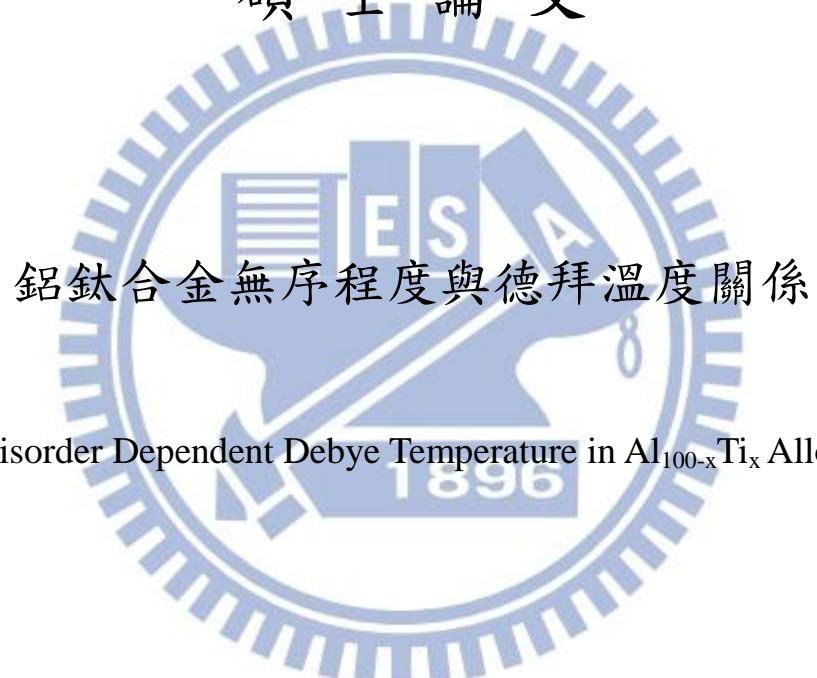


國立交通大學

電子物理研究所

碩士論文



Disorder Dependent Debye Temperature in $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ Alloy

研究生：喻祖祥

指導教授：林志忠 教授

中華民國一百零一年七月

鋁鈦合金無序程度與德拜溫度關係

Disorder Dependent Debye Temperature in $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ Alloy

研究 生：喻祖祥

Student : Tsu-Hsiang Yu

指 導 教 授：林 志 忠

Advisor : Juhn-Jong Lin



Submitted to Institute of Electrophysics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master

in

Electrophysics

July 2012

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國一百零一年七月

鋁鈦合金無序程度與德拜溫度關係

學生：喻祖祥

指導教授：林志忠 教授

國立交通大學電子物理學系碩士班

摘要

我用電弧爐製作了一系列無序系統的塊材 $Al_{100-x}Ti_x$ 樣品，其 x 的範圍由 0 至 5。在本研究中，對樣品進行電阻率量測，溫度量測範圍由 10 至 500 K。結果顯示，樣品的室溫電阻率 $\rho(300K)$ 由 $2.7 \mu\Omega cm$ (純鋁) 提升至 $4.7 \mu\Omega cm$ (摻雜 5% 鈦的鋁鈦合金)。

再將實驗結果與 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference 兩個模型擬合，獲得 Debye 溫度由 425 降至 364 K。此外，我們觀察到在高溫時，樣品之電阻率可由 Bloch-Grüneisen 模型完整描述；在低溫時，electron-phonon-impurity interference 所貢獻的電阻率，因無序程度的增加而增強。

Disorder Dependent Debye Temperature In $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ Alloy

Student : Tsu-Hsiang Yu

Advisor : Prof. Juhn-Jong Lin

Institute of Electrophysics
National Chiao Tung University

ABSTRACT

We have prepared a series of disorder system sample which are $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ bulks with x varying from 0 to 5 by a standard arc-melting method. The resistivities of these bulks were measured from 10 to 500 K. The room temperature resistivities $\rho(300K)$ for our samples vary from $2.7 \mu\Omega\text{ cm}$ (pure) to $4.7 \mu\Omega\text{ cm}$ (5% doped).

Comparing our measured results with Bloch-Grüneisen and electron-phonon-impurity interference theories, we have extracted Debye temperature from 425 down to 364 K. The measured resistances are well described by the Bloch-Grüneisen law between 100 and 500 K. In low temperature regime, leading to disordered, the electron-phonon-impurity interference effect contributes significantly to the measured resistivities.

誌 謝

兩年的時間，一眨眼就過了，在這實驗室有著許許多多的酸甜苦辣，我收穫了很多。

首先，我要先感謝我的家人，是他們的打氣以及支持下，讓我沒有後顧之憂地完成學業。

感謝林志忠老師，老師帶領我進入低溫實驗領域，並且提供豐富的實驗資源，讓我如期完成我的實驗。

感謝吳至原老師，老師這兩年的教導，讓我在低溫物理有著更深入的了解，並且讓我學到甚麼是做一件事情。謝謝林永翰學長、葉勝玄學長、邱劭斌學長、賴佑仁學長，學長們除了要忙自己的實驗還需要解決我們的物理上與實驗上的疑惑。謝謝李康康，從我大學時代被我煩到現在。感謝一起研究的夥伴：徐維哲，黃中熙，林佩蓉，在實驗室中一起抱怨一起努力一起奮鬥！！有你們在讓實驗不再煩悶。中哥以及佩蓉祝福你們工作順利！！

感謝學弟們，你們的到來讓我們輕鬆了許多，也多了些歡樂。祝福你們順利畢業。最後謝謝口試委員仲崇厚老師、孟心飛老師，吳至原老師，所提供的寶貴意見。

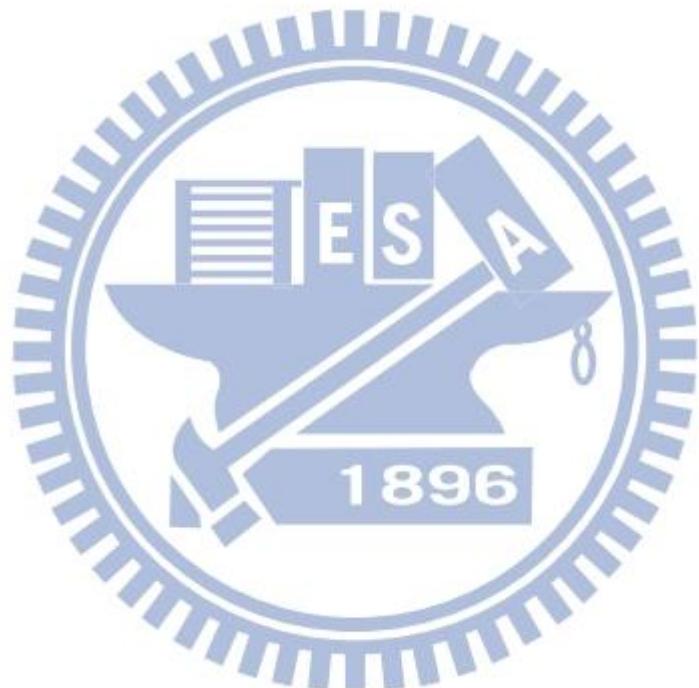


目錄

頁次

中文摘要	i
英文摘要	ii
誌謝	iii
目錄	iv
圖目錄	vi
表目錄	vii
本文架構	x
第一章	緒論	1
第二章	理論模型	2
2-1	理想晶格時電阻隨溫度的關係	2
2-2	古典分布	3
2-3	電導率	5
2-4	Matthiessen's 規則	5
2-5	Debye 模型的能態密度	6
2-6	Bloch-Grüneisen 模型	8
2-7	電子-聲子雜質干涉	10
第三章	實驗方法及儀器原理	11
3-1	實驗方法	11
3-1-1	樣品製作與量測前置作業	11
3-1-2	使用 LABVIEW 程式控制做 500 K 至 10 K 四接點變溫電阻量測	12
3-2	儀器原理與操作方法	13
3-2-1	電弧爐 (Arc-melting furnace)	13
3-2-2	封閉循環致冷機	15
3-3	電阻量測-兩點量測與四點量測	18
3-3-1	兩點量測	18
3-3-2	四點量測	19
第四章	實驗結果與數據分析討論	20
4-1	樣品資訊	20
4-2	實驗結果	22

4-3	實驗參數討論.....	27
4-4	電阻率隨溫度變化關係.....	32
第五章	結論.....	34
參考文獻	35
附錄一	37
附錄二	38



表目錄

頁次

表 4.1	實驗擬合參數值	26
-------	---------	----

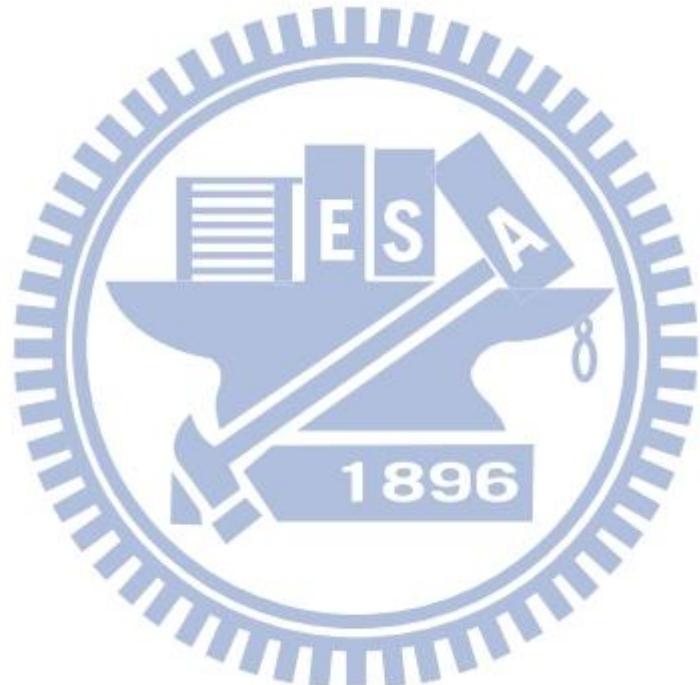
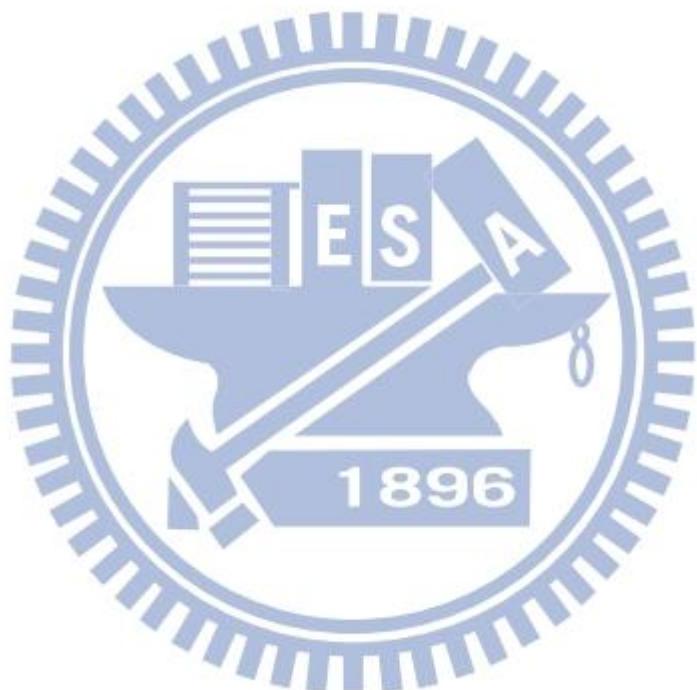


圖 目 錄

頁 次

圖 2.1	一般週期性晶格系統金屬之電阻率對溫度關係.....	9
圖 3.1	電弧爐示意圖.....	14
圖 3.2	AlTi 1%EDS-Mapping 圖，白色點為鈦黑色底為鋁，放大倍率 20 倍.....	14
圖 3.3	封閉循環致冷機原理示意圖.....	16
圖 3.4	封閉循環製冷機冷頭結構圖.....	16
圖 3.5	封閉循環製冷機的外部結構圖.....	17
圖 3.6	兩點量測除示意圖.....	18
圖 3.7	四點量測示意圖.....	19
圖 4.1a	AlTi 電阻率 ρ 與溫度關係線性圖.....	21
圖 4.1b	AlTi 電阻率 ρ 與溫度關係對數圖.....	21
圖 4.2	圖 4.2 鈦參雜濃度對電阻率關係圖.....	21
圖 4.3a	樣品 Al 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	23
圖 4.3b	樣品 AlTi 0.5% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	24
圖 4.3c	樣品 AlTi 1% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	24
圖 4.3d	樣品 AlTi 2% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	25
圖 4.3e	樣品 AlTi 3% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	25
圖 4.3f	樣品 AlTi 5% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果.....	25

的結果.....	26
圖 4.4 殘餘電阻率 ρ_0 與 Debye 溫度 θ_D 關係圖.....	29
圖 4.5 Debye 溫度 θ_D 與 β_{BG} 關係圖.....	30
圖 4.6 殘餘電阻率 ρ_0 與 β_{BG} 關係圖.....	30
圖 4.7 Debye 溫度 θ_D 與 β_{int} 關係圖.....	31
圖 4.8 電阻率 ρ 與溫度 T 關係圖.....	32
圖 A1 AlTi 相圖.....	37
圖 A2 二塊純鋁樣品電阻率隨溫度變化關係.....	38
圖 A3 二塊摻雜 0.5% 鈦之鋁鈦合金電阻率隨溫度變化關係.....	38



本文架構:

第一章 緒論

簡介一般金屬電阻率隨溫度變化的關係，並由一些文獻探討，了解 Debye 溫度的變化，以及說明此研究的重點。

第二章 理論模型

簡介理想晶格時電阻隨溫度的關係，並由古典分布得出電導率，而後介紹 Debye 模型，與本實驗所使用的 Bloch- Grüneisen 理論，以及 electron-phonon-impurity interference 效應。

