

3 ω 方法及其在纳米材料器件表征中的应用*

丰 平 王太宏

(中国科学院物理研究所, 北京 100080)

(2003 年 2 月 21 日收到, 2003 年 3 月 17 日收到修改稿)

阐明了 3 ω 方法的机理, 并在此基础上讨论了它的一些基本应用. 利用 3 ω 方法可以对具有优良导热和导电能力的材料的热导率和热容进行测量, 对不能导电的材料, 固态的或液态的, 利用 3 ω 方法能对它们的热导率进行测量. 对测量中涉及到的热辐射问题的讨论表明, 由于使用的是小样品, 热辐射造成的影响可以忽视. 通过理论推导, 使用二维隧穿结点阵并借助 3 ω 方法, 可以给出一种性能良好的二维库仑阻塞测温法.

关键词: 3 ω 方法, 热容(定压), 热导率, 库仑阻塞

PACC: 6540, 7335C

1. 引 言

材料的研究是当今科学研究中一个很热门的课题. 在研究材料的过程中, 测量材料的各种物理参数是非常重要的环节. 测量材料的各种参数有很多方法, 3 ω 方法是利用频率为 ω 的交流电流会导致的频率为 3 ω 的交流电压这个事实来对材料进行测量.

频率为 ω 的交流电流通过金属棒, 金属棒的温度将有频率为 2 ω 的交流成分, 这种温度的微小改变将导致电阻的微小改变, 它们之间的关系在小的温度区域里是线性的, 这就导致电阻也有频率为 2 ω 的交流成分, 在频率为 ω 的交流电流的作用下, 欧姆定律给出电压由频率为 ω 和 3 ω 的成分组成. 从频率为 3 ω 的交流电压成分的产生过程可以看出, 这种交流电压与金属棒的热导率和热容有关, 可以利用这样的性质设计实验对金属棒的物理参数进行测量. 对其他的热和电的良好导体, 也有类似的结论; 对导电和导热性质不好的固态材料, 在材料表面镀上金属薄膜, 也能对它们进行测量; 对不导电的液态物质, 借助金属丝导通交流电流, 也能对它们进行测量. 这种测量材料物理参数的方法, 就是 3 ω 方法.

1910 年 Corbino^[1] 提到用交流电流在材料中产生的两种频率的电压能对材料的一些物理参量进行测量. 电压中频率为 3 ω 的交流成分很少, 它只是由

电阻的微小振荡引起, 其大小只相当于频率为 ω 的交流电压的千分之一的量级. 将频率为 3 ω 的电压成分精确测量出来很困难. 因为无法测量出频率为 3 ω 的交流电压, 在很长一段时间里, 3 ω 方法无法得到应用. 利用锁相放大技术可以将频率为 ω 和 3 ω 的电压成分高精度的测量出来, 使得 3 ω 方法得到了发展. 现在使用 3 ω 方法进行的实验都是采用锁相放大技术进行.

2. 原 理

导体中的电阻是温度的函数, 在很小的温度范围内 $\frac{dR}{dT}$ 可看成常数,

由 $I(t) = I_0 \sin \omega t$ 有

$$P(t) = I_0^2 R \sin^2 \omega t = \frac{1}{2} I_0^2 R (1 + \cos 2\omega t),$$

得到 $\Delta T = a \sin(2\omega t + \phi) + b$ (a, b 是与 ω 无关的常数),

$$\Delta R = R' \Delta T = aR' \sin(2\omega t + \phi) + bR',$$

$$V(t) = I_0 \sin \omega t (R + \Delta R)$$

$$= I_0 \sin \omega t (R + b) + \frac{1}{2} a I_0 R' \cos(\omega t + \phi)$$

$$- \frac{1}{2} a I_0 R' \cos(3\omega t + \phi)$$

$$= V_\omega(t) + V_{3\omega}(t).$$

可以看出电压有两部分组成, 频率分别为 ω 和 3 ω .

* 国家重点基础研究专项基金(批准号: G2001CB3095)和国家自然科学基金(批准号: 69925410 和 60236010)资助的课题.

从下面五个方面讨论 3ω 方法及其在纳米材料器件表征中的应用.

