

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук

На правах рукописи
УДК 538.9

ГЕРАСИМЕНКО ЯРОСЛАВ АЛЕКСЕЕВИЧ

ПЕРЕХОДЫ МЕЖДУ СОСТОЯНИЯМИ
СВЕРХПРОВОДНИКА И АНТИФЕРРОМАГНИТНОГО
ИЗОЛЯТОРА В КВАЗИОДНОМЕРНЫХ ОРГАНИЧЕСКИХ
СОЕДИНЕНИЯХ

01.04.07 – Физика конденсированного состояния

АВТОРЕФЕРАТ
диссертации на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Москва — 2013

Работа выполнена в Лаборатории сильно-коррелированных электронных систем Отделении физики твёрдого тела Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук.

Научный руководитель: доктор физико-математических наук,
В. М. Пудалов (ФИАН).

Официальные оппоненты: доктор физико-математических наук,
Ю. И. Латышев (ИРЭ РАН);

доктор физико-математических наук,
А. Л. Рахманов (ИТПЭ РАН).

Ведущая организация: Федеральное государственное бюджетное
учреждение науки Институт проблем хими-
ческой физики Российской академии наук.

Защита диссертации состоится 20 января 2014 г. в 12 ч. 00 мин. на заседании диссертационного совета Д.002.023.03 при ФИАН по адресу: Российская Федерации, 119991, Москва, Ленинский проспект, д. 53, ФИАН, конференц-зал.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФИАН, с авторефератом – на сайте ФИАН www.lebedev.ru.

Автореферат разослан декабря 2013 г.

Учёный секретарь
диссертационного совета
Д.002.023.03 при ФИАН
доктор физико-математических наук,



М. А. Казарян

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Природа сверхпроводимости (СП) в сильно-коррелированных системах является одной из самых актуальных проблем современной физики конденсированного состояния. После открытия высокотемпературных сверхпроводников на основе меди было предположено, что близость магнетизма и сверхпроводимости на фазовой диаграмме в сочетании с пониженной размерностью должны играть особенную роль[1]. Позже, с открытием все новых соединений оказалось, что данная особенность является объединяющим свойством различных “нестандартных” сверхпроводников, в которых энергетическая щель зависит от направления импульса. В СП состоянии в нестандартных сверхпроводниках существуют возбуждения, которые присущи родительской, магнитной, фазе. При этом, характерный энергетический масштаб таких возбуждений коррелирует с температурой СП перехода[2].

Все это позволяет предположить, что магнетизм может вносить вклад в механизмы сверхпроводящего спаривания. Последнее в этом случае может быть построено на отталкивании (см. например [3]), а не на слабом притяжении за счет фононов. Таким образом, понимание природы сверхпроводящего состояния в самых разнообразных соединениях требует изучения того, каким именно образом оно зарождается из родительской магнитной фазы. Необходимость изучения пограничной области между этими двумя фазами определяет **актуальность темы** исследований.

В данной работе объектами исследования являются квазиодномерные (Q1D) органические соединения класса $(\text{TMTSF})_2X$ ($X = \text{PF}_6^-$, ClO_4^-). В $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ основным состоянием является волна спиновой плотности (ВСП) – изолятор с антиферромагнитным упорядочением спинов. При увеличении давления ВСП исчезает, а вместо нее устанавливается сверхпроводимость. В небольшом диапазоне по давлению вблизи критической точки было обнаружено co-существование с макроскопической сегрегацией фаз ВСП и металла (СП) [4, 5, 6]. Особый интерес вызывает возможное триплетное спаривание в этом соединении[7].

Большой интерес к этой проблеме отразился и в теоретических работах. Были предложены сценарии, основанные на различных вариационных [6, 8] и микроскопических[9] подходах. С учетом почти одномерного характера электронной системы эта задача рассматривалась также приближено с позиций

латтинжеровской жидкости[10] и образования солитонной фазы[11].

Экспериментальное исследование пространственной текстуры двухфазного состояния было призвано определить приоритет какой-либо из теорий, поскольку именно в этом вопросе их предсказания значительно расходятся. Тем не менее, недавние измерения транспортной анизотропии [12] показали противоречивые результаты, обнаружив формирование нитевидных СП доменов вдоль направления наихудшей проводимости в кристалле, что до сих пор не находит самосогласованного объяснения.

