

一維與二維約瑟芬結陣列中的量子相變

郭華丞 陳啟東

中央研究院物理所

E-mail: chiidong@iis.sinica.edu.tw

摘 要

約瑟芬結組成的一維及二維陣列，具有由磁場所引發的超導-絕緣體相變。此相變的臨界磁場，和電流電壓特性曲線中所觀察到庫柏電對的庫倫阻斷及約瑟芬電流，可相互對應。理論上可利用一維及二維的超流-絕緣體理論來分析實驗上測量的電阻訊號。相變的度規分析提供我們該相變的臨界指數。這些結果可以提供我們一維約瑟芬結陣列中超導-絕緣體相變的相圖。該相圖以約瑟芬耦合能與電荷能間的比值和耗散強度兩種參數來表示。

低維度超導系統

由於元件製程技術的進步，超導物理近年來的研究，也朝向小尺寸，低維度的方向發展。最近研究的系統包括二維超導薄膜，一維超導奈米線，一維約瑟芬結(Josephson junction) 陣列[1,2]，奈米超導量子點等等[3]。低維度超導系統具有超導量子相變和磁通量子漲落等等有趣的物理現象。而約瑟芬結陣列則是一人為製造出來，可供我們觀察了解低維度超導性質的物理系統。這種人為製作的系統，具有易於掌控其物理參數，並能規則性的製作等優點。這些可調整的參數包括有陣列的大小，約瑟芬結的尺寸及穿隧電阻，結與結之間的距離，和使用的超導材料等等。由於有更多的物理參數可以人為操控，這是一研究量子相變的理想系統。

約瑟芬結陣列的製作

陣列是由大小約零點一微米的約瑟芬結組成。使用這種大小的約瑟芬結，是為了能在低溫中顯現出其電荷效應(charging effect)。一般而言，這種尺寸的約瑟芬結，仍然要將溫度降低於 1K 才能觀察到其電荷效應。目前必須利用電子束曝光蝕刻術[4]，方能製作如此微小並規則排列的電子元件。電子束曝光蝕刻術和黃光製程相近：在基板上旋鋪電子阻劑，並烤至乾燥。將所需要的圖形經過電子束曝光後，可用顯影劑將受曝光的阻劑移除。此時殘存的電子阻劑即形成遮罩。將整個晶片蒸鍍金屬材料，只有受曝光的區域能夠附著於基板上，其他的部分會被遮罩擋住。最後將殘餘的電子阻劑和其上的金屬膜以溶劑舉離(lift-off)便完成。

通常所選用的超導材料為鋁。一方面因為鋁的蒸鍍溫度不至於過高而破壞電子阻劑，另一方面鋁的氧化物可以作為高品質的穿隧結絕緣層。其缺點是薄膜鋁的超導溫度較低，約 1 至 2K。穿隧電阻的大小是由通氣時的壓力與時間來控制。一般會

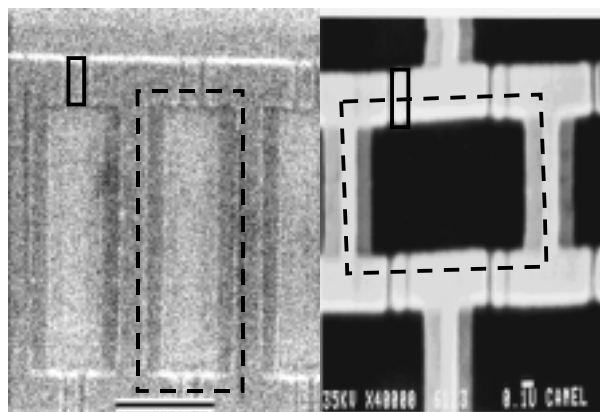
控制其大小接近量子電阻, $R_Q = h/4e^2 = 6.5k$ 。電阻太低則瑟芬結耦合太強, 無法觀察其絕緣體的特性; 反之則瑟芬結耦合太弱, 超導特性會消失。相對的如果瑟芬結面積太小則電荷效應太強, 整體超導特性會消失; 反之則電荷效應太弱, 絕緣體的特性不能表現出來。陣列的大小則取決於電子束曝光的極限。以我們目前所使用的電子顯微鏡改裝的電子束曝光機而言, 700 倍的視野約為 100×100 微米見方。

