

УДК 53.082.54+538.958

СУБМИЛЛИМЕТРОВАЯ КВАЗИОПТИЧЕСКАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ МНОГОСЛОЙНЫХ ПРОВОДЯЩИХ И СВЕРХПРОВОДЯЩИХ СИСТЕМ

А. С. Прохоров^{1,2}, Е. С. Жукова^{1,2,3}, А. А. Борис^{1,2}, И. Е. Спектор¹, Б. П. Горшунгов^{1,2,3},
В. С. Ноздрин¹, Е. А. Мотовилова^{1,2}, Л. С. Кадыров^{1,2}, С. Цапф³, С. Хаиндл⁴, К. Иида⁴,
М. Дрессель³, К. В. Чижев¹, М. С. Сторожневых¹, Л. В. Арапкина¹, В. А. Чапнин¹,
О. В. Уваров¹, В. П. Калинин¹, В. А. Юрьев¹

¹ Институт общей физики им. А. М. Прохорова РАН, г. Москва;

² Московский физико-технический институт, г. Долгопрудный, Россия

³ 1. Physikalisches Institut, Universität Stuttgart, Stuttgart;

⁴ IFW Dresden, Institute for Metallic Materials, Dresden, Germany

В работе продемонстрирована эффективность использования интерференционных эффектов в многослойных структурах для количественного определения электродинамических характеристик материалов в субмиллиметровом диапазоне длин волн с применением квазиоптической спектроскопии с источниками на лампах обратной волны. Представлены результаты по исследованию фундаментальных физических свойств нескольких типов проводящих и сверхпроводящих объектов. Установлено наличие значительного поглощения на «подщелевых» частотах в железосодержащих сверхпроводниках. В температурных зависимостях проводимости гетероструктур $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$ в субмиллиметровом диапазоне длин волн зафиксирован фазовый переход металл–диэлектрик, проявляющийся в случае достаточно тонких слоёв LaNiO_3 (с толщиной в 2 постоянных решётки) и отсутствующий в случае более толстых слоёв LaNiO_3 (с толщиной в 4 постоянных решётки). В германий-кремниевых гетероструктурах с квантовыми точками германия обнаружено, что проводимость гетероструктур в субмиллиметровом диапазоне длин волн за счёт наличия в них квантовых точек значительно превосходит проводимость структур, содержащих такое же количество германия, не сформированного в массив квантовых точек.

ВВЕДЕНИЕ

В спектроскопических измерительных схемах наиболее распространённой формой исследуемого образца является плоский слой. При измерении коэффициента пропускания или отражения такого образца неизбежно возникают интерференционные эффекты, обусловленные отражением излучения от его плоских граней (эффект Фабри–Перо). При этом коэффициент поглощения такого образца должен быть достаточно мал, а его оптическая толщина nd должна превышать несколько длин волн λ . Здесь n — показатель преломления образца, d — его геометрическая толщина. На практике эти эффекты часто рассматриваются как нежелательные, и от них стремятся избавиться. Для этого, например, для микроволновых квазиоптических измерений готовятся образцы клиновидной формы. В более высокочастотной инфракрасной области в широкодиапазонных спектрах коэффициентов пропускания и отражения достаточно прозрачных плоскопараллельных образцов могут наблюдаться чётко выраженные интерференционные максимумы и минимумы. Однако описать эти спектры во всех деталях с помощью формул Френеля и, таким образом, определить параметры образца удаётся не всегда. Причина состоит либо в недостаточном частотном разрешении, либо в принципиальных особенностях измерительных методик — фурье-спектроскопии и спектроскопии с временным разрешением [1].

Субмиллиметровая квазиоптическая спектроскопия с источниками излучения на лампах обратной волны является, пожалуй, единственным методом, в котором интерференционные эффекты не только не являются нежелательными, но, напротив, эффективно и активно используются