Важно отметить, что предложенные механизмы перехода от волны спиновой плотности к сверхпроводимости являются общими для Q1D систем и не ограничиваются случаем $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. В этой связи становится актуальным расширение области исследований на другие соединения данного класса. Необходимость дальнейшего изучения переходов между ВСП и СП в Q1D соединениях определяет **актуальность диссертационной работы**.

Цель.

Основная цель данной диссертации состоит в проверке универсальности механизма переходов между фазами волны спиновой плотности и сверхпроводника в Q1D органических соединениях и поиске общих параметров, которые определяют характеристики этих переходов. Основными задачами являлись:

1. Исследование роли трехмерной дисперсии в устойчивости волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$.
2. Изучение характера существования волны спиновой плотности и сверхпроводника в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ при вариации параметров, управляющих перемещением между фазами СП и ВСП на фазовой диаграмме.

Научная новизна и практическая значимость работы.

В работе впервые прямыми методами измерено энергетическое расщепление (димеризационная щель) V ветвей закона дисперсии, возникающее при упорядочении анионов в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. На основе этих измерений было получено прямое экспериментальное подтверждение теоретической модели[13], предсказывающей зависимость температуры установления волны спиновой плот-

ности от величины расщепления V . Данные наблюдения послужили основной для существенного пересмотра низкотемпературной фазовой диаграммы $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$, где управляющим параметром является степень анионного упорядочения. Обычно управляющим параметром в Q1D органических сверхпроводниках является давление, которое усиливает туннельную связь между одномерными молекулярными цепочками и тем самым изменяет форму поверхности Ферми. Упорядочение анионов, напротив, приводит к перераспределению зарядов между соседними цепочками, то есть к эффекту эквивалентному легированию. Таким образом, установление связи между температурой ВСП перехода и V является ключевым элементом для разработки новых инструментов исследования органических сверхпроводников.

В $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ при вариации анионного упорядочения впервые наблюдалось макроскопическое расслоение фаз, вызванное конкуренцией сверхпроводника и волны спиновой плотности вблизи критической точки последней. Обнаруженный в этом состоянии гистерезис между температурными зависимостями сопротивления при нагреве и охлаждении образца однозначно указывает на то, что расслоение происходит самосогласованно, а не вызвано неоднородностями анионного упорядочения. При приближении к критической точке наблюдался переход от одномерного к двумерному характеру доменных стенок в двухфазном состоянии. Подобный переход имеет место также в родственном соединении $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$, но возникает там при изменении давления. Измерения на $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ позволили разделить вклады деформаций решетки и избыточных носителей в фазовом расслоении и выявить общий параметр, который отвечает за образование двухфазного состояния. Эти результаты важны для построения теории переходов между ВСП и СП в Q1D соединениях. Более того, они являются платформой для исследования предсказанных теоретически[9, 14] вариантов трансформации сверхпроводящего состояния при переходе через критическую точку ВСП.

Основные положения, выносимые на защиту.

1. Установлено, что межслоевая дисперсия не вносит значимого вклада в подавление волн спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ даже вблизи границы со сверхпроводящей фазой на $P - T$ диаграмме.

2. На основе магнитотранспортных измерений в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ выявлена связь между температурой перехода в волну спиновой плотности и изменением димеризационной щели V , индуцированной упорядочением анионов. Тем самым была подтверждена предсказанная теоретически ключевая роль щели V в стабильности волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$.
3. Из транспортных и магнитотранспортных свойств $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ при различных степенях анионного упорядочения установлено, что вблизи границы фаз сверхпроводника и волны спиновой плотности происходит макроскопическое разделение фаз в реальном пространстве. Это позволяет унифицировать фазовые диаграммы соединений $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ и $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$, где роль давления играет димеризационная щель, которая сокращается при уменьшении степени анионного упорядочения.
4. Обнаружено, что при варьировании беспорядка, по мере подавления волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ сверхпроводящие области сначала образуются в межслоевом c направлении, затем объединяются в полоски в плоскости $b - c$, перпендикулярные направлению a вдоль цепочек. На основе теории солитонной фазы предложена качественная модель, объясняющая такого рода пространственную анизотропию сверхпроводящей фазы. С учетом ряда допущений рассмотрена также альтернативная трактовка, связанная с неоднородными деформациями в образце, возникающими вблизи критической точки волны спиновой плотности.

