

ВЛИЯНИЕ КАЧЕСТВА КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ ОБРАЗЦОВ НА ХАРАКТЕР МЕЖСЛОЕВОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПЕРЕНОСА В КВАЗИДВУМЕРНОМ ОРГАНИЧЕСКОМ МЕТАЛЛЕ (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂

Р. Б. Любовский^{a,b}, С. И. Песоцкий^{a,b}, Е. И. Жилева^a,
С. А. Торунова^a, А. М. Флакина^a, Р. Н. Любовская^a*

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

^b *International Laboratory of High Magnetic Fields and Low Temperatures
52-421, Wrocław, Poland*

Поступила в редакцию 3 сентября 2012 г.

Изучено поведение магнитосопротивления при различных направлениях магнитного поля в двух, различающихся по качеству образцах квазидвумерного органического металла (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂. Показано, что межслоевой перенос в более качественном образце близок к когерентному режиму. В то же время в менее качественном образце ему в большей степени соответствует слабо некогерентный перенос.

DOI: 10.7868/S0044451013060165

1. ВВЕДЕНИЕ

Абсолютное большинство из известных на сегодняшний день квазидвумерных органических металлов, синтезированных на основе ET (бис(этилендитио)тетратиофульвален) и его производных, демонстрирует металлическую зависимость сопротивления от температуры как вдоль проводящих слоев, так и в направлении, перпендикулярном к ним, по крайней мере, в области сравнительно низких температур [1]. Металлическое низкотемпературное состояние в проводящих слоях этих соединений предсказано теоретическими расчетами и подтверждено экспериментально наблюдением в части из них квантовых и полуклассических осцилляций магнитосопротивления. В то же время поведение неосциллирующей части магнитосопротивления в зависимости от направления магнитного поля может радикально различаться в различных металлах даже со сходной электронной структурой. Теоретическое и экспериментальное исследование таких различий показало, что в значительной степени они связаны с характером

переноса электронов между проводящими слоями [1–5]. При этом были выделены три режима такого переноса, различающихся соотношением между временем межслоевого перехода, определяемым как $\tau_h = \hbar/t$, где t — энергия межслоевого перехода (интеграл перехода), и временем рассеяния электрона внутри проводящей плоскости τ_c .

1) $\hbar/t \ll \tau_c$. При первом, когерентном режиме межслоевого переноса, электрон успевает пройти, не рассеиваясь в слое, через несколько проводящих слоев органического металла. Поверхность Ферми в этом случае представляет собой гофрированный цилиндр (или группу цилиндров) с осью, перпендикулярной проводящим слоям. Температурная зависимость межслоевого сопротивления имеет при этом металлический характер.

2) $\hbar/t \sim \tau_c$. При втором режиме, так называемом слабо некогерентном переносе, импульс электрона сохраняется только при переходе на соседний слой. В такой ситуации имеем поверхность Ферми в форме гладкого цилиндра. Температурная зависимость сопротивления без поля остается металлической.

3) $\hbar/t \gg \tau_c$. Третий режим, некогерентного переноса, предполагает прыжковый характер межслоевых переходов без сохранения импульса и, в основ-

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

ном, неметаллический температурный ход сопротивления. Недавно была представлена новая версия описания межслоевого переноса, в которой отсутствует слабо некогерентный перенос [6]. При этом когерентный и некогерентный режимы сосуществуют в рамках одной электронной системы, формируя два параллельных канала переноса, и различия в поведении систем определяются различием вкладов только этих каналов. В этой же работе показано, что при определенных условиях проводимость в некогерентном канале, связанная, главным образом, с переносом по резонансным примесям [7], может возрастать с понижением температуры так же, как и в когерентном канале.

Приведенные выше соотношения между временем релаксации в слое и временем межслоевого перехода указывают на прямую зависимость режима межслоевого переноса от времени рассеяния и, как следствие, от качества исследуемого образца. В работах [4, 5] изучались результаты такой зависимости в квазидвумерном металле α -(ET)₂KHg(SCN)₄. Было показано, что разница в поведении магнитосопротивления в чистых и грязных образцах может быть хорошо объяснена разницей режимов межслоевого электронного переноса. Настоящая работа представляет собой продолжение таких исследований в рамках хорошо известного квазидвумерного органического металла (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂. Электронная система этого объекта соответствует компенсированному металлу. Поверхность Ферми состоит из двух цилиндров, дырочного и электронного, с осями, перпендикулярными проводящим плоскостям и равными площадями сечения в этих плоскостях, приблизительно составляющими 13 % площади первой зоны Бриллюэна [8, 9]. Температурная зависимость сопротивления в таких образцах независимо от их качества имеет металлический характер вплоть до самых низких температур как вдоль проводящих слоев, так и перпендикулярно к ним [8, 9]. До сих пор особый интерес в изучении (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂ вызывало исследование квантовых осцилляций, обусловленных магнитным пробоем между электронной и дырочной зонами [10, 11]. Особенности расположения соответствующих поверхностей Ферми в импульсном пространстве способствуют формированию сложной двумерной сетки магнитопробойных орбит, обеспечивающей наблюдение в полях $H > 15$ Тл широкого спектра квантовых осцилляций, связанных как с орбитальным движением электронов, так и с интерференционными процессами. В настоящей работе приводятся исследования и анализ, главным образом, неосциллирующей части маг-