2.1. 具有优良导热和导电能力的材料

图 1 为对一根导电和导热能力都很好的细小金属棒进行 3ω 测量的原理示意图. 金属棒被四根柱子支起来, C 表示金属棒的热容, κ 表示金属棒的热导率, R 为金属棒的电阻, ρ 为金属棒的密度. 棒的温度记为 $T(x, t)$, 是时间和位置的函数, 初始温度为 T_0 , 整个系统置于真空环境中. 电流 $I_0 \sin \omega t$ 从 A 端通入, 从 D 端流出, 电流流经金属棒产生焦耳热, 导致金属棒温度的改变, 电阻随之发生改变, 具有与温度振荡相同的频率. 必须避免热在金属棒上累积, 金属棒必须反应电流的瞬时作用效应. A, B, C, D 四根柱子以及底座都是热的优良导体, 但不能导电. 四根柱子与底座以及与金属棒之间接触良好, 热可在它们之间自由流通, 为了去除导线对测量的影响, 选取金属棒中间的一段 (B 和 C 之间的部分) 进行实验, 测量 V_ω 和 $V_{3\omega}$.

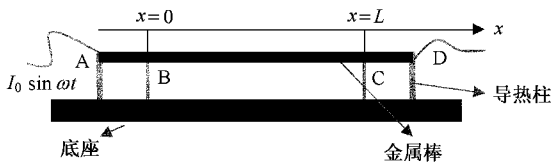


图 1 3ω 测量原理示意图

对图 1 给出的系统进行分析 (在忽略辐射和在小温度范围视 $\frac{dR}{dT}$ 为常数), 频率为 3ω 的电压成分表示为^[2]

$$V_{3\omega}(t) = \frac{I_0^3 RR'L}{2\pi^2 \kappa S} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{[1 - (-1)^n]^2}{n^4 \sqrt{1 + \cot^2 \phi_n}} \cos(3\omega t + \phi_n), \quad (1)$$

$$\cot \phi_n \approx 2\omega\gamma/n^2, \quad (2)$$

式中

$$R' = \left(\frac{dR}{dT}\right)_{T_0}, \gamma = L^2 \rho C \kappa (\pi^2 \kappa),$$

$V_{3\omega}(t)$ 表达式的值只依赖于很小的 n , 可只取 $n=1$ 的项. $n=2$ 对求和没有贡献, $n=3$ 的项只相当于 $n=1$ 时的 $1/81$, 后面的影响更小. 只取 $n=1$ 得到

$$V_{3\omega}(t) \approx \frac{2I_0^3 RR'L}{\pi^2 \kappa S \sqrt{1 + (2\omega\gamma)^2}} \cos(3\omega t + \phi_1). \quad (3)$$

将 (3) 转换为测量值表示的形式

$$V_{3\omega} \approx 4I^3 LRR' \kappa (\pi^2 \kappa S \sqrt{1 + (2\omega\gamma)^2}). \quad (4)$$

在不同的 ω 下测量 $V_{3\omega}$ 的值, 利用 (4) 式可以求出热导率 κ 和热容 C .

在使用低频电流测量时 (4) 式可写为

$$V_{3\omega} \approx 4I^3 RR'L/\pi^2 \kappa S. \quad (5)$$

测出 $V_{3\omega}$, 利用 (5) 式可以求出热导率 κ .

如用高频电流进行测量, $\frac{2\omega\gamma}{n^2}$ 在 n 不大的时候远远大于 1, n 取值很大的项对 (1) 式的值影响很小, 在 (1) 式中可取 $\phi_n = 0$ 得

$$\begin{aligned} V_{3\omega}(t) &= \frac{I_0^3 RR'L}{2\pi^2 \kappa S} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{4}{(2n-1)^4 \times \frac{2\omega\gamma}{(2n-1)^2}} \cos 3\omega t \\ &= \frac{I_0^3 RR'L}{\pi^2 \kappa S \omega \gamma} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(2n-1)^2} \cos 3\omega t \\ &= \frac{I_0^3 RR'L}{\pi^2 \kappa S \omega \gamma} \frac{\pi^2}{8} \cos 3\omega t \\ &= \frac{I_0^3 RR'L}{8\kappa S \omega \gamma} \cos 3\omega t. \end{aligned}$$

变成直流形式:

$$V_{3\omega} = \frac{I^3 RR'L}{4\kappa S \omega \gamma}, \quad (6)$$

将 $\gamma = L^2 \rho C / \pi^2 \kappa$ 代入 (6) 式有

$$V_{3\omega} = \pi^2 I^3 RR' \kappa (4\rho C L S \omega). \quad (7)$$

测出 $V_{3\omega}$, 利用 (7) 式即可求出热容 C .