Апробация работы.

Работа докладывалась на семинарах в ФИАН, а также на международных конференциях: MagnetoSciene (Наймеген, Нидерланды, 2009), Low-Dimensional Metallic and Superconducting Systems (Черноголовка, 2009), Strongly Correlated Systems in High Magnetic Fields (Лез Уш, Франция, 2012), Mesoscopic and strongly correlated electron systems (Черноголовка, 2012), Fundamentals of electronic nanosystems (Санкт-Петербург, 2012) и на симпозиуме по органическим системам ISCOM (Монреаль, Канада, 2013).

Публикации.

Результаты работы опубликованы в 2 статьях из списка ВАК и одном прринте, а также в тезисах 6 конференций. Список публикаций приведен в конце авторефера.

Личный вклад автора.

Личный вклад автора заключается в выборе направления и объектов исследования, формулировке и постановке задач, выборе и разработке методов решения поставленных задач, в решающем участии в проведении экспериментов, обработке и интерпретации полученных результатов, написании статей, а также подготовке и представлении докладов по материалам исследований.

Структура и объем диссертации.

Диссертация содержит 7 глав, 135 страниц, 25 рисунков, 1 таблицу, 140 библиографических записей в списке литературы.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ.

Во **введении** дается обоснование актуальности работы, кратко описывается предмет изучения, формулируется основная цель и объясняется выбор объектов исследования. После этого излагаются предлагаемые методы и подходы, а также структура и содержание диссертации.

В **главе 2 “Обзор ранее полученных результатов”** в трех разделах последовательно дается обзор экспериментальных данных о свойствах волны спиновой плотности, сверхпроводимости и переходов между этими состояниями, рассматриваются теоретические модели. В конце каждого раздела формулируются основные нерешенные вопросы.

В **главе 3 “Методика эксперимента”** описываются образцы, техника высоких давлений, измерительные и криомагнитные системы. Далее подробно излагается методика измерения малых сопротивлений в магнитном поле при низких температурах. В конце главы рассматриваются физические аспекты и способы управления степенью анионного упорядочения в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$.

Глава 4 “Анизотропия установления волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в магнитном поле” посвящена экспериментальному изучению роли трехмерной дисперсии в стабильности ВСП в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Когда сверхпроводимость возникает на фоне состояния коррелированного изолятора, то одним из принципиальных вопросов является происхождение избыточных носителей заряда, образующих куперовскую пару. В трехмерном случае устойчивость ВСП определяется конгруэнтностью (нестингом) поверхности Ферми (ПФ).

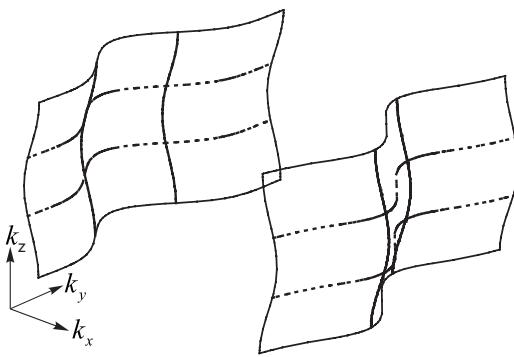


Рис. 1: Квазиодномерная поверхность Ферми в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$.

В основе структуры Q1D систем лежат образованные сильной ковалентной связью между молекулами одномерные цепочки (ось a). Они образуют слои, которые, в свою очередь, упакованы в трехмерный кристалл. При этом туннельная связь между цепочками внутри слоя (ось b) – сильнее, чем между слоями (ось c). В такой системе ПФ представляет собой два слабо гофрированных листа и при малых значениях туннельной связи обладает свойством идеального нестинга.

Применительно к этому случаю в работе [15] была предложена теория, согласно которой температура перехода в ВСП снижается за счет увеличения локальных отклонений от идеального нестинга с ростом давления. Этот процесс происходит до тех пор, пока отклонения не достигнут критической величины (при давлении $P = P_c$) и ВСП не исчезнет. Эта теория в дальнейшем была расширена и подтверждена экспериментально (см. например [16]). Таким образом, неидеальный нестинг и является основным источником надщелевых носителей.

