Физика низких температур, 2001, т. 27, № 12, с. 1382–1385

О магнитосопротивлении органических комплексов $(BEDT\text{–}TTF)_2MHg(SCN)_4$

В. Г. Песчанский[1,2], Раид Аталла[3]

[1] *Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина НАН Украины пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина*
E-mail: vpeschansky@ilt.kharkov.ua

[2] *Харьковский национальный университет им. В. Н. Каразина пл. Свободы, 4, г. Харьков, 61077, Украина*

[3] *Physics Department of Bir-Zeit University, P. O. Box 28, Bir-Zeit, West Bank, Israel*

Статья поступила в редакцию 26 июня 2001 г.

Согласно зонным расчетам электронного энергетического спектра органических комплексов $(BEDT\text{–}TTF)_2MHg(SCN)_4$, где M — один из металлов группы K, Rb, Tl, помимо основной группы носителей заряда с квазидвумерным спектром должна быть и группа носителей заряда с квазиодномерным спектром [R. Rossenau et al., *J. Phys (Paris)* **6**, 1527 (1996)]. Рассмотрены гальваномагнитные явления в квазидвумерных проводниках с многолистной поверхностью Ферми. Показана возможность определения степени квазиодномерности дополнительного листа поверхности Ферми в виде гофрированных плоскостей.

Згідно зонних розрахунків електронного енергетичного спектра органічних комплексів $(BEDT\text{–}TTF)_2MHg(SCN)_4$, де M — один з металів групи K, Rb, Tl, окрім основної групи носіїв заряду з квазідвовимірним спектром повинна бути також група носіїв заряду з квазіодновимірним спектром [R. Rossenau et al., *J. Phys (Paris)* **6**, 1527 (1996)]. Розглянуто гальваномагнітні явища в квазідвовимірних провідниках з багатолистовою поверхнею Фермі. Показано можливість визначення ступеня квазіодновимірності додаткового листа поверхні Фермі у виді гофрованих площин.

PACS: 81.40.Rs, 75.70.Cn

Комплексы переноса заряда органического происхождения на основе тетратиафульвалена представляют собой слоистые структуры с металлическим типом электропроводности с резкой анизотропией. Электропроводность поперек слоев на несколько порядков меньше электропроводности вдоль слоев, и есть все основания полагать, что электронный энергетический спектр этих органических комплексов является квазидвумерным.

Энергия носителей заряда в квазидвумерных проводниках

$$\varepsilon(\mathbf{p}) = \sum_{n=0}^{\infty} \varepsilon_n (p_x , p_y) \cos \left[\frac{anp_z}{\hbar} + \alpha_n (p_x , p_y) \right] , \tag{1}$$

$$\alpha_n(p_x , p_y) = - \alpha_n (-p_x , -p_y)$$

слабо зависит от проекции импульса $p_z = \mathbf{pn}$ на нормаль к слоям $\mathbf{n}$, а поверхность Ферми $\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_F$ является открытой со слабой гофрировкой вдоль оси p_z . Здесь a — расстояние между слоями; $\hbar$ — постоянная Планка, а функции $\varepsilon_n(p_x , p_y)$ убывают с ростом номера n, так что максимальное значение функции $[\varepsilon(\mathbf{p}) - \varepsilon_0(p_x , p_y)]$, равное на поверхности Ферми $\eta\varepsilon_F$, много меньше энергии Ферми ε_F .

После обнаружения эффекта Шубникова—де Гааза в достаточно совершенных монокристаллических образцах органических проводников $(BEDT\text{–}TTF)_2JBr_2$ и $(BEDT\text{–}TTF)_2J_3$ [1,2] при низких температурах в сильных магнитных полях $\mathbf{H}$ порядка 10–20 Тл стало ясно, что длина свободного пробега носителей заряда l в слоистых проводниках органического происхождения может значительно превышать радиус кривизны r_h

траектории электронов проводимости в реально достижимом ныне магнитном поле.

