

ЭФФЕКТ ХОЛЛА В ОРГАНИЧЕСКОМ ПРОВОДНИКЕ (ET)₂TlHg(SCN)₄

В.Н.Топников, С.И.Песоцкий, В.Н.Лаухин

*Институт химической физики РАН
142432 Черноголовка Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 23 декабря 1993 г.

После переработки 28 января 1994 г.

Проведено исследование эффекта Холла в органическом металле α - (ET)₂TlHg(SCN)₄ в диапазоне температур 1,8 ÷ 20 К при направлениях поля вдоль различных кристаллографических осей в проводящей плоскости кристалла. Константа Холла имеет положительный знак во всем интервале температур и резко возрастает в районе 10К. Такое поведение интерпретируется как фазовый переход типа металл – металл при 10К.

Электронные системы практически всех известных органических металлов являются системами пониженной пространственной размерности: либо квазиодномерными, либо квазидвумерными. Для первых характерна неустойчивость металлического состояния электронной системы и, как следствие, переход металл–диэлектрик при понижении температуры [1]. Квазидвумерные металлы более устойчивы по отношению к диэлектризации. Многие из них не только сохраняют металлическое состояние, но и становятся сверхпроводниками [2].

Проводники, синтезированные на основе молекулы ET являются типичными представителями органических квазидвумерных металлов [2–4]. Но среди них выделяется семейство α - (ET)₂MHg(SCN)₄, где M=K, Tl, Rb, NH₄, сочетающих в себе свойства как квазиодномерного, так и квазидвумерного металлов [5–7]. Поверхность Ферми этих изоструктурных соединений состоит из двух листов [8]. Первый представляет собой замкнутый цилиндр с осью вдоль K_b. Второй состоит из двух слабо гофрированных плоскостей, приблизительно перпендикулярных K_a (K_a, K_b и K_c – векторы обратной решетки). Первый лист, свойственный квазидвумерным системам, несет ответственность за осцилляции Шубникова–де Гааза, обнаруженные в соединениях с M=K, NH₄, Tl [7, 9]. Вторым листом, характерным для квазиодномерных металлов, определяется, по всей видимости, частичный диэлектрический переход при T_p = 10 К, указания на который обнаружены в соединениях с M=K, Tl, Rb [7, 10, 11]. (Необходимо отметить, что в соли с M=NH₄ такая частичная диэлектризация не зарегистрирована, и эта соль является сверхпроводником с T_c = 0,8 – 1,4 К [5, 12]). Обнаруженное ниже T_p антиферромагнитное упорядочение в соли с M=K [13] позволяет предположить в описываемом семействе проводников наличие фазового перехода пайерлсовского типа при T = T_p с образованием волны спиновой плотности.

В настоящей работе приводится прямое наблюдение такого перехода по поведению температурной зависимости константы Холла в проводнике α - (ET)₂TlHg(SCN)₄.

Исследования проводились на тонкой монокристаллической пластинке почти квадратной формы с примерными размерами 1,2 × 1,2 × 0,015 мм³. Рентгеноструктурный анализ выбранного образца показал, что кристаллографические

оси a и c направлены по диагонали квадрата. К концам каждой диагонали были подклеены проводящей пастой по паре измерительных платиновых проводов. Любая пара образованных таким образом контактов могла быть использована для пропускания измерительного тока (токовые контакты), при этом другая служила для измерений поперечного напряжения (потенциальные контакты). В одной серии измерений ток протекал примерно вдоль направления a , то есть почти перпендикулярно плоскостям второго листа поверхности Ферми, холловское напряжение при этом измерялось вблизи направления c . Во второй серии измерений ток протекал вдоль c . Магнитное поле всегда направлялось перпендикулярно плоскости ac , то есть плоскости монокристалла.

Вообще говоря, в нашем опыте измерялось полное напряжение на потенциальных контактах, которое кроме чисто поперечного холловского вклада содержит паразитное напряжение, возникающее из-за неидеальной геометрии контактов. Это напряжение легко исключить, меняя направление магнитного поля относительно кристалла на противоположное. В нашем опыте применялась инверсия магнитного поля, а не вращение кристалла на 180° , при этом величина поля 48 кЭ восстанавливалась по независимому холловскому измерителю поля с точностью до нескольких десятков эрстед.

