粒子可以機率性的穿透過位能障壁，逃出原子核位能障壁的束縛。[1]

粒子穿透過位能障壁的機率為：[1]



$$T \approx \exp(-2\kappa a)$$

$$\kappa a = \frac{a\sqrt{2m(V_0 - E)}}{\hbar}$$

(V_0 :位壘高度， a :位壘寬度， E :粒子的能量)

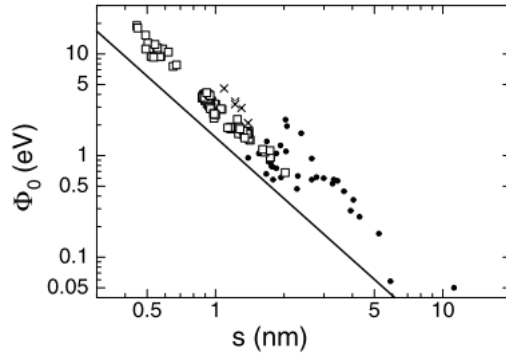


圖 1-1 氧化鋁(AlO_x)位能壘高度對寬度的關係。[21]

在製作穿隧接點中，氧化鋁為一種很好的絕緣層材料，因為它很容易形成。

圖 1-3 為 99 個穿隧接點利用 BDR Model [10] 分析得到的位能壘高度對寬度的關係 ($\phi_0 \approx 2.5 \text{ eV s}^{-2} (\text{nm})$)，這些樣品是利用 two-angle evaporation technique 來製作，其接點面積為 $4 \mu\text{m}^2$ ，其第一層電極為鋁或鋁的合金，在超高真空環境中通入純氧 30 分鐘來成長氧化層，第二層電極為鋁或銅或鈮或金或鋁的合金，由圖 1-3 我們可了解氧化鋁的位能壘高度和寬度的資訊。

1-2 研究動機與方向

奈米尺度的傳輸行為是凝態物理中一項很重要的研究課題，且奈米尺度的結構和技術也應用在許多工業上，而本實驗室有研究金屬性質的奈米線傳輸行為和半導體性質的奈米線傳輸行為，我們是利用電子束微影術或聚焦離子束來沉積電極跨上我們要量測的奈米線，在製程中電極和奈米線的接點是關鍵，為了避免量到接點電阻，我們使用四點量測來量測待測物，但若接點電阻過大 ($>100 \text{ K}\Omega$)，到了液氦溫度時接點電阻會更大 ($R_c(T) \sim \exp\left(\frac{T_1}{T+T_0}\right)$) [11, 12]，當電極和奈米線間的接點電阻太大，介面會有電容效應，進而影響四點量測到的電壓值。

所以，接點電阻的研究也是一項不可或缺的課題，本實驗室林永翰學長量測了一系列金屬性奈米線和電極間的接點電阻(圖 1-1)，也成功用 thermal fluctuation-induced tunneling (FIT) conduction model 解釋所有的數據(圖 1-2)。[11, 12]

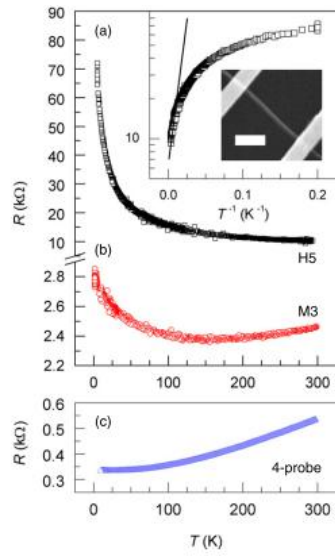


圖 1-2 RuO₂ 奈米線電阻隨溫度的關係圖

(a) 當接點電阻遠大於奈米線電阻時，兩點量測的結果 ($R \approx 2R_C$)

(b) 當接點電阻稍微大於奈米線電阻時，兩點量測的結果 ($R \approx 2R_C + R_S$)

(c) 四點量測 RuO₂ 奈米線的結果 ($R \approx R_S$) [2]

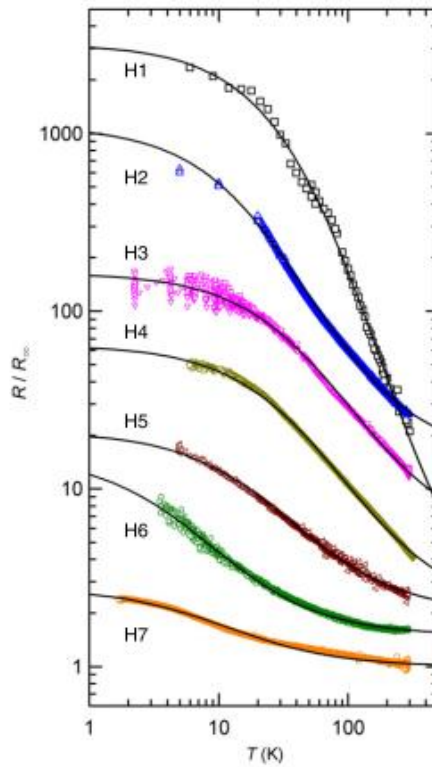


圖 1-3 兩點量測 RuO₂ 奈米線的數據 ($R \approx 2R_C$) [2]

這裡我們使用金屬性的奈米線原因是:金屬性奈米線的電阻隨溫度降低而減少如圖 1-1 (c)，兩點量測時隨溫度降低金屬性奈米線的電阻減少，而接點電阻便會主導我們測量到的電阻如圖 1-1(a)。

因此，我們想更進一步了解接點電阻，所以本人的研究方向是設計一系列金屬/氧化層/金屬的穿隧接點(微米尺寸)，以輝光放電技術控制氧化層氧化的程度，量測接點電阻隨溫度變化的關係，分析其位壘厚度和高度;量測樣品在液氮溫度外加大偏壓下的電流和電壓關係($I-V$ curves)，我們預期有階梯的行為出現[5]。

一開始製作的樣品是 Al/AlO_x/Al 穿隧接點(利用兩次電子束微影技術製作)，接點面積大約是一微米乘以一微米，試了許多成長氧化層的條件後(甚至沒有成長氧化層)，製程出來的穿隧接點電阻都是 GΩ 等級，室溫量測穿隧接點的電流和電壓關係($I-V$ curves)，外加一小電流(~1 nA)時， $I-V$ curves 已是非線性的曲線，如果要量測電阻必須要有電流檔位非常小的電表，且電阻太大(~GΩ)容易受外界干擾所以我們沒有下低溫量測。恰好本實驗室有在研究 Al/AlO_x/Y 的近藤效應(kondo effect)，接點面積大約是 5 微米乘以 5 微米，且製程出來的穿隧接點的接點電阻率(specific contact resistivity)比較小，所以我們就開始製作 Al/AlO_x/Y 的穿隧接點來研究接點電阻，使用鋁或鈮都不影響我的研究，因為鋁或鈮都是當做電極用而已。而為什麼 Al/AlO_x/Y 穿隧接點的接點電阻率(specific contact resistivity)比較小，我們給的解釋是因為在蒸鍍鈮的過程中，可能使少量的鈮原子輕微擴散入氧化層中，導致此種穿隧接點的接點電阻率(specific contact resistivity)較小。

接著，我們想模仿鉻金電極跨越上奈米線的系統，希望能用 FIT model 分析出位壘的高度和寬度，所以製作了 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 穿隧接點(接點面積為微米尺寸)，也是利用兩次電子束微影技術(e-beam lithography technique)製作，其中氧化鋁為一層薄薄的鋁使它在大气中自然氧化，先鍍鉻的原因是因為金和 SiO₂ 基板的附著力不好，所以鍍一層薄薄的鉻當作金與 SiO₂ 基板的黏著層，鉻金為一層電極。最後，不論是製作 Al/AlO_x/Y 或者是 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 穿隧接點(接點面積為微米尺寸)，得到的結論是相同的，由此可見更加強了我的結論的可信度。

二、理論

2-1 穿隧電流

我們將穿隧接點視為一個不規則形狀，如圖 2-1，電子在 x 方向移動，根據 WKB 近似，位壘高度為 $V(x)$ ，其穿隧機率為 $D(E_x)$

$$D(E_x) = \exp \left\{ \frac{-2}{\hbar} \int_{s_1}^{s_2} [2m(V(x) - E_x)]^{\frac{1}{2}} dx \right\} \quad (2.11)$$

$$E_x = mv_x^2 / 2$$

電子從電極 1 穿隧到電極 2 單位面積單位時間的個數為 N_1

$$N_1 = \int_0^{v_m} v_x n(v_x) D(E_x) dv_x = \frac{1}{m} \int_0^{E_m} n(v_x) D(E_x) dE_x \quad (2.12)$$

E_m 是電子在電極中最大動能， $n(v_x)dv_x$ 是單位速度單位體積的電子個數

電子在三維空間中得分佈是

$$n(v)dv_x dv_y dv_z = \left(2m^3 / h^3 \right) f(E) dv_x dv_y dv_z \quad (2.13)$$

$f(E)$ 是 Fermi-Dirac distribution。

$$n(v_x) = \frac{2m^3}{h^3} \iint f(E) dv_y dv_z = \frac{4\pi m^2}{h^3} \int_0^\infty f(E) dE_r \quad (2.14)$$

由於 v_y 及 v_z 是對稱的，所以令 $v_r^2 = v_y^2 + v_z^2$ ， $E_r = mv_r^2 / 2$ ，將 2.14 式代入

2.12 式中可得到

$$N_1 = \frac{4\pi m}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \int_0^\infty f(E) dE_r \quad (2.15)$$

同理，電子從電極 2 穿隧到電極 1 的個數為 N_2 ，若沒有外加偏壓，則 $N_1 = N_2$ ，

穿隧電流為零。因此我們在電極 2 加上一個正偏壓 V ，使電極 2 的費米能階下降 eV ，其 Fermi-Dirac distribution 為 $f(E+eV)$ 。

$$N_2 = \frac{4\pi m}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \int_0^\infty f(E+eV) dE_r \quad (2.16)$$

從 2.15 式和 2.16 式可以知道單位時間單位面積通過穿隧接點的電子個數為

$$N = N_1 - N_2$$

$$N = \frac{4\pi m}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \int_0^\infty [f(E) - f(E+eV)] dE_r \quad (2.17)$$

並且假設 $\zeta_1 = \frac{4\pi m e}{h^3} \int_0^\infty f(E) dE_r$ ， $\zeta_2 = \frac{4\pi m e}{h^3} \int_0^\infty f(E+eV) dE_r$ ， $\zeta = \zeta_1 - \zeta_2$ ，我們可以將

2.17 式寫成

$$J = \int_0^{E_m} D(E_x) \zeta dE_x \quad (2.18)$$

J 為電子流密度

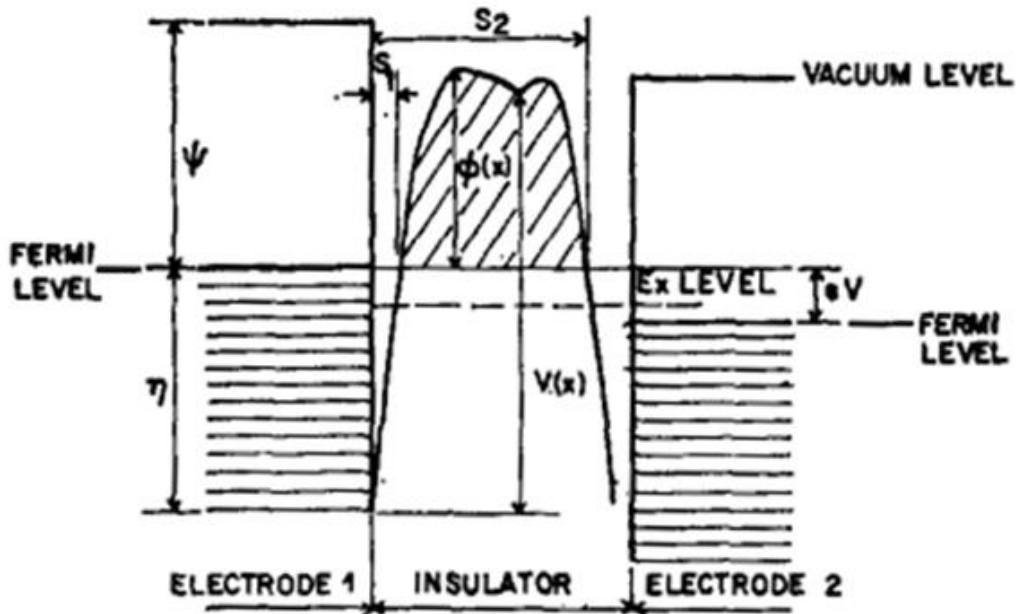


圖 2-1 穿隧接點的示意圖 [9]

2-2 穿隧電流和偏壓的關係

從圖 2-1，可知 $V(x) = \eta + \phi(x)$ ，我們可將 2.11 式改寫為

$$D(E_x) = \exp \left[\frac{-4\pi}{h} (2m)^{\frac{1}{2}} \int_{S_1}^{S_2} (\eta + \phi(x) - E_x)^{\frac{1}{2}} dx \right] \quad (2.21)$$

我們需要一些近似法，才可把 2.21 式的積分算出，首先定義 $f(x)$ 的平均值為 \bar{f} ，

$$\Delta S = S_2 - S_1。$$

$$\bar{f} = \frac{1}{\Delta S} \int f(x) dx \quad (2.22)$$

$$\int_{S_1}^{S_2} f^{\frac{1}{2}}(x) dx = \bar{f}^{\frac{1}{2}} \int_{S_1}^{S_2} \left\{ 1 + \frac{[f(x) - \bar{f}]}{\bar{f}} \right\}^{\frac{1}{2}} dx \quad (2.23)$$

接著把 2.23 式的積分式泰勒展開，並近似到二次項

$$\int_{S_1}^{S_2} f^{\frac{1}{2}}(x) dx \approx \bar{f}^{\frac{1}{2}} \int_{S_1}^{S_2} \left\{ 1 + \frac{[f(x) - \bar{f}]}{2\bar{f}} - \frac{[f(x) - \bar{f}]^2}{8\bar{f}^2} \right\} dx \quad (2.24)$$

將 2.24 式合併可得到

$$\int_{S_1}^{S_2} f^{\frac{1}{2}}(x) dx \approx \bar{f}^{\frac{1}{2}} \Delta S \left\{ 1 - \frac{1}{8\bar{f}^2 \Delta S} \int_{S_1}^{S_2} [f(x) - \bar{f}]^2 dx \right\} = \beta \bar{f}^{\frac{1}{2}} \Delta S \quad (2.25)$$

其中 $\beta = 1 - \frac{1}{8\bar{f}^2 \Delta S} \int_{S_1}^{S_2} [f(x) - \bar{f}]^2 dx$ 。利用 2.25 式的近似結果帶入 2.21 式可得

$$D(E_x) = \exp \left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}} \right] \quad (2.26)$$

其中 $A = (4\pi\beta\Delta S/h)(2m)^{\frac{1}{2}}$ 。在溫度為 0 K 時， $\zeta_1 = \frac{4\pi m e}{h^3}(\eta - E_x)$ ，

$\zeta_2 = \frac{4\pi m e}{h^3}(\eta - E_x - eV)$ ，($\eta = E_x + E_r$ ， η 為未加偏壓時的費米能階)

因此我們可得到

$$\zeta = \left\{ \begin{array}{ll} \frac{4\pi me}{h^3} (eV) & 0 < E_x < \eta - eV \\ \frac{4\pi me}{h^3} (\eta - E_x) & \eta - eV < E_x < \eta \\ 0 & E_x > \eta \end{array} \right\} \quad (2.27)$$

將 2.26 式和 2.27 式帶入 2.18 式，可得

$$J = \frac{4\pi me}{h^3} \left\{ eV \int_0^{\eta - eV} \exp\left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}}\right] dE_x + \int_{\eta - eV}^{\eta} (\eta - E_x) \exp\left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}}\right] dE_x \right\} \quad (2.28)$$

為了方便積分，可以將 2.28 式改寫為

$$J = \frac{4\pi me}{h^3} \left\{ \begin{array}{l} eV \int_0^{\eta - eV} \exp\left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}}\right] dE_x \\ - \int_{\eta - eV}^{\eta} \exp\left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}}\right] dE_x \\ + \int_{\eta - eV}^{\eta} (\eta - E_x) \exp\left[-A(\eta + \bar{\phi} - E_x)^{\frac{1}{2}}\right] dE_x \end{array} \right\} \quad (2.29)$$

經過繁瑣的積分運算可得

$$J = \frac{e}{2\pi h} (\beta\Delta S)^{-2} \left\{ \bar{\phi} \exp\left[-A\bar{\phi}^{\frac{1}{2}}\right] - (\bar{\phi} + eV) \exp\left[-A(\bar{\phi} + eV)^{\frac{1}{2}}\right] \right\} \quad (2.30)$$

我們可以把 2.30 式分成兩部份，其中 $J_0 \bar{\phi} \exp\left[-A\bar{\phi}^{\frac{1}{2}}\right]$ 可以視為電子從電極 1 穿隧到

電極 2 的電流密度。而 $J_0 (\bar{\phi} + eV) \exp\left[-A(\bar{\phi} + eV)^{\frac{1}{2}}\right]$ 可以視為電子從電極 2 穿隧到電

極 1 的電流密度， $J_0 = e/2\pi h(\beta\Delta S)^2$ ，當外加偏壓為零時，淨電流也正好為 0。

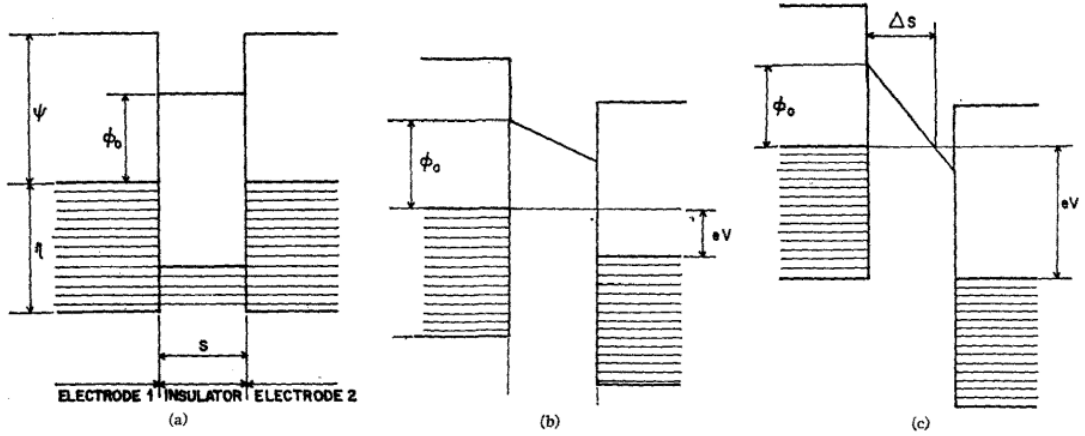


圖 2-2 (a) $V=0, \Delta S=S, \bar{\phi}=\phi_0$

(b) $V < \phi_0/e, \Delta S=S, \bar{\phi}=(\phi_0 - eV/2)$

(c) $V > \phi_0/e, \Delta S=S\phi_0/eV, \bar{\phi}=\phi_0/2 \cdot [9]$

如圖 2-2 所示，外加小偏壓時 ($V < \phi_0/e$)，我們可以得到 $\Delta S=S, \bar{\phi}=(\phi_0 - eV/2)$ ，

