

行政院國家科學委員會專題研究計畫 成果報告

過渡金屬氧化物薄膜物理與元件研究--強關聯系統中的相 分離、電荷有序與 Kondo 效應(3/3) 研究成果報告(完整版)

計畫類別：整合型
計畫編號：NSC 94-2112-M-009-006-
執行期間：94年08月01日至95年10月31日
執行單位：國立交通大學物理研究所

計畫主持人：林俊源

計畫參與人員：博, 碩士生：張維仁、陳裕仁、陳雅鈴、沈和昀

報告附件：出席國際會議研究心得報告及發表論文

處理方式：本計畫可公開查詢

中華民國 96 年 06 月 11 日

行政院國家科學委員會專題研究計畫進度報告

※ 強關聯系統中的相分離、電荷有序與

Kondo 效應(3/3)

計畫類別：個別型計畫 整合型計畫

計畫編號：NSC 94-2112-M-009-006-

執行期間：94 年 8 月 1 日至 95 年 10 月 31 日

計畫主持人：林俊源

共同主持人：莊振益、吳光雄、溫增明、郭義雄

計畫參與人員：張維仁、陳裕仁、陳雅鈴

成果報告類型(依經費核定清單規定繳交)：精簡報告 完整報告

處理方式：除產學合作研究計畫、提升產業技術及人才培育研究計畫、列管計畫及下列情形者外，得立即公開查詢

執行單位：國立交通大學 物理研究所

中華民國 96 年 2 月 16 日

一、高溫超導體：

我們花了相當的精力研究超導體的低溫比熱，前幾年主要的對象是 La214 高溫超導體。我們對高溫超導中的配對對稱與準粒子(quasiparticles)的態密度，都有相當深入的研究[1-3]。我們至少驗證了：

- 在所有載子濃度範圍的銅氧化物超導體的低溫比熱可以用 d-wave 超導性來解釋。
- 我們的實驗結果證實對具有雜質的 d-wave 超導體準粒子態密度的理論預測是對的。
- 比熱測量顯示摻鋅 $\text{La}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{CuO}_4$ 在零能量準粒子附近態密度明顯變少。

這些結果使我們開始在這個領域嶄露頭角，並得以有機會將自己與別人的成果總結成一篇 review article[4]。

我們也研究了雜質對 T_c 與 H_{c2} 的效應。結果證明因雜質種類導致的不同 T_c 抑制效果乃源自於在銅氧面上的非均向性散射。[5,6]

二、磁性物質：

約兩年半前，我們開始了磁性物質特性的研究。雖然進入這個領域的時間不算甚長，但我們已漸能掌握議題，也有一些不錯的結果。我們成功的以 TiO_2 緩衝層在 Si 基板上成長高品質的 CrO_2 薄膜，並研究其磁性與磁電阻行為。[7]我們也用 STM 技術嘗試著探索錳氧化物相分離的現象[8]，也學習用 X 光吸收光譜研究其電子結構[9]。現在我們已較剛開始的時候，更能掌握這方面的研究方向。

三、新穎超導體：

這兩年多來，有不少有趣的新超導體被發現，如 MgB_2 和 MgCNi_3 等。我們用比熱的測量決定了這兩種超導體的配對對稱性，[10,11]在這類研究中佔有一席之地。

四、X 光吸收光譜：

約自四年多前開始，我們開始學習 X 光吸收光譜的實驗技術，這幾年已逐漸成熟，對我們探討物質的電子結構，有極大的助益。[9,12-17]目前的較成熟的成果，約有：

- 摻鈣 YBCO 中不同能帶載子的鑑定。
- YBCO 薄膜在 TiO_2 上與 TiO_2 本身的成長機制研究。
- Fehrbacher-Rice (FR) 能帶存在的證據與 FR 能帶的特性。

