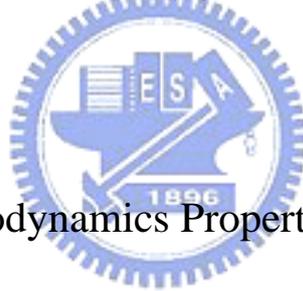


國立交通大學

電子物理所

碩士論文

鑷鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究



Study of The Electrodynamics Properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

Thin Films by Terahertz -Time Domain Spectroscopy

研究生：石訓全

指導教授：吳光雄 教授

中華民國九十五年六月

鐳鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

Study of The Electrodynamics Properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$
Thin Films by Terahertz -Time Domain Spectroscopy

研究生：石訓全

Student : Hsun-Chuan Shih

指導教授：吳光雄 教授

Advisor : Prof. Kaung-Hsiung Wu

國立交通大學



A Thesis

Submitted to Department of Electrophysics

College of Science

National Chiao Tung University

in partial Fulfillment of the Requirements

for the Degree of

Master

in

Electrophysics

June 2006

Hsinchu, Taiwan

中華民國九十五年六月

國立交通大學

博碩士論文全文電子檔著作權授權書

(提供授權人裝訂於紙本論文書名頁之次頁用)

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學 電子物理 系所 電子物理 組，九十四 學年度第 二 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：鏷鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

指導教授：吳光雄 教授

同意 不同意

本人茲將本著作，以非專屬、無償授權國立交通大學與台灣聯合大學系統圖書館：基於推動讀者間「資源共享、互惠合作」之理念，與回饋社會與學術研究之目的，國立交通大學及台灣聯合大學系統圖書館得不限地域、時間與次數，以紙本、光碟或數位化等各種方法收錄、重製與利用；於著作權法合理使用範圍內，讀者得進行線上檢索、閱覽、下載或列印。

論文全文上載網路公開之範圍及時間：

本校及台灣聯合大學系統區域網路	<input checked="" type="checkbox"/> 中華民國 95 年 7 月 1 日公開
校外網際網路	<input checked="" type="checkbox"/> 中華民國 95 年 7 月 1 日公開

授權人：石訓全

親筆簽名： 石訓全

中華民國 95 年 7 月 1 日

國立交通大學

博碩士紙本論文著作權授權書

(提供授權人裝訂於全文電子檔授權書之次頁用)

本授權書所授權之學位論文，為本人於國立交通大學 電子物理 系所 電子物理 組，九十四 學年度第 二 學期取得碩士學位之論文。

論文題目：鐳鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

指導教授：吳光雄 教授

■ 同意

本人茲將本著作，以非專屬、無償授權國立交通大學，基於推動讀者間「資源共享、互惠合作」之理念，與回饋社會與學術研究之目的，國立交通大學圖書館得以紙本收錄、重製與利用；於著作權法合理使用範圍內，讀者得進行閱覽或列印。

本論文為本人向經濟部智慧局申請專利(未申請者本條款請不予理會)的附件之一，申請文號為：_____，請將論文延至____年____月____日再公開。

授權人：石訓全

親筆簽名：_____ 石訓全

中華民國 95 年 7 月 1 日

國立交通大學

研究所碩士班

論文口試委員會審定書

本校電子物理系 石訓全 君，學號 9321527

所提論文 鏷鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

合於碩士資格水準，業經本委員會評審認可。

口試委員：溫增明 _____
林俊陽 _____
永振益 _____
羅志偉 _____

指導教授：吳光輝 _____

系主任：朱仲夏 教授

中華民國 95 年 6 月 30 日

鏷鈣錳氧薄膜的兆赫輻射時析頻譜研究

研究生：石訓全

指導教授：吳光雄 教授

國立交通大學

電子物理所

中文摘要



在本論文中，利用本研究群所建立之兆赫茲波段的時域頻譜量測分析技術，研究鈣鈦礦結構磁性薄膜鏷鈣錳氧在此頻段下的電磁特性，利用量測結果與理論分析可獲得溫度與頻率相關之薄膜材料之複數折射率，並進一步求得材料之介電係數、光學電導率，其中鏷鈣錳氧薄膜在室溫降至低溫的過程中有絕緣金屬的相變，其中低溫的金屬行為我們試著使用 Drude-Model 來做數學擬合，我們可以得到粒子的散射率與電漿頻率等物理參數。

Study of The Electrodynamics Properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$

Thin Films by Terahertz -Time Domain Spectroscopy

Student : Hsun-Chuan Shih

Adviser : Prof. Kaung-Hsiung Wu

National Chiao Tung University

Institute of Electrophysics

Abstract



The electromagnetic properties of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LCMO) thin films at THz frequencies have been studied by Terahertz-Time Domain Spectroscopy (THz-TDS). The THz electric fields transmitted through the LCMO thin films at various temperatures were measured. The temperature and frequency dependence of the complex index of refraction, dielectric function and conductivity can be determined from the complex transmittance and Fresnel equation. In addition, we carefully analyzed the data of dielectric constant spectra of LCMO thin films by a simple Drude model including the plasma frequency and the scattering rate as parameters.

誌謝

一轉眼兩年就過了，這兩年有太多回憶了，實驗室的生活充滿著酸甜苦辣，一路陪伴的師長、同學我由衷感謝。

非常感謝指導教授吳光雄老師讓我有這個機會進到這個大家庭裡，兩年的碩士生活在您的指導下學習到很多實驗的觀念和技巧，還有固態實驗室溫增明老師，莊振益老師，林俊源老師，郭義雄老師，以及羅志偉老師，你們淵博的學識，以及對實驗認真專業的態度，真是讓我大開眼界，受益匪淺。



實驗室的學長姐，實驗室的同學，實驗室的學弟妹大家在一起的日子真是有趣又溫馨，謝謝大家的幫助，讓我順利完成我的碩士論文。

最後要謝謝最支持我的家人，爸爸媽媽及哥哥，沒有你們的栽培沒有今天的我。我想這不是一個結束，而是另一個開始，未來挑戰更加艱辛，加油吧!!

目 錄

中文摘要	I
英文摘要	II
誌謝	III
目錄	IV
圖目錄	VII
第一章 緒論	
1-1 兆赫輻射時析頻譜	1.
1-2 鈣鈦礦鑷錳氧化合物	2.
第二章 光學量測系統-兆赫輻射產生與偵測	
2-1 兆赫輻射產生機制	5.
2-2 兆赫輻射的偵測-自由空間電光取樣.....	7.
2-2-1 線性電光效應	8.
2-2-2 ZnTe 電光晶體	9.
2-2-3 電光調制	14.
2-3 實驗建構之 THz-TDS 系統	17.

第三章 薄膜製備與基本特性分析

3-1 樣品晶格分析	21.
3-2 薄膜製程步驟	22.
3-3 薄膜特性分析	
3-3-1 電阻-溫度量測	23.
3-3-2 X-ray 繞射	28.
3-3-3 原子力顯微鏡	30.

第四章 實驗相關電磁理論

4-1 傅立葉轉換	31.
4-2 實驗透射係數比	31.
4-3 薄膜性質的理論計算	
4-3-1 理論透射係數比	32.
4-3-2 介電常數與複數折射率	34.
4-3-3 光學電導率	35.
4-4 介電函數之簡單模型	35.

第五章 實驗結果與討論

5-1 THz-TDS 經空氣量測結果	38.
5-1-1 時域訊號	38.
5-1-2 頻域訊號	39.

5-2 THz-TDS 經 NGO 基板量測結果	41.
5-2-1 時域訊號	41.
5-2-2 頻域訊號	42.
5-2-3 NGO 基板的量測結果	43.
5-3 THz-TDS 經 LCMO 薄膜量測結果	45.
5-3-1 不同溫度下的時域、頻域訊號	45.
5-3-2 複數穿透係數比	46.
5-3-3 複數折射率	47.
5-3-4 介電函數	49.
5-3-5 參數擬合	50.
5-3-6 光學電導率	52.
第六章 結論與展望	54.
參考文獻	55.



圖目錄

圖 1-1. 兆赫輻射波段在電磁波頻譜中的位置	1.
圖 2-1. 飛秒脈衝雷射造成光電流，與兆赫輻射電場大小	6.
圖 2-2. THz Emitter 電極正面示意圖	7.
圖 2-3. THz 電場輻射示意圖	7.
圖 2-4. THz 輻射及入射探測光對 ZnTe 晶體之相對位置	11.
圖 2-5. 電光晶體新舊主軸之關係圖	12.
圖 2-6. 電光取樣系統架構圖	17.
圖 2-7. 穿透率與相位延遲的關係	17.
圖 2-8. 自由空間電光取樣系統	20.
圖 3-1. Perovskite 結構示意圖	21.
圖 3-2. PLD 系統示意圖	23.
圖 3-3. 溫度-電阻量測系統	24.
圖 3-4. 四點量測	25.
圖 3-5. Double-exchange 示意圖	26.
圖 3-6. LCMO 薄膜溫度-電阻關係圖	27.
圖 3-7. $(La_{1-x}Ca_x)MnO_3$ 的相圖	27.
圖 3-8. LCMO 的 XRD	29.

圖 3-9. LCMO 的 XRD(放大)	29.
圖 3-10. LCMO 的 AFM	30.
圖 4-1. THz 垂直經過薄膜再薄膜中傳遞示意圖	34.
圖 4-2. THz 經過空氣與樣品示意圖	34.
圖 5-1. THz 輻射單純經過空氣所量取到的時域訊號分布	38.
圖 5-2. Power Spectrum of THz Radiation	39.
圖 5-3. THz 輻射時域訊號與頻域訊號	40.
圖 5-4. THz 水氣吸收頻譜	41.
圖 5-5. THz 穿透 NGO 基板時域頻譜	42.
圖 5-6. THz 穿透 NGO 基板頻域訊號	43.
圖 5-7. 經 NGO 基板之複數折射率量測結果	44.
圖 5-8. 不同溫度下的 THz 輻射時域訊號	45.
圖 5-9. 不同溫度下將時域訊號做傅立葉轉換	46.
圖 5-10. LCMO/NGO 之實驗透射係數比	47.
圖 5-11. 複數折射率實部	48.
圖 5-12. 複數折射率虛部	48.
圖 5-13. 介電函數與數學擬合	49.
圖 5-14. 擬合的散射率	51.
圖 5-15. 擬合的電漿頻率	51.

圖 5-16. LCMO 薄膜的光學電導率 52.

圖 5-17. 電導率在 0.7THz 隨溫度變化的關係 52.



第一章

緒論

1-1 兆赫輻射時析頻譜(Terahertz Time-Domain-Spectroscopy)

1980 年代，兆赫輻射波(Terahertz, 10^{12} Hz)光源的取得相當不易，在電磁光譜中屬於空乏未知的區域，1988 年D. Grischkowsky 等人以光導偶極天線當作發射器成功產生比微波波段更短的電磁脈衝[1]，且將光源頻寬推向兆赫量級，從此之後使用超短脈衝雷射激發各種形式天線[2-5]產生兆赫輻射便陸續出現，到目前為止超短脈衝對於兆赫輻射的產生與應用仍然為物理界重要研究課題；兆赫輻射光源有其特色以及優點因而受到廣泛的研究，例如光子能量低，約只有毫電子伏特，與傳統X-Ray比較，兆赫輻射攜帶能量小，對於研究物質性質不會因為電離造成被測樣品的破壞。

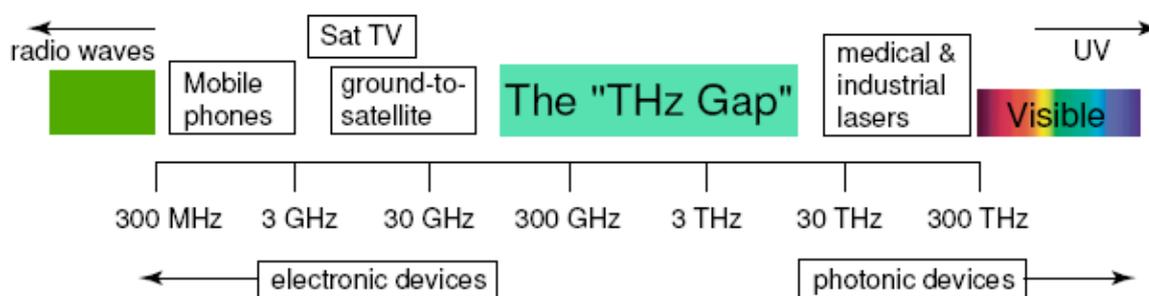


圖 1-1 兆赫輻射波段在電磁波頻譜中的位置

兆赫輻射的產生更提供了遠紅外線(Far-Infrared)其時間解析達到皮秒(picosecond)級的光譜分析，兆赫輻射時析頻譜(Terahertz

Time-Domain-Spectroscopy)的發展更是研究材料相當有力的工具，因此，近十幾年來有相當多的相關文獻都有相關的研究，這些領域包含氣體、液體、介電材料、半導體、超導體等的分析量測，其中在凝態物理方面著名的例子，1990年D. Grischkowsky等人針對石英等介電材料與矽、砷化鎵等半導體研究其兆赫波的吸收光譜，發現到載子濃度對吸收特性有一定影響[6-7];目前 THz-TDS 的量測技術相較於過去光譜量測技術有諸多的優點：

(1)可以直接量測時域暫態波形，得到穿透振幅(amplitude)和相位(phase)相關訊息，進而推測包含實部與虛部的複數光譜(例如：複數折射係數、複數介電常數等等)，並且不需要透過Kramers-Kronig transformation的計算

(2)在偵測 THz wave 時可以避免背景輻射的熱效應

(3)擁有很大的頻寬，從 GHz 到數十 THz 的範圍，覆蓋整個遠紅外線波段

(4)這種時間解析的量測技術有很高的訊噪比(SNR)。

1-2 鈣鈦礦錳氧化物

具有鈣鈦礦結構的 $(R_{1-x}, A_x)MnO_3$ (R是三價的稀土族元素，A是二價的鹼土族離子)材料被發現到具有龐磁阻(CMR)的現象，引發了學術界與產業界極大的注意。所謂的磁阻是外加磁場導致樣品電阻改變;錳氧化物在接近相變溫度(T_c)時，外加磁場會讓其電阻劇烈地下降，故稱之為龐磁阻。鈣鈦礦結構錳氧化物(perovskite-type manganites)的研究早在 1950 年已被

Jonker 和 Van Santen [8] 所發表。其中，就以 $\text{La}_{1-x}\text{A}_x\text{MnO}_3$ (A: Ca, Sr, Ba; $0 \leq x \leq 1$) 做了一系列磁性與電性的量測。為了解釋在居禮溫度 (Curie temperature; T_c) 發生的順磁-鐵磁相變 (paramagnetic-ferromagnetic transition) 以及在 T_{IM} ($\sim T_c$) 發生的絕緣-金屬相變 (insulator-metal transition)，Zener 提出了雙重自旋交換機制 (double exchange mechanism; DE) [9-10]。當龐磁阻 (colossal magnetoresistant ; CMR) 現象 [11-12] 在此系列材料中被發現後，再一次地引起研究的熱潮，而如何解釋其金屬絕緣相變的成因，再次被熱烈討論；其自旋、電荷有序 (spin & charge ordering) 現象，也成為熱門的課題。



在本論文中，我們針對磁性材料 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 薄膜，進行 TDS 量測分析，藉由此項技術分析，可以得知薄膜在 THz 頻率範圍下對不同頻率及溫度相關物理量變化的行為，實驗時，須量測經樣品之訊號 $E_{sam}(t)$ 和量測另一道參考訊號 $E_{ref}(t)$ ，所需量測之兩道 THz 輻射時域訊號對陶瓷基板而言， $E_{sam}(t)$ 為穿透陶瓷基板之 THz 輻射時域波形 $E_{subs}(t)$ ， $E_{ref}(t)$ 為未穿透陶瓷基板之 THz 輻射時域波形 $E_{air}(t)$ ，將此兩道訊號做傅立葉轉換後可得陶瓷基板透射係數比 $T_{exp}^*(\omega, n_s^*) = E_{sam}^*(\omega, n_s^*) / E_{ref}^*(\omega) = E_{subs}^*(\omega, n_s^*) / E_{air}^*(\omega)$ ；而對 LCMO 薄膜而言， $E_{sam}(t)$ 為穿透 LCMO 薄膜和基板之 THz 輻射時域訊號 $E_{film}(t)$ ， $E_{ref}(t)$ 為穿透陶瓷基板之 THz 輻射時域訊號 $E_{subs}(t)$ ，將此兩道訊號做傅立葉轉換後可得 LCMO 透射係數

比 $T_{\text{exp}}^*(\omega, n_f^*) = E_{\text{sam}}^*(\omega, n) / E_{\text{ref}}^*(\omega) = E_{\text{film}}^*(\omega, n_f^*) / E_{\text{subs}}^*(\omega)$ ，接著我們藉由穿透係數得到複數折射率，經過計算推得介電常數，在本論文中我們另外把LCMO在低溫金屬相時引入Drude-model，藉由分析介電常數可以擬合出隨溫度隨頻率變化的電漿頻率(Plasma frequency)與散射率(Scattering rate)。

本論文共分成六章，除了第一章為 THz-TDS 與磁性材料的簡介之外，其餘依序為第二章介紹完整 THz-TDS 實驗原理與實驗架構，第三章為 LCMO 磁性薄膜的製備與特性分析，第四章為實驗計算所用到的電磁相關理論，第五章為實驗結果與討論，第六章為結論與展望。