約瑟芬結陣列的電性量測

由於鋁的超導溫度和約瑟芬結的電荷效應, 都要在 1K 左右才會出現。一般約瑟芬結陣列需要置於稀釋冷凍機中, 達到 mK 的環境中量測。量測電流產生的焦耳熱不能太大, 此外由於約瑟芬結的尺寸極為微小, 所量測的電流不能太大而燒壞樣品。陣列的電流電壓特性是非線性的曲線, 我們必須要能夠量測到 1pA 和 1 μ V 大小的 DC 訊號。為達此目的, 我們必須自行設計組裝一套適合的量測線路, 和能夠達到此解析度的前置放大器。為了減小因訊號線過長而導入的雜訊, 該放大器是直接置於低溫樣品架的上方。

由於所設計的陣列單元類似一個超導量子干涉元件(SQUID)。SQUID 的面積約是 0.5 微米見方, 這使得加上一約十高斯的磁場, 便可在一個陣列單元中塞入一磁通量子($\Phi_0 = h/e$)。當外加一垂直於基板的磁場時, 會改變陣列的傳導性質。一般而言, 此性質只和塞入陣列單元的磁通量子數目有關, 而且為周期性的。為了更簡單的表示磁場的作

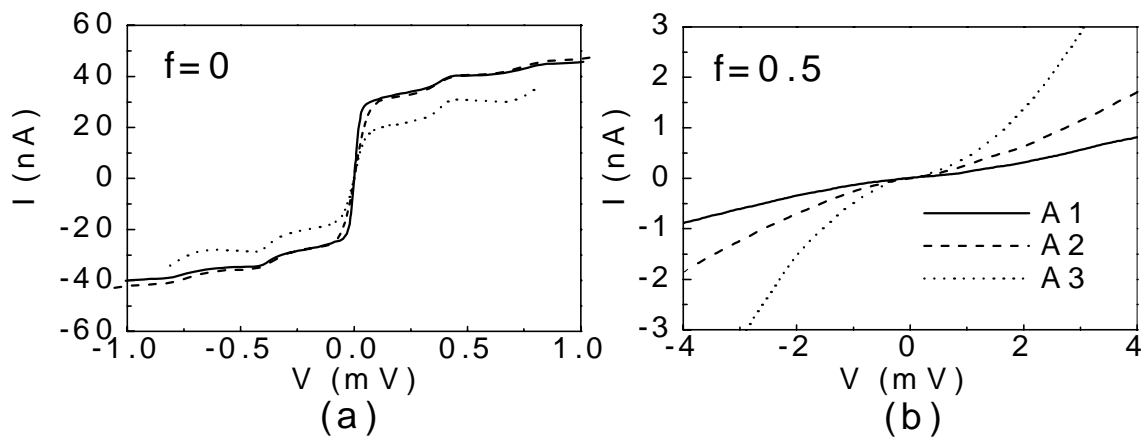
用, 我們定義一填滿因子 f , 代表一個陣列單元所填入的磁通量子平均數目, 在二維陣列中 f 稱為 frustration。圖二是對一組一維陣列樣品量測到的電流電壓(I V)特性曲線。同一個樣品在不同的磁場下(用 f 值來表示), 顯現出類似超導體($f=0$)和類似絕緣體($f=0.5$)的兩種特性。



圖一：約瑟芬結陣列(部分)的電子顯微鏡影像 [1]，I 字型的鋁超導島組合而形成類似 SQUID 的單元構成整個陣列。左圖為一維陣列，下方的尺標為一微米的長度。右圖為二維陣列，右下方的尺標為 0.1 微米的長度。實線所框的區域是一個穿隧結，虛線所框的區域是一個 SQUID。

