ТЕРАГЕРЦОВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ СПИНОВЫХ СТЕКОЛ AuFe

А. С. Прохоров, В. Б. Анзин, Д. А. Витухновский,

Е. С. Жукова, И. Е. Спектор, Б. П. Горшунов*

Институт общей физики им. А. М. Прохорова Российской академии наук 119991, Москва, Россия

С. Вонгтрагол**, М. Б. С. Хасельберт**, И. Аартс**, Г. И. Ньювенхаус**

Kamerlingh Onnes Laboratory, Leiden University 2300 RA, Leiden, The Netherlands

М. Думм***, Д. Фалтермайер***, Ш. Кайзер***, С. Ясин***, М. Дрессель***

1.Physikalisches Institut, Universität Stuttgart 70550, Stuttgart, Germany

Н. Дричко****

1. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart 70550, Stuttgart, Germany Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе 194021, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 11 июля 2006 г.

С помощью терагерцовой ЛОВ-спектроскопии и оптической эллипсометрии в интервалах частот соответственно 10–40 см⁻¹ и 5000–33000 см⁻¹ при температурах 5–295 К выполнены измерения электродинамического отклика спиновых стекол на примере пленочных образцов состава AuFe. Показано, что при комнатной температуре спектры динамической проводимости AuFe имеют типичный для металлов вид и описываются в рамках модели проводимости Друде на свободных носителях. На количественном уровне определено изменение микроскопических параметров носителей заряда в пленках Au при добавлении Fe за счет дополнительного рассеяния на магнитных моментах: частоты и времени релаксации, плазменной частоты, проводимости. В спин-стекольной фазе при температуре 5 К на частотах 10–40 см⁻¹ обнаружена дисперсия проводимости, которая может быть обусловлена появлением щели подвижности в подсистеме свободных электронов, вовлеченных во взаимодействие Рудермана – Киттеля – Касуи – Иосиды между магнитными центрами Fe.

PACS: 75.50.Lk, 78.66.-w, 78.30.Er

1. ВВЕДЕНИЕ

Явления, происходящие в спиновых стеклах, составляют одну из центральных тем в современной физике твердого тела [1–3]. По сложившемуся мнению, в спиновых стеклах реализуется фактически новое магнитное состояние вещества, свойства которого представляют фундаментальный интерес и, кроме того, могут найти широкие практические применения. Спиновые стекла обладают набором специфических свойств, отличающих их от других магнитных материалов. Наиболее ярким является наличие резкого излома при температуре замерзания T_f на температурной зависимости магнитной восприимчивости и сильная зависимость формы и положения излома соответственно от величины и частоты «пробного» магнитного поля: с увеличением послед-

© 2006

^{*}E-mail: gorshunov@ran.gpi.ru

^{**}S. Vongtragool, M. B. S. Hesselberth, J. Aarts, G. J. Nieuwenhuys

^{****}M. Dumm, D. Faltermeier, S. Kaiser, S. Yasin, M. Dressel *****N. Drichko

них резкость излома сглаживается, а T_f увеличивается (см., например, [4]). Мнимая часть магнитной восприимчивости мала выше T_f и обнаруживает широкий максимум ниже T_f. Излом восприимчивости указывает на возможность существования фазового перехода в спин-стекольное состояние. В то же время удельная теплоемкость не выказывает резких особенностей: в районе T_f наблюдается ее широкий максимум [2], затрудняющий однозначную идентификацию T_f как температуру термодинамического фазового перехода. Для спиновых стекол характерно наличие «магнитной памяти»: величина намагниченности, наведенной ниже T_f внешним магнитным полем, зависит от предыстории. Это связано с наличием большого числа состояний с минимумом свободной энергии, разделенных потенциальными барьерами, и, соответственно, с релаксационными явлениями, характерные времена которых при низких температурах могут намного превышать времена измерения.

Состояние спинового стекла реализуется в интерметаллических сплавах, когда ионы магнитного металла в небольших количествах вплавлены в «матрицу» немагнитного металла. При этом магнитные моменты взаимодействуют между собой через посредство электронов проводимости благодаря обменному взаимодействию Рудермана-Киттеля-Касуи-Иосиды (RKKY). Величина и знак RKKY-взаимодействия зависят от расстояния между моментами. В результате при хаотичном расположении магнитных атомов имеет место случайное распределение величины и знака обменного взаимодействия, т. е. возникают условия для образования спинового стекла.

Для теоретического описания свойств спиновых стекол было развито множество моделей, которые можно разделить на две группы. Первый подход основан на методе реплик [5,6]. Он рассматривает усреднение по «замороженным» переменным и поэтому позволяет вычислять величины, усредненные по разупорядоченным связям. В рамках такого подхода оказывается возможным получить богатый набор феноменологических характеристик спин-стекольной фазы, включая нарушение принципа эргодичности, которое не связано с каким-либо нарушением симметрии, а также аномалии магнитной восприимчивости, обусловленные вырождением основного состояния. Второй подход [7, 8] основан на рассмотрении спиновых кластеров (капель) размера L, возникающих при охлаждении материала. Динамика спинового стекла рассматривается на языке низкоэнергетических возбуждений в системе таких

кластеров, характеризующейся наличием двух равновесных состояний, которые отвечают перевороту спина кластера. Энергия больших кластеров в среднем предполагается большей, чем энергия меньших кластеров, и, как результат, спин-стекольная фаза не может быть разрушена возбуждением произвольно малой энергии. Подход основан на скейлинговых соотношениях между средней свободной энергией возбуждений и энергетическими барьерами, разделяющими равновесные состояния, с одной стороны, и размерами кластеров, с другой стороны.