第二章

光學量測系統-兆赫輻射產生與偵測

2-1 兆赫輻射產生機制

關於短脈衝雷射產生 THz 常見的機制主要有光導電流脈衝(Current surge)和非線性光整流(Optical rectification)，我們以飛秒雷射脈衝(femtosecond laser pulse)照射半導體材料 InP 表面產生 THz 輻射。當飛秒雷射的超短脈衝照射在半導體材料表面或介面時，由於雷射光的能量大於半導體材料的能隙(energy gap)，半導體材料表面將被激發產生電子-電洞對 (electron-hole pairs)，如果此時半導體表面或介面存有一個靜電場，此電子-電洞對將分離並加速而形成一種暫態的光電流，此光電流會隨著脈衝雷射光的激發作時變而產生瞬間電偶極輻射，其輻射電場的大小正比於電流對時間的一階導數(Eq. 2.1)，如圖 2-1，其實後來的研究者亦發現即使入射光子能量小於半導體能隙時，仍然有兆赫輻射的產生 [13]，稱為虛光導效應(virtual photoconducting)。

$$E(t) \propto \frac{\partial J(t)}{\partial t} \quad \text{Eq. (2.1)}$$

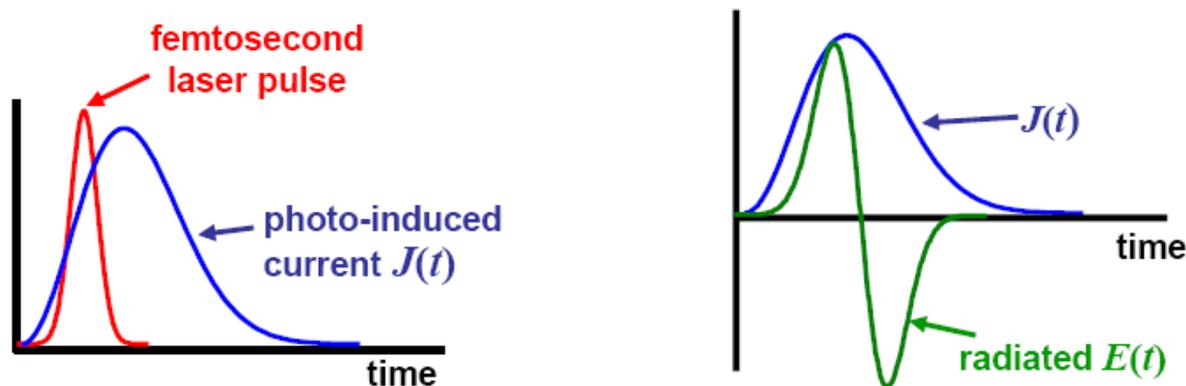


圖 2-1：飛秒脈衝雷射造成光電流，與兆赫輻射電場大小[14]

光電導方法產生的 THz 輻射脈衝包含的頻譜比較低，一般而言，不超過幾個 THz；而光整流效應所產生的 THz 頻寬較寬，其是利用非對稱性的晶體，如電光晶體受到高強度的雷射光入射時，因為本身的光學非線性效應產生感應極化，由於暫態的感應極化對時間的一階微分，即可產生光電流，此隨時間改變的光電流，亦可產生自由空間傳播的電磁輻射[15-16]，因此電磁輻射的電場是正比於二階非線性介電極化向量對時間的二次微分。

我們以半絕緣磷化銦（Semi-Insulating InP）材料作為產生 THz 輻射的元件，我們在 SI-InP 基板上鍍金當作電極，並提供外加電場對雷射光所激發的自由載子作加速，電極的圖形如圖 2-2 所示，其相關數值及產生 THz 輻射的示意圖如圖 2-3 所示。

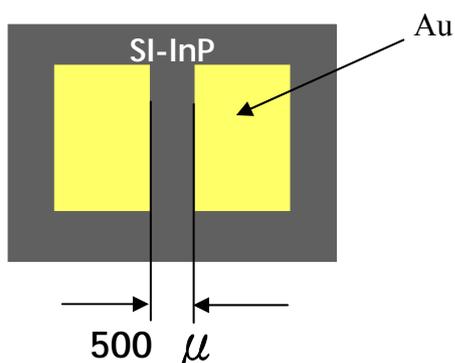


圖 2-2：THz Emitter 電極正面示意圖

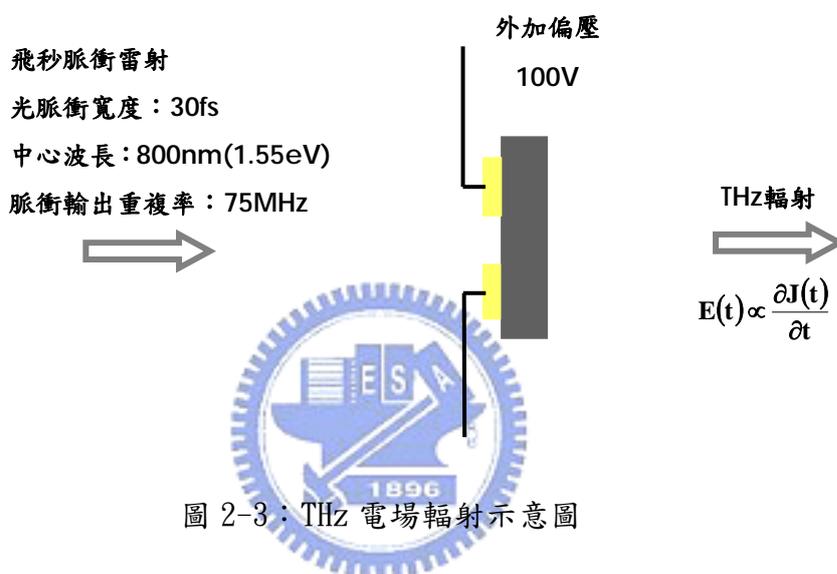


圖 2-3：THz 電場輻射示意圖

2-2 兆赫輻射的偵測-自由空間電光取樣 (Free Space E-O Sampling) [17]

關於兆赫輻射的偵測方法有光導偶極天線的光導取樣的方法、遠紅外線干涉技術、和自由空間電光取樣技術，其中自由空間電光取樣的方法優點較多，它可以克服光導取樣偶極天線中共振頻率的困擾且所產生的電磁輻射可以提供振幅和相位的資訊，電光取樣簡而言之是利用電光晶體中的線性電光效應(Pockel effect)，其中交互作用時間短，提供了快速平穩的頻率響應，接著再以電光調制的方式量測穿透光的強度，使兆赫輻射的訊

號可以真實的被量測出來[18]。

2-2-1 線性電光效應

一些晶體在外加電場作用下會改變材料的光學各向異性性質，其折射率會隨著電場大小產生變化，稱為電光效應，而其中折射率隨外加電場呈線性關係變化，稱為線性電光效應(Pockels effect)，這種現象使得通過的入射光的極化態會隨外加場而變化。

在沒有外加電場時，晶體折射率的空間分布可以用折射率橢圓球來表示：



$$\sum_{ij} b_{ij} x_i x_j = 1 \quad \text{Eq. (2.2)}$$

其中材料的介電不滲透張量 (dielectric impermeability tensor) $b_{ij} = \epsilon_0 (\epsilon_{ij})^{-1} = (n)^{-2}$ ，代表光頻下介電常數的倒數。外加電場所引起的晶體折射率變化，可用 b_{ij} 的變化量 Δb_{ij} 來表示， Δb_{ij} 可用級數展開式表示：

$$\Delta b_{ij} = b_{ij}(\vec{E}) - b_{ij}(0) = \sum_k \gamma_{ijk} E_k + \sum_{k,l} S_{ijkl} E_k E_l \quad \text{Eq. (2.3)}$$

右式第一項代表線性電光效應，是波克爾 (Pockels) 在 1893 年發現的，故又稱之為波克爾效應 (Pockels effect)。右式第二項代表二次電光效應，是克爾 (Kerr) 在 1875 年發現的，故又稱之為克爾效應 (Kerr

effect)。更高階的電光效應非常微弱，故予以省略。

2-2-2 ZnTe電光晶體

再我們的實驗中，我們使用碲化鋅晶體來量測 THz 電磁輻射，這種晶體為線性電光晶體，考慮電光效應：

$$\Delta b_{ij} = \sum_k \gamma_{ijk} E_k \quad \text{Eq. (2.4)}$$

由於 ZnTe 電光晶體具有 $\Delta b_{ij} = \Delta b_{ji}$ 的特性，亦即 $\gamma_{ijk} = \gamma_{jik}$ ，我們用下標 l 代替 ij ，可改記為：

$$ij = 11, 22, 33, (23, 32), (31, 13), (12, 21)$$

$$l = 1, 2, 3, 4, 5, 6$$

再改寫為矩陣形式：

$$\begin{bmatrix} \Delta(1/n^2)_1 \\ \Delta(1/n^2)_2 \\ \Delta(1/n^2)_3 \\ \Delta(1/n^2)_4 \\ \Delta(1/n^2)_5 \\ \Delta(1/n^2)_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \gamma_{11} & \gamma_{12} & \gamma_{13} \\ \gamma_{21} & \gamma_{22} & \gamma_{23} \\ \gamma_{31} & \gamma_{32} & \gamma_{33} \\ \gamma_{41} & \gamma_{42} & \gamma_{43} \\ \gamma_{51} & \gamma_{52} & \gamma_{53} \\ \gamma_{61} & \gamma_{62} & \gamma_{63} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (2.5)}$$

如此便能清楚地看出折射率對電場的變化。

我們選擇以 ZnTe 晶體為我們自由空間取樣系統的電光晶體。ZnTe 晶體為結構最簡單的電光晶體屬於高對稱性立方體，屬於閃鋅礦 (Zinc-blend)

結構，具 $\bar{4}3m$ 點群對稱性，其電光係數具對稱性可以寫成如下：

$$\gamma_{ij} = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ \gamma_{41} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{41} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{41} \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (2.6)}$$

在未加電場下，此結構是同向性晶體，其各方向的折射率均相同，令 $n_x = n_y = n_z = n_0$ 折射橢圓球 (the index ellipsoid) 方程式如下：

$$\frac{x^2}{n_0^2} + \frac{y^2}{n_0^2} + \frac{z^2}{n_0^2} = 1 \quad \text{Eq. (2.7)}$$

一般而言，若在電光晶體上外加電場，如外加 THz 輻射之電場，則電光晶體對應之折射橢圓球變成

$$\left(\frac{1}{n_x^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1\right)x^2 + \left(\frac{1}{n_y^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2\right)y^2 + \left(\frac{1}{n_z^2} + \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3\right)z^2 + 2\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 yz + 2\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 xz + 2\Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 xy = 1 \quad \text{Eq. (2.8)}$$

以 ZnTe 晶體為例，當外加電場時，

$$\begin{aligned} \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_1 &= \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_2 = \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_3 = 0 \\ \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_4 &= \gamma_{41} E_x \\ \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_5 &= \gamma_{41} E_y \\ \Delta\left(\frac{1}{n^2}\right)_6 &= \gamma_{41} E_z \end{aligned} \quad \text{Eq. (2.9)}$$

所以加電場後，ZnTe 晶體對應之折射橢圓球變成：

$$\left(\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2}\right) + 2\gamma_{41}(E_x yz + E_y xz + E_z xy) = 1 \quad \text{Eq. (2.10)}$$

由於我們將外加電場垂直 ZnTe(110)平面而且不具有 z 方向分量，如圖 2-4 所示， $E_x = -E_{THz}/\sqrt{2}$ 、 $E_y = E_{THz}/\sqrt{2}$ 所以可以先將折射率橢圓球化簡為：

$$\left(\frac{x^2 + y^2 + z^2}{n_0^2}\right) + \sqrt{2}\gamma_{41}E_{THz}(xz - yz) = 1 \quad \text{Eq. (2.11)}$$

在 (2.11) 式中有交叉項 (Mixed Terms) xz 、 yz 項，代表折射橢圓球的主軸 (principle axis) 並不是位於座標軸上，為了方便解得折射率，我們須建立新坐標軸，使折射橢圓球的主軸位於座標軸上。首先我們將座標以 z 軸為轉軸逆時針旋轉 45° ，新座標軸 x' 、 y' 和 z' 和原座標軸 x 、 y 、 z 之關係如圖 2-5 所示，新舊座標軸將其以數學式表達則為：

$$\hat{x} = \frac{\hat{x}' - \hat{y}'}{\sqrt{2}} \quad , \quad \hat{y} = \frac{\hat{x}' + \hat{y}'}{\sqrt{2}} \quad , \quad \hat{z} = \hat{z}' \quad \text{Eq. (2.12)}$$

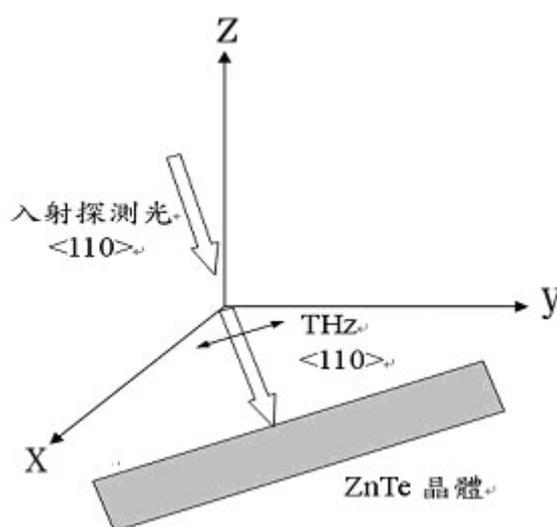


圖 2-4：THz 輻射及入射探測光對 ZnTe 晶體之相對位置

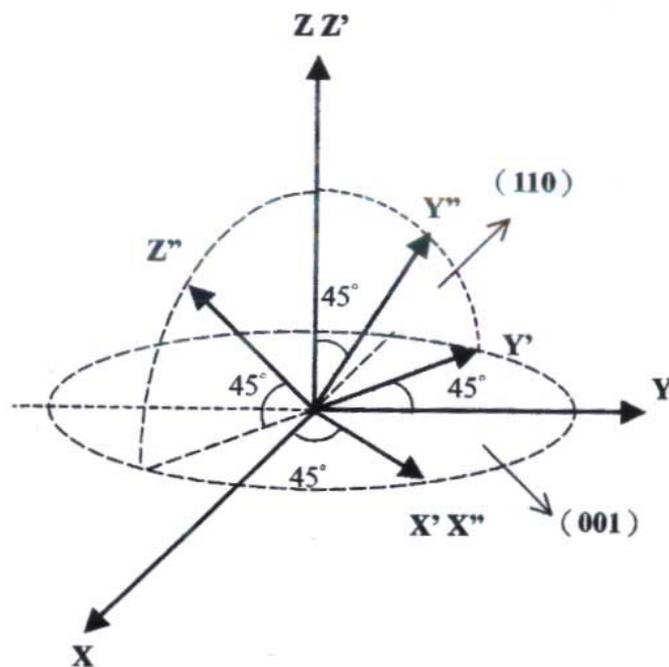


圖 2-5：電光晶體新舊主軸之關係圖

將 (2.12) 式代入 (2.11) 式得原折射橢圓球在新座標軸上之表示式如下：

$$\left(\frac{x'^2 + y'^2 + z'^2}{n_0^2} \right) - 2\gamma_{41} E_{THz} y' z' = 1 \quad \text{Eq. (2.13)}$$

由於 (2.13) 式中仍有交叉項 $y' z'$ ，故我們再次對 (2.13) 式進行座標轉換，使其折射橢圓球的主軸位於座標軸上。我們將 (2.13) 式中之座標軸沿 x' 軸逆時針旋轉 45° 做轉換，新座標軸 x'' 、 y'' 、 z'' 和 x' 、 y' 、 z' 之關係如圖 2-5 所示，將其以數學式表達則為：

$$\hat{x}' = \hat{x}'' \quad , \quad \hat{y}' = \frac{\hat{y}'' - \hat{z}''}{\sqrt{2}} \quad , \quad \hat{z}' = \frac{\hat{y}'' + \hat{z}''}{\sqrt{2}} \quad \text{Eq. (2.14)}$$

將 (2.14) 式代入 (2.13) 式中，得折射橢圓球二次轉換後的表示式

如下：

$$\frac{x''^2}{n_0^2} + \left(\frac{1}{n_0^2} - \gamma_{41} E_{THz} \right) y''^2 + \left(\frac{1}{n_0^2} + \gamma_{41} E_{THz} \right) z''^2 = 1 \quad \text{Eq. (2.15)}$$

其中 \hat{x}'' 、 \hat{y}'' 、 \hat{z}'' 為轉換後的主軸；令 n_x'' 、 n_y'' 、 n_z'' 為新主軸方向上的折射率，另外由於 $\gamma_{41} E_{THz} \ll 1$ ，我們對 (2.15) 式中的 n_y'' 及 n_z'' 取近似：

$$\begin{aligned} n_x'' &= n_0 \\ n_y'' &= \left(\frac{1}{n_0^2} - \gamma_{41} E_{THz} \right)^{-\frac{1}{2}} = n_0 \left(1 - n_0^2 \gamma_{41} E_{THz} \right)^{-\frac{1}{2}} \approx n_0 + \frac{1}{2} n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \\ n_z'' &= \left(\frac{1}{n_0^2} + \gamma_{41} E_{THz} \right)^{-\frac{1}{2}} = n_0 \left(1 + n_0^2 \gamma_{41} E_{THz} \right)^{-\frac{1}{2}} \approx n_0 - \frac{1}{2} n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \end{aligned} \quad \text{Eq. (2.16)}$$

由 (2.16) 式可看出加入電場之後 \hat{y}'' 方向上的折射率會比未加入電場多出 $\frac{1}{2} n_0^3 \gamma_{41} E_{THz}$ ，而 \hat{z}'' 方向折射率會減少 $\frac{1}{2} n_0^3 \gamma_{41} E_{THz}$ ，所以光在沿 n_y'' 及 n_z'' 兩個方向前進時，兩者間的相速度不同，在晶體內行走 L 長度的距離 (ZnTe 厚度) 後將產生一相位延遲 (phase retardation) Γ ：

$$\Gamma = (n_y'' - n_z'') \frac{\omega L}{c} \quad \text{Eq. (2.17)}$$

將 (2.16) 式代入 (2.17) 式，改寫 (2.17) 式：

$$\Gamma = \frac{n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \omega L}{c} = \frac{2\pi}{\lambda} L n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \quad \text{Eq. (2.18)}$$

2-2-2 小節推導了 ZnTe 的工作原理：ZnTe 晶體在無電場的狀態下為同向性晶體，但若在 ZnTe 晶體上施以一外加場，如 THz 輻射場，此輻射場將使 ZnTe 晶體由向同性晶體轉為異向性晶體，如前面所推導，在 y'' 及 z'' 軸上之折射率不同，使入射光在 y'' 及 z'' 兩軸間產生一相位差，由式 (2.18)，此相位差和外加電場，即本論文中之 THz 輻射場，成正比。

2-2-3 電光調制

當我們的 THz 輻射作用在 ZnTe 晶體後產生的電光效應，我們應用在 y'' 及 z'' 軸上之折射率不同，產生的相位差，因此可以量測偏壓在 ZnTe 晶體的 THz 輻射電場的大小。

如圖 2-6，THz 輻射與雷射探測光均正向入射 ZnTe(110)晶體，THz 輻射電場 E_{THz} 偏壓及雷射探測光偏振方向均在 ZnTe 晶體的 y' 方向上。首先考慮在圖 2-6 中不含 $\lambda/4$ 波板之情形，入射 ZnTe 晶體之雷射探測光電場 E_{pb} 偏振方向可以 $E_{pb} \hat{y}'$ 表示且進一步改寫以 y'' 及 z'' 軸表示：

$$E_{in} = E_{pb} \hat{y}' = \frac{E_{pb}}{\sqrt{2}} (\hat{y}'' - \hat{z}'') \quad \text{Eq. (2.19)}$$