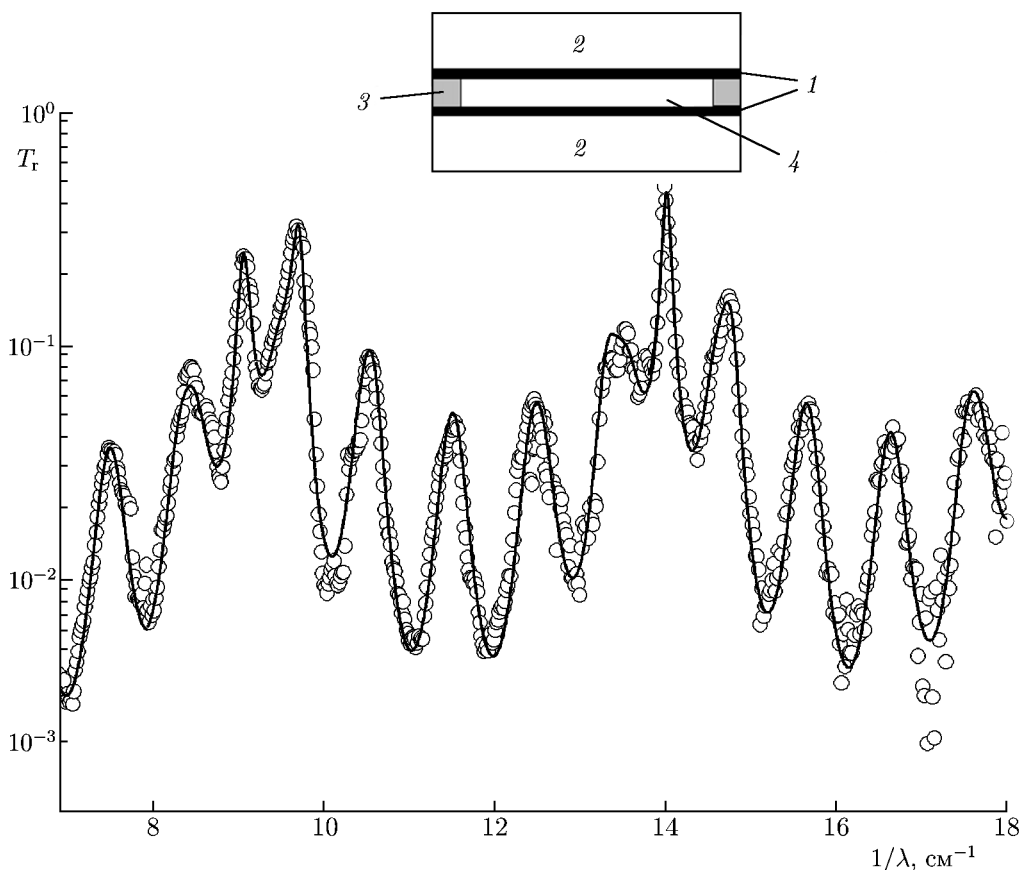


Рис. 1. Субмиллиметровый спектр коэффициента пропускания T_t многосвязного интерферометра Фабри—Перо (вставка), составленного из двух плёнок 1 из $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$ (толщина 25 нм, $T_c \approx 20$ К), выращенных на диэлектрических подложках 2 из $(\text{La},\text{Sr})(\text{Al},\text{Ta})\text{O}_3$ (толщина 0,5 мм) и разделённых кольцевой прокладкой 3 и воздухом 4. Точки отвечают экспериментальным данным, линия — их обработке по методу наименьших квадратов. Температура $T = 5$ К. Данные взяты из работы [7]

для высокоточных количественных измерений электродинамических свойств самых разнообразных материалов [1, 2]. В спектроскопии с источниками на лампах обратной волны удачно сочетаются квазиоптический характер и простота измерительных схем (волноводы отсутствуют, излучение распространяется в открытом пространстве), высокое «качество» рабочего излучения (монохроматичность, когерентность, непрерывная частотная перестройка в широком диапазоне от 30 ГГц до 1,5 ТГц, т. е. от длины волны $\lambda = 1$ см до $\lambda = 200$ мкм) и возможность сформировать квазиоптическими элементами поперечный гауссов профиль интенсивности взаимодействующего с образцом пучка. В результате получаемые на спектрометрах с лампой обратной волны спектры коэффициентов пропускания, отражения и поглощения как однослойных, так и многослойных структур всегда и во всех деталях полностью описываются с использованием соответствующих формул Френеля. При этом важной методической особенностью является и то, что интерференционные картины в спектрах возникают при многократном взаимодействии зондирующего излучения с исследуемым объектом, что повышает чувствительность метода по сравнению с «однопроходными» измерительными схемами [1, 3].

В данной статье мы приводим результаты исследования физических свойств нескольких объектов, демонстрирующие эффективность использования упомянутых достоинств спектроскопии с

источниками на лампах обратной волны в субмиллиметровом диапазоне длин волн в экспериментальной физике твёрдого тела. В соответствующих экспериментах измерялись спектры коэффициентов пропускания слоистых структур, содержащих в виде составных элементов исследуемые объекты.