Несмотря на обилие теоретических и экспериментальных исследований спиновых стекол, общего согласия относительно природы спин-стекольного состояния нет и большинство фундаментальных свойств спиновых стекол остаются понятыми не до конца. Так, активно обсуждается вопрос о том, является ли переход в фазу спинового стекла истинным термодинамическим фазовым переходом, или же фазового перехода не происходит, и система ниже T_f просто не успевает приходить в тепловое равновесное состояние за разумные времена, в течение которых проводится измерение. Кроме того, если при «стандартных» фазовых переходах низкотемпературная фаза становится более упорядоченной по сравнению с высокотемпературной и характеризуется ненулевым параметром порядка, то происходит ли нарушение симметрии при T_f, и что является параметром порядка для спинового стекла? Может ли вообще существовать фазовый переход с множеством параметров порядка? Неясно также, существует ли общая универсальность свойств спиновых стекол или следует различать такие универсальности отдельно для металлических и неметаллических или для изинговских и гейзенберговских систем. Не полностью объяснены низкотемпературные эффекты, связанные с памятью и гистерезисом. Неясны механизмы магнитных взаимодействий при увеличении концентрации магнитных моментов и переходе от режима спинового стекла к сплавам с магнитным упорядочением в подсистеме кластеров.

Обилием нерешенных проблем диктуется необходимость проведения дальнейших исследований и накопления новых экспериментальных данных по физике спиновых стекол. Поскольку основополагающим явлением в физике спин-стекольного состояния является обменное RKKY-взаимодействие спинов через подсистему делокализованных электронов, то, очевидно, что свойства электронной подсистемы должны быть неразрывно связаны с процессами зарождения и стабилизации фазы спинового стекла. Наиболее точным методом изучения свойств делокализованных электронов является исследование транспорта электронов. Соответствующие исследования были выполнены практически сразу же после выхода первой работы по спиновым стеклам [9]: были проведены детальные и систематические измерения электросопротивления «классических» систем, AuFe, CuMn, AuMn, AgMn, AuCr и др. [10–12], в зависимости от температуры, магнитного поля, концентрации магнитной примеси. Было показано, что примесная (магнитная) компонента сопротивления выказывает температурную зависимость типа $T^{3/2}$ при низких температурах и линейную в районе T_f, выше которой наблюдается широкий максимум, природа которого связывается с конкуренцией кондо- и RKKY-взаимодействий. Имеющиеся модели проводимости [2, 13–15] воспроизводят линейную или $T^{3/2}$ зависимости сопротивления в отдельных температурных интервалах, но, однако, не способны описать его поведение в широком интервале температур и концентраций.

Серьезным сдерживающим фактором в понимании свойств подсистемы делокализованных электронов является отсутствие в литературе данных по диэлектрической (оптической) спектроскопии спиновых стекол, которая, вообще говоря, позволяет получить информацию о таких фундаментальных характеристиках электронной подсистемы, как микроскопические механизмы рассеяния и релаксации, энергетические щели в плотности состояний, локализация и прыжковая проводимость, эффекты пониженной размерности в пленках, наноразмерных каналах и точечных контактах. Отсутствие соответствующих экспериментов связано исключительно с техническими проблемами. Поскольку спиновые стекла обладают высокой (практически металлической) проводимостью, применение стандартных методов для измерения их электродинамического отклика в инфракрасном и дальнем инфракрасном диапазонах частот является задачей нетривиальной; использование же таких методов для измерения в наиболее интересной, терагерцовой-субтерагерцовой частотной области, соответствующей характерным RKKY-энергиям спин-стекольной фазы $\Delta_{RKKY} \approx k_B T_f (k_B - k_B T_f)$ постоянная Больцмана), является практически невозможным. В этой связи нашей целью было провести цикл исследований процессов формирования и фундаментальных характеристик фазы спинового стекла путем проведения первых измерений электродинамического отклика спиновых стекол в широком интервале частот, включая терагерцовый-субтерагерцовый диапазон. В настоящей

работе приводятся соответствующие результаты, полученные для «классического» состава AuFe.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

2.1. Образцы

Образцы AuFe были приготовлены в виде тонких пленок на диэлектрических подложках, что позволило определять диэлектрические характеристики пленок путем измерения коэффициента пропускания на терагерцовых частотах, как это описано ниже. В качестве подложек использовались плоско-параллельные пластинки высокоомного кремния размером 1×1 см² и толщиной около 0.5 мм. Пленки наносились осаждением высокочистых золота и железа в атмосфере аргона в условиях сверхвысокого вакуума (10^{-7} Topp) во избежание окисления. Исследование пленок методами анализа спектра обратного рассеяния заряженных частиц (RBS) и электронно-зондового микроанализа (ЕРМА) показало, что они являются однородными по толщине и по составу. Параметры пленок приведены в табл. 1.

2.2. Методики измерений

Для измерений спектров терагерцовых-субтерагерцовых (ТГц-субТГц) диапазонов использовался квазиоптический спектрометр на основе монохроматических частотноперестраиваемых генераторов излучения — ламп обратной волны (ЛОВ). ЛОВ-спектрометр позволяет проводить измерения

Габлица	1.	Xa	рактери	стики	иссле	едован	ных	пле-
нок	AuFe	на	кремни	евых	подло	жках		

Концентрация Fe, ат. %	Толщина, нм		
1.5	5 ± 1		
1.5	10 ± 1		
1.5	20 ± 2		
1.5	30 ± 2		
1.5	50 ± 3		
4	10 ± 1		
6	10 ± 1		
6	50 ± 3		
0 (чистое Ац)	50 ± 3		

спектров диэлектрического отклика различных материалов в диапазоне частот $\nu = 30$ ГГц–1.5 ТГц в интервале температур T = 2 - 1000 K и в магнитных полях до 8 Тл. Принцип действия спектрометра описан в деталях в [16–19]. С применением спектрометра возможно измерение комплексных (амплитуда и фаза) спектров коэффициентов пропускания и отражения образцов, на основе которых определяются спектры комплексных диэлектрической проницаемости, динамической проводимости, магнитной восприимчивости и т. д. Методика, по которой проводились измерения спектров пленок Au и AuFe, аналогична использованной нами для измерения других проводящих [20] и сверхпроводящих [21, 22] пленок. Вначале по стандартной для ЛОВ-спектрометра методике [16] определяются диэлектрические характеристики (действительная ε' и мнимая ε'' части диэлектрической проницаемости) подложки путем измерения спектра пропускания подложки без пленки. После этого измеряется коэффициент пропускания подложки с пленкой, и параметры пленки рассчитываются путем обработки полученных спектров по методу наименьших квадратов с применением формулы для коэффициента пропускания двухслойной среды (пленка плюс подложка) [23]:

$$T_{1234}^{*} = \frac{T_{12}T_{23}T_{34}e^{i(\delta_{2}+\delta_{3})}}{1+R_{23}R_{34}e^{2i\delta_{3}}+R_{12}R_{23}e^{2i\delta_{2}}+R_{12}R_{34}e^{2i(\delta_{2}+\delta_{3})}}.$$
(1)