當探測雷射光入射 ZnTe 晶體時，其在 y'' 和 z'' 的分量所對應之折率分別為 n_y'' 、 n_z'' ，故經此加偏壓之電光晶體時，會產生與 E_{THz} 成正比之相位差 Γ ，

如式 (2.18) 所示，故經 ZnTe 晶體後之探測雷射光可寫作：

$$E_{out} = \frac{E_{pb}}{\sqrt{2}} (\hat{y}'' - \hat{z}'' e^{i\Gamma}) \quad \text{Eq. (2.20)}$$

若在電光晶體後面加入一極化分光鏡 (PBS, Polarizer Beam Splitter)，

如圖 2-6 所示，則可將 y' 和 z' 方向的線偏極光分開，其分量分別為 $E_{out,y'}$

和 $E_{out,z'}$ ：

$$E_{out,y'} = E_{out} \cdot \hat{y}' = \left(\frac{E_{pb}}{\sqrt{2}} (\hat{y}'' - \hat{z}'' e^{i\Gamma}) \right) \cdot \left(\frac{\hat{y}'' - \hat{z}''}{\sqrt{2}} \right) = \frac{E_{pb}}{2} (e^{i\Gamma} + 1) \quad \text{Eq. (2.21)}$$

$$E_{out,z'} = E_{out} \cdot \hat{z}' = \left(\frac{E_{pb}}{\sqrt{2}} (\hat{y}'' - \hat{z}'' e^{i\Gamma}) \right) \cdot \left(\frac{\hat{y}'' + \hat{z}''}{\sqrt{2}} \right) = \frac{E_{pb}}{2} (e^{i\Gamma} - 1) \quad \text{Eq. (2.22)}$$

在 y' 軸及 z' 軸上之穿透率 (transmission) t 則分別表示為 $t_{y'}$ 及 $t_{z'}$ ：

$$t_{y'} = \frac{|E_{out,y'}|^2}{|E_{in}|^2} = \frac{1}{4} |\cos \Gamma + i \sin \Gamma + 1|^2 = \frac{1}{2} (\cos \Gamma + 1) \quad \text{Eq. (2.23)}$$

$$t_{z'} = \frac{|E_{out,z'}|^2}{|E_{in}|^2} = \frac{1}{4} |\cos \Gamma + i \sin \Gamma - 1|^2 = \frac{1}{2} (1 - \cos \Gamma) = \sin^2 \left(\frac{\Gamma}{2} \right) \quad \text{Eq. (2.24)}$$

式 (2.23) 及式 (2.24) 中之 t 對 Γ 之關係圖如圖 2-7 所示。我們所外加的 THz 場很小，所以 ZnTe 晶體所產生的相位差 Γ 也很小，由圖 2-7 來看，若 Γ 很小，則穿透後的探測光波形將失真，並且需要比較大的 Γ 才能產生一相對應之穿透率，若我們在 ZnTe 晶體之後再加入一 $\lambda/4$ 波板，由 $\lambda/4$ 波板提供 $\pi/2$ 之相位差，則可看到在圖 2-7 中，其操作區將移至圖中之線性操作區，以解決上述之失真問題，加入 $\lambda/4$ 波片後，相位差為

$\Gamma + \Gamma_B$ ，我們改寫式 (2.23) 及式 (2.24) 如下：

$$t_{y'} = \frac{1}{2}(\cos(\Gamma + \Gamma_B) + 1) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos(\Gamma + \Gamma_B) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cos\left(\Gamma + \frac{\pi}{2}\right) \cong \frac{1 - \Gamma}{2} \quad \text{Eq. (2.25)}$$

$$t_{z'} = \sin^2\left(\frac{\Gamma + \Gamma_B}{2}\right) = \frac{1 - \cos\left(\Gamma + \frac{\pi}{2}\right)}{2} \cong \frac{1 + \Gamma}{2} \quad \text{Eq. (2.26)}$$

設入射光強度為 P_0 ，則其在 y' 及 z' 兩軸上之穿透強度分別為：

$$P_{y'} \cong \left(\frac{1 - \Gamma}{2}\right)P_0 \quad P_{z'} \cong \left(\frac{1 + \Gamma}{2}\right)P_0 \quad \text{Eq. (2.27)}$$

經由光電二極體分別讀取其光強度值，再求取此兩道光之強度差 ΔI ，

則可得到 ΔI 如下式所示：

$$\Delta I = P_{z'} - P_{y'} = \Gamma P_0 \quad \text{Eq. (2.28)}$$

將式 (2.18) 式入 (2.28)：

$$\Delta I = \frac{n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \omega L P_0}{c} \quad \text{Eq. (2.29)}$$

當 E_{THz} 為 0 時，兩道光之強度差為 0，當 E_{THz} 不為 0 時，光強度差與其成線性關係，故由此光強度差 ΔI 與 E_{THz} 之關係，我們可描繪出 E_{THz} 之波形變化。

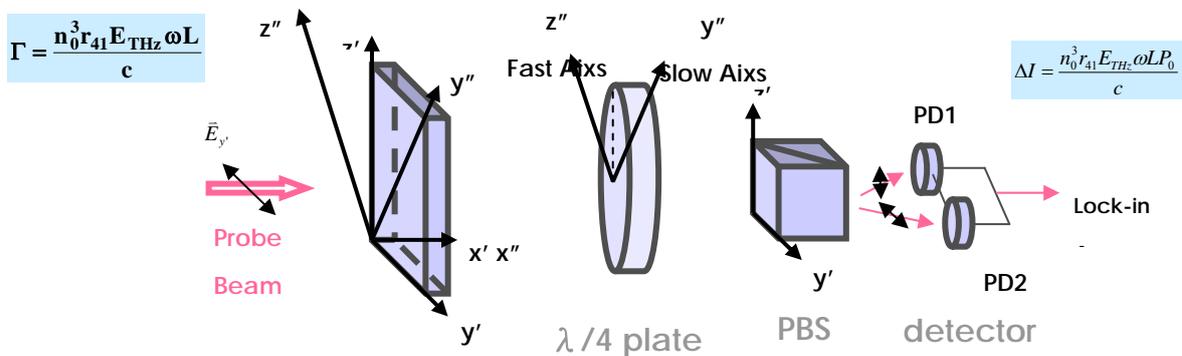


圖 2-6：電光取樣系統架構圖

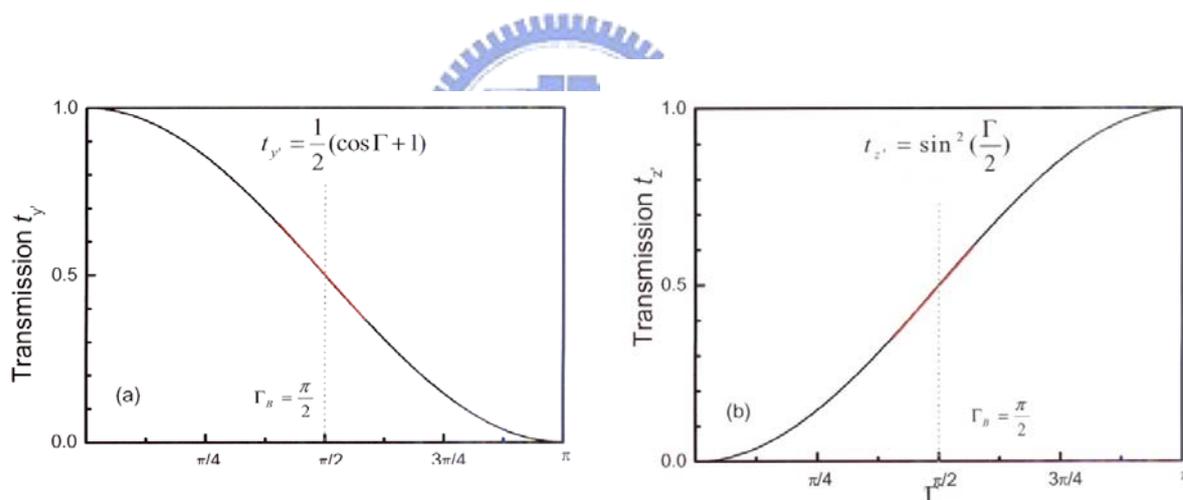


圖 2-7：穿透率與相位延遲的關係

2-3 實驗建構之 THz-TDS 系統

我們產生 THz 輻射的雷射光學系統架設圖如圖 2-8。以鎖模鈦藍寶石雷射 (Mode Locked Ti-Sapphire Laser) 作為 THz 輻射的激發光源，使用連續波固態雷射 (Solid State Laser) 激發鈦藍寶石產生超短脈衝雷射，產

生的雷射光脈衝寬度約為 30fs，中心波長為 800nm，脈衝輸出重複率 (Repetition Rate) 為 80MHz，輸出功率約為 500mW，雷射光的偏振方向在水平方向。

脈衝雷射光源射出後，以分光鏡將之分成兩道強度比為 8:2 的雷射光，一道作為激發 THz 輻射的激發光 (pump beam)，另一道則為探測光 (probe beam)。

激發光先經 A. O. modulator 以 100KHz 頻率調制，並將此調制訊號送至鎖相放大器，以配合鎖相放大器偵測訊號，其訊號輸送線路簡圖如圖 2-6 所示。為了改變激發光與探測光之間的光程差，激發光經過由兩片反射鏡組成的時間延遲 (time delay) 裝置，其由一個移動控制器 (motion controller) 控制，並將此參數告知電腦，使我們可藉由調整時間延遲裝置的位置來改變激發光的光程。通過時間延遲裝置後，激發光經一透鏡聚焦於 THz 輻射元件上，激發此元件而產生 THz 輻射，THz 輻射產生後，我們以一對離軸拋物面鏡 (paraboloidal mirror) 將 THz 輻射導引至 ZnTe 晶體。

探測光經由另一道光路前進，經一個離軸拋物面鏡收集後聚於 ZnTe 晶體上，在此探測光的光路上，我們置放另一個 A. O. modulator，以得到與激發光光路上的 A. O. modulator 相同之群速色散值。我們在 ZnTe 晶體前置放一透射率與反射率各 50% 的分光鏡，將 THz 輻射與探測光合併於同一光

路上，並儘量使 THz 輻射與探測光聚於 ZnTe 晶體上的同一位置，由前述 ZnTe 之工作原理可知，THz 輻射場會影響 ZnTe 晶體的折射率，使得入射的探測光產生一相位延遲，本系統之 THz 輻射及探射光皆沿著 ZnTe 晶體之〈110〉方向前進，且 THz 輻射場的偏振方向在水平方向，故通過 ZnTe 晶體後探測光將產生一相位差 Γ ：

$$\Gamma = \frac{n_0^3 \gamma_{41} E_{THz} \omega L}{c} = \frac{2\pi}{\lambda} L n_0^3 \gamma_{41} E_{THz}$$

探測光再經過與其偏振方向成 45° 的 $\lambda/4$ 波片後， $\lambda/4$ 提供其快軸與慢軸 $\pi/2$ 的相位延遲後，使 ZnTe 晶體的電光調變偏壓點在線性區操作，由前述，我們可得透射係數比與 THz 輻射場之關係，之後由極化分光鏡將之分成偏振方向互相垂直的兩道光，並以光電二極體讀取這兩道光的訊號，最後對這兩道光訊號進行差分求得光強度比後，將訊號送至鎖相放大器。訊號經鎖相放大器做對長時間積分的平均後，和移動控制器的資訊一併匯入電腦，便可取得某個延遲時間 (delay time) 下的 THz 輻射強度。改變時間延遲裝置的位置，可使激發光與探測光間產生不同的光程差，藉由改變時間延遲裝置的位置提供不同的延遲時間，我們便可完整掃瞄出 THz 輻射的時域響應暫態波形。

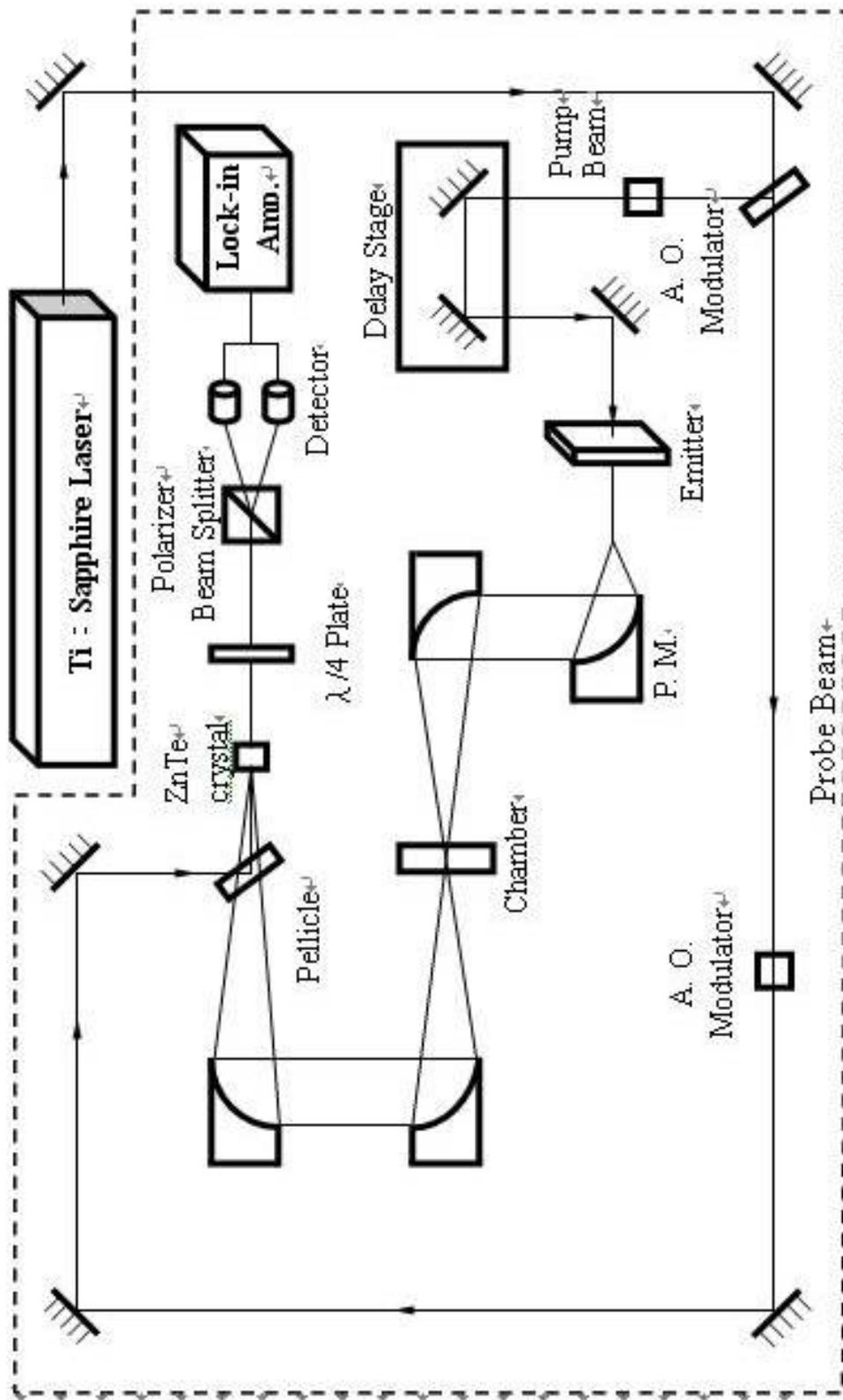


圖2-8 自由空間電光取樣系統

第三章

薄膜製備與基本特性分析

3-1 樣品晶格分析

磁性薄膜 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 為傳統具有龐磁阻特性的錳氧化物，是由 LaMnO_3 錳氧化物摻雜鈣元素去取代 30%的錳，其結構如圖 3-1 為鈣鈦礦 (perovskite) 結構的材料[19]，其為長方晶系(orthorhombic)，因此在成長薄膜之前必須尋找適當的基板(substrate)，其中晶格常數的匹配程度 (mismatch) 會影響薄膜與基板之間的應力(strain)關係導致薄膜電性與磁性的改變，因此成長良好結構的薄膜為重要課題。

表 3-1 列出幾種常見的基板其晶格常數與與結構，我們考慮幾個因素來決定我們的基板，首先晶格常數匹配程度， $\text{NGO} > \text{LAO} > \text{STO} > \text{MgO}$ ，再者 THz 輻射對基板的穿透能力也是很重要因素， $\text{MgO} > \text{NGO} > \text{LAO} > \text{STO}$ ，權衡之下，選擇 NGO 為成長材料是不錯的選擇。

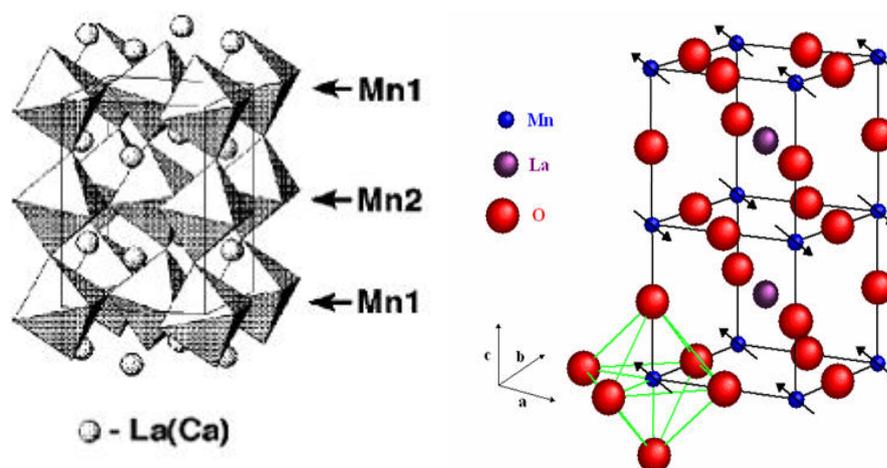


圖 3-1：Perovskite 結構示意圖[19]