нитосопротивления в (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂ и делается заключение о характере межслоевого переноса в этом соединении.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В работе были исследованы два монокристаллических образца (ET)₈Hg₄Cl₁₂(C₆H₅Cl)₂, имевших форму неправильного параллелепипеда с усредненными характерными размерами $1.5 \times 0.5 \times 0.05$ мм³. Проводящие слои, состоящие из молекул ET, чередовались в направлении наименьшего размера. Сопротивление измерялось стандартным четырехконтактным методом на переменном токе с частотой 137 Гц. Измерительный ток всегда направлялся перпендикулярно проводящим слоям. Магнитное поле до 15 Тл создавалось сверхпроводящим соленоидом. Область рабочих температур при измерении магнитосопротивления составляла (1.5–4.2) К. Для изменения ориентации образца в магнитном поле использовалась двухповоротная вставка, которая позволяла вращать образец в магнитном поле в полярной (перпендикулярной проводящим слоям) и азимутальной (параллельной проводящим слоям) плоскостях.

На рис. 1 представлены примеры угловых зависимостей магнитосопротивления в образце № 1 в по-

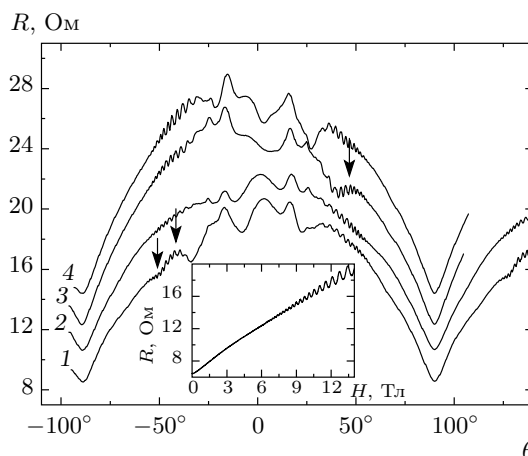


Рис. 1. Угловые зависимости магнитосопротивления для образца № 1 в полярных плоскостях при различных азимутальных углах φ : 1 — $\varphi = 0^\circ$, 2 — $\varphi = 44^\circ$, 3 — $\varphi = 92^\circ$, 4 — $\varphi = 132^\circ$. На вставке: полевая зависимость магнитосопротивления для образца № 1 при направлении поля, перпендикулярном проводящим слоям; $H = 14$ Тл, $T = 1.5$ К

лярных плоскостях при различных азимутальных углах; θ — угол между направлением поля и нормалью к проводящей плоскости. Стартовый азимутальный угол φ выбирался произвольно. В процессе эксперимента этот угол менялся в интервале $(0-180)^\circ$ с шагом 4° . Кривая 1 соответствует координатным осям, остальные смещены друг относительно друга на 2 Ом для наглядности результата. На приведенных кривых присутствуют осцилляции, связанные с эффектом Шубникова–де Гааза, и слабо выраженные полуклассические угловые осцилляции магнитосопротивления [1], часть из которых отмечена стрелками. Проведенные измерения показывают следующее:

1) минимум магнитосопротивления в полярных плоскостях совпадает с направлением поля, параллельным проводящим слоям, а максимум — с перпендикулярным;

2) поведение угловой зависимости неосциллирующей части магнитосопротивления в полярной плоскости почти не зависит от выбора азимутальной плоскости; при этом величина анизотропии магнитосопротивления в поле 14 Тл составляет $R_{max}/R_{min} \approx 2.5$;

3) сравнивая эту величину с величиной магнитосопротивления на полевой зависимости (вставка к рис. 1) в поле, перпендикулярном проводящим слоям, $R(14 \text{ Тл})/R(0) \approx 3$, а также принимая во внимание близкий к косинусоидальному характер поведения угловых зависимостей, можно полагать, что угловая зависимость магнитосопротивления в полярной плоскости определяется, в основном, проекцией магнитного поля на нормаль к проводящим слоям.

