

ВОЗМОЖНОСТЬ ОСЛАБЛЕНИЯ МНОГОЧАСТИЧНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ В ОРГАНИЧЕСКОМ КВАЗИДВУМЕРНОМ МЕТАЛЛЕ α -(BETS) $_2$ NH $_4$ Hg(SCN) $_4$

С. И. Песоцкий^{a,b,c,*}, *Р. Б. Любовский*^{a,b}, *М. В. Карцовник*^{c,**}, *В. Биберахер*^{c,**},
Н. Д. Куц^{a,c}, *А. Кобаяши*^{d***}, *Б. Чжоу*^{d***}

^a *Институт проблем химической физики Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия*

^b *International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures
53-529, Wroclaw, Poland*

^c *Walther Meissner Institute
D-85748, Garching, Germany*

^d *Department of Chemistry Nihon University
156-8550, Tokyo, Japan*

Поступила в редакцию 6 мая 2009 г.

Детально исследовано поведение осцилляций де Гааза – ван Альфена в квазидвумерном органическом металле α -(BETS) $_2$ NH $_4$ Hg(SCN) $_4$ в зависимости от угла между направлением магнитного поля и нормалью к проводящим слоям. Угловая зависимость амплитуды осцилляций содержит минимумы при углах $\pm 40^\circ$ и $\pm 62^\circ$, вызванные эффектом спиновых нулей. Анализ положения этих минимумов позволил предположить значительное ослабление электрон-фононного и электрон-электронного взаимодействий в исследованном металле.

PACS: 71.18.+y, 72.20.My

Семейство изоструктурных органических металлов α -(ET) $_2$ MHg(SCN) $_4$, где ET — бис(этиленди-то)тетрагидрофульвален, M = K, Tl, Rb, NH $_4$, относится к классу органических слоистых проводников с проводящими катион-радикальными слоями α -типа. Эти слои, состоящие из молекул ET $^+$ и сохраняющие металлический характер проводимости вплоть до самых низких температур, чередуются с непроводящими анионными слоями MHg(SCN) $_4^-$. При этом электропроводность внутри катионных слоев на несколько порядков выше, чем в направлении, перпендикулярном к ним. Указанное семейство металлов подробно исследовалось в течение последних 20 лет [1]. Основной причиной такого интереса явились особенности электронной структуры этих

соединений. Поверхность Ферми (ПФ) в проводниках этого семейства при температурах выше 10 К состоит из двух частей. Первая является гофрированным цилиндром с осью, перпендикулярной проводящим слоям. Эта часть ПФ свойственна квазидвумерным металлам. Вторая представляет собой две параллельные, слабо гофрированные плоскости, перпендикулярные проводящим слоям. Эта часть характерна для квазиодномерных металлов. Существование и взаимодействие одномерной и двумерной подсистем в рамках единой электронной системы приводит к возникновению ряда интересных эффектов при низких температурах. Так, в соединениях с M = K, Tl, Rb при температуре ниже 10 К вследствие нестинга квазиплоских листов ПФ формируется состояние волны зарядовой плотности [1]. Причем наличие цилиндрического листа сохраняет металлические свойства системы при температуре

*E-mail: pesot@icp.ac.ru

**M. V. Kartsovnic, W. Biberacher

***A. Kobayashi, B. Zhou

ниже пайерлсовского перехода. При этом в металле с $M = K$ обнаружен переход в сверхпроводящее состояние при $T_c \sim 0.1$ К [2]. В металле с $M = NH_4$ пайерлсовский переход отсутствует и наблюдается сверхпроводящий переход при $T_c \approx 1$ К [3]. В качестве причины подавления пайерлсовской неустойчивости в этом соединении предполагается большая, по сравнению с другими металлами семейства, степень гофрировки плоских участков ПФ и, как следствие, ухудшение условий для нестинга [4].