在 2003 年中，我們以光譜的技術與壓力效應的方法對 $\text{Mg}_{2-x}\text{Al}_x\text{B}_2$ 和 MgCNi_3 作了持續的研究。我們相當程度釐清了 $x=4$ 時 $\text{Mg}_{2-x}\text{Al}_x\text{B}_2$ 其 T_c 的急遽下降，除了電洞數目的減少，還有一非電子結構的原因。[18] MgCNi_3 的研究結果，也指出現今對 MgCNi_3 理論計算的不足之處。[19] 我們也用對正常態電阻以 fluctuation 圖象來分析，指正文獻中對高溫超導體中 pseudogap 的一些疑點。[20] 更進一步，我們發展了新的技巧，超快光譜探討高溫超導中有序參數的對稱性隨 doping level 的變化，已有一些成果發表。[21]

在 2004 這一年裏，我們集中研究 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LCeMO) 與 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 的課題。 $\text{La}_{0.7}\text{Ce}_{0.3}\text{MnO}_3$ 是一個 electron doping 的 CMR 錳氧化物，有別於一般的 hole doping 系統如 $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ 。單相的塊材 LCMO 並無法成長出來；最近幾年，研究者才於薄膜型式中生長出單相的 LCeMO。我們詳細的研究了高品質 LCeMO 薄膜所需要的生長條件，並由詳細的結構分析驗證了我們薄膜的 epitaxial growth。[22] 我們也對具 spinel 結構的 LiTiO_4 進行了低溫比熱研究，除了確認 LiTiO_4 確實是傳統的 s-wave 超導體，也首次揭發 LiTiO_4 的電子具有 moderate coupling，也許不會完全吻合費米液體的特徵。[23]

在 2005 過去這一年裏，我們也發表 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 超導態比熱的研究成果，確立了此新鈔導體的有序參數含有節線，且其磁場下的行為也被詳細研究。[24] 預計此論文將對本課題將來的研究有重要影響。我們也做了 LCeMO 詳細的吸收光譜、傳輸特性、磁性量測研究，初步由吸收光譜提供的 electron doping 證據已發表，[25] 更進一步，我們從霍爾係數配合第一原理的計算，證實在 electron doping 下，其導電載子仍是電洞。[26] 我們也以超快光譜的方法觀察到了 YBCO 準粒子 relaxation 機制在晶軸的異向性。由實驗數據，我們推論 relaxation 機制主要是受到 YBCO 中兩個不同能量尺度 $\Delta\rho$ 與 Δs 的控制，而 thermal relaxation 僅在節線方向可能有貢獻。

用吸收光譜研究高溫超導體中 Stripe phase 的行為，也已開始有初步的結果。[29] 在詳細光譜分析後，我們在具 stripe phase 的 $\text{La}_{1.4-x}\text{Nd}_x\text{Sr}_{0.6}\text{CuO}_4$ 中，看到在費米能階以上 3eV 處有多出的 spectral weight，此能量特徵與理論計算吻合。我們認為這是 stripe phase 存在的光譜證據。〈見圖一〉 [27]

