

Оптические свойства монокристалла FeGe₂

© Ю.П. Сухоруков, Р.И. Зайнуллина, А.А. Бучкевич, Н.Г. Бебенин

Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН,
Екатеринбург, Россия

E-mail: suhorukov@imp.uran.ru

(Поступила в Редакцию 19 марта 2018 г.)

Исследованы спектры отражения монокристалла FeGe₂ в широкой спектральной области в температурном интервале от 80 до 310 К. Определены энергия плазменных колебаний, частота релаксации носителей заряда, а также фоннные частоты. Изучена анизотропия оптических свойств. Показано, что при фазовом переходе из коллинеарной антиферромагнитной структуры в спиральную происходит существенная перестройка электронных состояний.

Работа выполнена в рамках государственного задания ФАНО (тема „Спин“, Г.р. № АААА-А18-118020290104-2), проекты УрО РАН № 18-10-2-4 и 18-10-2-37.

DOI: 10.21883/FTT.2018.09.46400.074

1. Введение

Интерес к исследованиям слоистых интерметаллидов системы Fe с *sp*-элементами (Ge, As, Se, Te) обусловлен особенностями их магнитных свойств (см. [1,2] и ссылки в них) и электронной структуры, которые могут приводить к появлению сверхпроводимости [3,4]. К этому классу относится соединение FeGe₂, имеющее тетрагональную структуру типа C16 (пространственная группа D_{4h}¹⁸) с параметрами $a = 5.908 \text{ \AA}$ и $c = 4.955 \text{ \AA}$ [5].

В FeGe₂ обнаружено два магнитных фазовых перехода при температурах $T_1 \approx 263 \text{ K}$ и $T_2 \approx 289 \text{ K}$. В магнитоупорядоченном состоянии магнитные моменты расположены в базисной плоскости (001). Согласно нейтронографическому исследованию [5] с понижением температуры в FeGe₂ реализуется следующая последовательность магнитных структур: парамагнетизм при $T > T_2$, плоская спиральная структура с волновым вектором вдоль осей типа [100] при $T_1 < T < T_2$ и коллинеарная антиферромагнитная структура при $T < T_1$.

Фазовый переход при $T = T_2$ является переходом второго рода, а при $T = T_1$ — первого. Эти переходы хорошо проявляются на температурных зависимостях намагниченности и внутреннего трения, однако особенности на температурных зависимостях сопротивления $\rho(T)$ являются весьма слабыми [6–10].

Эффективным методом исследования зонной структуры является исследование оптических спектров при различных температурах, однако такие работы до настоящего времени, по-видимому, не проводились. В связи с этим нами были выполнены измерения спектров зеркального отражения монокристалла FeGe₂ при различных температурах и длинах волн $\lambda \geq 1 \mu\text{m}$. Анализ оптических и резистивных данных показал, что в исследованном соединении спектр носителей заряда является существенно анизотропным. Переход от антиферромаг-

нитной коллинеарной структуры к антиферромагнитной спиральной, происходящий при $T = T_1$, сопровождается значительным изменением электронной зонной структуры, тогда как переход в парамагнитное состояние при $T = T_2$ к заметному изменению электронного спектра не приводит, а особенности на кривой $\rho(T)$ обусловлены критическими флуктуациями в магнитной подсистеме кристалла.

2. Методика эксперимента

Для исследования оптических свойств монокристалла FeGe₂ были вырезаны образцы в виде плоскопараллельных прямоугольных пластин в базисной плоскости (001) и плоскости (100) площадью $3 \times 3 \text{ mm}^2$ и толщиной $d = 0.8 \text{ mm}$ из кристаллов, использованных нами ранее для исследования упругих свойств и сопротивления [8,9]. Одна из сторон пластин шлифовалась и полировалась с последовательной сменой алмазной пасты с наименьшей зернистостью 0–0.5 μm . Шероховатость поверхности составляла менее 1 μm , так что образцы являлись пригодными для исследования коэффициента зеркального отражения в инфракрасной области спектра.