Квантовые осцилляционные эффекты [3,4] в таких образцах весьма чувствительны к виду электронного энергетического спектра, и их экспериментальное исследование позволяет решить обратную задачу определения по экспериментальным данным экстремальных замкнутых сечений поверхности Ферми плоскостью $p_H = \mathbf{pH}/H = \text{const}$ [5,6]. По сути, все кинетические характеристики вырожденных проводников в сильном магнитном поле ($r_H << l$) чувствительны к виду энергетического спектра носителей заряда, а их экспериментальное исследование позволяет полностью восстановить поверхность Ферми — основную характеристику спектра электронов проводимости. Наличие открытых сечений поверхности Ферми плоскостью $p_H = \text{const}$ приводит к резкой анизотропии магнитосопротивления в сильном магнитном поле. Исследование этой анизотропии позволяет полностью восстановить топологию поверхности Ферми [7–9].

В квазидвумерных проводниках в формирование квантовых осцилляционных эффектов вовлечено значительное число носителей заряда с энергией Ферми. При низких температурах, когда температурное размытие фермиевской функции распределения носителей заряда много меньше расстояния между квантованными уровнями их энергии, а частота диссипативных столкновений электрона проводимости $1/\tau$ значительно превышает частоту его обращения в магнитном поле $\Omega = eH/m^*c$, амплитуда осцилляций магнитосопротивления оказывается сравнимой с монотонно меняющейся с H частью магнитосопротивления. Здесь e — заряд электрона; m^* — его циклотронная эффективная масса; c — скорость света.

Яркое проявление эффекта Шубникова–де Гааза в магнитосопротивлении большого семейства ион-радикальных солей на основе тетратиафульвалена в магнитном поле $\mathbf{H} = (0, H\sin\theta, H\cos\theta)$ в широком интервале углов θ между векторами $\mathbf{H}$ и $\mathbf{n}$ (см. обзорные статьи [10,11] и цитированную в них литературу) свидетельствует о том, что по крайней мере один лист поверхности Ферми представляет собой слабогофрированный цилиндр, плоские сечения которого $p_H = \text{const}$ при θ, отличном от $\pi/2$, являются замкнутыми.

Нетрудно показать, что вклад группы носителей заряда, состояния которых принадлежат листу поверхности Ферми в виде слабогофрированного цилиндра, в компоненты тензора электропроводности σ_{ik}, связывающего в приближении закона Ома плотность тока $\mathbf{j}$ с электрическим полем E_i, при $\gamma = 1/\Omega\tau << 1$ и $\eta \operatorname{tg}\theta << 1$ имеет вид

$$\sigma_{ik} = \begin{pmatrix} \gamma^2 a_{xx} & \gamma a_{xy} & \gamma\eta^2 a_{xz} \\ \gamma a_{yx} & \gamma^2 a_{yy} + \sigma_{zz}\operatorname{tg}^2\theta & \gamma\eta^2 a_{yz} + \sigma_{zz}\operatorname{tg}\theta \\ \gamma\eta^2 a_{zx} & \gamma\eta^2 a_{zy} + \sigma_{zz}\operatorname{tg}\theta & \sigma_{zz} \end{pmatrix}, \tag{2}$$

где компоненты матрицы a_{ik} по порядку величины совпадают с электропроводностью вдоль слоев σ_0 в отсутствие магнитного поля.

Значительное сопротивление электрическому току, протекающему поперек слоев, связано с медленным дрейфом носителей заряда вдоль нормали к слоям со скоростью

$$v_z = -\sum_{n=1}^{\infty} \frac{an}{\hbar}\,\varepsilon_n(p_x, p_y)\sin\left[\frac{anp_z}{\hbar} + \alpha_n(p_x, p_y)\right], \tag{3}$$

так что σ_{zz} по крайней мере пропорциональна η^2.