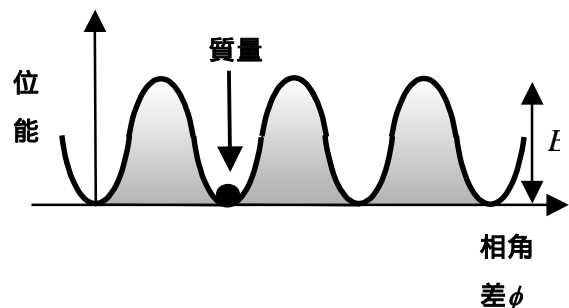
約瑟芬結的量子力學

一個約瑟芬結是由兩個超導體接合而形成, 庫伯電子對(Cooper pair)可在兩超導體間穿隧。描述此系統的物理變數有接面上累積的電子對數目 n 和兩個超導體之間的相角差 $\phi = \theta_1 - \theta_2$ 。這兩個變數為共軛的, 也就是滿足測不準原理, $\Delta n \Delta \phi > 1/2$ 。



圖二：一維約瑟芬結陣列在 $f=0$ (a)和 0.5 (b)時的 IV 特性曲線。溫度為 40mK 。當 $f=0$ 時系統顯現出超導特性，而 $f=0.5$ 時系統為絕緣特性。

其中 Δn 和 $\Delta\phi$ 分別是 n 和 ϕ 的漲落(fluctuation)。若使用 ϕ 的表象，此系統可以描述為一個具有質量 C 的質點，在一個無限延伸的波浪狀位能阱中的運動(圖三)。其中 C 是約瑟芬結的電容，而波浪的高度為約瑟芬結的耦合能量 E_J ，相鄰的波谷對應 ϕ 改變了 2π 。在量子力學中，假想的質點可以在波谷間穿隧，而增加 ϕ 的漲落。此假想質點穿隧的能力，隨著質量 C 和位阱高度 E_J 的減少而增加，通常可以用一個參數 E_J/E_{CP} 來代表。 E_{CP} 是庫伯電子庫倫阻斷的電荷能，也就是 $4e^2/2C$ 。 E_J/E_{CP} 值愈小， ϕ 的漲落 ($\Delta\phi$) 愈大。根據測不準原理，此時電荷漲落 Δn 愈小，其物理意義為庫伯電子對處於庫倫阻斷的狀態，而無法產生電流。反之 $\Delta\phi$ 愈小， Δn 愈大，庫伯電子對在兩個超導體間可以輕易的來回，超導電流也隨之增加。



圖三：單一約瑟芬結的動力學可用波浪狀位能阱模型來表示。其中位能阱高度為 E_J ，移動的質點質量為 C 。

在一維約瑟芬結陣列中具有 SQUID 的結構。當改變磁場時，相鄰超導島的 E_J 會以週期方式改變。 E_{CP} 則保持不變。因此我們可以藉由磁場來控制 E_J/E_{CP} 的大小。 $E_J \gg E_{CP}$ 時，庫伯電子對可以輕易的在超導島間穿隧。反之 $E_{CP} \gg E_J$ 時，庫伯

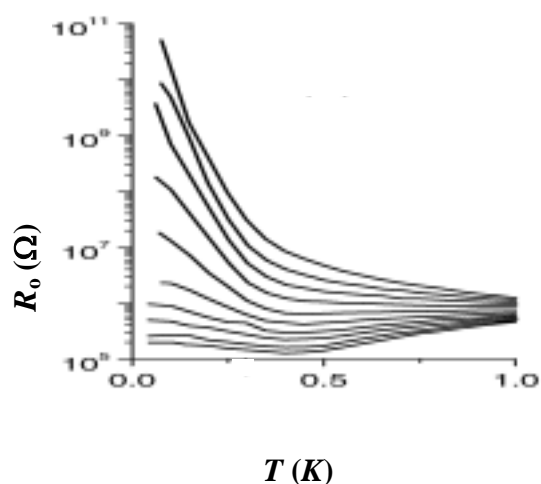
電子對處於庫倫阻斷的狀態。一維陣列理論預測[9,10,11]，當 E_J/E_{CP} 大於一個極限值時，每個超導島 $\Delta Q/e \gg \Delta\theta$ ，而造成整個系統成為超導態；反之每個島 $\Delta\theta \gg \Delta Q/e$ ，便是絕緣態。超導 - 絕緣體相變的分隔發生在一個的 E_J/E_{CP} 值，稱之為臨界點。理論上此一維空間加一維時間的量子體系等同於二維空間的古典體系。數學上可將 non-interacting 的一維陣列模型，對應於古典的二維 XY 模型。此時的 E_J/E_{CP} 臨界值和二維 XY 模型中 KT 相變的 T_{KT} 對應。由此數學對應而得的 E_J/E_{CP} 臨界值[9]應為 $8/\pi^2=0.81$ 。實驗上可以利用系統的零偏壓電阻 R_0 對溫度 T 的變化來觀察超導 - 絕緣體的相變。

