

Осцилляции де Гааза–ван Альфена в органическом квазидвумерном металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$

© Р.Б. Любовский^{*,***}, С.И. Песоцкий^{*,**,*}, W. Wiberacher^{**},
Е.И. Жилыева^{*}, О.А. Богданова^{*}, Р.Н. Любовская^{*}

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

** Walther Meissner Institute,

D-85748 Garching, Germany

*** International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures,
53-421 Wroclaw, Poland

E-mail: pesot@icp.ac.ru

(Поступила в Редакцию 10 января 2008 г.)

Детально исследованы осцилляции намагниченности в квазидвумерном органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$ в широком интервале направлений магнитного поля при различных температурах вплоть до 0.4 К. Полученные результаты хорошо согласуются с формой и размерами поверхности Ферми, рассчитанной из данных рентгеноструктурного анализа. В спектре осцилляций намагниченности наряду с фундаментальными обнаружены комбинационные частоты. Показано, что они вызваны движением носителей по реальным замкнутым орбитам внутри сетки магнитопробойных орбит, возникающей под действием магнитного поля. Однозначно установлено, что комбинационные частоты, обнаруженные ранее в спектре осцилляций магнитосопротивления в том же металле, связаны с эффектом квантовой интерференции. На угловых зависимостях амплитуды осцилляций намагниченности обнаружены минимумы, интерпретированные как результат спинового расщепления уровней Ландау.

Работа выполнена при поддержке проектов РФФИ № 08-02-00574_а и 08-03-00480_а.

PACS: 71.18.+y, 72.20.Mu

1. Введение

Многокристаллические образцы органической соли $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$ ($BEDO-TTF$ — бис-(этилендиокси)тетрапифульвален) представляют собой квазидвумерный металл с обычным для соединений этого класса строением [1]: катионные слои органических молекул $(BEDO-TTF)^+$ формируют проводящие плоскости, отделенные друг от друга непроводящими анионными слоями $[CsHg(SCN)_4]_2^-$. Проводимость внутри $(BEDO-TTF)$ -слоев почти изотропна и на четыре порядка выше, чем проводимость в перпендикулярном органическим слоям направлении. При этом как внутри проводящего слоя, так и между слоями температурная зависимость проводимости имеет металлический характер вплоть до температур жидкого гелия [2], т.е. налицо хорошо выраженный квазидвумерный металл. Органические молекулы $(BEDO-TTF)$ образуют в слое упаковку β^{\parallel} -типа. Рассчитанная в рамках модели сильной связи поверхность Ферми (ПФ) для одного слоя представлена на рис. 1. ПФ подобной или сходной формы присуща и ряду других органических металлов с иными типами упаковки катионного слоя, например α -типу [1]. Важнейшей особенностью такой ПФ является сосуществование замкнутых дырочных карманов, охватывающих 16% площади соответствующего сечения первой зоны Бриллюэна, и открытых электронных орбит (рис. 1). Энергетическая щель между дырочными и электронными орбитами в $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$

составляет несколько миллиэлектронвольт и может быть преодолена в доступных магнитных полях. В этом случае электрон в магнитном поле получает возможность двигаться по всей обратной решетке, переходя с орбиты на орбиту, т.е. формируется когерентная сетка магнитопробойных орбит. В [2] сообщалось о наблюдении в указанном материале осцилляций магнитосопротивления. Спектр таких осцилляций содержит частоту F_{α} , соответствующую движению носителей по единственной,

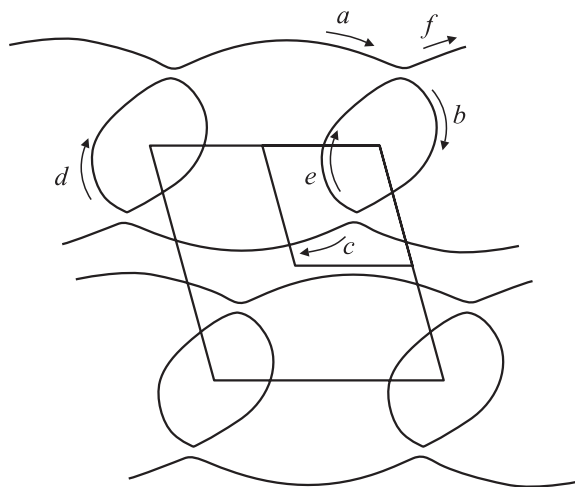


Рис. 1. ПФ и первая зона Бриллюэна в проводящей плоскости органического металла $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$ [2].