Учитывая металлическое поведение температурной зависимости межслоевого сопротивления в $(\text{ET})_8\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2$, можно утверждать, что такие результаты свойственны системе со слабо некогерентным переносом [4, 5] или с преобладающим вкладом некогерентного канала, если использовать представление [6]. В принципе, сходное поведение угловых зависимостей неосциллирующей части магнитосопротивления наблюдалось в квазидвумерном металле $(\text{ET})_4\text{HgBr}_4(\text{C}_6\text{H}_4\text{Cl}_2)$, демонстрировавшим строго некогерентный межслоевой перенос [12]. Однако при условии наблюдения в исследованном материале угловых осцилляций магнитосопротивления, требующих сохранения импульса при переходе хотя бы на соседний слой, представляется разумным отнести межслоевой перенос в нем именно к слабо некогерентному режиму с соотношением $\hbar/t \sim \tau_c$. В пользу этого выбора указывает и монотонное поведение полевой

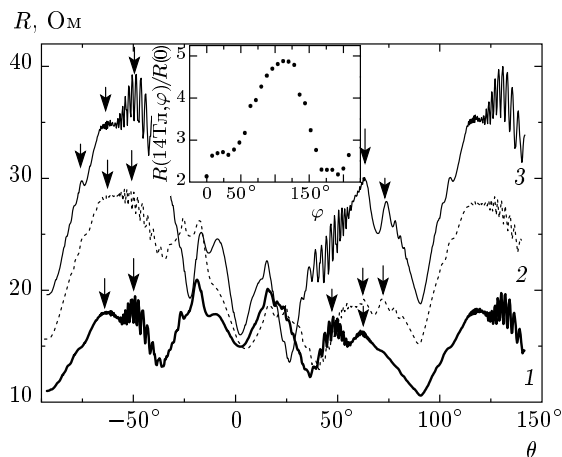


Рис. 2. Угловые зависимости магнитосопротивления для образца № 2 в полярных плоскостях при различных азимутальных углах φ : 1 — $\varphi = 32^\circ$, 2 — $\varphi = 144^\circ$, 3 — $\varphi = 96^\circ$. На вставке: угловая зависимость магнитосопротивления в азимутальной плоскости; $H = 14 \text{ Тл}$, $T = 1.5 \text{ К}$

зависимости магнитосопротивления без заметных признаков насыщения, по крайней мере в полях до 14 Тл [13].

На рис. 2 представлены примеры угловых зависимостей магнитосопротивления в образце № 2 в полярных плоскостях при различных азимутальных углах. Как и в случае образца № 1, начальный азимутальный угол произволен, а шаг по азимуту составлял 8° . Все кривые на рис. 2 соответствуют координатным осям. Так же как и в образце № 1, полярные угловые зависимости содержат осцилляции, вызванные эффектом Шубникова–де Гааза. В то же время полуклассические угловые осцилляции, часть которых обозначена стрелками, в образце № 2 проявляются значительно сильнее. В отличие от образца № 1, полярные угловые зависимости магнитосопротивления в образце № 2 показывают сильную зависимость от азимутального угла, в основе которой лежит азимутальная анизотропия магнитосопротивления в поле, параллельном проводящим слоям, представленная на вставке к рис. 2. Подобное поведение магнитосопротивления в азимутальной плоскости и существенный вклад угловых осцилляций соответствуют режиму когерентного межслоевого переноса электронов [1, 4, 5]. Однако следует отметить, что на полярных угловых зависимостях в образце № 2 не наблюдался слабый пик магнитосопротивления при направлениях поля, близких параллельному проводящим слоям, так называемый пик когерентности [1, 4, 5]. Ширина этого пика определяет

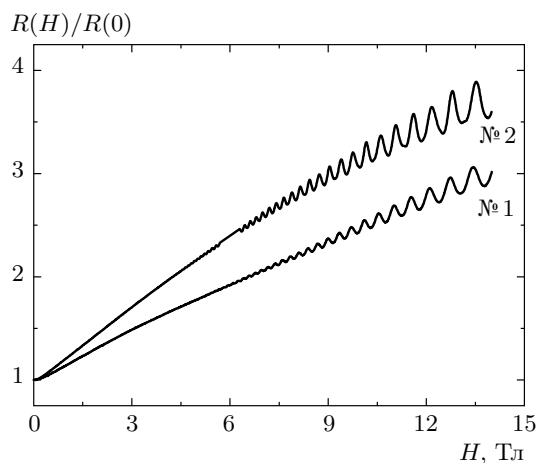


Рис. 3. Полевые зависимости магнитосопротивления для образцов № 1 и № 2 в поле, перпендикулярном проводящим слоям; $T = 1.5$ К

ся геометрическими размерами гофрированного цилиндра и на практике она обычно меньше, чем один градус [1]. Но в проведенных измерениях шаг по полярному углу не мог быть сделан меньше, чем 0.33° , и вполне вероятно, что наблюдение указанного пика находится за пределами точности эксперимента. В то же время минимумы магнитосопротивления во всех полярных плоскостях, как и в образце № 1, совпадают с направлением поля, параллельным проводящим слоям. При этом поведение полевой зависимости неосциллирующей части магнитосопротивления в образце № 2 (рис. 3) качественно и количественно не слишком отличается от аналогичной зависимости в образце № 1. Таким образом, представляется, что межслоевой перенос в образце № 2 лучше описывать в рамках двухканального механизма [6] с преобладающим когерентным каналом, которому отвечает соотношение времен $\hbar/t < \tau_c$.