 $T_{nq} = t_{nq} e^{i\varphi_{pq}^T}$

Здесь

$$\begin{aligned} R_{pq} &= r_{pq} e^{i\varphi_{pq}^{R}}, \\ R_{pq} &= r_{pq} e^{i\varphi_{pq}^{R}}, \\ t_{pq}^{2} &= \frac{4(n_{p}^{2} + k_{p}^{2})}{(k_{p} + k_{q})^{2} + (n_{p} + n_{q})^{2}}, \\ r_{pq}^{2} &= \frac{(n_{p} - n_{q})^{2} + (k_{p} - k_{q})^{2}}{(k_{p} + k_{q})^{2} + (n_{p} + n_{q})^{2}}, \\ \varphi_{pq}^{T} &= \operatorname{arctg}\left(\frac{k_{p}n_{q} - k_{q}n_{p}}{n_{p}^{2} + k_{p}^{2} + n_{p}n_{q} + k_{p}k_{q}}\right), \\ \varphi_{pq}^{R} &= \operatorname{arctg}\left[\frac{2(k_{p}n_{q} - k_{q}n_{p})}{n_{p}^{2} + k_{p}^{2} - n_{q}^{2} - k_{q}^{2}}\right], \end{aligned}$$

где T_{pq} , R_{pq} — френелевские коэффициенты соответственно пропускания и отражения на границах раздела двух сред с индексами p и q (p, q = 1, 2, 3, 4), индексы 1 и 4 соответствуют вакууму, а индексы 2 и 3 — пленке и подложке; $n_p^* = n_p + ik_p$ — комплексный коэффициент преломления среды с индексом p(n — коэффициент преломления, k — коэффициент ослабления); $\delta_j = 2\pi (n_j + ik_j) d_j \nu/c$, (j = 2, 3), c — скорость света и d_j — толщина пленки или подложки.

Для сравнения электродинамических свойств пленок AuFe со свойствами пленок из чистого золота нами выполнялись также измерения спектров ТГц-субТГц-диапазонов золотой (без примеси Fe) пленки толщиной 50 нм, осажденной на Si-подложку. Ввиду того что проводимость золота намного превышает проводимость AuFe (см. ниже), коэффициент пропускания пленки Аи значительно меньше по сравнению с коэффициентом пропускания пленок AuFe. Поэтому для измерения свойств золотых пленок нами использовалась методика, основанная на измерении коэффициента отражения. Эта методика описана в [16, 24] и состоит в том, что в эксперименте измеряются и сравниваются спектры коэффициента отражения прозрачной подложки без пленки и спектры отражения такой же подложки, обратная сторона которой покрыта исследуемой пленкой. Такие спектры содержат интерференционные минимумы, возникающие из-за многократных переотражений монохроматической волны от плоских граней подложки [23]. При этом, в сравнении со спектром подложки без пленки, параметры минимумов (частотное положение и амплитуда) для подложки, покрытой пленкой, зависят от характеристик пленки, и обработка спектров позволяет эти характеристики определить: спектр обрабатывается по методу наименьших квадратов с использованием формул для коэффициента отражения двухслойной среды [23]:

$$R_{1234}^{*} = \frac{R_{12} + R_{23}e^{2i\delta_{2}} + R_{34}e^{2i(\delta_{2} + \delta_{3})} + R_{12}R_{23}R_{34}e^{2i\delta_{3}}}{1 + R_{23}R_{34}e^{2i\delta_{3}} + R_{12}R_{23}e^{2i\delta_{2}} + R_{12}R_{34}e^{2i(\delta_{2} + \delta_{3})}}.$$
(2)

Все обозначения в формуле (2) те же, что и в формуле (1).

В дополнение к ТГц-субТГц-спектрам были выполнены измерения оптических характеристик пленок в оптической области с применением стандартного эллипсометра, в диапазоне 5000 см⁻¹–33000 см⁻¹, а также статического электросопротивления обычным четырехточечным методом.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 1, 2 показаны типичные экспериментальные спектры коэффициентов пропускания и отраже-



Рис. 1. Спектры коэффициента пропускания плоскопараллельной кремниевой подложки толщиной 0.525 мм (1) и такой же подложки с пленкой AuFe (концентрация Fe 6 ат. %) толщиной 50 нм (2). Точки — эксперимент, сплошные линии — результат описания по методу наименьших квадратов с применением формулы для коэффициента пропускания однослойной [23] и двухслойной (формула (1)

из текста) среды. Комнатная температура



Рис.2. Спектры коэффициента отражения плоскопараллельной кремниевой подложки толщиной 0.525 мм (1) и такой же подложки с пленкой AuFe (концентрация Fe 6 ат. %) толщиной 50 нм (2) и с пленкой Au толщиной 50 нм (3). Точки — эксперимент, сплошные линии — результат описания по методу наименьших квадратов с применением формулы для коэффициента отражения однослойной [23] и двухслойной (формула (2) из текста) среды. Комнатная температура