在 2006 過去這一年裏，對 two-gap 的特徵除了在 MgB_2 外，是否是多費米面超導體的通

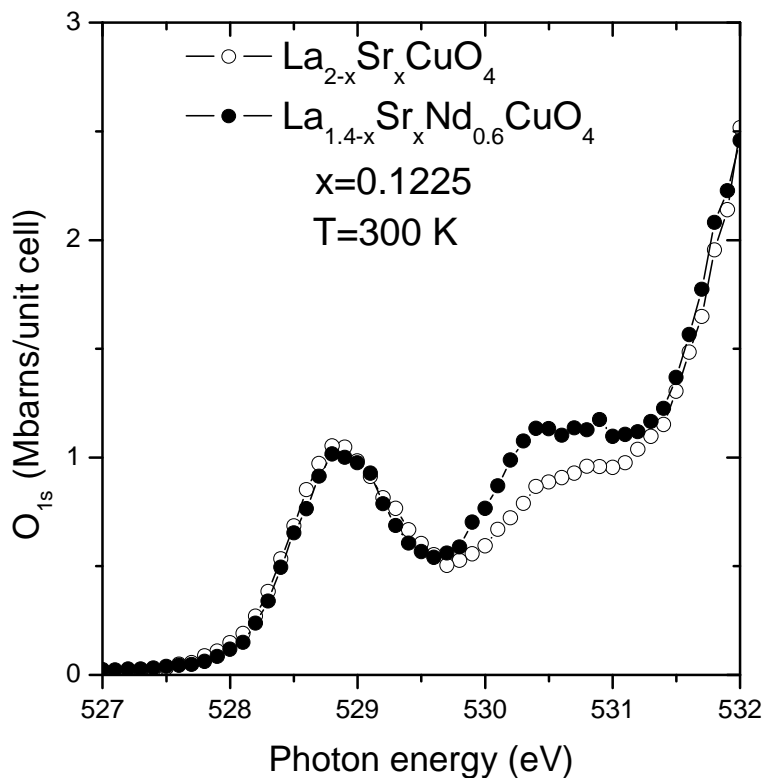
則？還是通則？我們以比熱與 H_{c2} 量測 YNi_2B_2C 並探討以上的議題。[28]利用超快光譜，我們也發表了對 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 中的準粒子動力學空間二向性的觀察與討論。[29]我們也進一步對電子摻雜的錳氧化物做了研究與探討，並試著繪出電子摻雜的錳氧化物的相圖。[30]

在 2007 短短的一個月內，我們已有兩篇論文發表或被接受。與理論工作者合作分析 $Na_xCoO_2 \cdot yH_2O$ 磁場對 T_c 的效應，得到 $Na_xCoO_2 \cdot yH_2O$ 的超導有序參數對稱性在磁場中發生變化的推論。[31]我們也發展出製造高品質 Na_xCoO_2 薄膜的方法，這對此熱電材料未來的應用極有價值。[32]

已經完成，希望能在幾個月內發表的工作有：

- 由在 $Na_xCoO_2 \cdot yH_2O$ 超導體中的 Mn 摻雜效應，我們提出 s 波對稱與非傳統配對的模型。〈見圖二〉
- 我們在 Na_xCoO_2 中發現一可能的量子臨界點現象。
- 我們以比熱實驗解決了 $NbSe_2$ 超導體 40 年來懸而未決的有序參數對稱問題。實驗結果顯示雙能隙是最接近真實的圖像。〈見圖三〉

以上略舉其要，詳細的研究成果，請參見著作目錄。



圖一、 530 eV 至 531 eV 的光譜貢獻可能來自 stripes。

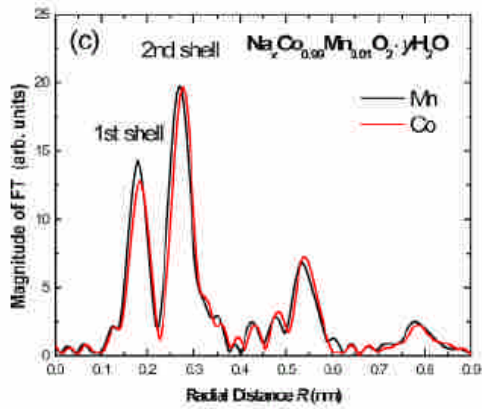


Fig. 2 Mn (a) *L*-edge and (b) *K*-edge XANES of $\text{Na}_x\text{Co}_{1-x}\text{Mn}_x\text{O}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ and the standard samples; (c) FT magnitudes with phase correction of the k^2 -weighted EXAFS data at Mn *K*-edge. Inset of (b) shows the enlarged edge region.