1. РЕЗОНАТОРНЫЙ МЕТОД ИССЛЕДОВАНИЯ «ПОДЩЕЛЕВОГО» ПОГЛОЩЕНИЯ ЖЕЛЕЗОСОДЕРЖАЩИХ СВЕРХПРОВОДНИКОВ

Температурно-частотное поведение «подщелевого» (т. е. на частотах ниже $2\Delta/h$, где Δ — энергетическая щель сверхпроводника, h — постоянная Планка) поглощения, пропорционального действительной части динамической проводимости σ_1 представляет важную информацию о механизме сверхпроводимости, симметрии параметра порядка и о других фундаментальных свойствах сверхпроводников [4]. Поэтому соответствующие эксперименты весьма важны, в особенности, для исследования сравнительно недавно открытых сверхпроводников на основе железа [5]. При критических температурах $T_c \leq 50$ К эксперименты с этими соединениями должны проводиться в субмиллиметровой спектральной области. Надёжные измерения величины σ_1 , однако, осложняются тем, что в сверхпроводящей фазе она оказывается значительно меньше, чем мнимая часть проводимости, т. е. $\sigma_1 \ll \sigma_2$ [1]. В результате этого точность определения σ_1 является весьма низкой, порядка $\pm 100\%$ [6].

Нами была сконструирована резонаторная схема [7], состоящая из двух сверхпроводящих плёнок, выращенных в идентичных условиях на диэлектрических подложках по методике, описанной в работе [8]. Плёнки фиксируются «лицом к лицу» через кольцевую прокладку (см. вставку на рис. 1) с толщиной 2 мм, которая обеспечивает формирование резонатора Фабри—Перо с плёнками в качестве отражателей. В такой схеме точность определения проводимости σ_1 плёнок повышается за счёт многократного взаимодействия с ними зондирующего излучения.

На рис. 1 представлен спектр коэффициента пропускания получающегося многосвязного резонатора. Спектр измерен при температуре жидкого гелия, т. е. глубоко в сверхпроводящей фазе. Многочисленные осцилляции в спектре возникают в результате переотражения излучения от плоских поверхностей плёнок и подложек, вместе составляющих набор связанных резонаторов Фабри—Перо. Сплошной линией на рис. 1 показан результат обработки спектра по методу наименьших квадратов с применением формул Френеля для коэффициента пропускания пяти-слойной системы [9, 10]. Видно, что все особенности спектра описываются практически идеально. На рис. 2 показаны температурные зависимости σ_1 плёнок в субмиллиметровом диапазоне длин волн, полученные в результате анализа спектров такого же типа, что на рис. 1. Как видно, использованная резонаторная схема позволила существенно уменьшить по сравнению с результатами [6] погрешность определения динамической проводимости плёнок $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$, составляющую в данном случае $\pm 25\%$. Значительное «остаточное» поглощение субмиллиметрового излучения в сверхпроводящей фазе может свидетельствовать о наличии полюсов параметра порядка, т. е. о наличии нулевой ширины сверхпроводящей щели в некоторых точках на поверхности Ферми.

2. СУБМИЛЛИМЕТРОВАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ГЕТЕРОСТРУКТУР СО СВЕРХТОНКИМИ СЛОЯМИ $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$

Гетероструктуры на основе никелатов являются уникальными объектами, физическими свойствами которых можно управлять с помощью изменения размерности электронного конденсата. Особый интерес и в фундаментальном, и в прикладном отношении представляет возможность манипулировать наблюдаемыми в этих структурах фазовыми переходами типа металл—диэлектрик

