

# ОСЦИЛЛЯЦИИ ДЕ ГАЗА – ВАН АЛЬФЕНА В ОРГАНИЧЕСКОМ КВАЗИДВУМЕРНОМ МЕТАЛЛЕ $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$

*Р. Б. Любовский<sup>a,b</sup>, С. И. Песоцкий<sup>a,b,c\*</sup>, В. И. Нижанковский<sup>b</sup>,  
В. Биберакер<sup>c</sup>, Р. Н. Любовская<sup>a</sup>*

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

<sup>b</sup> *Международная лаборатория сильных магнитных полей и низких температур  
53-421, Вроцлав, Польша*

<sup>c</sup> *Институт Вальтера Майсснера  
D-85748, Гархинг, Германия*

Поступила в редакцию 16 октября 2003 г.

Подробно исследовано поведение осцилляций де Гааза – ван Альфена в квазидвумерном органическом металле  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$ , сечение поверхности Ферми которого представляет собой двумерную сетку магнитопробных орбит. Обнаружены только две частоты,  $F_A$  и  $F_{MB}$ , соответствующие разрешенным замкнутым орбитам. Такой результат согласуется с проведенными ранее исследованиями осцилляций Шубникова – де Гааза в этом металле. Причина отсутствия других разрешенных частот остается неясной. Угловые зависимости амплитуды осцилляций  $F_A$  и  $F_{MB}$  содержат серию «спиновых нулей». Анализ их положения позволил предположить ослабление многочисленных взаимодействий в  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$ .

PACS: 71.18.+y

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Кристаллическая и зонная структуры органического квазидвумерного проводника  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$  (далее (Cl,Cl)), сохраняющего металлические свойства в интервале температур (0.5–300) К, детально описаны в [1, 2]. Зонные расчеты показали, что исходная поверхность Ферми (FS) в проводящей плоскости этого металла состоит из двух пересекающихся открытых дырочных орбит, характерных для низкоразмерных электронных систем. Гибридизация молекулярных орбиталей, образующих зону проводимости, приводит к формированию итоговой FS в виде двух замкнутых орбит, электронной ( $E$ ) и дырочной ( $H$ ) (см. рис. 1), различных по форме, но с одинаковой площадью — около 13% площади первой зоны Бриллюэна [2]. Уже первые наблюдения осцилляций Шубникова – де Гааза [3, 4] показали

вместо ожидаемой единственной частоты набор из шести частот. Все эти частоты в зависимости от угла  $\theta$  между направлением поля и нормалью к проводящей плоскости описываются законом  $F_i(\theta) = F_i(0)/\cos\theta$ , характерным для цилиндрической FS, обычной для квазидвумерных электронных систем. Среди обнаруженных осцилляций явно преобладали по амплитуде осцилляции с частотой  $F_A(0) = 245$  Тл, соответствующей приблизительно 11% площади первой зоны Бриллюэна. Они были отнесены к движению носителей по классическим замкнутым орбитам  $E$  и  $H$ . Анализ температурной и угловой зависимостей амплитуды осцилляций Шубникова – де Гааза с частотой  $F_A$  показал, что для дырочной и электронной орбит свойственна не только одинаковая площадь, но и одинаковая масса носителей. Природа остальных частот оставалась неясной в течение ряда лет, прежде всего из-за малых величин соответствующих амплитуд и связанных с этим экспериментальных проблем.

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

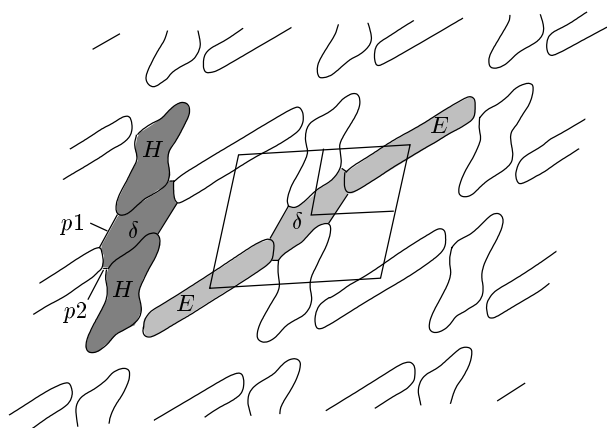


Рис. 1. Поверхность Ферми и первая зона Бриллюэна в проводящей плоскости органического квазидвумерного металла  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$

Несколько лет назад были синтезированы высококачественные монокристаллы (C1,C1) и для их исследования использованы квазиимпульсные поля до 35 Тл. Полученные результаты [5, 6] не только включали в себя сообщенные ранее частоты, но и увеличили спектр частот осцилляций Шубникова–де Гааза до пятнадцати при некоторых направлениях поля. Анализ полученных результатов позволил авторам работы [6] сделать следующие выводы.