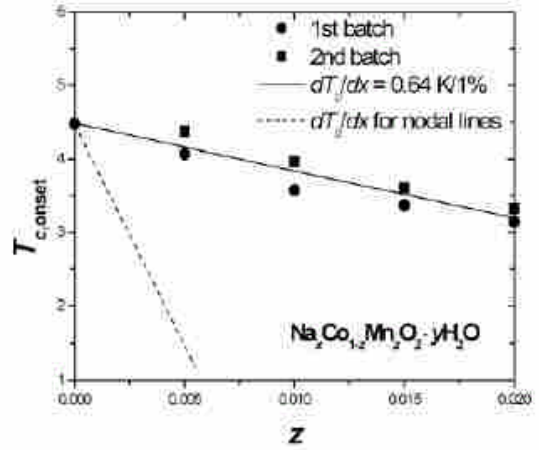
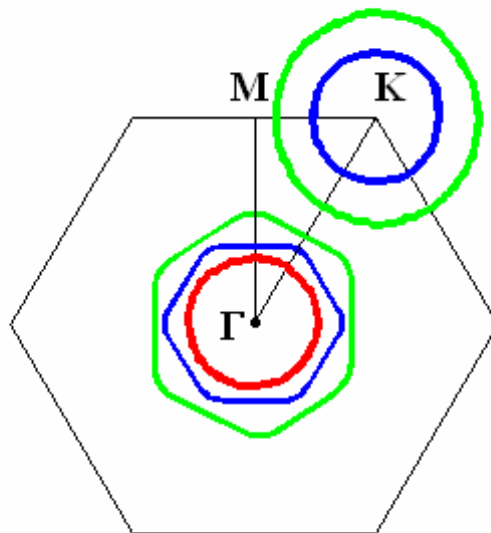


Fig. 4 T_c suppression by Mn impurities. The solid line is the linear fit of all data. The observed T_c suppression rate is much smaller than that (the dashed line) of a superconductor with line nodes (see text).

圖二、 摻錳的 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 顯示有 s 波的有序參數存在。

- The Se-derived Fermi surface
 - The bonding Nb-derived Fermi surface
 - The anti-bonding Nb-derived Fermi Surface
- $\Delta_{\text{Nb bonding}} = \Delta_{\text{Nb anti-bonding}} = 1.26 \text{ meV}$
 $\Delta_{\text{Se}} = 0.73 \text{ meV}$