第三章 實驗方法及儀器原理

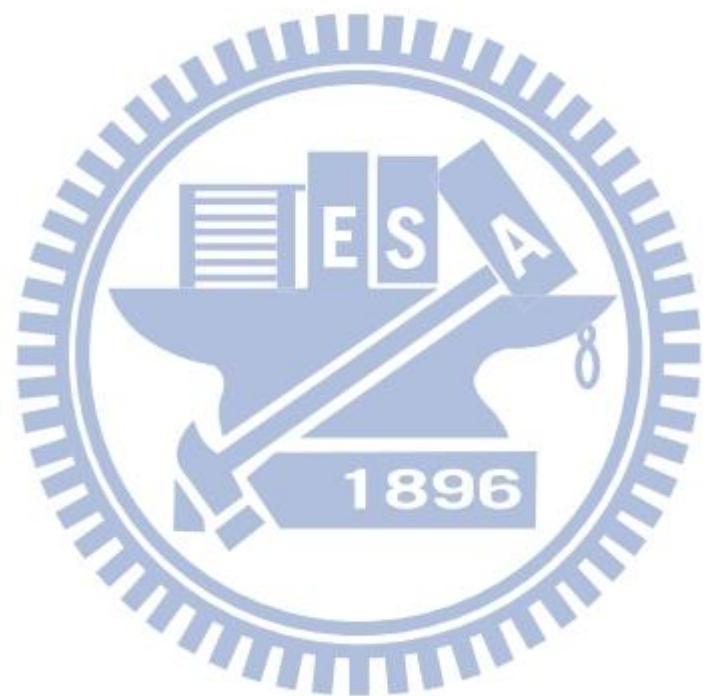
簡介如何運用電弧爐製作樣品及其原理、實驗上如何使用閉路式循環製冷機，做低溫小訊號精密量測。

第四章 實驗結果與數據分析討論

呈現鋁鈦合金樣品電阻率對溫度的關係，並由 Bloch- Grüneisen 理論及 electron-phonon-impurity interference 效應分析實驗數據。指出無序系統的無序程度對 Debye 溫度的影響，並觀察此兩種模型，在低溫時的關係。

第五章 結論

對整份論文做一個總結。



第一章、緒論

一般金屬的電阻率會隨溫度而改變，但是很難被定量分析。在純金屬中，電阻率由電子散射而來的殘餘電阻率 ρ_0 及由晶格(聲子)振動散射形成隨溫度變化的電阻率 $\rho(T)$ 兩項組成。晶格振動對電阻率的貢獻可由 Bloch- Grüneisen 理論預測，該項以 $\rho_{BG}(T)$ 表示。在 Matthiessen 的規則中[1]，這兩項所貢獻的電阻率互相獨立，因此可以寫下 $\rho(T) = \rho_0 + \rho_{BG}(T)$ 。但在真實導體中，Matthiessen 規則產生了一些偏差[2]。這些偏差是由於，彈性電子散射和電子聲子散射相互干擾[2]，會對電阻率造成額外的貢獻。這種貢獻稱之為 electron-phonon-impurity interference 效應，當溫度低於 0.1 Debye 溫度時，此種效應主導可能會超過 Bloch- Grüneisen 項。在無序系統中量測到的電阻率則可改寫成 $\rho(T) = \rho_0 + \rho_{BG}(T) + \rho_{int}(T)$ [5] 其中 $\rho_{int}(T)$ 為 electron-phonon-impurity interference 效應。

Debye 溫度由聲子的色散關係 (phonon-dispersion) 決定，一般認為聲子的色散關係若無太大改變，則 Debye 溫度不會改變。但曾有研究[3]顯示，Debye 溫度會隨電阻率改變而改變，作者使用 99.999 % 的鋁製作成的鋁薄膜(顆粒直徑 200Å)作實驗，Debye 溫度隨電阻率增加而上升。另一文獻[4]藉由量測鋁薄膜的熱容，得到其樣品 Debye 溫度，研究中製作純鋁的顆粒狀薄膜，因此有部份鋁氧化成三氧化二鋁，隨著三氧化二鋁的成分逐漸增加，Debye 溫度亦會有大幅改變 ($\theta_D=400 \sim 300$ K)。

鈦和鋁兩者的 Debye 溫度相當接近(鈦: $\theta_D=420$ K；鋁: $\theta_D=428$ K)[1]，因此在鋁金屬中摻雜極少量的鈦金屬，使鈦能均勻地分佈在鋁金屬中，如此形成的鋁鈦合金之晶體結構將與純鋁的晶體結構非常接近。所以可預期在純鋁中摻雜少量的鈦時，將不致大幅地改變聲子的色散關係 (phonon-dispersion)，同時其 Debye 溫度也將不致有太大的改變，因此我們選用鋁鈦合金作為實驗用的樣品。此篇研究重點分兩部份，其一在藉由摻雜雜質(鈦)，改變鋁鈦合金的無序程度，量測其電性，並藉由擬合觀察 Debye 溫度的變化；另一方面觀察低溫時，隨著無序程度增加，由 electron-phonon-impurity interference 效應主導的電阻率，將逐漸增強，超過 Bloch- Grüneisen 所主導的電阻率。

二、理論模型

2-1 理想晶格時電阻隨溫度的關係

最簡單的電子在固體中行為模型-自由電子氣模型，古典的傳輸過程是架構在波茲曼方程式下(Boltzmann transport equation)[1]，我們用直角坐標 \vec{r} 與速度 \vec{v} 六維空間來處理，古典分布函數 $f(r, v)$ 定義為下：

$$f(r, v) dr dv = \text{在 } dr dv \text{ 空間內的粒子數} \quad (2-1)$$

我們考慮一時間位移 dt 對分布函數的影響。由古典力學的 Liouville 定理得知，若依循一個體積元素沿著流線，分布函數是守恆的：

$$f(t + dt, r + dr, v + dv) = f(t, r, v) \quad (2-2)$$

此為粒子無碰撞情況下，有碰撞時為

$$f(t + dt, r + dr, v + dv) - f(t, r, v) = dt \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} \quad (2-3)$$

因此

$$dt \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_l + dr \cdot \text{grad}_r f + dv \cdot \text{grad}_v f = dt \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} \quad (2-4)$$

假設 a 表示加速度 dv/dt ，則

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_l + v \cdot \text{grad}_r f + a \cdot \text{grad}_v f = \left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} \quad (2-5)$$

此即為波茲曼傳輸方程。

在許多問題中，此碰撞項 $\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll}$ 可以引入鬆弛時間(relaxation time) $\tau_c(r, v)$ 來處理，其由下式定義

$$\left(\frac{\partial f}{\partial t} \right)_{coll} = \frac{-(f - f_0)}{\tau_c} \quad (2-6)$$

此處 f_0 為熱平衡分布函數。假設速度的非平衡分布是由突然移開的外力所建立，分布趨向平衡的衰減則可獲得

$$\frac{\partial \left(\frac{f}{f_0} \right)}{\partial t} = - \frac{(f - f_0)}{\tau_c} \quad (2-7)$$

若平衡溫度的定義 $\frac{\partial f}{\partial t} = 0$ 此方程式具有如下之解

$$(f - f_0)_t = (f - f_0)_{t=0} \exp(-t/\tau_c) \quad (2-8)$$

結合式(2-1)、式(2-5)與式(2-6)可得鬆弛時間近似下的波茲曼傳輸程式

$$(\frac{\partial f}{\partial t})_l + \nu \cdot \text{grad}_r f + a \cdot \text{grad}_v f = -\frac{f - f_0}{\tau_c} \quad (2-9)$$

2-2 古典分布[1]

假設 f_0 為古典極限下的分布函數：

$$f_0 = \exp[\frac{\{\mu - \epsilon\}}{\tau}] \quad (2-10)$$

μ 為化學位能、 ϵ 為能量態；因為傳輸方程式對 f 和 f_0 為線性關係，我們可以選擇方便歸一的分布函數。

$$\frac{df_0}{dx} = \left(\frac{df_0}{d\mu}\right) \left(\frac{d\mu}{dx}\right) = \left(\frac{f_0}{\tau}\right) \left(\frac{d\mu}{dx}\right) \quad (2-11)$$

考慮一個具有粒子濃度梯度的等溫系統，則式(2-9)為：

$$\nu_x \frac{df}{dx} = -(f - f_0)/\tau_c \quad (2-12)$$

其中非平衡分布函數 f 沿著 x 方向變化，寫出式(2-12)至第一階

$$f_1 = f_0 - \nu_x \tau_c \frac{df_0}{dx} \quad (2-13)$$

在 x 方向的粒子通量密度為

$$J_n^x = \int \nu_x f D(\epsilon) d\epsilon \quad (2-14)$$

其中 $D(\epsilon)$ 為每單位面積、每單位能量範圍的電子態密度：

$$D(\epsilon) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2M}{\hbar^2}\right)^{2/3} \epsilon^{1/2} \quad (2-15)$$

因此式(2-14)改寫為

$$J_n^x = \int \nu_x f_0 D(\epsilon) d\epsilon - \left(\frac{d\mu}{dx}\right) \int (\nu_x^2 \tau_c^2 f_0 / \tau) D(\epsilon) d\epsilon \quad (2-16)$$

由於 ν_x 為奇函數而 f_0 是 ν_x 的偶函數，因此第一項積分為零。這正時平衡分不 f_0 地淨粒子通量為零。

我們假設 τ_c 是常數，與速度無關； τ_c 可以提出積分外：

$$J_n^x = - \left(\frac{d\mu}{dx} \right) \left(\tau_c / \tau \right) \int (v_x^2 f_0) D(\varepsilon) d\varepsilon \quad (2-17)$$

此積分與粒子的動能密度 $\frac{3}{2} n \tau$ 有關，故可寫成

$$\frac{1}{3} \int (v^2 f_0) D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{2}{3M} \int \left(\frac{1}{2} M v^2 \right) f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{n \tau}{M} \quad (2-18)$$

已知 $\mu = \tau \log n + \text{常數}$ ，則粒子的通量密度為

$$J_n^x = - \left(\frac{n \tau_c}{M} \right) \left(\frac{d\mu}{dx} \right) = - \left(\frac{\tau \tau_c}{M} \right) \left(\frac{dn}{dx} \right) \quad (2-19)$$

上式的結果即為擴散方程式的形式，其擴散速率是

$$D_n = \tau_c \tau / M = \frac{1}{3} \langle v^2 \rangle \tau_c \quad (2-20)$$

這邊假設鬆弛時間與速度成反比，如 $\tau_c = l/v$ ，其中平均自由徑 l 為常數。帶入式(2-17)

得

$$J_n^x = - \left(\frac{d\mu}{dx} \right) (l / \tau) \int (v_x^2 / v) f_0 D(\varepsilon) d\varepsilon \quad (2-21)$$

可以將式(2-21)的積分可寫成

$$\frac{1}{3} \int (v f_0) D(\varepsilon) d\varepsilon = \frac{1}{3} n \bar{c} \quad (2-22)$$

其中 \bar{c} 為平均速率，因此

$$J_n^x = - \frac{1}{3} (n \bar{c} l / \tau) (d\mu / dx) = - \frac{1}{3} l \bar{c} (dn / dx) \quad (2-23)$$

擴散速率為

$$D_n = \frac{1}{3} l \bar{c} \quad (2-24)$$

2-3 電導率

我們可以由粒子擴散速率的結果得到電導率 σ ，當我們對粒子通量密度乘上粒子電荷 q ，且以外在的位能梯度 $qd\varphi/dx = -qE_x$ 取代化學式 $d\mu/dx$ ，其中 E_x 為電場 x 分量的強度。

由式(2-19)可知，對鬆弛時間 τ_c 的古典氣體，其電流密度為

$$J_q = (nq^2\tau_c/m)E$$

$$\sigma = nq^2\tau_c/m$$

σ 定義為電導率，而電導率與電阻率成反比，故電阻率為

$$\rho = m/nq^2\tau_c$$

故可用波茲曼方程來描述一導體材料之電阻率。

2-4 Matthiessen's rule

有兩個物理上可分辨的散射來源(例如，被雜質散射)，如果一個機制不會被其他的機制影響，那麼全部的碰撞率 W 會是加總個別機制的碰撞率：

$$W = W^{(1)} + W^{(2)} \quad (2-25)$$

意味著 relaxation-time 近似為

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau^{(1)}} + \frac{1}{\tau^{(2)}} \quad (2-26)$$

假設每個機制波向量 K 與 relaxation time 獨立，因為電阻率正比於 $1/\tau$ ，可以得到：

$$\rho = \frac{m}{ne^2\tau} = \rho^{(1)} + \rho^{(2)} \quad (2-27)$$

這樣幾個不同散射機制展現在電阻率上只是相加個別的電阻率。

2-5 Debye model 的能態密度[1]

在 Debye model 近似下，無論何種偏振類型，其聲速皆為常數 u ，故其色散關係可表示成

$$\omega = u K \quad (2-28)$$

其能態密度則會表示成

$$D(w) = \frac{V\omega^2}{2\pi^2 u^3} \quad (2-29)$$

首先假設樣品中的 primitive cell 有 N 個，則聲頻聲子的總數目為 N ，截止頻率 ω_D 則可利用下式導出

$$N = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \left(\frac{4\pi K^3}{3}\right) \quad (2-30)$$

則截止頻率 ω_D 為

$$\omega_D^3 = \frac{6\pi^2 u^3 N}{V} \quad (2-31)$$

將式(2-28)改寫成

$$\omega_D = u K_D \quad (2-32)$$

此時 ω_D 的截止波向量 K_D 為

$$K_D = \frac{\omega_D}{u} = \left(\frac{6\pi^2 N}{V}\right)^{\frac{1}{3}} \quad (2-33)$$

又因為在 Debye model 情況之下波向量必須小於截止波向量 K_D ，因此在單原子的晶格中，小於截止波向量的 K 將會佔盡所有的自由度。

對於每一個偏振方向的熱能為

$$U = \int d\omega D(\omega) \langle n(\omega) \rangle \hbar\omega = \int_0^{\omega_D} d\omega \left(\frac{V\omega^2}{2\pi^2 u^3} \right) \left(\frac{\hbar\omega}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} \right) \quad (2-34)$$

再來我們假設聲子速度與偏振方向無關，可得到總能量為

$$U = \frac{3V\hbar}{2\pi^2 u^3} \int_0^{\omega_D} d\omega \frac{\omega^3}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} = \frac{3Vk_B^4 T^4}{2\pi^2 u^3 \hbar^3} \int_0^{x_D} dx \frac{x^3}{e^x - 1} \quad (2-35)$$

