

## Магнитосопротивление органических проводников на основе тетратиафульвалена

Хасан Раид Аталла

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

E-mail: raed@bigline.kharkov.ua

Статья поступила в редакцию 18 февраля 2003 г.

Показано, что исследование угловых осцилляций магнитосопротивления слоистых проводников позволяет определить характер убывания гармоник в зависимости энергии носителей заряда от проекции импульса на нормаль к слоям.

Показано, що дослідження кутових осциляцій магнітоопору шаруватих провідників дозволяє визначити характер зменшення гармонік в залежності енергії носіїв заряду від проекції імпульса на нормаль до шарів.

PACS: 72.15.Gd, 75.70.Cn

Значительная часть комплексов с переносом заряда органического происхождения обладает слоистой структурой с резкой анизотропией электропроводности. К ним относится большое семейство солей тетратиафульвалена с металлическим типом электропроводности не только вдоль, но и поперек слоев. В слоистых проводниках энергия носителей заряда  $\varepsilon = \varepsilon(\mathbf{p})$  слабо зависит от проекции импульса  $p_z = \mathbf{p}\mathbf{n}$  на нормаль к слоям  $\mathbf{n}$ , так что максимальное значение скорости электронов проводимости  $v_z$ , равное  $\eta v_F$  ( $\eta$  — параметр квазидвумерности), много меньше характерной фермиевской скорости движения заряда в плоскости слоев  $v_F$ .

Квазидвумерный характер электронного энергетического спектра слоистых проводников способствует наиболее яркому проявлению в них квантовых осцилляционных эффектов, поскольку в их формирование вовлечены почти все носители заряда с энергией Ферми  $\varepsilon_F$ . В 1988 году при низких температурах в магнитных полях порядка 14 Тл были обнаружены осцилляции Шубникова—де Гааза магнитосопротивления органического проводника  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{IBr}_2$  [1,2], в дальнейшем квантовые осцилляционные эффекты наблюдали практически во всех органических комплексах на основе тетратиафульвалена (см., например, обзорные статьи [3,4]). Поверхность Ферми (ПФ)  $\varepsilon(\mathbf{p}) = \varepsilon_F$  слоистых проводников является открытой со слабой

гофрировкой вдоль оси  $p_z$ , а наблюдение эффекта Шубникова—де Гааза в солях тетратиафульвалена свидетельствует о том, что по крайней мере один лист ПФ представляет собой слабогофрированный цилиндр.

На протяжении последних 15-ти лет в органических комплексах с переносом заряда  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{X}$  с различными радикалами X активно исследуется еще один эффект — появление узких максимумов сопротивления  $\rho$  току, направленному перпендикулярно слоям, в зависимости от угла  $\theta$  между нормалью к слоям  $\mathbf{n}$  и направлением сильного магнитного поля  $\mathbf{H} = (0, H \sin \theta, H \cos \theta)$ , в котором частота обращения электронов проводимости  $\Omega$  много больше частоты их столкновений  $1/\tau$ . Этот специфичный для квазидвумерных проводников ориентационный эффект содержит весьма важную информацию о форме ПФ — расстояние между острыми максимумами функции  $\rho(\theta)$  непосредственно связано с диаметрами ПФ в виде слабогофрированного цилиндра [5,6]. Амплитуда осцилляций Шубникова—де Гааза, так же как и монотонно изменяющаяся с  $H$  часть магнитосопротивления  $\rho(\theta)$ , имеет острые максимумы как функция  $\theta$ , однако их положение может не совпадать с максимумами  $\rho(\theta)$ . Эти различия содержат информацию о соотношении между гармониками периодической зависимости энергии электронов проводимости

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

$$\begin{aligned} \varepsilon_n(-p_x, -p_y) &= \varepsilon_n(p_x, p_y), \\ \alpha_n(p_x, p_y) &= -\alpha_n(-p_x, -p_y) \end{aligned}$$

от проекции квазиимпульса  $p_z$  [7,8]. 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  $\varepsilon_F$ .