可以將 2.30 式改寫為

$$J = \frac{e}{2\pi h(\beta S)^2} \left\{ \left(\phi_0 - \frac{eV}{2} \right) \exp \left[-A \left(\phi_0 - \frac{eV}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \right] - \left(\phi_0 + \frac{eV}{2} \right) \exp \left[-A \left(\phi_0 + \frac{eV}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \right] \right\} \quad (2.31)$$

利用近似法，四次項以上忽略不計，最後可得到

$$J = J_L (V + \gamma V^3) \quad (2.32)$$

$$\gamma = \frac{(Ae)^2}{96\phi_0} - \frac{Ae^2}{32\phi_0^{\frac{3}{2}}}, \quad J_L = \left[(2m)^{\frac{1}{2}} / \Delta S \right] (e/h)^2, \quad \text{在這裡我們將 } \beta \text{ 視為 } 1。$$

從 2.32 式我們知道 J 是 V 的三次函數，如果把 J 對 V 微分，可得到

$$G(V) = G_0 (1 + 3\gamma V^2) \quad (2.33)$$

所以從 2.33 式我們可知道微分電導 G 是外加偏壓 V 的二次函數

2-3 穿隧電流與溫度的關係

由 2.18 式我們可知電流密度為

$$J = \frac{4\pi me}{h^3} \int_0^{E_m} D(E_x) dE_x \times \left\{ \int_0^\infty [f(E) - f(E + eV)] dE_r \right\} \quad (2.34)$$

$E_r = E_y + E_z$ ， E_m 是位壘的最高位能， $D(E_x)$ 是穿隧的機率

$$\begin{aligned} D(E_x) &= \exp \left[-A \left(\eta + \bar{\phi} - E_x \right)^2 \right] \\ &\approx \exp \left\{ -A \bar{\phi}^{-1} \left[1 + (\eta - E_x) / \bar{\phi} \right]^2 \right\} \\ &= \exp \left(-A \bar{\phi}^{-1} \right) \exp \left[-A (\eta - E_x) / 2 \bar{\phi}^{-1} \right] \end{aligned} \quad (2.35)$$

將 2.35 式代入 2.34 式，且 E_m 比費米能階高數個 kT 能量，可將 E_m 近似為 ∞ ，所以可得 [7]

$$J(V, T) = \left(4\pi me / h^3 B^2 \right) \left[\pi BkT / \sin(\pi BkT) \right] \times \exp \left(-A \bar{\phi}^{-1} \right) \left[1 - \exp(-BeV) \right] \quad (2.36)$$

其中 $B = A / 2 \bar{\phi}^{-1}$ ， $A = (4\pi\beta\Delta S / h) \left(2m^{\frac{1}{2}} \right)$ ， β 可視為 1，接著又可將 2.36 式寫成

$$J(V, T) / J(V, 0) = \pi BkT / \sin(\pi BkT) \quad (2.37)$$

$$J(V, T) = J(V, 0) \left\{ 1 + \frac{1}{6} (\pi BkT)^2 + \dots \right\} \quad (2.38)$$

若外加一小偏壓，如圖 2-2 中 (b) 的情形，則可把 2.38 式整理成

$$G(T, V = 0) = G_0 \left[1 + \left(\frac{T}{T_0} \right)^2 \right] \quad (2.39)$$

其中 $T_0^2 = (3\hbar^2 / \pi^2 k_B^2 m) \phi_0 / s^2$ ， ϕ_0 是位能壘的高度， s 是位能壘的寬度， G_0 是

溫度趨近於 0K 的電導。[8]

2-4 BDR(Brinkman, Dynes, Rowell)模型

前面的討論是對於矩形位能壘(2.32 式和 2.33 式)。但在一般的情況中， $J(V)$ 的值不應該等於 $J(-V)$ 的值 ($J(V) \neq -J(V)$)，且 $G(V)$ 不是對稱的，所以位能壘應該要是不對稱的。

BDR 模型[10]是使用不對稱的位壘高度做計算，並考慮在小偏壓下且不考慮 Image force 的影響，假設溫度 $T=0K$ ，經過近似可以得到

$$G(V) = G(0) \left[1 - \left(\frac{A_0 \Delta \phi}{16\phi^{-3/2}} \right) eV + \left(\frac{9A_0^2}{128\phi} \right) (eV)^2 \right] \quad (2.40)$$

其中 $\Delta \phi = \phi_2 - \phi_1$ ， $A_0 = 4(2m)^{1/2} d / 3\hbar$ ， $G(0) = \left(3.16 \times 10^{10} \phi^{1/2} / d \right) \exp \left(-1.025 d \phi^{1/2} \right)$ ， d 的單位是 \AA 。

考慮穿隧電流和溫度的關係，利用 Simmons model [7] 和 BDR model [10]

由 2.37 式，2.38 式可知

$$\begin{aligned} G(V, T) &= \frac{\partial J(V, T)}{\partial V} \\ &= \frac{\partial J(V, 0)}{\partial V} \frac{\pi BkT}{\sin(\pi BkT)} \\ &= G(V, 0) \frac{\pi BkT}{\sin(\pi BkT)} \end{aligned} \quad (2.41)$$

$$G(V, T) \approx G(V, 0) \left[1 + \frac{1}{6} (\pi BkT)^2 + \dots \right] \quad (2.42)$$

將 2.40 式代入 2.41 式可得

$$\begin{aligned} G(V, T) &= G(V, 0) \frac{\pi BkT}{\sin(\pi BkT)} \\ &= \left\{ G(0, 0) \left[1 - \left(\frac{A_0 \Delta \phi}{16\phi^{-3/2}} \right) eV + \left(\frac{9A_0^2}{128\phi} \right) (eV)^2 \right] \right\} \frac{\pi BkT}{\sin(\pi BkT)} \\ &= G(0, T) \left[1 - \left(\frac{A_0 \Delta \phi}{16\phi^{-3/2}} \right) eV + \left(\frac{9A_0^2}{128\phi} \right) (eV)^2 \right] \end{aligned} \quad (2.43)$$

$$\text{其中 } G(0, T) = G(0, 0) \frac{\pi BkT}{\sin(\pi BkT)} \quad (2.44)$$

熱擾動致發之穿隧效應 (Fluctuation-Induced Tunneling Conduction)

西元 1978 年 P. Sheng 團隊對碳與聚氯乙稀 (Carbon-Polyvinylchloride, Carbon-PVC) 複合物進行傳導機制研究，其團隊認為電子在這些材料中的運動行為，可視為在兩個彼此分離但靠得很近的導體區塊中進行傳輸；由於電子較易於在兩導體區塊最鄰近處進行穿隧，且此穿隧接面的面積很小，因此在此接面上的電子傳輸運動，易遭受熱擾動所導致的穿隧接面壓差 (thermal voltage fluctuations, $V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$) 所影響，而穿隧接面的面積很小使得此壓差變得不可忽略，此穿隧機制稱為熱擾動致發之穿隧效應 (Fluctuation-Induced Tunneling, FIT)，成功地以實驗結果驗證理論之應用性，並將此理論成功地推廣至無序的材料 (Disordered materials) 中 [12]。

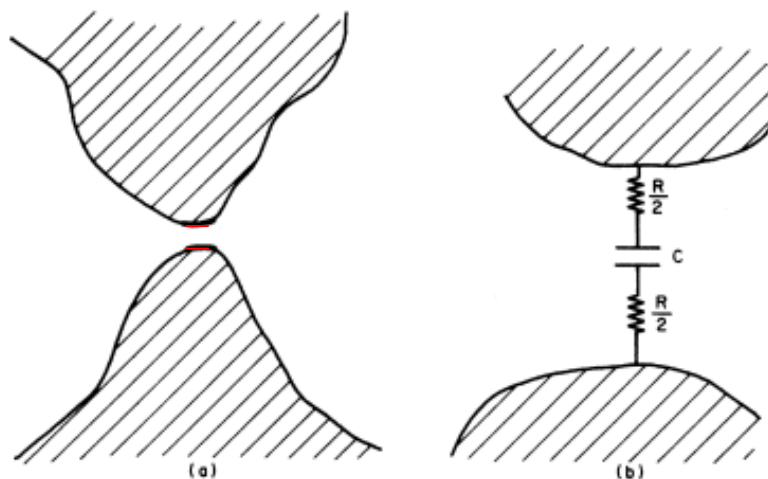


圖 2-5-1 (a) 兩大導電導體與其最易發生穿隧效應區域 (紅線處) 示意圖
(b) 穿隧接面電路近似示意圖。[12]

2-5-1

熱擾動所導致之接面壓差(thermal voltage fluctuations)

首先考慮兩個彼此相當靠近的導體(如圖 2-5-1 (a))，由於電子的穿隧機率與絕緣體的位壘厚度成指數負相關($T \approx \exp(-2\kappa a)$)，因此穿隧效應最易發生於導體區塊表面積最小且彼此最鄰近的地方(如圖 2-5-1 (a) 紅線處) [12]。

將此穿隧接面近似為表面積為 A 、彼此相距 w 之平行電容板，其電容值 $C = A/4\pi w$ (如圖 2-5-1 (b))，其中 $R/2$ 用來表示由導體區塊連結至接面電容之電阻值大小。事實上， C 相較於兩大導體區塊間的整體電容值 C_0 ，其值是小到可以忽略的。然而，由於 C_0 值較大，因此將一個具有電荷 e 的電子由電中性的導體區塊傳導至其臨近區域所需的充電能量值 (charging energy) $e^2/2C_0$ 是可忽略的，這和粒狀 (granular) 的金屬傳導性質 (charging energy 主導傳導行為) 明顯是不同的傳導機制。

由於受到熱能的影響，電子在導體區塊的穿隧接面上，會有隨機的熱擾動，使得穿隧接面瞬間有過多或過少的電荷分佈，導致熱擾動所產生的穿隧接面壓差 (thermal voltage fluctuations)，為了計算熱擾動所導致的接面壓差，運用等效電路圖，將圖 2-5-1 轉換成圖 2-5-2

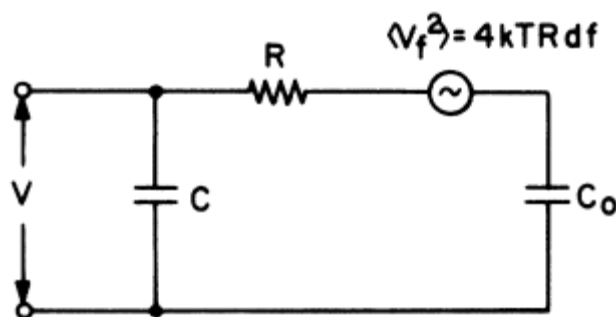


圖 2-5-2 穿隧接面的等效電路示意圖。[12]

(C 是整體電容值 C_0 的一小部份，在兩大導體區塊之間)

利用強生擾動理論 (Johnson noise voltage generator)，定義 $\langle V_f^2 \rangle = 4kTRdf$ ，其中

V_f 是電阻在小頻率區間 df 中的熱擾動壓差， $\langle \rangle$ 表示熱平均。可得到熱擾動所導致的接面壓差(thermal voltage fluctuations)的方均根值 $\langle V_T^2 \rangle$ 為 [12]

$$\langle V_T^2 \rangle = \int_0^{\infty} \frac{4kTRdf}{(2\pi fCR)^2 + (1 + C/C_0)^2} \quad (2.51)$$

其中 $C \ll C_0$ ， C/C_0 項可被忽略，所以 2.51 式可寫成

$$\langle V_T^2 \rangle = kT/C \quad (2.52)$$

由 2.52 式可知，熱擾動所造成的壓差與兩大導體接面間的電容值成反比，然而兩大導體接面間的電容值和穿隧接面的面積成正比，所以我們可知當穿隧接面的面積愈小，熱擾動所產生的穿隧接面壓差(thermal voltage fluctuations)會變得不可忽略，且在穿隧機率中扮演著重要的角色。

2-5-2 FIT Model 中，電阻隨溫度變化的行為

根據 [11, 12]，在 FIT Model (Fluctuation-Induced Tunneling) 中，通過單一小穿隧接點的電阻隨溫度變化的行為是

$$R(T) = R_{\infty} \exp\left(\frac{T_1}{T_0 + T}\right) \quad (2.53)$$

$$T_1 = \frac{8\varepsilon_0}{e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^2}{w}\right) \quad (2.54)$$

$$T_0 = \frac{16\varepsilon_0 \hbar}{\pi(2m)^{1/2} e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^{3/2}}{w^2}\right) \quad (2.55)$$

R_{∞} 是一個不會受溫度影響的參數，其中 w 是位壘的厚度， V_0 是位壘的高度，經由 2.54 式和 2.55 式我們可算出穿隧接點位壘的厚度和高度。 T_0 的物理意義是當溫度遠小於 T_0 時，熱擾動致發之效應就變得無意義。

如果穿隧接點的面積足夠小，則熱擾動所造成的壓差 V_{th} 可使穿隧接點的位壘有

效地縮小和降低，進而影響穿隧機率。在高溫區($T \gg T_0$)， $R(T) \propto \exp\left(\frac{1}{T}\right)$ ，此時電子通過穿隧接點的傳導機制為熱激發傳導(thermal activation conduction)，當 $T \ll T_0$ 時，2.53 式中的 T 可被忽略，2.53 式可近似為不隨溫度變化的方程式，此時電導率只與穿隧位障的結構有關，即僅存穿隧效應影響。

2-5-3 FIT Model 中，高偏壓下 $I-V$ 之關係

在外加大偏壓下，電流和電壓的關係($I-V$ curve)會變成非線性，FIT Model [11, 12]也解釋了在某個溫度下，外加大偏壓時電流和電壓的關係($I-V$ curve)非線性區域的行為：

$$I_h(V_h, T) = I_{h,s} \exp\left[-a(T) \left(1 - \frac{V_h}{V_{h,c}}\right)^2\right], \quad |V_h| < V_{h,c} \quad (2.56)$$

其中 h 表示在高偏壓下。飽和電流($I_{h,s}$)和臨界電壓($V_{h,c}$)是不會受溫度影響的參數， $a(T)$ 是在電流和電壓的關係($I-V$ curve)中主導溫度效應的參數

$$a(T) = \frac{T_1}{T_0 + T} \quad (2.57)$$

利用量測不同溫度的電流和電壓的關係($I-V$ curve)，可以得到兩組 T_1 和 T_0 的參數，第一組 T_1 和 T_0 參數，是由電流和電壓的關係($I-V$ curve)中的歐姆線性區得到，也就是利用 2.53 式擬合我們量測到的隨溫度變化的電阻而萃取出來的參數；第二組 T_1 和 T_0 參數，是由電流和電壓的關係($I-V$ curve)中的非線性區域得到，也就是利用 2.56 式擬合某個溫度之電流和電壓關係($I-V$ curve)中的非線性區域可得到參數 $a(T)$ ，然後利用 2.57 式擬合 a 隨溫度變化的關係可得到第二組 T_1 和 T_0 參數。然後，我們可比較此兩種方法萃取得到的 T_1 和 T_0 參數。

三、樣品製作流程與量測方法

3-1 樣品製備所需的技術

這裡簡略提一下製作微米尺寸的穿隧接點所需要用到的技術，3-1-1 節和 3-1-2 節和 3-1-3 節和 3-1-4 節會詳細說明這些技術，而 3-2 節會詳細說明穿隧接點的製作流程。

為了要製作微米尺寸的穿隧接點，就必須要靠微影技術，我們使用的微影技術有兩種：光微影和電子束微影。首先我們使用光微影製程製作比較大的電極，再用電子束微影術製作比較小的電極，其中我們是利用熱蒸鍍來蒸鍍金屬當作電極，接著使用輝光放電技術或自然氧化成長氧化層。

3-1-1 光微影

首先我們使用光微影製程製作大約 5 微米寬的電極，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。我們使用過上面已長了 120nm 和 400nm 和 500nm 的氧化層(SiO_2)的矽基板，接著透過標準的光微影製程(如圖 3-1-1)依序沉積 10nm 的鈦和 60nm 的金，其中 10nm 的鈦是二氧化矽與金的黏著層，經舉離後再用晶圓切割機切割成 7mm × 7mm 的基板(如圖 3-1-2)。光微影製程的優點是容易大量生產相同的圖形，但光微影製程的最小線寬大約為 5 微米，由於我希望製作出的穿隧接點可以使用 FIT model 定性定量的分析，而 FIT model 適用在穿隧面積非常小的穿隧接點，所以必須依靠電子束微影技術製作出更細的電極(因為電子的波長比光的波長短很多)。