接著令

$$x \equiv \frac{\hbar\omega}{\tau} \equiv \frac{\hbar\omega}{k_B T} \quad (2-36)$$

$$x_D \equiv \frac{\hbar\omega_D}{k_B T} \equiv \frac{\theta_D}{T} \quad (2-37)$$

最後，將我們將定義 Debye 溫度 θ 為

$$\theta_D = \frac{\hbar u}{k_B} \left(\frac{6\pi^2 N}{V} \right)^{1/3} \quad (2-38)$$

且聲子的總能量 U 為

$$U = 9Nk_B T \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{x_D} dx \frac{x^3}{e^x - 1} \quad (2-39)$$

2-6 Bloch-Grüneisen 模型

一般金屬並非完美晶格，電子運動時，除了與聲子間交互作用，亦會受到雜質散射使致電阻率變化。Bloch由波茲曼方程出發假設純金屬中原子的類位能(pseudopotential)是一常數，晶格震盪遵循Debye model 且忽略聲子的倒逆散射，因此只考慮電子與縱向聲子的耦合，利用變分法的最低階近似，推導出 Bloch-Grüneisen formula:

$$\rho_{BG}(T) = \frac{c}{\theta_D} T \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} \quad (2-40)$$

其中 $x = \frac{\hbar\omega_D}{k_B T}$ ， ω_D 為 Debye frequency， C 為一常數， θ_D 德拜溫度(Debye temperature)，

而 Debye 溫度相當於聲子擁有最大能量相對應的溫度；在較高溫時($T >> \theta_D$)與低溫時($T << \theta_D$)分別可近似為：

高溫近似: $\rho_{BG}(T) = \frac{c}{4} \left(\frac{T}{\theta_D^2}\right)$

低溫近似: $\rho_{BG}(T) = \frac{124.4c}{\theta_D} \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^5$

而在 Altshuler 計算在無序系統[20]中，當 $T > \frac{a}{l} \theta_D$ (a 是晶格常數)。電子-聲子散射所貢

獻的電阻率為：

$$\rho_{BG}(T) = \beta_{BG} T \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^5 dx}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} \quad (2-41)$$

其中

$$\beta_{BG} = \frac{\pi \beta_l \hbar k_B^5}{2 h p_F^4 u_l^4} \rho_0 \theta_D^4$$

β_{BG} 為為跟材料有關的參數，可表示電子-聲子交互作用的強度。 β_l 為電子與縱向聲子的耦合常數， u_l 縱向聲子的聲速，由於此式與 Bloch-Grüneisen formula 相似，因此同樣在

較高溫區域 ρ_{BG} 會與 T 成正比，較低溫的區域 ρ_{BG} 則會與 T^5 成正比，實驗中我們也可以觀

察出此特性。

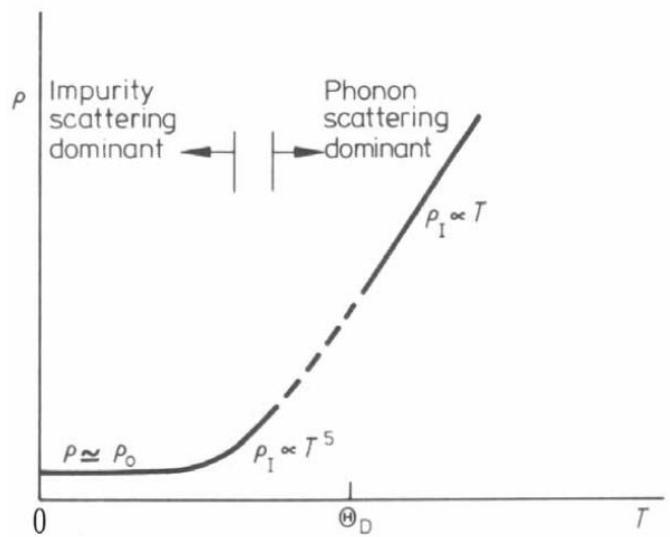


圖 2.1 一般週期性晶格系統金屬之電阻率對溫度關係



2-7 Electron-phonon impurity interference

在無序的金屬，其電子物質波會做彈性散射，另外電子物質波也會經由電子-聲子交互作用，做非彈性散射；這兩種散射的歷程，會互相干涉，這種現象稱之為 electron-phonon-impurity interference 效應，Reizer 和 Sergeev[5]考慮全部電子散射機制，然後計算干涉所貢獻的電阻率 $\rho_{int}(T)$ ，他們找到在低溫時(約 0.1 Debye 溫度)會隨著殘餘電阻率 ρ_0 和溫度的平方有關，即 $\rho_{int}(T) \propto \rho_0 T^2$ 。Reizer 和 Sergeev 的結果給出下列方程式：

$$\rho_{int} = \beta_{int} T^2 \rho_0 \left(\frac{6}{\pi^2} \right)^4 \int_0^{\theta_D} \left(\frac{x^2 e^x}{(e^x - 1)} - \frac{x}{e^x - 1} \right) dx \quad (2-42)$$

其中

$$\beta_{int} = \left[\left(2 \frac{u_l}{u_t} \right) \beta_t + \left(\frac{\pi^2}{16} - 1 \right) \beta_l \right] \frac{2\pi^2 k_B^2}{3 p_F E_F u_l} \quad (2-43)$$

式(2-43)中 $\beta_{l,t}$ 是電子與縱向和橫向聲子的偶合常數， τ 是 $1/v_F$ 為電子彈性碰撞一次的平均時間， v_F ， E_F ， p_F 分別是費米速度，費米能量和費米動量， k_B 是波茲曼常數， $u_{l,t}$ 是縱向與橫向地聲速

三、實驗方法及儀器原理

3-1 實驗方法

3-1-1 樣品製作與量測前置作業：

使用電子天平，將樣品所需的鈦金屬及鋁金屬依莫爾比配製後，依序浸泡在丙酮及酒精內，再置入超音波震盪器清洗 3 分鐘，待乾燥後再放入電弧爐腔體的樣品座上，以電弧爐鎢針所拉出來之電弧加熱二金屬熔化為液態後，將把手順時鐘轉動，並使樣品熔融均勻，待樣品冷卻後，翻面重新再熔。反覆此動作約 30 次，樣品離型完成。

將完成的樣品離型，以鑽石切割刀將樣品切成數個長條狀(其長、寬、厚度約為 15 mm、0.5 mm、0.5 mm)，再以丙酮及酒精清潔切割時所沾上的切削油，先將白金線烘烤，因為烘烤過的白金線較為柔軟，如此方便將線焊於樣品座上的接點。利用點焊機將樣品與烘烤過的白金線焊在一起做為量測導線。

量測的樣品座為無氧銅，為避免樣品座和樣品導通，樣品座與樣品溫度不一致，所以先將樣品座塗一層 GE 膠(GE varnish 擁有較高的熱導)確保導熱效果，再用捲菸紙貼上去，以保樣品與樣品座絕緣。使用 H grease 固定樣品(說明書表示 H grease 適用在 260 K~510 K，但經過本實驗反覆測量，發現當溫度降至 10 K 時，並無脫落的現象)，最後再將白金線以 GE 膠固定在樣品座上，利用焊錫使白金線與樣品座上的接腳連接，注意接腳與焊錫的接觸截面積須盡量減少，據本實驗數 10 次的量測，若焊錫太多(球型直徑約 0.1 cm)，在高溫量測時，熱通量過大，會導致焊錫融化，使得白金線脫落或訊號不穩定。

3-1-2 使用 LABVIEW 程式控制做 10 至 500 K 四接點變溫電阻量測：

我們先將電流源 Keithly Model 224 與電壓計 Keithly Model 182 打開，做暖機的動作（約 1~2 小時），為了量測順利，先「確認樣品室溫電阻率」：利用四點量測方式，觀察待測樣品室溫電阻，若量測電壓小於 $1 \mu V$ 則當溫度下降至低溫時訊號極小，難以量測。因此，需將樣品取下，再用 800 號的砂紙，將樣品磨薄，（先前已確認樣品電阻率，因為室溫電阻率不會變，所以可以此確認磨薄後樣品的幾何形狀）。重新置於樣品座上進行量測。將樣品座放入閉路式循環製冷機裡，開啟機械幫浦和渦輪幫浦抽真空，使管路真空度約為 10^{-5} torr 左右。啟動閉路式循環製冷機，為了方便控溫，我們需提供熱源來平衡冷源。LackShore 331 控溫器能穩定的提供熱源(25W)[5]，我們將溫度設定於 300 K，循環製冷 30 分鐘後（確保冷頭已冷卻），再將溫度升高至 500 K，待訊號穩定後將溫控器熱源關掉使系統緩慢降溫，並開始量測。

本實驗將於 500 至 40 K 時自然降溫，40 K 後控溫量測。當系統溫度高於室溫時，因系統溫度高，外部氣體易進入腔體內，並凝結在冷頭上，故機械幫浦與渦輪式幫浦需持續運轉，以保持腔體內的真空度。當溫度低於 200 K 時須把腔體真空閥門關閉，避免溫度過低，導致腔體內壓力變小，機械幫浦油氣被倒抽回腔體，進而汙染系統。當溫度降至 40 K，此時溫度會急劇往下掉，因此我們採用控溫方式做量測，避免樣品溫度與實際溫度不同。

3-2 儀器原理與操作方法

3-2-1 電弧爐 (Arc-melting furnace)

電弧：

電弧爐內介電質為氣體型態。當氣體受到強大的外加電場作用，造成氣體游離現象，此一狀態的氣體稱為電漿態。電漿態的組成以自由電子與氣體離子為主，當自由電子與離子分別往正極與負極移動時，產生的高速電子，不斷的撞擊中性空氣分子。因此，介電質氣體在強大的電場作用力以及高速自由電子的撞擊游離之下，會形成電漿態並產生高熱。電流因為介電質成為電漿態而急速上升，此時，電漿態在電場作用下形成之電流即稱為電弧，其溫度高且電流密度大。

燒熔金屬：

將鋯金屬及金屬材料放置電弧爐樣品座上，腔體通入氬氣(純度99.99%)，做為介電質。打開機械幫浦及冷卻循環水，令機械幫浦抽電弧爐腔體，約過一小時其內壓力降至 5×10^{-2} torr左右。緊接著關閉腔體和機械幫浦之間的閥門。將氬氣管路閥門打開，打開氬氣瓶，確認氬氣瓶上之流量計為約每分鐘2升，再將氬氣吹入腔體大約3至5分鐘，我們這時須確認洩壓閥有氬氣流出。將氬氣閥門關閉，關上流量計，打開機械幫浦閥門，再將腔體真空抽至 5×10^{-2} torr。重覆上述動作3至4次。調整適當電流(視材料熔點不同做為調整，以鋁鈦合金而言約220安培，之前吳至原老師熔燒鈦鋁合金時，所用電流約175安培，當時鈦較多因此當鈦尚未熔化時，鋁已先熔，使液態的鋁可融於鈦。但是當鋁含量較多時，若仍以175安培的電流加熱，鈦尚未完全熔於液態鋁時即不得不關閉電流以免外界氣體洩入，此時鈦僅能以固態塊狀混於液態鋁中，所以須選用較高的電流以縮短加熱時間)。啟動電弧爐電源供應器，將濾光片放置於腔體前 (燒熔時眼睛須在濾光片後方以防止被拉出電弧所產生的強光傷害視網膜)，並將鎢棒與正極連接(即電弧爐樣品座)。以一手握住鎢棒木質握柄上半部，另一手壓緊乘載電弧爐木質載臺，並單腳接著踩放遙控開關踏板，輕踩開關，開始拉出電弧。先將電弧移到鋯上，鎢棒尖端間距控制在0.5公分或更小 (但須避免尖端碰到被熔融的金屬)，定位完成後，再將踏板完全踩下

以增強電場。先反覆熔燒鋯金屬數次（4至5次），吸附殘餘的活性氣體，接著燒熔樣品（切記每次燒熔時間不可超過30至45秒，之間間隔約3至5分鐘，使氮氣保持流通，冷卻腔體，或以手觸碰外邊玻璃確保溫度不會過高）燒熔不同熔點之樣品必須調整相應電弧溫度（由電流大小決定電弧溫度）。

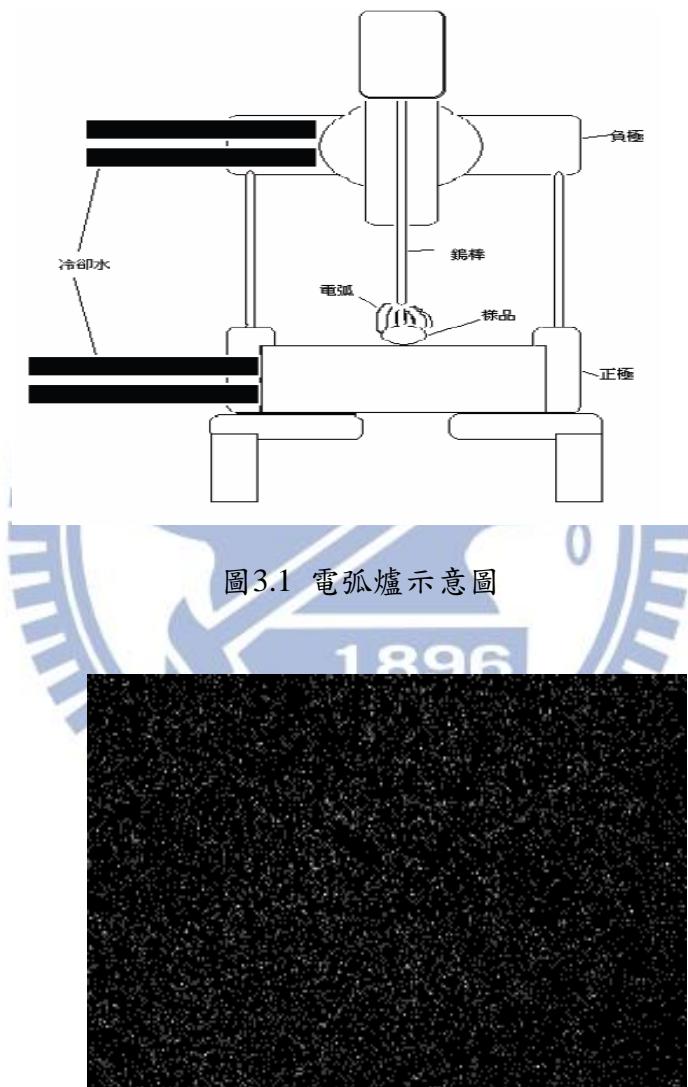


圖3.2 AlTi1% EDS-Mapping圖；將SEM放大倍率調整為20倍做掃描，掃描點為 10^6 點/ μm^2 ，黑色底為鋁金屬白色點為鈦金屬所放出的能譜。

