

## МАГНИТНЫЕ РЕЗОНАНСЫ В КВАЗИДВУМЕРНОМ ОРГАНИЧЕСКОМ ПРОВОДНИКЕ $(BEDT-TTF)_2K\text{Hg}(\text{SCN})_4$

*С.В.Демидов, Н.Е.Случанко, А.В.Семенов, Н.А.Самарин,  
Дж.Синглетон<sup>1)</sup>, С.Бланделл<sup>1)</sup>, М.Курмоо<sup>\*\*1)</sup>, П.Дей<sup>\*\*1)</sup>*

*Институт общей физики РАН  
117942 Москва, Россия*

*\*The Clarendon Laboratory, Department of Physics, University of Oxford  
Parks Road, Oxford OX1 3PU, U.K.*

*\*\*Royal Institution  
21 Albermarle Street, London W1X4BS, U.K.*

Поступила в редакцию 17 января 1995 г.

Обнаружено, что структура магнитных резонансов в квазидвумерном органическом металле  $(BEDT-TTF)_2K\text{Hg}(\text{SCN})_4$  представляет собой сложную суперпозицию спиновых резонансов, в том числе антиферромагнитного и ЭПР на электронах проводимости, а также циклотронного резонанса 2D-носителей с эффективными массами:  $2,38m_0$ ;  $2,8m_0$ ;  $3,29m_0$ . Эти значения в 1,4–1,6 раза превышают значения эффективных масс, определяемых в эффекте Шубникова–де Гааза, что может быть обусловлено сильными ферми-жидкостными эффектами.

1. Органические металлы (ОМ) семейства  $(BEDT-TTF)_2X$ , где X – моновалентный анион, а BEDT-TTF – бис(этилендитио)тетраэтиленфульвален, привлекают внимание исследователей по нескольким причинам. Например, в группе анионов  $M\text{Hg}(\text{SCN})_4$ , где  $M = K, Rb, NH_4$ , варьирование компоненты M позволяет изменять низкотемпературные свойства образца от сверхпроводимости ( $M = NH_4$ ) до антиферромагнитно упорядоченного состояния ( $M = K$ ) в пределах одного структурного класса [1]. С точки зрения электронных свойств данные ОМ представляют собой набор проводящих плоскостей, в которых движутся 2D-электроны и дырки, а проводимость в направлении, перпендикулярном плоскости слоев, пренебрежимо мала.

В последнее время значительные усилия были направлены на изучение поверхностей Ферми ОМ [1–3] с помощью осцилляционных и магнитооптических эффектов. В пионерской работе [3] для образца  $(BEDT-TTF)_2K\text{Hg}(\text{SCN})_4$  было зарегистрировано резонансное по магнитному полю поглощение излучения в диапазоне длин волн 430–950 мкм, которое было интерпретировано как циклотронный резонанс (ЦР) на 2D-дырках. При этом оказалось, что ЦР отвечают значения эффективных масс  $m_{CR}$ , в 2,4–5 раз меньшие величины  $m_{ShdH}$ , следующих из эффекта Шубникова–де Гааза (ШдГ). Такое гигантское расхождение послужило основанием для вывода о наличии в ОМ сильных ферми-жидкостных эффектов [3] и связанной с ними перенормировки эффективной массы.

Поскольку  $m_{ShdH}$  отвечает случаю  $\omega = 0$ , а  $m_{CR} - \omega \neq 0$  (где  $\omega$  – частота электромагнитного поля), представляло интерес исследовать резонансное магнитопоглощение в области более низких частот, в частности в миллиметровом диапазоне длин волн, с тем, чтобы проверить и уточнить результаты [3], в том числе относительно возможной перенормировки эффективной массы. Предметом настоящего сообщения является краткое изложение полученных нами данных.

<sup>1)</sup>J.Singleton, S.Blundell, M.Kurmoo, P.Day.

