

Сосуществование антиферромагнитной и парамагнитной электронных фаз в квазиодномерном соединении $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$

А. В. Корнилов, В. М. Пудалов¹⁾, И. Китаока⁺²⁾, К. Ишида⁺²⁾, Ж. Жэнг⁺²⁾, Т. Мито⁺²⁾, Дж. Кволлз^{*2)}

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Центр физических исследований им. П. Н. Лебедева, 119991 Москва, Россия

⁺Division of Material Physics, School of Engineering Science, Osaka University, Osaka 560-8531, Japan

^{*}Wake Forest University, Winston-Salem, NC 27109, USA

Поступила в редакцию 4 июня 2003 г.

Экспериментально изучался характер фазовых переходов в квазиодномерном органическом соединении $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в тесной окрестности границ между парамагнитным металлическим РМ, антиферромагнитным АFI и сверхпроводящим SC состояниями. Для управляемого пересечения фазовой границы образец поддерживался при постоянных температуре T и давлении P , а величина критического давления перестраивалась изменением магнитного поля B . Обнаружено, что при пересечении фазовой границы РМ-AFI путем развертки магнитного поля возникают эффекты истории: сопротивление зависит от траектории, по которой система попала в данную точку P - B - T фазового пространства. Полученные результаты свидетельствуют о возникновении макроскопически неоднородного состояния, в котором имеются пространственно разделенные включения миноритарной фазы в основную. При значительном удалении от границы восстанавливается однородное состояние; после этого, при обратном приближении к фазовой границе (то есть развертке поля), признаки миноритарной фазы практически отсутствуют вплоть до самой границы.

PACS: 74.70.Kn, 75.30.Fv, 72.15.Gd

Взаимодействие (то есть сосуществование или конкуренция) магнитного упорядочения спинов и сверхпроводящего спаривания электронов в низкоразмерных соединениях вызывает большой интерес [1–3]. Фазовая диаграмма состояний для квазиодномерного соединения $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ весьма похожа на диаграмму для купратных сверхпроводников. В отсутствие магнитного поля имеется очень узкий диапазон давлений ($\approx 0.53 - 0.6$ ГПа), в котором при понижении температуры возникают два электронных фазовых перехода (см. рис.1) [3, 4]: вначале из парамагнитной металлической (РМ) фазы [5] в антиферромагнитный изолятор (AFI), с образованием волны спиновой плотности, и затем, из AFI в сверхпроводящее (SC) состояние. На рис.1 нанесена также вертикальная траектория $P = 0.54$ ГПа, которая пересекает в двух точках две фазовые границы (фазовые переходы II рода). Пересечение границ вызывает изменение сопротивления, которое имеет “металлический” характер ($dR/dT > 0$) в фазе РМ, активационный характер ($R \propto (\Delta/T)$) в фазе АFI и падает до нуля в фазе SC.

Помимо классического однофазного состояния системы вблизи фазовой границы, теоретически возможно возникновение гетерофазных состояний: например, микроскопически смешанного двухфазного состояния или макроскопически неоднородного состояния с разделением фаз. Отличить эти типы состояний можно, изучая свойства системы в достаточно близкой окрестности от точки перехода. В частности, для неоднородного состояния со включениями одной фазы в другую можно ожидать проявления эффектов предыстории и гистерезиса: свойства системы в данной точке P - T -диаграммы могут зависеть от пути, по которому система пришла в эту точку; для смешанного состояния нет оснований ожидать эффектов истории. Два эти типа состояний можно было бы попытаться отличить по качественному различию транспортных характеристик, которое должно было бы проявиться при пересечении фазовой границы путем изменения давления при постоянной температуре. На практике, такой эксперимент трудно осуществить прямым способом, поскольку развертка давления в диапазоне 1 ГПа *in situ* при температуре порядка 1 К технически весьма сложна.

¹⁾e-mail: pudalov@mail1.lebedev.ru

²⁾Y. Kitaoka, K. Ishida, G.-q. Zheng, T. Mito, J. S. Qualls.