ния, измеренные (T = 295 K) в диапазонах перестройки двух ЛОВ — в интервале частот 7–12 см⁻¹ (210—360 ГГц) и 29—40 см⁻¹ (870—1200 ГГц). На рис. 1 представлены спектры пропускания кремниевой подложки толщиной 0.525 мм без пленки (1) и спектр такой же подложки с пленкой AuFe толщиной 50 нм (2). В спектрах наблюдаются периодические осцилляции, связанные с интерференцией монохроматического излучения внутри плоскопараллельной подложки при его переотражениях от граней подложки [23]. Видно, что для подложки без пленки величина пропускания в интерференционных максимумах практически равна единице, что обусловлено малым поглощением подложки на данных частотах ($\varepsilon'' < 10^{-3}$). Коэффициент пропускания подложки с пленкой более чем на два порядка величины меньше, чем для подложки без пленки, что связано с ослаблением интенсивности проходящего излучения проводящей пленкой AuFe. Кроме того, в спектрах пленки на подложке виден сдвиг по частоте на π положений максимумов и минимумов. Причиной сдвига является то, что, как следует из формул Френеля, приведенных выше, сдвиг фазы волны при ее отражении (при падении излучения изнутри подложки) от грани подложки с пленкой близок к π , в то время как сдвиг фазы при отражении волны от грани подложки без пленки составляет около 0. Сплошными линиями на рис. 1 показан результат обработки спектров пропускания с помощью формулы (1), на основании которой определялась динамическая проводимость пленки. Рисунок 2 демонстрирует спектр коэффициента отражения подложки без пленки (1) и такой же подложки с пленкой AuFe(2) и с пленкой Au(3). Как и для спектров пропускания, в спектрах отражения присутствует интерференция, проявляющаяся в виде минимумов, которые сдвинуты примерно на π для подложки без пленки и подложки с пленками; причина сдвига также связана с фазовыми сдвигами волны при отражении от грани подложки с пленкой и без пленки. Сплошные линии на рисунке показывают результаты обработки по методу наименьших квадратов по формуле (2), на основе которой определяются параметры пленок AuFe и Au.

Рисунок 3 демонстрирует зависимости динамической проводимости σ и динамического сопротивления $\rho = 1/\sigma$ для частот 7–13 см⁻¹ (210–390 ГГц) пленок AuFe от толщины. Видно, что при уменьшении толщины от 50 нм до 30 нм проводимость (и сопротивление) практически не зависит от толщины, но уменьшается (сопротивление увеличивается) при толщинах, меньших 20 нм. На рис. 4 показаны



Рис. 3. Зависимость динамической (частота 7–13 см⁻¹, 210–390 ГГц) проводимости σ и сопротивления $\rho = 1/\sigma$ пленки AuFe с концентрацией Fe 1.5 ат. % от толщины. Комнатная температура



Рис. 4. Зависимость динамической (частота 7–13 см⁻¹, 210–390 ГГц) проводимости σ и сопротивления $\rho = 1/\sigma$ пленки AuFe толщиной 10 нм от концентрации Fe



Рис.5. Спектры отражения и проводимости пленок Au (толщина 50 нм) и AuFe (толщина 50 нм, концентрация Fe 6 ат. %) при комнатной температуре. Темные и светлые точки получены путем измерения терагерцовых спектров коэффициентов соответственно пропускания и отражения. Сплошные линии — результат эллипсометрических измерений. Треугольники и крестики — данные для массивных образцов, взятые из [25] и [26]. Штриховая линия результат обработки по методу наименьших квадратов с применением выражения (3), показанная также на вставке. Пунктиром показано, какую площадь необходимо добавить к площади спектра проводимости AuFe, чтобы компенсировать потерю спектрального веса и обеспечить выполнение правила сумм (4)

зависимости проводимости и сопротивления пленки толщиной 10 нм от концентрации Fe. С увеличением концентрации от 1.5 ат. % проводимость уменьшается (сопротивление увеличивается); для больших концентраций обе характеристики практически перестают изменяться. Механизмы, которые могут быть причиной описанных зависимостей электродинамических свойств пленок AuFe от толщины и концентрации, будут обсуждаться ниже.

На рис. 5 показаны частотные зависимости коэффициента отражения $R(\nu)$ и проводимости $\sigma(\nu)$ Аu и AuFe в широком частотном интервале, полученные при комнатной температуре. Представлены данные, полученные нами для пленок Au и AuFe на терагерцовых частотах (точки) и с помощью эллипсометра (5000–33000 см⁻¹, сплошные линии). Здесь же приведены спектры $R(\nu)$ и $\sigma(\nu)$ для массивного образца Au, взятые из работ [25] (треугольники) и [26] (крестики). Как видно, данные для пленок и для массивного Au находятся в хорошем согласии, что подтверждает хорошее качество исследованных нами пленок. Штриховыми линиями на рисунке показаны результаты одновременной обработки спектров $R(\nu)$ и $\sigma(\nu)$ по методу наименьших квадратов с помощью модели проводимости Друде на свободных носителях [27], в рамках которой комплексная проводимость выражается следующим образом:

$$\sigma^*(\omega) = \frac{\sigma_{DC}}{1 - i\omega\tau}, \qquad (3)$$

где σ_{DC} — статическая проводимость, $\tau = 1/(2\pi\gamma)$ время релаксации носителей, γ — их частота релаксации, $\omega = 2\pi\nu$. Коэффициент отражения рассчитывался как $R = [(n-1)^2 + k^2]/[(n+1)^2 + k^2]$, а показатели преломления n и ослабления k — через действительную и мнимую части проводимости (3) по известным электродинамическим соотношениям [23, 27]. Для описания пиков поглощения, расположенных выше 10000 см⁻¹, использовались лоренцианы. Полученные в результате обработки спектров параметры носителей сведены в табл. 2.