2. Известные до сих пор эксперименты по наблюдению резонансного магнитопоглощения в ОМ [3–6] были выполнены в геометрии, когда магнитное поле  $H$ , направление распространения электромагнитной волны  $k$  и вектор нормали  $n$  проводящей плоскости  $n$  были параллельны. Так как кристаллы ОМ обычно имеют малые размеры ( $\sim 1\text{ мм} \times 1\text{ мм} \times 50 - 100\text{ мкм}$ ), измерения проводились на мозаичных образцах. Очевидно, что в таких опытах возможно возбуждение не только циклотронного, но и электронного парамагнитного резонансов. Более того, неконтролируемые фазовые сдвиги, возникающие в мозаичном образце, способны существенно усложнить распределение интенсивности поля волны за образцом, которое регистрируется приемником, и тем самым сделать неоднозначной интерпретацию наблюдаемых эффектов.

С целью устранения указанных трудностей нами был создан специальный спектрометр. Излучение в диапазоне длин волн  $\lambda = 3,5 - 8\text{ мм}$  создавалось ЛОВ-генераторами со стабильностью  $10^{-4}$  и уровнем мощности около  $10\text{ мВт}$ , и по волноводу поступало внутрь криостата со сверхпроводящим магнитом, причем выполнялось условие  $H \parallel k$ . Образец ОМ помещался непосредственно на болометр, а для улучшения теплового контакта использовалась теплопроводящая смазка Arizon. Чувствительность автоматизированной системы регистрации позволяла фиксировать отклик отдельного монокристалла ОМ, и, следовательно, проблемы связанные с мозаичностью образцов в нашем случае отсутствовали.

Для разделения сигналов ЭПР и ЦР проводилось сравнение данных, полученных для  $n \parallel H$  и в случае, когда векторы  $n$  и  $H$  образуют некоторый угол  $\alpha$ . В качестве дополнительного теста для идентификации особенностей ЦР эксперименты выполнялись при  $T = 4,2\text{ К}$  и  $T = 1,8\text{ К}$ . Отметим, что такого рода данные для магнитооптических свойств ОМ в настоящее время в литературе отсутствуют. Объектом исследования являлись монокристаллы  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$ , физические свойства которых изучены наиболее подробно [1–3].

3. Установлено, что в данной схеме измерений излучение практически полностью поглощается кристаллом ОМ, а болометр регистрирует изменение температуры кристалла, пропорциональное поглощенной им мощности микроволнового излучения  $P$ . Типичные данные  $P(H)$  для различных значений  $\lambda$  и  $\alpha$  показаны на рис.1, 2. Видно, что в образце ОМ наблюдается значительное число резонансных особенностей (пики функции  $P(H)$ ) на фоне плавной составляющей, которая определяется частотными характеристиками резонатора, в котором располагается болометр с образцом.

Нами была выполнена идентификация отдельных мод  $\omega(H)$ , составляющих сложный спектр  $P(H, \lambda)$ , для чего помимо положения резонанса анализировалась также его форма и амплитуда. Результаты представлены на рис.3 в координатах  $\hbar\omega = f(H)$ , буквенное обозначение мод соответствует рис.1, 2.

Обращает на себя внимание, что моды  $\omega(H)$  образуют две различные группы. К первой относятся моды  $K, L, M, N$  и  $A$ , которые не экстраполируются к началу координат  $H = 0, \omega = 0$ , (рис.3а). Более того, производная  $d\omega/dH$  для мод  $K$  и  $L$  оказывается отрицательной, то есть  $\omega_{K,L}(H \rightarrow 0) \neq 0$ . В случае мод  $M, N$  и  $A$ , по-видимому, существует пороговое значение магнитного поля  $H \neq 0$ , выше которого возможно наблюдение данных особенностей. Интересно, что хорошо выраженная при  $T = 4,2\text{ К}$  мода  $A$  практически неразличима при  $T = 1,8\text{ К}$ , в то время как моды  $K, L, M, N$  отчетливо видны при обеих температурах.

