## ВОЗМОЖНОСТЬ РАДИКАЛЬНОГО ОСЛАБЛЕНИЯ МНОГОЧАСТИЧНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ В ОРГАНИЧЕСКОМ МЕТАЛЛЕ α-(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub>

С. И. Песоцкий <sup>abc\*</sup>, Р. Б. Любовский <sup>ac</sup>, В. Биберахер<sup>b\*\*</sup>, М. В. Карцовник<sup>b</sup>,

В. И. Нижанковский<sup>с</sup>, Н. Д. Кущ<sup>а</sup>, Х. Кобаяши<sup>d\*\*\*</sup>, А. Кобаяши<sup>e\*\*\*</sup>

<sup>а</sup> Институт проблем химической физики Российской академии наук 142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

> <sup>b</sup> Walther Meissner Institute D-85748, Garching, Germany

<sup>c</sup> International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures Wroclaw, 53-529, Poland

> <sup>d</sup> Institute for Molecular Science Okazaki, 444, Japan

<sup>e</sup> Research Center for Spectrochemistry, Graduate School of Science University of Tokyo 113, Japan

Поступила в редакцию 23 августа 2001 г.

Подробно изучено поведение осцилляций де Гааза-ван Альфена в зависимости от угла между направлением магнитного поля и перпендикуляром к проводящим слоям в квазидвумерном органическом металле  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub>. На угловой зависимости амплитуды осцилляций наблюдалась серия минимумов при ±43.2, ±64.6, ±72.0°, связанных с эффектом «спиновых нулей», давшая возможность однозначно оценить величину расщепляющего фактора. Анализ этой величины позволил предположить отсутствие или, по крайней мере, радикальное ослабление многочастичных взаимодействий в исследованном соединении.

PACS: 71.18.+y, 72.20.My

Семейство изоструктурных квазидвумерных органических металлов  $\alpha$ -(ET)<sub>2</sub>MHg(XCN)<sub>4</sub>, где ET — бис(этилендитио)тетратиафульвален, M = K, Tl, Rb, NH<sub>4</sub>, X=S, Se, были объектом пристального внимания в физике органических проводников последние десять лет [1]. Причиной тому оказалось сосуществование в поверхности Ферми этих металлов как гофрированных открытых листов, характерных для квазиодномерных электронных систем, так и гофрированного цилиндра, типичного для квазидвумерного металла, и взаимодействие этих час-

тей поверхности Ферми. Следствием этого явилось одновременное наблюдение ряда явлений, присущих как квазиодномерным, так и квазидвумерным системам, например, квантовых осцилляций различного типа, связанных с замкнутыми орбитами, и фазового перехода пайерлсовского типа, сопровождающегося нестингом открытых листов поверхности Ферми. Такой переход наблюдался в соединениях с M = K, Tl, Rb и X = S при  $T \leq 10$  K [1]. Природа состояния ниже температуры перехода пока не ясна, но проведенные в последнее время интенсивные исследования фазовой диаграммы [2,3] предоставили серьезные аргументы в пользу состояния с волной зарядовой плотности. Остальные металлы указанного семейства сохраняют поверхность Ферми вплоть

<sup>&</sup>lt;sup>\*</sup>E-mail: pesot@icp.ac.ru

<sup>\*\*</sup>W. Biberacher.

 $<sup>^{\</sup>ast\ast\ast}$  H. Kobayashi and A. Kobayashi.



Рис.1. Осцилляции крутящего магнитного момента в  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>TIHg(SeCN)<sub>4</sub> при T = 0.45 K,  $\theta = 12.6^{\circ}$  (*a*) и фурье-спектр этих осцилляций (б)

до самых низких температур [1], причем одно из них,  $\alpha$ -(ET)<sub>2</sub>NH<sub>4</sub>Hg(SCN)<sub>4</sub>, переходит в сверхпроводящее состояние при  $T \approx 1$  K [4].