表 3-1 薄膜與基板材料性質

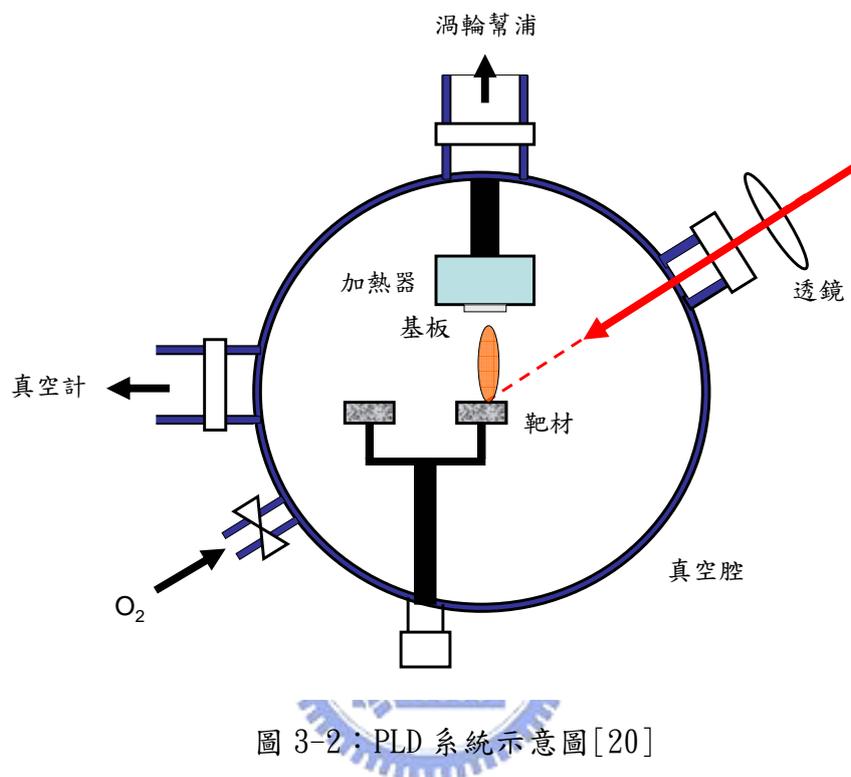
材料	晶體結構	晶格常數(nm)	THz 穿透
LCMO	Perovskite (orthorhombic)	a=0.545 b=0.545 c=0.772	
LAO	Perovskite (pseudocubic)	a=0.382 b=0.382 c=0.382	差(43%)
MgO	Rocksalt (cubic)	a=0.421 b=0.421 c=0.421	優(67%)
NGO	Perovskite (orthorhombic)	a=0.543 b=0.550 c=0.771	佳(47%)
STO	Perovskite (cubic)	a=0.391 b=0.391 c=0.391	很差

3-2 薄膜製程步驟

本實驗所成長的薄膜是用脈衝雷射蒸鍍法(Pulse Laser Deposition)製成，雷射光源是使用KrF準分子雷射，光源波長 248 nm，脈衝寬度約為 20 ns左右，雷射重複率 5 Hz與能量密度為 3~5 J/cm²。真空鍍膜系統如圖 3-2 所示，將雷射光源導至靶材LCMO上，將靶材旋轉時，雷射會從靶材表面均勻的打出蒸發物，進而蒸鍍到加熱的基板表面上。基板溫度可藉由加熱器加以控制，使得薄膜成長在我們所需要的條件。

製備薄膜程序首先必須將基板以丙酮、甲醇、去離子水清洗乾淨，以確保薄膜成長的品質，將真空腔體用機械幫浦與渦輪分子幫浦抽真空至 1×10^{-6} Torr以下，開始將基板加熱至蒸鍍溫度，在高真空腔體充氧氣至特定的氧壓，待基板溫度穩定後旋轉靶材，將雷射導至靶材上，雷射會從靶材表面打出蒸發物，蒸鍍至基板上，待雷射蒸鍍完成後，關閉加熱器及抽真空閥門，並是視需要做後段退火(in-situ post annealing)製程，最後

的降溫過程，將大量的氧氣通入並不斷讓氧氣溢出真空腔體，以進行淬冷 (quench)，取出樣品完成樣品製備。



3-3 薄膜特性分析

3-3-1 電阻-溫度量測

我們利用實驗室電阻-溫度的量測系統來量測磁性薄膜的電阻值隨溫度變化情形，藉由分析薄膜的相轉變溫度(T_M)，來初步判定薄膜的品質好壞，在低溫系統方面，包含閉路氦氣冷凍機，及一個真空絕熱腔體和抽真空的機械幫浦。實驗所用的量測方法是傳統電性的四點量測法，量測系統架構如圖 3-3。

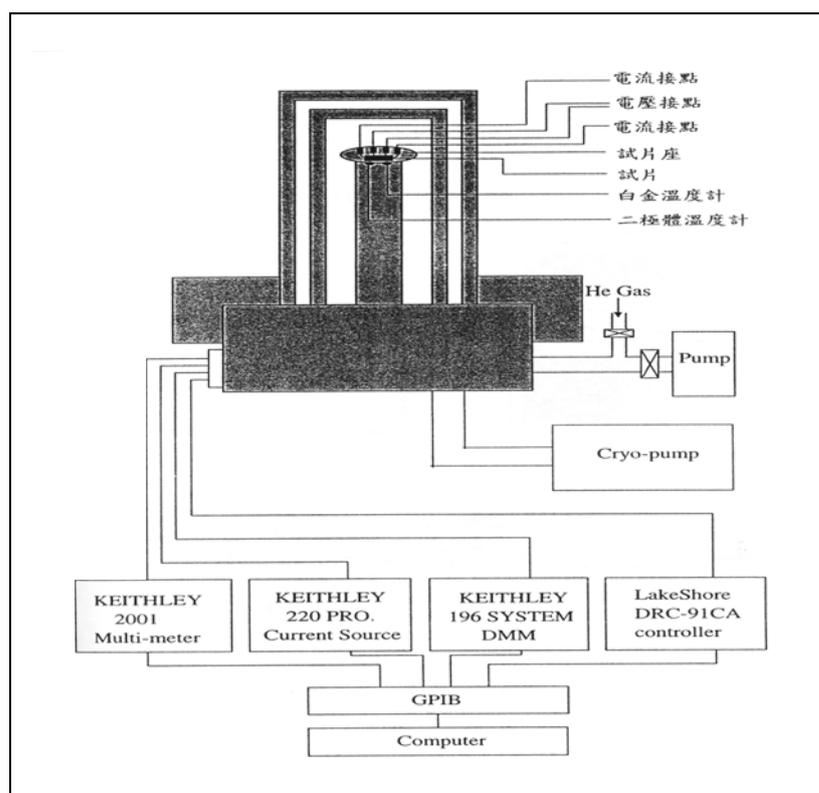


圖 3-3：溫度-電阻量測系統

量測原理如圖 3-4(a)，在樣品上接出四個點，A、B、C、D 四點分別接 I^+ 、 V^+ 、 V^- 、 I^- ，由於 B、C 之間是接伏特計，相當於一個很大的電阻跨接在 B、C 之間，所以由 A 點輸入的電流 I 會完全經過樣品本身，而由 D 點流出，所量到的電阻 R_m 為薄膜本身的 R 質，其公式為 Eq. (3.1) 所示。相較於傳統的兩點量測，如圖 3-4(b)，在樣品上接出 A、B 兩點，A、B 兩點分別接 I^+ 、 I^- ，且 A、B 之間亦接伏特計，所以，由 A 點輸入的電流 I 會經過兩條電線與樣品，所以量到的電阻 R_m 將包括兩條電線的電阻，即為 $R+2r$ ，其公式如 Eq. (3.2) 所示。

$$R_m = \frac{V}{I} = \frac{IR}{I} = R \quad \text{Eq. (3.1)}$$

$$R_m = \frac{V}{I} = \frac{I(R+2r)}{I} = R+2r \quad \text{Eq. (3.2)}$$

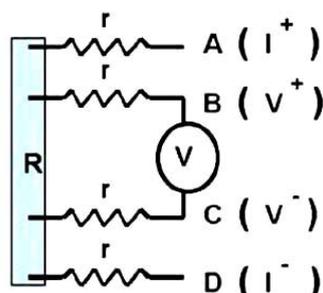


圖 3-4(a)：四點量測

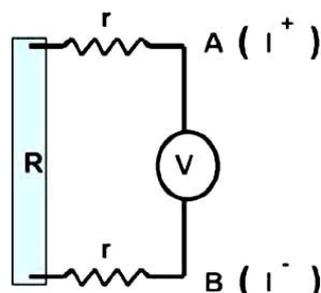


圖 3-4(b)：兩點量測

龐磁阻錳氧化物屬於強關聯系統，其聲子(phonon)、電荷載子(charge carrier)與磁性(magnetism)之間有很強的交互作用，例如龐磁阻錳氧化物的鐵磁—順磁相變，相變溫度 T_C ，與金屬—絕緣相變，相變溫度 T_{IM} ，其中 T_C 和 T_{IM} 幾乎一致，傳統的解釋方法為Double Exchange[21]，如圖 3-5。在龐磁阻錳氧化物中，以二價的鹼土族元素如 Ca^{2+} 、 Sr^{2+} 或 Ba^{2+} 來取代三價的稀土族元素如 La^{3+} 時，則錳以 Mn^{3+} 及 Mn^{4+} 同時存在，這時在 Mn^{3+} 的3d軌域上的 $e_g \uparrow$ 電子，會跳到中間氧的2p軌域上，而在氧2p軌域上的電子會再跳至另一邊 Mn^{4+} 的 $e_g \uparrow$ 軌域上，這就是Double Exchange。如此來解釋絕緣金屬的相變行為。

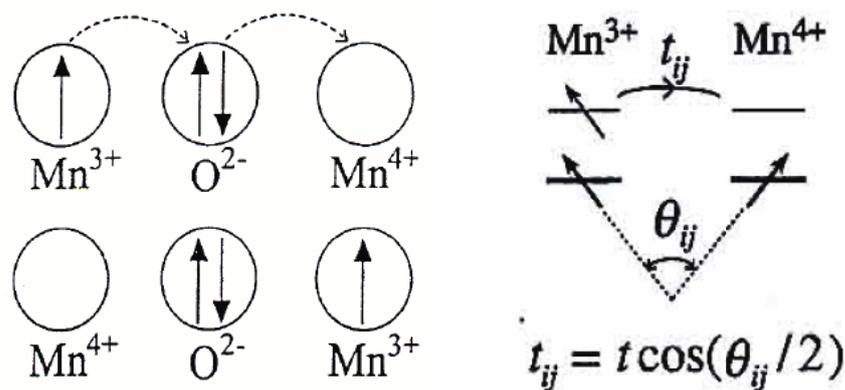
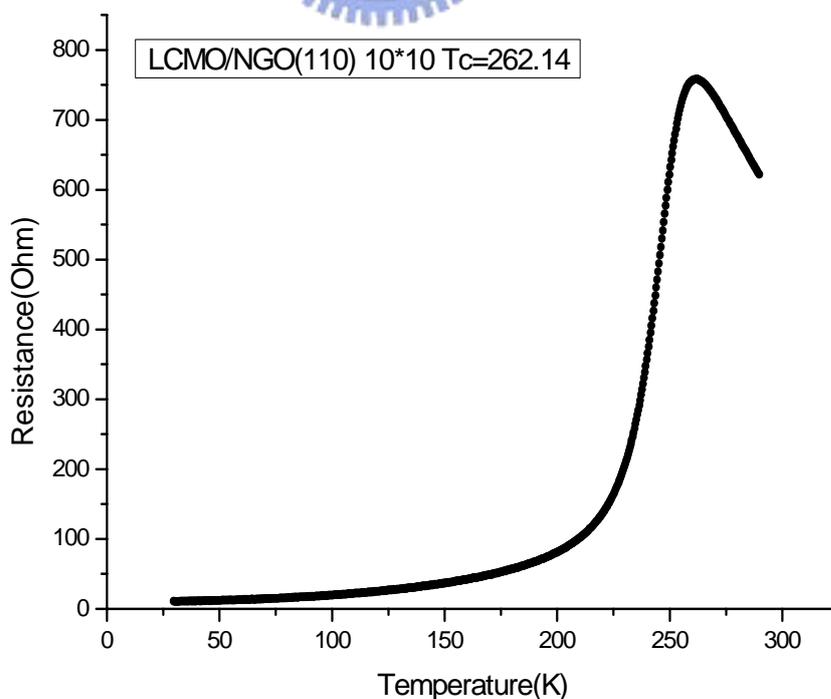


圖 3-5: Double-exchange 示意圖[22]

磁性薄膜 LCMO 成長在不同基板上的 R-T 量測，如圖 3-6，從室溫逐漸降到低溫大約 30K，電阻特性先慢慢增加，一到相變溫度電阻值大幅降低，符合錳氧化物絕緣金屬轉變的特性，另外相變溫度可以看出薄膜品質的好壞，如圖 3-7， $(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{MnO}_3$ 的相圖可知當鈣含量為 0.3 時相變溫度約在 250-260K 之間，我們成長的 LCMO 薄膜的相變溫度皆在這個範圍內。



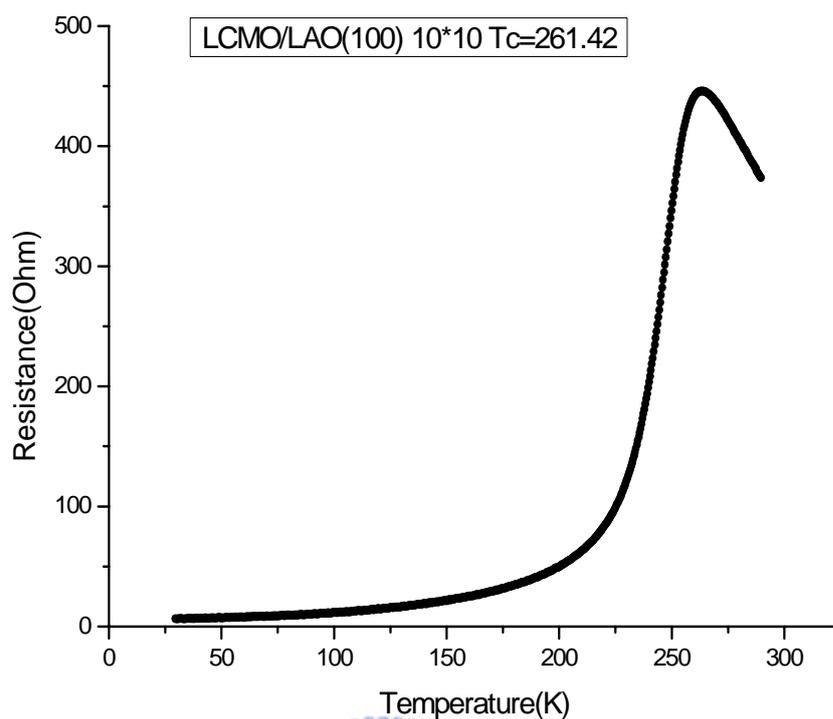


圖 3-6 LCMO 薄膜溫度-電阻關係圖

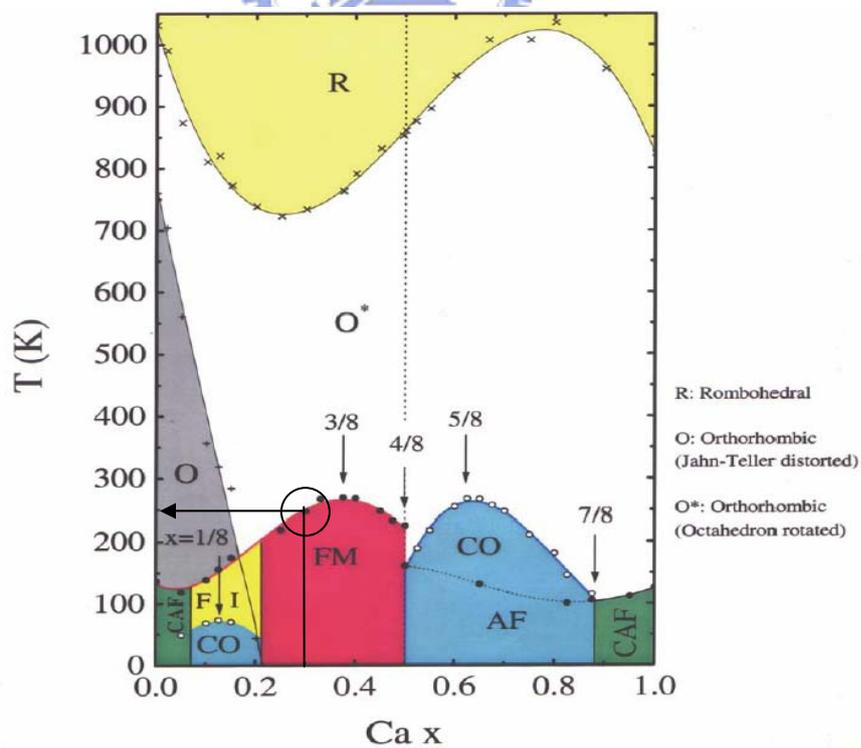


圖 3-7 : $(La_{1-x}Ca_x)MnO_3$ 的相圖

3-3-2 X-ray 繞射

利用 X-ray 繞射可檢視薄膜之結構及其軸向。本實驗室的 X-ray 繞射分析儀是 REGAKU 二環式薄膜繞射儀，其放置樣品固定座之垂直軸與 X 光入射線夾角 θ 是可以改變，且偵測器也可隨著 θ 角的轉動而作 2θ 角的變動。當 X-ray 入射樣品時，會產生繞射，由布拉格(Bragg)繞射條件：

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad \text{Eq. (3.3)}$$

其中 d 為晶格平面間的距離； θ 為入射光與樣品之間的夾角； λ 為入射光的波長； n 為正整數。依據槓桿原理，當入射光與樣品之間角度移動 θ 時，則偵測器需在相對移動 2θ 之處，才可量到此建設性干涉的峰值。系統入射光的角度(θ)可由 0° 掃描到 45° ，而偵測器角度(2θ)亦可由 0° 轉到 90° ，再依據所偵測到的強度(I)對角度(2θ)的關係圖，再藉由查詢粉末的 XRD 資料庫，相互比較得知此薄膜的軸向為何。

如圖 3-8，觀察 LCMO 薄膜 XRD 實驗結果，仔細對照 NGO(110)基板與 LCMO 粉末的 XRD 資料庫，可以發現基板的三個繞射峰值位置正確，除了圖上的三個繞射峰值之外並沒有其繞射峰值雜項出現，顯見薄膜的繞射峰值也在這三個峰值位置上，經比較資料庫可以發現 LCMO 薄膜(002)、(004)、(006)的軸向在上述的繞射峰值位置上，接著我們將圖形放大，如圖 3-9，可以發現基板與薄膜的繞射峰值可以分辨出來，但是相當接近，因此我們推論薄膜的成長其結構相當好。