Модель поверхности Ферми в виде слабогофрированного цилиндра достаточно хорошо согласуется с результатами экспериментального исследования магнитосопротивления большого семейства солей тетратиафульвалена. Однако поверхность Ферми слоистых проводников может быть и многолистной. Помимо гофрированного цилиндра возможны также листы в виде гофрированных плоскостей со слабой гофрировкой вдоль оси p_z. Например, поверхность Ферми солей $(BEDT\text{–}TTF)_2MHg(SCN)_4$, где M — один из металлов группы K, Rb, Tl, согласно зонным расчетам электронного энергетического спектра [12], помимо слабогофрированного цилиндра содержит два квазиодномерных листа. Чтобы выяснить в какой мере согласуются эти расчеты с экспериментально наблюдаемыми зависимостями магнитосопротивления от величины сильного магнитного поля $\mathbf{H} = (0, H\sin\theta, H\cos\theta)$, рассмотрим гальваномагнитные явления в квазидвумерных проводниках, у которых поверхность Ферми состоит из слабогофрированного цилиндра и двух слабогофрированных плоскостей, а нормаль к соприкасающейся с ними плоскости отклонена от оси p_x на угол φ. Мы не будем конкретизировать форму этих плоскостей, полагая произвольной их гофрировку в плоскости $p_x p_y$, а слабость гофрировки вдоль оси p_z будем считать такой же, как и листа поверхности Ферми в виде гофрированного цилиндра.

В случае нескольких групп носителей заряда все они вносят вклад в электрический ток, так что суммарная электропроводность представляет собой сумму электропроводности каждой группы электронов проводимости

$$\sigma_{ik} = \sigma_{ik}^{(1)} + \sigma_{ik}^{(2)} , \qquad (4)$$

где $\sigma_{ik}^{(1)}$ — вклад в электропроводность носителей заряда, состояния которых принадлежат слабогофрированным плоским листам поверхности Ферми, а в $\sigma_{ik}^{(2)}$ вносят вклад электроны проводимости, принадлежащие слабогофрированному цилиндру.

Если открытые сечения гофрированного цилиндра возможны лишь при $\theta = \pi/2$, то при наличии дополнительного листа поверхности Ферми в виде гофрированной плоскости открытые электронные траектории $\varepsilon = \text{const}$ и $p_H = \mathbf{pH}/H = \text{const}$ появляются при любом направлении магнитного поля. Носители заряда, состояние которых принадлежит листам поверхности Ферми в виде гофрированных плоскостей, совершают дрейф в плоскости, ортогональной магнитному полю, и поперечное сопротивление, когда плотность тока $\mathbf{j}$ и магнитное поле $\mathbf{H}$ взаимно ортогональны, оказывается резко анизотропным. Так что обнаружение при $r_H << l$ роста сопротивления с квадратичной зависимостью от $\mathbf{H}$ при протекании тока, например, вдоль нормали к слоям при различных ориентациях магнитного поля, можно считать подтверждением существования листа поверхности Ферми в виде гофрированной плоскости.

Электроны проводимости по открытым траекториям в импульсном пространстве не могут сместиться на значительное расстояние вдоль нормали к плоскости $p_x \cos\varphi + p_y \sin\varphi = 0$. Усреднив уравнения движения заряда

$$\partial\mathbf{p}/\partial t = \frac{e}{c}\,(\mathbf{v}\times\mathbf{H}) \qquad (5)$$

по достаточно большому интервалу времени, значительно превышающему $T \cong r_H/v_F$, где v_F — характерная фермиевская скорость движения электронов в плоскости слоев, получим следующее соотношение:

$$(\overline{v}_x \cos\varphi + \overline{v}_y \sin\varphi)\cos\theta = \overline{v}_z \sin\varphi\sin\theta\ , \qquad (6)$$

задающее плоскость всевозможных дрейфов носителей заряда в реальном пространстве. В системе координат $(x_1\ , x_2\ , x_3)$ с единичными ортами

$$\mathbf{e}_1 = \frac{1}{[1-\cos^2\varphi\sin^2\theta]^{1/2}}\times$$

$$\times(\cos\varphi\cos\theta,\ \sin\varphi\cos\theta,\ -\sin\varphi\sin\theta)\ ,$$

$$\mathbf{e}_2 = (\mathbf{e}_3\times\mathbf{e}_1)\ ,\ \mathbf{e}_3 = \mathbf{H}/H \qquad (7)$$

матрица $\sigma_{ik}^{(1)}$ имеет при $\gamma << 1$ и $\eta << \cos\theta$ следующее асимптотическое выражение:

$$\sigma_{ik}^{(1)} = \begin{pmatrix} \gamma^2 a'_{11} & \gamma a'_{12} & \gamma a'_{13} \\ \gamma a'_{21} & a'_{22} & a'_{23} \\ \gamma a'_{31} & a'_{32} & a'_{33} \end{pmatrix}, \qquad (8)$$

где компоненты матрицы a'_{ik} в предельно сильном магнитном поле, когда γ стремится к нулю, не зависят от γ, а $(a'_{22}\,a'_{33} - a'_{23}\,a'_{32})$ в силу неравенства Шварца всегда больше нуля.