一維陣列的電阻-溫度關係

為了進一步考察在一維陣列中不同 f 值時的超導和絕緣特性，我們可以量測不同溫度下的電阻變化。由於 IV 是非線性的，這裡的電阻 R_0 指的是零偏壓時的電阻值，實驗上是取得 IV 在零偏壓附近區域的微分值。圖四所示的是實驗上所量得的在不同的 f 值(也就是不同磁場下)所量得的 $R_0(T)$ 曲線。當 $f=0.5$ 時，溫度愈低則電阻愈高。此時的電導並滿足 Arrhenius 關係式， $G \sim \exp(-E_b/k_B T)$ 。表示庫伯電子對的傳導是熱激發的，其中 E_b 代表一障壁能量，實驗上約為 $120\mu\text{eV}$ ，約為庫倫阻斷電荷能(E_{CP})的大小。

當 $f=0$ 時，溫度降低則電阻也有降低的趨勢。不過當溫度到達一特定溫度 T_{cr} 後電阻便不再降

低，顯示當溫度趨近於零時，系統的電阻並不會降到零。這表示系統並沒有總體性的超導。這兩種不同的電阻-溫度關係，明確的分別表現出超導體和絕緣體的特性。理論上在臨界點時樣品的方膜電阻 R (定義於下一段)會是一個與溫度無關的定值。實驗上當我們在 SQUID 上加磁場時，可連續的改變 E_J 值通過臨界點。如果我們把到達相變時的 E_J 值定為 E_J^* ，便可以得到實驗上 E_J/E_{CP} 的臨界值。實驗結果大略符合理論的預測值。

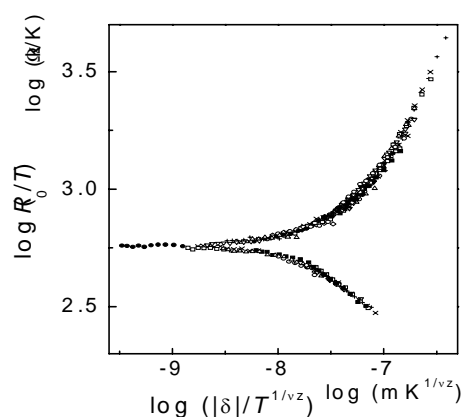


圖四:一維約瑟芬結陣列的電阻-溫度關係圖。最上方的曲線是 $f=0.5$ ，最下方的曲線是 $f=0$ 。此樣品長度為 100 個單元， E_J/E_{CP} 值約為 1.4。

度規(Scaling)分析

相變的特性是物理量只和相變的相干長度 ξ 有關。在本系統中，是以磁場來改變此相干長度。如果對系統重新定義度規，使相干長度歸一化，則觀測量也應該是歸一的。在二維體系中一般選擇觀測量為系統的方膜電阻。而在一維量子體系中，由