Коэффициент зеркального отражения R света измерялся на высокочувствительной ИК-установке с относительной погрешностью 0.2% при углах, близких к нормальному падению света ($\sim 7^\circ$ к плоскости образца). Использовался естественный (неполяризованный) свет с длиной волны $0.8 \leq \lambda \leq 32 \mu\text{m}$. Температурные зависимости R измерялись в интервале от 80 до 350 К в режиме нагрева образца со скоростью $\sim 4 \text{ K/min}$. Пластины монокристаллов крепились клеем БФ-4 к держателю в оптическом криостате с последующей просушкой при $T = 100^\circ\text{C}$. Влияние внешнего магнитного поля на спектры отражения исследовалось в постоянном магнитном поле 4 кОе.

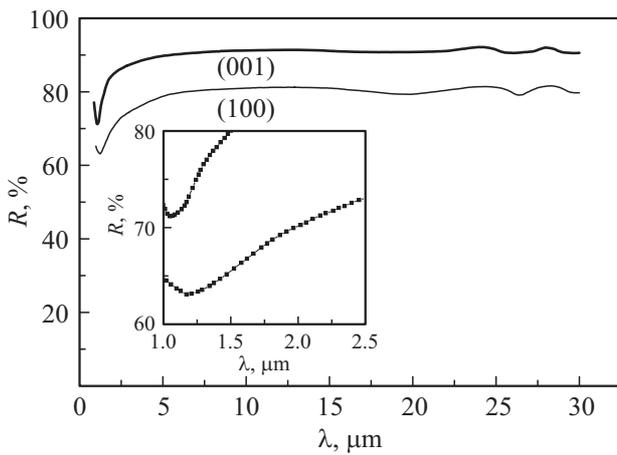


Рис. 1. Спектры отражения от плоскостей (001) и (100) для монокристалла FeGe₂ при $T = 295$ К. На вставке — увеличенный фрагмент спектров в области минимума отражения.

3. Результаты измерений и их обсуждение

3.1. Носители заряда в парамагнитном состоянии. На рис. 1 представлены спектры отражения монокристаллов FeGe₂ для пластинок с плоскостями (001) и (100) при $T = 295$ К. Величины коэффициентов отражения и ход спектральных кривых являются характерными для металлов. В области коротких длин волн на кривой $R(\lambda)$ наблюдаются минимумы при $\lambda_{\min} = 1.04 \mu\text{m}$ ($\hbar\omega_{\min} \approx 1.19$ eV) для (001)-пластины и при $\lambda_{\min} = 1.18 \mu\text{m}$ ($\hbar\omega_{\min} \approx 1.05$ eV) для (100)-пластины. При увеличении длины волны имеет место резкий рост отражения до выхода на постоянную величину $R \approx 92\%$ и $R \approx 80\%$ для (001)- и (100)-пластины соответственно. В области длинных волн проявляются две отчетливо выраженные полосы при $\lambda_1 \approx 24 \mu\text{m}$ и $\lambda_2 \approx 28 \mu\text{m}$.

В металлах положение минимума отражения в первом приближении совпадает с резонансной частотой плазменных колебаний свободных носителей заряда. В случае (001)-пластины, когда электрический вектор световой волны можно считать лежащим в базисной плоскости рассматриваемого тетрагонального кристалла, плазменная частота составляет $\omega_p^{(001)} = 1.8 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, а в случае (100)-пластины плазменная частота $\omega_p^{(100)} = 1.6 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$.

Величина коэффициента отражения в окрестности $\hbar\omega_{\min}$ превышает значения минимумов R для железа и алюминия. В нашем случае высокое значение R при $\hbar\omega_{\min}$ для монокристалла FeGe₂ связано со спектральной шириной оптической щели прибора $\Delta\nu = 0.08$ eV ($\Delta\lambda \approx 0.09 \mu\text{m}$) при $\lambda = 1.1 \mu\text{m}$ вследствие большой величины линейной дисперсии призматического спектрометра.