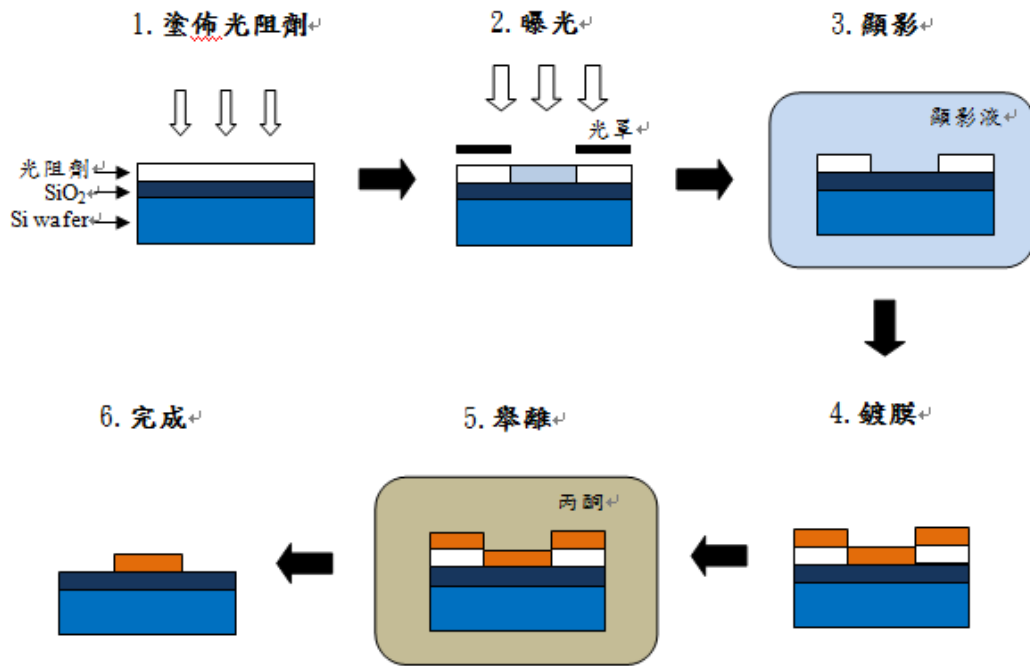


圖 3-1-1 光微影流程圖 [3]

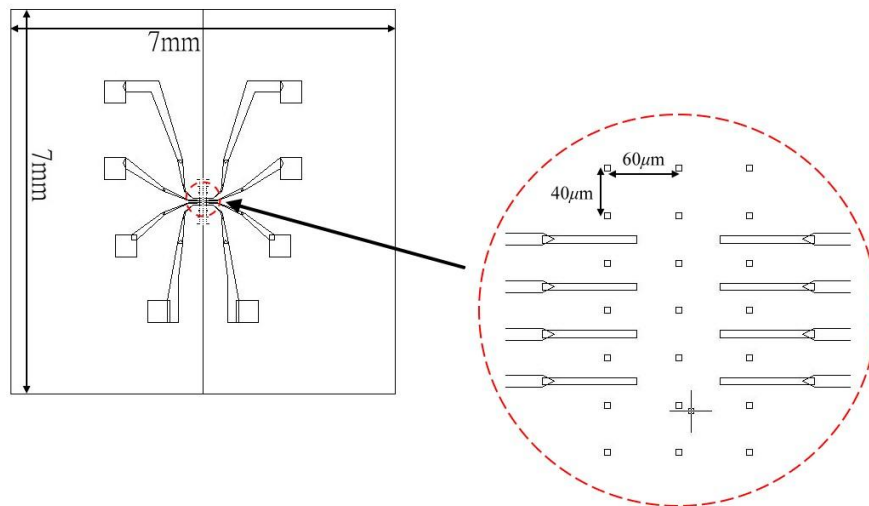


圖 3-1-2 Si/SiO₂ 基板上 Ti/Au 電極示意圖 [3]

3-1-2 電子束微影 (e-beam lithography technique)

在光學微影中，解析度的極限是由光的繞射來決定。然而在電子束微影中，由於電子束是藉由高電壓激發出來，本身具有數個 keV 或是更高能量的電子（對應的波長比 0.1 nm 更短），加上極佳的聚焦深度（depth of focus）因此具有極佳的解析度。

電子束微影是利用程式控制屏蔽板 (beam blanker) 外加一個偏壓去使電子束偏移，對於設計好的圖樣進行曝寫。我們使用的是正型電子阻劑，正型電子阻劑受到電子束照射後會破壞內部分子的鍵結，因為電子阻劑鍵結被破壞使其對於顯影液的溶解度增加，這時在用顯影液就可以將被電子束照射過的區域的 PMMA 給清除掉。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的掃過，所以所花的時間跟光微影比起來會長許多。接著，我們使用熱蒸鍍的方式蒸鍍我們要的電極上去矽基板。最後的步驟就是舉離 (lift-off)，將整個矽基板泡在丙銅中 12 小時，電子阻劑會被丙銅溶解，所以附著在電子阻劑上的金屬會跟著一起被掀掉，最後留下來的的是我們以 AutoCAD 設計的電極圖形。(如圖 3-1-4)

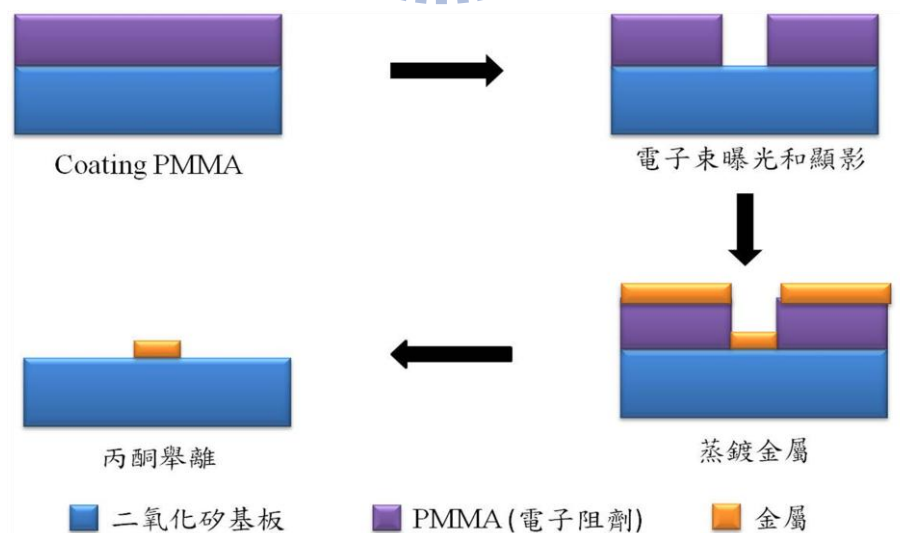


圖 3-1-3 電子束微影流程圖

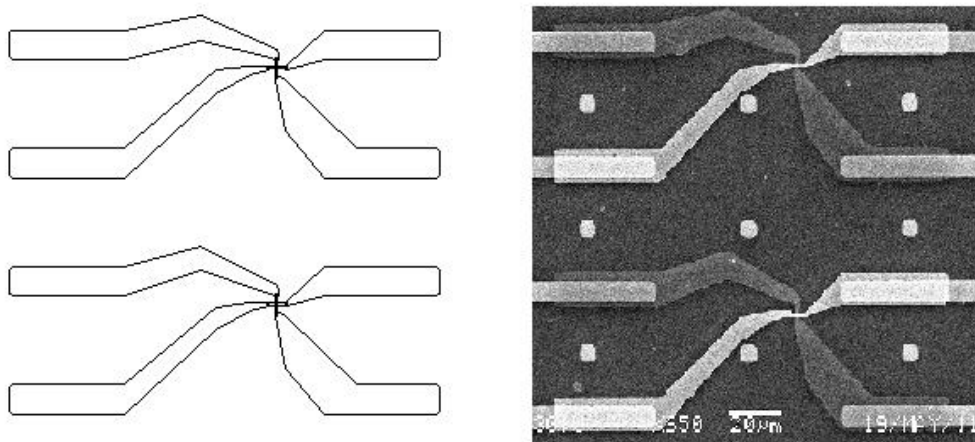


圖 3-1-4 左圖是 AutoCAD 設計的電極;右圖是兩次電子束微影製程完成的樣品

3-1-3 熱蒸鍍

熱蒸鍍為物理氣相沉積(physical vapor deposition)的一種，圖 3-1-5 為蒸鍍機的示意圖，將我們欲蒸鍍的材料放置鎢舟上，而我們的矽基板在上方的樣品座上，在高真空(2×10^{-6} torr)的環境下，通大電流加熱鎢舟使材料蒸發或昇華，氣化後的原子於真空腔體中經過碰撞後，會在冷卻的基板上冷凝形成薄膜，而需在高真空的環境下工作的原因是隔絕空氣中的氣體分子，避免蒸鍍的材料與空氣中的氣體分子碰撞或反應，蒸鍍後的膜才會均勻且乾淨。

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是 6M Hz，當金屬附著在震盪器上會使重量增加，導致震盪頻率變小，因此我們可以依照頻率的改變，並配合一些參數設定(不同金屬有不同的材料密度(density)和石英震盪阻抗(impedance))來得到現有的膜厚，並且也可以算出目前蒸鍍的速率。值得注意的是，當通過鎢舟的電流愈大時，氣化後的原子就有愈高的動能，蒸鍍的速率也會愈快，不同的速率會影響到薄膜的無序性。我們的經驗是，當蒸鍍的速率愈快，薄膜的電阻率會愈接近理論值。

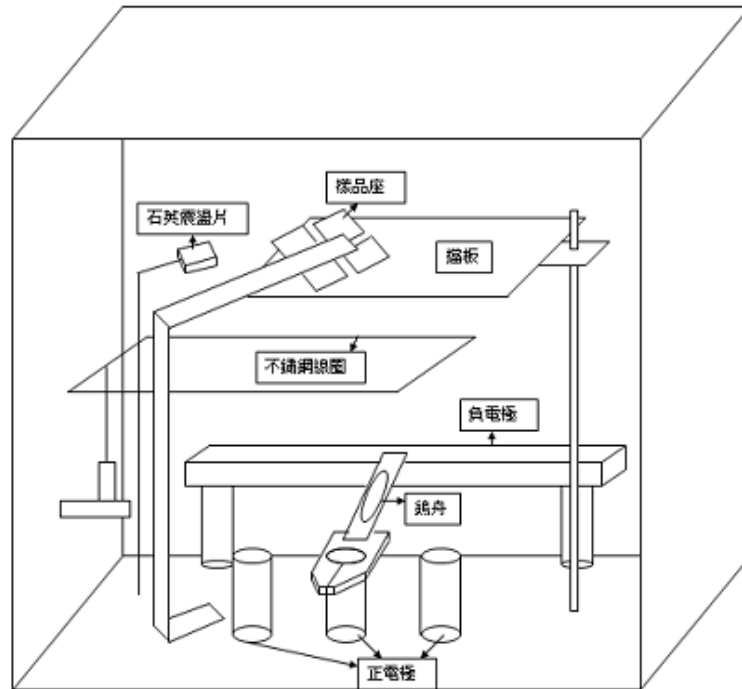


圖 3-1-5 蒸鍍機示意圖 [4]

3-1-4 氧化層的製作

鋁在空氣中易與氧氣化合，在表面生成緻密的氧化鋁薄膜，所以要製作穿隧接點，氧化鋁是一種結構緻密且製作簡單的絕緣層材料。我們利用輝光放電(glow discharge)的技術 [13, 14] (圖 3-1-6)，先用機械幫浦把腔體抽至 5×10^{-2} torr 以下，再通入氧氣至 8 torr 並且持續用機械幫浦抽氣，接著停止通入氧氣，使腔體再抽氣至 5×10^{-2} torr 以下，持續以上的流程兩次，再通入氧氣數分鐘並且持續用機械幫浦抽氣，使腔體內部盡量充滿氧氣，接著讓腔體壓力維持在 0.1 torr 的壓力下，在不銹鋼線圈上加負高壓 (~400V) 使腔體內的氧氣游離(電壓愈高，游離的氧離子愈多)，此時帶有電荷的氧離子(plasma)會往帶正電的基板移動，使鋁表面氧化生成氧化鋁，控制氧化的時間可以生成氧化程度不同的氧化鋁。(氧化 10 分鐘，位壘的厚度約 17\AA ，高度約 0.8eV)。

另一種成長氧化層方法是：將鍍好的鋁放入濕度固定的防潮箱一段時間，但此方法較不易控制氧化層的厚度，製程出來的穿隧接點的電阻率差異很大。

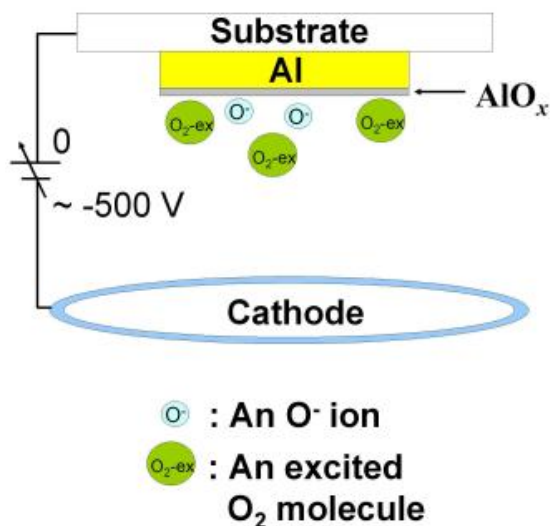


圖 3-1-6 輝光放電示意圖。利用高電壓游離氧離子

3-2 穿隧接點(微米尺寸)的製作流程

鋁/氧化鋁/鈇($\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$)的穿隧接點的製作流程是:利用兩次電子束微影技術,首先以 AutoCAD 繪圖軟體設計約 5 微米寬的電極,接著將做好光微影電極的矽基板塗佈 PMMA,我們使用熱游離掃描式電子顯微鏡 JSM-6380 做電子束微影,用電子束將塗佈上 PMMA 的矽基板定義出約 5 微米寬的圖形後,使用熱蒸鍍鍍上鋁 300\AA ,經過丙銅舉離後,矽基板上就是我們以 AutoCAD 設計的圖形。然後再做一次電子束微影製程,利用電子束定義出約 5 微米寬的圖形後,在兩電極重疊的區域(鋁)使用輝光放電技術成長氧化層,再使用熱蒸鍍鍍上鈇 800\AA 當作電極(如圖 3-2-1),所以製程出來的穿隧接點面積約為 $25\mu\text{m}^2$ 。

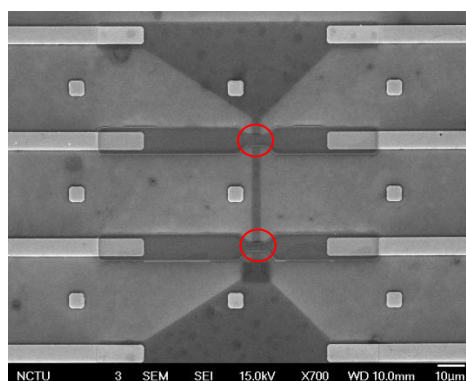


圖 3-2-1 $\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點 SEM 圖(紅色框表示穿隧接點位置)

鉻/金/氧化鋁/鉻/金(Cr/Au/AlO_x/Cr/Au)的穿隧接點的製作流程是:利用兩次電子束微影技術,首先以 AutoCAD 繪圖軟體設計約微米寬的電極,我們使用熱游離掃描式電子顯微鏡 JSM-6380 做電子束微影,用電子束將塗佈上 PMMA 的矽基板定義出約微米寬的圖形後,以熱蒸鍍的方式依序鍍上薄薄的鉻與 20 nm 的金,鉻是金與二氧化矽基板的黏著層,接著再鍍上一層薄薄的鋁(我鍍過 40Å~150Å),舉離完放入濕度固定的防潮箱一段時間使鋁自然氧化,然後再做一次電子束微影製程,利用電子束定義出約微米寬的圖形後,以熱蒸鍍的方式依序鍍上薄薄的鉻與 60 nm 的金。此樣品第一層電極側邊沒有氧化層(如圖 4-3-1),4-3 節會說明第一層側邊漏電的貢獻是可以忽略的。

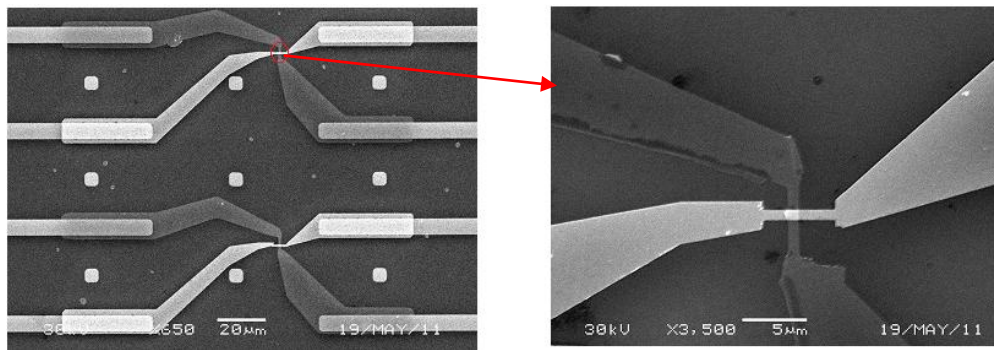


圖 3-2-2 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 穿隧接點的 SEM 圖(右圖為 0.5μm² 的穿隧接點)

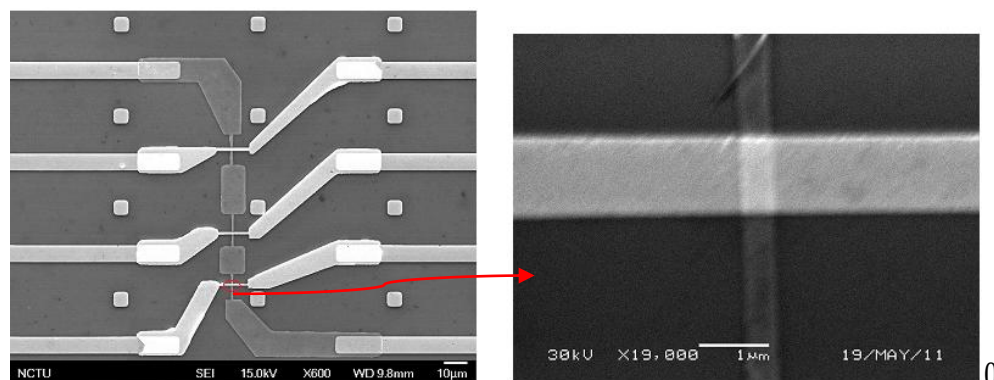


圖 3-2-3 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 穿隧接點的 SEM 圖(右圖為 0.4μm² 的穿隧接點)