Несколько лет назад были синтезированы органические металлы $\alpha\text{-(BETS)}_2M\text{Hg(SCN)}_4$, где $M = K, NH_4$, изоструктурные описанному выше семейству. В этих соединениях катион-радикальные слои сформированы молекулами BETS (бис(этилендитио)тетраселенофульвален), в которых, в отличие от молекул ET, центральные атомы серы заменены на атомы селена. Изоструктурность семейств $\alpha\text{-ET}$ и $\alpha\text{-BETS}$ подразумевает сходство в них строения ПФ, по крайней мере, при высоких температурах. Поскольку в ET-металлах проводимость обеспечивается π -электронами атомов серы, замена части их на селен должна приводить к заметному изменению свойств. И действительно, в обоих $\alpha\text{-BETS}$ -металлах не обнаружено ни пайерлсовского, ни сверхпроводящего превращений вплоть до температур порядка 0.4 К [5, 6]. В работе [6] в качестве основной версии подавления пайерлсовской неустойчивости в $\alpha\text{-(BETS)}_2K\text{Hg(SCN)}_4$ предлагается радикальное ослабление многочастичных взаимодействий в электронной системе этого металла. В настоящей работе приводятся результаты детального исследования угловой зависимости амплитуды осцилляций де Газа–ван Альфена (дГВА), подтверждающие данную версию и в металле $\alpha\text{-(BETS)}_2NH_4\text{Hg(SCN)}_4$, и, как следствие, объясняющие отсутствие сверхпроводящего перехода в нем.

В качестве объектов исследования были использованы монокристаллические образцы $\alpha\text{-(BETS)}_2NH_4\text{Hg(SCN)}_4$, имевшие массу порядка 100 мкг. Наблюдение осцилляций дГВА проводилось по методике [7], в которой изменение намагниченности определялось по изменению вращающего момента емкостного магнитометра. При этом поле менялось от нуля до 14.2 Тл, а температура фиксировалась в интервале от 0.45 К до 1.3 К. В исследованных образцах были обнаружены осцилляции дГВА при различных ориентациях магнитного поля (пример осцилляций на рис. 1). Спектр таких осцилляций содержит единственную фундаментальную частоту (вставка к рис. 1), зависимость

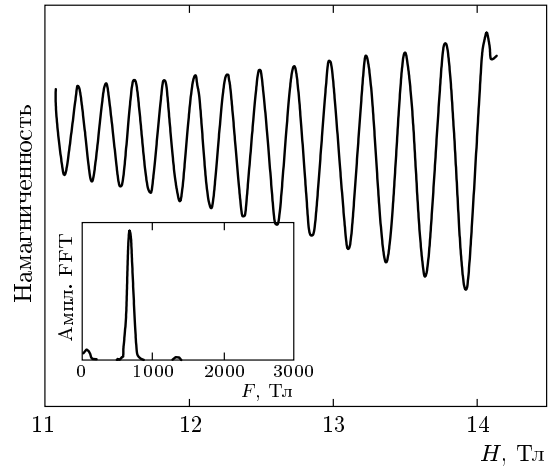


Рис. 1. Осцилляции де Газа–ван Альфена, $T = 0.45$ К, $\theta = 12.1^\circ$. На вставке: фурье-образ осцилляций

которой от угла θ между направлением магнитного поля и нормалью к проводящим слоям описывается обычным для цилиндрической ПФ соотношением:

$$F(\theta) = F(0) / \cos \theta.$$

Величина $F(0) = 650$ Тл, определяющая площадь поперечного сечения цилиндрической части ПФ, приемлемо согласуется с исследованиями осцилляций магнитосопротивления в этом металле [5] и почти на 15 % больше аналогичной величины в ET-комплексе [8]. Относительная эффективная циклотронная масса носителей, связанных с цилиндрической частью ПФ, была вычислена из температурной зависимости амплитуды осцилляций дГВА и составляет величину

$$\mu(0) = m^*/m_0 = 1.15 \pm 0.02$$

в проводящей плоскости, где m^* — эффективная циклотронная масса электрона, m_0 — масса свободного электрона. Сходная величина была получена в работе [5], в то же время циклотронная масса в ET-аналоге почти в 2.5 раза больше [8].