3-2-2 封閉循環致冷機(close cycle refrigerator)

原理:

節流過程(Throttling process)[7]如圖 3.3 所示，在節流過程中，焓(Enthalpy)為一常數，壓縮氣體源透過閥 A 和 B 連接著活塞下半氣室的底部，當高壓力閥 A 開著，且低壓力閥 B 關著時，壓縮氣體由高壓力閥 A 進入活塞下半氣室，此時活塞往上移，氣室內部的氣體間作用力強，當高壓力閥 A 關著，且低壓力閥 B 開啟，活塞往下移，將氣體送入排出管線，將活塞下半氣室內部的氣體體積減到最小，經過此循環，因為焓不變的關係，當活塞下移，活塞下半氣室壓力減少，則活塞上半氣室氣體分子間的距離拉大(即位能增加)，故為了填補增加的位能，需降低氣體動能，因此達到降溫的效果。

封閉循環致冷機系統介紹[8]:

冷頭(cold head):

圖 3.4，為封閉循環製冷機的結構示意圖，其中包含了樣品載臺、提供光學實驗的窗口、輻射屏蔽層，以及真空夾層。其中真空夾層圍繞整個冷頭，中間部分有一個輻射屏蔽層，此層裝置在 First Stage 上，且覆蓋著 Second Stage 和樣品載臺，啟動機台之後，輻射屏蔽層溫度約為 60~80 K，而最冷的溫度會出現在 Second Stage，大約為 10 K 或更低。我們會在 Second Stage 上裝置加熱器，以便於量測時溫度可以超過室溫以上，因一般冷頭的設計通常是為了低溫所設計，無法承受超過室溫太多的溫度，故在 Second Stage 設置一個絕緣體，以保護冷頭，避免其遭受加熱器釋放的能量破壞。一般來說，冷頭所能達到的最低溫度，與它的內部空間，及 First Stage 和 Second Stage 之間的長度有關，空間越小越容易冷卻，長度越長氣體可以膨脹的程度越大，對外做功越大，降的溫度越低。若需要增加長度，可以使用鍍銀無氧銅(OFHC copper)，而我們儀器實際上的長度為 41.52 cm。

外部零件(圖 3.5):

1. 壓縮機(compressor): 提供高壓的氮氣給冷頭。

2. 氣體管線(Helium gas supply/return): 連結壓縮機和冷頭以傳輸氦氣
3. 溫控計(Temperature controller): 本系統是連接 Lakeshore331

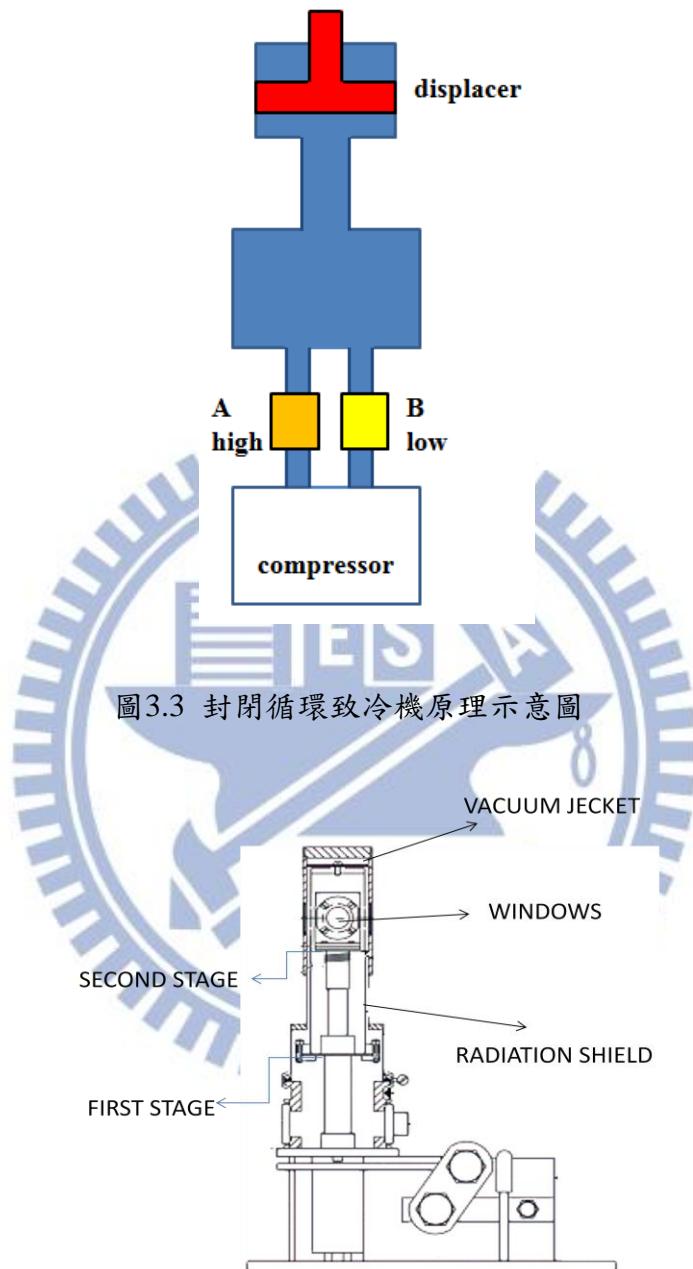


圖3.4 封閉循環製冷機冷頭結構圖

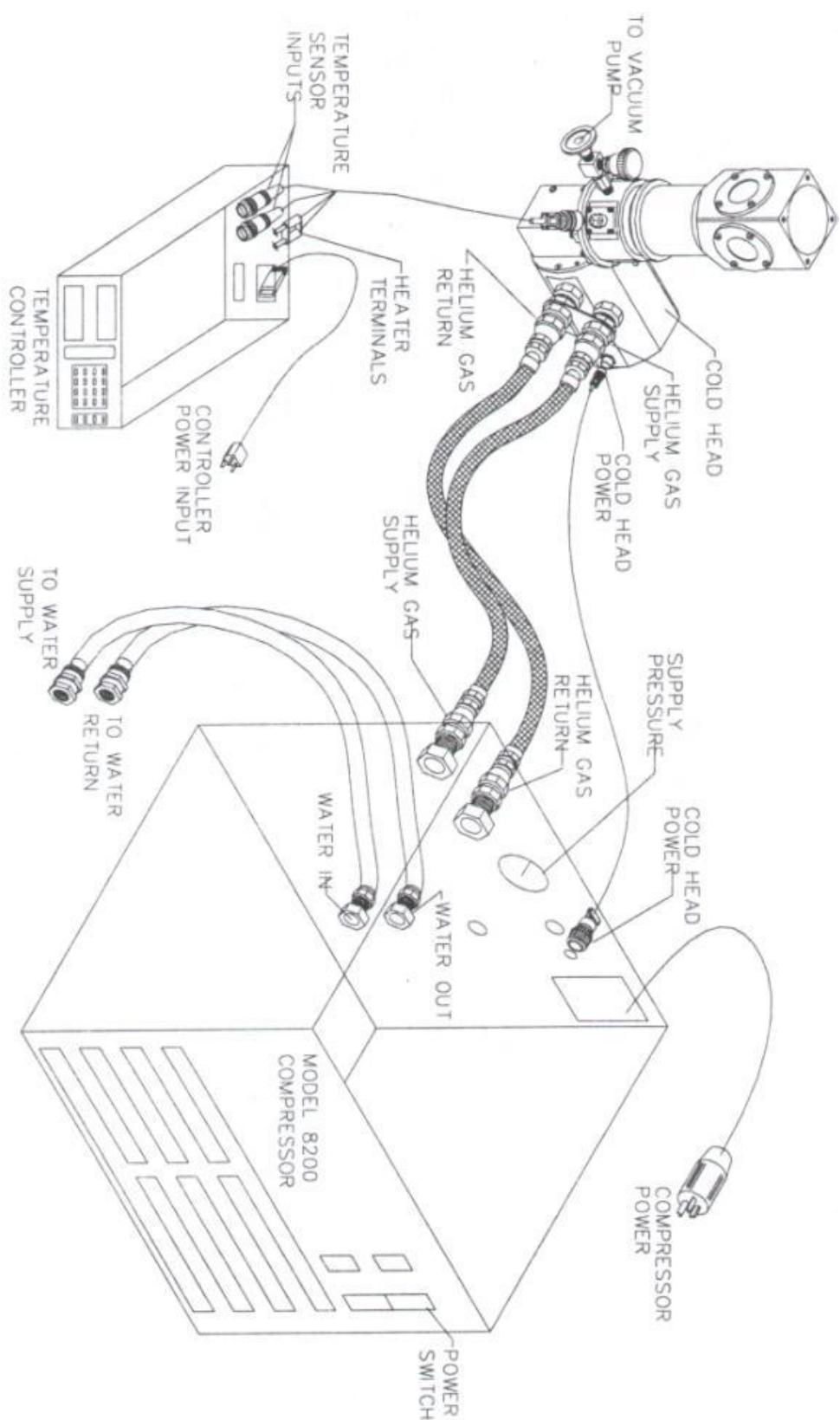


圖3.5封閉循環製冷機的外部結構圖

3-3 電阻量測-兩點量測與四點量測[9]

3-3-1 兩點量測：

兩點量測為一般測量電阻的方法。最常見的例子即為三用電表，其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 3.6 所示，其所量測到的電阻如下式所表示，因此在量測時會同時量測到導線電阻、接點電阻及接點電阻，所以我們需要更精密的四點量測。

$$R = \frac{V}{I} = \frac{IR_{sample} + 2IR_{導線} + 2IR_{接點}}{I} = R_{sample} + 2(R_{導線} + R_{接點})$$

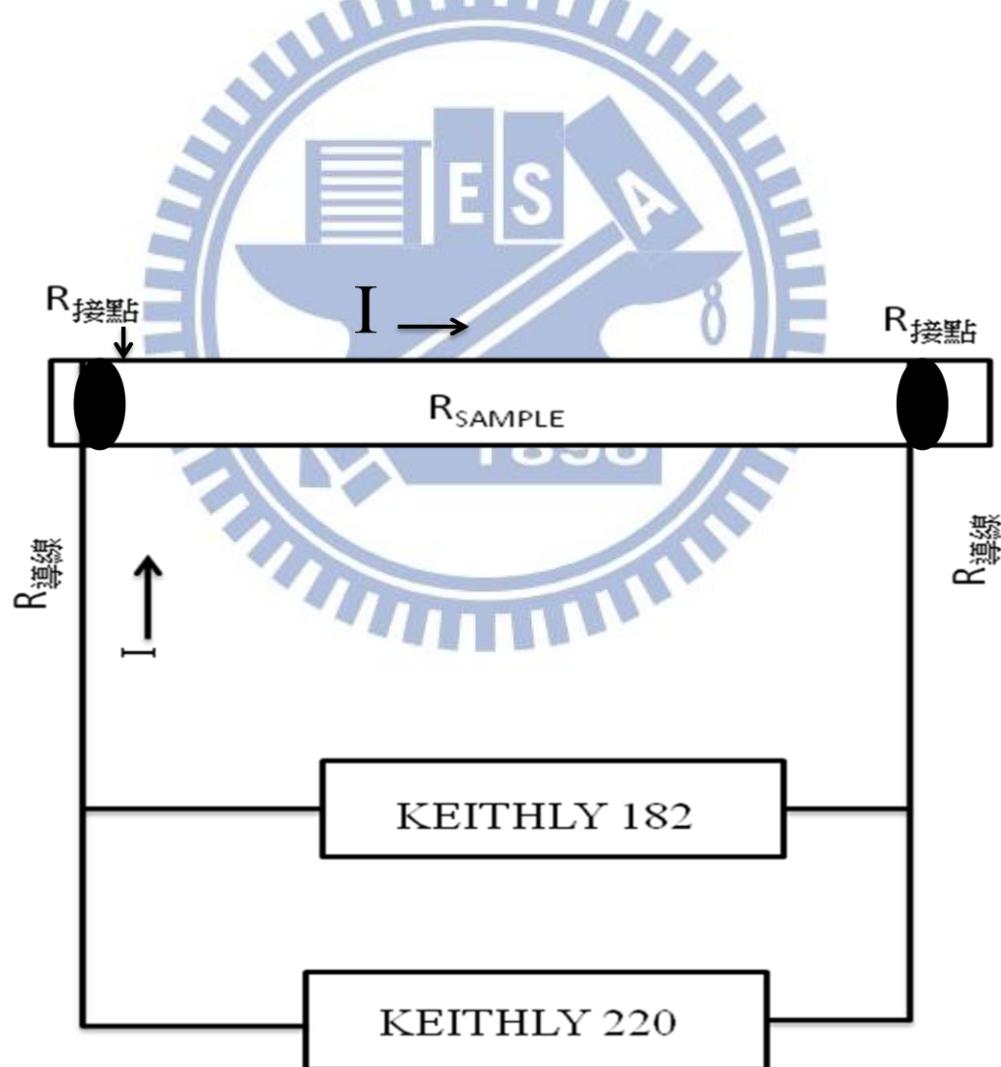


圖 3.6 兩點量測示意圖

3-3-2 四點量測

將流經電壓計的電流及由電流源送出的電流分別討論，如圖 3.7 所示。當電流 I 從電流源輸出，並流入樣品時，除非遇到分流通路，否則電流 I 大小不會改變。當電流 I 流至接點時，由於伏特計的內電阻極大($T\Omega$ 等級)，分流流入伏特計的電流 i 極小，導線以及接點所貢獻的電壓降極小($iR_{接點}$ ， $iR_{導線}$ 可忽略)，如下式子所表示，因此，四點量測所量測到的電壓訊號將更為精準。