Метод исследования отклонений от идеального нестинга базируется на теории неустойчивости металлического состояния в пользу образования ВСП в магнитном поле[17] и ее обобщении[18]. В основе теории лежит фундаментальная особенность Q1D спектра – изменение его размерности ($3D \rightarrow 2D$) в магнитном поле[19]. В поле, приложенном перпендикулярно оси молекулярных цепочек, $H \perp a$, орбиты на ПФ являются открытыми. Периодическое движение по ним приводит к эффективному усреднению внутри- и/или

межслоевой дисперсии (в зависимости от ориентации поля) и, как следствие, уменьшению эффекта отклонений от идеального нестинга ПФ с ростом поля. В работах[18, 20] было теоретически показано, что в магнитном поле $H \perp a$ температура установления ВСП, T_{SDW} , возрастает. При этом оказывается, что эффект тем сильнее, чем ближе система находится к критической точке ВСП.

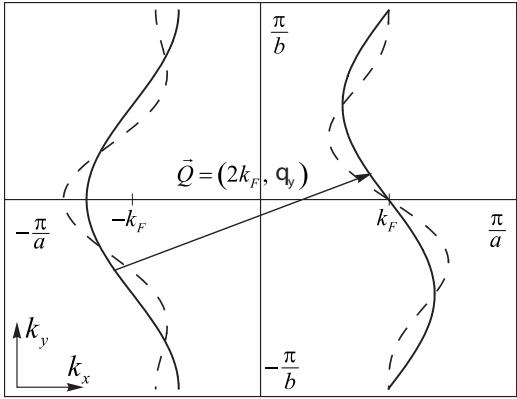


Рис. 2: Двумерное сечение поверхности Ферми в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. Сплошной линией показан случай идеального нестинга, пунктирной – неидеального с $t'_b \neq 0$. Вектор нестинга Q может оставаться неизменным с ростом неидеальностей.

Q_z в пределах точности оказалось близким к нулю. Особый интерес к этой гипотезе вызван измерениями анизотропии пространственной текстуры в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [12], где было обнаружено формирование доменов вдоль оси c .

Предыдущие попытки[21] измерить вклад трехмерной дисперсии в устойчивость ВСП в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ не показали роста $T_{SDW}(H \parallel b')$, что говорит о малом влиянии t_c . Однако, эти измерения проводились при $P = 0$ вдали от критической точки ВСП, где температура перехода $T_{SDW} = 12\text{ K}$ незначительно отличается от случая идеального нестинга, $T_{SDW0} = 16\text{ K}$, и эффект магнитного поля – мал. Если вклад трехмерной дисперсии и существует, то его измерения нужно проводить при давлениях, близких к критическому $P_c = 6.5\text{ кбар}$. С этой целью нами были проведены измерения зависимостей $T_{SDW}(H)$ для трех ориентаций магнитного поля a, b', c^* при нормальном давлении и $P = 5\text{ кбар}$. Измерения проводились на трех образцах, все из кото-

Для успешного описания свойств ВСП обычно достаточно учитывать неидеальности нестинга, описываемые самым большим из туннельных интегралов второго порядка[15, 21] в спектре, $t'_b = t_b^2/t_a$. Он отвечает за перескоки между следующими за ближайшими цепочками внутри слоя и его увеличение под давлением эквивалентно росту степени двумерности ПФ (см. Рис. 2). С

другой стороны, малость межслоевого интеграла $t_c \sim t'_b$ позволяет предположить, что Q_z компонента вектора нестинга либо равна нулю, либо не фиксирована, то есть t_c также является отклонением от идеального нестинга. В пользу этой гипотезы говорят ЯМР исследования, в которых значение

Q_z в пределах точности оказалось близким к нулю. Особый интерес к этой гипотезе вызван измерениями анизотропии пространственной текстуры в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [12], где было обнаружено формирование доменов вдоль оси c .

рых показали в итоге схожее поведение. Ниже приведены данные лишь для ограниченного набора параметров, демонстрирующие результаты, полученные впервые.