1) В магнитных полях порядка 10 Тл становятся возможными магнитопробные (МВ) переходы  $p1$  и  $p2$  между дырочными и электронными участками FS (см. рис. 1), и это приводит к формированию двумерной сетки МВ-орбит.

2) Кроме частоты  $F_A$ , соответствующей двум исходным замкнутым орбитам  $E$  и  $H$ , для всех иных частот одновременно сосуществуют как замкнутые МВ-орбиты, так и открытые, связанные МВ-переходами и соответствующие эффекту квантовой интерференции [7].

3) Только две из частот, обнаруженных в эксперименте,  $F_A(0) = 242$  Тл и  $F_{MB}(0) = 633$  Тл, отвечают движению носителей по замкнутым орбитам ( $F_{MB}$  соответствует двум равным по площади замкнутым орбитам  $H + \delta + H$  и  $E + \delta + E$  (см. рис. 1), включающим по четыре МВ-перехода). Во всяком случае, в осцилляциях  $F_{MB}$  такое движение существенно преобладает.

4) Остальные частоты разделены на две группы. К первой группе относятся частоты и, в частности, частота, соответствующая 100% площади первой зоны Бриллюэна, преобладающей причиной для которых является эффект квантовой интерференции.

Частоты второй группы и, в частности, частота, соответствующая площади  $\delta$ , заключенной между исходными листами FS, не нашли до сих пор приемлемого объяснения. В принципе, они могут быть описаны в рамках как осциллирующего [8], так и фиксированного [9] электрохимического потенциала, однако экспериментального подтверждения пока не имеет ни одна из таких возможностей.

В настоящей работе предлагаются результаты детального исследования осцилляций де Гааза–ван Альфена в (C1,C1), поддерживающие основные версии [5, 6].

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

В качестве образцов для измерений были использованы высококачественные монокристаллы (C1,C1) с массой, достигавшей 110 мкг. Наблюдение осцилляций де Гааза–ван Альфена проводилось по изменению вращающего момента емкостного датчика [10]. Магнитное поле величиной до 14 Тл создавалось сверхпроводящим магнитом. Интервал использованных температур составил (0.45–1.3) К.

В интервале углов  $\theta = (-21-80)^\circ$  наблюдались осцилляции де Гааза–ван Альфена. Их частоты связаны с углом  $\theta$  стандартным соотношением:  $F_i(\theta) = F_i(0)/\cos\theta$ . При любом направлении магнитного поля количество наблюдаемых частот не превы-

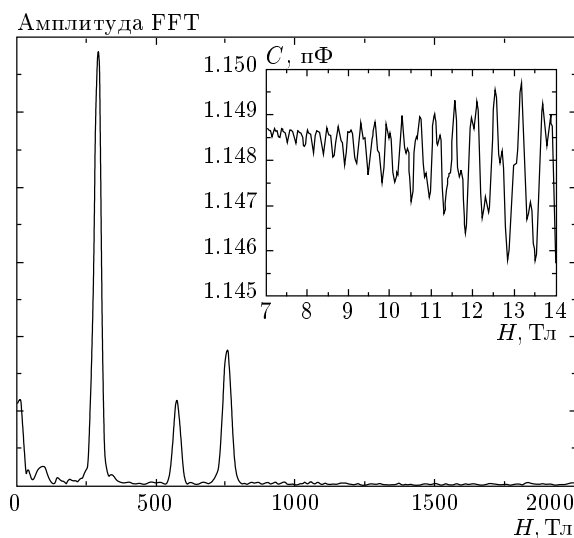


Рис. 2. Быстрое фурье-преобразование (FFT) осцилляций де Гааза–ван Альфена в органическом металле  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$ , изображенных на вставке к данному рисунку. Температура  $T = 0.45$  К, полярный угол  $\theta = 32.5^\circ$