3-3 量測方法

二點量測

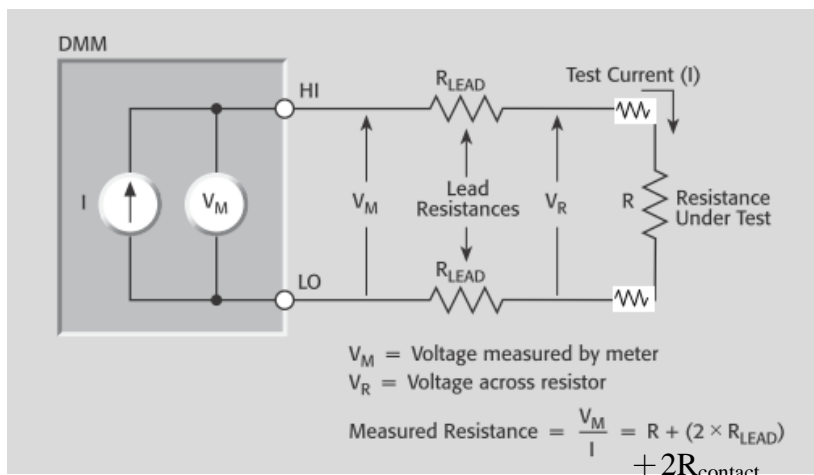


圖 3-3-1 兩點量測除了量測到樣品電阻外，還會量到導電得電阻與接點電阻

二點量測在精密的量測中有其缺點，如圖 3-3-1 所示，量到的電阻為樣品的電阻加上接點電阻在加上導線的電阻，而接點電阻常常因為製程的關係遠大於樣品的本身的電阻，且接點電阻會隨溫度下降而上升，低溫量測時接點電阻往往會主導我們測量到的電阻，是導致實驗結果常常不一致的主要因素。所以我們需要更精密的量測：四點量測(如圖 3-3-2)

四點量測

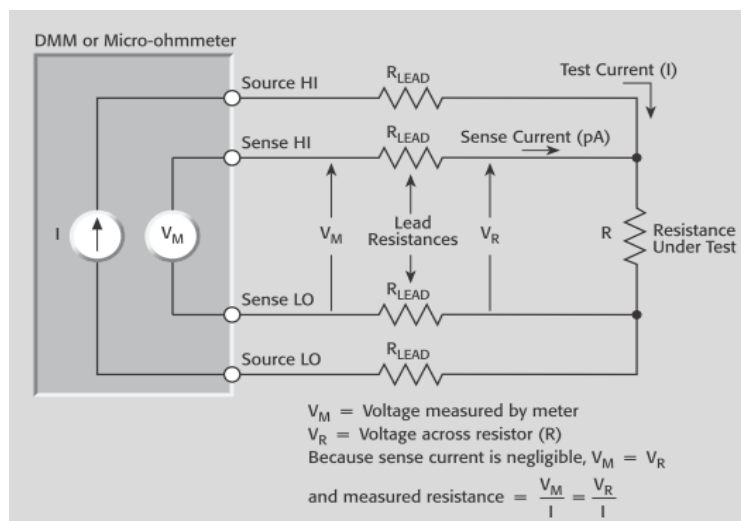


圖 3-3-2 四點量測示意圖

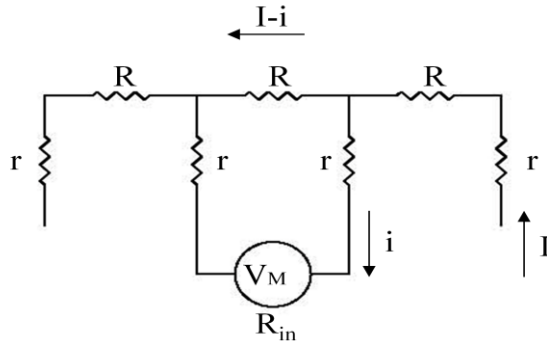


圖 3-3-3 為圖 3-3-2 的簡化圖

$$R_m = \frac{V_m}{I} = \frac{iR_{in}}{I}$$

$$(I-i)R = i2r + iR_{in} \Rightarrow i = \frac{IR}{2r + R + R_{in}}$$

$$R_m = \frac{IRR_{in}}{I(2r + R + R_{in})} = \frac{R_{in}}{2r + R + R_{in}} R$$

$$R_m \approx \frac{R_{in}}{R_{in}} R = R \Rightarrow \text{因為我們選用的電壓計的阻抗很大，所以量測到的電阻可近似為樣品的電阻}$$

V_m : 電壓計量到的電壓值
 R_{in} : 電壓計的阻抗
 I : 電流源外加的電流值
 R_m : 量測到的電阻值

為了避免量測到接點電阻與導線電阻，我們使用四點量測(如圖 3-3-2 所示)，而圖 3-3-3 為圖 3-3-2 的簡化圖。量測穿隧接點時我們會視情況所定，假如接點電阻遠大於電極的電阻時，此時電極的電阻就可被忽略，我會使用兩點量測(如圖 3-3-4 右圖);假如接點電阻稍微大於電極的電阻時，此時電極的電阻就不可被忽略，我會使用四點量測(如圖 3-3-4 左圖)。

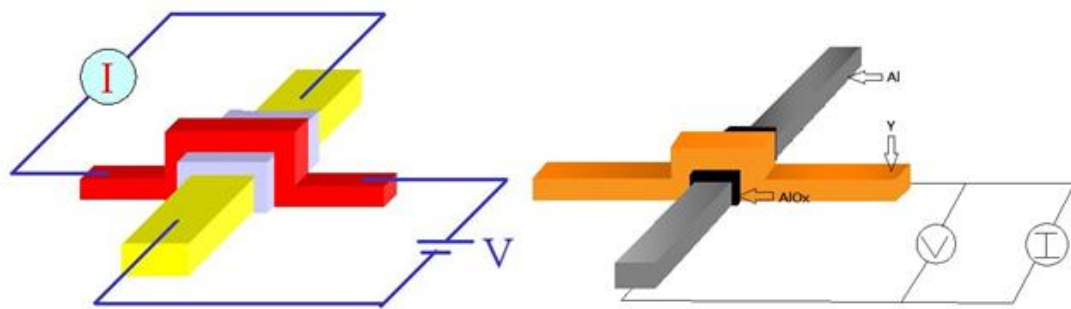


圖 3-3-4 左圖為以四點量測量測穿隧接點;右圖為以兩點量測量測穿隧接點示意圖

3-4 低溫致冷器 (cryostat)

物理研究中常常需要把溫度降到很低溫去探討樣品的物理性質(例如:鋁超導),因此我們需要冷卻的儀器使樣品降溫且能夠控溫,一般用來冷卻的儀器我們統稱為致冷器,不同的致冷器有不同的功用,我們實驗室常用的致冷器有 ^3He 循環系統的致冷器,也有 ^4He 的致冷器,也有封閉循環致冷機系統,我們根據所需的量測溫度區間,來決定實驗最適當的致冷器,以下將介紹我的實驗所用到的致冷器: ^4He cryostat

^4He 低溫量測系統(如圖 3-4-1):在量測過程中使用液氮或液氦來提供冷源,以及 ^4He 低溫量測系統上的電阻式加熱器提供熱源,來控制我們量測時的溫度,使我們能在某溫度下做電性量測。 ^4He 低溫量測系統上有外真空夾層的設計,它隔絕了樣品環境和外界環境的一些熱傳導機制,能幫助我們在更低溫的環境下穩定控制住溫度。 ^4He 低溫量測系統上還有一個特殊的針閥設計,可以控制機械幫浦抽進氦氣的量,在利用液氮降溫的過程中可控制降溫的速率。我們在 cryostat 中使用了兩個二極體溫度計,一個是在樣品座的上端,用來偵測樣品的環境溫度;另一個則是在樣品空間底部,靠近液氮進入的地方,當作參考用。

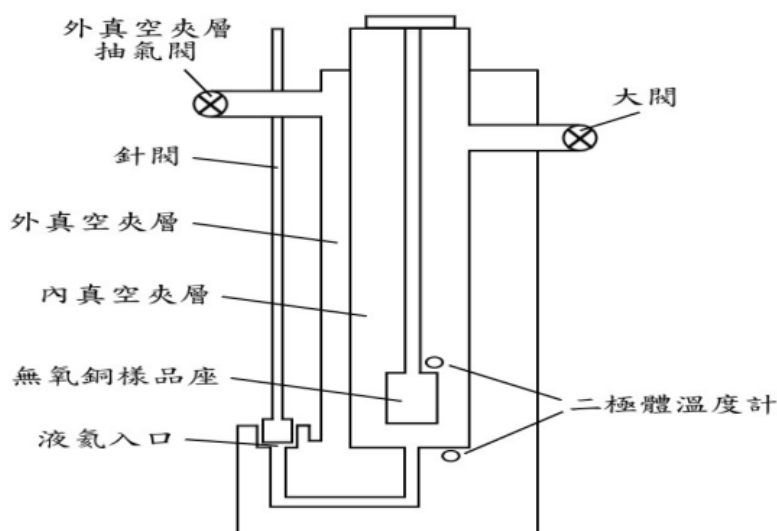


圖 3-4-1 ^4He cryostat 示意圖

3-4-1 降溫前的準備工作

若外真空夾層真空度不足時，則下低溫量測時，就不容易把溫度控在某一溫度，且不容易到達最低溫(^4He cryostat 溫度計最低溫校正到 1.5 K)，所以降溫前的第一步驟是：利用擴散幫浦將外真空夾層的壓力抽至 5×10^{-5} torr 以下。接著，使用導熱良好的 N-grease 將矽基板固定在樣品座上，樣品座上有一層捲菸紙，是為了絕緣用(避免銅線和無氧銅直接接觸)，要注意捲菸紙是否有破掉的情形。在我們將樣品放入樣品空間後，還需對樣品空間(內真空夾層)做淨化(purge)的動作：先用機械幫浦將內真空夾層抽至低真空度，再以高純度的氦氣從大閥吹入內真空夾層，開一點針閥讓氦氣從液氮入口吹出，如此的步驟重複三次。這流程是為了使內真空夾層內盡量去除水氣和空氣而充滿氦氣，避免針閥在低溫時會凍住而不能抽氦氣降溫。purge 的過程中，我們可以測試樣品是否完好如初(小樣品容易被靜電燒掉)和程式有沒有問題(電腦讀到的值是否和電表量到的值相同)，如果一切都沒有問題後就可以開始準備降溫量測了。



3-4-2 降溫原理及流程

(a) 300 K ~ 77 K

這個溫度區段最主要是利用熱的傳導。因為液態氮容易取得，且相對於液體氦來說，其成本很低，所以我們先使用液氮來預冷(pre-cooling)，我們將 CRYO 放入液氮桶，並將其大部浸泡於液氮裏，利用液氮來對整個 CRYO 做冷卻的動作，而 CRYO 雖然有內真空夾層與外真空夾層的保護不過因為冷源太強，仍可以藉由傳導方式來達到降溫手段。若外真空夾層真空度不夠，則會因為液氮冷卻能力過強不容易使用加熱器穩定控制住溫度；且降溫速率會太快以至於樣品座上溫度梯度太大導致量到的溫度值不太正確。由於我們會將溫度穩穩的控制是我們希望的溫度作電性量測，所以外真空夾層的真空度就顯得非常重要。

(b) 77 K ~ 4.2 K

利用熱傳導的方式，經過幾個小時的緩慢降溫以後 CRYO 可達到約 90 K 溫度，雖然液氮在一大氣壓下的沸點為 77 K，但是由於外界高溫也會經由熱傳導傳到 CRYO 上，所以實際上大約只能到達 90 K 左右就要換成浸泡在液態氦裏，利用機械幫浦抽冷氦氣從針閥抽進樣品空間(內真空夾層)裏(如圖 3-4-2)，再從大閥抽出，此溫區的降溫方式是利用傳導與對流的方式使溫度降至 4.2 K。經由控制 Cryo 針閥和大閥可控制降溫速度，此時要注意的是低溫的比熱較小，因此降溫較快，也就是說當針閥開一定量時，到了大約 30K 時會降得特別快，為了避免樣品溫度梯度太大以至於取到的溫度值不太正確，此時要記得把針閥關小點。

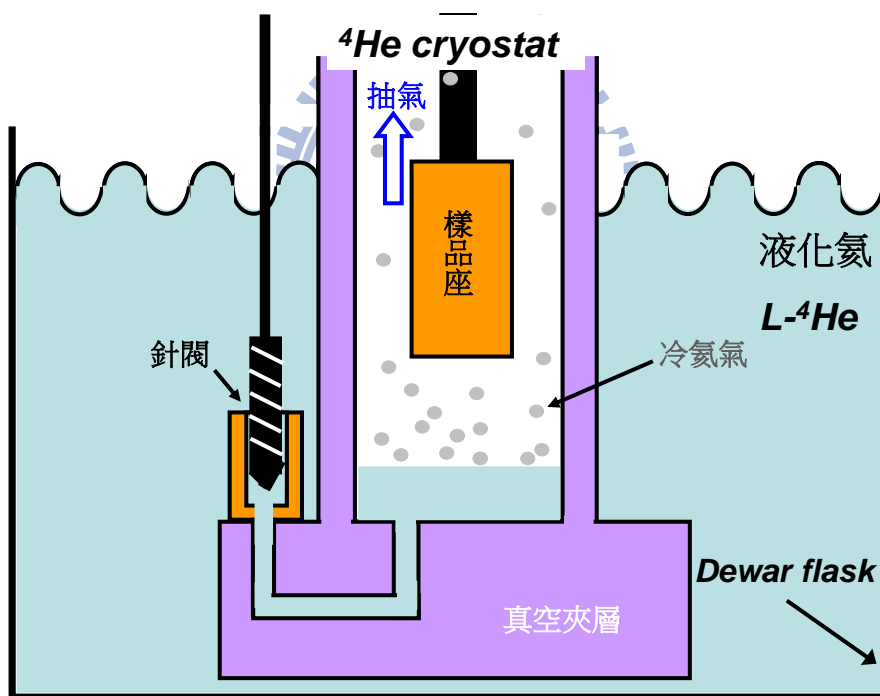
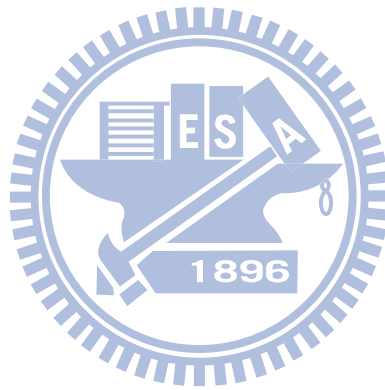


圖 3-4-2 ^4He 低溫系統的抽氣降溫示意圖

(c) 4.2 K ~ 1.4 K

在一大氣壓下，液態氦的沸點是 4.2 K，要達到比液態氦沸點更低的溫度，我們使用減壓降溫的方式，利用機械幫浦持續的抽內真空夾層的壓力且針閥關小或全關，不斷將上方的氣體分子移除，使腔體內壓力降低，而液體為了維持飽和蒸氣壓，所以會一直蒸發來保持平衡，經過一連串的動作，熱源不斷被帶走，最後能使溫度降至 1.4 K。當液態氦不需蒸發即可維持其蒸氣壓時，也就是當溫度接近 1.4 K 時，參與揮發的液氦會越來越少，自然所能帶走的熱量也變小了，到了某個溫度極限就無法再讓溫度更低了，這就是 ^4He 低溫系統的最低溫極限。



四、實驗結果與分析

4-1 鋁/氧化鋁/鋁(Al/AIO_x/Al)穿隧接點的特性

為了更進一步探討接點電阻，本人的研究方向是設計一系列金屬/氧化層/金屬的穿隧接點，接點面積為微米尺寸，以輝光放電技術控制氧化層氧化的程度，量測接點電阻隨溫度變化的關係，分析其位壘厚度和高度；量測樣品在液氦溫度外加大偏壓下的 $I-V$ curves，理論預測有階梯的行為出現[5]。首先，利用兩次電子束微影技術和輝光放電技術製作了 Al/AIO_x/Al 穿隧接點(如圖 4-1-1)，接點面積為微米尺寸，我們量測接點電阻之前，會先檢查鋁電極是否正常(短路)，表 4-1-1 列了一些樣品資訊。

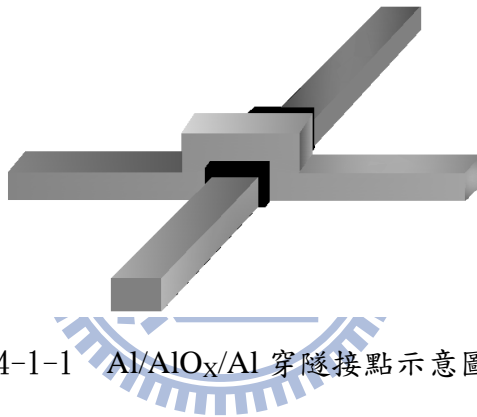


圖 4-1-1 Al/AIO_x/Al 穿隧接點示意圖。

樣品	氧化條件	接點面積 (μm^2)	室溫電阻 ($\text{G}\Omega$)	ρ_c (300K) ($\text{k}\Omega\mu\text{m}^2$)
Al_A	沒有製作氧化層	5×3	18.2	2.73×10^8
Al_B	沒有製作氧化層	5×5	4	1×10^8
Al_C	輝光放電:20 W 氧化 6 min	1×1	39.68	3.97×10^7
Al_D	輝光放電:20 W 氧化 7 min	1×1	3.03	3.03×10^6
Al_E	輝光放電:2 W 氧化 5 min	5×4	2.69	5.38×10^7
Al_F	輝光放電:2 W 氧化 5 min	5×5	3	7.5×10^7
Al_G	通氧 10 分鐘(P=0.4 torr)	5×5	28.5	7.1×10^8
Al_H	通氧 10 分鐘(P=0.4 torr)	5×4	23.1	4.6×10^8

表 4-1-1 Al/AIO_x/Al 樣品資訊。(其厚度條件均為 Al(300Å)/AIO_x/Al(600Å))

$$\rho_c = R_c \times A$$

其中電阻是利用 I - V curves 線性區域的斜率得到，圖 4-1-2 和圖 4-1-3 為 Al_C 和 Al_D 樣品的 dI/dV - V 圖，而且為良好的拋物線圖形，因此可以根據第二章理論部份(2.43 式和 2.44 式)分析其位壘的高度及厚度。