用 3ω 方法测量时, 金属棒的电阻随着温度改变而产生的微小改变相对电阻在温度 T_0 时的值而言是小量, 电压中频率为 ω 的成分可近似表示为

$$V_\omega(t) \approx I_0 R \sin \omega t.$$

$$V_\omega \approx IR. \quad (8)$$

利用 (4) 式和 (8) 式得到

$$\begin{aligned} V_{3\omega}/V_\omega &\approx 4I^3 RR'L \kappa (\pi^2 \kappa S \sqrt{1 + (2\omega\gamma)^2}) / IR \\ &= 4I^2 R'L \kappa (\pi^2 \kappa S \sqrt{1 + (2\omega\gamma)^2}) \\ &\leq 4I^2 R'L \kappa (\pi^2 \kappa S). \end{aligned} \quad (9)$$

代入一组常见的数据, $I = 10\text{mA}$, $R' = 0.1\Omega/\text{K}$, $S = 0.01\text{mm}^2$, $L = 1\text{mm}$, $\kappa = 100\text{W}/\text{m}\cdot\text{K}$ 得到

$$4I^2 R'L \kappa (\pi^2 \kappa S) \approx 4 \times 10^{-4} \times 10^{-1} \times 10^{-3} / 10 \times 10^2 \times 10^{-8} = 4 \times 10^{-3}.$$

由此可见, $V_{3\omega}$ 与 V_ω 相比, 数量级为 10^{-3} .

$V_{3\omega}$ 是一个很小的电压值, 且与 V_ω 混在一起, 利用锁相放大技术可以将它们都测出来.

2.2. 导热能力好, 导电能力不好的固体材料

在材料的表面镀上一层金属薄膜, 电流流经金

属薄膜,产生的热导致金属薄膜温度的微小振荡,是由所测的材料决定的.在镀金属膜时,必须确保膜与所测样品的热接触良好,否则金属膜无法灵敏地反应样品的热状况.可以据此设计实验,测量导热能力好,导电能力不好的材料的热导率 κ .图 2 是这种类型的实验可采用的实验原理图.

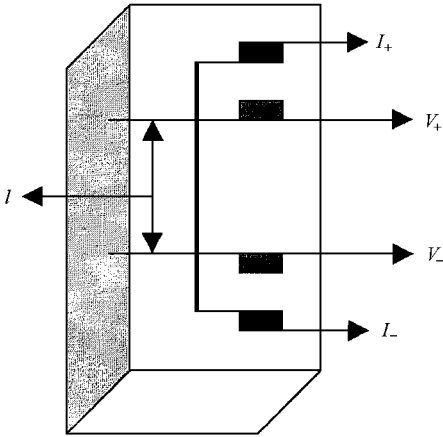


图 2 固体材料热导率 κ 测量原理图

2.3. 测量流体的热导率 κ

流体的热导率也能借助 3ω 方法进行测量,将流体置于一圆桶形的容器里,利用一根很细小的金属丝,采用图 3 所示的实验图就可进行测量.测量流体的热导率不需要镀膜,使用 3ω 方法时比测量固态材料的操作简单一些.