исходно замкнутой, орбите, и частоту F_β , возникающую в результате магнитного пробоя между замкнутыми и открытыми орбитами. Кроме того, в спектре осцилляций магнитосопротивления также обнаружены комбинационные частоты $F_{\beta-\alpha}$ и $F_{\beta+2\alpha}$, не имеющие соответствующих разрешенных замкнутых орбит. Появление этих частот интерпретировано как результат эффекта квантовой интерференции [3]. Решающим свидетельством в пользу такой интерпретации может быть анализ осцилляций де Газа–ван Альфена (дГВА) в указанном материале, в которые квантовая интерференция вклада не вносит. Настоящая работа посвящена детальному исследованию осцилляций дГВА в органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$. Полученные результаты не только подтвердили предложенные ранее версии, но дали возможность наблюдать и проанализировать осцилляции, связанные с более сложным орбитальным движением носителей внутри сетки связанных орбит.

2. Результаты и обсуждение

В качестве объектов исследования использовались монокристаллические образцы $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$ в форме неправильных параллелепипедов со средним размером $1.5 \times 0.5 \times 0.1$ mm. Масса таких образцов обычно достигала 200 μ g. Анизотропия двумерного типа исследуемых образцов позволяла использовать для наблюдения осцилляций намагниченности методику емкостного датчика, описанную в [4]. В рамках этой методики измеряемая в эксперименте емкость (в пикофарадах) прямо пропорциональна намагниченности образца. Исследования проводились в магнитном поле до 14.2 Т, создаваемом сверхпроводящим магнитом. Температура, равная 0.4–1.4 К, поддерживалась в ходе эксперимента откачкой паров ^3He . Так-

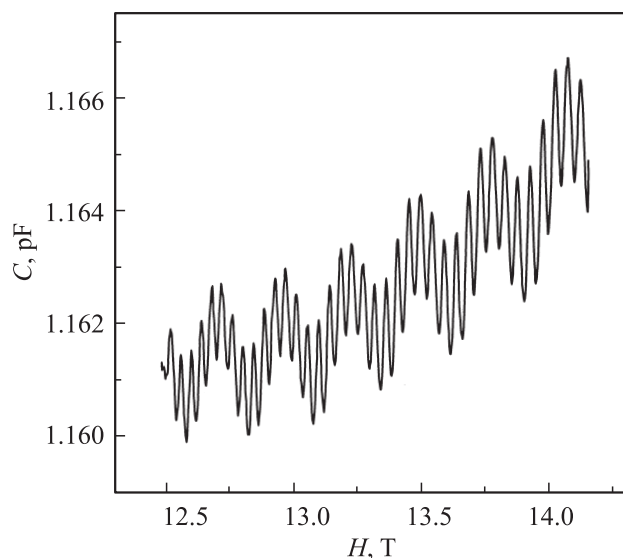


Рис. 2. Осцилляции дГВА в органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$. $T = 0.44$ К, $\theta = 9^\circ$.