Для интерпретации результатов экспериментального исследования зависимости магнитосопротивления от угла  $\theta$  часто используют весьма примитивную модель закона дисперсии носителей заряда:

$$\varepsilon(\mathbf{p}) = (p_x^2 + p_y^2)/2m - (\eta v_F \hbar/a) \cos(ap_z/\hbar). \quad (2)$$

В случае ПФ в виде слабогофрированного цилиндра электроны проводимости не покидают элементарную ячейку в плоскости  $p_x p_y$  и явный вид функций  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$  не играет существенной роли при анализе экспериментальных результатов, однако удержание лишь первой гармоники в выражении для зависимости энергии от  $p_z$  приводит к принципиальному расхождению теоретических расчетов с экспериментально наблюдаемыми зависимостями  $\rho(\theta)$ . Вычисление магнитосопротивления току поперек слоев с использованием закона дисперсии носителей заряда в виде (2) приводит к значительному росту максимумов сопротивления с увеличением  $H$  при  $\eta \ll \eta\Omega\tau \ll 1$ . Однако экспериментально наблюдаемая высота максимумов сопротивления имеет такой же порядок величины, что и плавно изменяющаяся с  $\theta$  часть магнитосопротивления.

При протекании тока перпендикулярно слоям электрическое поле в проводнике почти параллельно току и сопротивление в основном приближении по параметру  $\eta \ll 1$  обратно пропорционально компоненте тензора электропроводности  $\sigma_{zz}$ . Столь слабое проявление эффекта Холла связано с медленным дрейфом носителей заряда вдоль нормали к слоям. Воспользовавшись решением кинетического уравнения для функции распределения носителей заряда, нетрудно получить асимптотическое выражение для  $\sigma_{zz}$  при  $\eta \ll 1$  и  $\gamma = 1/\Omega\tau \ll 1$ :

$$\begin{aligned} \sigma_{zz} &= \frac{ae^2\tau m^* \cos\theta}{\pi\hbar^4} \times \\ &\times \sum_{n=1}^{\infty} \left\{ \frac{1}{T} \int_0^T dt \varepsilon_n[p_x(t), p_y(t)] \cos\left(\frac{anp_y(t)tg\theta}{\hbar}\right) \right\}^2, \quad (3) \end{aligned}$$

где  $e$  и  $m^*$  – заряд и циклотронная эффективная масса электронов проводимости,  $t$  – время движения заряда в магнитном поле по электронной орбите  $\varepsilon = \text{const}$ ,  $p_H = \mathbf{pH}/H$  с периодом  $T = 2\pi m^*c/eH$ .

Подынтегральные выражения в формуле (3) при  $tg\theta \gg 1$  являются быстро осциллирующими функциями, и интегралы в сумме по  $n$  легко вычислить, воспользовавшись методом стационарной фазы. Если на электронной орбите имеется всего лишь две точки стационарной фазы, где  $v_x$  обращается в нуль, то асимптотическое выражение для  $\sigma_{zz}$  приобретает следующий вид:

$$\begin{aligned} \sigma_{zz} &= \frac{ae^2\tau m^* \cos\theta}{\pi\hbar^4} \sum_{n=1}^{\infty} n^2 A_n^2 I_n^2(\theta) + \\ &+ \eta^2 \sigma_0 (\eta^2 \varphi_1 + \gamma^2 \varphi_2), \quad (4) \end{aligned}$$

где  $A_n$  – значение функции  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$  в точках стационарной фазы,  $\sigma_0$  – электропроводность вдоль слоев в отсутствие магнитного поля,  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  порядка единицы, а функции

$$I_n(\theta) = (\hbar/anD_p tg\theta)^{1/2} 2 \cos\{(anD_p tg(\theta/2\hbar)) - \pi/4\} \quad (5)$$

имеют множество нулей, которые повторяются с периодом  $\Delta(tg\theta) = 2\pi\hbar/naD_p$ . Здесь  $D_p$  – диаметр поверхности Ферми вдоль оси  $p_y$ , а циклотронная эффективная масса носителей заряда с ростом  $\theta$  изменяется обратно пропорционально  $\cos\theta$ .