Ввиду сложной картины энергетического спектра электронной структуры FeGe₂ [1,11,12] обсуждение приведенных экспериментальных данных мы проводим в

простейшей модели при одном типе носителей заряда. Пренебрегая пока анизотропией, имеем (в системе СИ) $\omega_p^2 = e^2 n / \epsilon_0 m$, где n — концентрация носителей заряда, m — эффективная масса. Считая m равной массе свободного электрона, для концентрации носителей заряда получаем оценку $n = 1 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$.

Проводимость в принятом приближении дается выражением $\sigma = e^2 n / (m\gamma)$, где γ — частота релаксации. При комнатной температуре и токе, текущем в базисной плоскости, сопротивление монокристалла FeGe₂ порядка $80 \mu\Omega \text{ см}$, см. [9,10] и рис. 2. Умножая $(\omega_p^{(001)})^2$ на сопротивление, получаем оценку для частоты релаксации носителей заряда $\gamma = 2 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$. Частота релаксации оказывается на два порядка меньше частот, при которых наблюдаются минимумы на кривых $R(\lambda)$.

Теперь обсудим роль анизотропии. Величина $\omega_p^{(001)}$ превышает величину $\omega_p^{(100)}$ всего на 13%, тогда как сопротивление вдоль тетрагональной оси примерно в два раза больше, чем в базисной плоскости [10]. Чтобы понять причину близости плазменных частот при значительной разнице величин сопротивления, измеренного вдоль оси [001] и в базисной плоскости, учтем, что в тетрагональном кристалле зависимость энергии носителя заряда от волнового вектора должна иметь вид

$$\epsilon(\mathbf{k}) = \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m_{\parallel}} + \frac{\hbar^2 k_{\perp}^2}{2m_{\perp}},$$

где k_{\parallel} и k_{\perp} — компоненты волнового вектора вдоль и перпендикулярно тетрагональной оси соответственно, а m_{\parallel} и m_{\perp} — продольная и поперечная эффективные массы. Считая для простоты разницу в сопротивлениях целиком обусловленной разницей между m_{\parallel} и m_{\perp} , получаем $m_{\parallel}/m_{\perp} = 2$. Поскольку при падении света вдоль

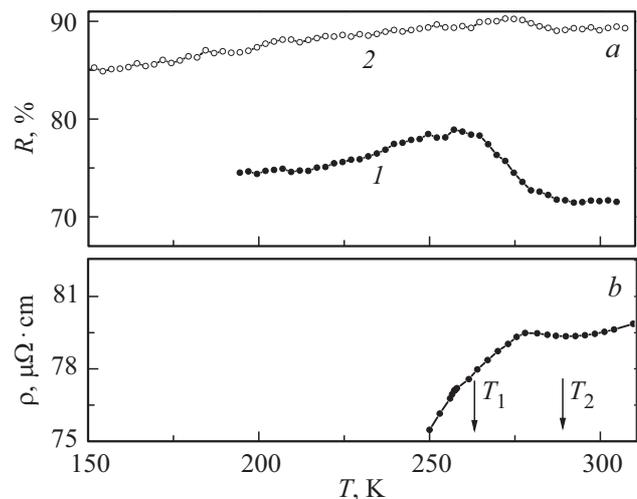


Рис. 2. Температурные зависимости (а) отражения света в плоскости (001) при $\lambda = 1 \mu\text{m}$ (кривая 1) и $6.1 \mu\text{m}$ (кривая 2) для монокристалла FeGe₂; б — температурная зависимость удельного электросопротивления вдоль оси [110] в базисной плоскости (из работы [9]).

оси [001] электрический вектор волны лежит в базисной плоскости, эффективная масса m , фигурирующая в выражении для плазменной частоты, равна m_t . Если же неполяризованный свет распространяется вдоль оси [100], то $\frac{1}{m} = \frac{1}{2}(\frac{1}{m_t} + \frac{1}{m_l})$. Если $m_l/m_t = 2$, то $m^{-1} = (3/4)m_t^{-1}$, так что отношение $(\omega_p^{(001)}/\omega_p^{(100)})^2$ должно быть равно 4/3. Экспериментальное значение этого отношения равно $(1.19/1.05)^2 = 1.28$. Хорошее согласие между рассчитанным и экспериментальным значением величины $(\omega_p^{(001)}/\omega_p^{(100)})^2$ оправдывает сделанные нами предположения.