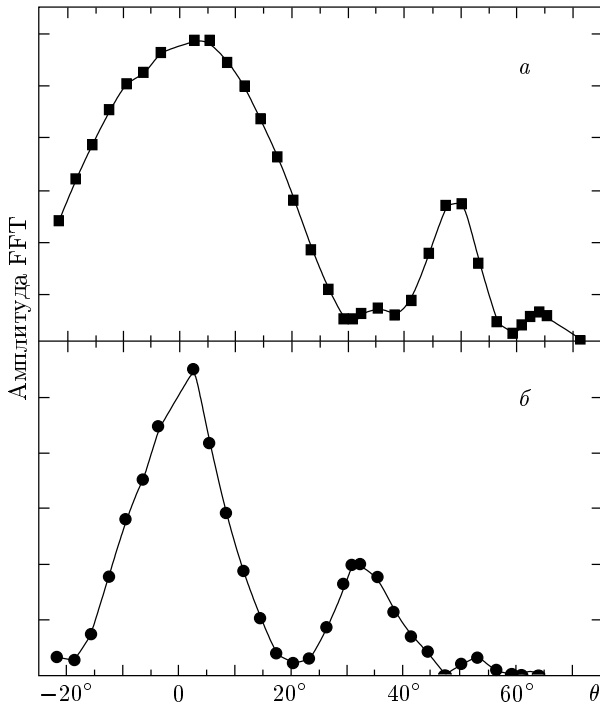


Рис. 3. Зависимости амплитуды осцилляций де Гааза–ван Альфена от полярного угла  $\theta$ ;  $a$  — осцилляции с частотой  $F_A$ ,  $b$  — осцилляции с частотой  $F_{MB}$ ,  $T = 0.45$  К

шало трех (см. рис. 2):  $F_A(0) \approx 240$  Тл,  $2F_A$  — вторая гармоника основной частоты и  $F_{MB}(0) = 630$  Тл. Основная частота  $F_A$  связана с движением зарядов по классическим орбитам  $E$  и  $H$ . Расчет эффективной массы, относящейся к основной частоте, показал, что обеим орбитам отвечает одинаковая по величине масса, составляющая в проводящей плоскости величину  $m_A = (1.18 \pm 0.05)m_0$ , где  $m_0$  — масса свободного электрона. Частота  $F_{MB}$  обусловлена движением носителей по двум замкнутым МВ-орбитам с равными площадями ( $H + \delta + H$  и  $E + \delta + E$  (см. рис. 1)). Эффективные массы, связанные с этими орбитами, также равны и составляют величину  $m_{MB} = (2.28 \pm 0.05)m_0$  в проводящей плоскости. В соответствии с представлениями эффективной массы в [11] можно ожидать, что масса, связанная с МВ-орбитами, будет удвоенной массой  $m_A$ , соответствующей основным замкнутым орбитам. Можно видеть, что в пределах ошибок такое соотношение приемлемо выполняется:  $2m_A = 2.36m_0 \sim 2.28m_0 = m_{MB}$ .

На рис. 3 представлены угловые зависимости амплитуды осцилляций де Гааза–ван Альфена. Рисунок 3а соответствует осцилляциям с частотой  $F_A$ ,

рис. 3б — с частотой  $F_{MB}$ . Обе зависимости содержат минимумы амплитуды: кривая  $a$  имеет два минимума при углах  $30.1^\circ$  и  $59.5^\circ$ , кривая  $b$  имеет три минимума при углах  $20.6^\circ$ ,  $47.4^\circ$  и  $60.7^\circ$ . Эти минимумы носят название спиновых нулей и вызваны расщеплением уровней Ландау в магнитном поле [12]. Условие существования таких нулей:

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

где  $p$  — номер гармоники,  $g$  —  $g$ -фактор. Наличие двух или более последовательных спиновых нулей и предположение, что эффективная масса зависит от угла по обычному для цилиндрической FS закону,  $m(\theta) = m(0) / \cos \theta$ , позволяет однозначно вычислить расщепляющий фактор:

$$S = g m(0) / 2 m_0 = ((2n + 1) \cos \theta_n) / 2,$$

где  $\theta_n$  — положение спиновых нулей и  $n = 0, 1, 2, 3, \dots$ . Для осцилляций с частотой  $F_A$  расщепляющий фактор составляет величину  $S_A = 1.29 \pm 0.04$ , для частоты  $F_{MB} - S_{MB} = (2.36 \pm 0.04)$ . Учитывая, что отношение эффективных масс  $m_A / m_{MB} = 0.52$  приблизительно равно отношению расщепляющих факторов,  $S_A / S_{MB} = 0.54$ , можно полагать, что расщепление уровней Ландау рассмотренных замкнутых орбит идет с одинаковым  $g$ -фактором. Такой результат вполне ожидаем, если учитывать способ формирования этих орбит [2]. Незначительное отличие величин расщепляющих факторов от соответствующих приведенных масс (1.29 и 1.18, 2.36 и 2.28) может косвенным образом свидетельствовать в пользу незначительного вклада многочастичных взаимодействий в (Cl, Cl), что отмечалось ранее в некоторых органических металлах [13].