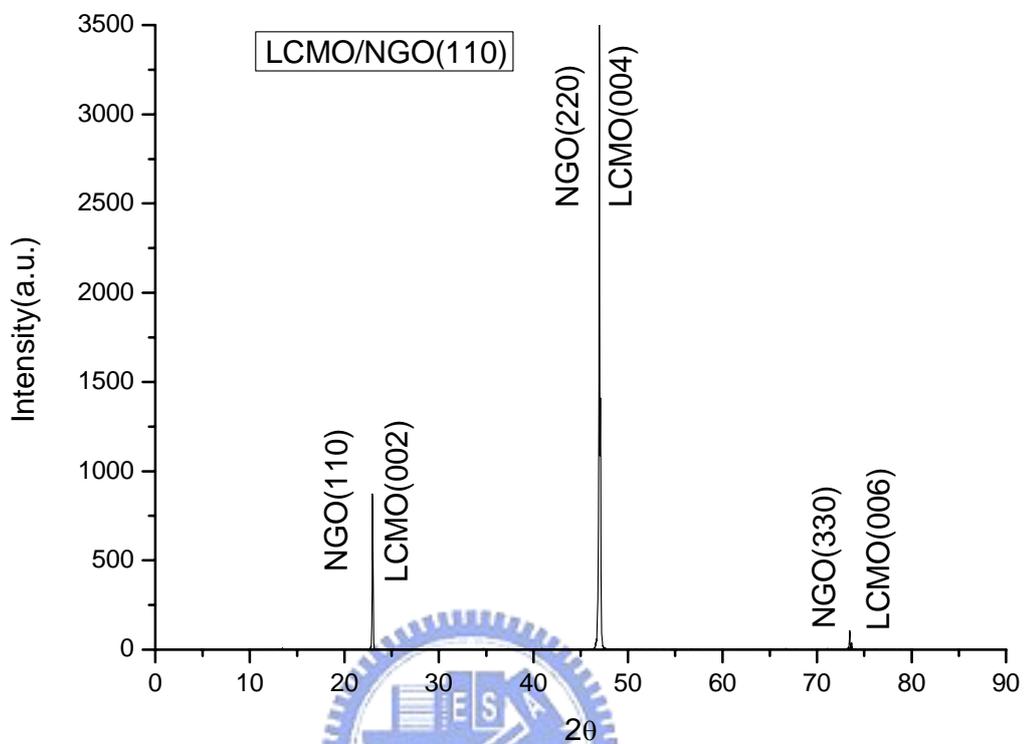


圖 3-8 : LCMO 的 XRD

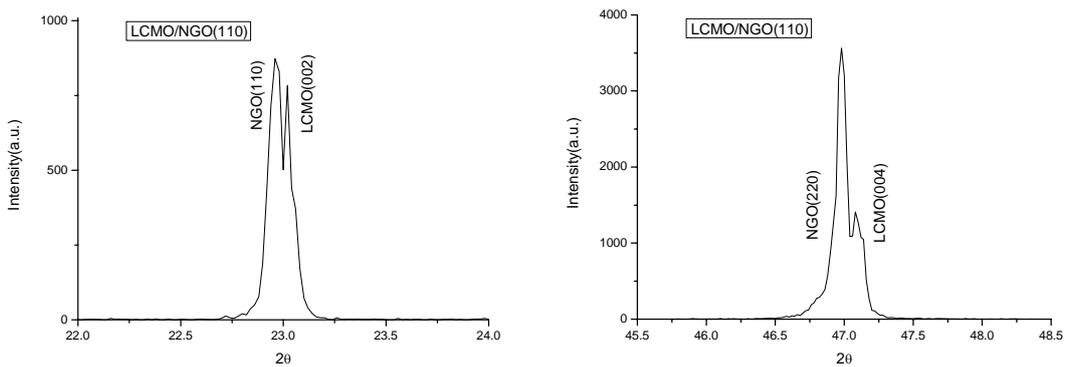


圖 3-9 : LCMO 的 XRD(放大)

3-3-3 原子力顯微鏡

我們所使用的原子力顯微鏡操作模式為接觸式（contact mode），其探針的頂端為原子的數量級，而探針與樣品間的作用力為原子與原子之間的作用力，所以經由作用力大小的變化，很容易得到原子級的解析度，藉由 AFM 的檢測，我們可以得到薄膜表面的狀況，觀察實驗結果，大致可以發現其排列狀況有一定規則，經由分析，其表面粗造度不大，表面平整。

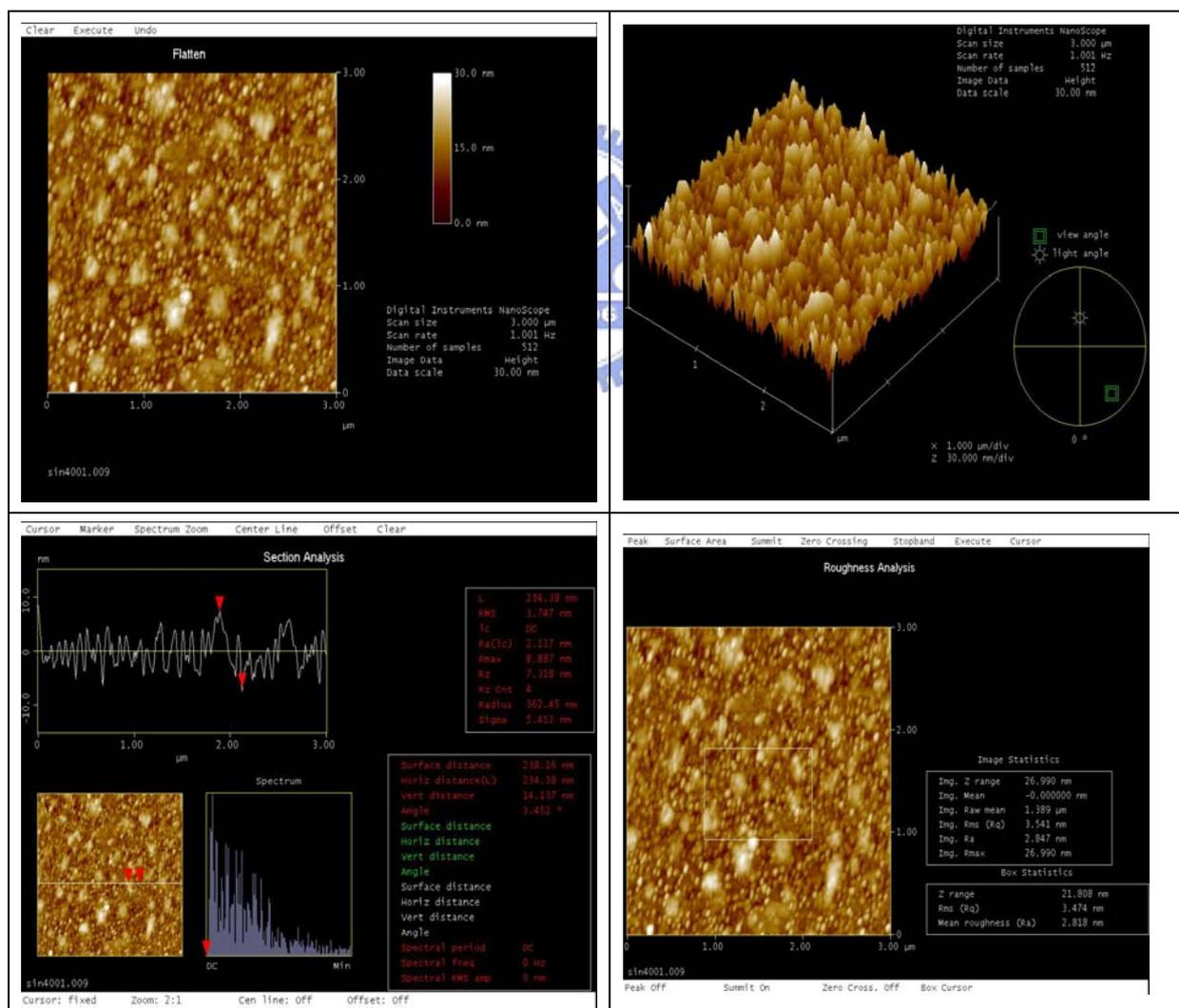


圖 3-10：LCMO 的 AFM

第四章

實驗相關電磁理論

4-1 傅立葉轉換

量測時域訊號分佈 $E(t)$ ，經由傅立葉轉換，可取得其頻域訊號分佈 $E(\omega)$ ，以下是最原始的傅立葉積分式：

$$F(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} f(t)e^{-i\omega t} dt \quad \text{Eq. (4.1)}$$

若 $E(t)$ 在實驗中為離散式，而非函數，以傅立葉的離散式表示，此即謂快速傅立葉轉換 (Fast Fourier Transform)：

$$X(\omega) = \sum_{t=0}^{\infty} x(t)e^{-i\omega t} \quad \text{Eq. (4.2)}$$

而一般的實驗數據是在有限時間下所進行的有限數據，故若以 N 表示時域空間下的取樣個數，改寫 (4.2) 式如下：

$$X(k) = \sum_{n=0}^{N-1} x(n)e^{-i\frac{2\pi}{N}kn} \quad \text{Eq. (4.3)}$$

k ：頻域之頻率指數

4-2 實驗透射係數比

由我們所架設的 THz-TDS 系統，我們可以由實驗上的量測得到 $E_{sam}(t)$ 及 $E_{ref}(t)$ 兩道時域訊號，另外我們定義 $E_{diff}(t) \equiv E_{sam}(t) - E_{ref}(t)$ ，再由 4-1 節所介紹的快速傅立葉轉換得到頻域訊號 $E_{sam}^*(\omega, n^*)$ 、 $E_{ref}^*(\omega)$ 及 $E_{diff}^*(\omega)$ 。

4-3 薄膜性質的理論計算

4-3-1 理論透射係數比[23]

如圖 4-1、4-2 所示，我們的 THz 輻射垂直正向入射 LCMO/NGO，入射電場為 E_0 ，從空氣經過薄膜經過基板再從基板穿透出空氣中，空氣、薄膜、基板折射率分別為 n_1 、 n_2 、 n_3 ，薄膜厚度 d_2 ，基板厚度 d_3 ，因為薄膜厚度很薄，所以考慮 THz 在薄膜中的多重反射，經過計算 THz 穿透樣品所得到的穿透電場

$$E_{sam}(\omega) = \frac{t_{12}t_{23}e^{i\delta(\omega)}}{1 - r_{21}r_{23}e^{2i\delta(\omega)}} t_{31}E_0(\omega) \quad \text{Eq. (4.4)}$$

其中穿透和反射係數 $t_{AB} = \frac{2n_A}{n_A + n_B}$ 、 $r_{AB} = \frac{n_A - n_B}{n_A + n_B}$ ，（ t_{AB} 代表由介質 A 穿透到介質 B， r_{AB} 代表由介質 A 反射到介質 B）， $\delta(\omega) = \frac{nd_2\omega}{c}$ （ c 為光速）為薄膜厚度造成的相位延遲。

另一個參考電場為只經過 NGO 基板所得到的電場，可表示為

$$E_{ref}(\omega) = t_{13}t_{31}E_0(\omega)e^{\frac{id_3\omega}{c}} \quad \text{Eq. (4.5)}$$

對於有吸收的薄膜來說，穿透係數、反射係數和相位延遲中的折射率為一個複數(complex number)，另外我們假設電場在空氣中還有基板中並不會有吸收的效應，定義 $E_{diff}(t) \equiv E_{sam}(t) - E_{ref}(t)$ ，經過傅立葉轉換可以得到頻域訊號 $E_{diff}(\omega) \equiv E_{sam}(\omega) - E_{ref}(\omega)$ 。

接著我們將穿透係數與反射係數帶入 Eq. (4.4)與 Eq. (4.5)中，首

先化簡 $E_{sam}(\omega)$ ：

$$\begin{aligned}
 E_{sam}(\omega) &= \frac{\frac{4n_1n_2}{(n_1+n_2)(n_2+n_3)}e^{i\delta}}{1 - \frac{(n_1-n_2)(n_3-n_2)}{(n_1+n_2)(n_2+n_3)}e^{2i\delta}} t_{31}E_0(\omega) \\
 &= \frac{2n_1n_2}{n_1n_2 \cos\left(\frac{in_2d\omega}{c}\right) - in_1n_3 \sin\left(\frac{in_2d\omega}{c}\right) - in_2^2 \sin\left(\frac{in_2d\omega}{c}\right) + n_2n_3 \cos\left(\frac{in_2d\omega}{c}\right)} t_{31}E_0(\omega) \\
 &\approx \frac{2n_1}{n_1 - in_1n_3 \frac{d\omega}{c} - in_2^2 \frac{d\omega}{c} + n_3} t_{31}E_0(\omega) \quad \text{Eq. (4.6)}
 \end{aligned}$$

接著用相同方法得到 $E_{diff}(\omega)/E_{ref}(\omega)$ 如下面方程式：

$$\begin{aligned}
 \frac{E_{diff}(\omega)}{E_{ref}(\omega)} &= \frac{\frac{2n_1}{n_1 - in_1n_3 \frac{d\omega}{c} - in_2^2 \frac{d\omega}{c} + n_3} - 1}{\frac{2n_1}{n_1+n_3} e^{\frac{id\omega}{c}}} - 1 \\
 &= \frac{1}{1 + \frac{id\omega}{c(n_1+n_3)}(n_1 - n_1n_3 - n_2^2 + n_3)} - 1 \\
 &\approx 1 - \frac{id\omega}{c(n_1+n_3)}(n_1 - n_1n_3 - n_2^2 + n_3) - 1 \\
 &= \frac{id\omega}{c(n_1+n_3)} \left((n+i\kappa)^2 - n_3 - n_1 + n_1n_3 \right) \quad \text{Eq. (4.7)} \\
 &\equiv \rho e^{i\Delta} \quad \text{Eq. (4.8)}
 \end{aligned}$$

$\rho = \left| \frac{E_{diff}}{E_{ref}} \right|$ 與 Δ 的值可由穿過樣品訊號減去參考訊號與參考訊號兩者做傅立葉轉換得到。

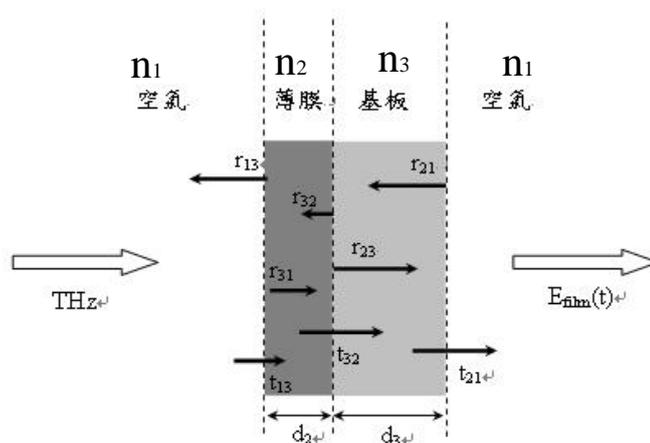


圖 4-1：THz 垂直經過薄膜再薄膜中傳遞示意圖

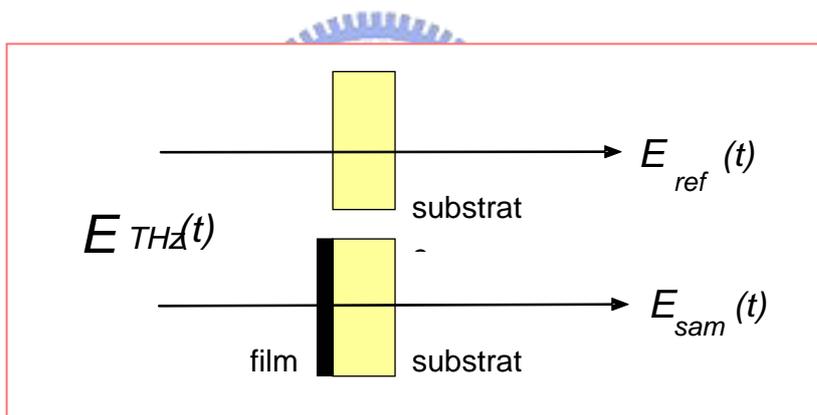


圖 4-2：THz 經過空氣與樣品示意圖

4-3-2 介電常數與複數折射率

介電函數的實數部分與虛數部分可由 $\epsilon' = n^2 - \kappa^2$ 和 $\epsilon'' = 2nk$ 得到，

比較(4.7)與(4.8)兩式，可以得到

$$\epsilon' = \frac{c}{d\omega} (n_1 + n_3) \rho \sin(\Delta) - n_1 n_3 + n_1 + n_3 \quad \text{Eq. (4.9)}$$

$$\epsilon'' = \frac{c}{d\omega} (n_1 + n_3) \rho \cos(\Delta) \quad \text{Eq. (4.10)}$$

再由介電常數的實部與虛部(4.9)與(4.10)式得到折射率的實部與虛部

$$n = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[\varepsilon' + \sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} \right]^{\frac{1}{2}} \quad \text{Eq. (4.11)}$$

$$\kappa = \frac{\varepsilon''}{\sqrt{2} \left[\varepsilon' + \sqrt{\varepsilon'^2 + \varepsilon''^2} \right]^{\frac{1}{2}}} \quad \text{Eq. (4.12)}$$

4-3-3 光學電導率

我們將推導介電常數與電導率的關係，從安培定律出發，

$$\nabla \times \vec{H} = \varepsilon_L \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \vec{J}, \quad \text{又 } \vec{J} = \sigma^* \vec{E} = \frac{\sigma^*}{-i\omega} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}, \quad \text{所以 } \nabla \times \vec{H} = \left(\varepsilon_L + i \frac{\sigma^*}{\omega} \right) \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \varepsilon_i^* \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}, \quad \text{其}$$

中 ε_i^* 為 total dielectric constant。

$$\begin{aligned} \varepsilon^* = \frac{\varepsilon_i^*}{\varepsilon_0} = \varepsilon' + i\varepsilon'' &= \left(\varepsilon_L - \frac{\sigma_0 \tau}{\varepsilon_0 (1 + \omega^2 \tau^2)} \right) + i \left(\frac{\sigma_0}{\varepsilon_0 \omega (1 + \omega^2 \tau^2)} \right) \\ &= \left(\varepsilon_L - \frac{\sigma''}{\omega} \right) + i \frac{\sigma'}{\omega} \end{aligned} \quad \text{Eq. (4.13)}$$

$$\therefore \sigma' = \varepsilon_0 \omega \varepsilon''$$

4-4 介電函數之簡單模型 [24]

介電函數之模型簡單可分為居德模型(Drude Model)和羅倫茲模型(Lorentzian Model)