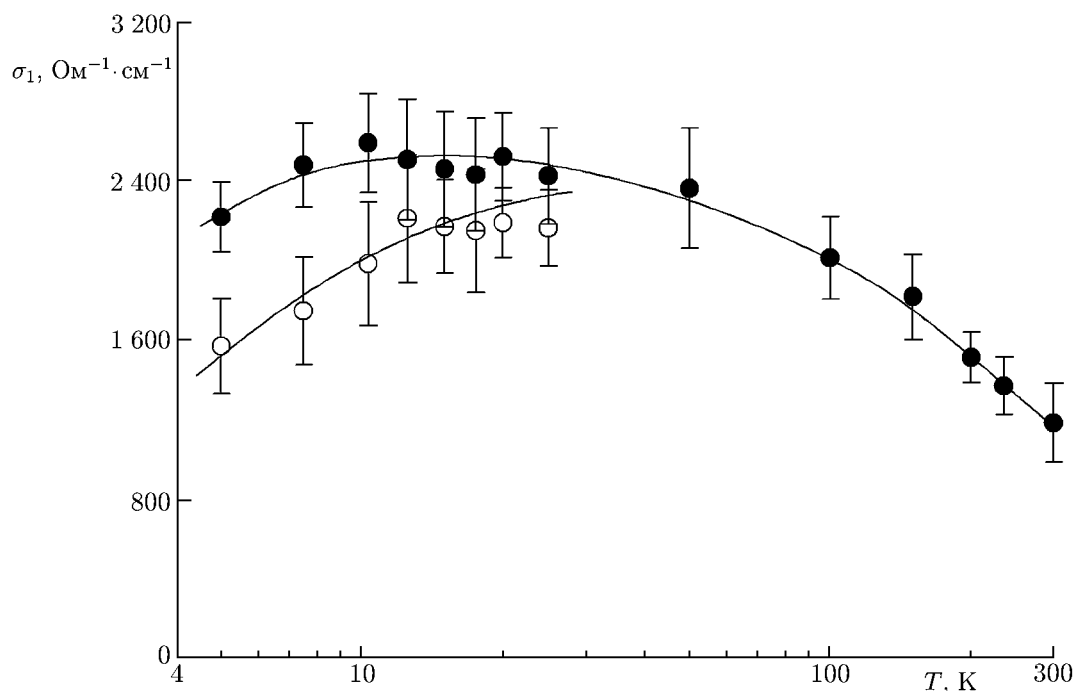


Рис. 2. Температурные зависимости действительной части динамической проводимости σ_1 плёнки $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.9}\text{Co}_{0.1})_2\text{As}_2$, определённые с помощью измерений с использованием резонаторной схемы типа Фабри—Перо (рис. 1). Данные взяты из работы [17]: чёрные точки соответствуют данным, полученным при обратной длине волны $1/\lambda = 7,5 \text{ см}^{-1}$, белые — $16,5 \text{ см}^{-1}$

Таблица 1. Исследованные гетероструктуры $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$

Образец	Толщина подложки, мм	Толщина слоя LaNiO_3 в постоянных решётки	Толщина слоя LaAlO_3 в постоянных решётки	Количество слоёв	Толщина гетероструктуры, Å
BE 35	0,50	2	2	132	1 010
BE 37	0,49	4	4	66	1 010

и парамагнетик—антиферромагнетик. Природа таких переходов до сих пор не ясна, и это привлекает к ним особое внимание с фундаментальной точки зрения. Практически подобные гетероструктуры были реализованы лишь в самое последнее время [11], поэтому данные об их электродинамических свойствах, в частности на субмиллиметровых волнах, в литературе отсутствуют.

Нами были выполнены первые систематические исследования электродинамического отклика гетероструктур на основе никелатов в субмиллиметровом диапазоне длин волн методами квазиоптической спектроскопии с источниками на лампе обратной волны. Измерения выполнялись в диапазоне частот от 200 до 1 200 ГГц при температуре от 5 до 300 К. Высококачественные гетероструктуры (вставка на рис. 3) выращивались на прозрачных для субмиллиметрового излучения подложках SrLaAlO_4 по методике, описанной в [11]. Их характеристики представлены в табл. 1.

Измеренные спектры коэффициентов пропускания гетероструктур показаны на рис. 3. Осцилляции в спектрах связаны с интерференцией монохроматического излучения внутри прозрачных плоскопараллельных подложек. Видно, что при охлаждении коэффициент пропускания в случае гетероструктуры с толщиной слоя LaNiO_3 в 4 постоянных решётки монотонно уменьшается.