Естественно предположить, что функции  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$  убывают с ростом номера  $n$  и количество слагаемых, которые следует удержать в сумме по  $n$ , при асимптотическом разложении  $\sigma_{zz}$  в ряд по степеням малых параметров  $\eta$  и  $\gamma$  зависит от характера убывания этих функций. В формуле (4) удержаны малые поправки к асимптоте  $\sigma_{zz}$  при  $\eta \ll 1$  и  $\gamma \ll 1$ , учет которых весьма существен, если функции  $I_n(\theta)$  с  $n \geq 2$  ничтожно малы. В этом случае при значениях  $\theta = \theta_c$ , для которых  $I_1(\theta)$  обращается в нуль, сопротивление току вдоль нормали к слоям вместо насыщения в сильных магнитных полях возрастает пропорционально  $H^2$  при  $\eta \ll \gamma \ll 1$ , а насыщение сопротивления наступает в более сильных магнитных полях, когда  $\gamma \leq \eta$ . При медленном убывании функций  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$  с ростом номера  $n$  достаточно ограничиться в асимптоте  $\sigma_{zz}$  лишь суммой по  $n$  в формуле (4), все  $I_n(\theta)$  не могут обратиться в нуль одновременно.

Известные экспериментальные результаты исследования зависимости магнитосопротивления солей тетраафульвалена от  $\theta$  проанализируем, удержав в асимптотическом разложении  $\sigma_{zz}$  лишь три слагаемые в сумме по  $n$ . Если  $\varepsilon_0(p_x, p_y)$  является квад-

ратичной функцией импульсов, то все  $I_n(\theta)$  оказываются функциями Бесселя,  $A_n$  представляют собой функции  $\varepsilon_n\{p_x(t), p_y(t)\}$ , вынесенные за знак интегралов по  $t$  в формуле (3) в смысле их среднего значения. Наличие трех свободных параметров  $A_1, A_2$  и  $A_3$ , которые следует определить с помощью экспериментально наблюдаемой зависимости  $\rho(\theta)$ , дает возможность согласовать теоретические расчеты с экспериментом и определить характер убывания функций  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$ .

Для этой цели на рис. 1 сопоставлены экспериментальные данные для зависимостей положения максимума сопротивления от угла  $\theta$  (кривая 3) для  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{IBr}_2$ , взятые из работы [2], с теоретическими расчетами зависимости  $\rho(\theta)$  при двух различных соотношениях параметров  $A_n$ . Как видно на рисунке, на кривой 1, где  $A_{n+1}/A_n = 0,04$ , наблюдается значительный рост максимумов, в отличие от кривой 2 для  $A_{n+1}/A_n = 0,4$ , где высота максимумов имеет такой же порядок величины, что и экспериментальные данные. На рис. 2 сопоставлены расчетные кривые функции  $\rho(\text{tg } \theta)$  с экспериментальными данными, приведенными в работах [9,10], где соотношения параметров равны 0,2 для  $\theta\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$  (рис. 2,а) и 0,1 для  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Br(DIA)}$  (DIA — дианоацетилен) (рис. 2,б). Как видно на рисунках, расчетные кривые весьма близки к экспериментальным, если соотношение между гармониками  $A_{n+1}/A_n$  достаточно большое. При уменьшении этого соотношения наблюдается заметное расхождение, поэтому нам представляется некорректным использование закона дисперсии электронов в виде (2) для интерпретации экспериментальных данных.

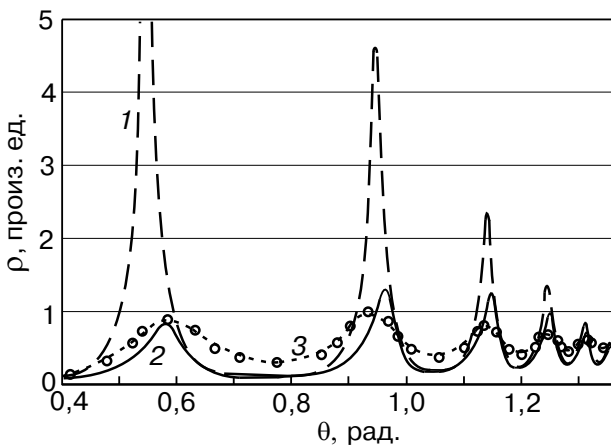


Рис. 1. Положение максимумов сопротивления в зависимости от угла между нормалью к слоям и направлением магнитного поля при различных соотношениях параметров:  $A_{n+1}/A_n = 0,04$  (1),  $A_{n+1}/A_n = 0,4$  (2), экспериментальная кривая 3 —  $\rho(\theta)$  для  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{IBr}_2$  из [2].