Рост коэффициента отражения при $\omega > \omega_p$ ($\lambda < \lambda_{\min}$), т.е. при энергии фотона $\hbar\omega$, существенно превышающей 1 eV, связан, очевидно, с межзонными переходами. Кстати, согласно зонным расчетам [11,12] расстояние между пиками плотности состояний составляет 1–2 eV.

Возрастание R при увеличении длины волны в области $\omega < \omega_p$ ($\lambda > \lambda_{\min}$) с выходом на насыщение при $\lambda > 5 \mu\text{m}$ обусловлено в основном взаимодействием света с носителями заряда. Согласно формуле Хагена–Рубенса $R = 1 - 2\sqrt{2\varepsilon_0\omega/\sigma}$. Подставляя приведенные выше значения сопротивления, для R при $\lambda = 5\text{--}20 \mu\text{m}$ получаем величину порядка 0.9, причем при падении света вдоль оси [001] коэффициент отражения больше, чем в случае отражения света от плоскости (100), что и наблюдается. Заметим, однако, что согласно указанной формуле при увеличении длины волны от 5 до 20 μm разность $1 - R$ должна измениться в два раза, тогда как в действительности эта величина остается практически постоянной. По-видимому, в рассматриваемой области спектра пренебрегать частотной зависимостью оптической проводимости нельзя.

Две полосы в спектре отражения с максимумами при $\lambda_1 \approx 24 \mu\text{m}$ ($\hbar\omega_1 = 0.051 \text{ eV}$) и $\lambda_2 \approx 28 \mu\text{m}$ ($\hbar\omega_2 = 0.043 \text{ eV}$), по-видимому, связаны с оптическими фононами. В работе [13] при исследовании спектра магнонов и фононов методом неупругого рассеяния нейтронов было установлено наличие оптических фононов с частотой 4 THz (0.017 eV) и 2.9 THz (0.012 eV), причем исследовались частоты, не превышающие 10 THz (0.041 eV). Таким образом, наши данные и данные работы [13] являются взаимодополняющими. К сожалению, в настоящее время классификация нормальных колебаний решетки FeGe₂ отсутствует.

Мы не обнаружили влияния магнитного поля напряженностью до 4 кОе на спектры отражения в исследуемом температурном и спектральном интервале. Этот результат согласуется с малой величиной магнитосопротивления $\Delta\rho/\rho = 4 \cdot 10^{-4}$ в FeGe₂ при $H = 15 \text{ kOe}$ [9], поскольку оценка магнитоотражения по теории магниторефрактивного эффекта для металлов $\Delta R/R = (R_H - R)/R = -(1/2)(1 - R)(\Delta\rho/\rho)$ [14] дала величину $\Delta R/R \sim 10^{-5}$, что существенно ниже чувствительности измерительной установки.

3.2. Фазовые переходы. Рассмотрим температурные зависимости отражения (рис. 2, а). Наиболее существенные изменения $R(T)$ (кривая 1) происходят в

области межзонных переходов при $\lambda < \lambda_{\min}$. Например, при отражении света от базисной плоскости (001) на кривой R ($\lambda = 1.0 \mu\text{m}$, T) имеется максимум при температуре $T = 259 \text{ K}$, близкой к T_1 . При повышении температуры от T_1 до T_2 коэффициент отражения значительно (на 9%) уменьшается, а в парамагнитной области заметной температурной зависимости нет. Такая резкая смена характера температурной зависимости $R(T)$ может быть связана только с перестройкой электронной структуры FeGe₂ при $T = T_1$.

Заметим, что на кривой температурной зависимости сопротивления вблизи $T = T_1$ имеется только слабо выраженный излом, т.е. фазовый переход при $T = T_1$ сказывается значительно слабее, чем на зависимости $R(T, \lambda < \lambda_{\min})$.