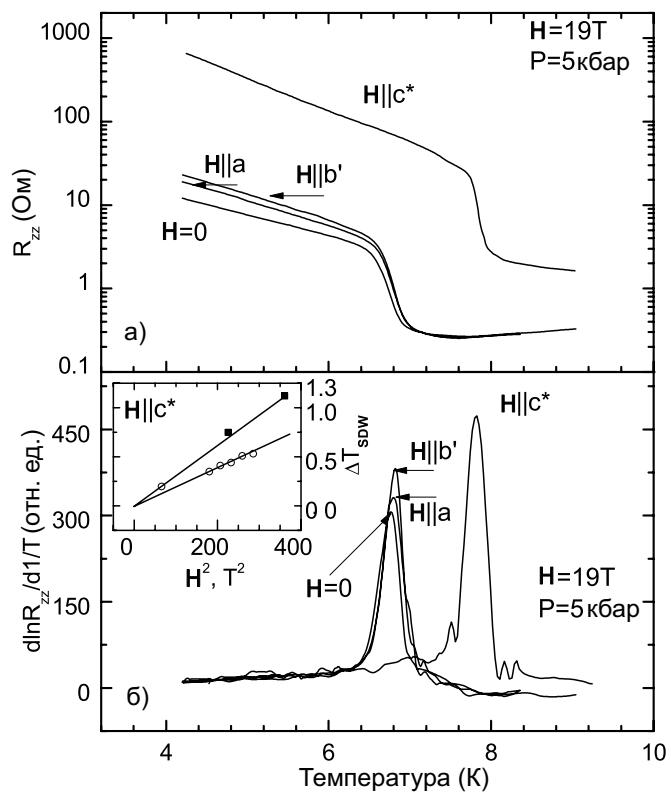


Рис. 3: Температурные зависимости (а) $R_{zz}(T)$ и (б) производных $d \ln R_{zz} / d(1/T)$ в нулевом и в поле $H = 19$ Тл для в ориентациях a, b', c^* . На вставке к панели (б) показана полевая зависимость сдвига $T_{SDW}(H\|c^*)$ при давлении $P = 0$ (круги) и $P = 5$ кбар (квадраты).

ствует вообще, либо очень слабая (по крайней мере в 20 раз слабее, чем для ориентации $H\|c^*$) даже вблизи критического давления и в поле $H = 19$ Тл. Этот результат подтверждает допущение теорий о том, что T_{SDW} определяется отклонениями от идеального нестинга и самый большой вклад вносит член t'_b в электронном спектре, а роль трехмерной дисперсии в стабильности волны спиновой плотности – крайне мала.

Глава 5 “Со существование волны спиновой плотности и сверхпроводимости в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ ” посвящена изучению роли анионного упорядочения, как управляющего параметра на низкотемпературной фазовой диа-

На Рис. 3а показаны низкотемпературные зависимости $R_{zz}(T)$ при давлении 5 кбар в нулевом поле и в поле $H = 19$ Тл в ориентациях a, b', c^* . Переход в ВСП виден по резкому увеличению сопротивления вблизи $T \approx 6.5$ К и последующему экспоненциальному росту при понижении температуры. Температура перехода оценивалась по максимуму производной $d \ln R_{zz} / d(1/T)$ (Рис. 3б). В ориентации $H\|c^*$ наблюдается существенный рост T_{SDW} , более сильный по сравнению с $P = 0$ (см. вставку к Рис. 3б). Такое поведение согласуется с предсказаниями теории[20] и измерениями других групп (например, [21]).

Основной результат состоит в том, что зависимость температуры перехода от магнитного поля в ориентациях $H\|a$ и $H\|b'$ либо отсут-

граммме. Соединение $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ имеет в своей структуре тетраэдрический анион ClO_4^- , у которого отсутствует центр инверсии и имеется встроенный дипольный момент. При температуре $T_{AO} \approx 24\text{ K}$ происходит структурный переход, в котором анионы упорядочиваются с волновым вектором $q = (0, 1/2, 0)$. Это сопровождается также периодическим смещением анионов ближе к молекулам TMTSF, что приводит к перераспределению в последних плотности заряда. В результате, соседние молекулярные цепочки становятся неэквивалентными и закон дисперсии расщепляется на две ветви (см. Рис. 4). В такой анион-упорядоченной фазе нестинг ПФ нарушен, так что ВСП подавлена и основным состоянием является сверхпроводимость.