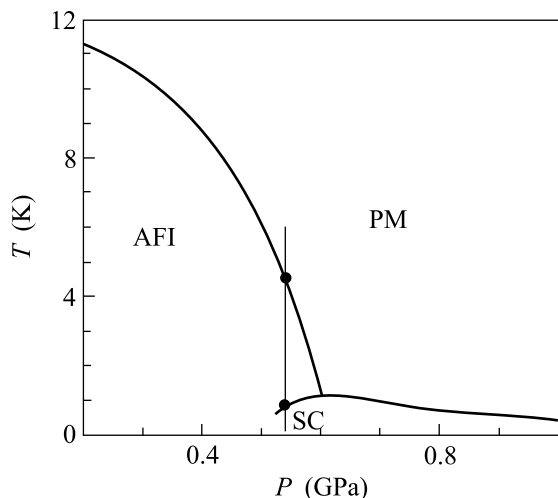


Рис.1. Фазовая P - T -диаграмма состояния $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в отсутствие поля. Обозначения состояний на рисунке: PM – парамагнитный металл, AFM – антиферромагнитный изолятор, SC – сверхпроводник. Вертикальная линия изображает изобарическую траекторию $P = 0.54$ ГПа. Точки на траектории отмечают два фазовых перехода: из парамагнитного металлического PM в диэлектрическое AFM состояние, и из AFM в сверхпроводящее состояние SC

В данной работе эта задача решена иным способом. Из проведенных нами измерений в магнитном поле, а также из предшествующих работ (см., например [6]), следует, что с ростом магнитного поля граница $T(P)$ между AFM и PM фазами смещается в сторону более высоких температур. Ввиду плавной и монотонной зависимости границы T_0 от поля, возникает возможность управлять ее положением с помощью поля и, таким образом, осуществлять пересечение границы путем изменения магнитного поля при фиксированных значениях давления P и температуры T . Такой экспериментальный подход избавляет от необходимости плавной развертки давления при низких температурах.

В результате проведенных измерений обнаружено, что при пересечении границы между PM и AFM фазами при низких температурах ($T \lesssim 4$ К) наблюдаются сильные эффекты предистории в магнитосопротивлении: в зависимости от направления развертки поля миноритарная фаза наблюдается далеко от границы, в глубине мажоритарной фазы. Эти эффекты прямо свидетельствуют о макроскопически неоднородном гетерофазном состоянии образца в окрестности AFM-PM-SC фазовой границы.

Образцы – монокристаллы $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ – были выращены электрохимическим способом; типичные размеры образцов составляли $2 \times 0.8 \times 0.3$ мм,

вдоль кристаллических направлений a , b и c , соответственно. Образец и манганиновый датчик давления помещались в немагнитную камеру высокого давления [7], заполненную кремний-органической жидкостью. Требуемое давление создавалось в камере при комнатной температуре, после чего камера медленно (~ 12 ч) охлаждалась. Камера давления с образцом помещалась в криостат со сверхпроводящим соленоидом. Измерения проводились в криостате с откачкой паров ^4He . Магнитное поле было направлено вдоль оси c , а измерительный ток – вдоль оси a . Для осуществления идеи эксперимента начальные значения P и T были выбраны вблизи, но выше чем P_0, T_0 , для того чтобы при увеличении поля произошел PM-AFM переход.

При таком выборе начальной точки сопротивление меняется незначительно с увеличения поля вплоть до $B \approx 7$ Тл (см. рис.2а). При дальнейшем росте поля сопротивление резко возрастает на 2–3 порядка величины, что свидетельствует о переходе из металлической PM в диэлектрическую AFM фазы. Важно отметить, что на фоне растущей монотонной компоненты сопротивления, начиная с $B \approx 8$ Тл, заметны немонотонные периодические изменения сопротивления, совершенно не типичные для AFM фазы.

При обратной развертке поля, то есть при уменьшении B от 16 до 7 Тл, выявляется сильный гистерезис ($\sim 50\%$) сопротивления (рис. 2а), а немонотонная компонента практически исчезает. Гистерезис $R(B)$, а также появление и исчезновение немонотонной компоненты зависят только от абсолютной величины поля $|B|$ и не зависят от его направления: $R(B) = R(-B)$ при одинаковой истории изменения $|B|$. Величина гистерезиса увеличивается с ростом поля. При повторной развертке поля от 0 до 16 Тл описанная выше зависимость $R(B)$ полностью воспроизводится.