Угловая зависимость амплитуды осцилляций дГВА, изображенная на рис. 2, содержит ряд минимумов. Несимметричные минимумы при $\theta = -48^\circ$ и $\theta = -17^\circ$, скорее всего, связаны с биениями фундаментальной частоты, пример которых вблизи одного из минимумов приведен на рис. 3. Такие биения могут быть вызваны как гофрировкой цилиндрической ПФ, так и несовершенством исследуемого образца [9]. В обоих случаях положение узлов, вызванных биениями, меняется в зависимости от

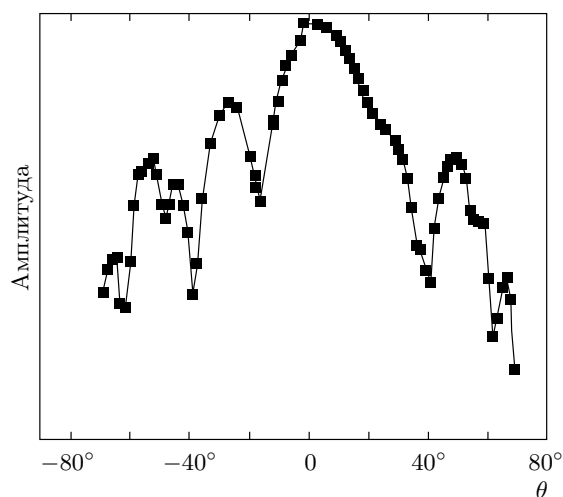


Рис. 2. Амплитуда осцилляций де Гааза – ван Альфена в зависимости от угла θ , $T = 0.45$ К

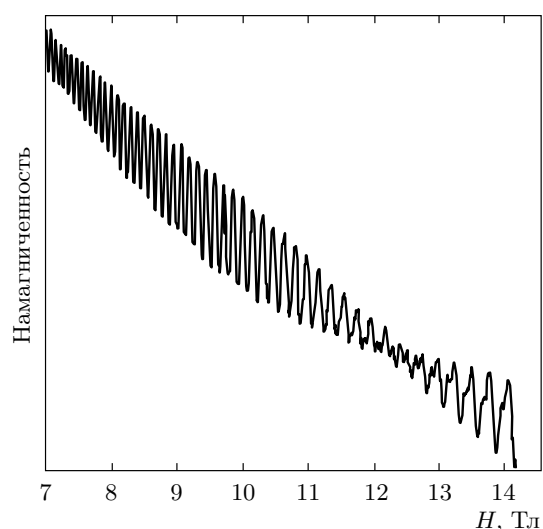


Рис. 3. Осцилляции де Гааза – ван Альфена, $\theta = -18.2^\circ$, $T = 0.45$ К

направления поля, хотя и по разным законам. Эти изменения влияют на среднюю амплитуду осцилляций, определяющуюся в интервале полей (11–14.1) Тл, и могут приводить к возникновению локальных экстремумов. Симметричные минимумы при $\theta = \pm(40 \pm 1)^\circ$ и $\theta = \pm(62 \pm 1)^\circ$ являются так называемыми спиновыми нулями, вызванными зеемановским расщеплением. Такие нули появляются при условии для первой гармоники

$$\cos(\pi\mu g/2) = 0,$$

где g — фактор Ланде. Наличие двух последовательных спиновых нулей и предположение, что цикло-

тронная масса связана с углом θ обычным для цилиндрической ПФ соотношением $\mu(\theta) = \mu(0)/\cos\theta$, позволяет однозначно и с хорошей точностью вычислить расщепляющий фактор S :

$$S = g\mu(0)/2 = (2n + 1) \cos\theta_n/2 = 1.15 \pm 0.03,$$

где θ_n — положение спиновых нулей и $n = 1, 2$. Таким образом, в пределах ошибок измерений

$$S = \mu(0). \quad (1)$$

Учет влияния многочастичных взаимодействий на расщепляющий фактор дается выражением [10]

$$S = \frac{g}{2} \mu(0) = \frac{\mu_c(0)g_s(1 + \beta)}{2(1 + \beta')}, \quad (2)$$