Сравнительно недавно на основе органиче-BETS молекулы (бис(этилендитио)тетской раселенафульвален) были синтезированы квазидвумерные металлы  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub> и  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>NH<sub>4</sub>Hg(SCN)<sub>4</sub>, изоструктурные своим ЕТ-аналогам из упомянутого семейства. В молекуле BETS по сравнению с ET часть атомов серы заменена на атомы селена. Учитывая, что в ЕТ-металлах проводимость внутри проводящего слоя обеспечивается перекрытием именно орбиталей серы, можно было ожидать, что такая замена существенно повлияет на свойства новых комплексов. И действительно, металлы  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub> и  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>NH<sub>4</sub>Hg(SCN)<sub>4</sub> не показали при понижении температуры ни пайерлсовского, ни сверхпроводящего переходов [5]. Анализ поведения осцилляций Шубникова-де Гааза в этих металлах позволил предположить в качестве основной причины подавления переходов частичное ослабление электрон-электронного кулоновского отталкивания [5].

В настоящей работе на основе исследования осцилляций де Гааза-ван Альфена в α-(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub> предлагается в качестве версии подавления переходов полное отсутствие как электрон-электронного, так и электрон-фононного взаимодействий или их радикальное ослабление.

Объектом исследования явились монокристаллические образцы  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>KHg(SCN)<sub>4</sub>, имевшие массу 120–150 мкг. Наблюдение эффекта де Гааза–ван Альфена проводилось по методике [6], в которой изменение намагниченности определялось по изменению крутящего момента емкостного магнитометра. При этом поле разворачивалось от 0 до 14 Тл, а температура фиксировалась в интервале от 0.45 до 1.3 К. В исследованном соединении были обнаружены осцилляции де Гааза-ван Альфена при различных направлениях магнитного поля (пример представлен на рис. 1*a*). Спектр осцилляций содержит единственную фундаментальную частоту (рис. 1*б*), зависимость которой от угла  $\theta$  между направлением поля и перпендикуляром к проводящим слоям описывается обычным для цилиндрической поверхности Ферми соотношением

$$F(\theta) = F(0) / \cos \theta \approx 675 \, [\text{T}_{\text{T}}] / \cos \theta.$$

Величина  $F(0) \approx 675$  Тл, определяющая площадь сечения цилиндра проводящей плоскостью, хорошо согласуется с результатами работы [5] и почти на 20 % больше величины, предсказанной теоретически [7]. Циклотронная масса носителей, связанных с цилиндрической частью поверхности Ферми, была вычислена из температурной зависимости амплитуды осцилляций де Гааза-ван Альфена и составила величину

$$\mu = m^*/m_0 = 1.09 \pm 0.02$$

при поле, параллельном оси цилиндра ( $m^*$  — эффективная масса электрона,  $m_0$  — масса свободного электрона).

Угловая зависимость амплитуды осцилляций де Гааза-ван Альфена, изображенная на рис. 2, содержит ряд минимумов. Минимум при  $\theta = 0$  связан с особенностями методики измерений [6]. Природа минимумов при  $\theta = -32.3, -54^{\circ}$  окончательно не ясна, но, вероятнее всего, связана с гофрировкой цилиндрической поверхности Ферми. Минимумы при  $\theta = \pm 43.2, \pm 64.6, \pm 72.0^{\circ}$  являются так называемыми спиновыми нулями и связаны с расщеплением



Рис.2. Угловая зависимость амплитуды осцилляций де Гааза-ван Альфена в  $\alpha$ -(BETS) $_2$ TIHg(SeCN) $_4$  при T=0.45 K

уровней Ландау в магнитном поле [8]. Такие нули существуют при условии

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

где p — номер гармоники, g — g-фактор. Наличие трех спиновых нулей и предположение, что эффективная масса связана с углом  $\theta$  обычным для цилиндрической поверхности Ферми соотношением  $\mu(\theta) = \mu(0) / \cos \theta$ , позволяет для первой гармоники однозначно и с хорошей точностью вычислить расщепляющий фактор:

$$S = \frac{g\mu(0)}{2} = \frac{(2n+1)\cos\theta_n}{2} = 1.09 \pm 0.03,$$

где  $\theta_n$  — положение спиновых нулей и n = 1, 2, 3. Таким образом в пределах ошибок измерений

$$S \approx \mu(0). \tag{1}$$

Учет влияния многочастичных взаимодействий для расщепляющего фактора дается выражением [8]