於需要考慮時間的維度，而成為(1+1)維的系統。這和不需要考慮時間維度的二維古典體系在數學上可以互相對應。實驗上空間維度的度規是樣品長度 L ，而時間度規 L_T 是指虛時間，和外界的溫度有關 $L_T = \hbar/k_B T^{1/z}$ ，其相干長度是 ξ^z 。而觀測量可以是系統的方膜電阻 R 。然而在(1+1)維的系統中的“方膜電阻”可以看作是 $R = R_0 L_T / L = R_0 / L T$ (L_T 是樣品的寬度，我們並假設 $z=1$)。若假設一相干長度和磁場的關係，和時間度規 L_T 和空間度規的相異程度，便可以將不同磁場下的 $R_0 L_T(T)$ 曲線作 scaling 的分析而疊合在一起。通常這兩種關係都滿足冪關係，前者以指數 ν ，而後者以指數 z 來描述。若 $z=1$ 則時間和空間是對等的。KT 形式的相變，其相干長度則為非冪關係的。scaling 的分析可以提供我們 ν 和 z 的值，也可以讓我們了解所觀察到的相變現象屬於哪一類型。圖五是圖四的 $R_0(T)$ 曲線以 R_0/T 分析所得的一維約瑟芬結陣列 scaling 曲線。在超導(下)和絕緣(上)兩支都疊合得很好。



圖五:由圖四的 $R_0(T)$ 數據所作的 Scaling 曲線。

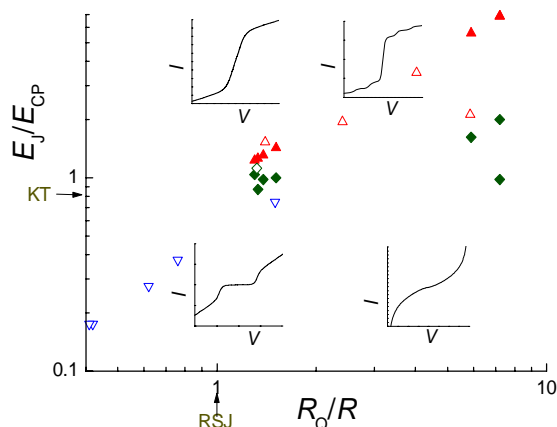
各種不同的記號所形成的曲線是相對於不同的 f 值(磁場值)所得的 Scaling 曲線。所有的曲線可重疊至兩股曲線:朝上彎曲曲線是代表絕緣相變，朝下彎曲曲線是代表超導相變。

根據我們做的 scaling 分析，我們得到一維約瑟芬結陣列的兩個結果[1]：

1. 方膜電阻 R ($\sim R_0/T$) 滿足 scaling 函數
2. 相干長度滿足冪關係， $\xi \sim \delta^{-\nu}$ ，和 KT 形式不同。這裡 δ 是指控制參數與相變臨界值間的距離，也就是， $\delta = |(E_J/E_{CP})^{1/2} - (E_J^*/E_{CP})^{1/2}|$ 。分析得到指數 z 近似於 1，而 $\nu z = 0.3 \sim 0.45$ 。

相圖

由磁場所引發的超導-絕緣體相變實驗[1,2]可得一維約瑟芬結陣列的相圖，此圖是以 E_J/E_{CP} 和 R_Q/R 值作為參數。 R_Q/R 代表系統的 vortex 運動耗散強度。相圖的右上方為超導特性區域，而左下方為絕緣特性區域。菱形標記為磁場引發的超導-絕緣體相變點。理論上將上半區稱為具有全域的同調性(global coherence)，而下半區不具有全域的同調性[12]。我們可以進一步比較不同耗散強度的樣品在最低溫的 IV 特性曲線。在低耗散區的絕緣態中， IV 曲線顯示出一明顯的庫倫能隙，而高耗散區則無明顯的能隙。這表示這兩類樣品可能是處於不同的相。根據理論研究，較大的耗散強度可以造成陣列局部的同調性(local coherence)[12]。我們認為低溫的 IV 特性曲線可以說明耗散強度對系統所造成的影響。然而要明確界定出耗散造成的相變，仍需要進一步的研究，尤其是可調變耗散的陣列系統。