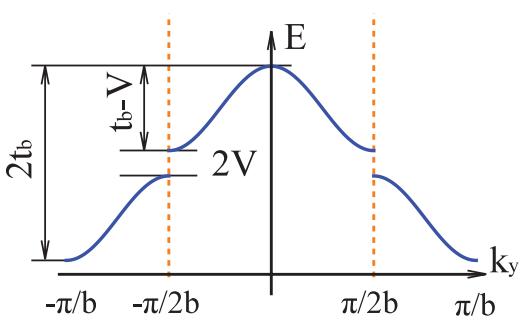


Рис. 4: Расщепление исходного ($2t_b$) закона дисперсии на две ветви ($t_b - V$) в результате упорядочения анионов в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$.

Структурный переход происходит за конечное время[22]. По этой причине при быстром охлаждении образца вблизи T_{AO} оказывается возможным заморозить высокотемпературный беспорядок, тогда как для упорядочения анионов требуется большое время. Это приводит к необычной низкотемпературной фазовой диаграмме в зависимости от скорости охлаждения, где при больших скоростях наблюдается ВСП, при промежуточных – двухфазное состояние СП/ВСП, а при малых – однородная СП[23].

В ранних измерениях на $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ не было обнаружено характерных для $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ признаков пространственного расслоения фаз и двухфазное состояние при промежуточных скоростях охлаждения было приписано образованию малых анион-упорядоченных включений[23]. Они являются неизбежным следствием медленной кинетики структурного перехода и позже действительно наблюдались в экспериментах по рентгеновской дифракции[22].

Более поздние измерения зависимости $T_{SDW}(H)$ в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ привели к созданию теории[13], которая рассматривала подавление ВСП как следствие усиления расщепления в спектре с ростом степени упорядочения анионов. В этом случае следовало бы ожидать фазового расслоения вблизи критической точки ВСП, подобно ситуации в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ под давлением. Для разрешения этого противоречия в данной главе представлены результаты нескольких

видов (магнито)транспортных измерений для того чтобы охарактеризовать в прямом и обратном пространстве сосуществование фаз ВСП и металла/СП при различных беспорядках.

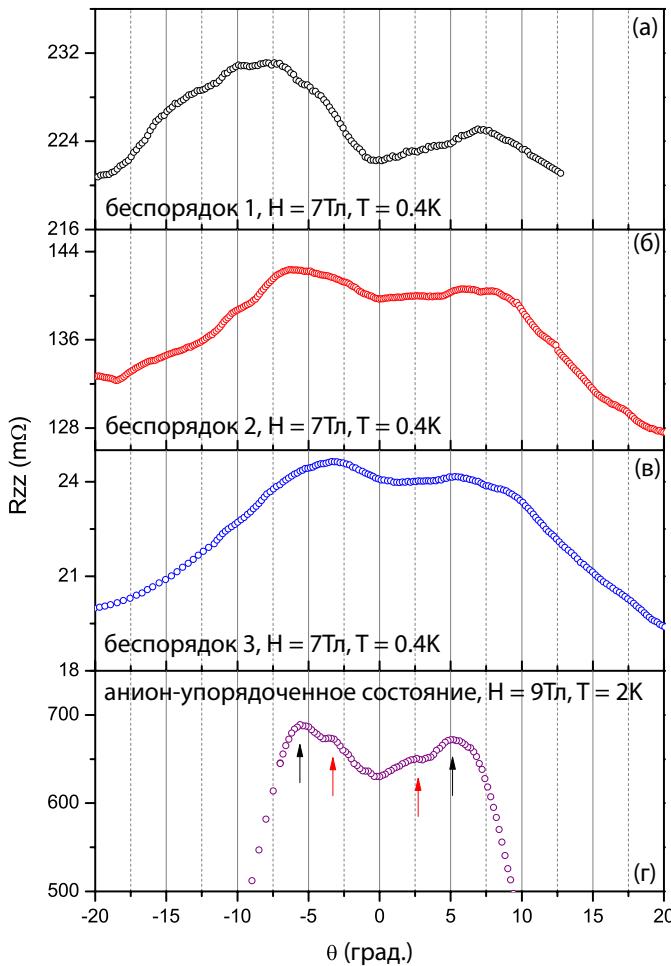


Рис. 5: Угловые зависимости магнитосопротивления R_{zz} при вращении магнитного поля в плоскости $a - c$; $\theta = 0$ при $H \parallel a$. Панели (а)-(г) показывают результаты для различных анионных беспорядков в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$: слабых (г) до сильных (а). Черные и красные стрелки на панели (г) указывают резонансы нулевого и первого порядков.