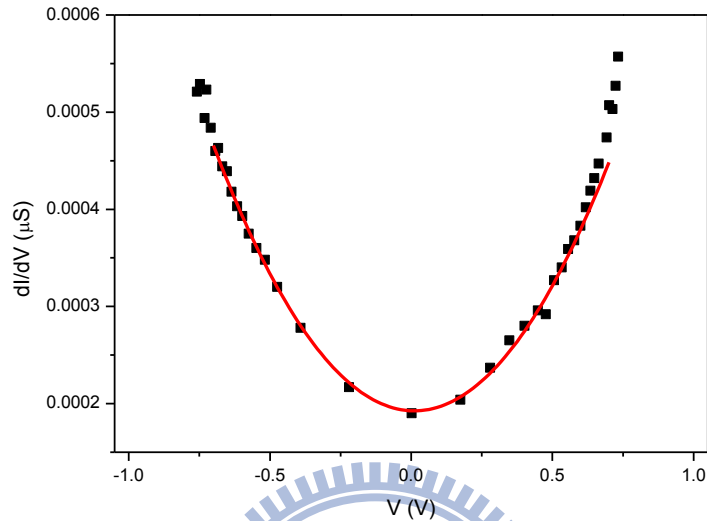


圖 4-1-2 樣品 Al_C 在室溫的 dI/dV - V 圖。圓點為實驗值，實線則是用二次多項式所擬合的曲線。利用 BDR model (2.43 式和 2.44 式)分析後其位壘厚度 $d=15.3 \text{ \AA}$ 、平均高度 $\bar{\phi}=2.74 \text{ eV}$ 、高度差 $\Delta\phi=0.45 \text{ eV}$ 。

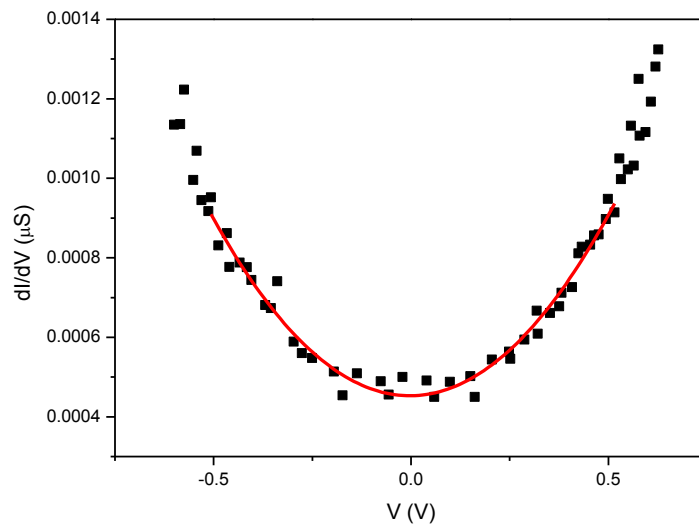


圖 4-1-3 樣品 Al_D 在室溫的 dI/dV - V 圖。利用 BDR model (2.43 式和 2.44) 式分析後其位壘厚度 $d=16.35 \text{ \AA}$ 、平均高度 $\bar{\phi}=2.21 \text{ eV}$ 、高度差 $\Delta\phi=0.11 \text{ eV}$ 。

由於製程出來的 Al/AIO_x/Al 穿隧接點的電阻都是 GΩ 等級，恰好本實驗室有在研究 Al/AIO_x/Y 穿隧接點的近藤效應，且 Al/AIO_x/Y 穿隧接點(相同接點面積)在室溫分析出來的位壘厚度 $d=16.85 \text{ \AA}$ ，平均高度 $\bar{\phi}=0.88 \text{ eV}$ ，明顯比我製作的樣品的位壘高度還低很多(如圖 4-1-2 和圖 4-1-3)，且製程方法都一樣，所以我們就開始製作 Al/AIO_x/Y 穿隧接點來研究接點電阻，使用鋁或鈮都不影響我的研究，因為鋁或鈮都是當做電極用而已。而為什麼 Al/AIO_x/Y 穿隧接點的接點電阻率比較小，我們給的解釋是因為在蒸鍍鈮的過程中，可能使少量的鈮原子輕微擴散入氧化層中，導致 Al/AIO_x/Y 穿隧接點的接點電阻率(specific contact resistivity)較小。

4-2 鋁/氧化鋁/鈮(Al/AIO_x/Y)穿隧接點的特性

利用兩次電子束微影技術和輝光放電的技術製作 Al/AIO_x/Y 穿隧接點，接點面積為微米尺寸，量測接點電阻前必須先檢查鋁電極和鈮電極是否正常，5 μm 寬且 300 Å 厚的鋁電極電阻約 100 Ω，5 μm 寬且 800 Å 厚的鈮電極電阻約 600 Ω。由於鈮對矽基板的附著力較差(鈮鍍太厚，舉離時容易被掀掉)，我們又希望電極的電阻率低一點，所以才鍍 800 Å 的鈮。

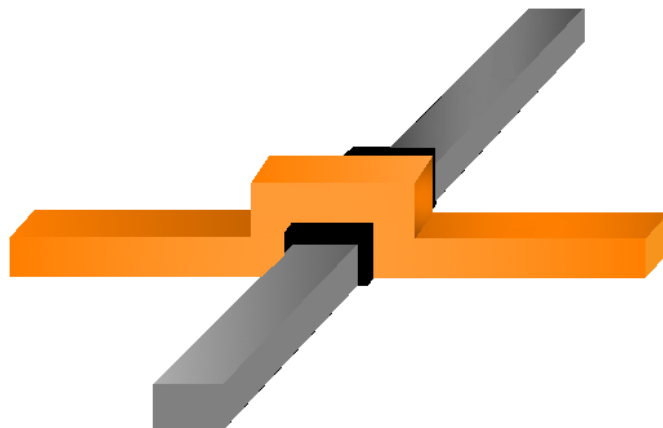


圖 4-2-1 Al/AIO_x/Y 穿隧接點示意圖。

4-2-1 樣品資訊及實驗數據

樣品	氧化條件	接點面積 (μm^2)	室溫電阻 ($\text{k}\Omega$)	ρ_c (300K) ($\text{k}\Omega\mu\text{m}^2$)
Y_A	輝光放電:4 W 氧化 10 min	5×5	381	9.52×10^3
Y_B	輝光放電:4 W 氧化 10 min	5×3	1480	22.2×10^3
Y_C	輝光放電:4 W 氧化 20 min	5×5	1600	4×10^4
Y_D	輝光放電:4 W 氧化 20 min	5×5	3000	7.5×10^4
Y_E	輝光放電:4 W 氧化 20 min	5×3	6000	9×10^4
Y_F	輝光放電:4 W 氧化 30 min	5×5	435	1.09×10^4
Y_G	輝光放電:4 W 氧化 30 min	5×5	705.8	1.76×10^4
Y_H	輝光放電:4 W 氧化 30 min	5×3	920	1.38×10^4
Y_I		20×20	19	7.6×10^3
Y_J		20×25	12	6×10^3

表 4-2-1 Al/ AlO_x /Y 樣品資訊(其厚度條件為 Al(300Å)/ AlO_x /Y(800Å))。其中 Y_D, Y_F, Y_H 樣品有降溫量測, Y_I, Y_J 樣品是賴祐仁學長製作和量測的。 $\rho_c = R_c \times A$

由於我們是使用兩次電子束微影技術,所以在接面處可能會有電子阻劑殘留的問題,又知道利用輝光放電的技術可以侵蝕電子阻劑,因此利用輝光放電成長氧化層時,氧離子會先侵蝕接面處的電子阻劑,再與接面處的鋁反應生成氧化鋁,而每次透過電子束曝光和顯影,電子阻劑所殘留的量並不一樣,所以氧化的時間愈久,接點電阻率不一定愈大。

我們知道 Al/ AlO_x /Y 穿隧接點會有近藤效應,但若氧化層厚一點,電子與磁性雜質(Y)的交互作用變弱,就沒有近藤效應,所以我故意讓氧化時間久一點,目的就是希望氧化層厚一點以至於沒有近藤效應的出現。

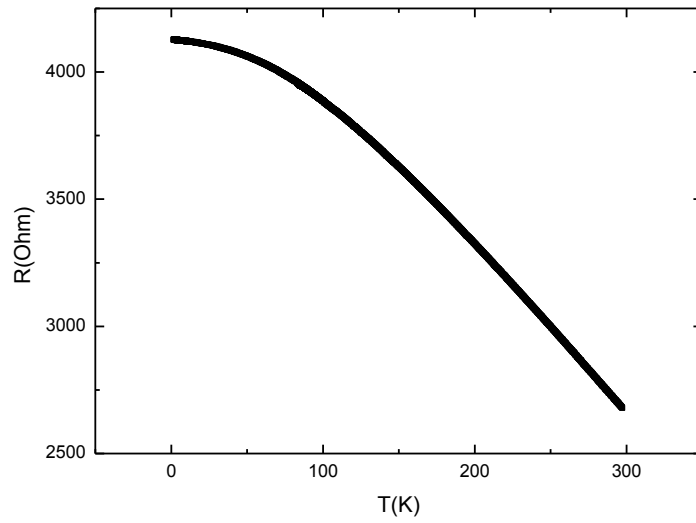


圖 4-2-2 Al/AIO_x/Al 的 $R - T$ 圖。此為洪舜治學長的數據[4]。其製作條件為 Al(250Å)/AIO_x/Al(600Å)，接點尺寸為 1 mm × 0.5 mm。

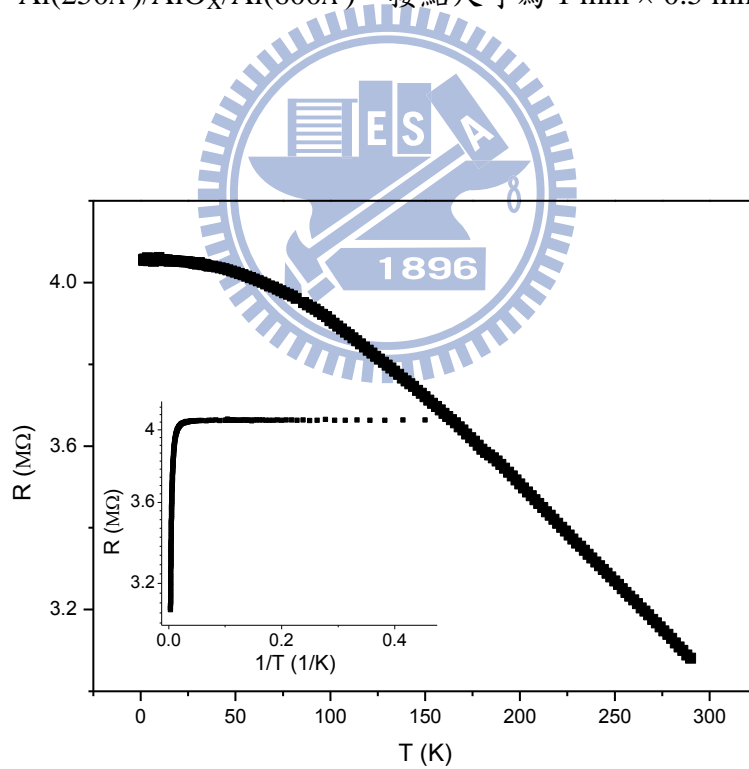


圖 4-2-3 樣品 Y_D 的 $R - T$ 圖。其接點面積為 $25 \mu\text{m}^2$ ，
小圖為 Y_D 樣品 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖。

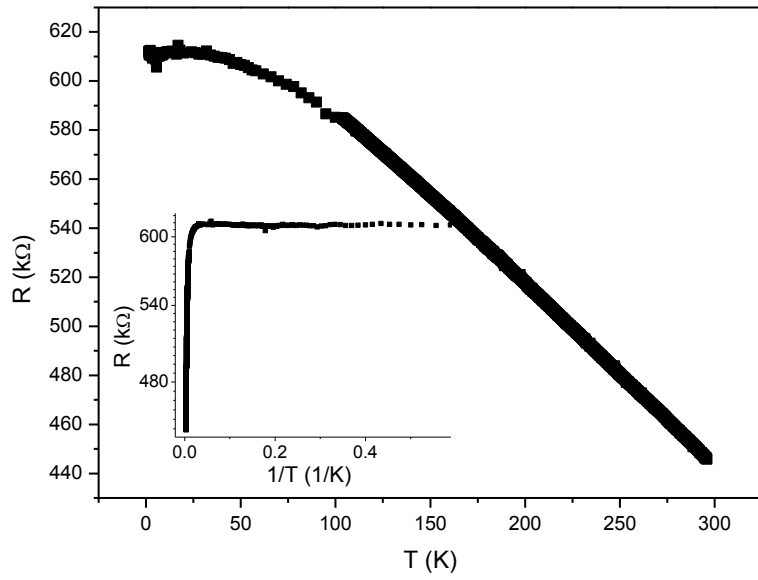


圖 4-2-4 樣品 Y_F 的 R - T 圖。其接點面積為 $25 \mu\text{m}^2$ ，
小圖為 Y_F 樣品 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖。

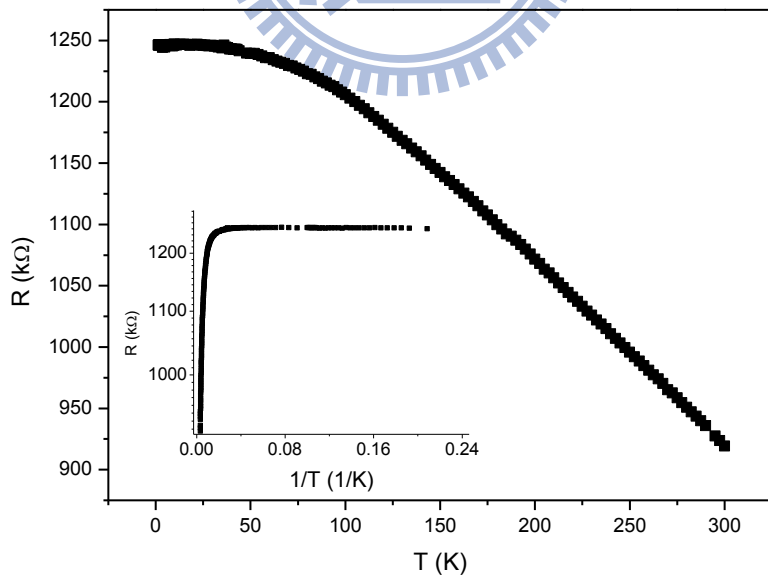


圖 4-2-5 樣品 Y_H 的 R - T 圖。其接點面積為 $15 \mu\text{m}^2$ ，
小圖為 Y_H 樣品 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖。

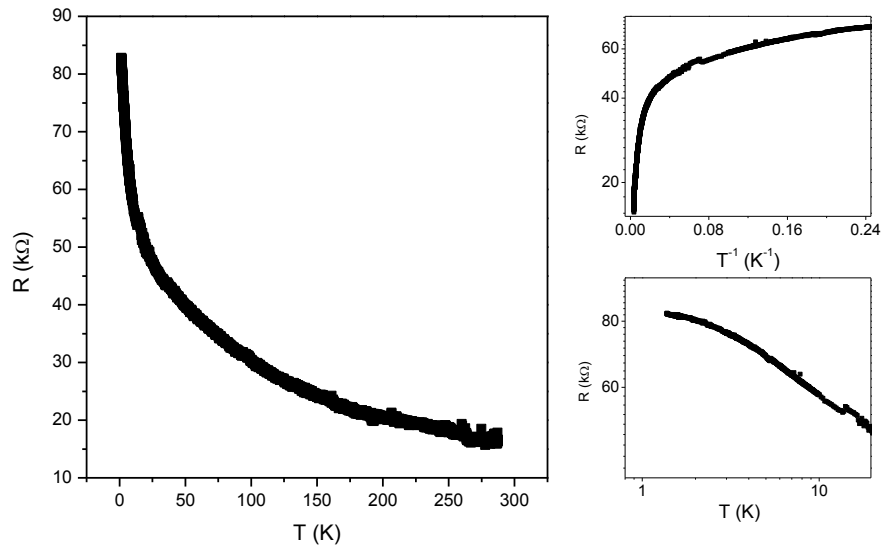


圖 4-2-6 樣品 Y_I 的 R - T 圖(此為賴祐仁學長的數據)。

其接點面積為 $400 \mu\text{m}^2$ ，小圖為 Y_I 樣品 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖和 $\log R$ 與 $\log T$ 的關係圖。

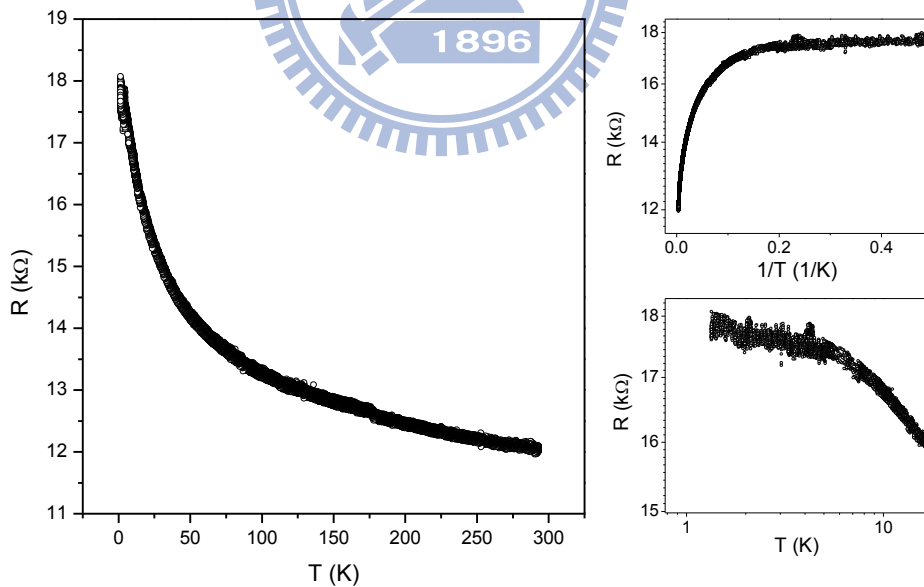


圖 4-2-7 樣品 Y_J 的 R - T 圖(此為賴祐仁學長的數據)。

其接點面積為 $500 \mu\text{m}^2$ ，小圖為 Y_J 樣品 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖和 $\log R$ 與 $\log T$ 的關係圖。