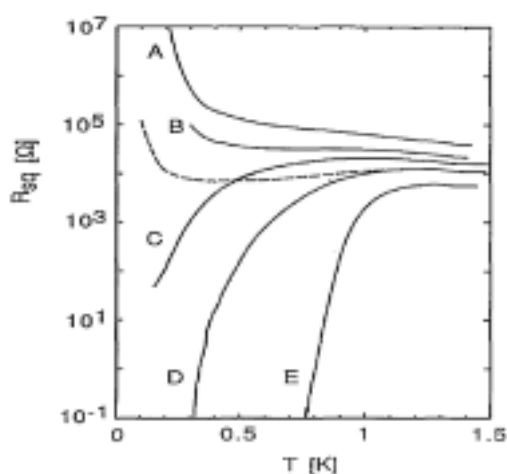
圖六：以 E_J/E_{CP} 和 R_Q/R 值作為參數得到的一維約瑟芬結陣列的相圖。我們同時引用了 Haviland 的實驗結果[2] (中空標記)。超導態以正三角形表示，絕緣態以倒三角表示。菱形則代表改變 E_J/E_{CP} 值產生相變的位置。水平箭頭標示出 KT 相變的理論預測點[7]，垂直箭頭標示出 RSJ 模型的理論預測點[12]。

二維陣列的量子相變

前面我們略為描述了一維陣列中的量子相變，現在我們進一步談談二維陣列的物理現象。以歷史的角度而言，由於電子束曝光蝕刻術的應用，約瑟芬結陣列的研究才進入一個系統性研究的階段。而最早的研究課題是二維陣列中的磁通(vortex)間的交互作用，以及二維超導系統中全域同調性的破壞。後者又稱為二維中的超導 - 絕緣體的量子相變，這一個題目在超導薄膜的系統中已有深刻的研究。而二維陣列可視為一人造的薄膜系統。最早的二維陣列量子相變研究發現[5]，在 (E_J/E_{CP}) 大的陣

列會顯示超導性，而在 (E_J/E_{CP}) 小的陣列會顯示絕緣性質(圖七)。相變點的方膜電阻值 R 接近於 R_Q 。

當外加一垂直磁場時，磁場也可引發二維陣列中的超導 - 絕緣體的量子相變。但在二維系統中，磁場的增加所引發的超導至絕緣的相變有相當不同的物理機制：在一維 SQUID 中，磁場用來消滅 (E_J/E_{CP}) 的比值，而在臨界值時引發相變，但在二維 SQUID 中，磁場是用來增加磁通密度，在一臨界密度時引發相變。這是因為在二維系統中磁通間的交互作用遠比在一維系統中表現得強烈。在二維系統中，當 f 值是簡單整數比，如 0、1/2、1/3 和 2/3 時，陣列的電阻變小



圖七：二維陣列的方膜電阻 R 對溫度的關係[5]。

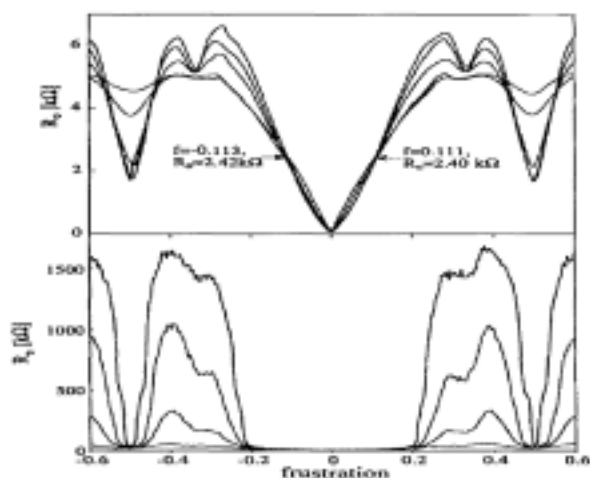
其 (E_J/E_{CP}) 值為 A:0.06、B:0.14、C:0.17、D:0.25、E:0.47。其中 A、B 呈現絕緣態，C、D、E 為超導態。

並表現出超導性質。低電阻代表磁通的運動是受到侷限的，此狀態稱作磁通的 commensurate state[6,7]。其物理可由磁通間的交互作用來解釋。因為磁通和電荷的運動是共軛的，磁通的集體行為便影響了陣列的電性，產生了超導 - 絕緣體的量子相變(圖八)。