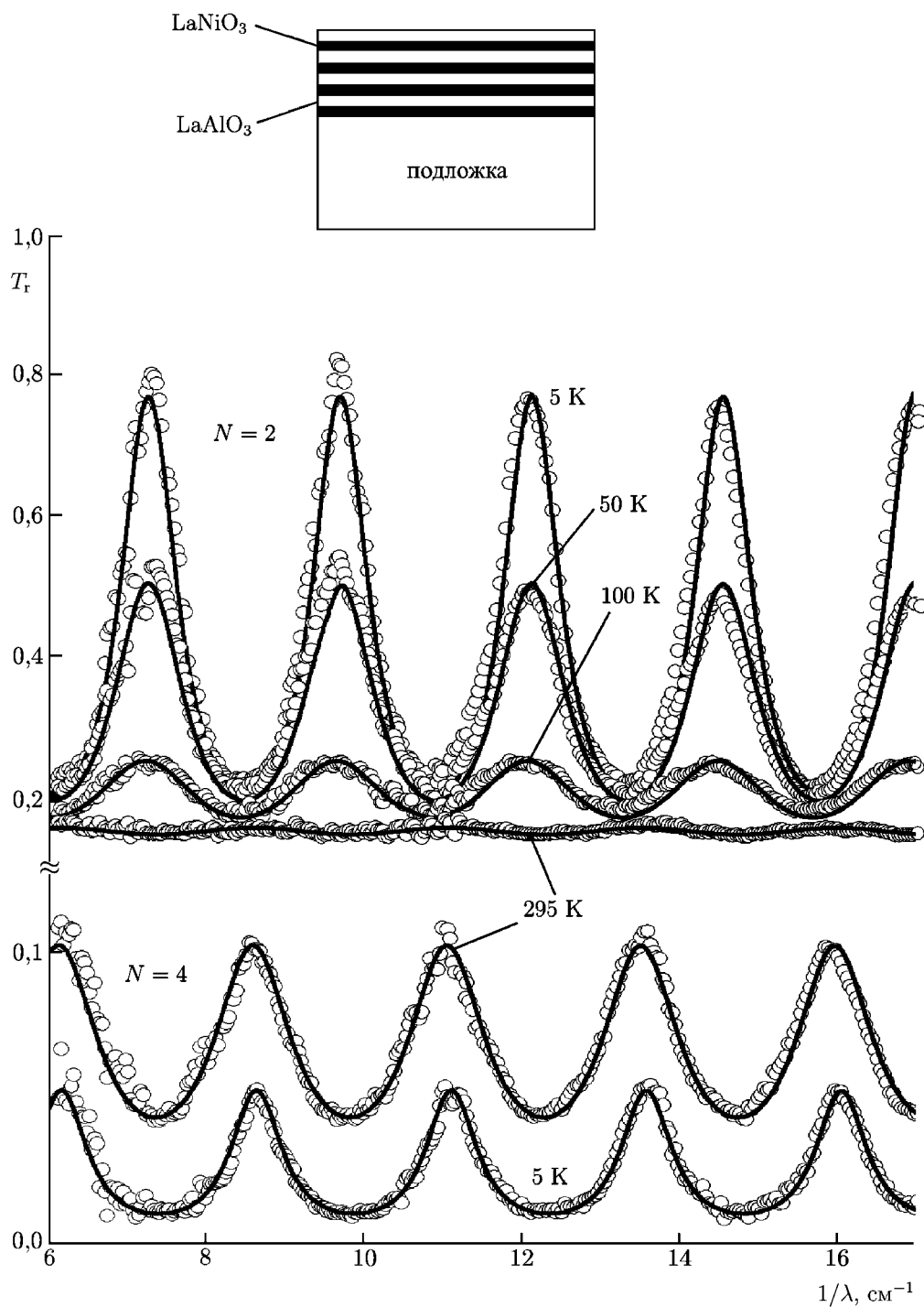


Рис. 3. Субмиллиметровые спектры пропускания (точки) гетероструктур $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$ с толщинами слоёв LaNiO_3 в две (BE35, $N = 2$, 132 слоя) и четыре (BE37, $N = 4$, 66 слоёв) постоянных решётки, измеренные при различных температурах [13]. Сплошными линиями показаны результаты обработки спектров по методу наименьших квадратов с применением формулы для коэффициента пропускания слоистых сред

В случае гетероструктуры со слоем LaNiO_3 с толщиной в 2 постоянных решётки температурная зависимость коэффициента пропускания оказывается иной. При понижении температуры образца по сравнению с комнатной его величина вначале несколько уменьшается (на рис. 3 это уменьшение не представлено, оно отражено в температурном ходе проводимости, см. ниже описание рис. 4), а затем начинает увеличиваться. Сплошные линии на рис. 3 отвечают обработке спектров по методу наименьших квадратов с применением френелевских формул для коэффициента пропускания двухслойной среды, состоящей из «плёнки»-гетероструктуры и подложки, и модели металлической проводимости Друде [12].

Полученные в результате такой обработки температурные зависимости действительной части субмиллиметровой проводимости σ_1 гетероструктур показаны на рис. 4. Для гетероструктур с толщиной слоя LaNiO_3 в 4 постоянных решётки такая зависимость имеет типичный для проводников вид, выражающийся в монотонном росте действительной части проводимости с понижением температуры. В то же время для образцов с толщиной слоя LaNiO_3 равной 2 постоянным решётки чётко видны признаки перехода металл–диэлектрик, происходящего при $T \approx 150$ К. Мы предполагаем [13], что механизм фазового перехода металл–изолятор в гетероструктурах с тонкими (в две постоянных решётки) слоями LaNiO_3 может быть связан или с локализацией носителей заряда моттовского типа, или с нестингом поверхности Ферми и соответствующей неустойчивостью типа волны зарядовой плотности.

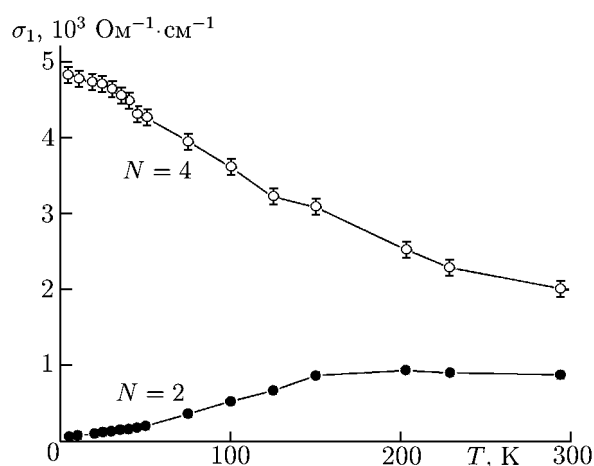


Рис. 4. Температурные зависимости действительной части субмиллиметровой динамической проводимости гетероструктур $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$ с толщинами слоёв LaNiO_3 в две ($N = 2$) и четыре ($N = 4$) постоянных решётки. Данные получены при обратной длине волны излучения 7 см^{-1} . Данные взяты из работы [13]