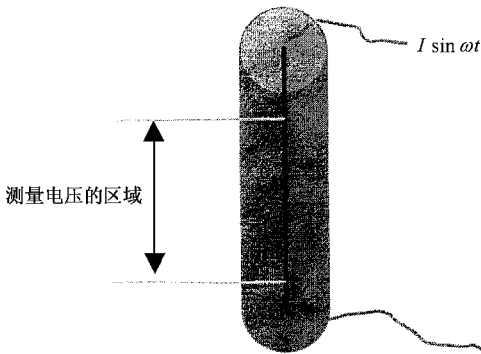


图 3 流体热导率 κ 测量原理图

2.4. 用 3ω 方法测量温度

图 4 为一维隧穿结链的示意图.其中电子岛的电容为 $C_{\Sigma}^{[5]}$,电子岛上增加或减少一个电子,能量改变为 $E_c = e^2(2C_{\Sigma})$,记 $u = (e^2/C_{\Sigma})(k_B T)$, $v =$

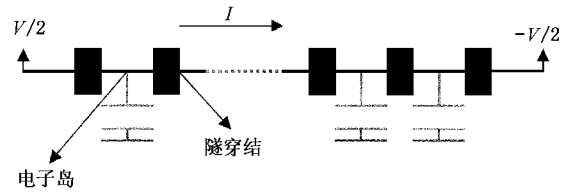


图 4 一维隧穿结链的示意图

$eV(K Nk_B T)$. Pekola^[6]给出了 $I(v)$ 的表达式

$$I = e \times \frac{k_B T}{e^2 R_T} \{v + u[f(v) - f(-v)]/2\} + \dots$$

求出 I 的一阶导数有

$$\frac{dI}{dv} = \frac{k_B T}{eR_T} [1 - ug(v)] + \dots \quad (10)$$

其中

$$g(x) = -f'(x) = \frac{(x/2)\coth(x/2) - 1}{2\sinh^2(x/2)}$$

忽视(10)式中省略号的部分,令

$$\frac{dI}{dv} = \frac{1}{2} \frac{dI}{dv} \Big|_{v=0}$$

求解得到

$$eV_{1/2}(Nk_B T) \approx 5.439, \quad (11)$$

如图 5 所示,测出 $\frac{dI}{dV} - V$ 曲线,求出(11)式中 $V_{1/2}$,利用(11)式可算出温度 T 的大小.这是一维库仑阻塞测温法,可以测量 20mK—30K 的低温.

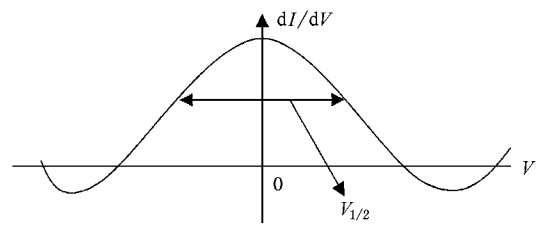


图 5 $dI/dV - V$ 曲线

如使用二维隧穿结点阵,采用 3ω 方法进行测量,也能给出一种测量低温的方法.图 6 是 $M \times N$ 的二维隧穿结点阵, R_b 是阻值很大的电阻(几十 k Ω).

将一维隧穿结链的结论推广到图 6 中所示的二维情形得

$$I = Me \times \frac{k_B T}{e^2 R_T} \{v + u[f(v) - f(-v)]/2\} + \dots \quad (12)$$

I 对 v 三次微分,并把 v 改写成 V ,得到

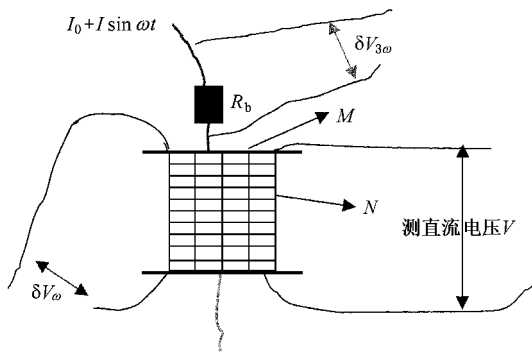


图 6 二维隧穿结点阵示意图

$$\frac{d^3 I}{dV^3} = - \frac{Me}{R_T C_\Sigma} \left(\frac{e}{Nk_B T} \right)^3 g'' \left(\frac{eV}{Nk_B T} \right), \quad (13)$$

将 $g(x)$ 对 x 两次微分

$$g''(x) = \frac{((x/2) \coth(x/2) - 1)(3 \coth^2(x/2) - 2)}{2 \sinh^2(x/2)}, \quad (14)$$