Температурные зависимости параметров пленки AuFe с концентрацией Fe 6 ат. % и с толщиной 50 нм показаны на рис. 6. На рис. 6а показано температурное поведение динамического (35 см⁻¹, 1050 $\Gamma\Gamma\mu$) сопротивления AuFe (точки) в сравнении со статическим сопротивлением из работы [28] (крестики), измеренным на массивных образцах AuFe с близкой концентрацией (5 ат. %). Как видно, величины сопротивления близки, что еще раз свидетельствует о хорошем качестве исследуемой пленки. Сплошная линия показывает температурную зависимость статического сопротивления массивного золотого образца [11]. При T = 295 К измеренное нами динамическое сопротивление золотой пленки (ромб на рис. 6) практически совпадает с сопротивлением массивного образца Аu. Сопротивление пленки AuFe при комнатной температуре превышает примерно на порядок величины сопротивление чистого золота; при гелиевых температурах различие достигает более чем четырех порядков. Детальный температурный ход динамического сопротивления показан в растянутом масштабе темными точками на рис. 66. Видно, что с понижением температуры сопротивление слабо убывает и выказывает широкий максимум при температурах 100-150 К. Светлыми точками на рисунке показана температурная зависимость статического сопротивления, измеренного для





Рис. 6. а) Температурная зависимость динамического (частота 1.05 ТГц) сопротивления ρ_{AuFe} пленки AuFe с концентрацией Fe 6 ат. % (точки) и взятых из работы [28] сопротивлений по постоянному току массивных образцов AuFe, 5 ат. % Fe, (крестики) и Au (ρ_{Au} , линия). Для T = 300 K показаны значения динамического сопротивления AuFe (квадрат) и Аи (ромб), определенные путем измерения коэффициента отражения пленки AuFe и Au на подложке из кремния. б) Температурные зависимости динамического (частота 1.05 ТГц) (точки) и статического (светлые точки) сопротивления пленки AuFe с концентрацией Fe 6 ат. %. Квадратами показана зависимость магнитного вклада в сопротивление $\rho_{magn} = \rho_{{\rm AuFe}} - \rho_{{\rm Au}}.$ в) Температурная зависимость динамической (точки) и статической (светлые точки) проводимости пленки AuFe

этой же пленки. В пределах экспериментальных погрешностей для динамического ($\pm 3-5\%$) и статического ($\pm 6-8\%$) сопротивлений обе зависимости совпадают, причем максимум для статического сопротивления выражен несколько слабее в сравнении с динамическим сопротивлением. Здесь же показана (квадратики) температурная зависимость магнитного вклада в сопротивление $\rho_{magn} = \rho_{AuFe} - \rho_{Au}$, причем для ρ_{Au} взяты значения, представленные на рис. 6*a*. В согласии с литературными данны-

	$\sigma_{DC}, \ \mathrm{Om}^{-1} \cdot \mathrm{cm}^{-1}$	$\gamma, \ \mathrm{cm}^{-1}$	au, c	$ u_{pl}, \mathrm{cm}^{-1}$
Au	350000	345	$1.5 \cdot 10^{-14}$	85200
AuFe, 6ат. % Fe	35000	2200	$2.4 \cdot 10^{-15}$	68000

Таблица 2. Параметры носителей тока в пленках Au и AuFe (6 ат. % Fe), определенные в результате обработки спектров отражения и проводимости (рис. 5) с помощью модели проводимости Друде [27] (выражение (3))



Рис.7. Частотные зависимости проводимости пленки AuFe толщиной 50 нм с концентрацией Fe 6 ат. %, измеренные при различных температурах. Сплошные вспомогательные линии демонстрируют, что при T < 100 К появляется заметная зависимость проводимости от частоты. На вставке сплошной линией схематично показана частотная зависимость проводимости на свободных электронах. Штриховой линией показано, как спектр проводимости может быть модифицирован в результате RKKY-взаимодействия между магнитными примесями через свободные электроны с образованием щелевой особенности на частотах ниже Δ_{RKKY}/h

ми магнитный вклад в электросопротивление обнаруживает размытый максимум при температурах 100–150 К. На рис. 6в представлена температурная зависимость динамической (35 см⁻¹, 1050 ГГц) и статической проводимостей пленки AuFe. В соответствии с ходом сопротивления в температурном поведении проводимости виден слабо выраженный минимум в районе температур 100–150 К.

На рис. 7 показана в деталях частотная зависимость динамической проводимости пленки AuFe на частотах 10–40 см⁻¹ (300–1200 ГГц), измеренная при различных температурах, 5–295 К. При комнатной температуре проводимость практически не зависит от частоты, что типично для металлов [27]. При охлаждении от T = 295 К до 100 К проводимость остается не зависящей от частоты, но ее величина заметно возрастает. При понижении температуры ниже T = 100 К в спектрах появляется дисперсия: величина проводимости возрастает с увеличением частоты.

4. ОБСУЖДЕНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

4.1. Комнатная температура

Как видно на рис. 3, при комнатной температуре динамическая проводимость пленок AuFe с концентрацией железа 1.5 ат. % практически не зависит от толщины d для d > 30 нм, в то время как для пленок тоньше 20 нм проводимость уменьшается (сопротивление возрастает). Возможны несколько механизмов, которые могут быть причиной такого поведения. а) Так называемый размерный кондо-эффект, проявляющийся, когда толщина пленки становится сравнимой с характерными размерами кондо-«облака» делокализованных электронов, экранирующих магнитный момент примеси. Действительно, оценки таких размеров для AuFe в низкотемпературном кондо-режиме дают величины от 10 нм до 200 нм [29, 30], что сравнимо с толщинами исследованных пленок. б) Размерный эффект может проявляться и в фазе, когда преобладающим является RKKY-взаимодействие между примесями, и температура замерзания T_f становится зависящей от размеров системы, причем эти размеры составляют для AuFe порядка 10 нм [31]. Эффекты типа а) и б) являются фундаментальными в физике спиновых стекол и активно исследуются в системах с пониженной размерностью (пленках, проводниках и точечных контактах) как экспериментально, так и теоретически (для AuFe $T_f \approx 10$ K и T_{Kondo} < 1 K) [30–37]. Хотя соответствующие экспериментальные результаты являются несколько противоречивыми, наиболее вероятным представляется то, что с уменьшением размеров образца его сопротивление должно уменьшаться, т.е. эффекты типа а) и б) не могут объяснить наблюдаемую зависимость электрических свойств пленок AuFe от толщины при комнатной температуре, когда проводимость материала в значительной степени определяется магнитным рассеянием носителей тока. в) Еще одной причиной уменьшения проводимости пленок малой толщины может быть «классический» размерный эффект, когда толщина пленки становится сравнимой с длиной свободного пробега электронов проводимости, что приводит к дополнительному их рассеянию на границах пленки [38, 39]. Такую возможность, однако, следует исключить: для времени релаксации носителей в пленке AuFe $\tau\,=\,2.4\cdot10^{-15}$ с при $T\,=\,295$ К (табл. 2) и скорости Ферми $v_F \approx 1.4 \cdot 10^8$ см/с [40] получаем оценку длины свободного пробега $\lambda_{mfp} = v_F \cdot \tau \approx 3.4$ нм, в согласии с результатом $\lambda_{mfp} \approx 2.0$ нм из [41], что намного меньше толщины пленки.