居德模型：1900年，居德提出此模型來解釋簡單金屬（如鋰、鈉、鉀等之金屬）之電導率及熱導率。假設物質中的電子在以正離子為背

景並且固定 (fixed) 的環境之間運動，其運動行為只中考慮彈性碰撞而忽略電子與電子的交互作用。

Maxwell equation :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\nabla} \cdot \bar{E} = 0 \\ \bar{\nabla} \times \bar{E} = -\frac{\partial \bar{B}}{\partial t} \\ \bar{\nabla} \cdot \bar{B} = 0 \\ \bar{\nabla} \times \bar{H} = \varepsilon \frac{\partial \bar{E}}{\partial t} + \bar{J} \end{array} \right.$$

其中將法拉第定律做旋度(Curl)

$$\longrightarrow \bar{\nabla} \times (\bar{\nabla} \times \bar{E}) = -\bar{\nabla}^2 \bar{E} = \bar{\nabla} \times \left(-\frac{\partial \bar{B}}{\partial t} \right)$$

$$\longrightarrow -\bar{\nabla}^2 \bar{E} = -\frac{\partial}{\partial t} (\mu_0 \varepsilon \frac{\partial \bar{E}}{\partial t} + \mu_0 \bar{J})$$

$$\longrightarrow \bar{\nabla}^2 \bar{E} = \mu_0 \varepsilon \left(\frac{\partial^2 \bar{E}}{\partial t^2} \right) + \mu_0 \left(\frac{\sigma_0}{1 - i\omega/\gamma} \right) \frac{\partial \bar{E}}{\partial t}$$

→ For $\bar{E} = E_0 e^{i(kz - \omega t)}$ 在Z方向上傳播的平面波

$$\longrightarrow k^2 = \varepsilon_\infty \frac{\omega^2}{c^2} + i \left(\frac{\sigma_0 \omega \mu_0}{1 - i\omega/\gamma} \right) \quad \varepsilon_\infty : \text{介電常數在頻率趨近無窮}$$

$$\longrightarrow n^{*2} = \left(\frac{c}{\omega} k \right)^2 = \varepsilon_\infty + \frac{i \sigma_0 c^2 \mu_0}{\omega(1 - i\omega/\gamma)}$$

$$\longrightarrow n^{*2} = \varepsilon_\infty - \frac{\mu_0 \sigma_0 c^2 \gamma}{\omega^2 + i\omega\gamma}$$

$$\longrightarrow \omega_p^2 = \mu_0 c^2 \gamma \sigma_0 = \mu_0 c^2 \gamma \left(\frac{Ne^2}{m\gamma} \right) = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \quad \omega_p : \text{電漿頻率} \quad \gamma : \text{散射率}$$

$$\longrightarrow n^{*2} = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma}$$

$$\longrightarrow \varepsilon' = n^2 - \kappa^2 = \varepsilon_\infty - \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \right)$$

$$\longrightarrow \varepsilon'' = 2n\kappa = \frac{\gamma}{\omega} \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \right)$$

由馬克斯威爾方程式出發，我們可以推導出介電函數與電漿頻率與散射率的關係，由這公式，我們從實驗得到的介電函數即可以拿來做數學擬合得到物理的相關常數。



第五章

實驗結果與討論

5-1 THz-TDS 經空氣量測結果

5-1-1 時域訊號

THz輻射原始的暫態波形，即經過除水氣之空氣訊號，經過系統量測，如圖 5-1 即為THz輻射單純經過空氣所量取到的時域訊號分布，插圖為無THz輻射時所量取到的背景雜訊，由此訊號也可以得知量測系統中的訊噪比，如圖 5-2，在本系統中訊噪比約為 10^5 。觀察圖 5-1 在橫軸延遲時間為 0 的地方看到THz輻射訊號，而在橫軸延遲時間約在 15(ps)可以看見另一個訊號，此訊號為THz輻射元件SI-InP的第一次多重反射訊號。

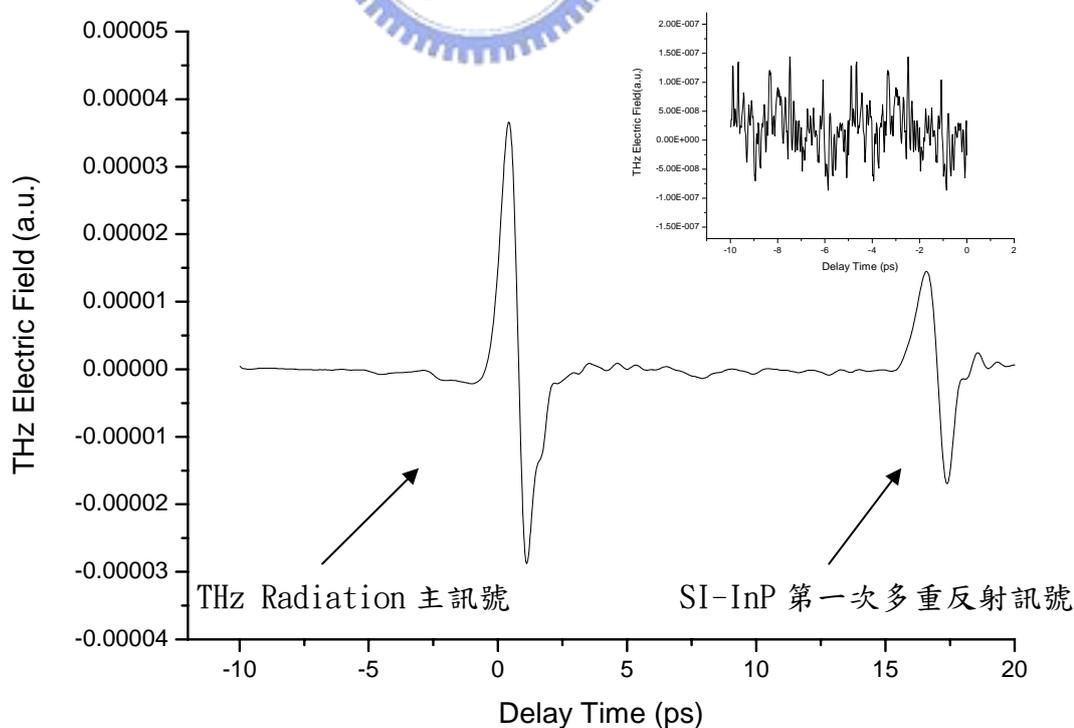


圖 5-1：THz 輻射單純經過空氣所量取到的時域訊號分布
插圖為無 THz 輻射時所量取到的背景雜訊

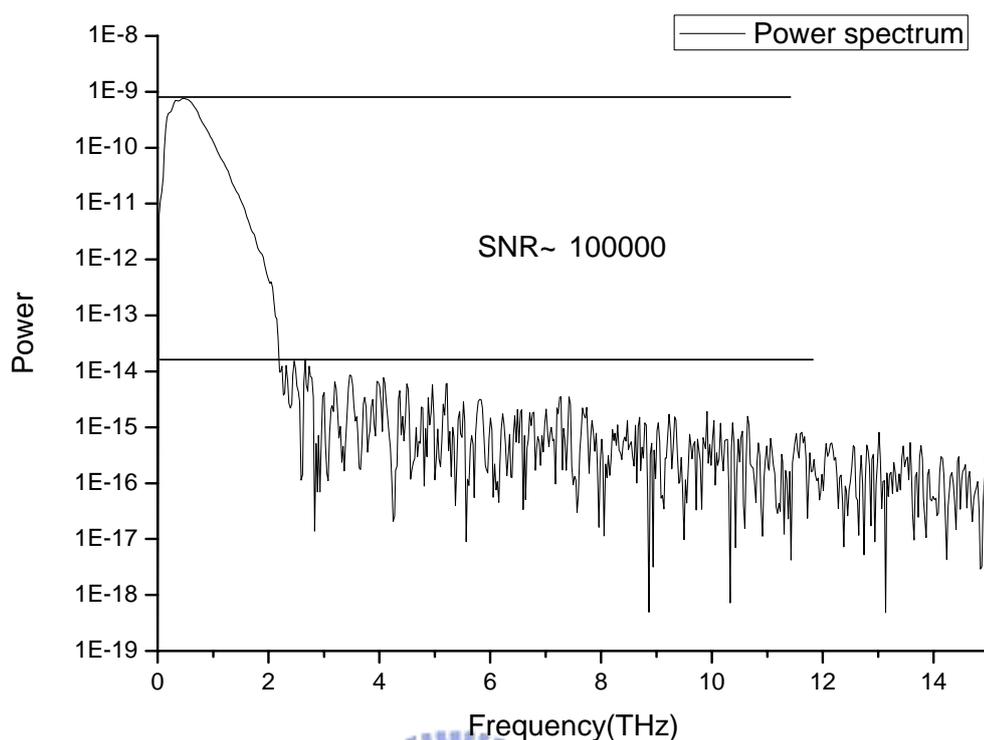
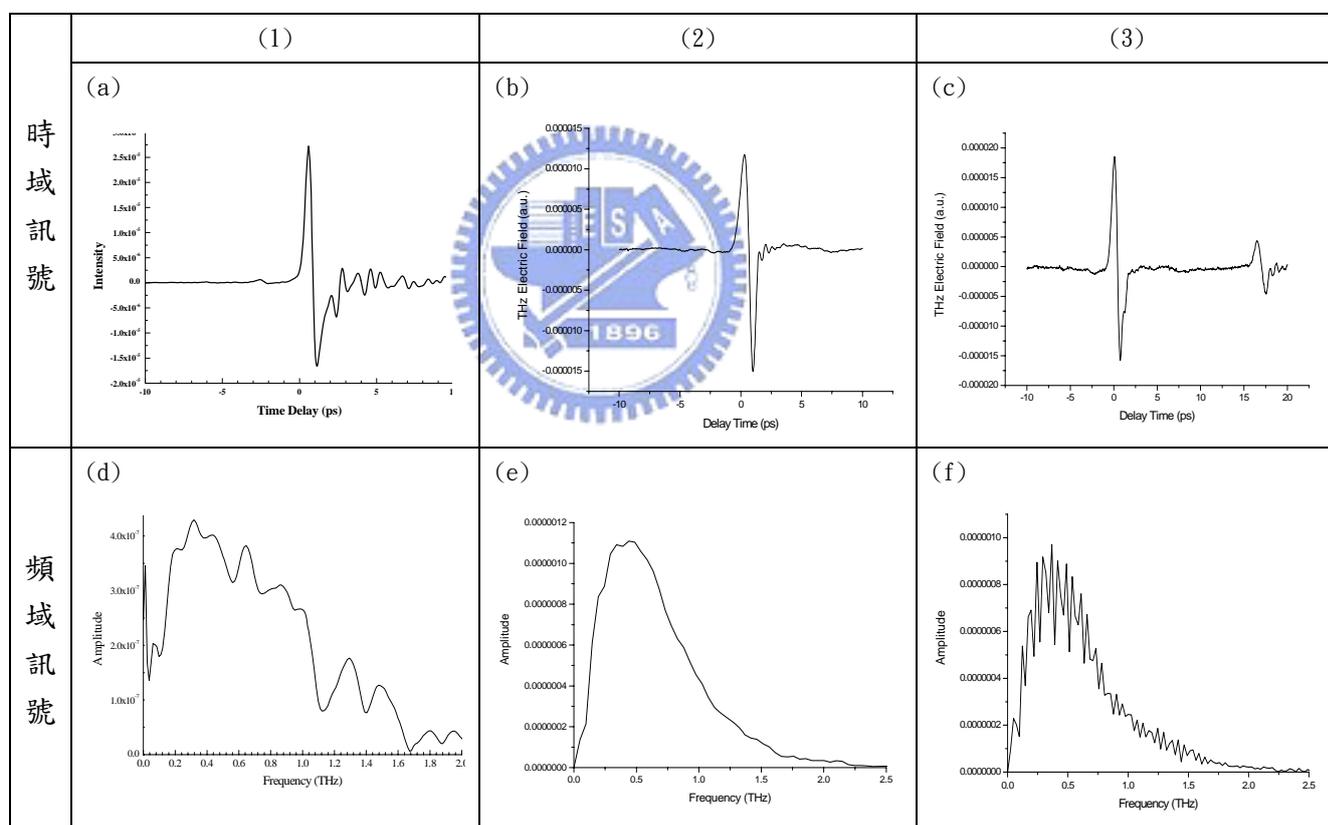


圖 5-2：Power Spectrum of THz Radiation

5-1-2 頻域訊號

如圖 5-3，將 THz 時域訊號取傅立葉轉換得到頻域訊號，考慮三種不同情況(1)室溫沒有去水氣沒有多重反射[25]，(2)室溫去水氣下且沒有多重反射，(3)室溫去水氣下且有多重反射，(a)、(b)、(c)分別為三種情況所得量到的時域訊號，(d)、(e)、(f)分別為將三種時域訊號作快速傅立葉轉換，在沒有去水氣的情況下很明顯可以發現水氣對 THz 某些頻率有強烈吸收，其中可以對應美國奧克拉馬州立大學在 1999 年發表的在 1THz 至 2.5THz 頻段間水氣吸收頻譜[26]，如圖 5-3，對照之下可以發現約在 1.1、1.4、1.7、1.85 THz 左右有水氣吸收峰出現，若我們將系統量測過程中將

水氣去除轉換後的頻譜很明顯水氣吸收峰就不見了，如圖(e)，並且我們可以知道本系統 SI-InP 的 THz 輻射源中心頻率在 0.488THz，頻寬(Bandwidth) 約為 0.738THz，若我們再加上多重反射的影響，經過傅立葉轉換後頻譜可清楚看到多重反射對主訊號的影響，因此我們在做穿透光譜的時候勢必要將多重反射訊號去除。



(1)室溫沒有去水氣沒有多重反射

圖 5-3：THz 輻射時域訊號與頻域訊號 (2)室溫去水氣下且沒有多重反射

(3)室溫去水氣下且有多重反射

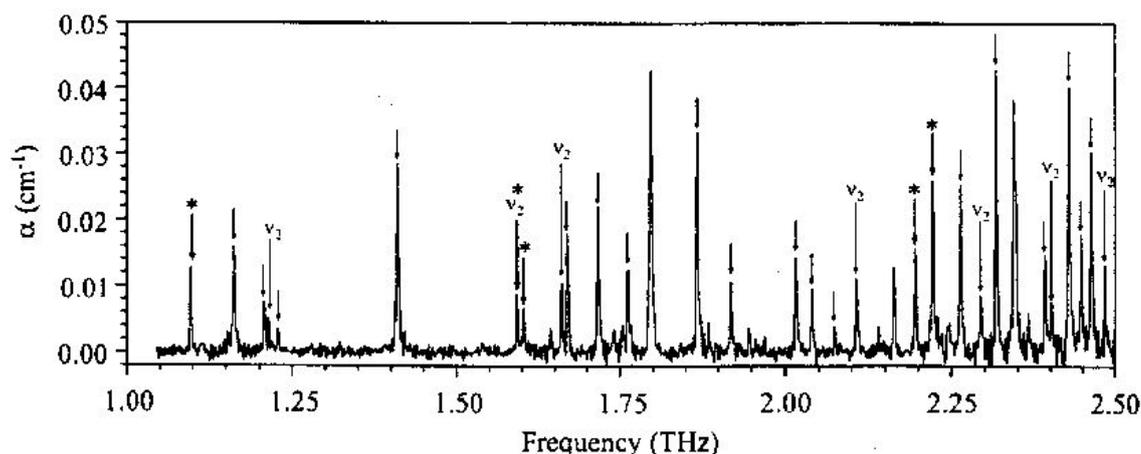


Fig. 2. Measured power absorption coefficient of active flame region. Lines marked with arrows are those for which linewidth was determined. Lines in the $\nu_2 = 1$ vibrational state are marked with ν_2 and longer arrows. Numerical fits from Eq. (3) (solid curve) and the measured data (dots) for one individual line and two pairs of lines, marked with an asterisk, appear in upper panels.