由 $\log R$ 與 T^{-1} 的關係圖可知熱激發的傳導機制(thermal activation conduction)僅發生在接近室溫的溫區。由圖 4-2-3 到圖 4-2-7, Al/ AlO_x /Y 穿隧接點可以分為兩種電阻隨溫度變化的趨勢。Y_D, Y_F, Y_H 樣品溫度小於 40K 時, 電阻不受溫度影響, 電阻呈現一種飽和的現象, 這種傳導機制稱為簡單彈性穿隧(simple elastic tunneling); Y_I, Y_J 樣品到了液氦溫度時, 電阻才和溫度無關, 電阻趨近於常數(如 $\log R$ 與 $\log T$ 的關係圖)。與 Y_I, Y_J 同一批的樣品相同接面面積的接點電阻均 $> 100 \text{ K}\Omega$ (甚至 $\text{M}\Omega$), 僅 Y_I, Y_J 樣品接點電阻率(specific contact resistivity)較小, 所以我們猜測是這兩個樣品氧化層較薄, 電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積), 如圖 4-2-8 右圖的情形; 而 Y_D, Y_F, Y_H 樣品接點電阻率(specific contact resistivity)較大, 所以猜測是這些樣品氧化層較厚, 兩電極間被一層薄薄的絕緣層隔絕的情形(如圖 4-2-8 左圖的情形)。

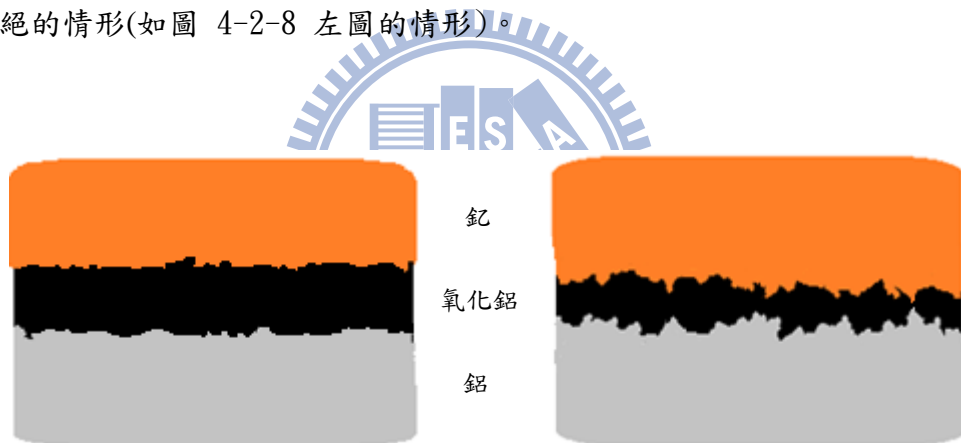


圖 4-2-8 Al/ AlO_x /Y 穿隧接點的示意圖。(左圖是兩電極間被一層薄薄的絕緣層隔絕的情形;右圖是電極間形成較小面積的等效穿隧結之情形)

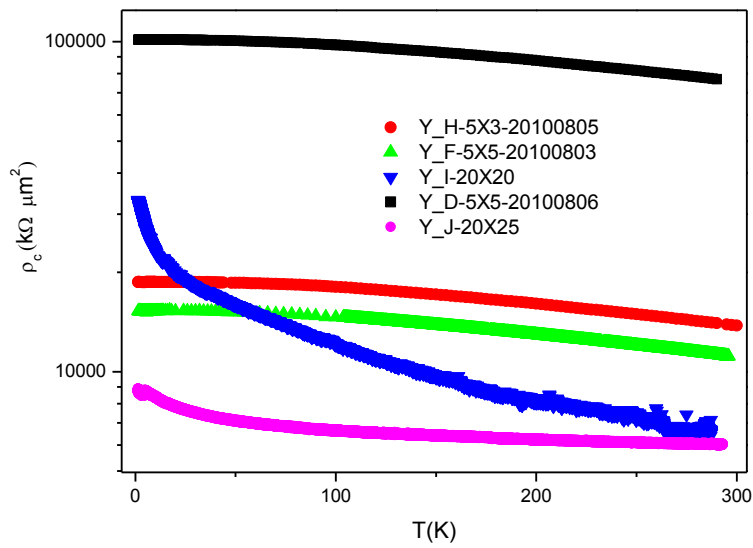


圖 4-2-9 Al/AIO_x/Y 穿隧接點 $\log \rho_c - T$ 圖。從這個圖可以發現室溫接點電阻率較小的樣品(Y_I, Y_J)與室溫接點電阻率較大的樣品(Y_D, Y_F, Y_H)，其兩者隨溫度變化的趨勢是不同的。

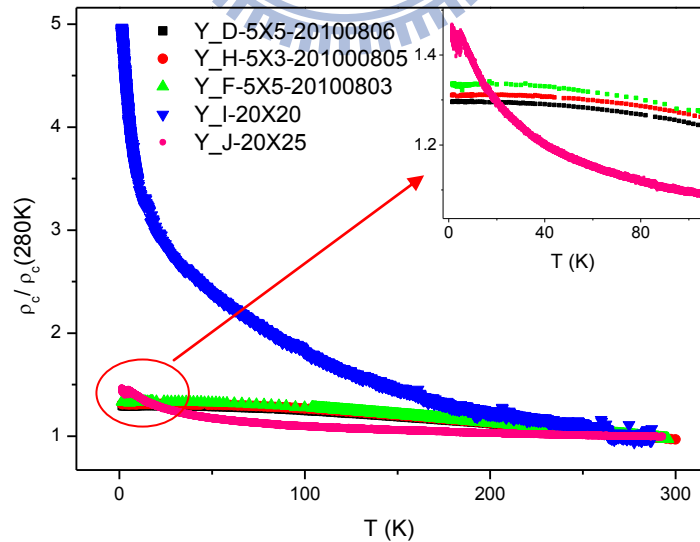


圖 4-2-10 Al/AIO_x/Y 穿隧接點歸一化的接點電阻率對溫度的關係圖。從這個圖可以看出兩種不同的隨溫度變化的趨勢。

4-2-2 實驗數據分析及討論

熱擾動致發之穿隧效應(FIT model)

我們猜測 Y_I, Y_J 樣品氧化層較薄，電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積)，P. Sheng 等人在 1980 年成功將 FIT model 推廣至無序的材料 (Disordered materials) 中，其傳導機制為電子較易於在兩導體區塊最鄰近處進行穿隧(如圖 4-2-11)，穿隧接面的面積很小，因此在此接面上的電子傳輸運動，易遭受熱擾動所導致的穿隧接面壓差 (thermal voltage fluctuations, $V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$) 所影響，而穿隧接面的面積很小(電容值極小)使得此壓差變得不可忽略。與我們猜測 Y_I, Y_J 樣品的穿隧機制相近，並且發現利用第二章理論 2.53 式可以成功描述 Y_I, Y_J 樣品的數據。

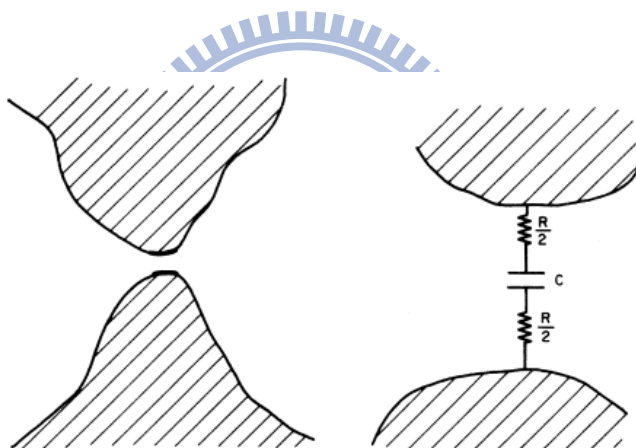


圖 4-2-11 FIT model 穿隧機制的示意圖 [12]。(穿隧接面的面積很小使得熱擾動所導致的穿隧接面壓差壓差($V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$)變得不可忽略)

$$R(T) = R_\infty \exp\left(\frac{T_1}{T_0 + T}\right) \quad (2.53)$$

$$T_1 = \frac{8\varepsilon_0}{e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^2}{w}\right) \quad (2.54)$$

$$T_0 = \frac{16\varepsilon_0 \hbar}{\pi(2m)^{1/2} e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^{3/2}}{w^2}\right) \quad (2.55)$$

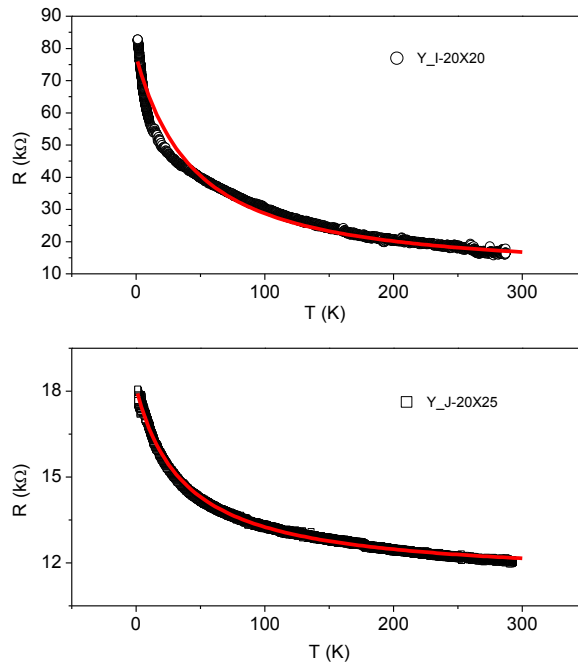


圖 4-2-12 樣品 Y_I, Y_J 電阻對溫度的關係圖。實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果。

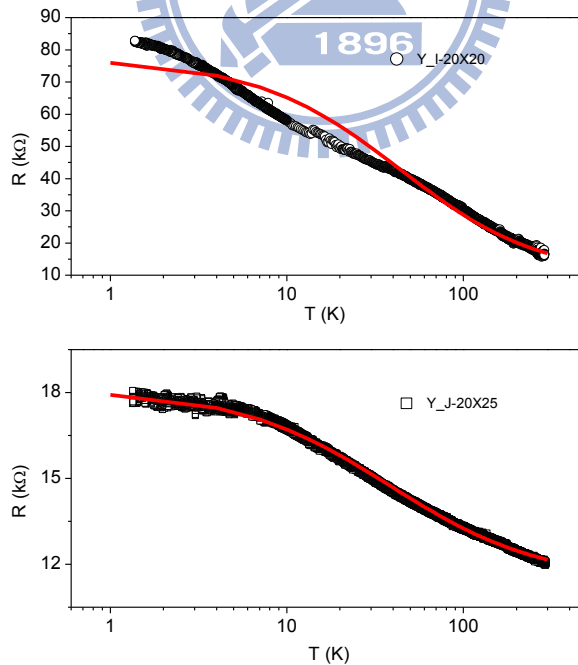


圖 4-2-13 樣品 Y_I, Y_J 的 $R-\log T$ 圖。實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果，Y_I 樣品低溫較不符合理論，可能是量測中樣品狀態(穿隧面積)改變了的關係。

	$R(300K)$ (k Ω)	R_∞ (k Ω)	T_1 (K)	T_0 (K)	A (μm^2)	w (nm)	V_0 (meV)	T_1/T_0	ρ_{c0} (k $\Omega\mu\text{m}^2$)
Y_I	16	11.55	158.76	82.26	400	33.6	0.05	1.9	32800
Y_J	12	11.42	22	47.77	500	16.57	0.012	0.46	8850

表 4-2-2 Y_I, Y_J 樣品利用 FIT model 分析得到的參數。其中 A 是穿隧面積(因為我們不知道主導電導的穿隧面積, 所以帶入我們設計的接點面積), w 是位壘寬度, V_0 是位壘高度, ρ_{c0} 是溫度趨近於 0 K 的接點電阻率。

表 4-2-2 分析出來的位壘寬度和高度並不正確, 原因是帶入分析的穿隧面積並不正確, 若將帶入分析的穿隧面積減少, 分析出來的位壘寬度愈窄, 位壘高度愈高(如表 4-2-3)。經過表 4-2-3 的討論, 若將帶入分析的穿隧面積減少, 則分析後的位壘寬度和位壘高度會愈合理, 因此我們可知道實際的穿隧面積遠小於我們設計的接點面積, 與我們的猜測相符合。

若穿隧面積夠小, 則穿隧機率易受熱擾動影響, 可使穿隧接點的位壘有效地縮小和降低, 進而影響穿隧機率, 因此 FIT theory 引進了和溫度有關係的穿隧機率。由 2.54 式和 2.55 式得知 $T_1/T_0 \propto wV_0^{1/2}$, 當 T_1/T_0 比例愈大, 代表電子穿隧的機率就愈低, 接點電阻會隨溫度降低而劇烈的變化 ($R_c(T) \sim \exp\left(\frac{T_1}{T+T_0}\right)$) [11, 12]。

	w	V_0
$A = 4 \mu\text{m}^2$	Y_I: 13.37 nm Y_J: 6.3 nm	Y_I: 0.32 meV Y_J: 0.08 meV
$A = 0.4 \mu\text{m}^2$	Y_I: 8.4 nm Y_J: 3.98 nm	Y_I: 0.8 meV Y_J: 0.2 meV
$A = 0.04 \mu\text{m}^2$	Y_I: 5.32 nm Y_J: 2.5nm	Y_I: 2 meV Y_J: 0.52 meV

表 4-2-3 將代入分析的穿隧面積值減少所得到的位壘寬度和位壘高度。

Simmons model

在1963年, Simmons推導出電子穿過一個薄絕緣層的穿隧電導對溫度的關係式, 其關係式為第二章理論的 2.39 式

$$G(T, V=0) = G_0 \left[1 + \left(\frac{T}{T_0} \right)^2 \right] \quad (2.39)$$

其中 $T_0^2 = (3\hbar^2 / \pi^2 k_B^2 m) \phi_0 / s^2$, ϕ_0 是位能壘的高度, s 是位能壘的寬度, G_0 是溫度趨近於 0 K 的電導。

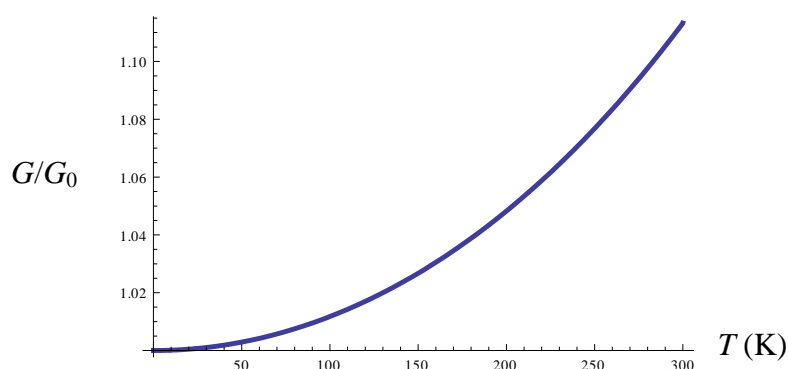


圖 4-2-14 Mathematica 畫出的電導和溫度的關係圖。

(其中位能壘寬度帶入 17 \AA , 位能壘高度帶入 0.8 eV)

圖 4-2-14 換成電阻和溫度的關係圖後和 Y_D, Y_F, Y_H 樣品的電阻和溫度的關係圖很像, 並且能用 2.39 式成功描述 Y_D, Y_F, Y_H 樣品的數據。

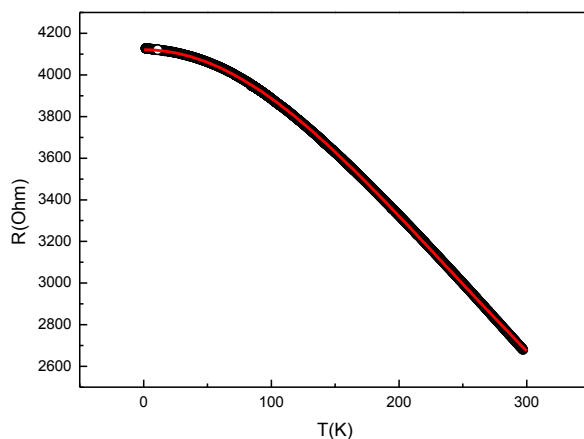


圖 4-2-15 Al/AIO_x/Al 的電阻與溫度的關係圖。此為洪舜治學長的數據[4]。(實線為 Simmons model 擬合的結果)

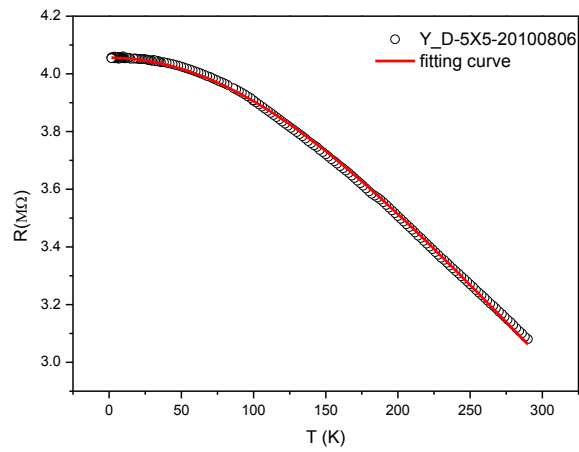


圖 4-2-16 樣品 Y_D 電阻與溫度的關係圖。(實線為 Simmons model 擬合的結果)

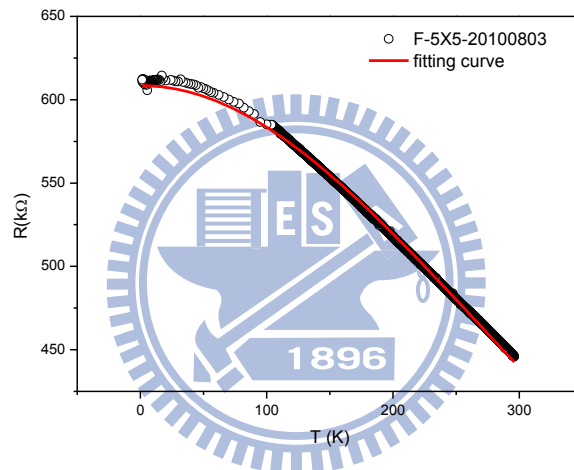


圖 4-2-17 樣品 Y_F 電阻與溫度的關係圖。(實線為 Simmons model 擬合的結果)