Мы полагаем, что причиной зависимости проводимости (сопротивления) исследованных пленок от толщины является их несовершенная структура. Хорошо известно, что на электросопротивление тонких металлических пленок, в том числе золотых [42], существенное влияние оказывает их гранулярность. Мы считаем, что уменьшение проводимости наших пленок AuFe происходит, когда толщина пленки становится соизмеримой с размером гранул, который, таким образом, составляет 10-20 нм. По всей видимости, гранулярностью можно объяснить и наблюдаемую зависимость проводимости и сопротивления пленки AuFe, d = 10 нм, от концентрации Fe, показанную на рис. 4. Известно, что для массивных образцов AuFe увеличение в широких пределах (до 20 ат. %) концентрации Fe приводит к монотонному увеличению сопротивления [10]. В нашем случае, однако, с ростом концентрации сопротивление вначале увеличивается (проводимость падает), а затем насыщается. Такое насыщение можно объяснить в рамках предположения о влиянии гранулярности пленок на их электронные свойства: для пленки толщиной 10 нм при концентрации Fe выше 4 ат. % сопротивление пленки полностью определяется рассеянием на границах гранул и становится не зависящим от концентрации Fe.

Из представленных результатов следует, что эффекты структурного несовершенства не должны влиять на свойства наших пленок AuFe с толщинами, большими 10–20 нм. Поэтому для исследования температурных и частотных зависимостей электродинамического отклика AuFe мы выбрали пленки Au и AuFe толщиной 50 нм, существенно превышающей «критическую». Как видно на рис. 6, электрические свойства таких пленок действительно оказываются практически совпадающими со свойствам соответствующих массивных материалов. Так, при $T=295~{
m K}$ имеем $ho_{
m Au}$ (пленка) $pprox 3~{
m mkOm} \cdot {
m cm}$ и ρ_{Au} (массив) ≈ 2 мкОм · см. Кроме того, в широком интервале температур (5-295 К) сопротивление пленки AuFe (6 ат. % Fe) близко к сопротивлению близкого по составу (5 ат. % Fe) массивного образца AuFe [28]: при T = 295 К получаем ρ_{AuFe} (пленка) ≈ 30 мкОм · см, $\rho_{\rm AuFe}$ (массив) ≈ 40 мкОм · см. О высоком качестве пленок AuFe толщиной d = 50 нм говорит также тот факт, что при всех температурах величины ее динамической и статической проводимости совпадают, т. е. не наблюдается частотной зависимости типа моттовской, $\sigma \sim \nu^s$ ($s \sim 1$), типичной для проводников, в которых носители заряда испытывают локализацию из-за наличия структурных несовершенств [43]. Из сказанного выше следует еще одно важное заключение: электронные свойства пленки AuFe с концентрацией железа 6 ат. % и толщиной 50 нм при всех температурах полностью определяются взаимодействием (рассеянием) носителей заряда на магнитных моментах железа [10-12, 28, 44, 45].

Для исследования механизмов изменения микроскопических параметров носителей заряда в золоте при добавлении железа нами были измерены широкополосные спектры отражения и проводимости Au и AuFe, которые показаны на рис. 5. Спектры как Au, так и AuFe имеют вид, типичный для металлов [27]: коэффициент отражения близок к единице на низких частотах и демонстрирует наличие плазменного края около 20000 см⁻¹; проводимость имеет большую величину (порядка $10^4 - 10^6 \text{ Om}^{-1} \cdot \text{сm}^{-1}$), слабо зависит от частоты ниже 200 см $^{-1}$ и 1000 см $^{-1}$ соответственно для Au и AuFe и резко убывает выше этих частот. (Структура в спектрах выше 20000 см⁻¹ обусловлена межзонными электронными переходами [26].) В то же время видны значительные различия между спектрами Au и AuFe, см. также табл. 2 и вставку на рис. 5. Величина низкочастотной (и статической) проводимости AuFe на порядок меньше, что обусловлено в основном увеличением более чем в 6 раз частоты релаксации, от 345 см^{-1} в Au до 2200 см^{-1} в AuFe, за счет дополнительного рассеяния на магнитных примесях. Интересно отметить и заметное уменьшение плазменной частоты, с 85200 см⁻¹ в Au до 68000 см⁻¹ в AuFe. Согласно правилу сумм для динамической проводимости [26, 27]

$$\int_{0}^{\infty} \sigma(\omega) \, d\omega = \frac{\omega_{pl}^2}{8},\tag{4}$$

это означает уменьшение площади под спектром проводимости AuFe по сравнению с Au (в предположении об одинаковой эффективной массе электронов в Au и AuFe). Одной из причин такого уменьшения может быть уменьшение интенсивности межзонных электронных переходов в AuFe при добавлении Fe в Au. Потеря спектрального веса в AuFe может быть также связана с наличием широкого максимума в спектре проводимости на частотах между 100 см⁻¹ и 5000 см⁻¹, как показано пунктирной линией на рис. 5 (при произвольной форме линия проведена так, чтобы компенсировать спектральный вес). Такой максимум означал бы присутствие особенности типа щели подвижности (уменьшение проводимости в сторону низких частот) в спектре проводимости AuFe. Природа такой щели может быть связана с частичной локализацией электронов проводимости при их рассеянии на магнитных центрах Fe; подобная щель подвижности наблюдалась нами в инфракрасных спектрах проводимости соединения с промежуточной валентностью TmSe в режиме кондо-рассеяния носителей заряда [46].