3. ДИНАМИЧЕСКАЯ ПРОВОДИМОСТЬ ГЕТЕРОСТРУКТУР $\text{Ge}/\text{Si}(001)$ С ПЛОТНЫМИ МАССИВАМИ КВАНТОВЫХ ТОЧЕК ГЕРМАНИЯ В ДИАПАЗОНЕ СУБМИЛЛИМЕТРОВЫХ ДЛИН ВОЛН

Квантовые ямы, квантовые нити и квантовые точки, а также структуры на их основе являются перспективными системами с точки зрения создания принципиально новой элементной базы микро-, нано- и оптоэлектроники. Массивы из большого числа квантовых точек, являющиеся многослойными (возможно, и упорядоченными) гетероструктурами, позволяют формировать «искусственные твёрдые тела», свойства которых можно контролируемым образом изменять путём изменения характеристик составляющих их элементов («атомов» или «молекул») и окружающей эти элементы среды (твёрдотельной матрицы). Субмиллиметровая спектроскопия (энергия кванта излучения от 0,5 до 6 мэВ) позволяет исследовать возможные одночастичные и коллективные возбуждения в массивах и гетероструктурах с квантовыми точками, которые должны иметь характерные энергии от нескольких миллиэлектрон-вольт до $50 \div 100$ мэВ (см., например, [14]).

Нами выполнены первые измерения спектров субмиллиметровой проводимости гетероструктур с квантовыми точками из германия в диапазоне частот от 300 до 1 200 ГГц и при температуре от 5 до 300 К. Гетероструктуры (см. рис. 5, вставка) представляли собой многослойные «сэнд-