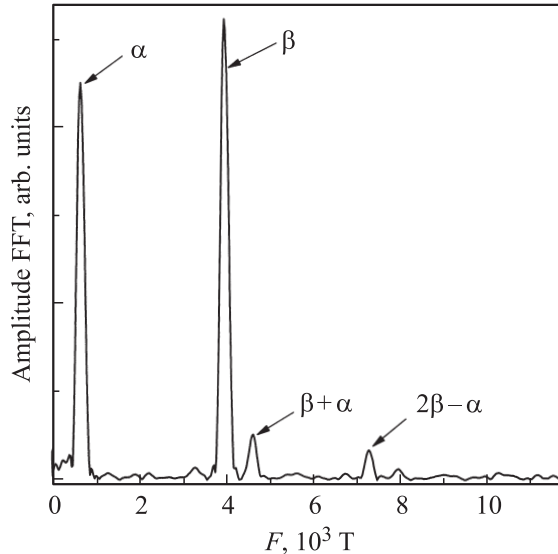


Рис. 3. Спектр Фурье осцилляций, представленных на рис. 2.

же использовалась специальная вставка, позволявшая менять ориентацию образца в широком интервале углов.

На рис. 2 предоставлен общий вид осцилляций намагниченности монокристаллического образца $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$. Частотный спектр таких осцилляций показан на рис. 3. Спектр содержит четыре хорошо различимые частоты: F_α , F_β , $F_{\beta+\alpha}$ и $F_{2\beta-\alpha}$. Все указанные частоты при изменении угла θ между направлением магнитного поля и нормалью к проводящей плоскости подчиняются соотношению $F_i(\theta) = F_i(0) / \cos \theta$, что прямо указывает на цилиндрический тип ПФ с осью, перпендикулярной проводящим слоям. Такой тип является основной характеристикой квазидвумерных электронных систем. При этом $F_\alpha(0) \approx 660$ Т, $F_\beta(0) \approx 3950$ Т, $F_{\beta+\alpha}(0) \approx 4600$ Т, $F_{2\beta-\alpha}(0) \approx 7300$ Т. Сопоставление полученных результатов с теоретическими расчетами ПФ [2] позволяет сделать ряд заключений. Первая фундаментальная частота F_α соответствует исходно замкнутой орбите (α -орбита), охватывающей 16% площади сечения первой зоны Бриллюэна. Вторая фундаментальная частота F_β возникает в результате магнитного пробоя в точках наименьшего расстояния между дырочными карманами и открытыми орбитами. β -орбита (орбита $abcd$, рис. 1) в этом случае охватывает 100% площади сечения зоны Бриллюэна. Две указанные замкнутые орбиты формируют сетку магнитопробойных орбит. Остальные замкнутые траектории в пределах этой сетки должны соответствовать осцилляциям с частотами, являющимися линейными комбинациями фундаментальных частот. Две такие комбинационные частоты, обнаруженные в настоящем эксперименте ($F_{\beta+\alpha} = F_\alpha + F_\beta$ и $F_{2\beta-\alpha} = 2F_\beta - F_\alpha$) отвечают реальным замкнутым магнитопробойным орбитам и могут быть легко выделены из сетки связанных орбит, представленной на рис. 1. Из

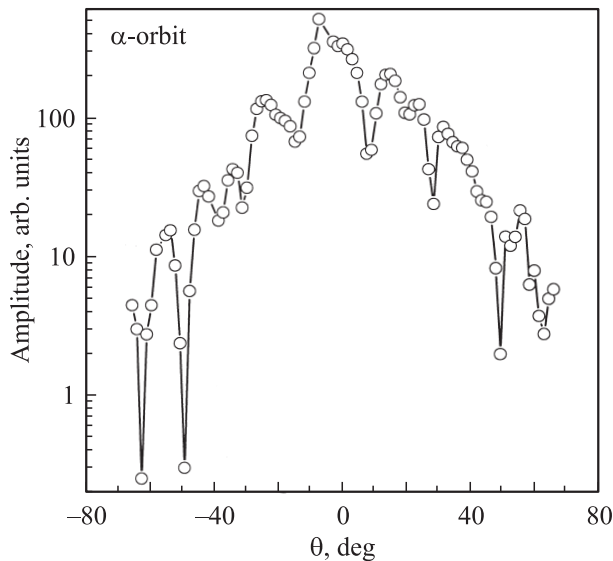


Рис. 4. Зависимость амплитуды α -осцилляций от угла θ между направлением поля и нормалью к проводящей плоскости. $T = 0.44$ К.