Немонотонная компонента сопротивления более отчетливо видна на производной dR/dB , показанной на рис.2б. Важно то, что немонотонная компонента наблюдается только при увеличении поля и практически исчезает при уменьшении поля от 16 Тл. Вертикальные стрелки на рис.2б показывают положения границ между фазами индуцированной магнитным полем волны спиновой плотности (FISDW) [8] при развертке поля в чисто PM состоянии [5], в области FISDW. Положения пиков в dR/dB на рис.2б хорошо совпадают с ожидаемыми границами FISDW фаз. Подчеркнем еще раз, что существование этих пиков было бы вполне естественно для PM состояния, но совершенно неожиданно для состояния AFM. На зависимости $dR(B)/dB$ не наблюдается пик в по-

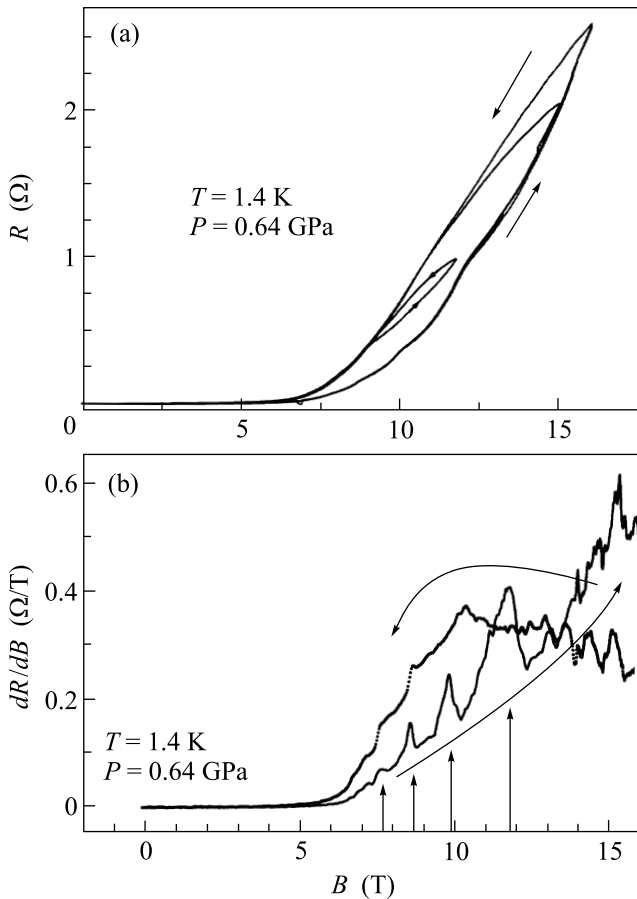


Рис.2. (а) Изменение сопротивления с магнитным полем в случае пересечения границы РМ и АFI фаз. Резкий рост $R(B)$ при $B \approx 7$ Тл соответствует переходу РМ–АFI. (б) Зависимость производной dR/dB от магнитного поля, соответствующая рис.2а при увеличении и уменьшении поля. Вертикальные стрелки показывают скачки R , соответствующие переходам между фазами FISDW

ле $B \approx 14$ Тл, который можно было бы ожидать для РМ состояния [8]. Отсутствие этого пика указывает на полное исчезновение РМ фазы и восстановление гомогенного АF состояния в поле $B \geq 14$ Тл. В подтверждение сказанному заметим, что в более сильных полях $B > 14$ Тл видны “частые осцилляции” RO (см. рис.2б и рис.3), которые характерны в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ для фазы АFI [9].

Зависимости производной dR/dB от поля для разных температур приведены на рис.3. Как видно, с ростом температуры исчезает гистерезис в $R(B)$ при развертке поля вверх и вниз. Важно то, что при низкой температуре ($T = 1.4$ К) гистерезис проявляется не только в величине сопротивления (или dR/dB), но и в качественно различном характере зависимости $R(B)$. При развертке поля вверх наблюдаются скач-

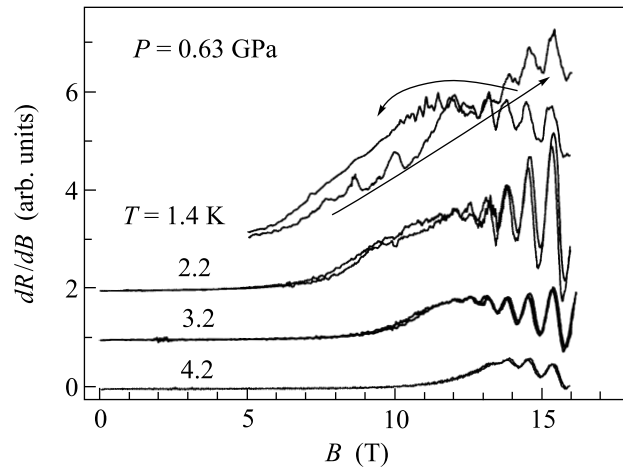


Рис.3. Производная dR/dB в зависимости от магнитного поля при четырех значениях температуры. Видно быстрое исчезновение гистерезиса при повышении температуры и немонотонная зависимость амплитуды “частых осцилляций” от T

ки $R(B)$ (отмечены стрелками в полях $B = 8–12$ Тл), присущие фазовым переходам FISDW в РМ фазе, тогда как система явно перешла в фазу АFI, начиная с поля ~ 6 Тл (о чем свидетельствует сильный рост сопротивления на рис.2а и появление RO). При обратной развертке поля эти “аномальные” скачки практически отсутствуют и вместо них видны ожидаемые осцилляции RO [9].