В этой же системе координат в матрице $\sigma_{ik}^{(2)}$ при θ, существенно отличном от $\pi/2$, отлична от нуля при стремлении γ к нулю лишь единственная компонента $\sigma_{33}^{(2)}$.

Несложные вычисления при $\eta << \cos\theta$ и $\gamma_0 << \cos\theta$ позволяют получить асимптотическое выражение для сопротивления вдоль и поперек слоев в виде

$$\rho_{xx} = \frac{\sigma_1\sin^2\varphi + \gamma_0^2\sigma_0}{\gamma_0^2\sigma_0(\sigma_0+\sigma_1)}\ ;$$

$$\rho_{yy} = \frac{\sigma_1\cos^2\varphi + \gamma_0^2\sigma_0}{\gamma_0^2\sigma_0(\sigma_0+\sigma_1)}\ ; \qquad (9)$$

$$\rho_{zz} = \frac{1}{\sigma_{zz}} + \frac{\sigma_1\cos^2\varphi\sin^2\theta}{\sigma_0\gamma_0^2}\ , \qquad (10)$$

где σ_1 — наибольшая величина вклада в электропроводность вдоль слоев при $H = 0$ носителей заряда, состояния которых находятся на открытом листе поверхности Ферми в виде гофрированной плоскости; $\sigma_{zz} = \sigma_{zz}^{(1)} + \sigma_{zz}^{(2)}$; $\gamma_0 = 1/\Omega_0\tau$, а Ω_0 — частота обращения электрона в магнитном поле при $\theta = 0$. В формуле (9), описывающей анизотропию сопротивления в плоскости слоев, и в последнем слагаемом формулы (10) опущены численные множители порядка единицы, зависящие от конкретного вида электронного энергетического спектра. Легко заметить, что при $\gamma_0 \cong \eta$ учет второго слагаемого в формуле (10) весьма существен.

Сопротивление току поперек слоев ρ_{zz} неограниченно растет с увеличением H даже при отклонении магнитного поля от плоскости слоев, и лишь при $\varphi = \pi/2$ и θ, заметно отличном от $\pi/2$, ρ_{zz} достигает насыщения в сильном магнитном поле и с достаточной степенью точности равняется $1/\sigma_{zz}$. В этом случае при некоторых ориентациях магнитного поля резко уменьшается не только $\sigma_{zz}^{(2)}$, но $\sigma_{zz}^{(1)}$. При этом положения острых пиков в угловой зависимости $\sigma_{zz}^{(1)}$ и $\sigma_{zz}^{(2)}$, как правило, не совпадают.

При φ, существенно отличном от $\pi/2$, когда $|\varphi - \pi/2| >> \gamma$, острые пики в зависимости ρ_{zz} от θ имеют место на достаточно большом фоне квадратичного роста магнитосопротивления органических проводников (BEDT–TTF)$_2$MHg(SCN)$_4$, однако их все же можно выделить с помощью дифференцирования по θ функции $\rho_{zz}(\theta)$.

В случае квазиодномерного характера энергетического спектра дополнительной группы носителей заряда острые пики в угловой зависимости сопротивления поперек слоев обязаны в основном электронам проводимости с квазидвумерным энергетическим спектром, состояния которых принадлежат листу поверхности Ферми в виде слабогофрированного цилиндра. Это связано с тем, что в магнитном поле, удовлетворяющем условию $\max\{\eta, \eta_1\} << \gamma_0 << 1$, где η_1 — степень гофрировки квазиодномерного листа поверхности Ферми в плоскости $p_x p_y$, движение электронов с квазиодномерным энергетическим спектром в импульсном пространстве происходит с почти постоянной скоростью, и $\sigma_{zz}^{(1)}$ в основном приближении по параметру η^2 пропорционально $\sin^2\theta$, а осциллирующие с $\operatorname{tg}\theta$ слагаемые появляются в следующих приближениях по параметрам низкоразмерности их энергетического спектра η и η_1 лишь в области более сильных магнитных полей, когда $\gamma_0 \le \max\{\eta, \eta_1\}$. При этом $\sigma_{zz}^{(1)}$ оказывается малой поправкой к $\sigma_{zz}^{(2)}$, кроме тех ориентаций магнитного поля, когда $\sigma_{zz}^{(2)}(\sigma_c)$ принимает минимальное значение. Угловые осцилляции $\sigma_{zz}^{(2)}$ детально теоретически исследованы в случае весьма простой модели поверхности Ферми [13], а также при самых общих предположениях о виде квазидвумерного электронного энергетического спектра [14–19].