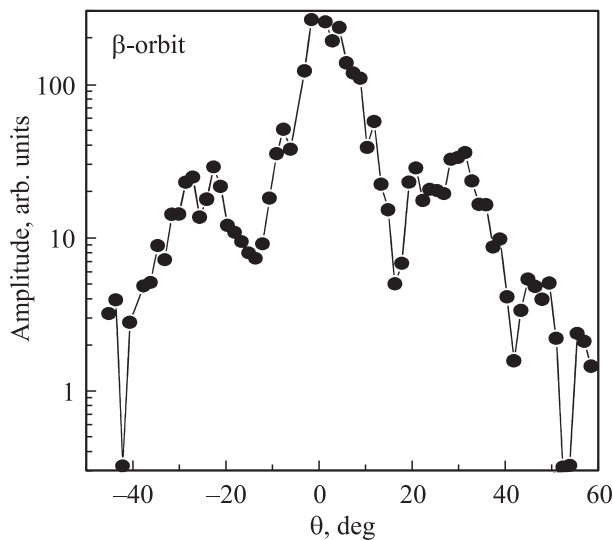


Рис. 5. Зависимость амплитуды β -осцилляций от угла θ между направлением поля и нормалью к проводящей плоскости. $T = 0.44$ К.

анализа температурных зависимостей амплитуды осцилляций дГВА были получены оценки циклотронных масс в проводящей плоскости, соответствующих различным частотам: $m_\alpha \approx (1.6 \pm 0.1)m_0$, $m_\beta \approx (3.1 \pm 0.1)m_0$, $m_{\beta+\alpha} \approx (5.0 \pm 0.5)m_0$, $m_{2\beta-\alpha} \approx (4.7 \pm 0.5)m_0$, где m_0 — масса свободного электрона. В работе [5] теоретически рассматривалось поведение осцилляций дГВА в сетке магнитопробойных орбит, сходной с изображенной на рис. 1. Было показано, что циклотронные массы, отвечающие комбинационным частотам, связанным с реальными замкнутыми орбитами, должны равняться алгебраической сумме масс, составляющих и данную комбинацию,

т.е. в рассматриваемом случае $m_{\beta+\alpha} = m_\alpha + m_\beta$ и $m_{2\beta-\alpha} = 2m_\beta - m_\alpha$. Легко видеть, что данные соотношения приемлемо выполняются в проведенных экспериментах. Таким образом, первым важным результатом исследований осцилляций дГВА в органическом металле $(BEDO-TTF)_5[\text{CsHg}(\text{SCN})_4]_2$ является хорошее согласие их поведения с формой и размерами рассчитанной ПФ в данном соединении. Кроме того, характеристики осцилляций вполне удовлетворительно совпадают с теоретической моделью, предложенной для описания осцилляционных процессов в сетках связанных орбит. Вторым важным результатом является тот факт, что ни при каких направлениях магнитного поля в спектрах осцилляций намагниченности не наблюдалось иных частот кроме перечисленных выше. Комбинационные частоты $F_{\beta-\alpha}$ и $F_{\beta-2\alpha}$, хорошо выраженные в спектрах осцилляций магнитосопротивления [2], полностью отсутствуют в спектрах осцилляций дГВА. Это позволяет однозначно связать эти частоты с эффектом квантовой интерференции. При этом величины фундаментальных частот и соответствующих циклотронных масс хорошо совпадают для осцилляций магнитосопротивления и намагниченности, что можно считать признаком высокой достоверности обоих экспериментов. Отсутствие в спектре осцилляций магнитосопротивления [2] комбинационных частот $F_{\beta+\alpha}$ и $F_{2\beta-\alpha}$ объясняется условием эксперимента. Магнитосопротивление наблюдалось при температурах не ниже $T = 1.4$ К, в то время как исследование намагниченности велось вплоть до $T = 0.4$ К. Поскольку циклотронные массы, соответствующие этим частотам, достаточно велики, фактор температуры оказывается решающим для наблюдения квантовых осцилляций.