4.2. Низкие температуры

На рис. 6 показаны температурные зависимости динамического и статического откликов пленки AuFe. Величины статического и динамического сопротивления пленки в пределах экспериментальных погрешностей совпадают при всех температурах; незначительное систематическое различие обусловлено небольшой неопределенностью в геометрических размерах при статических измерениях. Сопротивление AuFe на порядок величины превышает сопротивление Au при T = 295 K и более чем на 4 порядка — при гелиевой температуре. Как отмечалось выше, это полностью обусловлено превалирующим вкладом в рассеяние носителей тока на магнитных моментах по сравнению с рассеянием на фононах. В зависимостях как статического, так и динамического сопротивления наблюдается размытый максимум при температурах 100-150 К. Его природа обусловлена конкуренцией между двумя состояниями электронной подсистемы [10-12, 28, 44, 45]. При высоких температурах тепловая энергия превышает энергию RKKY-взаимодействия между магнитными примесями и, как результат, имеет место рассеяние электронов на невзаимодействующих между собой примесях типа Кондо, приводящее к слабому возрастанию при охлаждении магнитного вклада ρ_{magn} в сопротивление. При низких температурах, T < 100 K, RKKY-взаимодействие между примесями становится существенным и приводит к уменьшению вероятности рассеяния на них электронов проводимости. Это демонстрирует рис. 66, где показана температурная зависимость ρ_{magn} , рассчитанная в предположении справедливости правила Маттиссена [47] как $\rho_{magn} = \rho_{\rm AuFe} - \rho_{\rm Au}$.

Две рассмотренные температурные области (T < 100 К и T > 100 К) характеризуются также различным частотным поведением динамической проводимости AuFe, что демонстрирует рис. 7. При высоких температурах проводимость практически не зависит от частоты, что является типичным для систем со свободными носителями заряда — металлов, проводников. При температурах T < 100 К в спектрах проводимости AuFe появляется заметная дисперсия — проводимость растет с увеличением частоты. Мы полагаем, что эта дисперсия связана с возникновением щели подвижности в подсистеме свободных электронов, которые при T < 100 К оказываются вовлеченными в межпримесное RKKY-взаимодействие.

Вообще говоря, газ свободных электронов, рассеивающихся неупругим образом на фононах, примесях, дефектах и т.п., описывается динамической проводимостью типа Друде, как схематично представлено сплошной линией на вставке на рис. 7. Если электроны подвергаются какому-либо воздействию, делающему их в какой-то степени локализованными, «менее свободными», то следует ожидать уменьшения величины проводимости в статическом случае, а также на частотах, меньших Δ/h (здесь Δ характерная энергия взаимодействия, *h* — постоянная Планка) [48]. Другими словами, в спектре проводимости должна появиться особенность типа щелевой — увеличение проводимости с ростом частоты и выход на «невозмущенное» значение при частотах выше Δ/h , как это демонстрирует пунктирная линия на вставке на рис. 7. Такого рода поведение проводимости наблюдается в системах с электронной локализацией в виде моттовской зависимости $\sigma \sim \nu^s \ (s \approx 1)$ [43], в кондо-изоляторах (щель подвижности) [46], в тяжело-фермионных проводниках (гибридизационная щель) [49, 50], в обычных полупроводниках (фундаментальный край поглощения) [51], в сверхпроводниках (сверхпроводящая щель) [52] и т.д. В случае AuFe те электроны, которые при T < 100 К оказываются вовлеченными в RKKY-взаимодействие между магнитными примесями Fe, становятся «привязанными» к соответствующим примесным парам или локализованными «между ними» и, таким образом, не могут участвовать в процессе проводимости. Характерная энергия связи таких электронов составляет порядка энергии RKKY-взаимодействия Δ_{RKKY} , которая, в свою очередь, связана с температурой замерзания, $\Delta_{RKKY} \approx k_B T_f$ [53]. Для AuFe с 6 ат. % железа температура замерзания равна $T_f \approx 25$ К [10, 11], что соответствует $\Delta_{RKKY} \approx 2.2$ мэВ или частоте $\nu = \Delta_{RKKY}/h \approx 17 \text{ см}^{-1}$ (510 ГГц). То есть, именно на частотах в районе 500 ГГц в спектре динамической проводимости AuFe должна присутствовать щелевая особенность, соответствующая характерной энергии RKKY-взаимодействия в AuFe, что и наблюдалось нами экспериментально, см. рис. 7. Насколько нам известно, это является первым наблюдением особенности в оптических спектрах спиновых стекол, обусловленной RKKY-взаимодействием. Для проверки наших предположений требуются дальнейшие измерения спектров электродинамического отклика спиновых стекол различных составов, имеющих различные температуры замерзания.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С применением методов монохроматической терагерцовой ЛОВ-спектроскопии и стандартного метода оптической эллипсометрии выполнены первые измерения спектров электродинамического отклика спиновых стекол на примере пленочных образцов состава AuFe в интервалах частот 10-40 см⁻¹ и 5000-33000 см⁻¹ при температурах 5-295 К. Показано, что при толщинах пленок больше 20 нм возможное несовершенство структуры пленок не влияет на их электродинамические свойства. Для пленок Au и AuFe (6 ат. % Fe) толщиной 50 нм измерены температурные зависимости спектров динамической проводимости и статического сопротивления. Установлено, что при T = 295 К добавление в золото 6 ат. % железа ведет к увеличению частоты релаксации носителей заряда от 345 см $^{-1}$ до 2200 см $^{-1}$ (уменьшению времени релаксации от $1.5\cdot 10^{-14}$ с до $2.4\cdot 10^{-15}$ с) за счет дополнительного к фононному рассеяния на магнитных примесях железа. В спин-стекольной фазе при температуре T = 5 K $< T_f$ на частотах $10-40 \,\mathrm{cm}^{-1}$ обнаружена дисперсия проводимости, которая может быть обусловлена появлением щели подвижности в ансамбле носителей заряда, вовлеченных во взаимодействие Рудермана-Киттеля-Касуи-Иосиды между магнитными центрами Fe.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 06-02-16010-а).