Таким образом, исследуя угловую зависимость сопротивления току поперек слоев в широкой области магнитных полей в органических комплексах с переносом заряда (BEDT–TTF)$_2$MHg(SCN)$_4$, можно надежно определить степень квазиодномерности дополнительных листов поверхности Ферми в виде гофрированных плоскостей.

1. М. В. Карцовник, В. Н. Лаухин, В. И. Нижанковский, А. А. Игнатьев, *Письма в ЖЭТФ* **47**, 302 (1988).
2. М. В. Карцовник, П. А. Кононович, В. Н. Лаухин, И. Ф. Щеголев, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 498 (1988).
3. L. V. Schubnikov and W. J. de Haas, *Leiden Commun.* **207**, 210 (1930).
4. W. J. de Haas and P. M. van Alphen, *Proc. Acad. Sci. (Amsterdam)* **33**, 1106 (1930).
5. L. Onsager, *Philos. Mag.* **43**, 1006 (1952).
6. И. М. Лифшиц, А. М. Косевич, *ЖЭТФ* **29**, 730 (1955).
7. И. М. Лифшиц, В. Г. Песчанский, *ЖЭТФ* **35**, 1251 (1958).
8. И. М. Лифшиц, В. Г. Песчанский, *ЖЭТФ* **38**, 188 (1960).
9. С. П. Новиков, А. Я. Мальцев, *УФН* **168**, 249 (1998).
10. J. Wosnitza, *Fermi Surfaces of Low-Dimensional Organic Metals and Superconductors*, Springer Tracts in Modern Physics (1996).
11. J. Singelton, *Studies of Quasi-Two-Dimensional Organic Conductors Based on BEDT–TTF Using High Magnetic Fields*, Report on Progress in Physics (2000).
12. R. Rossenau, M. L. Doublet, E. Canadell, R. P. Shibaeva, R. P. Rozenberg, N. D. Kushch, and E. B. Jagubskii, *J. Phys. (Paris)* **6**, 1527 (1996).
13. K. Yamagji, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 1520 (1989).
14. V. G. Peschansky, J. A. Roldan Lopez, and Toji Gnado Yao, *J. Phys. (Paris)* **1**, 1469 (1991).
15. V. G. Peschansky, *Phys. Rep.* **288**, 305 (1997).
16. В. Г. Песчанский, *ФНТ* **23**, 47 (1997).
17. В. Г. Песчанский, *ЖЭТФ* **112**, 618 (1997) [*Sov. Phys. JETP* **85**, 447 (1997)].
18. V. G. Peschansky and M. V. Kartsovnik, *Phys. Rev.* **B60**, 11207 (1999).
19. V. G. Peschansky and M. V. Kartsovnik, *J. Low Temp. Phys.* **117**, 1717 (1999).

On magnetoresistance of organic complexes (BEDT–TTF)$_2$MHg(SCN)$_4$

V. G. Peschansky and Raed Atalla

According to the calculations of the electron energy spectrum for organic complexes (BEDT–TTF)$_2$MHg(SCN)$_4$ (M is one of the metals belonging to the metals K, Rb, or Tl), a group of carriers with a quasi-one-dimensional spectrum is supposed to exist along with the main group of charge carriers possessing the quasi-two-dimensional spectrum. The galvanomagnetic phenomena in quasi-two-dimensional conductors with the Fermi multishected surface are investigated. A possibility of determining the degree of the quasi-one-dimensionality of an extra group for which the Fermi surface is a corrugated plane is shown.