磁通間的交互作用在第二類超導物質中是一個有趣的課題，二維陣列也提供一個可控制的系統來研究。此外由於磁通間的作用力是與距離的對數成正比，這和二維庫倫氣的模型是相當的。在外加磁場為零的二維陣列系統中，理論預測存在一 Kosterlitz-Thouless(KT)相變。不同於前面所敘述的超導 - 絕緣體相變，這裡的磁通 KT 相變是一有限溫度的相變。其臨界溫度可用 T_{KT} 表示。在 T_{KT} 之下，磁通會和一反向磁通結合成對，而高溫時則否。當磁通結合成對時，超導相參數的位相漲落變小，而陣列顯示出超導特性。由電阻-溫度曲線，和度規(scaling)分析所得到的相干長度性質，可以發現二維陣列中具有磁通的有限溫度 KT 相變[8] (圖九)。

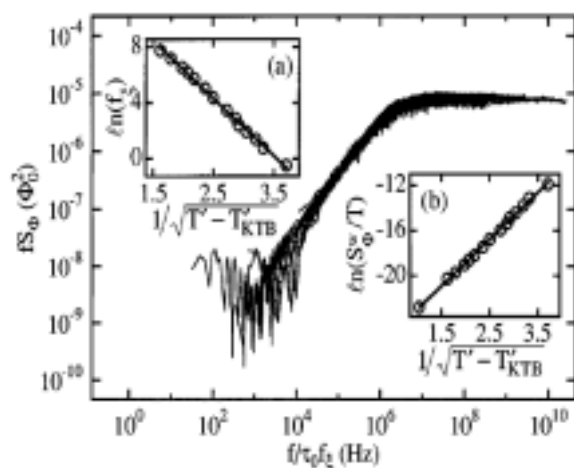
磁場引發的二維陣列量子相變

前面敘述了二維陣列中的相變現象，這裡我們進一步討論磁場引發的超導 - 絕緣體的量子相變，而這可以和前述一維陣列中的相變作一比較。圖十顯示



圖八:二維陣列的零偏壓線性電阻 R_0 對 f 的關係

[7]。在 f 值為 0、1/2、1/3 和 2/3 時，陣列的電阻為局部極小。上圖可見在 f 值=0.11 是磁場引發的超導 - 絕緣體的量子相變的臨界點。

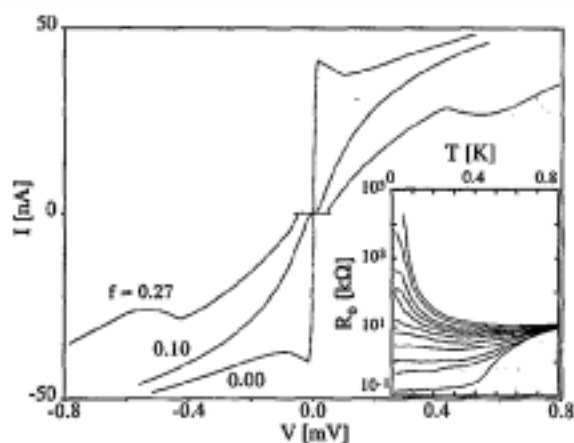


圖九:二維陣列的磁通噪音(Noise)的度規曲線[8]。

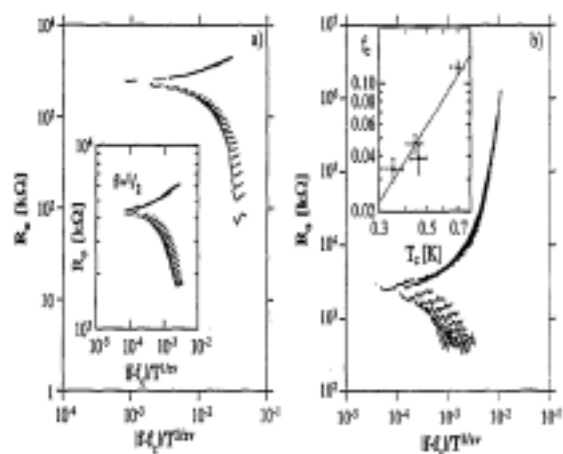
小圖顯示相干長度滿足 KT 相變的指數形式。

二維約瑟芬結陣列在三個不同的 f 值之下的 IV 特性曲線(可參考圖二和圖四)。在此樣品中約瑟芬結穿隧電阻為 $12.5k$, 而 E_{CP} 值約為 $250\mu eV$ 。右下方小圖顯示在此一典型的相變中的電阻-溫度關係圖, 可看出 $f=0$ 時為超導態, $f=0.27$ 時為絕緣態。在 f 值=0.10 時是臨界點。不同於一維陣列的狀況, 在二維陣列中的相變臨界點, 方膜電阻對溫度是一不變的值。在長寬相同的正方形二維陣列中, 方膜電阻即為樣品的電阻。