ЛИТЕРАТУРА

- 1. J. A. Mydosh, Spin Glasses, an Experimental Introduction, Taylor and Francis, London (1993).
- K. Binder and A. P. Yong, Rev. Mod. Phys. 58, 801 (1986).
- K. H. Fischer and J. A. Hertz, Spin Glasses, Cambridge University, Cambridge (1991).
- C. A. Mulder, A. J. van Duyneveldt, and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B 23, 1384 (1981).
- M. Mezard, G. Parisi, and M. Virasoro, *Spin Glass Theory and Beyond*, World Scientific Lecture Notes in Physics, Vol. 9, Singapore (1987).
- E. Marinari, G. Parisi, F. Ricci-Tersenghi et al., J. Stat. Phys. 98, 973 (2000).
- D. S. Fisher and D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. 56, 1601 (1986).
- D. S. Fisher and D. A. Huse, Phys. Rev. B 38, 386 (1988).
- 9. P. W. Anderson, Math. Res. Bull. 5, 549 (1970).
- 10. V. Canella and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B 6, 4220 (1972).
- J. A. Mydosh, P. J. Ford, M. P. Kawatra, and T. E. Whall, Phys. Rev. B 10, 2845 (1974).
- 12. P. J. Ford and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B 14, 2057 (1976).
- 13. J. Seiden, CR Acad. Sc. B 282, 149 (1976).
- 14. N. River and K. Adkins, J. Phys. F 5, 1745 (1975).
- 15. K. H. Fischer, Z. Phys. B 34, 45 (1979).
- 16. G. V. Kozlov and A. A. Volkov, Coherent Source Submillimeter Wave Spectroscopy, Topics in Applied Physics, ed. by G. Gruner, Springer-Verlag (1998), Vol. 74, p. 51.
- 17. A. A. Volkov, Yu. G. Goncharov, G. V. Kozlov et al., Infrared Physics 25, 369 (1985).
- A. A. Volkov, G. V. Kozlov, and A. M. Prokhorov, Infrared Physics 29, 747 (1989).
- 19. B. Gorshunov, A. Volkov, I. Spektor et al., Int. J. of Infrared and Millimeter Waves 26, № 9, 1217 (2005).
- 20. M. Dressel, N. Kasper, K. Petukhov et al., Phys. Rev. B 66, 035110 (2002).

- 21. A. V. Pronin, B. P. Gorshunov, A. A. Volkov et al., JETP 82, 790 (1996).
- 22. B. P. Gorshunov, A. V. Pronin, A. A. Volkov et al., Physica B 244, 15 (1998).
- **23**. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970).
- 24. A. Schwartz, M. Dressel, A. Blank et al., Rev. Sci. Instrum. 66, 2943 (1995).
- M. A. Ordal, L. L. Long, R. J. Bell et al., Appl. Opt. 22, 1099 (1983).
- 26. E. D. Palik, Handbook of Optical Constants of Solids, Academic, San Diego, CA (1985).
- **27**. А. В. Соколов, Оптические свойства металлов, Физматгиз, Москва (1961).
- 28. I. A. Campbell, P. J. Ford, and A. Hamzic, Phys. Rev. B 26, 5195 (1982).
- 29. V. Chandrasekhar, P. Santhanam, N. A. Penebre et al., Phys. Rev. Lett. 72, 2053 (1994); M. A. Blachly and N. Giordano, Phys. Rev. B 51, 12537 (1995).
- 30. G. Chen and N. Giordano, Phys. Rev. Lett. 66, 209 (1991).
- L. Hoines, R. Stubi, R. Loloee et al., Phys. Rev. Lett. 66, 1224 (1991).
- 32. M. A. Blachly and N. Giordano, Phys. Rev. B 46, 2951 (1992).
- 33. V. Barzykin and I. Affleck, Phys. Rev. B 57, 432 (1998).
- 34. K. R. Lane, M. Park, M. S. Isaakson, and J. M. Parpia, Phys. Rev. B 51, 945 (1995).
- 35. G. Bergmann, W. Shieh, and M. Huberman, Phys. Rev. B 46, 8607 (1992).
- 36. V. Chandrasekar, P. Santhanam, N. A. Penebre et al., Phys. Rev. Lett. 72, 2053 (1994).

- 37. O. Ujsaghy and A. Zawadowski, Phys. Rev. B 57, 11609 (1998).
- 38. E. H. Sondheimer, Adv. Phys. 1, 1 (1952).
- 39. K. Fuchs, Proc. Camb. Phil. Soc. 34, 100 (1938).
- 40. C. G. Granqvist and O. Hunderi, Phys. Rev. B 16, 3513 (1977).
- 41. R. Buchmann, H. Falke, H. P. Jablonski, and E. F. Wassermann, Phys. Rev. B 17, 4315 (1978).
- 42. P. M. Th. van Attekum, P. H. Woerlee, G. C. Verkade, and A. A. M. Hoeben, Phys. Rev. B 29, 645 (1984).
- 43. Н. Мотт, Э. Дэвис, Электронные процессы в некристаллических веществах, Мир, Москва (1982).
- 44. J. W. Loram, T. E. Whall, and P. J. Ford, Phys. Rev. B 2, 857 (1970).
- 45. P. J. Ford, T. E. Whall, and J. W. Loram, Phys. Rev. B 2, 1547 (1970).
- 46. Б. П. Горшунов, А. С. Прохоров, И. Е. Спектор и др., ЖЭТФ 128, 1047 (2005).
- 47. J. Bass, Adv. Phys. 21, 431 (1972).
- **48**. А. А. Волков, Г. В. Козлов, С. П. Лебедев, А. С. Ракитин, ФТТ **32**, 329 (1990).
- 49. P. Wachter, Intermediate Valence and Heavy Fermions, Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths, ed. by K. A. Gschneider Jr., L. Eyring, G. H. Lander, G. R. Choppin, North Holland, Amsterdam (1993), Vol. 19.
- 50. L. Degiorgi, Rev. Modern. Phys. 71, 687 (1999).
- **51**. Т. Мосс, Оптические свойства полупроводников, Изд-во иностр. лит., Москва (1961).
- **52**. М. Тинкхам, Введение в сверхпроводимость, Атомиздат, Москва (1980).
- 53. J. S. Schilling, P. J. Ford, U. Larsen, and J. A. Mydosh, Phys. Rev. B 14, 4368 (1976).