在 (13) 式中令 $\frac{d^3 I}{dV^3} = 0$ 得到

$$g'' \left(\frac{eV}{Nk_B T} \right) = 0.$$

利用 (14) 式求解 $g''(x) = 0$ 即求解方程 $\frac{x}{2} \coth \frac{x}{2} - 1 = 0$ 得 $x \approx \pm 1.072$. 于是在 $\frac{d^3 I}{dV^3} = 0$ 时, 有

$$\frac{eV_0}{Nk_B T} = \frac{eV_+}{Nk_B T} - \frac{eV_-}{Nk_B T} = 2.144, \quad (15)$$

式中 V_0 如图 7 所示, 在 $\frac{d^3 I}{dV^3} = 0$ 的地方 V_0 满足 V_0

$\propto T$, 测出 $\frac{d^3 I}{dV^3} - V$ 曲线, 利用图 7 可以求出 V_0 , 代入 (15) 式可算出温度 T .

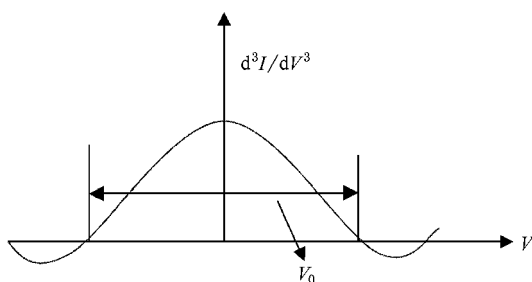


图 7 $d^3 I / dV^3 - V$ 曲线

直接测量 $\frac{d^3 I}{dV^3} - V$ 曲线很难进行, 将 (12) 式改成 $I - V$ 表达式并进行 Taylor 展开取三阶及三阶以上的

项, 得到展开式

$$\frac{24}{R_b} \frac{\delta V_{3\omega}}{\delta V_\omega^3} = \frac{d^3 I}{dV^3} + \frac{\delta V_\omega^2}{16} \frac{d^5 I}{dV^5} + \dots$$

$\delta V_{3\omega}$ 和 δV_ω 是频率为 3ω 和 ω 的交流电压的振幅. δV_ω 很小, 忽略高阶项的影响, 上式写为

$$\frac{d^3 I}{dV^3} = \frac{24}{R_b} \frac{\delta V_{3\omega}}{\delta V_\omega^3}. \quad (16)$$

测出 $\frac{\delta V_{3\omega}}{\delta V_\omega^3} - V$ 曲线, 利用 (16) 式可得到 $\frac{d^3 I}{dV^3} - V$ 曲线, 利用图 7 求得 V_0 , 再代入 (15) 式可算出温度 T .

在二维隧穿结点阵的情形下, 借助 3ω 方法, 能给出一种二维的库仑阻塞测温法用于测量低温^[3]. 它比一维库仑阻塞测温法好.

一维隧穿结链中 $I - V$ 关系式依赖于每一个隧穿结, 如果有一个结出现故障不能工作, 隧穿结链的电阻就变为无穷大, 测量无法进行. 在二维结点阵中, 即使某些结点损坏或没有正常地连接到结点阵上, 网状结构整体的电阻基本不受影响, (12) 式依然成立. 第二, 网状结构的电阻比隧穿结链情形小很多, 测量的不确定度降低. 第三, $\frac{\delta V_{3\omega}}{\delta V_\omega^3} - V$ 曲线的测量很容易操作, 利用二维隧穿结点阵来测量速度比一维隧穿结链快.

2.5. 讨论

电压的交流成分中频率为 3ω 的部分很微弱, 在分析测量热容和热导率等量的讨论中忽视了它们的影响, 这种做法是合理的.

通常进行的热容和热导率等量的测量中最常见最不好处理的问题是样品的热辐射造成的能量损失. 样品的热辐射与温度有关, 同时与样品的表面积有关, 我们只能通过减小样品的表面积来减少辐射. 样品的尺寸减小 $1/2$, 样品的表面积将减小为原来的 $1/4$, 如将样品的尺寸减小为原来的 $1/10$, 其表面积将减小为原来的 $1/100$. 用 3ω 方法测量只需很小的样品, 可以在很大程度上减小辐射造成的影响.