Следует остановиться еще на одном факте. Эффективная масса, соответствующая частоте  $F_A$ ,  $m_A = 1.18m_0$ , полученная из осцилляций де Гааза–ван Альфена, хорошо согласуется с аналогичной массой из магниторезистивных измерений:  $m_A = 1.17m_0$  [6]. В то же время эффективные массы для МВ-орбит заметно расходятся:  $m_{MB} = 2.28m_0$  для осцилляций де Гааза–ван Альфена и  $m_{MB} = 1.95m_0$  для осцилляций Шубникова–де Гааза [6]. Такое расхождение может быть вызвано тем обстоятельством, что, согласно [6], помимо МВ-частоты  $F_{MB}$ , существует интерферометр с частотой, численно равной  $F_{MB}$ , но с существенно меньшей массой. В осцилляции де Гааза–ван Альфена такой интерферометр вклада

не дает, но в резистивные осцилляции его вклад может быть заметным и приводить к заниженной оценке величины эффективной массы.

Остается проблемой отсутствие в наблюдаемом спектре осцилляций де Гааза–ван Альфена других частот, для которых существуют замкнутые МВ-орбиты. Некоторую ясность могут дать совместные наблюдения осцилляций магнитосопротивления и намагниченности в более сильных магнитных полях.

### 3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Только две частоты (исключая гармоники) осцилляций де Гааза–ван Альфена наблюдаются в органическом металле  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$ , по крайней мере, в полях до 14 Тл. Одна из них соответствует двум классическим замкнутым орбитам, охватывающим равные площади, другая — двум магнитопробойным замкнутым орбитам, также охватывающим одинаковые площади. Поведение амплитуды этих осцилляций и соответствующих им эффективных масс находится в разумном согласии со способом построения поверхности Ферми в  $(\text{ET})_8[\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2]$ , как результата гибридизации орбиталей, образующих зону проводимости. Полученные результаты находятся в хорошем согласии с результатами исследования осцилляций Шубникова–де Гааза в импульсных и стационарных полях. Причина отсутствия иных частот, связанных с разрешенными замкнутыми магнитопробойными орбитами, не ясна и требует дополнительных исследований.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 03-02-16606) и в рамках Государственного контракта № 40.020.1.1.1166.

### ЛИТЕРАТУРА

1. R. N. Lyubovskaya, O. N. Dyachenko, V. V. Gritsenko, Sh. G. Mkoyan, L. O. Atovmyan, R. B. Lyubovskii, V. N. Laukhin, A. V. Zvarykina, and A. G. Khomenko, *Synth. Metals* **41**, 1907 (1991).
2. L. F. Viero and E. Cannadell, *J. Phys. I France* **4**, 939 (1994).
3. R. B. Lyubovskii, S. I. Pesotskii, A. Gilevski, and R. N. Lyubovskaya, *J. Phys. I France* **6**, 1809 (1995).
4. Р. Б. Любовский, С. И. Песоцкий, А. Гилевский, Р. Н. Любовская, *ЖЭТФ* **107**, 1698 (1995).
5. R. B. Lyubovskii, S. I. Pesotskii, C. Proust, A. Audouard, L. Brossard, V. I. Nizhankovskii, and R. N. Lyubovskaya, *Synth. Metals* **113**, 227 (2000).
6. C. Proust, A. Audouard, L. Brossard, S. I. Pesotskii, R. B. Lyubovskii, and R. N. Lyubovskaya, *Phys. Rev. B* **65**, 155106 (2002).
7. R. W. Stark and C. B. Friedberg, *J. Low Temp. Phys.* **1**, 111 (1974).
8. J. Y. Fortin and T. Ziman, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3117 (1998).
9. V. M. Gvozdkov, Yu. V. Pershin, E. Steep, A. G. M. Jansen, and P. Wyder, *Phys. Rev. B* **65**, 165102 (2002).
10. P. Christ, W. Biberacher, H. Muller, and K. Andres, *Sol. St. Comm.* **91**, 451 (1994).
11. L. M. Falicov and H. Stachowiak, *Phys. Rev.* 147505 (1966).
12. Д. Шенберг, *Магнитные осцилляции в металлах*, Мир, Москва (1986).
13. С. И. Песоцкий, Р. Б. Любовский, В. Биберахер, М. В. Карцовник, В. И. Нижанковский, Н. Д. Куц, Х. Кобаяши, А. Кобаяши, *ЖЭТФ* **121**, 504 (2002).