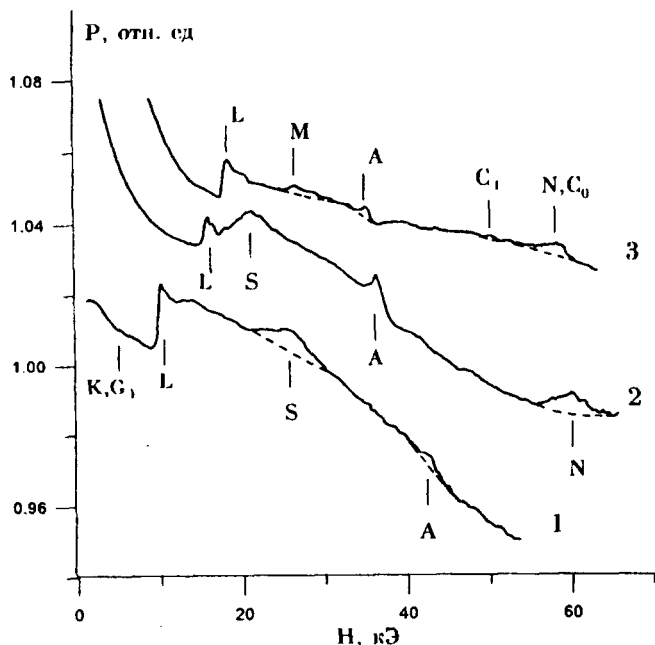


Рис.1. Магнитные резонансы у  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$  при  $T = 4,2 \text{ K}$  в геометрии  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{n} \parallel \mathbf{k}$  ( $\alpha = 0$ ). Кривая 1 -  $\lambda = 3,84 \text{ мм}$ ; 2 -  $4,83 \text{ мм}$ ; 3 -  $5,16 \text{ мм}$

Такое поведение не соответствует случаю ЦР или ЭПР, для которого  $\omega(H \rightarrow 0) = 0$  и, по нашему мнению, может быть связано с возбуждением антиферромагнитного резонанса (АФМР) [7]. Действительно, качественно структура мод на рис.3а соответствует возможным колебаниям антиферромагнетика с легкой осью [7], причем моды  $L$  и  $N$  можно отождествить с колебаниями неколлинеарного состояния  $+1_{\perp}$  и захлопнутого состояния  $+2_{\perp}$ , а моды  $K$  и  $M$  - с колебаниями антипараллельного состояния  $+0_{\parallel}$  и неколлинеарного опрокинутого состояния  $+1_{\parallel}$ , соответственно. Такое предположение качественно согласуется с данными [1], согласно которым ОМ  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$  является антиферромагнетиком с легкой осью, расположенной в проводящей плоскости  $a-c$  для  $T < T_N \sim 10 \text{ K}$ . В то же время одновременное возбуждение продольных и поперечных мод в геометрии  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{k} \parallel \mathbf{n}$  указывает на то, что легкая ось, по-видимому, наклонена к плоскости  $a-c$ . Аналогичные эксперименты с наклоненным образцом показали, что при  $\alpha = 44^\circ$  линии  $K, L, M, N$  практически не смещаются. В случае АФМР такого поведения следует ожидать, если легкая ось наклонена под углом  $\alpha \sim 22^\circ$  к нормали.

Сильная температурная зависимость моды  $A$ , по-видимому, отражает изменение магнитной структуры образца в интервале  $1,8 < T < 4,2 \text{ K}$ . Подробное исследование температурной зависимости этой моды, а также угловых зависимостей мод  $K, L, M, N$  является предметом дальнейших исследований.

Вторая группа мод удовлетворяет условию  $\omega(H \rightarrow 0) = 0$  (рис.3б). Моды  $G_0$  и  $S$  в пределах ошибки эксперимента совпадают с обнаруженными ранее в работе [3]. Помимо основной моды  $G_0$  в слабых магнитных полях наблюдаются еще две моды  $G_1$  и  $G_2$ , частоты которых приблизительно кратны  $G_0$ . Обнаружено, что положение особенностей  $G_{0,1,2}$  и  $S$  не зависит от угла наклона  $\alpha$ , что исключает их интерпретацию с помощью ЦР.