Вблизи T_2 поведение сопротивления типично для окрестности температуры перехода из антиферромагнитного в парамагнитное состояние [15], что указывает на рассеяние носителей заряда на критических флуктуациях. На зависимостях $R(T, \lambda > \lambda_{\min})$ резких особенностей не видно, поэтому можно полагать, что флуктуации в магнитной подсистеме, нарастающие при приближении температуры к T_2 , к существенному изменению электронных состояний вблизи уровня Ферми не приводят.

4. Заключение

Впервые были исследованы спектры отражения монокристалла FeGe₂ в широкой спектральной области при падении неполяризованного света на базисную плоскость (001) и плоскость (100) в температурном интервале от 80 до 310 К. Определены энергии плазменных колебаний $\omega_p^{(001)} \approx 1.19 \text{ eV}$ для базисной плоскости (001) и $\omega_p^{(100)} \approx 1.05 \text{ eV}$ для плоскости (100), частота релаксации носителей заряда $\gamma \approx 2 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ при комнатной температуре, а также анизотропия поперечных и продольных эффективных масс носителей заряда. Определены положения двух фононных полос при $\lambda_1 \approx 24 \mu\text{m}$ (0.051 eV) и $\lambda_2 \approx 28 \mu\text{m}$ (0.043 eV). Температурные изменения коэффициента отражения в области межзонных оптических переходов при $\lambda \leq 1 \mu\text{m}$ свидетельствуют о перестройке электронного спектра вблизи фазового перехода из коллинеарной антиферромагнитной структуры в спиральную, тогда как при переходе в парамагнитное состояние основную роль играют критические флуктуации.

Список литературы

- [1] G.E. Grechnev, A.A. Lyogenkaya, V.B. Pluzhnikov, I.V. Svechkarev, A.V. Fedorchenco, J.M. Perz. *Low Temperature Physics* **40**, 4, 384 (2014).
- [2] N. Kanazawa, J.S. White, H.M. Ronnow, C.D. Dewhurst, Y. Fujishiro, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, M. Kawasaki, M. Ichikawa, F. Kagawa, Y. Tokura. *Phys. Rev. B* **94**, 184432 (2016).
- [3] Z. Xu, J. Wen, G. Xu, S.Cki, G. Gu, J.M. Traquada. *Phys. Rev. B* **84**, 052506 (2011).

- [4] X. Zhou, P. Cai, A. Wang, W. Ruan, X. Chen, Yi. You, Z-Yu Weng, Ya. Wang. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 037002 (2012).
- [5] L.M. Corliss, J.M. Hastings, W. Kunmmn, R. Thomas, J. Zhuang, R. Butera, D. Mukamel. *Phys. Rev. B* **31**, 4337 (1985).
- [6] К.Б. Власов, Р.И. Зайнуллина, Н.Г. Бебенин, И.И. Пиратинская. *ФММ*, **54**, 6, 1212 (1982).
- [7] К.Б. Власов, Р.И. Зайнуллина, В.Н. Сыромятников. *ФММ* **61**, 6, 1219 (1986).
- [8] К.Б. Власов, Е.В. Устелемова, Р.И. Зайнуллина, М.А. Милляев, С.В. Устелемов. *ФТТ* **32**, 5, 1385 (1990).
- [9] Р.И. Зайнуллина, К.Б. Власов, Н.Г. Бебенин, В.В. Устинов. *ФТТ* **38**, 9, 2831 (1996).
- [10] C.P. Adams, T.E. Mason, S.A.M. Mentink, E. Fawcett. *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 1347 (1997).
- [11] G.E. Grechnev, J. Kubler, I.V. Svechkarev. *J. Phys.: Condens. Matter* **3**, 7199 (1991).
- [12] T. Jeong. *Solid State Commun.* **141**, 329 (2007)
- [13] T.M. Holden, A.Z. Menshikov, E. Fawcett. *J. Phys.: Condens. Matter* **8**, L291 (1996).
- [14] А.Б. Грановский, М.В. Кузьмичев. *ЖЭТФ* **116**, 1762 (1999).
- [15] S. Alexander, J.S. Helman, I. Balberg. *Phys. Rev. B* **13**, 1, 304 (1976).

Редактор Т.Н. Василевская