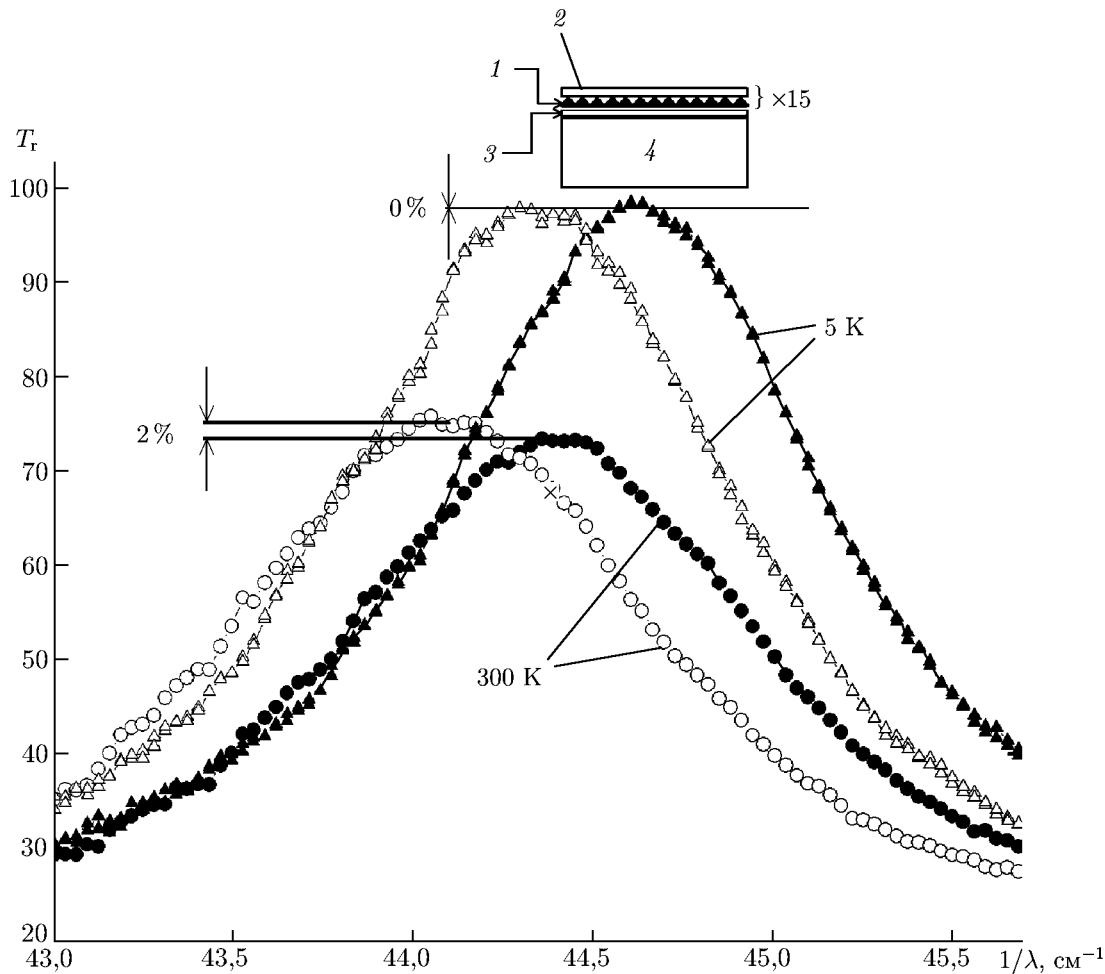


Рис. 5. Субмиллиметровые спектры коэффициента пропускания германий-кремниевой гетероструктуры с квантовыми точками 1 германия (15 слоёв, вставка; чёрные символы), нанесённой на кремниевую подложку 4; 2 — барьерный слой кремния; 3 — буферный слой кремния. Белые символы соответствуют спектрам коэффициента пропускания подложки без гетероструктуры. Спектры измерены при комнатной и гелиевой температурах. Максимумы отвечают интерференции излучения внутри плоскопараллельной подложки. Данные взяты из работы [18]

вичи»: на монокристаллическую подложку Si(100) *p*-типа (КДБ-12) с толщиной около 500 мкм методом молекулярно-лучевой эпитаксии в условиях сверхвысокого вакуума послойно осаждались кремний и германий. При этом слой германия формировался в массив квантовых точек [15]. На рис. 5 представлены спектры (в районе отдельного интерференционного максимума) коэффициента пропускания структуры с пятнадцатью слоями квантовых точек, а также той области подложки, с которой гетероструктура была удалена травлением. При температуре выше примерно 170 К в спектрах уверенно фиксируется разность в пиковых значениях коэффициента пропускания, позволявшая нам рассчитать субмиллиметровую проводимость слоя гетероструктуры.

Анализ показывает [16], что субмиллиметровая проводимость гетероструктур за счёт наличия в них квантовых точек значительно превосходит проводимость структур, содержащих такое же количество германия, не сформированного в массив квантовых точек. Природа этого эффекта остаётся пока невыясненной. Как видно из рис. 6, с понижением температуры динамическая

проводимость и коэффициент поглощения в гетероструктуре понижаются, что может свидетельствовать о том, что носители заряда «поставляются» в систему квантовых точек из подложки.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе показано, что получаемые на квазиоптических субмиллиметровых спектрометрах с источниками на лампах обратной волны спектры коэффициентов пропускания сложных многослойных структур полностью и во всех деталях (интерференционные максимумы и минимумы) описываются известными френелевскими формулами. Это позволяет конструировать резонаторные измерительные схемы, содержащие в качестве составляющих элементов исследуемые объекты — проводящие и сверхпроводящие плёнки на диэлектрических подложках, и определять их электродинамические характеристики (т. е. спектры комплексной проводимости) с точностью, недоступной для альтернативных методик — инфракрасной фурье-спектроскопии и субмиллиметровой спектроскопии с временным разрешением. Приводятся результаты по субмиллиметровой спектроскопии железосодержащих сверхпроводников, гетероструктур типа металл—диэлектрик на основе никелатов и полупроводниковых германиево-кремниевых гетероструктур с квантовыми точками из германия.

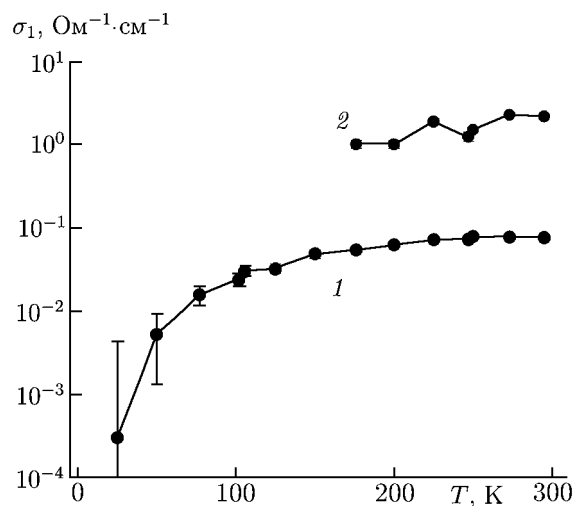


Рис. 6. Температурные зависимости действительной части субмиллиметровой проводимости подложки из кремния (кривая 1) и германий-кремниевой гетероструктуры (2) на частоте 1 ТГц. Данные взяты из работы [18]

Авторы благодарят А. В. Бориса за предоставление неопубликованных результатов. Авторы также выражают признательность Н. В. Кирьяновой за неоценимый вклад в организацию работ по исследованию квантовых точек германия и Л. А. Крыловой за химическую обработку экспериментальных образцов германий-кремниевых гетероструктур.