度規分析也可運用在磁場引發二維陣列中的超導 - 絕緣體的量子相變中。圖九顯示二維陣列電阻-溫度 $R_0(T)$ 數據所作的 Scaling 曲線。得到的臨界指數 $\nu_z=1\sim 8.2$ 。[7]



圖十:二維約瑟芬結陣列在 $0 < f < 0.27$ 的 IV 特性曲線和電阻-溫度關係圖(inset)。可看出 $f=0$ 時為超導態, $f=0.27$ 時為絕緣態, f 值=0.10 是臨界點[7]。



圖九: 二維約瑟芬結陣列 $R_0(T)$ 數據所作的 Scaling 曲線[7]。所有不同的 f 值(磁場值)所得的曲線可重疊至兩股曲線:朝上彎曲曲線是代表絕緣相變, 朝下彎曲曲線是代表超導相變。

參考文獻

1. W. Kuo and C.D.Chen, *Phys. Rev. Lett.*, 87, 186804(2001)
2. E. Chow, P. Delsing, and D. B. Haviland, *Phys. Rev. Lett.*, 81, 204(1998); P. Agren, K. Andersson and D. B. Haviland, *J. Low Temp. Phys.*, 124, 291(2001)
3. D. C. Ralph, C. T. Black, and M. Tinkham, *Phys. Rev. Lett.*, 78, 4087(1997); C. N. Lau, N. Markovic, M. Bockrath, A. Bezryadin, and M. Tinkham, *Phys. Rev. Lett.*, 87, 217003(2001)
4. 陳啟東, 物理雙月刊, 廿一卷, 4 期, pp451(1999)
5. L. J. Geerligs, M. Peters, L. E. M. de Groot, A. Verbruggen, and J. E. Mooij, *Phys. Rev. Lett.*, 63, 326(1989)
6. H. S. J. van der Zant, F. C. Fritschy, W. J. Elion, L. J.

- Geerligs, and J. E. Mooij, *Phys. Rev. Lett.*, 69, 2971(1992)
7. C. D. Chen, P. Delsing, D. B. Haviland, Y. Harada, and T. Claeson, *Phys. Rev. B*, 51,15645(1995)
8. T. J. Shaw, M. J. Ferrari L. L. Sohn, D. H. Lee, M. Tinkham, and J. Clarke, *Phys. Rev. Lett.*, 76, 2551(1996)
11. M. P. A. Fisher, G. Grinstein, and S. M. Girvin, *Phys. Rev. Lett.*, 64, 587(1990); M.C. Cha, M. P. A. Fisher, S. M. Girvin, M. Wallin, and A. P. Young, *Phys. Rev. B*, 44, 6883(1991)
12. P. A. Bobbert, R. Fazio, Gerd Schon, and A. D. Zaikin, *Phys. Rev. B*, 45, 2294(1992)

歡迎刊登廣告

「物理雙月刊」是一份報導物理界動態發展之刊物，其內容深入淺出，涵蓋物理新知、物理專文、人物專訪、物理消息、研討會消息等專欄，為台灣物理界人士所熟知。若有需要，歡迎學校各系所或廠商利用本刊刊登廣告，有意者請向物理學會李衷潔小姐聯絡。

TEL: 02-23634923

9. R. M. Bradley and S. Doniach, *Phys. Rev. B* 30, 1138(1984).
10. S. L. Sondhi, S. M. Girvin, J. P. Carini, and D. Shahar, *Rev. Mod. Phys.*, 69, 315(1997)