图 1 中金属棒的截面积为 S , 温度梯度 ΔT 导致的热功率为

$$P_e = pA = \frac{\kappa \Delta T}{l} S.$$

由热辐射定律可得到

$$P_r = 4\epsilon k_B T^3 \Delta T \times 2\pi \sqrt{\frac{S}{\pi}} l, \quad (17)$$

$$\frac{P_r}{P_e} = 8\pi \epsilon k_B T^3 \frac{l}{\kappa \sqrt{S}}.$$

代入一组较为常见的数据, $l = 1\text{mm}$, $\epsilon \approx 1$, k_B 为 Boltzmann 常数, $\mu \approx 10\text{W/m}\cdot\text{K}$, $S = 0.01\text{mm}^2$, 即使温度高达 1000K (17) 式给出的值也不到 2/1000.

一些利用 3ω 方法的实验^[4,7-10]证实用 3ω 方法测量在不考虑辐射的情况下仍可得到很高的测量精度.

3. 结 论

利用 3ω 方法可以对具有优良导热和导电能力的材料的热导率和热容进行测量;对不能导电的材料,固态的和液态的,通过镀膜或借助金属丝采用图 2 和图 3 所示测量图可对它们的热导率进行测量.

对测量材料的热导率和热容中涉及到的热辐射问题,我们的讨论表明,在测量中,由于使用了很小的测量样品,热辐射造成的影响可以忽略.另外,通过理论推导,在二维隧穿结点阵的情形下,借助 3ω 方法,能给出一种性能良好的二维库仑阻塞测温法,与使用一维隧穿结链进行的一维库仑阻塞测温法^[6]相比,有三个优点:第一,某些结点损坏或没有正常的连接到结点阵上,网状结构整体的电阻基本不受影响,仍然可以进行温度的测量.第二,网状结构的电阻比隧穿结链小,测量的不确定度可以降低.第三, $\frac{\delta V_{3\omega}}{\delta V_{\omega}^3} - V$ 曲线的测量很容易操作,测量速度快.

- | | |
|--|--|
| [1] Corbino O M 1910 <i>Phys. Z.</i> 11 413 | [6] Pekola J P, Hirvi K P, Kauppinen J P and Palanen M A 1994 <i>Phys. Rev. Lett.</i> 73 2903 |
| [2] Lu L, Yi W and Zhang D L 2001 <i>Rev. Sci. Instrum.</i> 72 2996 | [7] Cahill D G 1990 <i>Rev. Sci. Instrum.</i> 61 802 |
| [3] Bergsten T, Claesson T and Delsing P 2001 <i>Appl. Phys. Lett.</i> 78 1264 | [8] Frank R, Drach V and Fricke J 1993 <i>Rev. Sci. Instrum.</i> 64 760 |
| [4] Cahill D G and Pohl R O 1987 <i>Phys. Rev. B</i> 35 4067 | [9] Birge N O 1987 <i>Rev. Sci. Instrum.</i> 58 1464 |
| [5] Wu F, Wang T H 2002 <i>Acta Phys. Sin.</i> 51 2829 [in Chinese] 吴凡、王太宏 2002 物理学报 51 2829] | [10] Lu L, Zhang D L, Pan Z W and Xie S S 1999 <i>Phys. Rev. B</i> 59 No14 |

3ω method and its applications in nanomaterials and nanodevices

Feng Ping Wang Tai-Hong

(Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

(Received 21 February 2003; revised manuscript received 17 March 2003)

Abstract

3ω method has been investigated and its applications are analyzed. A wide applications in measuring the thermal conductivity and specific heat of materials are discussed. Here we discuss the mechanism of this method and introduce some basic applications. With some calculations in the two dimensional tunnel junction arrays and applications of 3ω method, a fast, primary Coulomb blockade thermometer can be realized with a super-high precision in measuring temperatures in the Coulomb blockade regime.

Keywords: 3ω method, specific heat, thermal conductivity, Coulomb blockade

PACC: 6540, 7335C