где $\mu_c(0)$ — относительная зонная масса, зависящая только от закона дисперсии, g_s — фактор Ланде, определенный из ЭПР ($g_s \approx 2$ для известных органических металлов [9]), β — электрон-электронная поправочная константа для циклотронной массы, β' — электрон-электронная поправочная константа для фактора Ланде. В то же время выражение для циклотронной массы, получаемой из температурной зависимости амплитуды квантовых осцилляций, с учетом многочастичных взаимодействий имеет вид [10]

$$\mu(0) = \mu_c(0)(1 + \lambda)(1 + \beta), \quad (3)$$

где λ — электрон-фононная поправочная константа. Самым простым способом выполнить соотношение (1) при условиях (2), (3) можно, предположив $\beta = \beta' = \lambda = 0$, т.е. многочастичные взаимодействия отсутствуют или сильно ослаблены. В этом случае циклотронная масса равна зонной массе. Но, в принципе, соотношение (1) может быть выполнено и при случайной комбинации трех констант и величины зонной массы. Именно такое объяснение выбрали авторы работы [11], получив соотношение (1) для органического металла β'' -(ET)₂SF₅CH₂CF₂SO₃. Однако выражение (1) выполняется и для органического изоструктурного металла α -(BETS)₂KHg(SCN)₄ [6] и для металла k -(BETS)₂GaCl₄ [12], имеющего иную, по сравнению с изученным образцом, кристаллическую и электронную структуру и иные величины циклотронных масс. Ситуация, когда во всех упомянутых соединениях соотношение (1) выполняется за счет случайных комбинаций констант, представляется маловероятной. Поэтому предположение о значительном ослаблении многочастичных взаимодействий в квазидвумерном органическом металле

α -(BETS)₂NH₄Hg(SCN)₄ выглядит вполне оправданным. В поддержку этой версии говорит стабильность металлического состояния в исследованном соединении вплоть до $T = 0.4$ К. В то же время анализ положения спиновых нулей в ET-аналоге позволил получить достаточно большую величину электрон-фононной константы, $\lambda = 0.23$ [8]. Именно наличие существенного электрон-фононного взаимодействия не только увеличивает эффективную циклотронную массу, но и создает возможность сверхпроводящего перехода в α -(ET)₂NH₄Hg(SCN)₄ при разумной температуре. Однако нельзя не признать, что одновременное ослабление как электрон-фононного, так и электрон-электронного взаимодействий выглядит достаточно необычно и нуждается в дополнительных аргументах. Такие аргументы могли бы быть получены, например, из исследования циклотронного резонанса.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 07-02-91562-ННИО, 08-03-00480).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. V. Kartsovnik, in *The Physics of Organic Conductors and Superconductors*, ed. by A. Lebed, Springer, Berlin-Heidelberg (2008), p. 185.
2. D. Andres, M. V. Kartsovnik, W. Biberacher et al., *J. de Phys. I* **12**, 83 (2002).
3. H. H. Wang, K. D. Carson, U. Geiser et al., *Physica C* **57**, 166 (1990).
4. K. Kondo, S. Kagoshima, and M. Measto, *Phys. Rev. B* **67**, 134519 (2003).
5. S. A. Ivanov, C. H. Mielke, T. Coffey et al., *Phys. Rev. B* **55**, 4191 (1997).
6. С. И. Песоцкий, Р. Б. Любовский, В. Биберахер и др., *ЖЭТФ* **121**, 504 (2002).
7. P. Christ, W. Biberacher, H. Muller et al., *Sol. St. Comm.* **98**, 451 (1994).
8. J. Wosnitzer, G. W. Crabtree, H. H. Wang et al., *Phys. Rev. B* **45**, 3018 (1992).
9. J. Wosnitzer, *Fermi Surface of Low Dimensional Metals and Superconductors*, Springer-Verlag, Berlin (1996).
10. Д. Шенберг, *Квантовые осцилляции в металлах*, Мир, Москва (1994).
11. J. Hagel, J. Wosnitzer, C. Pfeiderer et al., *Phys. Rev. B* **68**, 104504 (2003).
12. С. И. Песоцкий, Р. Б. Любовский, М. В. Карцовник и др., *ЖЭТФ* **115**, 205 (1999).