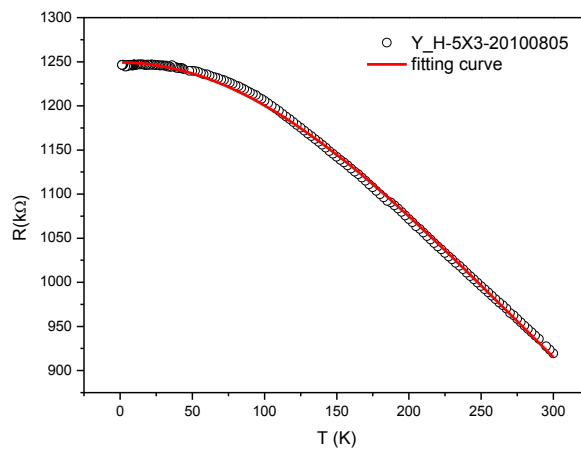
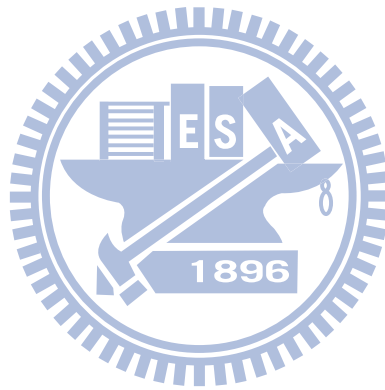


圖 4-2-18 樣品 Y_H 電阻與溫度的關係圖。(實線為 Simmons model 擬合的結果)

這節的結論是:由圖 4-2-15 和圖 4-2-16 知, $\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Al}$ 和 $\text{Al}/\text{AlO}_x/\text{Y}$ 穿隧接點(接點電阻率較高的樣品)電阻隨溫度變化的趨勢是一樣的,此點說明了使用鋁或鈮當電極都不影響我的研究。接點電阻率(specific contact resistivity)較小的穿隧接點(微米尺寸),其氧化層較薄,電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積),與 FIT model 的穿隧機制相近,並且發現可以成功用 FIT model 描述 Y_I, Y_J 數據(這裡使用的製程方法使此種情況出現機率很低);接點電阻率較大的穿隧接點(微米尺寸),電極和電極間有層很薄的絕緣層隔絕著(穿隧面積約等於接點面積),穿隧不受熱擾動影響,與 Simmons model 的穿隧機制相近,且可以用 Simmons model 分析 Y_D, Y_F, Y_H 數據(這裡使用的製程方法使此種情況出現機率高)。



4-3 鉻/金/氧化鋁/鉻/金(Cr/Au/AlOx/Cr/Au)穿隧接點特性

由於 4-2 節的結論和 P. Sheng 等人在 2009 年發表的論文(如圖 4-2-11)，我們知道 FIT model 的穿隧機制為穿隧接面的面積很小(電容值極小)使得此壓差

($V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$)變得不可忽略。我們知道 Al/AlOx/Y 穿隧接點極少出現此情況，又知道 FIT model 可以成功解釋鉻金電極和金屬性奈米線的接點[2]，其金屬性奈米線表面覆蓋著一層薄絕緣體，所以我們想模仿鉻金電極跨越上金屬性奈米線的系統，於是利用兩次電子束微影製作出 Cr/Au/AlOx/Cr/Au 穿隧接點(如圖 4-3-1)，接點面積為微米尺寸，其中鋁厚度為 40 Å~150 Å，並在大氣中自然氧化一天。由於製程的關係，此樣品第一層電極側邊沒有氧化層，我們並且發現調控第二層電極蒸鍍的方向可避免側邊的漏電。

當鋁的厚度增加時，接點電阻就愈大(Al: 70 Å → 150 Å，接點電阻: 30 kΩ → 2 MΩ。鋁厚度 150 Å，接面面積 25 μm²的接點電阻大約是 MΩ 等級，接面面積 0.5 μm²的接點電阻大約是 100 MΩ 等級);若沒有鍍鋁(Cr/Au/Cr/Au)，則樣品會短路，此點說明電子是經由氧化層穿隧到另一電極。



圖 4-3-1 Cr/Au/AlOx/Cr/Au 穿隧接點的側視圖。

4-3-1 樣品資訊及實驗數據

	電極厚度條件(Å) 第一層/第二層	鋁厚度 (Å)	接點面積 (μm^2)	室溫電阻 (K Ω)	ρ_c (300K) (K $\Omega \mu\text{m}^2$)
2c	鉻(100) 金(200) 鉻(100) 金(600)	40	0.4	5.5	2.2
11a	鉻(100) 金(200) 鉻(100) 金(600)	60	1	2.58	2.58
15b	鉻(100) 金(200) 鉻(100) 金(600)	50	0.7	2.5	1.75
22d	鉻(50) 金(200) 鉻(50) 金(650)	60	0.5	13.29	6.65
31g_1	鉻(50) 金(200) 鉻(50) 金(650)	70	25	33	825
31g_3	鉻(50) 金(200) 鉻(50) 金(650)	70	25	40	1000
32g_2	鉻(50) 金(200) 鉻(50) 金(650)	150	25	2000	50000

表 4-3-1 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 樣品資訊。(鉻是金和二氧化矽基板的黏著層)

$$\rho_c = R_c \times A$$

我們猜測:當鋁厚度 40 Å 時,氧化層較薄,接點電阻率(specific contact resistivity)較小,雖然使它在大氣中自然氧化一天,但因蒸鍍電極時金屬就像球狀一樣堆積上去基板,使得電極表面凹凸不平,加上我們強迫使氧化鋁最多只有 40 Å,因此兩電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積),電子會在電極間最靠近的區域穿隧;當鋁厚度 150 Å 時,氧化層較厚,接點電阻率較大,氧化鋁最多會有 150 Å,因此第一層電極和第二層電極有一層薄絕緣層隔絕。

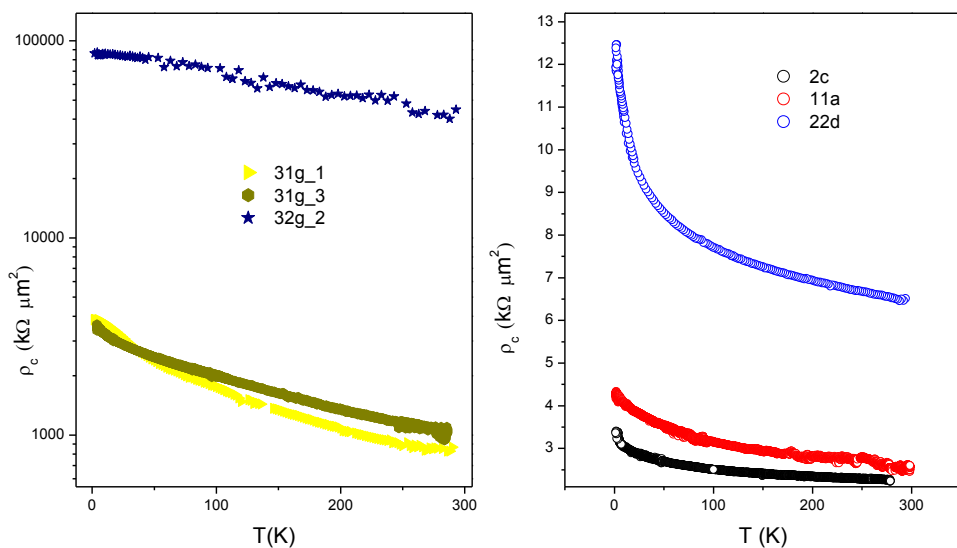


圖 4-3-2 Cr/Au/AlOx/Cr/Au 穿隧接點 $\log \rho_c - T$ 圖。從這個圖可以發現室溫接點電阻率較小的樣品(2c, 11a, 22d, 31g_1, 31g_3)與室溫接點電阻率較大的樣品(32g_2)，其兩者隨溫度變化的趨勢是不同的。

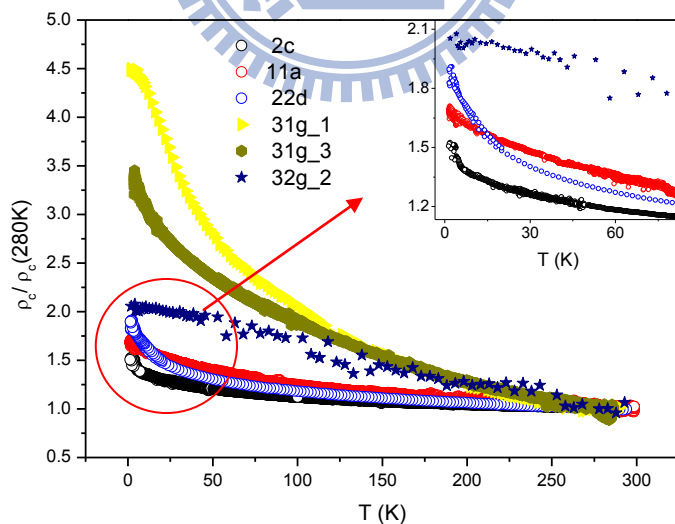


圖 4-3-3 Cr/Au/AlOx/Cr/Au 穿隧接點歸一化的接點電阻率對溫度的關係圖。從這個圖可以看出兩種不同的隨溫度變化的趨勢(32g_2 樣品與其它樣品隨溫度變化的趨勢不同)。

4-3-2 實驗數據分析及討論

熱擾動致發之穿隧效應(FIT model)

我們猜測室溫接點電阻率較小的穿隧接點因氧化層較薄且蒸鍍後電極表面不平整，兩電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積)，電子會在此穿隧，與 FIT model 的穿隧機制相符合，所以利用 FIT model (第二章理論 2.53 式) 分析這些樣品電阻隨溫度變化的關係，並且可以成功描述這些數據(如圖 4-3-4 和圖 4-3-5)。

$$R(T) = R_{\infty} \exp\left(\frac{T_1}{T_0 + T}\right) \quad (2.53)$$

$$T_1 = \frac{8\varepsilon_0}{e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^2}{w} \right) \quad (2.54)$$

$$T_0 = \frac{16\varepsilon_0 \hbar}{\pi(2m)^{1/2} e^2 k_B} \left(\frac{AV_0^{3/2}}{w^2} \right) \quad (2.55)$$

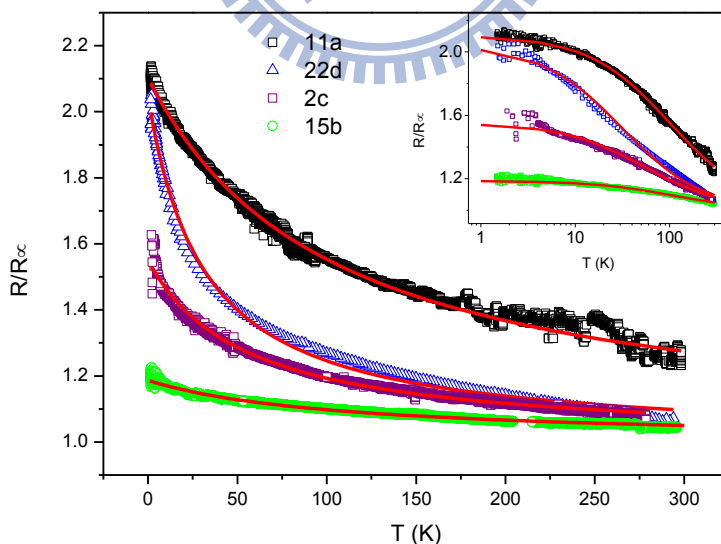


圖 4-3-4 樣品 2c, 11a, 15b, 22d 歸一化的電阻與溫度的關係圖。實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果。小圖為 $R-\log T$ 圖，實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果。

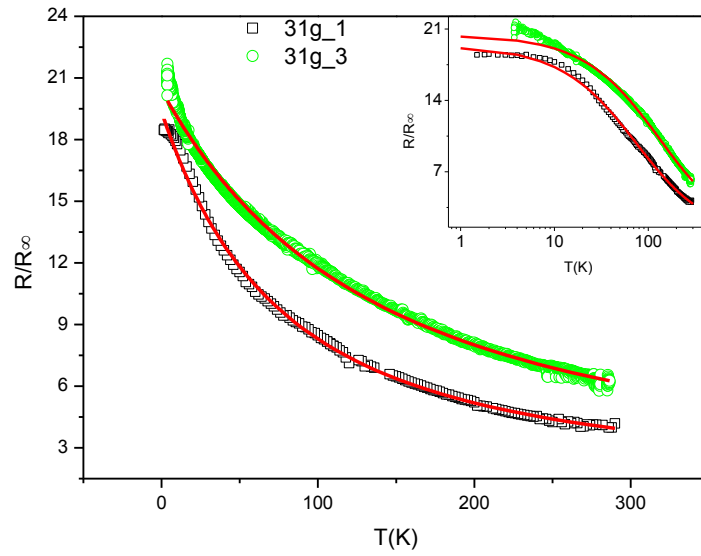


圖 4-3-5 樣品 31g_1, 31g_3 歸一化的電阻與溫度的關係圖。實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果。小圖為 $R-\log T$ 圖，實線為利用 FIT model (2.53 式) 擬合的結果。

	$R(300K)$ (k Ω)	R_{∞} (k Ω)	T_1 (K)	T_0 (K)	A (μm^2)	w (nm)	V_0 (meV)	T_1/T_0	ρ_{c0} (k $\Omega\mu\text{m}^2$)
2c	5.5	5.24	29.53	67.3	0.4	3.6	0.23	0.44	3.4
11a	2.58	2.04	104.85	142	1	5.1	0.33	0.74	4.3
15b	2.5	2.39	20.5	120	0.7	2.04	0.11	0.17	2
22d	13.29	12.4	31.74	44.35	0.5	5.48	0.26	0.72	11.9
31g_1	33	8.3	740.5	250	25	19.9	0.34	2.96	3847.5
31g_3	40	6.7	1333.6	442	25	18	0.43	3.02	3517.5

表 4-3-2 利用 FIT model 分析得到的參數。其中 A 是穿隧面積(因為我們不知道穿隧發生的實際面積，所以帶入我們設計的接點面積)， w 是位壘寬度， V_0 是位壘高度， ρ_{c0} 是溫度趨近於 0 K 的接點電阻率。

我們知道主導電導的穿隧面積並不是我們設計的接點面積，且通常是遠小於我們設計的接點面積。31g_1 與 31g_3 樣品分析出來的位壘寬度超過鋁的厚度(如表 4-3-2)，原因是我們帶入分析的穿隧面積遠大於實際的穿隧面積，若將帶入分析的穿隧面積減少，則分析出來的位壘寬度會減少，位壘高度會增加。如表 4-3-3 的討論，將穿隧面積的值減少則分析出來的位壘寬度就比較合理，這裡可以得到一個結論：主導電導的穿隧面積遠小於我們設計的接點面積，與我們猜測室溫接點電阻率較小的穿隧接點的情形(兩電極間容易形成較小的等效穿隧結)相符合。

	W	V_0
$A = 0.25 \mu\text{m}^2$	31g_1 : 8 nm	31g_1 : 2.14 meV
	31g_3 : 7.17 nm	31g_3 : 2.73 meV
$A = 0.025 \mu\text{m}^2$	31g_1 : 5 nm	31g_1 : 5.38 meV
	31g_3 : 4.53 nm	31g_3 : 6.86 meV
$A = 0.0025 \mu\text{m}^2$	31g_1 : 3.17 nm	31g_1 : 13.5 meV
	31g_3 : 2.86 nm	31g_3 : 17.23 meV

表 4-3-3 將代入分析的穿隧面積值減少所得到的位壘寬度和位壘高度

FIT model [11, 12]也解釋了在某個溫度下，外加大偏壓時電流和電壓的關係(I - V curve)非線性區域的行為： $I_h(V_h, T) = I_{h,s} \exp \left[-a(T) \left(1 - \frac{V_h}{V_{h,c}} \right)^2 \right]$ ， $|V_h| < V_{h,c}$ (2.56)

其中 h 表示在高偏壓下。飽和電流($I_{h,s}$)和臨界電壓($V_{h,c}$)是不會受溫度影響的參數， $a(T)$ 是在電流和電壓的關係(I - V curve)中主導溫度效應的參數

$$a(T) = \frac{T_1}{T_0 + T} \quad (2.57)$$

利用 2.56 式擬合某個溫度下非線性區域的 I - V curve，可得到和溫度沒關係的 $I_{h,s}$ 和 $V_{h,c}$ 參數與主導溫度效應的 a 參數，再利用 2.57 式擬合 a 隨溫度變化的關係，又可得到第二組 T_1 和 T_0 參數，因此我們可比較此組 T_1 和 T_0 參數與電阻對溫度變化的關係得到的 T_1 和 T_0 參數(表 4-3-2)。

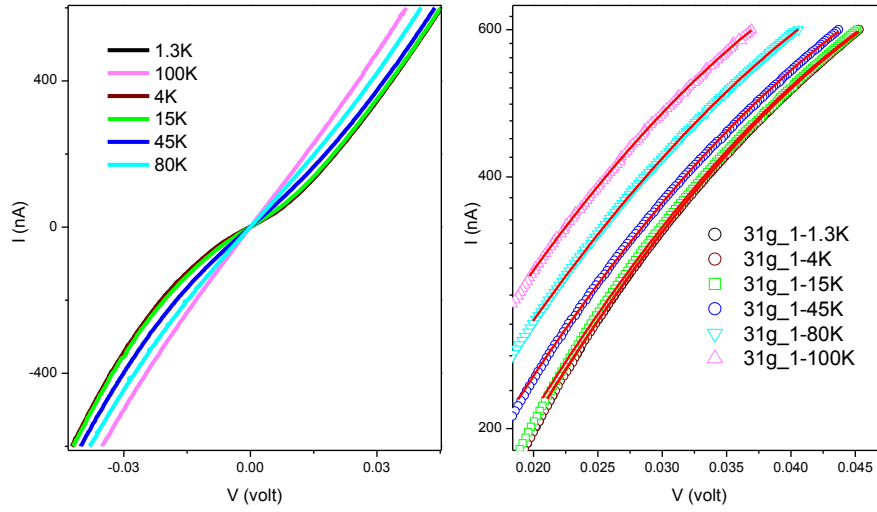


圖 4-3-6 左圖是樣品 31g_1 在不同溫度下的 I - V curves。右圖是利用 2.56 式擬合不同溫度下的 I - V curves 非線性區域的結果。