當伏特計內電阻很大時: $I \gg i$

$$R = \frac{V}{I} = \frac{(I - i)R_{sample} + 2iR_{導線} + 2iR_{接點}}{I} \approx R_{sample}$$

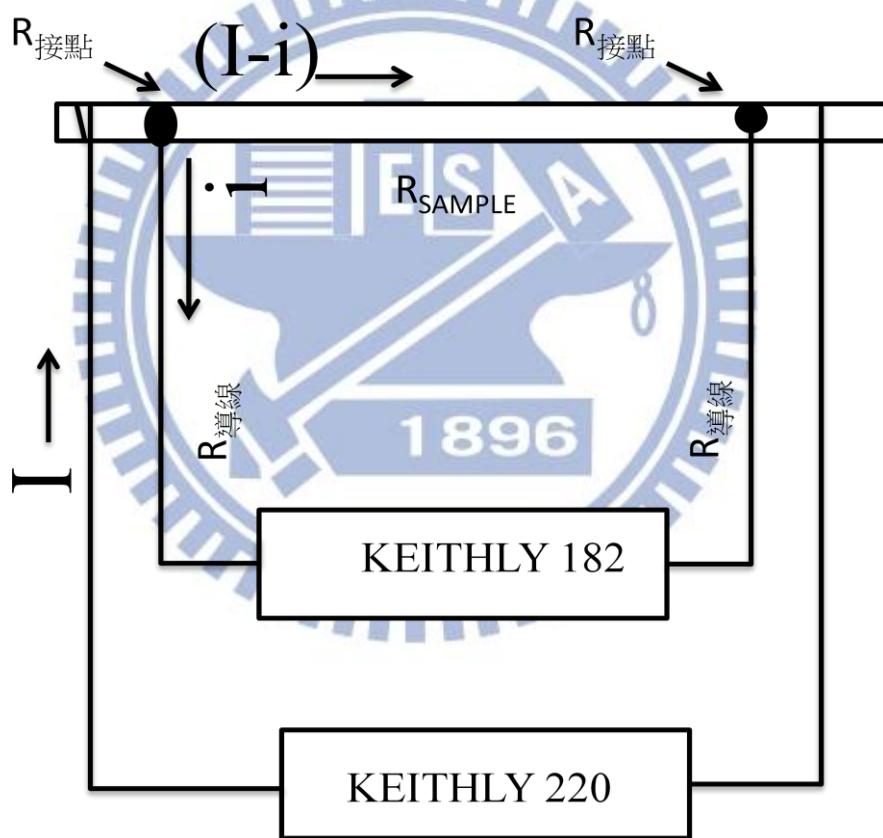


圖 3.7 四點量測示意圖

四、實驗結果與數據分析討論

4-1 樣品資訊

本研究實驗樣品是將純度 99.99 % 的鋁與純度 99.99 % 的鈦，經由電弧爐熔融成的鋁鈦合金，將樣品所需的鈦金屬及鋁金屬依莫爾比($Al_{100-x}Ti_x$: x 分別為 0、0.5、1、2、3、5) 配製。再使用鑽石切割機切成長條形狀長、寬、厚約 6 mm、0.5 mm 及 0.5 mm。

塊材(Al-Ti)本身具金屬特性，純鋁金屬的電阻率會隨溫度降低而降低，溫度越低則慢慢趨近於平坦，當摻雜的 Ti 越多，電子散射機會越大，其電阻率也越大。

經由四點量測可得知電阻率隨溫度變化的關係，圖 4-1a 為鋁鈦合金的線性 $\rho(T)$ 圖、圖 4-1b 為鋁鈦合金的對數 $\rho(T)$ 圖。量測溫度範圍由 500 到 10 K，在低溫時(約 40K)每 1K 定溫量測。圖 4-1a、圖 4-1b 中，曲線由下而上分別為純鋁、0.5 %、1 %、2 %，3 % 及 5 % AlTi 的電阻率，在 500-100 K 之間，樣品之電阻率隨溫度之下降而下降；100 K 之後，溫度下降的趨勢漸緩；約在 30 K 之後，電阻率趨近於殘餘電阻。隨著雜質鈦的含量增加，此殘餘電阻亦隨之上升；並且電阻率趨於飽和的溫度，亦隨著上升。室溫及殘餘電阻率的比值 $\rho(300K)/\rho(10K)$ 約從 360 (純鋁) 降至 11 (5% 鈦)。顯示無序程度隨鈦雜質之增加而大幅上升，此點亦可由 500 ~ 100 K 的實驗結果看出，(圖 4-1a，斜率隨著鈦含量增加而減少)。圖 4-2 為鋁鈦合金中，鈦摻雜濃度對電阻率關係圖 在高溫時 (500 K)，隨著鈦雜質濃度的增加，鋁鈦合金的電阻率呈線性增加 (從 $4.83 \mu\Omega cm$ 增加到 $7.52 \mu\Omega cm$)；在低溫時，鈦雜質濃度在 1% 以下時，電阻率快速增加 (從 $0.00751 \mu\Omega cm$ 增加到 $0.108 \mu\Omega cm$)，迄濃度增至 1.5% 以後，增加速率趨緩 (從 $0.143 \mu\Omega cm$ 增加到 $0.426 \mu\Omega cm$)。表示鈦雜質均勻分佈於合金中，且加入鈦雜質並未破壞合金晶相 (參見 SEM 圖，圖 3.2)。隨著鈦加入的量逐漸增加，合金中鈦雜質的顆粒將逐漸增大，使得合金中所含雜質顆粒的密度，並未隨鈦含量增加而呈線性增加。因此雖總體鈦濃度呈線性增加，但雜質顆粒密度增加的量，並未完全對應鈦濃度的增加量，故電阻率上升的曲線出現兩階段斜率。

熔燒樣品均勻性亦可由附錄二表示，圖 A2 為兩塊純鋁樣品電阻率隨溫度變化關係，

圖中兩者電阻率隨溫度變化關係近乎重疊，因此相信由電弧爐燒出來的純鋁樣品所產生的缺陷大致相同。圖 A3 為兩塊摻雜 0.5% 鈦的鋁鈦合金隨溫度變化電阻率，此二樣品的電阻率同樣的近乎重疊，這也表示鈦金屬分布在鋁金屬中相當均勻。

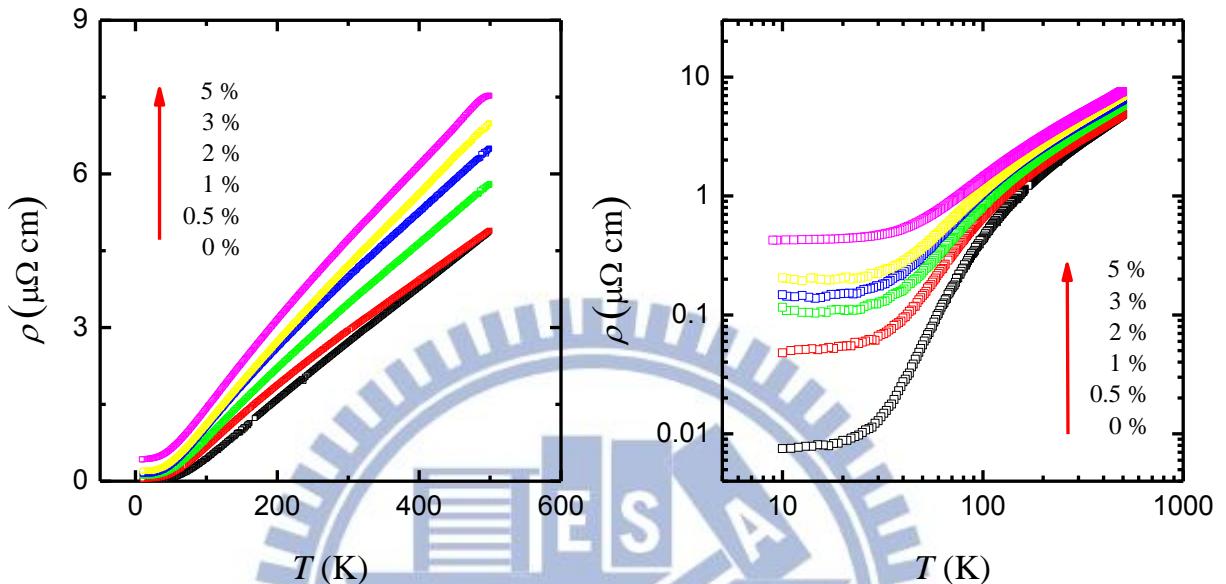


圖 4.1a AlTi 電阻率 ρ 與溫度關係線性圖

圖 4.1b AlTi 電阻率 ρ 與溫度關係對數圖

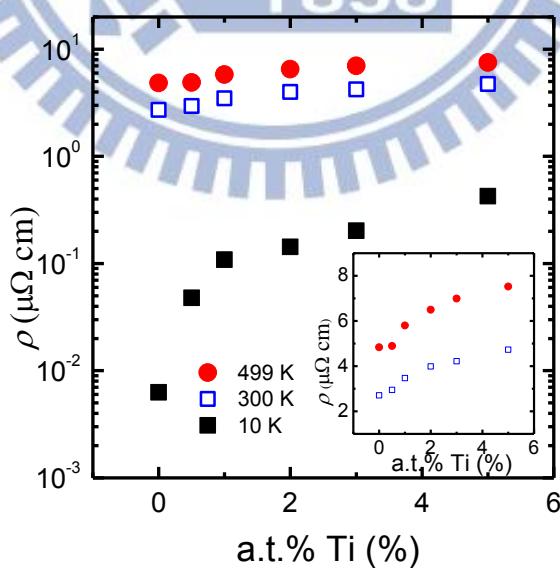


圖 4.2 鈦摻雜濃度對電阻率關係圖

4-2 實驗結果

在無序(disordered)系統中的金屬，電子-聲子交互作用主要由兩種狀況主導。第一種，與“純”的金屬相同，其電子-聲子散射為彈性碰撞，由 Bloch-Grüneisen 方程式得知其電阻率在低溫時會與溫度 T^5 成正比，高溫與溫度 T 成正比。第二種，為較“無序”的金屬，其電子物質波會做彈性散射，另外電子物質波也會經由電子-聲子交互作用，做非彈性散射；這兩種散射的歷程，會互相干涉，Sergeev 將這種現象稱之為 electron-phonon-impurity interference 方程式[5]，此現象會對電阻率修正，如式 4-3 其電阻率會與 T^2 成正比 [10,11]。

本研究量測純鋁，與摻雜了 0.5%、1%、2%、3%、5% 的鈦，由於此樣品具金屬性，在低溫時，weak localization 效應與 electron-electron interaction 效應[12]，幾乎沒有出現，因此使用 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference 理論做全溫區擬合的工作。低溫電阻率趨近於平緩的值或稍微低於此值，選用此值的電阻率做為殘餘電阻率 ρ_0 ，擬合時的自由變數為德拜溫度 θ_D 、 β_{BG} 以及 β_{int} 三者，擬合的結果如圖 4-3a 至 4-3f 所示，黑色空心方塊為實驗數據的電阻率，紅色線為理論的線；所得參數列於表 4-1。此外，將隨溫度變化的電阻率扣除殘餘電阻率，藉由觀察 Bloch-Grüneisen 項的貢獻 ρ_{BG} (紅色虛線)，和 electron-phonon-impurity interference 項的貢獻 ρ_{int} (藍色虛線)，以探討在溫度與電阻率關係中，無序程度所扮演之關鍵作用。

Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference 模型[10,11]:

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{BG} + \rho_{int} \quad (4-1)$$

$$\rho_{BG} = \beta_{BG} T \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^5}{(e^x - 1)(1 - e^{-x})} dx \quad (4-2)$$

$$\rho_{int} = \beta_{int} T^2 \rho_0 \left(\frac{6}{\pi^2} \right)^4 \int_0^{\theta_D/T} \left(\frac{x^2 e^x}{(e^x - 1)} - \frac{x}{e^x - 1} \right) dx \quad (4-3)$$

其中

$$\beta_{BG} = \frac{\pi \beta_t \tau k_B^5}{2 h p_F^4 u_t^4} \rho_0 \theta_D^4 \quad (4-4)$$

$$\beta_{int} = \left[\left(2 \frac{u_l}{u_t} \right) \beta_t + \left(\frac{\pi^2}{16} - 1 \right) \beta_l \right] \frac{2 \pi^2 k_B^2}{3 p_F E_F u_l} \quad (4-5)$$

式中 $\beta_{l,t}$ 是電子與縱向和橫向聲子的偶合常數， τ 是 $1/v_F$ 為電子彈性碰撞一次的平均時間， v_F, E_F, P_F 分別是費米速度，費米能量和費米動量， k_B 是波茲曼常數， $u_{l,t}$ 是縱向與橫向地聲速，一般在金屬中 u_l/u_t 通常介在 2 到 3 之間[2,13]。