На рис. 4 и 5 представлены угловые зависимости амплитуды осцилляций дГВА, вызванных движением носителей по α - и β -орбитам соответственно. При каждом направлении поля амплитуда усреднялась в интервале полей 11.2–14.2 Т. Угол θ между полем и нормалью к проводящей плоскости менялся в произвольной полярной плоскости с шагом 1.5–2°. На рис. 4, соответствующем изменению амплитуды α -осцилляций, хорошо выражена группа минимумов, однако только две пары из них, $\pm(49 \pm 1)^\circ$ и $\pm(63 \pm 1)^\circ$, являются симметричными. Эти минимумы вызваны расщеплением уровней Ландау в магнитном поле и носят название спиновых нулей [6]. Помимо симметрии такие нули должны подчиняться условию

$$\cos(\pi m p g / 2 m_0) = 0,$$

где p — номер гармоники, g — фактор Ланде. Наличие двух или более последовательных спиновых нулей и предположение, что циклотронная масса зависит от угла θ по обычному для цилиндрической ПФ закону $m(\theta) = m(0) / \cos \theta$, позволяют однозначно вычислить расщепляющий фактор для поля вдоль нормали к про-

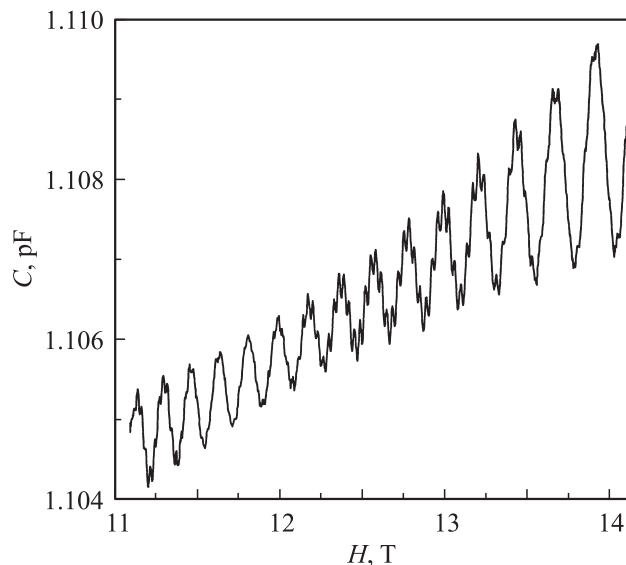


Рис. 6. Осцилляции дГВА в органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$. $T = 0.44$ К, $\theta = -36^\circ$.

водящим слоям

$$S(0) = gm(0)/2m_0 = ((2n + 1) \cos \theta_n)/2$$

для первой гармоники, где θ_n — положение спиновых нулей на угловой зависимости амплитуды ($n = 0, 1, 2, \dots$). Для спиновых нулей α -осцилляций, $n = 2, 3$, расщепляющий фактор составляет величину $S_\alpha(0) \approx 1.6 \pm 0.1$. Угловая зависимость β -осцилляций, изображенная на рис. 5, также содержит несколько минимумов, из которых две пары, $\pm(15 \pm 1)^\circ$ и $\pm(42 \pm 1)^\circ$, являются симметричными. Полагая эти минимумы также спиновыми нулями, с помощью аналогичного расчета расщепляющего фактора получаем следующий результат: при $n = 3, 4$ $S_\beta(0) \approx 3.3 \pm 0.1$. Принимая во внимание, что отношение циклотронных масс $m_\beta/m_\alpha \approx 1.94$ приблизительно совпадает с отношением расщепляющих факторов $S_\beta(0)/S_\alpha(0) \approx 2.06$, можно считать, что расщепление обеих орбит идет с одинаковым g -фактором. Такой результат вполне ожидаем, учитывая способ формирования орбит. Кроме того, значения расщепляющих факторов близки к величинам соответствующих циклотронных масс, отнесенных к массе свободного электрона. Это обстоятельство может свидетельствовать об ослаблении влияния многочастичных взаимодействий на осцилляционные процессы [7]. Следует отметить также, что, располагая величиной расщепляющего фактора, можно определить положение спиновых нулей для иных номеров n . Так, например, для β -осцилляций минимум при $\theta = 53^\circ$ (рис. 5) также является спиновым нулем с $n = 5$. При этом столь же просто проверить, что остальные минимумы, кроме отмеченных выше, не связаны со спиновым расщеплением. Скорее всего, причиной их появления стали биения фундаментальных частот, пример которых показан на