Измерение температурной зависимости холловского напряжения осуществлялось следующим образом: в поле 48 кЭ вдоль одной из диагоналей кристалла пропускался измерительный ток, при этом на другой, потенциальной паре контактов, при определенных температурах измерялось поперечное напряжение. Затем поле инвертировалось и напряжение измерялось еще раз при тех же температурах. Разность измеренных значений при каждой температуре принималась за удвоенное холловское напряжение. Чтобы убедиться, что полученные результаты соответствуют холловскому напряжению, при некоторых температурах измерялись полевые зависимости напряжения на потенциальных контактах в прямом и обратном полях. Результаты их вычитания при температурах $1,8$; 6 и 20 К приведены на рис.1. Из рис.1 видно, что разности напряжений в прямом и обратном полях достаточно хорошо описываются прямыми, проходящими через нуль, что характерно именно для холловского напряжения. Отметим, что такой контроль проводился неоднократно, при этом сами значения напряжений на потенциальных контактах изменялись от опыта к опыту, но полевые зависимости их разности (рис.1) всегда воспроизводились. Измерения напряжения проводились в автоматическом режиме на постоянном токе 1 мА . При каждом измерении температура стабилизировалась с точностью не хуже, чем $0,01 \text{ К}$.

Результаты измерения температурной зависимости постоянной Холла в интервале температур $1,5-20 \text{ К}$ в поле 48 кЭ при двух взаимно перпендикулярных направлениях тока представлены на рис.2. Отметим, что результаты измерений для различных направлений тока практически совпадают. Анализ условий опыта показывает, что небольшое отличие связано с некоторым перегревом кристалла из-за разного качества пар контактов. Из рис.2 видно, что коэффициент Холла в интервале $12-20 \text{ К}$ не зависит от температуры. Начиная примерно с 12 К , постоянная Холла резко возрастает с понижением температуры. Ее значение увеличивается приблизительно в 20 раз к $T = 4,2 \text{ К}$, после чего наступает насыщение.

Резкое возрастание коэффициента Холла с понижением температуры является прямым свидетельством фазового превращения типа металл-металл, свя-

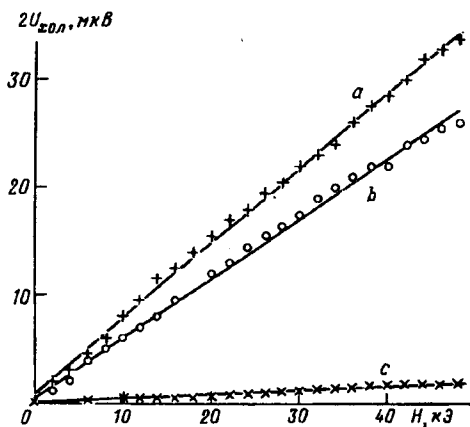


Рис.1

Рис.1. Полевые зависимости холловского напряжения при различных температурах: *a* – $T = 1,8 \text{ K}$, *b* – $T = 6 \text{ K}$, *c* – $T = 20 \text{ K}$. $I = 1 \text{ mA}$

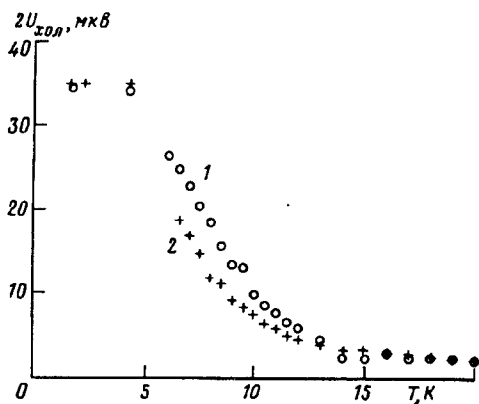


Рис.2

Рис.2. Температурная зависимость холловского напряжения в поле $H = 48 \text{ kOe}$ при различных направлениях тока: 1 – $I \parallel a$, 2 – $I \parallel c$