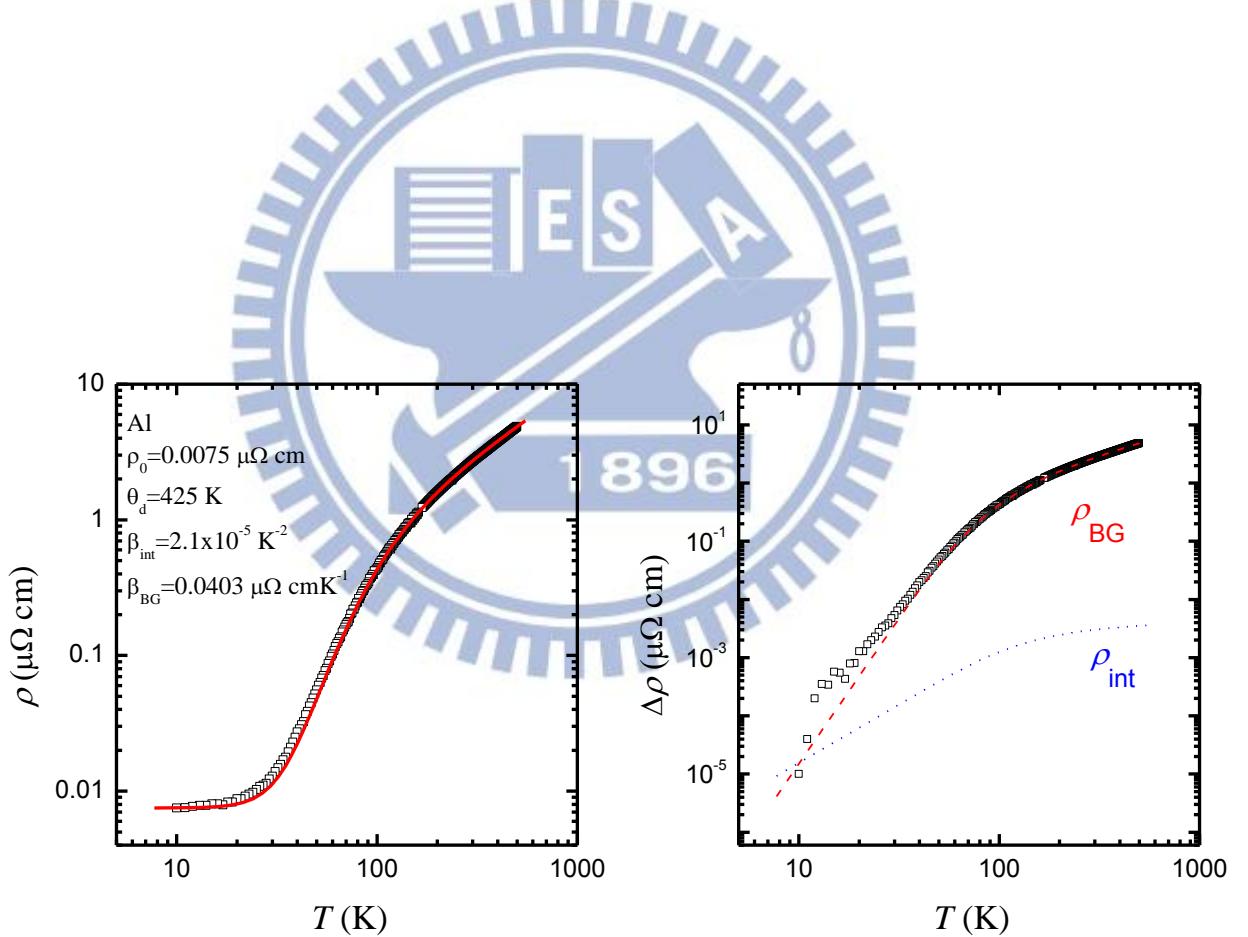


圖 4.3a 樣品 Al 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

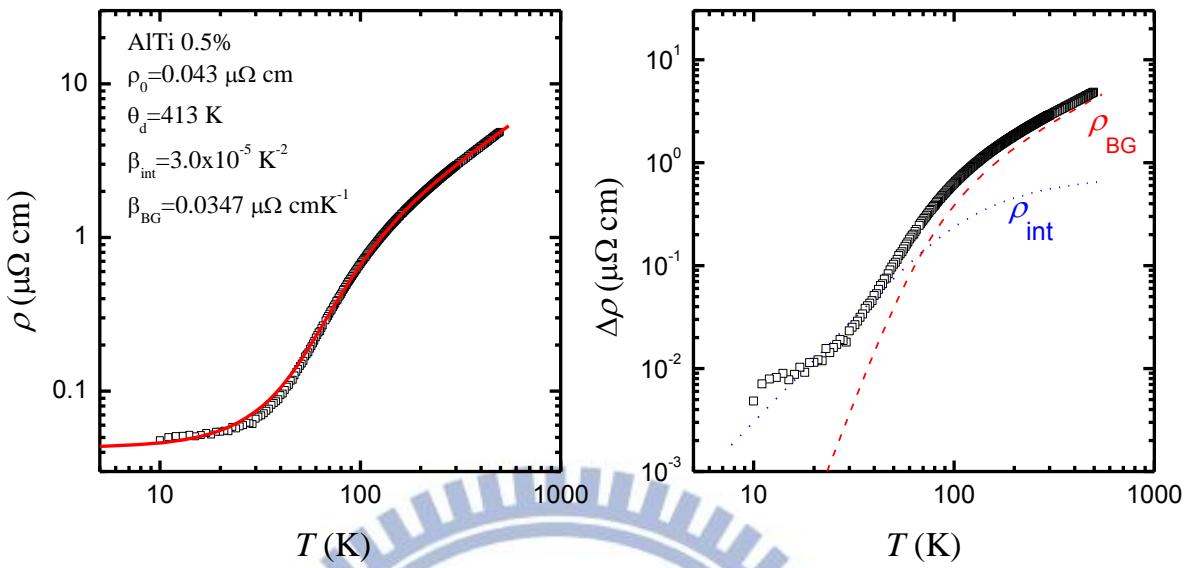


圖 4.3b 樣品 AlTi 0.5% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

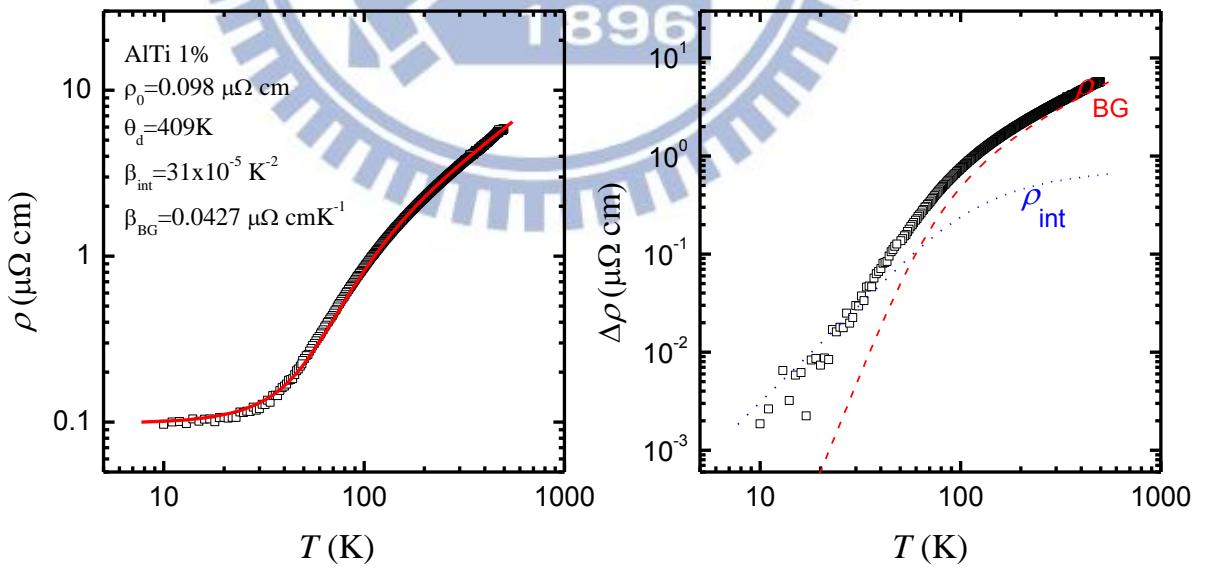


圖 4.3c 樣品 AlTi 1% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

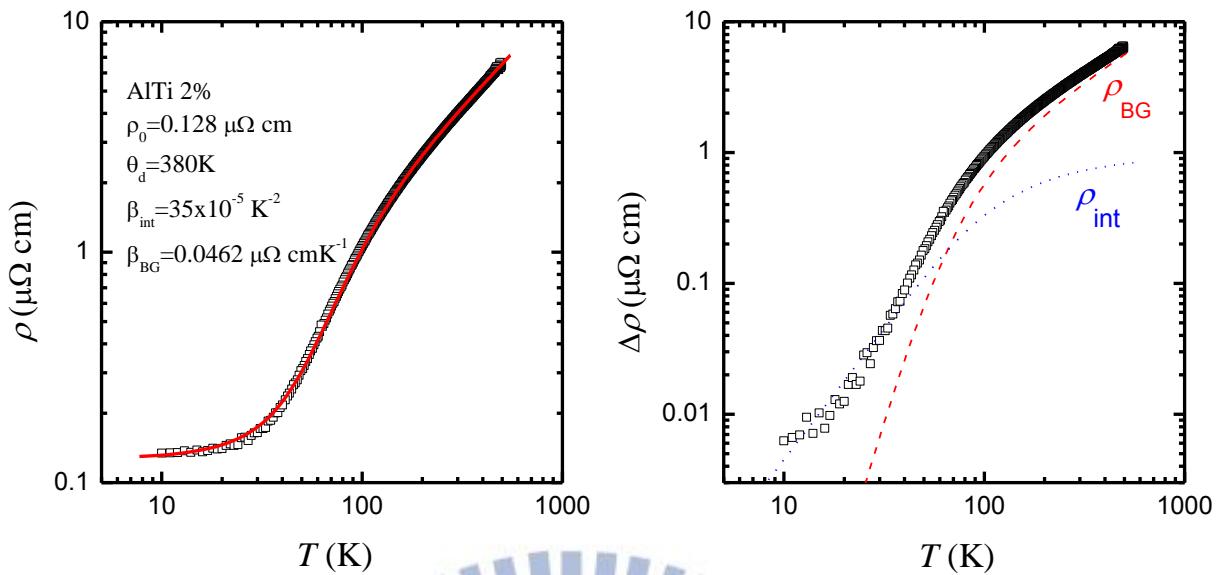


圖 4.3d 樣品 AlTi 2% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

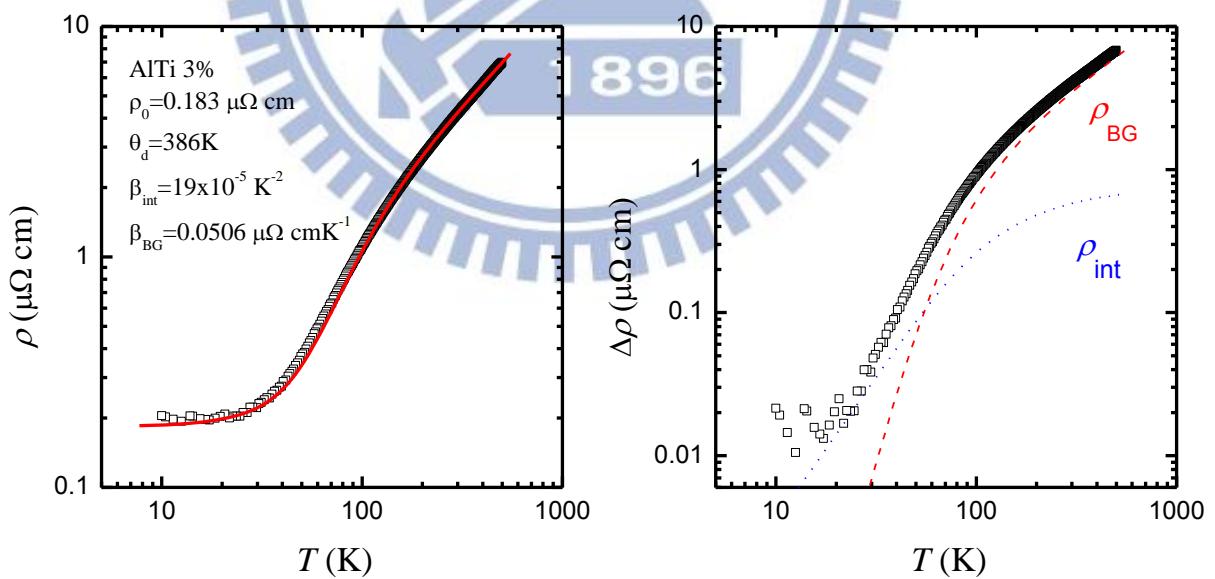


圖 4.3e 樣品 AlTi 3% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

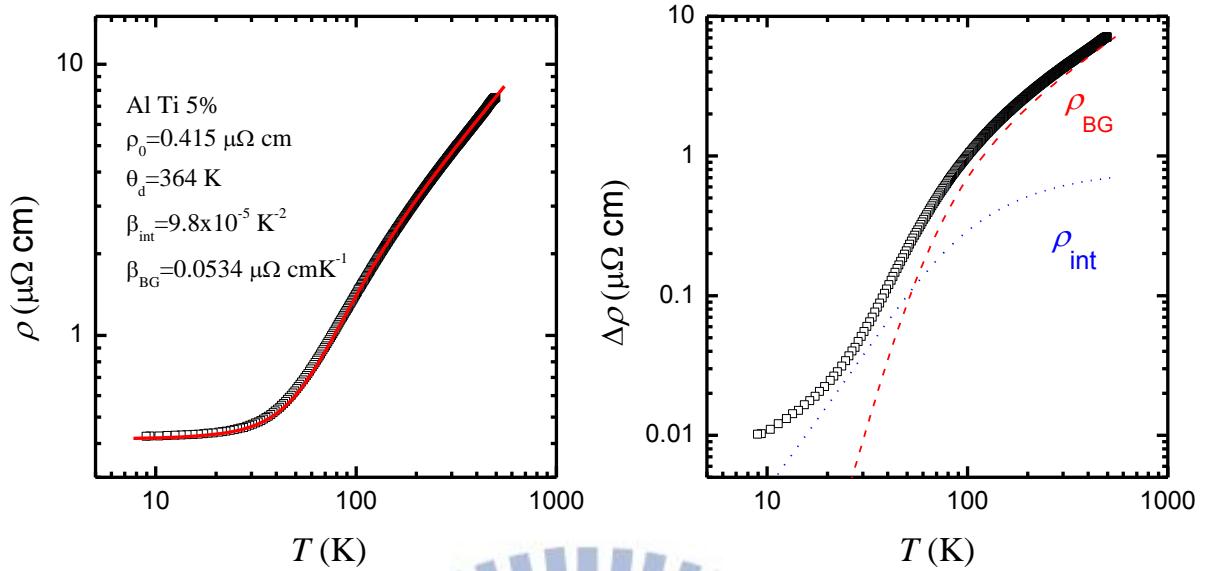


圖 4.3f 樣品 AlTi 5% 在 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 下擬合的結果

表 4.1 實驗擬合參數值

由 Bloch-Grüneisen 和 electron-phonon-impurity interference effect 擬合 $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ 樣品電阻率之參數。其中 θ_D 為德拜溫度、 β_{int} 、 β_{BG} 是與材料有關常數、指數 n 為 100 K 以下電阻率所對應的溫度關係 $\rho(T) \propto T^n$

x	θ_D (K)	$\beta_{int}(10^{-5} \text{ K}^{-2})$	$\beta_{BG}(\mu\Omega \text{ cm K}^{-1})$	ρ_0 ($\mu\Omega \text{ cm}$)	$\rho(300\text{K})$ ($\mu\Omega \text{ cm}$)	N
0	425	2.1	0.040	0.0075	2.70	4.1
0.5	413	3.0	0.035	0.043	2.94	3.3
1	409	31	0.043	0.098	3.46	3
2	380	35	0.046	0.128	3.98	2.9
3	386	19	0.051	0.183	4.20	2.7
5	364	9.8	0.053	0.415	4.73	-