Специальные исследования показали, что резонансное магнитопоглощение в окрестности моды  $S$  имеет сложный характер и представляет собой супер-

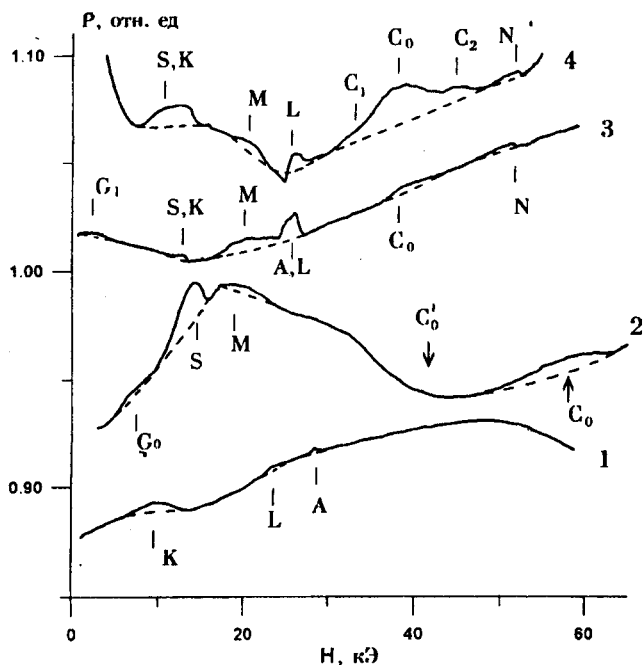


Рис.2. Влияние температуры и наклона образца на магнитные резонансы у  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$ . Кривая 1 -  $\lambda = 6,97$  мм,  $T = 4,2$  К,  $\alpha = 0$ ; 2 -  $\lambda = 6,97$  мм,  $T = 1,8$  К,  $\alpha = 44^\circ$ ; 3 -  $\lambda = 7,86$  мм,  $T = 4,2$  К,  $\alpha = 0$ ; 4 -  $\lambda = 7,86$  мм,  $T = 1,8$  К,  $\alpha = 0$ . Для кривой 2 кроме экспериментального положения моды  $C_0$  приведено ее положение  $C'_0$ , смещенное по закону  $\cos \alpha$ , отвечающее квантованию в нормальной составляющей магнитного поля (обозначены стрелками)

позицию двух близких линий, причем амплитуда одной из них растет при понижении температуры. Однако для обоих компонент зависимость от угла наклона отсутствует, более того, наблюдается возбуждение двух компонент моды  $S$  и моды  $G_0$  в случае, когда магнитное поле направлено параллельно проводящей плоскости  $ac$  и двумерное квантование орбитального движения не имеет места. Таким образом указанные особенности не могут быть связаны с ЦР.

Наиболее вероятно, что моды группы  $G$  отвечают спиновым волнам, а мода  $S$  - ЭПР на электронах проводимости. Действительно, мода  $S$  сильно уширена (рис.1, 2), что характерно именно для данного случая, когда размытие ЭПР возникает из-за сильного спин-решеточного взаимодействия и неоднородного распределения магнитного поля внутри образца вследствие скин-эффекта [8]. По экспериментальным данным для моды  $S$  было рассчитано значение  $g$ -фактора:  $g = 2,08 \pm 0,07$ , которое оказывается близким к величинам, характерным для ОМ [1-6].

В то же время в области магнитных полей  $H \sim 40-60$  кЭ наблюдаются моды  $C_0, C_1, C_2$ , амплитуда которых увеличивается при понижении температуры (ср. кривые 1, 2 и 3, 4 на рис.2). Кроме того, найдено, что моды этой группы смещаются вверх по шкале магнитного поля в  $(\cos \alpha)^{-1}$  раз (рис.2), то есть в этом случае за резонанс ответственна именно нормальная компонента поля  $H$ , величина которой определяет квантование орбитального движения 2D-носителей. Эти результаты показывают, что моды  $C_1, C_0, C_2$  наиболее вероятно обусловлены ЦР носителей тока с эффективными массами  $(2,38 \pm 0,09)m_0, (2,80 \pm 0,04)m_0, (3,29 \pm 0,08)m_0$ , соответственно.