圖 5-4：THz 水氣吸收頻譜

5-2 THz-TDS 經 NGO 基板量測結果

5-2-1 時域訊號

如圖 5-5，在室溫下延遲時間為零的訊號為 THz 主訊號在自由空間傳播，另一訊號是我們讓 THz 經過成長 LCMO 薄膜的基板 NGO，觀察這兩個訊號當 THz 經過基板時基板會造成一時間延遲相對於經過空氣的 THz 訊號，

$$\Delta t = \frac{(n_s - 1)d}{c} \quad \text{Eq. (5.1)}$$

n_s 為基板的折射率， d 為基板的厚度， C 為光速。我們可以反過來看方程式 5.1，如果已經基板厚度與延遲時間，我們就可以粗略推估基板的折射率來作為訊號是否正確的初步判斷。

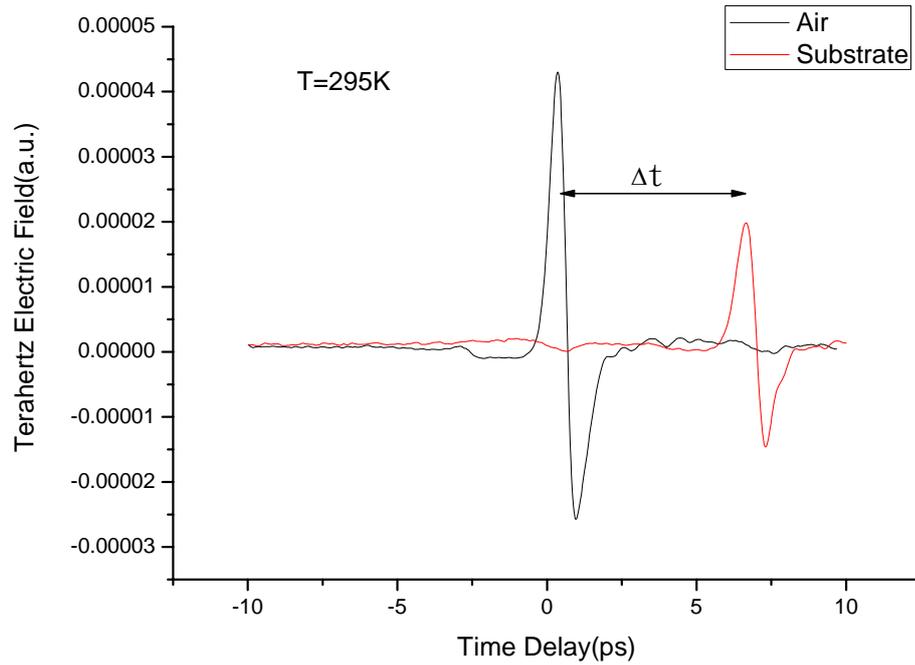


圖 5-5：THz 穿透 NGO 基板時域頻譜(紅線)

5-2-2 頻域訊號

如圖 5-6，將上述兩個時域訊號做傅立葉轉換得到頻域分布，觀察兩個訊號差別僅在經過 NGO 基板的訊號振幅隨頻率均勻下降，其結果相當合理，原因為當我們不考慮多重反射的影響時，其透射係數比之振幅大小為

$$\left| T^*(\omega, n_s^*) \right| = \frac{4n_s^*}{(n_s^* + 1)^2} = \frac{E_{sub}^*(\omega, n_s^*)}{E_{air}^*(\omega)} \quad \text{Eq. (5.2)}$$

其中，基板為不吸收的材料，基板複數折射率 n_s^* 的虛部 κ 趨近於零，且實部 n 幾乎不隨頻率改變，如此一來 $\left| T^*(\omega, n_s^*) \right|$ 便可視為一定值，所以 $E_{sub}^*(\omega, n_s^*) / E_{air}^*(\omega)$ 應也為一常數，所以 $E_{sub}^*(\omega, n_s^*)$ 與 $E_{air}^*(\omega)$ 的頻譜分布應相同，而只有振幅下降。

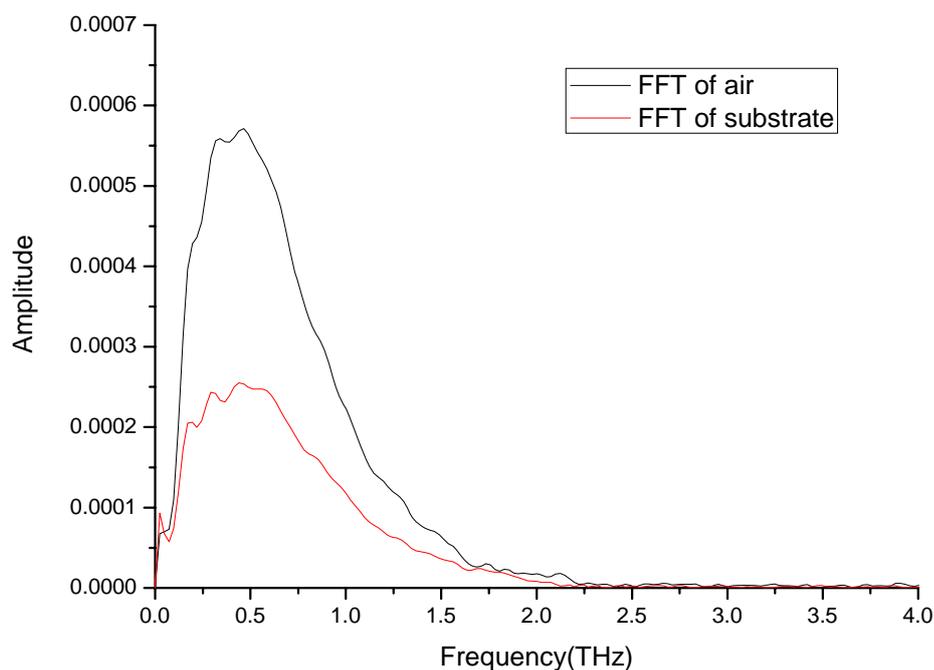


圖 5-6：THz 穿透 NGO 基板頻域訊號(紅線)

5-2-3 NGO 基板的量測結果

由第四章理論推導的過程中可知我們的目的是要計算出 LCMO 薄膜的複數折射率，因此勢必要先知道基板的折射率，在前面小節中我們得到 THz 經過空氣的訊號，以及 THz 經過基板的訊號，有了這兩個實驗值，依照前章理論推導且經過數值計算，我們可以得到基板的複數折射率，如圖 5-7，在不同溫度下未考慮多重反射所得的複數折射率 $n^* = n + i\kappa$ ，觀察 NGO 複數折射率的變化，實部 n 隨溫度減少而變小，隨頻率增加而變大，虛部 κ 在此頻段溫度內趨近於零。

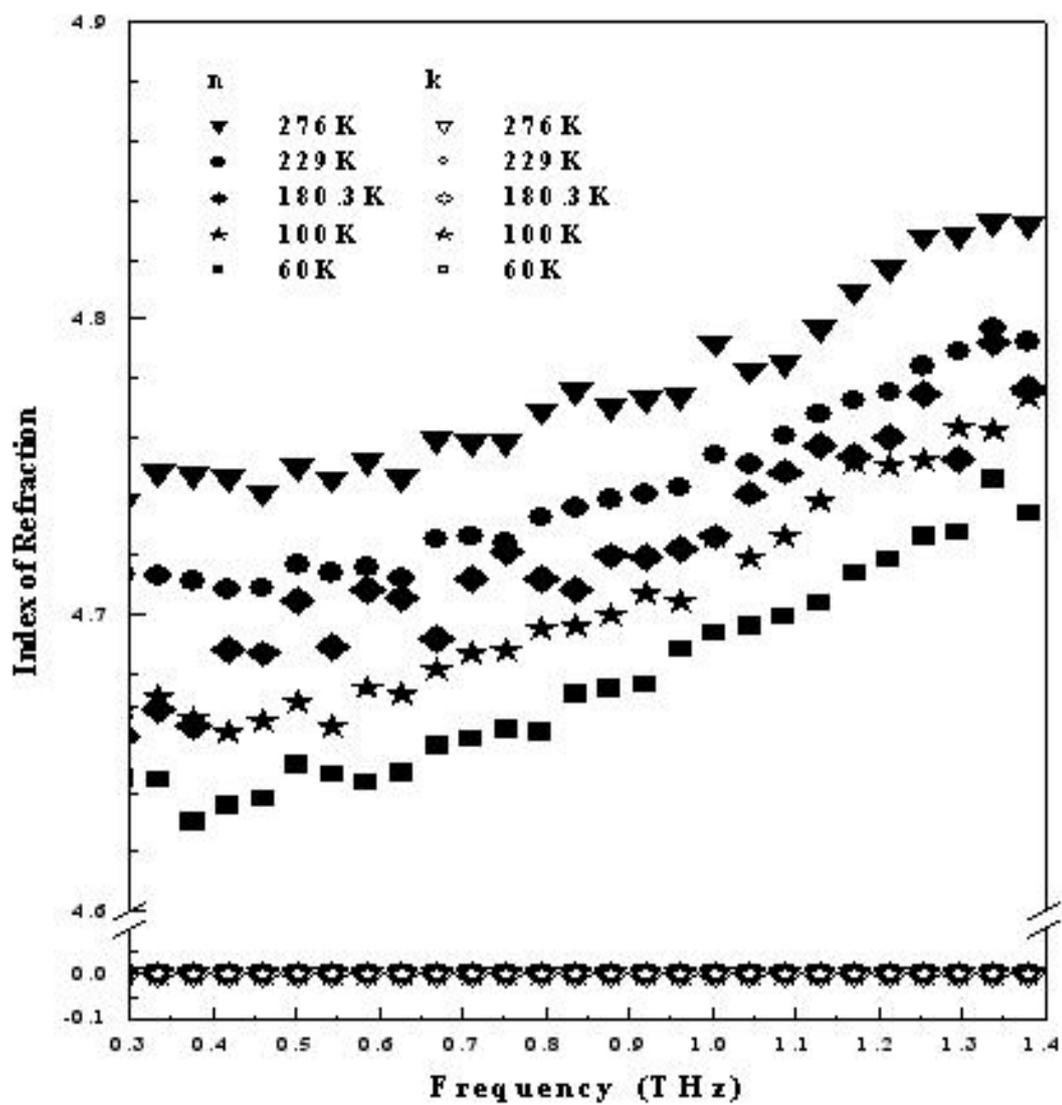


圖 5-7：經 NGO 基板之複數折射率量測結果，引用[27]

5-3 THz-TDS 經 LCMO 薄膜量測結果

5-3-1 不同溫度下的時域、頻域訊號

如圖 5-8，THz 輻射經過我們成長的薄膜材料 LCMO/NGO，時域訊號在不同溫度之下量測的結果，由於 LCMO 磁性薄膜在不同溫度下其特性有很大的不同，在相變溫度之上為絕緣態，在相變溫度之下逐漸轉變為金屬態，因此觀察我們的時域訊號跟溫度的關係，可以清楚發現在溫度達到相變溫度時訊號強度大幅下降，且隨溫度越低 THz 輻射訊號越小，其波形亦產生些微變化，從時域的訊號隨溫度的變化來看可以大略了解 LCMO 薄膜的複數折射率與溫度有很大的關係，故延伸出的其他介電性質也與溫度有密不可分的關係。如圖 5-9，將時域訊號做傅立葉轉換觀察其相應頻譜的變化。

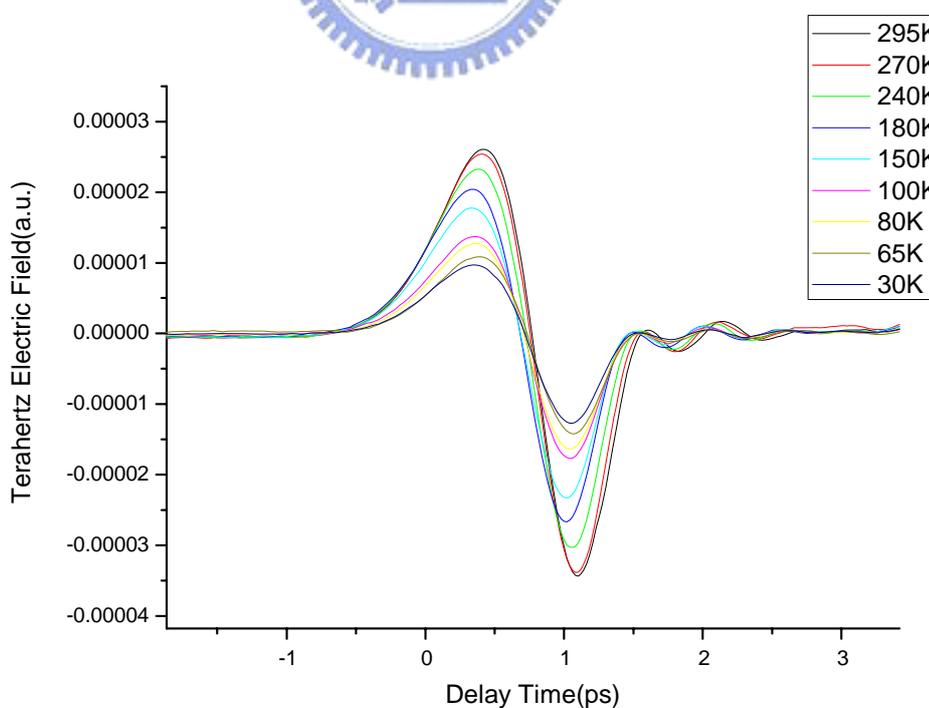


圖 5-8：不同溫度下的 THz 輻射時域訊號

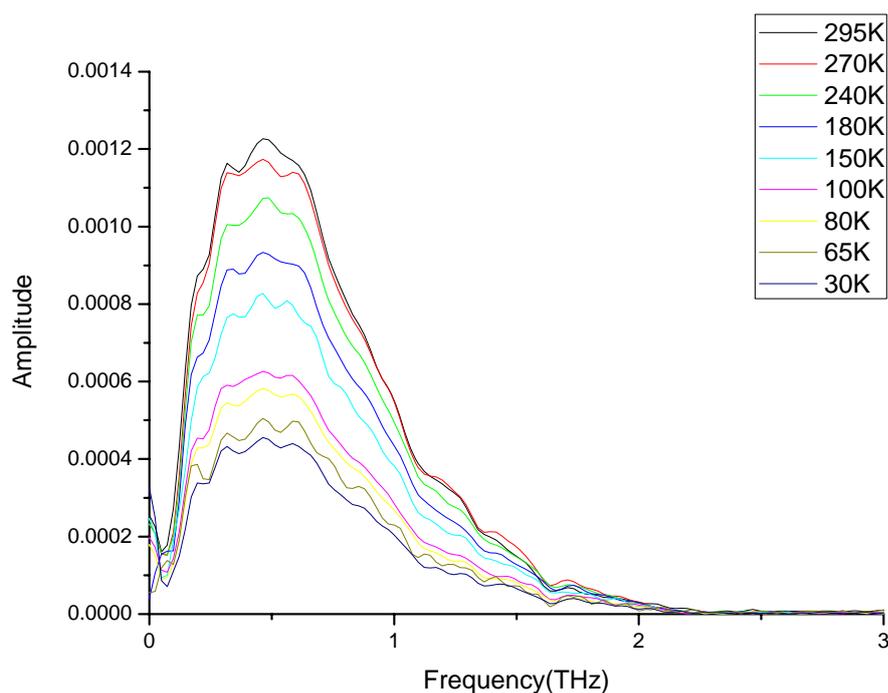


圖 5-9：不同溫度下將時域訊號做傅立葉轉換



5-3-2 複數穿透係數比

圖 5-10 為在不同溫度之下實驗所得到的複數透射係數比振幅，在不考慮多重反射的情況下且 $|T_{\text{exp}}^*(\omega, n_f^*)| = |E_{\text{film}}^*(\omega, n_f^*)| / |T_{\text{sub}}^*(\omega)|$ ，觀察實驗結果在 LCMO 薄膜到達相變溫度 ($T_c = 260\text{K}$) 以下時穿透振幅明顯開始下降，顯見薄膜性質隨溫度變化，所以溫度越低穿透率越小，換句話說 THz 訊號減小了。

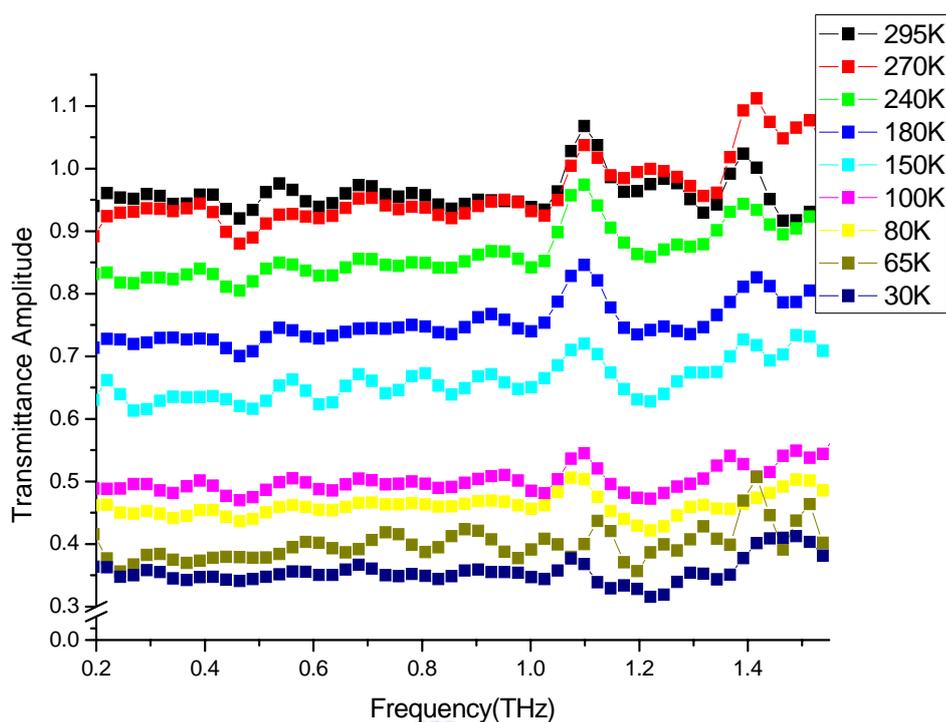


圖 5-10：LCMO/NGO 之實驗透射係數比

5-3-3 複數折射率 (complex index of refraction)

由前章的理論計算加上實驗我們可以推算得複數折射率，如圖 5-11，不同溫度之下的複數折射率實部，如圖 5-12，不同溫度之下的複數折射率虛部，仔細觀察實驗結果，我們發現在相同溫度之下複數折射率的實部與虛部值非常接近 $n(\omega) \approx \kappa(\omega)$ ，實部與虛部值隨頻率的變化皆是隨頻率上升(0.1~1.5THz)而減小，且隨溫度下降而減小。以物理圖像來看，實部 $n(\omega)$ 所代表的是材料對光所造成的相位延遲，虛部 $\kappa(\omega)$ 所代表的則是材料對於光的吸收。

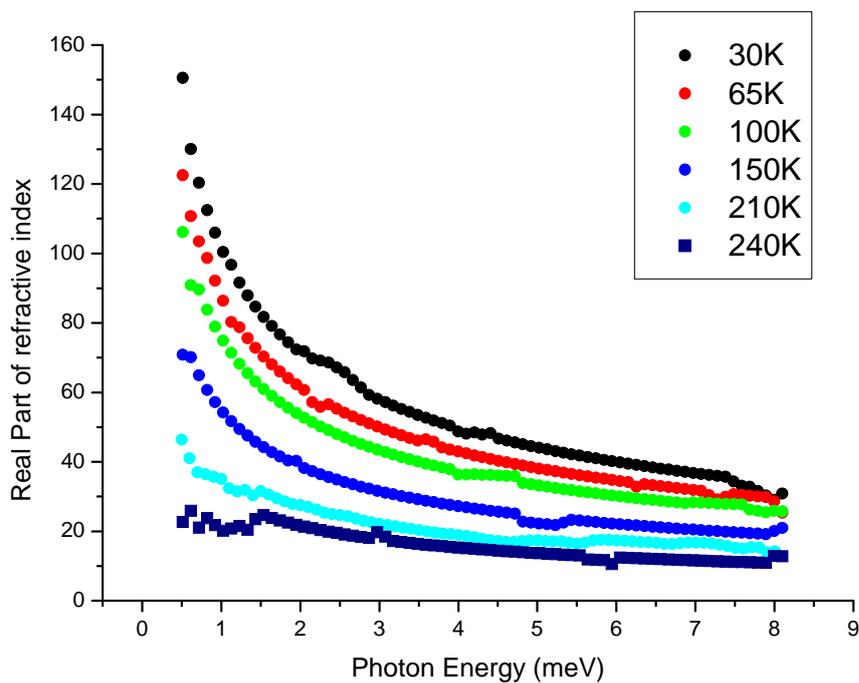


圖 5-11：複數折射率實部

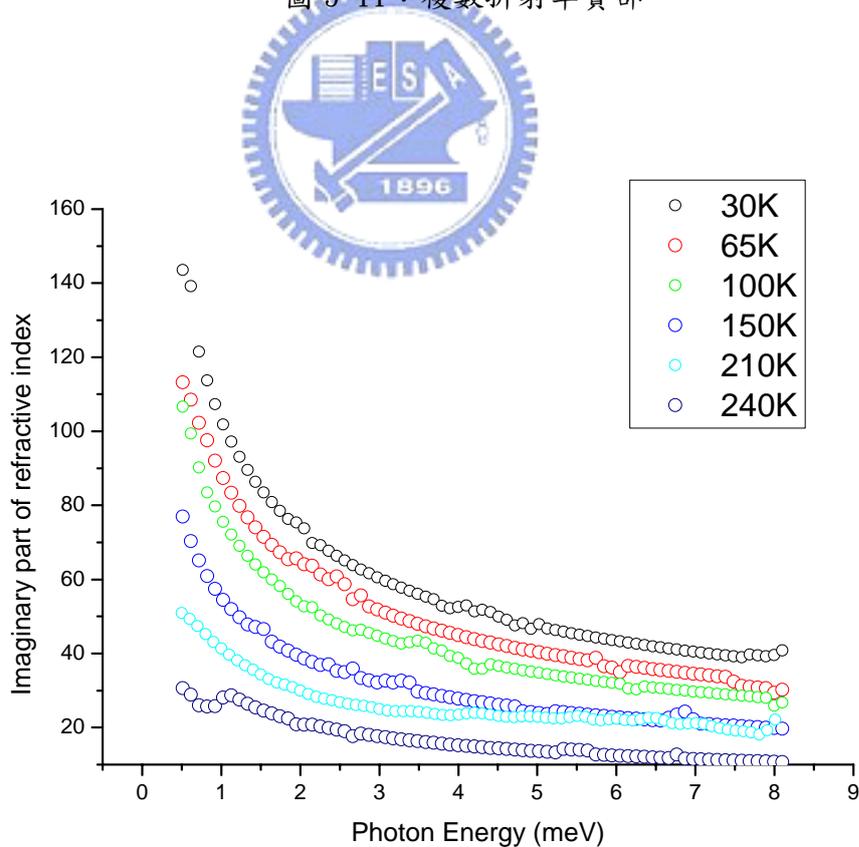


圖 5-12：複數折射率虛部

5-3-4 介電函數 (Dielectric Function)