4-3 實驗參數討論

擬合(fitting)後得知，純鋁樣品的 Debye 溫度為 425 K，這與教科書[1]，所表示的 428 K 十分近似。隨著 Ti 摻雜量逐漸增多，Debye 溫度由 425 K 逐漸下降至 364 K。

首先，由圖 4.4 可以看出 ρ_0 越大 Debye 越小。探討造成 Debye 溫度隨著雜質越多而下降的原因。由 Debye 模型得知[14,15]，Debye 溫度 θ_D 和截止頻率 ω_D 的關係

$$\theta_D = \frac{\hbar \omega_D}{k_B} \text{, 而截止頻率正比於 Debye 聲速 } u_D \text{, 因此寫下:}$$

$$\theta_D = \frac{\hbar}{k_B} \left(\frac{6\pi^2 N}{V} \right)^{1/3} u_D$$

其中 V 為固體體積， N 為 primitive cell 數。

而 u_D 只和縱向與兩簡併態的橫向地聲速有關，與晶格方向無關，這種情況下我們可以將上式簡化成[13,14,16]

$$\frac{1}{u_D} = \frac{1}{3} \left(\frac{1}{u_l^3} + \frac{2}{u_t^3} \right) \quad (4-6)$$

$u_{l,t}$ 是縱向與橫向地聲速，我們猜測 Debye 溫度的改變是由於 u_D 的改變。我們將會在 β_{int} 項時再次討論。

實驗中模型用自由電子氣理論，計算純鋁的 β_{int} ，由 $E_F = 11.63 \text{ eV}$ [1]， $u_l = 6.3 \times 10^3 \text{ m/s}$ [17]， $u_t = 3.1 \times 10^3 \text{ m/s}$ ， $v_F = 1.3 \times 10^6 \text{ m/s}$ [18]， $P_F = 1.84 \times 10^{-24} \text{ kg m/s}$ [11]，藉由 jellium model 和 Bohm-Staver[2,13]關係式可得到聲速地關係式 4-7。而電子聲子偶合常數可以用式 4-8 表示

$$\frac{\beta_l}{\beta_t} = \left(\frac{u_l}{u_t} \right)^2 \quad (4-7)$$

$$\beta_{l,t} = \left(\frac{2}{3} E_F \right)^2 \frac{N(0)}{(2\rho_m u_{l,t}^2)} \quad (4-8)$$

純鋁的密度 $\rho_m = 2.7 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ [17]，態密度 $N(0) = 1.45 \times 10^{47} \text{ states/J m}^3$ [1]，理論計算得純鋁的 $\beta_{int} = 1.2 \times 10^{-6} \text{ K}^{-2}$ 。由實驗量測得到 $\beta_{int} = 2.1 \times 10^{-5}$ 與理論值相比下小 10 倍，可由式 4-5 與 4-7 得知 β_{int} 與材料聲速 u 有關且 $u \propto (C/m)^{1/2}$ [1]， C 為原子之間作用力常數， m 為每個原子質量。因此推測在熔融過程中，有些許的缺陷改變了原子之間作用力導致 10 倍的差距。

由圖 4.7 觀察 β_{BG} 的變化，不同的 ρ_0 ($0.0075 \sim 0.415 \mu\Omega \text{ cm}$) 所對應的 β_{BG} (從 0.04 ~ $0.053 \mu\Omega \text{ cm K}^{-1}$) 有著類似線性變化的關係。理論上由式 4-4 並將 $\rho_0 = m/nq^2\tau$ 帶入，得知 β_{BG} 是與無序程度無關，且比較式 4-4 與式 4-5 可得知 β_{BG} 比 β_{int} 受材料電性的影響更劇，數學上若 β_{BG} 與無序程度相關時，由擬合模型式來看，則 β_{int} 只能為常數。但實驗結果顯示， β_{int} 不為常數，且 β_{BG} 與 ρ_0 關係近乎直線，這可能是我們的樣品在摻雜鈦時，電子或聲子性質有所改變所造成的結果。

觀察 β_{int} 的變化將式 4-5 改成

$$\beta_{int} = \left[\left(2 \frac{u_l}{u_t} \right) + \left(\frac{\pi^2}{16} - 1 \right) \frac{\beta_l}{\beta_t} \right] \frac{2\pi^2 k_B^2 \beta_t}{3p_F E_F u_l} \quad (4-9)$$

將 $\frac{u_l}{u_t} = 2.2$ 與式 4-7 帶入式 4-9，可得知 $2 \frac{u_l}{u_t} \gg \left(\frac{\pi^2}{16} - 1 \right) \frac{\beta_l}{\beta_t}$ 並將式 4-8 帶入，且因為鈦摻雜量低，由相圖(圖 A1)[21]得知其相不改變，結構不變，因此 E_F 不變，故可將 β_{int} 近似為

$$\beta_{int} \approx \left[\left(2 \frac{u_l}{u_t} \right) \right] \frac{2\pi^2 k_B^2}{3p_F E_F u_l} \left[\left(\frac{2}{3} E_F \right)^2 \frac{N(0)}{(2\rho_m u_t^2)} \right] \propto \frac{1}{u_t^3} \quad (4-10)$$

已知 Debye 溫度 $\theta_D \propto u_D$ 則 $\beta_{int} \propto \theta_D^{-3}$ ，由圖 4-7 了解 β_{int} 與 θ_D 的有類似線性的關係，圖中參雜 5% 鈦的鋁鈦合金，大幅偏離，但由圖 4-6，參雜 5% 鈦的鋁鈦合金同樣的偏離線性關係，由此猜測在 5% 鈦鋁合金可能在熔融時，產生了一些變化；圖 4-7 亦有兩點稍微偏離線性，由式 4-6 猜測產生此種偏離，是因為 Debye 溫度是與 Debye 聲速成正比，

但 Debye 聲速和縱向與橫向聲速階有關係，而由式 4-10 所推得的關係只與橫向聲速有關。

由上述可推測純鋁在摻雜鈦後，電子-聲子交互作用產生改變，進而造成橫向聲速與縱向聲速的改變，並影響樣品的 Debye 溫度。

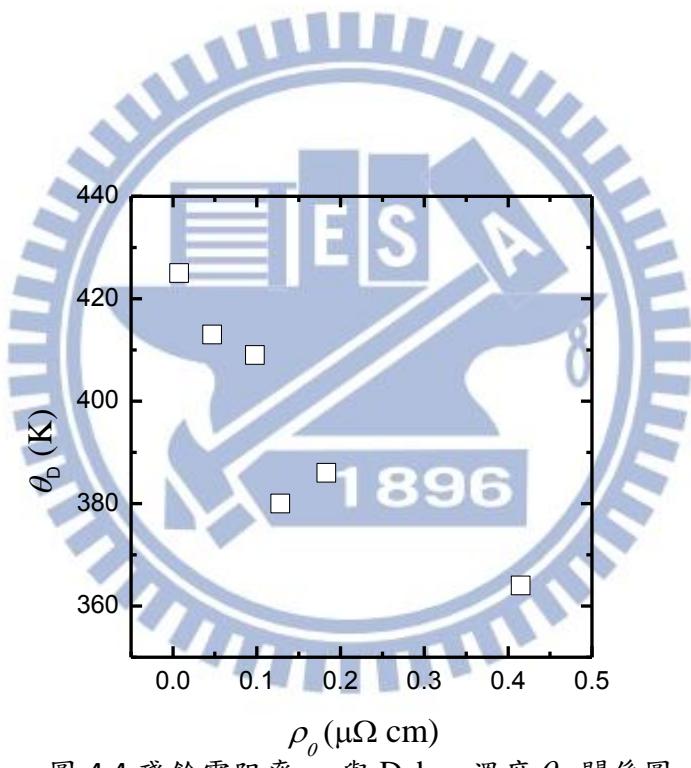


圖 4.4 殘餘電阻率 ρ_0 與 Debye 溫度 θ_D 關係圖

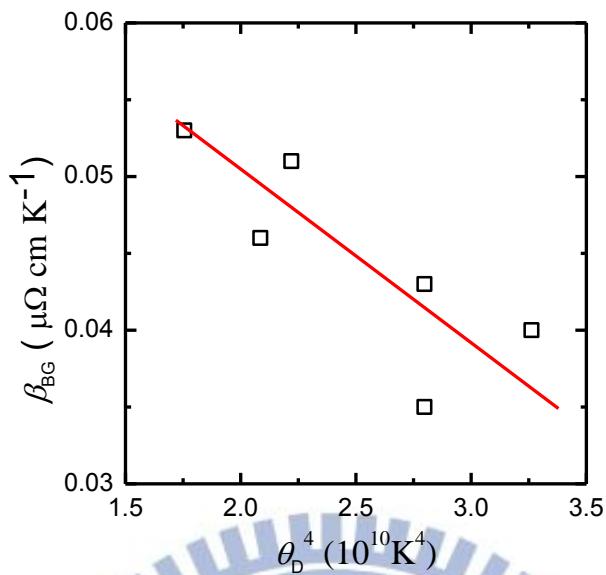


圖 4.5 Debye 溫度 θ_D^4 與 β_{BG} 關係圖

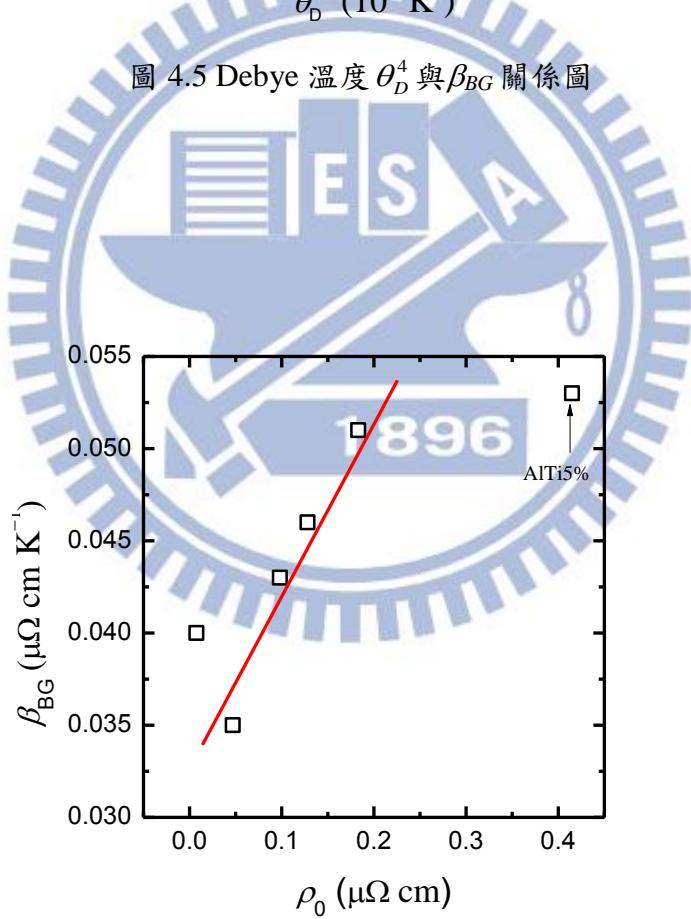


圖 4.6 殘餘電阻率 ρ_0 與 β_{BG} 關係圖

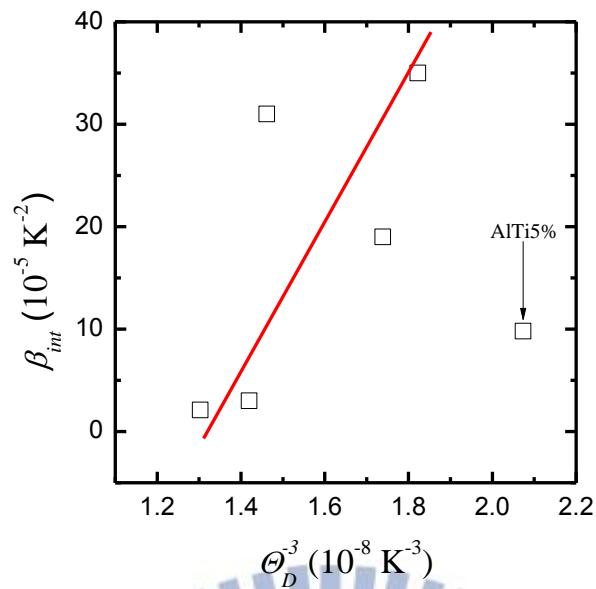


圖 4.7 Debye 溫度 θ_D 與 β_{int} 關係圖



4-4 電阻率隨溫度變化關係

由擬合的圖 4-1a 至圖 4-1f 觀察不同貢獻的 ρ_{BG} 與 ρ_{int} 兩貢獻交會點，純鋁的溫度約在 10 K 附近，即 Electron phonon-impurity interference 影響甚小， $\rho(T)$ 主要由 ρ_{BG} 主導。由 Bloch-Grüneisen 項可知，純金屬的電阻率，在高溫時，與 T 成正比；低溫底下，則是與 T^5 成正比，但是本研究之純鋁樣品是用電弧爐熔融而成，其晶格排列不如單晶來的整齊，因此其低溫電阻率不與 T^5 成正比，但接近。當雜質 Ti 越多，交點逐漸往上，因此雜質越多時，electron-phonon-impurity interference 的貢獻在低溫時愈顯重要。由式 4-3 得知 electron-phonon-impurity interference 所貢獻的電阻率和 T^2 成正比。而 electron-electron interaction 所貢獻電阻率亦有與 T^2 成正比的關係，但 electron-electron interaction 效應需在高純度的材料和極低溫才可發現，因此可忽略此效應。