圖三、 NbSe_2 超導體有序參數的圖示。

Reference

- [1] S. J. Chen, C. F. Chang, H. L. Tsay, H. D. Yang, and J.-Y. Lin, Phys. Rev. B **58**, R14 753 (1998).
- [2] C. F. Chang, J.-Y. Lin and H. D. Yang, Phys. Rev. Letters **84**, 5612 (2000).
- [3] C. F. Chang, J.-Y. Lin and H. D. Yang, Phys. Rev. B **61**, 14 350 (2000).
- [4] H. D. Yang and J.-Y. Lin, J Phys. Chem. Solids **62**, 1681 (2001).
- [5] J.-Y. Lin, S. J. Chen, S. Y. Chen, C. F. Chang, H. D. Yang, S. K. Tolpygo, M. Gurvitch, Y. Y. Hsu, and H. C. Ku, Phys. Rev. B **59**, 6047 (1999).
- [6] J.-Y. Lin and H. D. Yang, Phys. Rev. B **65**, 216502 (2002).
- [7] S. J. Lin, J. Y. Juang, K. H. Wu, T. M. Uen, Y. S. Gou, and J.-Y. Lin, Appl. Phys. Lett. **80**, 4202 (2002).
- [8] S. F. Chen, P. I. Lin, J. Y. Juang, T. M. Uen, K. H. Wu, Y. S. Gou, and J.-Y. Lin, Appl. Phys. Lett. **82**, 1242 (2003).
- [9] J.-Y. Lin, C. W. Chen, Y. C. Liu, S. J. Liu, K. H. Wu, Y. S. Gou, and J. M. Chen, JMMM **239**, 48 (2002).
- [10] H. D. Yang, J.-Y. Lin, H. H. Li, F. H. Hsu, C.-J. Liu, S.-C. Li, R.-C. Yu and C.-Q. Jin, Phys. Rev. Lett. **87**, 167003 (2001).
- [11] J.-Y. Lin, P. L. Ho, H. L. Huang, P. H. Lin, Y.-L. Zhang, R.-C. Yu, C.-Q. Jin, and H. D. Yang, Phys. Rev. B **67**, 052501 (2003).
- [12] K. H. Wu, P. I. Lin, C. C. Hsieh, S. J. Liu, J. Y. Juang, T. M. Uen, J.-Y. Lin and Y. S. Gou, Physica C **363**, 119 (2001).
- [13] I. P. Hong, J.-Y. Lin, J. M. Chen, S. Chatterjee, S. J. Liu, Y. S. Gou, and H. D. Yang, Europhys. Lett. **58**, 126 (2002).
- [14] C. C. Hsieh, K. H. Wu, J. Y. Juang, T. M. Uen, J.-Y. Lin, and Y. S. Gou, J. Appl. Phys. **92**, 2518 (2002).
- [15] J. M. Chen, S. J. Liu, C. F. Chang, J.-Y. Lin, Y. S. Gou, and H. D. Yang, Phys. Rev. B **67**, 014502 (2003).
- [16] J.-Y. Lin, P. C. Chung, S. J. Liu, P. H. Lin, J. M. Lee, J. M. Chen, K. H. Wu, and Y. S. Gou, J. Low Temp. Phys. **131**, 337 (2003).
- [17] S. J. Liu, J. Y. Juang, K. H. Wu, T. M. Uen, Y. S. Guo, J. M. Chen, and J.-Y. Lin, J. Appl. Phys. **93**, 2834 (2003).
- [18] H. D. Yang, H. L. Liu, J.-Y. Lin, M. X. Kuo, P. L. Ho, J. M. Chen, C. U. Jung, Min-Seok Park, and Sung-Ik Lee, Phys. Rev. B **68**, 092507 (2003).
- [19] H. D. Yang, S. Mollah, W. L. Huang, P. L. Ho, H. L. Huang, C.-J. Liu, J.-Y. Lin, Y.-L. Zhang, R.-C. Yu, and C.-Q. Jin, Phys. Rev. B **68**, 092507 (2003).
- [20] C. W. Luo, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, K. H. Wu, T. M. Uen, and Y. S. Gou, Phys. Rev. Lett. **90**, 179703 (2003).
- [21] C. W. Luo, M. H. Chen, S. P. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Wen, and Y. S. Gou, Physical Review B **68**, 220508(R) (2003).
- [22] J.-Y. Lin, C. W. Huang, P. H. Lin, C. P. Sun, J. M. Lee, J. M. Chen, and H. D. Yang, Physica C, **408-410**, 437 (2004).
- [22] W. J. Chang, C. C. Chang, J. Y. Juang, K. H. Wu, T. M. Wen, Y. S. Gou, C. H. Hsu, and J.-Y. Lin,

Journal of Applied Physics **96**,4357 (2004).

- [23] C. P. Sun, J. -Y. Lin, S. Mollah, P. L. Ho, H. D. Yang, F. C. Hsu, Y. C. Liao, and M. K. Wu, Physical Review B **70**, 54519 (2004).
- [24] H. D. Yang, J.-Y. Lin, C. P. Sun, Y. C. Kang, and K. Takada, T. Sasaki, H. Sakurai and E. Takayama-Muromachi, Physical Review B **71**, 020504(R) (2005).
- [25] J.-Y. Lin, W. J. Chang, J. Y. Juang, T. M. Wen, K. H. Wu, Y. S. Gou, J. M. Lee, J. M. Chen, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **282**, 237 (2004).
- [26] W. J. Chang, J. Y. Tsai, H.-T. Jeng, J.-Y. Lin, Kenneth Y.-J. Zhang, H. L. Liu, J. Y. Juang, J. M. Lee, J. M. Chen, K. H. Wu, T. M. Uen, and Y. S. Gou, Phys. Rev. B **72**, 132410 (2005)
- [27] C. W. Luo, P. T. Shih, Y.-J. Chen, M. H. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen, and Y. S. Gou, Phys. Rev. B **72**, 092506 (2005).
- [28] C. L. Huang, J.-Y. Lin, C. P. Sun, T. K. Lee, J. D. Kim, E. M. Choi, S. I. Lee, and H. D. Yang, Physical Review B **73**, 012502 (2006).
- [29] C. W. Luo, P. T. Shih, Y.-J. Chen, M. H. Chen, K. H. Wu, J. Y. Juang, J.-Y. Lin, T. M. Uen and Y. S. Gou, Phys. Rev. B **74**, 184525 (2006).
- [30] T. Y. Cheng, C. W. Lin, L. Chang, C. H. Hsu, J. M. Lee, J. M. Chen, J.-Y. Lin, K. H. Wu, T. M. Uen, Y. S. Gou, and J. Y. Juang, “Magnetotransport properties, electronic structure, and microstructure of $\text{La}_{0.7}\text{Sn}_{0.3}\text{MnO}_3$ thin films”, Phys.Rev. B **74**, 134428 (2006).
- [31] J. T. Kao, J.-Y. Lin, and C. Y. Mou, Phys. Rev. B **75**, 012503 (2007).
- [32] W. J. Chang, C. C. Hsieh, T. Y. Chung, S. Y. Hsu, K. H. Wu, T. M. Uen, **J.-Y. Lin**, J. J. Lin, C.-H. Hsu, Y. K. Kuo, H. L. Liu, M. H. Hsu, Y. S. Gou, and J. Y. Juang, Appl.Phys. Lett., in press.