介電函數 $\varepsilon^*(\omega)$ ，是來描述材料晶體對電磁場所產生的響應，而介電函數與晶體的電子能帶結構有密切的關係，因此使用光學方法來研究介電函數對於晶體能帶結構的決定是非常有用的，現已為重要的實驗工具。介電函數的虛部 $\varepsilon''(\omega) = 2n\kappa$ ，如圖 5-13，將已得到的複數折射率實部虛部計算得到介電函數虛部，圖中為不同溫度得到的介電函數， $\varepsilon''(\omega)$ 介電函數的虛部對應的物理意義代表系統 LCMO 薄膜對 THz 光能量的吸收，對於溫度的變化，溫度越低薄膜吸收能量越多，對於固定溫度而頻率的變化可以看出 LCMO 薄膜吸收光子能量低的部分。

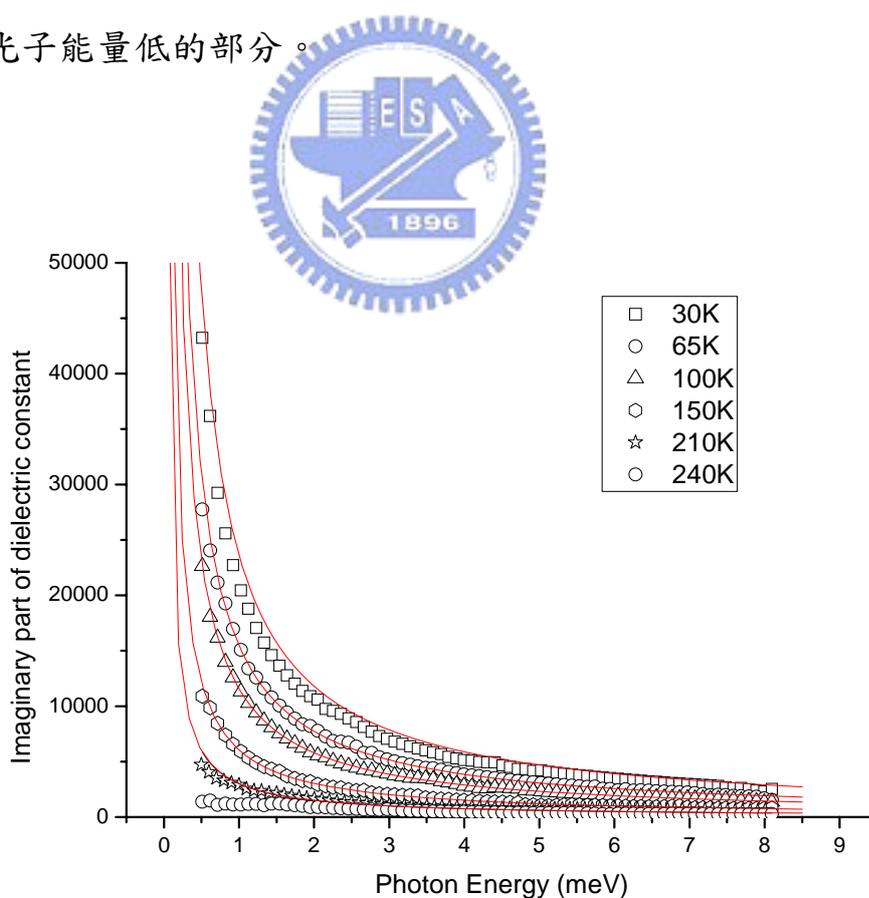


圖 5-13：介電函數與數學擬合

5-3-5 參數擬合

在我們得到介電常數之後，由第四章的公式推導可知，介電常數與物理參數電漿頻率(plasma frequency)與散射率(scattering rate)有關係， $\varepsilon''(\omega) = 2n\kappa = \frac{\gamma}{\omega} \left(\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \right)$ ，因為 LCMO 薄膜在低溫的時候屬於金屬相(我們在參數擬合的部分只討論 LCMO 在金屬相的部分)，因為我們試著用 Drude Model 來對此金屬行為做解釋，我們使用數學擬合的方式來獲得以上兩個物理參數，其中擬合的曲線如圖 5-13 中紅色的曲線，我們對於不同溫度都做參數擬合獲得如圖 5-14、5-15 的結果；觀察散射率對溫度的反應，當溫度從低溫慢慢增加溫度，散射率慢慢增加， $\gamma = 1/\tau$ ，也就是 τ (relaxation time) 隨溫度增加而減少，此結果符合 Drude Model 在解釋金屬行為時，一般而言 $\tau_{\text{低溫}} > \tau_{\text{室溫}}$ 的結果，另一方面，隨溫度的增加可以發現電漿頻率慢慢減少，以物理圖像來解釋， $\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi n e^2}{m^*}}$ ，我們認為是因為載子有效質量隨溫度增加而增加，載子濃度隨溫度增加而減少所造成的結果。

除此之外，觀察參數擬合結果當溫度到達 230K 左右的時候，散射率與電漿頻率出現不在預期的結果，有比較大幅度的跳動，可能解釋的原因在於 LCMO 薄膜在溫度低於約 230K 的時候，其才會呈現良好且適用 Drude Model 來解釋的金屬相。

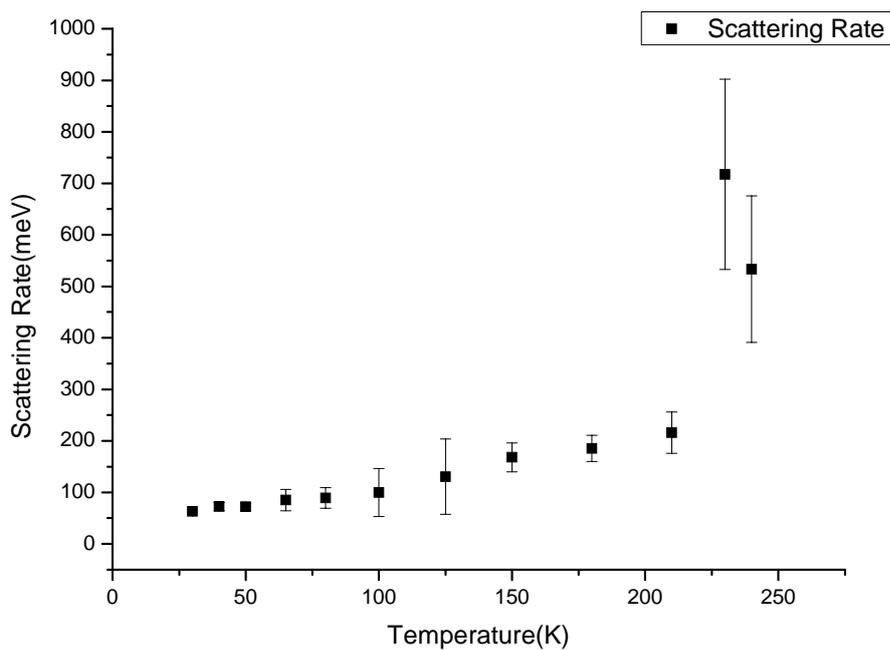


圖 5-14：擬合的散射率

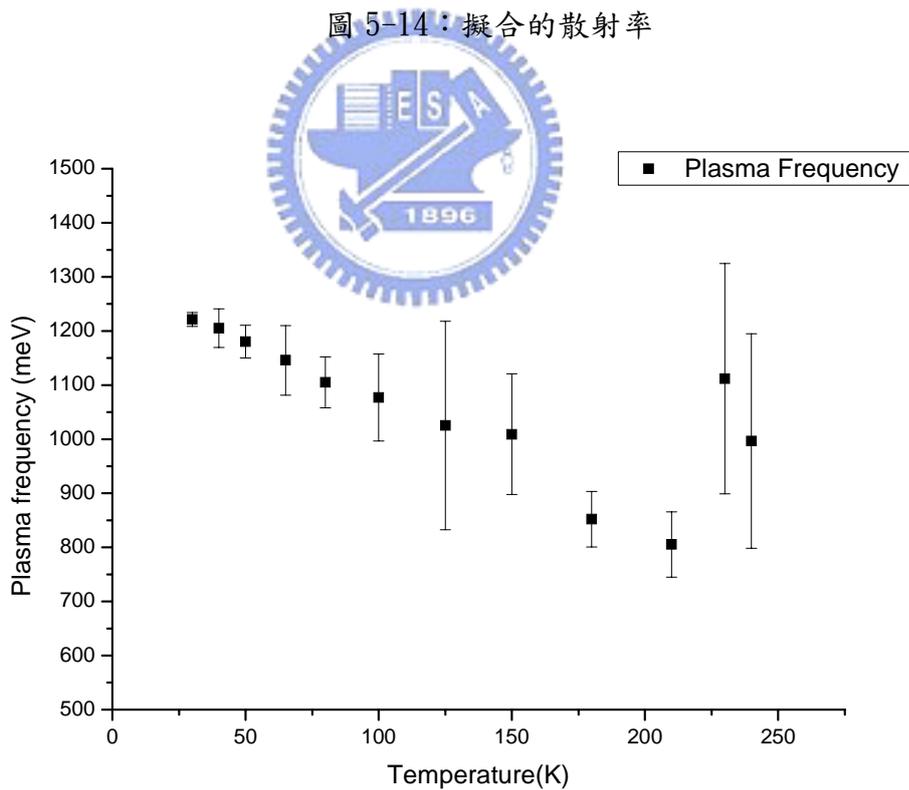


圖 5-15：擬合的電漿頻率

5-3-6 光學電導率 (Optical Conductivity)

藉由 THz-TDS 的量測，亦可以得到材料在 THz 頻段之下的電導率 (Conductivity)，如圖 5-16 也是在不同溫度之下所得到的電導率結果，如圖 5-17 為頻率在 0.7THz 的時候隨溫度變化的情形。

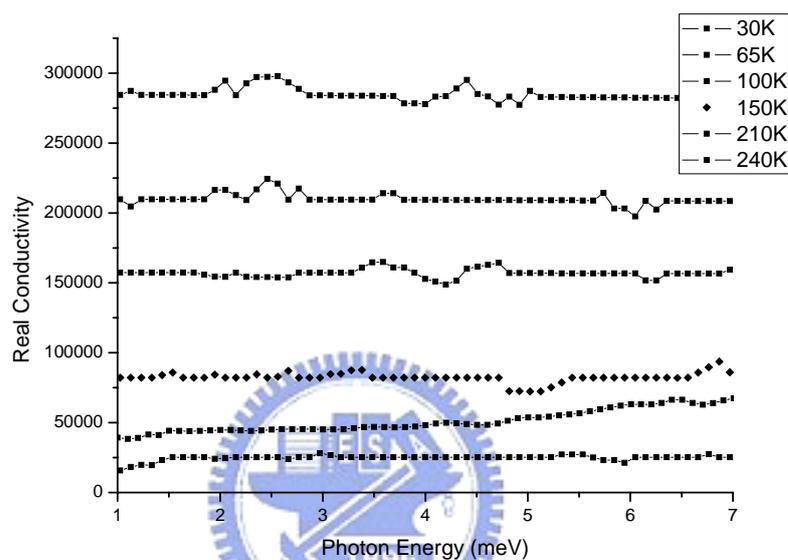


圖 5-16：LCMO 薄膜的光學電導率

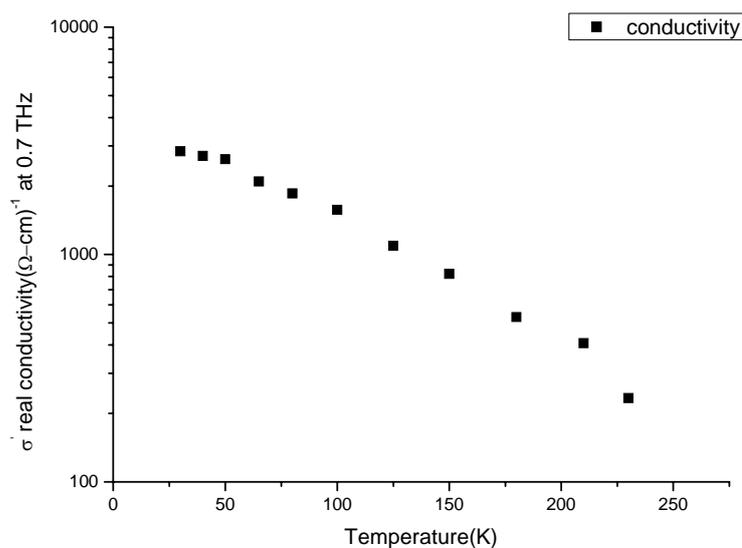


圖 5-17：電導率在 0.7THz 隨溫度變化的關係

第六章

結論與展望

我們使用 THz-TDS 量測系統，應用在磁性材料，試著將材料的高頻介電性質呈現出來，包括複數折射率、介電常數、光學電導率、以及一些理論上的參數擬合包含電漿頻率以及散射率。

對於磁性材料的 TDS 量測，根據過去的經驗，對於在理論穿透係數比的計算上，由於所量測的樣品皆不屬於磁性材料的範疇，因此會將導磁係數(permeability) μ 視為 μ_0 ，但是 LCMO 在低溫之下屬於鐵磁性物質，實不該將導磁係數再視為 μ_0 ，根據國外論文的發表[28-29]，可以發現在 THz 的頻段下，該研究團隊亦將磁導係數當成 μ_0 ，未來對於磁性材料要將磁導係數考慮在穿透係數比之中是一個很重要且是一個值得深入探討的課題。

參考文獻

- [1] Ch.Fattinger, D.Grischkowsky, Appl. Phys. Lett., 53 , 1480 (1988).
- [2] A. Rice, Y. Jin, X. F. Ma, X.-C. Zhang, D. Bliss, J. Larkin, and M. Alexander, Appl. Phys. Lett. 64, 1324 (1994).
- [3] X.-C. Zhang and D. H. Auston, J. Appl. Phys. 71, 326 (1992).
- [4] X.-C. Zhang, Y. Jin, T. D. Hewitt, and T. Sangsiri, Appl. Phys. Lett. 62, 2003 (1993).
- [5] N. Sarukura, H. Ohtake, S. Izumida, and Z. Liu, J. Appl. Phys. 84, 654, (1998).
- [6] Martin van Exter, and D.Grischkowsky, Appl. Phys. Lett. 56, 1694 (1990)
- [7] Tae-In Jeon, and D.Grischkowsky, Phys. Rev. Lett. 78, 1106 (1997).
- [8] Jonker, and Van Santen, Physica (Utrecht) 16, 337 (1950).
- [9] C. Zener, Phys. Rev. 81, 440 (1951).
- [10] P. W. Anderson, Phys. Rev. 100, 675 (1955).
- [11] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer, Phys. Rev. Lett. 71, 2331 (1993).
- [12] P. Schiffer, A.P. Ramirez, W. Bao, and S. -W. Cheong, Phys. Rev. Lett. 75, 3336 (1995).
- [13] E. Yablonovitch, J. P. Heritage, D. E. Aspnes, and Y. Yafet , Phys. Rev. Lett. 63, 976 (1989).
- [14] D.Mittleman (ed.), “Sensing with THz radiation”, Springer, New

York, 2002.

- [15] R.Williams, Modern GaAs Proceeding Methods(Artech House, Boston, MA, 1990), Chap.4, P.89.
- [16] X.C.Zhang, J. T. Darrow, B. B. Hu, D.H. Auston, M.T. Schmidt, P. Tham, and E.S. Yang, Appl.Phys.Lett. 56, 2228(1990).
- [17] 「兆赫輻射時析頻譜於鈇鋇銅氧及基板之研究」, 黃雯妃, 國立交通大學 92 年碩士論文
- [18] Q.Wu, and X.C.Zhang, Appl.Phys.Lett. 67,3523 (1995).
- [19] 劉祥麟 物理雙月刊, 第二十四卷五期, P.645-651 (2002).
- [20] 「以極化飛秒光譜研究 $Y_{0.7}Ca_{0.3}Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ 之各向異性超快動力學」, 陳美杏, 國立交通大學 92 年碩士論文
- [21] NICOLA A. SPALDIN, “Magnetic Materials”(Cambridge University Press),Chap.11 , P.155.
- [22] Y. Tokura, “Collossal Magnetoresistive Oxides”, Gordon and Breach Science Publishers, Ed. Y. Tokura (2000).
- [23] Zhiping Jiang, Ming Li, and X.-C. Zhang, Appl.Phys.Lett. 76, 3221 (2000).
- [24] C.Kittel, 「Introduction to Solid State Physics」, Wiley,1996,Seventh Edition.