Работа выполнена при поддержке программы РАН «Современные проблемы радиофизики». Исследования германий-кремниевых гетероструктур с квантовыми точками германия частично финансировались Министерством образования и науки РФ (гранты 8744 и 14.132.21.1395) и РФФИ (грант 12-02-31430). Исследования проводились с использованием оснащения Центра коллективного пользования научным оборудованием ИОФ РАН «Технологический и диагностический центр для производства, исследования и аттестации микро- и наноструктур».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Горшунов Б. П., Волков А. А., Прохоров А. С., Спектор И. Е. // Физика твёрдого тела. 2008. Т. 50, вып. 11. С. 1921.
2. Kozlov G., Volkov A. // Topics in Applied Physics. V. 74. Millimeter and Submillimeter Spectroscopy of Solids / Ed. by G. Gruner. Springer, 1998. P. 51.
3. Schwartz A., Dressel M., Blank A., et al. // Rev. Sci. Instrum. 1995. V. 66, No. 4. P. 2943.
4. Basov D. N., Timusk T. // Rev. Mod. Phys. 2005. V. 77. P. 721.

5. Kamihara Y., Watanabe T., Hirano M., Hosono H. // J. Am. Chem. Soc. 2008. V. 130. P. 3 296.
6. Gorshunov B., Wu D., Voronkov A. A., et al. // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. Art. no. 060509.
7. Zapf S., Gorshunov B., Wu D., et al. // J. Supercond. Novel Magnetism. 2013. V. 26, No. 1. P. 1 227.
8. Iida K., Hänisch J., Hühne R., et al. // Appl. Phys. Lett. 2009. V. 95. Art. no. 192501.
9. Born M., Wolf E. Principles of optics. Oxford: Pergamon, 1980.
10. Dressel M., Grüner G. Electrodynamics of solids. Cambridge: Cambridge University Press, 2002.
11. Boris A. V., Matiks Y., Benzkyser E., et. al. // Science. 2011. V. 332. P. 937.
12. Соколов А. В. Оптические свойства металлов. М.: Физматлит, 1961.
13. Boris A. V., Boris A. A., Matiks Y., et al. (не опубликовано).
14. Yakimov A. I., Adkins C. J., Boucher R., et al. // Phys. Rev. B. 1999. V. 59. P. 12 598.
15. Арапкина Л. В., Юрьев В. А. // УФН. 2010. Т. 180. С. 289.
16. Жукова Е. С., Горшунов Б. П., Юрьев В. А. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2010. Т. 92. С. 877.
17. Zapf S., Dressel M., Gorshunov B., et al. (не опубликовано).
18. Yuryev V. A., Arapkina L. V., Storozhevykh M. S., et al. // Nanoscale Res. Lett. 2012. V. 7. P. 414.

Поступила в редакцию 15 мая 2013 г.; принята в печать 30 сентября 2013 г.

SUBMILLIMETER QUASIOPTICAL SPECTROSCOPY OF MULTILAYER CONDUCTING AND SUPERCONDUCTING SYSTEMS

*A. S. Prokhorov, E. S. Zhukova, A. A. Boris, I. E. Spektor, B. P. Gorshunov,
V. S. Nozdrin, E. A. Motovilova, L. S. Kadyrov, S. Zapf, S. Haindl, K. Iida, M. Dressel,
K. V. Chizh, M. S. Storozhevykh, L. V. Arapkina, V. A. Chapnin, O. V. Uvarov,
V. P. Kalinushkin, and V. A. Yuryev*

We demonstrate the efficiency of using interference effects in multilayer structures for a quantitative determination of submillimeter (submm) electrodynamic characteristics of materials using quasioptical spectroscopy based on backward-wave oscillators. We present the results of studying fundamental physical properties of conducting and superconducting objects of several types. Strong absorption in iron-based superconductors at “sub-gap” frequencies has been detected. In the temperature behavior of submm conductivity in $\text{LaNiO}_3/\text{LaAlO}_3$ heterostructures we found a metal-insulator phase transition that is observed in the case of thin (2 unit cell) LaNiO_3 layers and is absent in the case of thicker (4 unit cell) LaNiO_3 layers. In Ge/Si heterostructures with Ge quantum dots (QD) we discovered the submm conductivity that is strongly enhanced compared with the conductivity of the structures containing the same amount of germanium not organized into a QD array.