Обсуждение результатов. Очевидно, что перечисленные результаты не соответствуют поведению, ожидаемому для микроскопически смешанного состояния с сосуществованием двух фаз. В таком состоянии эффекты гистерезиса и зависимость фазового состава от предыстории не могут иметь места. Описанное выше поведение также не типично для однородно “переохлажденной” или “перегретой” фаз при переходах I рода. Помимо того, для перехода II рода в однородной системе, каким является переход АFI–РМ, гистерезис и “перегрев/переохлаждение” вообще не должны возникать. В той области фазового пространства, где должна существовать только РМ (или АFI) фаза, помимо ожидаемых признаков “правильной” фазы, явно наблюдаются признаки противоположной фазы. Таким образом, возникновение гистерезиса при переходе II рода и явные признаки наличия обеих фаз в одной и той же области фазового пространства свидетельствуют о том, что фазовый состав системы становится неоднородным.

Описанные эксперименты демонстрируют, что при переходе из металлического в антиферромагнитное состояние возникает гистерезис в изменении со-

противления с магнитным полем. Полученные результаты однозначно свидетельствуют о том, что вблизи фазовой границы между фазами РМ и АFI возникает неоднородное состояние со включениями миноритарной фазы в основную фазу. Этот наш вывод совпадает с выводом предшествующих измерений [4], проведенных путем изобарического свипирования температуры при $B = 0$. Однако в отличие от работы [4], наш вывод основан на результатах, не зависящих от каких-либо модельных предположений о пространственном устройстве неоднородного состояния, поскольку для идентификации фазового состава мы использовали качественное различие в поведении сопротивления в фазах АFI и РМ. Отметим, что гистерезис величины и характера изменения сопротивления не связан с неоднородностью образца, не зависит от времени и является стационарным и хорошо воспроизводимым эффектом.

Авторы признательны А. Г. Лебедю и В. Подзорнову за обсуждения результатов. Работа поддержана грантами NWO, INTAS, COE Research in Grant-in-Aid for Scientific Research (Japan), Российского фонда фундаментальных исследований, Президентской программой “Поддержка ведущих научных школ”, ФЦП “Квантовая макрофизика”, ФЦНТП “Фундаментальные исследования в области физических наук”, “Высокотемпературная сверхпроводимость” и Научной программой ОФН РАН “Сильно коррелированные электроны”.

1. J. Orenstein and A. J. Millis, *Science* **288**, 468 (2000).
2. N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian et al., *Nature* **394**, 39 (1998).
3. P. M. Chaikin, *J. Phys I France* **6**, 1875 (1996).
4. T. Vuletić, P. Auban-Senzier, C. Pasquier et al., *Eur. Phys. J.* **B25**, 319 (2002).
5. В статье, для простоты, под “парамагнитной” фазой понимается металлическое состояние, при $P > P_0(T)$, которое, строго говоря, является парамагнитным только в нулевом и слабом магнитном полях. В квантующем магнитном поле в этой области $P - T$ диаграммы возникают индуцированные магнитным полем волны спиновой плотности [8].
6. N. Matsunaga, K. Yamashita, H. Kotani et al., *Phys. Rev.* **B64**, 052405 (2001).
7. A. V. Kornilov, V. A. Sukhoparov, and V. M. Pudalov, *High Pressure Science and Technology*, Ed. W. Trzeciakowski, World Scientific, Singapore, 1996, p. 63.
8. A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, Y. Kitaoka et al., *Phys. Rev.* **B65**, 60404, (2002); *Synth. Metals* **133-134**, 69 (2003).
9. Так называемые “частые осцилляции” (RO) наблюдаются в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в АFI фазе [10]; их природа окончательно не выяснена и продолжает обсуждаться. В данной работе важно то, что для одномерной поверхности Ферми RO не сводятся к осцилляциям Шубникова-де Гааза, имеют немонотонную температурную зависимость и потому являются хорошим индикатором АF фазы.
10. S. Uji, J. S. Brooks, M. Chaparala et al., *Phys. Rev.* **B55**, 12446, (1997), and references therein.