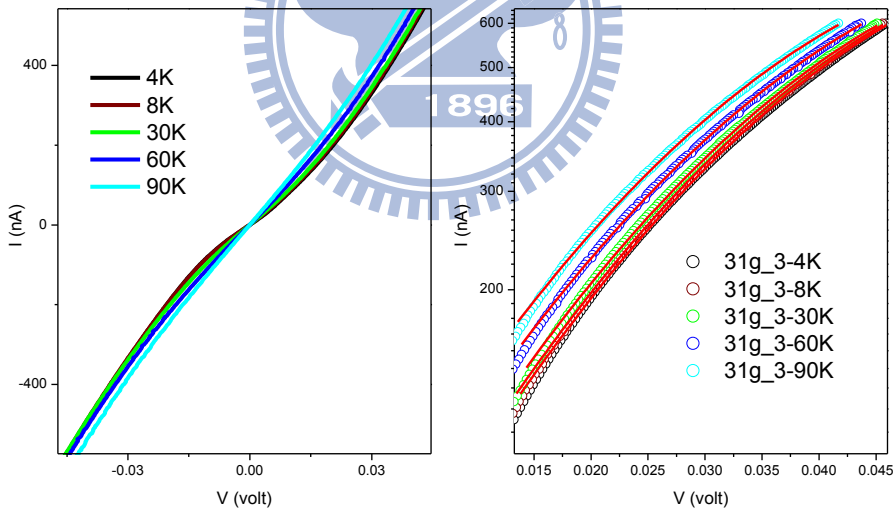


圖 4-3-7 左圖是樣品 31g_3 在不同溫度下的 I - V curves。右圖是利用 2.56 式擬合不同溫度下的 I - V curves 非線性區域的結果。

利用 2.56 式擬合某個溫度下的 I - V curves 非線性區域可得到和溫度沒關係的 $I_{h,s}$ 和 $V_{h,c}$ 參數與主導溫度效應的 a 參數(如圖 4-3-8)。

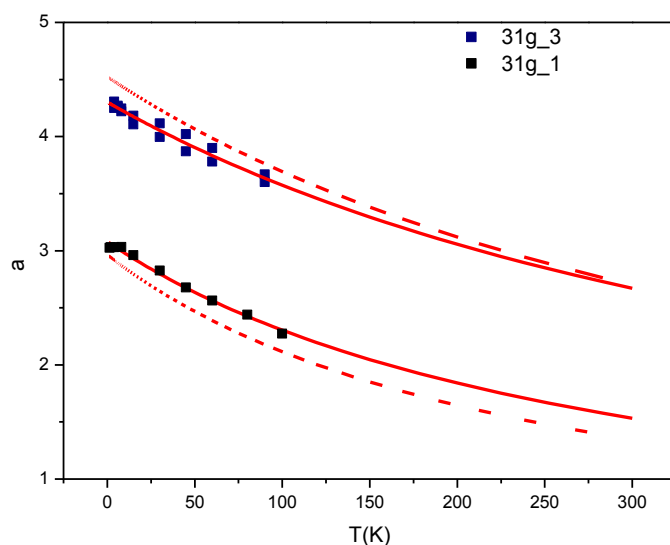


圖 4-3-8 樣品 31g_1, 31g_3 參數 a 隨溫度變化的關係圖。實線為利用 2.57 式擬合參數 a 隨溫度變化的結果; 虛線為利用 2.53 式擬合 $R(T)$ 得到的參數 T_1 和 T_0 所畫出的 $a(T)$ (其中 31g_3 樣品平移了 1.5 倍)。

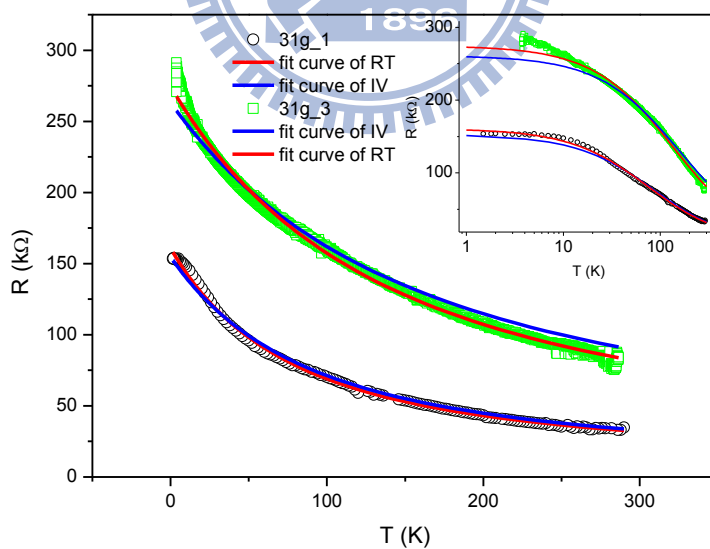


圖 4-3-9 樣品 31g_1, 31g_3 電阻隨溫度變化的關係圖。紅線為利用 2.53 式擬合的結果; 藍線為 2.57 式得到的 T_1 和 T_0 值帶入 2.53 式擬合的結果 (其中 31g_3 樣品平移了 2 倍)。

	Method	$R(300K)$ (k Ω)	R_{∞} (k Ω)	T_1 (K)	T_0 (K)	T_1/T_0
31g_1	$R(T)$	33	8.3	740.5	250	2.96
	$I_h(V_h)$		7.1	915.6	297.4	3.08
31g_3	$R(T)$	40	6.7	1333.6	442	3
	$I_h(V_h)$		7.48	1408	491	2.87

表 4-3-4 利用 FIT model 分析不同溫度下 I - V curves 線性區域和非線性區域的結果比較。

FIT theory 可以經由兩種方法分析來驗證這個理論的一致性：第一種方法是分析 I - V curves 中的線性區域，利用 2.53 式擬合電阻(I - V curve 線性歐姆區)與溫度的關係得到第一組 T_1 和 T_0 參數;第二種方法是分析 I - V curves 中的非線性區域，也就是利用 2.56 式擬合某個溫度之 I - V curve 的非線性區域可得到參數 $a(T)$ ，然後利用 2.57 式擬合 a 隨溫度變化的關係可得到第二組 T_1 和 T_0 參數。如表 4-3-4，利用 FIT theory 的兩種方法分析，分析後的結果是一樣的，因此更加證明 FIT model 可成功描述我的數據。其它樣品沒有用此兩種方法分析比較，是因為有些樣品沒有量外加大偏壓下的 I - V curves，有些樣品到了低溫，電阻還是很小，電流要加到~100 μ A， I - V curve 才會稍微出現非線性的行為(非線性區域很少)，所以僅有 31g_1 與 31g_3 樣品有此兩種分析方法的比較。

Simmons model

32g_2 樣品鋁比較厚(150Å)，且接點電阻率也較大，因此我們猜測室溫接點電阻率較大的穿隧接點因氧化層較厚，電極和電極間有層薄的絕緣層隔絕著(穿隧面積約等於接點面積)，所以利用 Simmons model (第二章理論 2.39 式)分析這個樣品電阻隨溫度變化的關係，並且可以成功描述這個數據(如圖 4-3-10)。

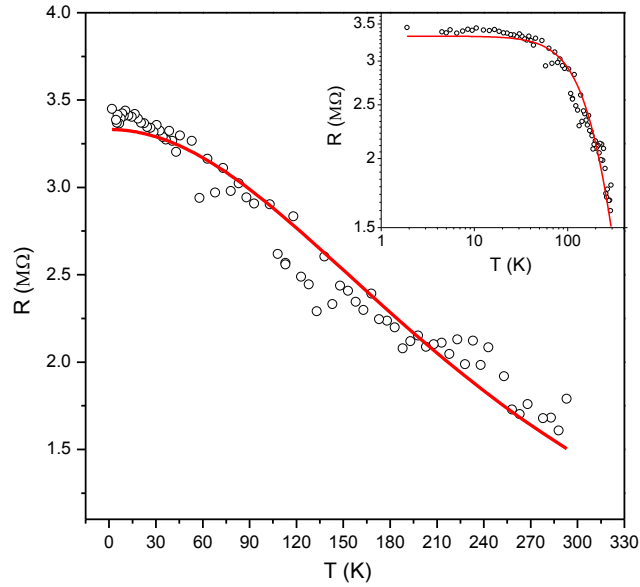


圖 4-3-10 樣品 32g_2 電阻隨溫度變化的關係圖。小圖為 $\log R$ 與 $\log T$ 的關係圖，實線為利用 Simmons model (第二章理論 2.39 式) 分析的結果。

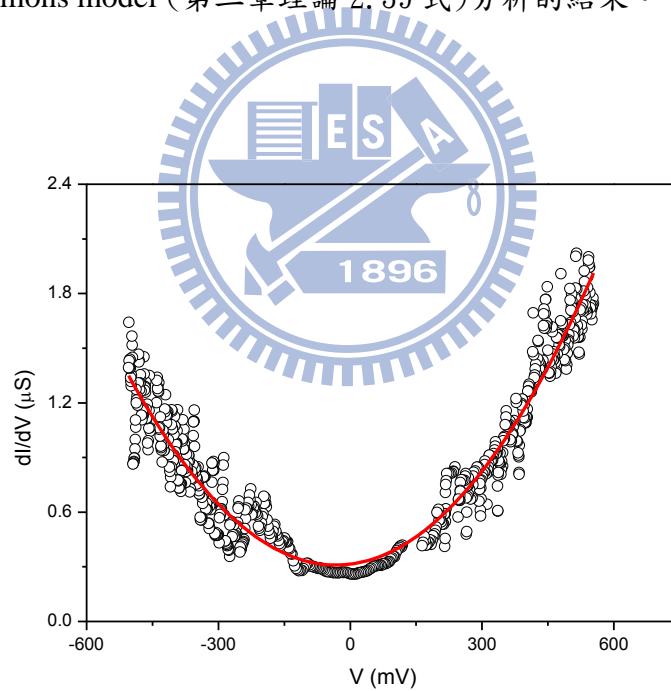


圖 4-3-11 樣品 32g_2 在 $T = 2.65$ K 的 $dI/dV - V$ 圖。圓點為實驗值，實線則是用二次多項式所擬合的曲線。利用 BDR model (2.43 式和 2.44 式) 分析後其位壘厚度 $d = 20.8 \text{ \AA}$ 、平均高度 $\bar{\phi} = 0.96 \text{ eV}$ 、高度差 $\Delta\phi = 1 \text{ eV}$ 。

圖 4-3-11 是利用 BDR model 分析位壘的寬度和高度，且分析出來的位壘寬度沒有超過鋁的厚度(150 Å)，利用 FIT model 成功分析的樣品(室溫接點電阻率較小的樣品)無法利用 BDR model 分析，其微分電導在零偏壓處有一凹陷，溫度愈低，凹陷得愈深(如圖 4-3-12)，此點更加證明了室溫接點電阻率較大的樣品和室溫接點電阻率較小的樣品行為確實是不同的。

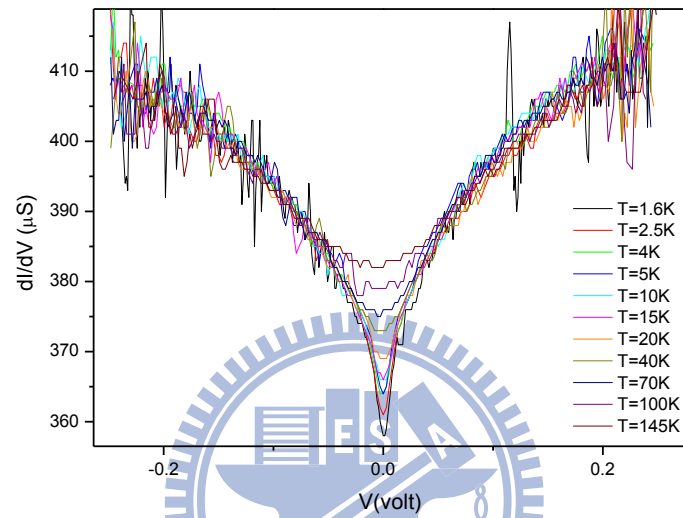


圖 4-3-12 樣品 15b 不同溫度的 $dI/dV - V$ 圖。

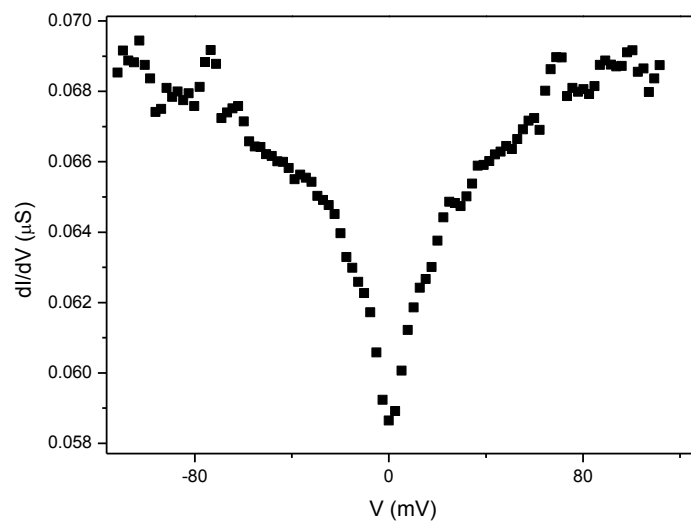


圖 4-3-13 樣品 Y_J 在 $T = 1.8 \text{ K}$ 的 $dI/dV - V$ 圖。

五、結論

不論是 Al/AlO_x/Y 或是 Cr/Au/AlO_x/Cr/Au 穿隧接點(接點面積為微米尺寸)，我們得到了一個結論：(1) 室溫接點電阻率較小的樣品，其電阻隨溫度變化的關係和大偏壓下的電流和電壓關係可以成功用 FIT model 分析；(2) 室溫接點電阻率較大的樣品，其電阻隨溫度變化的關係可以成功用 Simmons model 分析。其導致差別的原因我們猜測是氧化層的厚度所影響，氧化層若太薄，電子會在電極間最靠近的區域穿隧，則兩電極間容易形成較小的等效穿隧結(意即穿隧面積遠小於接點面積)，因為穿隧面積很小使得熱擾動造成的壓差($V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$)變得不可忽略；氧化層若較厚，則有層薄絕緣層隔絕著兩電極(意即穿隧面積等於接點面積)，因為穿隧面積不夠小使得熱擾動造成的壓差($V_{th} \approx \sqrt{k_B T / C}$)可以忽略。(3) 這兩種穿隧接點微分電導對電壓的關係圖也不同(如圖 4-3-11 和圖 4-3-12 和圖 4-3-13)。理論預測樣品在液氦溫度時，外加大偏壓下 I - V curves 會出現階梯的行為[5]，但因為我們使用直流量測的關係，使得電壓加到 0.2 V，樣品就會燒掉(無法再加更大的偏壓)，因此我們沒看到 I - V curves 出現階梯的行為，所以將來我們想使用脈衝量測的方式。

我們知道接點電阻率較小的樣品其主導電導的穿隧面積並不是我們所設計的接點面積，為了更定量的分析出位壘的寬度和高度，將來我們可以使用 two-angle evaporation technique 來製作更小面積的穿隧接點，其成長氧化層是在高真空環境中通氧氣，控制通氧量和氧化時間可以生成氧化程度不同的氧化鋁，文獻上製作微米尺寸的穿隧接點大部份都是用此製程方法，其接點面積可以製作到更小，並且能在真空環境裡製作出穿隧接點(較好控制接點電阻)，舉例來說：Al/AlO_x/Al 接點面積~0.01 μm^2 ，接點電阻~100 k Ω [15]，此樣品的接點電阻率為~1 k $\Omega\mu\text{m}^2$ 。所以未來我們努力的方向是：試著製作出更小面積(奈米等級)的穿隧接點，並且能夠控制氧化層的氧化程度，定性定量的分析位壘高度和寬度。

參考文獻

- [1] Paul A. Tipler, Ralph A. Llewellyn, *MODERN PHYSICS* (FREEMAN, 5th, 2008).
- [2] Y. H. Lin, S. P. Chiu, and J. J. Lin, *Nanotechnology* 19, 365201 (2008).
- [3] 蔡林宗, 「單根氧化鋅及鎵摻雜氧化鋅奈米線之電性傳輸研究」, 國立交通大學, 碩士論文, 民國九十九年.
- [4] 洪舜治, 「鋁/氧化鋁/鈮穿隧接點之微分電導之研究」, 國立交通大學, 碩士論文, 民國九十六年.
- [5] Hang Xie, and Ping Sheng, *Phys. Rev. B* 79, 165419 (2009).
- [6] Gu G, Burghard M, Kim G T, Düsberg G S, Chiu P W, Krstic V, Roth S and Han W Q, *J. Appl. Phys.* 90, 5747 (2001).
- [7] J. G. Simmons, *J. Appl. Phys.*, 35, 2655 (1964).
- [8] K. Gloos, R. S. Poikolainen, and J. P. Pekola, *Appl. Phys. Lett.* 77, 2915 (2000).
- [9] John G. Simmons, *J. Appl. Phys.* 34, 1793 (1963).
- [10] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, *J. Appl. Phys.* 41, 1915 (1970).
- [11] Sheng P, Sichel E K and Gittleman J I, *Phys. Rev. Lett.* 40, 1197 (1978).
- [12] Sheng P, *Phys. Rev. B* 21, 2180 (1980).
- [13] J. L. Miles and P. H. Smith, *J. Electrochem. Soc.* 110, 1240 (1963).
- [14] J. Vrba and S. B. Woods, *Canadian J. Phys.* 50, 548 (1972).
- [15] Keiji ONO, Hiroshi SHIMADA, Shun-ichi KOBAYASHI and Youiti OOTUKA, *Jpn. J. Appl. Phys.* 35, 2369 (1996).
- [16] Kim G T, Jhang S H, Park J G, Park Y W and Roth S, *Synth. Met.* 117, 123 (2001).
- [17] E. L. Wolf. *Principles of electron tunneling spectroscopy*. Oxford University Press, New York, USA, 1989.
- [18] Paschen S, Bussac M N, Zuppiroli L, Minder E and Hilti B, *J. Appl. Phys.* 78, 3230 (1995).
- [19] Ederth J, Johnsson P, Niklasson G A, Hoel A, Hultåker A, Heszler P, Granqvist C G, van Doorn A R, Jongorius M J and Burgard D, *Phys. Rev. B* 68, 155410 (2003).
- [20] Sichel E K, Sheng P, Gittleman J I and Bozowski S, *Phys. Rev. B* 24, 6131 (1981).
- [21] K Gloos, P J Koppinen and J P Pekola, *J. Phys.: Condens. Matter* 15, 1733 (2003).