Теперь может быть установлено соотношение между временами релаксации в двух исследованных образцах. Поскольку исследовались два образца одинакового состава и с одинаковой кристаллической структурой, интеграл перехода t у них должен быть одинаковый. Следовательно,

$$\tau_c(\text{№ 1}) < \tau_c(\text{№ 2}). \tag{1}$$

Таким образом, образец № 1 можно считать условно «грязным», а образец № 2 — условно «чистым». Подтверждение такому разделению получено при анализе квантовых осцилляций Шубникова–де Гааза, пример которых представлен на рис. 3. Их фундаментальная частота составляет при направлении по-

ля близком к перпендикулярному проводящей плоскости 240 Тл, а соответствующая циклотронная масса $1.25m_0$, где m_0 — масса свободного электрона, что хорошо согласуется с полученными ранее результатами [9–11]. При этом величина амплитуды квантовых осцилляций в образце № 2 заметно превышает аналогичную величину в образце № 1, что косвенно указывает на более высокое качество второго образца. Одновременно с этим, температура Дингла, непосредственно связанная со временем релаксации и, соответственно, с качеством кристаллических образцов, в них существенно различна: $T_D(\text{№ 1}) \approx 0.6$ К, $T_D(\text{№ 2}) \approx 0.3$ К, что прямо свидетельствует в пользу соотношения (1). Следует заметить, что оценка температуры Дингла проводилась в полях до 11 Тл с целью уменьшения вклада в амплитуду осцилляций магнитного пробоя [11] и во избежание изменения температуры Дингла, наблюдающегося в квазидвумерных металлах вследствие действия сильного магнитного поля [13–15].

3. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследованы угловые зависимости магнитосопротивления и осцилляции Шубникова–де Гааза в двух монокристаллических образцах органического квазидвумерного металла $(\text{ET})_8\text{Hg}_4\text{Cl}_{12}(\text{C}_6\text{H}_5\text{Cl})_2$. Установлено, что 1) на основании анализа квантовых осцилляций образцы могут быть однозначно разделены по своему качеству; 2) в менее качественном образце межслоевой перенос описывается в рамках слабо некогерентного переноса; 3) в более качественном образце межслоевое движение электронов близко к когерентному режиму.

Авторы признательны М. В. Карцовнику за полезные обсуждения. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 11-03-01039_а, 13-02-00694_а).

ЛИТЕРАТУРА

1. M. V. Kartsovnik, in *The Physics of Organic Conductors and Superconductors*, ed. by A. Lebed, Springer, Berlin–Heidelberg (2008), p. 185.
2. R. McKenzie and P. Moses, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4492 (1998).
3. P. Moses and R. H. McKenzie, *Phys. Rev. B* **60**, 7998 (1999).

4. M. Kartsovnik, S. Simonov, D. Andres et al., *J. Phys. IV* **131**, 265 (2005).
5. M. V. Kartsovnik, D. Andres, S. V. Simonov et al., *Phys. Rev. Lett.* **96**, 166601 (2006).
6. M. V. Kartsovnik, P. D. Grigoriev, W. Biberacher, and N. D. Kushch, *Phys. Rev. B* **79**, 165120 (2009).
7. D. B. Gutman and D. L. Maslov, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 196602 (2007).
8. В. В. Гриценко, О. А. Дьяченко, Г. В. Шилов и др., *Изв. АН СССР, сер. хим.* **4**, 894 (1992).
9. Р. Б. Любовский, С. И. Песоцкий, Р. Н. Любовская, А. Гилевский, *ЖЭТФ* **107**, 1698 (1995).
10. R. B. Lyubovskii, S. I. Pesotskii, C. Proust et al., *Synth. Met.* **113**, 227 (2000).
11. C. Proust, A. Audouard, L. Brossard et al., *Phys. Rev. B* **65**, 155106 (2002).
12. Р. Б. Любовский, С. И. Песоцкий, О. А. Богданова и др., *Изв. РАН, сер. хим.* **7**, 1340 (2011).
13. P. D. Grigoriev, *Phys. Rev. B* **83**, 245129 (2011).
14. P. D. Grigoriev, *JETP Lett.* **94**, 47 (2011).
15. P. D. Grigoriev, M. V. Kartsovnik, and W. Biberacher, *Phys. Rev. B* **86**, 165125 (2012).