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

где  $\mu_c(0)$  — относительная зонная масса, зависящая только от дисперсионного закона,  $g_s - g$ -фактор, определенный из ЭПР ( $g_s \approx 2$  для известных органических металлов [1]),  $\gamma$  — электрон-электронная поправочная константа для эффективной массы и  $\gamma'$  — электрон-электронная поправочная константа для *g*-фактора. В то же время выражение для эффективной массы с учетом многочастичных взаимодействий, вычисленной из температурной зависимости амплитуды осцилляций, имеет вид [8]

$$\mu(0) = \mu_c(0)(1+\gamma)(1+\lambda), \tag{3}$$

где  $\lambda$  — электрон-фононная константа для массы. Самым естественным способом удовлетворить соотношению (1), учитывая (2) и (3), можно, предположив  $\gamma = \gamma' = \lambda = 0$ , т.е. многочастичные взаимодействия отсутствуют или очень сильно ослаблены. В этом случае эффективная масса равна зонной. В принципе, соотношение (1) могло бы быть удовлетворено при случайной комбинации трех констант и зонной массы. В пользу этого может говорить теоретическая оценка зонной массы,  $\mu_c(0) \approx 0.6$  [7]. Однако ранее было показано, что соотношение (1) выполняется для изоструктурного комплекса  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>TlHg(SeCN)<sub>4</sub> [9] и, что более важно, для комплекса  $\kappa$ -(BETS)<sub>2</sub>GaCl<sub>4</sub> [10], имеющего иную кристаллическую и электронную структуры. Ситуация, когда во всех трех соединениях соотношение (1) выполняется за счет случайных комбинаций упомянутых констант, представляется маловероятной. Поэтому предположение о радикальном ослаблении многочастичных взаимодействий в  $\alpha$ -(BETS)<sub>2</sub>TlHg(SeCN)<sub>4</sub> кажется вполне оправданным. В этом случае легко объяснимо отсутствие сверхпроводящего и пайерлсовского переходов в исследованном металле.

Работа выполнена при поддержке РФФИ (проект 00-02-04019 DFG), NWO и Российской программы «Физика квантовых и волновых процессов».

## ЛИТЕРАТУРА

- J. Wosnitza, Fermi Surface of Low Dimensional Metals and Superconductors, Springer-Verlag, Berlin (1996); M. V. Kartsovnik and V. N. Laukhin, J. Phys. I France 6, 1753 (1996); J. Singleton, Rep. Prog. Phys. 63, 1111 (2000).
- M. V. Kartsovnik, W. Biberacher, E. Steep, P. Christ, K. Andres, A. G. M. Jansen, and H. Müller, Synt. Metals 86, 1933 (1997).
- P. Christ, W. Biberacher, M. V. Kartsovnik, E. Steep, E. Balthes, H. Weiss, and H. Müller, Πμεьма в ЖЭТФ 71, 437 (2000); D. Andres, M. V. Kartsovnik, W. Biberacher, H. Weiss, E. Balthes, H. Müeller, and N. D. Kushch, submitted to Phys. Rev. Lett. (2001).

- 4. H. H. Wang, K. D. Carlson, U. Geiser, W. K. Kwok, M. D. Washon, J. E. Thompson, N. F. Larsen, G. D. McGabe, R. S. Hulscher, and J. M. Williams, Physica C 166, 57 (1990).
- S. A. Ivanov, C. H. Mielke, T. Coffey, D. A. Howe, C. C. Agosta, B. W. Fravel, and L. K. Montgomery, Phys. Rev. B 55, 4191 (1997).
- P. Christ, W. Biberacher, H. Müller, and K. Andres, Sol. St. Comm. 98, 451 (1994).
- 7. D. K. Seo, M. H. Whangbo, B. Fravel, and L. K. Mont-

gomery, Sol. St. Comm. 100, 191 (1996).

- 8. D. Shoenberg, *Magnetic Oscillations in Metals*, Cambridge University Press (1984).
- S. I. Pesotskii, R. B. Lyubovskii, V. I. Nizhankovskii, W. Biberachwer, M. V. Kartsovnik, K. Andres, J. A. A. J. Perenboom, N. D. Kushch, E. B. Yagubskii, and H. Kobayashi, JETP 90, 527 (2000).
- С. И. Песоцкий, Р. Б. Любовский, М. В. Карцовник, В. Биберахер, К. Андрес, Н. Д. Кущ, Х. Кобаяши, А. Кобаяши, ЖЭТФ 115, 205 (1999).