參加 APS2006 大會心得報告

林俊源

一、參加會議經過

美國物理年會三月大會一直是全球凝態物理學界最重要的年度集會之一。在此會議中，不但可以聆聽到過去一年所有傑出凝態物理工作的總結，也可以察覺到現在與未來數年研究的新趨勢。

本人於三月十二日抵達會議所在地美國馬里蘭州巴爾的摩，於一週緊湊的議程後，本人於十七日離開，十八日返抵國門。

二、與會心得

最近新發現的水合超導體 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 仍是本屆會議的重點之一，有許多時段專門討論相關議題。本人此次在會中發表了 $\text{Na}_x\text{CoO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 摻鋅的 impurity effects，對目前懸宕未決的超導有序參數提供了極有用的資訊。因為此結果極為重要，因此引起了會場正反雙方的激辯。另外我們也發表了 Na_xCoO_2 磊晶薄膜的製成與對樣品的鑑定，與會者對我們實驗室的薄膜品質皆留下深刻印象。我也報告了對 $\text{YNi}_2\text{B}_2\text{C}$ 的超導有序參數研究，以比熱實驗的方式為此議題貢獻了一些新的資訊，並與美國 Los Alamos 國家實驗室的 Tuson Park 博

士作了極有建設性的詳細討論。會中也結識了夏威夷大學的 Li Chung Ming 教授與 MIT 的 Y. S. Meng 博士，希望將來能有更多的交流與合作。此外本人目前亦聽取她人報告超巨磁阻錳氧化物的研究，在和與會者進行相關討論後，甚覺本研究群強調 metastable state 與製備奈米結構以研究像分離物理的方向是對的，更使我們決心要付出加倍的努力來進行此項研究。

三、建議

諸如物理大會這樣的盛會，提供了物理研究同仁一個絕佳的交換研究心得、獲得最新資訊、以及良性競爭的機會。並且藉由媒體報導這樣的盛會，為物理界向一般社會民眾作了最佳的公關與宣傳，從而可能吸收更多優秀青年投入物理領域，為物理界與人類創造更好的明天。因此本人建議，國內舉辦物理活動時，務必要與媒體有密切聯繫。如舉辦國內物理年會時，應主動邀請各電子與便面媒體來採訪，以增加物理工作者在社會上的地位與知名度，從而開創更多的資源與吸收更多的人才。

四、攜回資料

此次與會，首度以數位相機記錄下許多學者會中報告的凝態物理領域最新進展，與珍貴的第一手資料。。

五、總結

整體而言，本人藉著參加此次大會，發表了最近的研究成果，並與同領域人員進行了資訊的交流，且對凝態物理界近日據爭議的問題有了第一手的接觸，可說是不虛此行。在此僅感謝國科會對此行所給予的補助。