рис. 6. Природа таких биений пока неясна. Например, они могут быть вызваны гофрировкой цилиндрической ПФ вдоль оси цилиндра, которая возникает как следствие межслоевого взаимодействия [8]. Биения могут быть также результатом кристаллического несовершенства исследуемого образца [9]. В обоих случаях частота биений меняется с изменением направления поля, хотя и по различным законам, и это влияет на величину амплитуды, усредненную внутри рабочего интервала полей. Прояснить природу биений могут только измерения в значительно более широкой области магнитных полей.

3. Заключение

Изучение поведения осцилляций дГВА в квазидвумерном органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$ показало, что 1) спектр осцилляций содержит четыре частоты — две фундаментальные F_α , F_β и две комбинационные $F_{\beta+\alpha}$, $F_{2\beta-\alpha}$; 2) частоты F_β , $F_{\beta+\alpha}$ и $F_{2\beta-\alpha}$ соответствуют замкнутым траекториям, возникшим в результате магнитного пробоя и формирования когерентной сетки магнитопробойных орбит; 3) величины фундаментальных частот хорошо согласуются с рассчитанной ПФ; 4) комбинационные частоты и соответствующие циклотронные массы удовлетворительно описываются в рамках теоретических представлений о движении носителей внутри сетки связанных орбит.

Совместный анализ осцилляций дГВА и магнитосопротивления позволил однозначно связать комбинационные частоты в спектре осцилляций магнитосопротивления с эффектом квантовой интерференции.

Анализ угловых зависимостей амплитуды осцилляций дГВА дал возможность выделить минимумы амплитуды, вызванные спиновым расщеплением, и предположить вероятность ослабления многочастичных взаимодействий в органическом металле $(BEDO-TTF)_5[CsHg(SCN)_4]_2$.

Список литературы

- [1] M.V. Kartsovnik. Chem. Rev. **104**, 5737 (2004).
- [2] R.B. Lyubovskii, S.I. Pesotskii, M. Gener, R. Rousseau, E. Canadell, J.A.A.J. Petenboom, V.I. Nizhankovskii, E.I. Zhilyaeva, O.A. Bogdanova, R.N. Lyubovskaya. J. Mater. Chem. **12**, 483 (2002).
- [3] R.W. Stark, C.B. Freiberg. J. Low Temp. Phys. **14**, 111 (1974).
- [4] P. Christ, W. Biberacher, H. Muller, K. Andres. Solid State Commun. **98**, 451 (1994).
- [5] R.W. Stark, L.M. Falicov. Prog. Low Temp. Phys. **5**, 235 (1967).
- [6] Д. Шенберг. Квантовые осцилляции в металлах. Мир, М. (1994). С. 678.
- [7] С.И. Песоцкий, Р.Б. Любовский, В. Биберахер, М.В. Карцовник, В.И. Нижанковский, Н.Д. Куш, Х. Кобаяши, А. Кобаяши. ЖЭТФ **121**, 504 (2002).
- [8] М.В. Карцовник, П.А. Кононович, В.Н. Лаухин, И.Ф. Щеголев. Письма в ЖЭТФ **48**, 498 (1988).
- [9] J. Woznitza, G.W. Crabtree, K.D. Carlson, H.H. Wang, J.M. Williams. Physica B **194–196**, 2007 (1994).