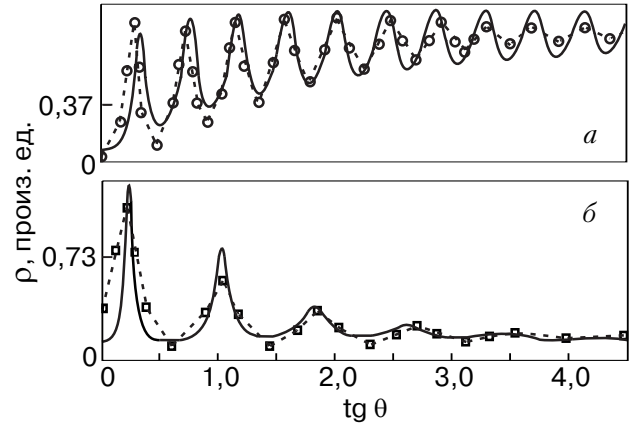


Рис. 2. Положение максимумов сопротивления в зависимости от тангенса угла  $\theta$  между нормалью к слоям и направлением магнитного поля при различных соотношениях параметров: расчет для  $A_{n+1}/A_n = 0,2$ , точки для  $\theta\text{-(BEDT-TTF)}_2\text{I}_3$  (а); расчет для  $A_{n+1}/A_n = 0,1$ , точки для  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Br(DIA)}$  (б). Экспериментальные данные из [9,10].

Таким образом, экспериментальное исследование угловых осцилляций магнитосопротивления органических слоистых проводников  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{X}$  свидетельствует о том, что функции  $\varepsilon_n(p_x, p_y)$  сравнительно медленно убывают с ростом  $n$ . Анализ асимптотического поведения магнитосопротивления органических комплексов на основе тетрагидрофульвалена в сильном магнитном поле при различных его ориентациях относительно слоев позволяет с достаточной степенью точности определить соотношения между гармониками в зависимости энергии носителей заряда от проекции импульса на нормаль к слоям.

1. М.В. Карцовник, В.Н. Лаухин, В.И. Нижанковский, А.А. Игнатъев, *Письма в ЖЭТФ* **47**, 302 (1988).
2. М.В. Карцовник, П.А. Кононович, В.Н. Лаухин, И.В. Щеголев, *Письма в ЖЭТФ* **48**, 498 (1988).
3. J. Wosnitza, in: *Fermi Surfaces of Low-dimensional Organic Metals and Superconductors*, Springer Tracts in Modern Physics (1996), p. 165.
4. J. Singleton, *Studies of Quasi-two-dimensional Organic Conductors Based on BEDT-TTF Using High Magnetic Fields*, Report on Progress in Physics (2000), p. 116.
5. V.G. Peschansky, J.A. Roldan Lopez, and Toji Gnado Yao, *J. Phys. I. (France)* **1**, 1469 (1991).
6. V.G. Peschansky, *Phys. Rep.* **288**, 305 (1997).
7. В.Г. Песчанский, Раид Аталла, *ФНТ* **27**, 945 (2001).
8. В.Г. Песчанский, *ЖЭТФ* **121**, 1205 (2002).
9. T. Terashima, S. Uji, H. Aoki, M. Tamura, M. Kinoshita, and M. Tokumoto, *Synth. Met.* **70**, 845 (1995).
10. S. Uji, C. Terakura, T. Terashima, H. Aoki, H. Yamamoto, J. Yamaura, and R. Kato, in: *4th Int. Symp. on Adv. Phys. Fields: Quantum Phenomena in Adv. Mat. at High Magnetic Fields* (1998), p.299.

**Magnetoresistance of tetrathiafulvalene-based  
organic conductors**

**Hasan Raed Atalla**

It is shown that the investigations of the angular dependence of magnetoresistance oscilla-

tions in layered conductors make it possible to determine the falloff character of harmonics in the expression for the dependence of energy on the quasimomentum projection onto the normal to layers.