Из данных по эффекту ШдГ для  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$  известно, что различным участкам 2D-поверхности Ферми отвечают эффективные массы  $1,5m_0, 2,0m_0$ , и  $2,4m_0$  [2,3]. Таким образом, эффект перенормировки массы

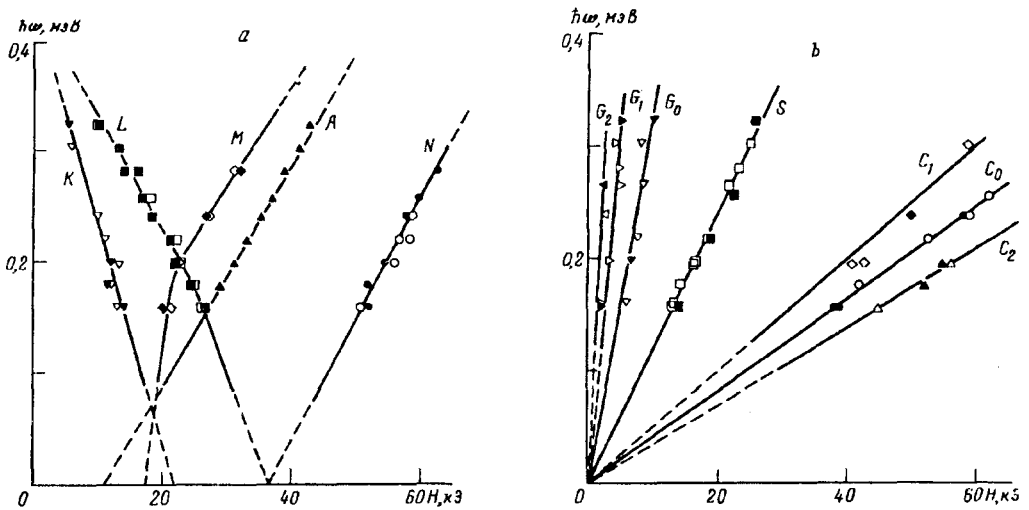


Рис.3. Структура мод  $\omega$   $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$ . Темные точки соответствуют  $T = 4,2\text{ K}$ , светлые -  $T = 1,8\text{ K}$ . Пояснения в тексте

в ОМ, по-видимому, действительно имеет место, но в отличие от данных [2-6] в  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$  эффективная масса увеличивается с частотой, причем всем трем массам отвечает близкий коэффициент перенормировки  $m_{CR}(\omega)/m_{ShdH}(0) = 1,4 - 1,6$ . Отметим, что такое поведение следует из некоторых теорий ферми-жидкости, в которых учитывается влияние спиновых и зарядовых флуктуаций [9].

Таким образом, в представленном исследовании определена структура магнитных резонансов в ОМ  $(\text{BEDT-TTF})_2\text{KHg}(\text{SCN})_4$  и показано, что она представляет собой сложную суперпозицию спиновых резонансов, в том числе, по-видимому, АФМР и ЦР на двумерных носителях заряда.

Авторы выражают свою благодарность Б.А.Волкову и Л.А.Фальковскому за полезные обсуждения, а также И.Б.Воскобойникову за помощь в проведении экспериментов. Работа выполнена в рамках международных проектов Royal Society, INTAS 93-2400 и INTAS 94-1788, а также при поддержке российской национальной программы "Фуллерены и атомные кластеры".

1. T.Sasaki and N.Toyota, Phys. Rev. B **49**, 10120 (1994).
2. F.L.Pratt, J.Singleton, M.Doporto et al., Phys. Rev. B **45**, 13904 (1992).
3. J.Singleton, F.L.Pratt, M.Doporto et al., Phys. Rev. Lett. **68**, 2500 (1992).
4. S.Hill, A.Wittlin, J. van Bentum et al., Synthetic Metals, in press (1995).
5. S.Hill, J.Singleton, F.L.Pratt et al., Synthetic Metals **55-57**, 2566 (1993).
6. J.Singleton, F.L.Pratt, M.Doporto et al., Physica B **184**, 470 (1993).
7. А.Г.Гуревич, Г.А.Мелков, Магнитные колебания и волны, М.: Наука, 1994, с.77.
8. С.А.Альтшулер, Б.М.Козырев, Электронный парамагнитный резонанс, М.: Наука, 1961, с.254.
9. T.Li, Phys. Rev. B **48**, 4991 (1993).