將橫軸電阻率 ρ 與縱軸溫度 T ，取對數表示在圖 4-8，藉以觀察低溫時電阻率的變化。純鋁的樣品數據不變，並分別將 0.5%、1%、2%、3% 的樣品做 4 倍、16 倍、64 倍、及 256 倍的平移。再畫上低溫(約 5 至 100 K)時，其電阻率與溫度 T 的趨勢線(紅色)、高溫(80 至 800K)的趨勢線(藍色)，並將各樣品所對應的溫度函數列於表 4-1。

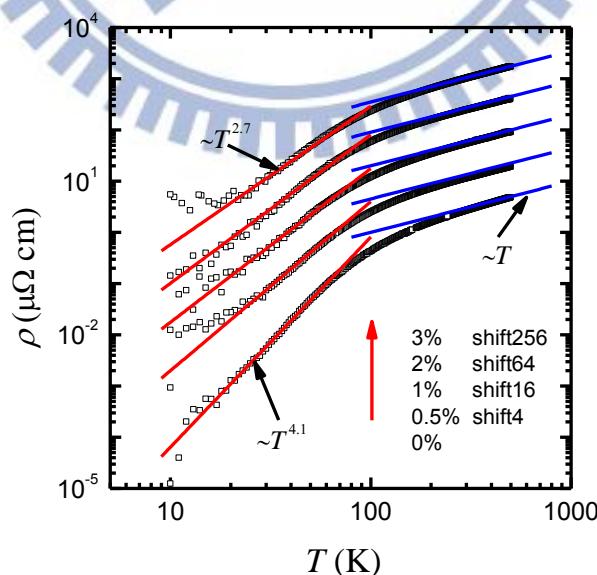


圖 4.8 電阻率 ρ 與溫度 T 關係圖

由圖 4-8，可觀察到藍色趨勢線(80 至 800 K)，為 5 條平行線，其電阻率皆與 T 成正比，因此高溫部分可以 Bloch-Grüneisen 理論完整描述。隨著鉱的增加，偏離線性的溫度(紅色趨勢線與藍色趨勢線交點)越高；在 80 K 以下(紅色趨勢線)，電阻率隨溫度的變化，會因鉱的增加，使電阻率隨溫度次方上升的值，由 $\rho_{pure}(T) \propto T^{4.1}$ ，緩慢下降至 $\rho_{3\%}(T) \propto T^{2.7}$ ，因此可推測，低溫時，鉱摻雜越多，由 Bloch-Grüneisen 模型所貢獻的電阻率越來越弱，而由 electron-phonon impurity interference 模型所貢獻的電阻率則越來越強，因此使電阻率隨溫度變化的關係，由 Bloch-Grüneisen 模型的 T^5 轉變為，electron-phonon-impurity interference 模型的 T^2 。



第五章、結論

我們量測不同莫耳濃度 $\text{Al}_{100-x}\text{Ti}_x$ 的 10 至 500 K 電阻率，並藉由 Bloch-Grüneisen 與 electron-phonon-impurity interference 的模型，得到不同樣品的 Debye 溫度，從純鋁的 425 K 降至摻雜 5 % 的鋁鈦合金 364 K。導致 Debye 溫度下降可能是因為，在鋁中摻雜鈦之後，改變電子-聲子交互作用，進而促成聲速的改變，並影響 Debye 溫度。

另外，藉由觀察所量測的樣品電阻率發現，在高溫時，Bloch-Grüneisen 模型可以完整地描述其電阻率；當溫度降至 100 K 以下時，樣品電阻率隨溫度變化， $\rho(T) \propto T^n$ ，指數 n 由純鋁的 4.1 降至參雜 3% 鈦的鋁鈦合金的 2.7。這表示在鋁中參雜越多鈦將造成 electron-phonon-impurity interference 貢獻的電阻率較 Bloch-Grüneisen 貢獻的電阻率重要。

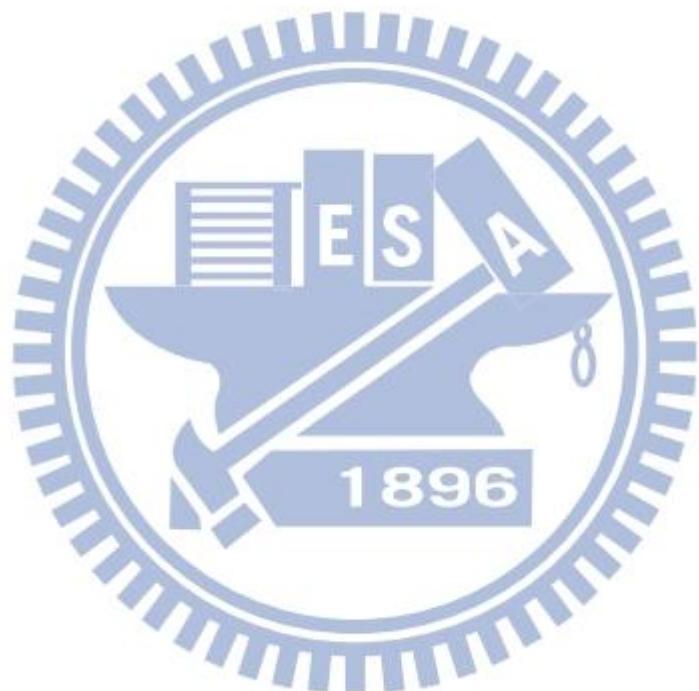


參考文獻

- [1] Charles Kittel ,*Introduction to solid state physics* ,7th ed
- [2] J. Bass, W. P. Pratt, Jr. and P. A. Schroeder, Rev. Mod. Phys. **62**,645 (1990)
- [3] Tetsuo Fujita,Kazunary Ohshima and Tetsuo Kuroishy,J. Phys. Soc Japan **40** 90 (1976)
- [4] R. L. Greene, C. N. King and R. B. Zubeck, Phys. Rev. B **6** 3297 (1972)
- [5] M. Yu. Reizer and A. V. Sergeev , Zh. Eksp. Teor. Fiz. **92**, 2291(1987) [Sov. Phys. JETP **65**, 1291(1987)]
- [6] *User 's Manual Model 331 Temperature Controller*,2005
- [7] Daniel V. Schroeder, *Thermal Physics*,1999
- [8] M.N.Jirmanus , *INTRODUCTION TO LABORATORY CRYOGENICS* ,p. 52
- [9] *Low Level Measurements Handbook*,6th Ed,p.3-16
- [10] Yeh S S, Lin J J, Jing X N and Zhang D L , Phys. Rev. B **72** 024204(2005)
- [11] N. G. Ptitsina, G. M. Chulkova, K. S. Il'in, A. V. Sergeev, F. S. Pochinkov and E. M. Gershenzon, Phys. Rev. B **56** 10089 (1997)
- [12] B.L. Altshuler and A. G. Aronov, *Electron-Electron Interactions in Disordered Systems*, edited by A. L. (Efros and M. Pollak_Elsevier, Amsterdam, 1985)
- [13] Y. L. Zhong and J. J. Lin, Phys. Rev. Lett. **80**, 588 (1998)
- [14] Grimvall, G., *Thermophysical Properties of Materials*.North-Holland, Amsterdam, 1986
- [15] Debye, P. Ann. d. Physik, 1912, **39**, 789
- [16] Anderson, O. L., *in Physical Acoustics, Vol. III—Part B*, ed. W. P. Mason. Academic Press, New York, 1965
- [17] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders,Philadelphia)
- [18] P. Santhanam and D. E. Prober, Phys. Rev. B **29**, 3733(1984).
- [19] F. J. Blatt, *Physics of Electronic Conduction in Solids* (McGraw–Hill, New York, 197).

[20] B.L.Altshuler,Zh.Eksp.teor.Fiz.,Sov.phys.JETP,**48**.670(1978)

[21] B.Massklski,P.R.Subramanian,Linda Kacprzak and W.Scott,*Binary alloy phase diagram 2nd ed*,Vol.1,1990



附錄一

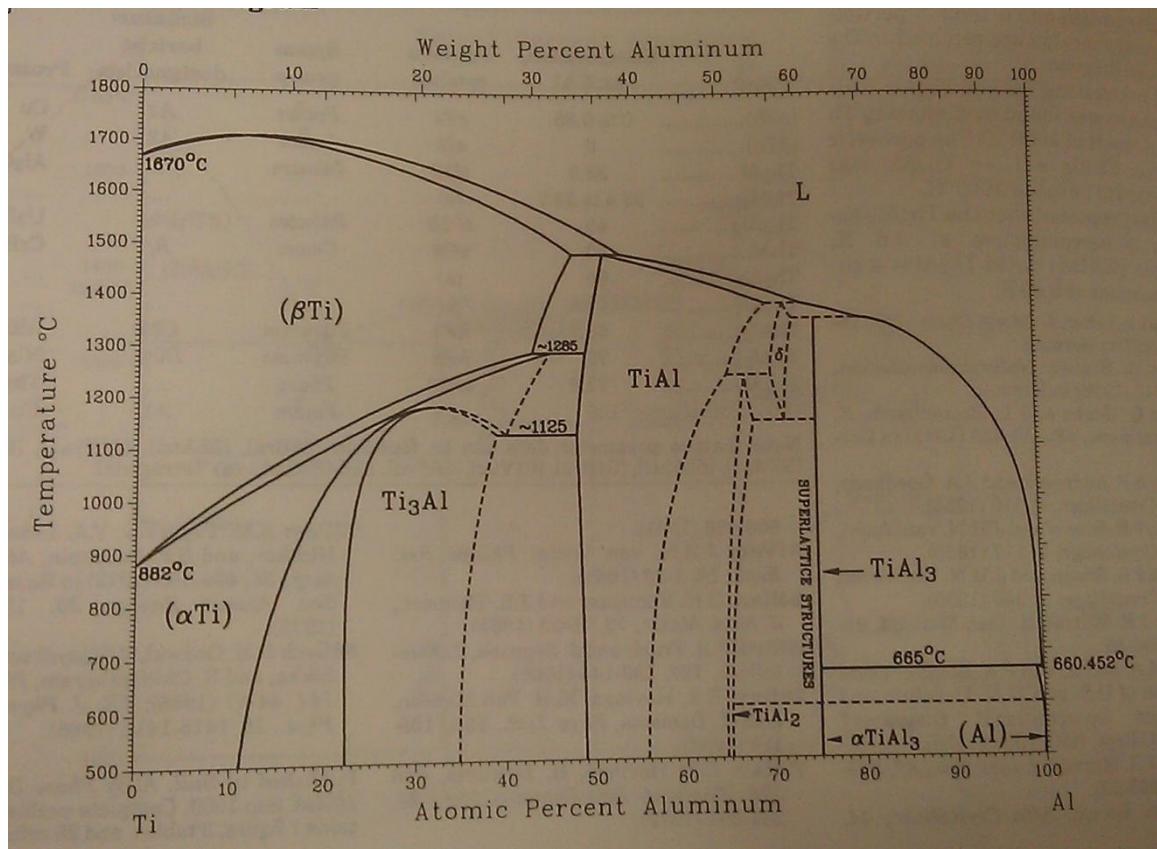


圖 Al-AlTi 像圖

1896

附錄二

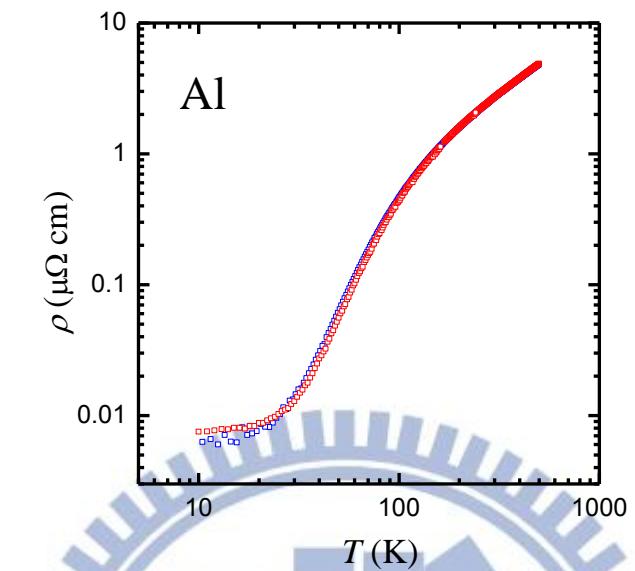


圖 A2 二塊純鋁樣品電阻率隨溫度變化關係

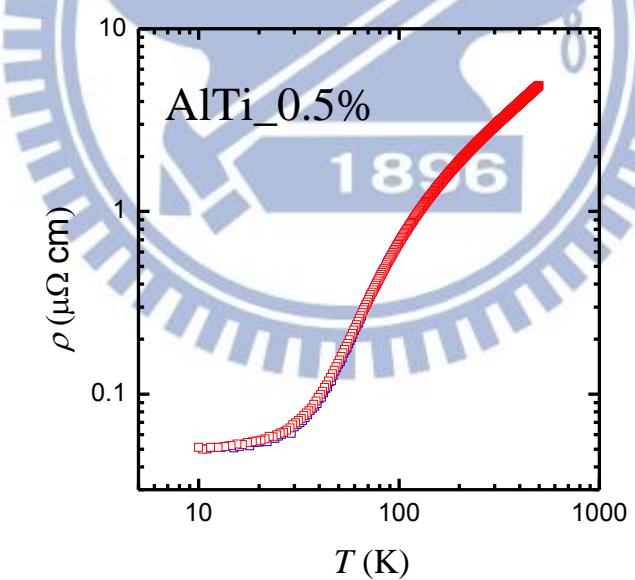


圖 A3 二塊摻雜 0.5% 鈦之鋁鈦合金電阻率隨溫度變化關係