занного с уменьшением числа носителей заряда в кристалле. Качественно такое уменьшение концентрации легко понять как фазовый переход пайерлсовского типа в системе носителей, связанных с "квазиодномерным" листом поверхности Ферми. Такой переход должен сопровождаться полным или частичным "нестингом" квазиплоскостей Ферми и, соответственно, диэлектризацией квазиодномерной системы. Количественно же почти двадцатикратное увеличение константы Холла представляется менее понятным. Если бы фазовый переход сопровождался только "нестингом" квазиплоскостей, а цилиндрический лист поверхности Ферми оставался бы неизменным, как это предполагалось в [7], то увеличение константы Холла, связанное с уменьшением числа носителей, не превышало бы 3–5 раз, так как, согласно расчетам [8], площадь сечения цилиндра составляет 16% от площади соответствующего сечения зоны Бриллюэна. Таким образом, полученные результаты могут свидетельствовать в пользу более радикальной перестройки поверхности Ферми в $(\text{ET})_2\text{TlHg}(\text{SCN})_4$ ниже 10 K, затрагивающей и "квазидвумерный" лист этой поверхности. Возможный вариант таких изменений подробно исследуется в [14].

Укажем на отсутствие анизотропии коэффициента Холла. Существенно, что для других свойств, таких как проводимость или термоэдс, анизотропия заметно проявляется. Термоэдс дает даже разный знак носителей вдоль направлений *a* и *c*: электроны для одного и дырки для другого, соответственно [15]. В нашем эксперименте для обоих направлений наблюдается только положительный знак константы Холла, соответствующий дыркам во всем температурном интервале. При этом простая количественная оценка их концентрации для высоких температур приводит к значению $2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, что приемлемо согласуется со стехиометрической величиной.

Отметим, что в настоящей работе не подтвердилось предположение о том, что магнитное поле само может влиять на степень диэлектризации носителей [7]. В этом случае холловское напряжение зависело бы от поля сложным

нелинейным образом. Это противоречит нашему опыту по крайней мере в полях до 50 кЭ (см. рис. 1).

Авторы признательны Н.Д.Куш за синтез образцов, Л.П.Розенберг за рентгеновскую ориентацию кристаллов, Ю.Ф.Кияченко за помощь в автоматизации эксперимента, Э.Б.Ягубскому за полезные обсуждения.

-
1. D.Jerome and H.J.Schulz, *Adv. Phys.* **31**, 299 (1982).
 2. T.Ishiguro and K.Yamaji, *Organic superconductors*. Springer-Verlag, Series in Solid State Sciences, Berlin, 1990.
 3. J.M.Williams, J.R.Ferraro, R.J.Thorn et al., *Organic Superconductors (Including Fullerenes) Synthesis, Structure, Properties and Theory*, Prentice Hall, New Jersey, 1992.
 4. E.B.Yagubskii, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **230**, 139 (1993).
 5. H.H.Wang, K.D.Carlson, U.Geiser et al., *Synth. Met.* **166**, 57 (1991).
 6. H.Mori, S.Tanaka, R.Oshima et al., *Synth. Met.* **42**, 2013 (1991).
 7. N.D.Kushch, L.I.Buravov, M.V.Kartsovnik et al., *Synth. Met.* **46**, 271 (1992).
 8. H.Mori, S.Tanaka, K.Oshima et al., *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **63**, 2183 (1990).
 9. T.Osada, R.Yagi, A.Kawasumi et al., *Synth. Met.* **42**, 2177 (1991).
 10. T.Sasaki, N.Toyota, M.Tokumoto et al., *Sol. St. Comm.* **75**, 93 (1990).
 11. N.Kinoshita, M.Tokumoto, H.Anzai et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 2131 (1991).
 12. A.I.Schegolev, V.N.Laukhin, A.G.Khomenko et al., *J. Phys. I France* **2**, 2123 (1992).
 13. T.Sasaki, H.Sato, N.Toyota et al., *Synth. Met.* **41-43**, 2211 (1991).
 14. M.V.Kartsovnik, A.E.Kovalev, and N.D.Kushch, *J. Phys. I France* **3**, 1187 (1993).
 15. M.A.Tanatar, V.S.Yefanov, V.V.Dyakin et al., *Synth. Met.* **55-57**, 2419 (1993).