равна $t_b - V$ (см. Рис. 4). Следовательно, на основе измерения AMRO-эффекта в $a - c$ плоскости мы можем напрямую отслеживать изменения пространственно-усредненного значения щели V . Из Рис. 5а-в видно, что при усилении беспорядка пики расходятся в сторону друг от друга, что напря-

Для проведения таких экспериментов необходимо было вначале выяснить, возможно ли непрерывно изменять степень анионного упорядочения и, как следствие, расщепление спектра V при вариации скорости охлаждения. Для этого необходимо проследить как меняется ПФ с беспорядком. Угловые зависимости магнитосопротивления (AMRO) являются основным средством для получения информации о структуре ПФ в Q1D металлах. На Рис. 5 показаны результаты измерения AMRO-эффекта в R_{zz} , полученные при вращении магнитного поля в плоскости $a - c$. Как видно из Рис. 5г, несколько отчетливых пиков расположены proximity orientation $H \parallel a$ на фоне монотонной косинусоиды при очень слабом беспорядке. Угловое расстояние между пиками нулевого порядка пропорционально ширине зоны в направлении k_y : $\tan \theta_0 = t_y c / 2.41 h v_F$ [24]. В присутствии анионного беспорядка ширина зоны

мую указывает на уменьшение расщепления зон V . Этот результат получен впервые.

Получив инструмент для количественного описания физики анионного беспорядка на следующем этапе необходимо было охарактеризовать состояние, возникающее вблизи границы фаз СП и ВСП. Для этого были проведены транспортные измерения при вариации степени анионного упорядочения в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. Гистерезис на температурных зависимостях межслоевого сопротивления указывает на фазовый переход первого рода между металлом (СП) и ВСП. На основе измерения двух компонент сопротивления было установлено, что металлическая (СП) фаза, которая образуется при пересечении этой границы, имеет сильную пространственную анизотропию. При сильных беспорядках эта фаза существует в виде областей, вытянутых преимущественно в межслоевом направлении (c), тогда как вдоль оси a сохраняется поведение изолятора присущее ВСП. Критическое поле в таких областях усилено по сравнению с однородным сверхпроводящим состоянием, что указывает на сокращение размеров сверхпроводящих областей по мере стабилизации ВСП при увеличении беспорядка.

В то же время, измерения АМРО в полях выше H_{c2} показывают, что в металлических (СП) областях анионы ClO_4 по большей части не упорядочены, а димеризационная щель V – меньше, чем в упорядоченном состоянии. Более того, мы напрямую наблюдаем уменьшение щели по мере того, как при увеличении беспорядка переход в волну спиновой плотности сдвигается в более высокие температуры. Эти результаты демонстрируют, что существование СП/ВСП в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ управляется величиной димеризационной щели V (подобно роли t'_b в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$), а не структурными неоднородностями, возникающими при упорядочении анионов. Это позволяет объединить картины существования волны спиновой плотности и сверхпроводимости в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ и в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ или $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$. В то же время, $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ представляет собой особенное соединение, где конкуренцию между магнитным изолятором и сверхпроводником можно изучать при помощи непрерывного изменения степени анионного упорядочения, не оказывая влияния на зонную структуру приложением давления.

В главе 6 “**Пространственная структура сверхпроводящей фазы в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$** ” основное внимание сосредоточено на изучении анизотропии

пространственной текстуры двухфазного состояния метал(СП)/ВСП. В основе лежит развитый в предыдущей главе метод, позволяющий плавно управлять устойчивостью волны спиновой плотности за счет вариации анионного упорядочения. Преимущество этого метода состоит в том, что единственный параметр, который при этом изменяется в системе – это величина расщепления спектра V . Напротив, в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ давление не только ухудшает нестинг, но и изменяет параметры кристаллической решетки. Эта связь не позволяет разделить влияние изменения в целом числа избыточных носителей от особенностей деформации решетки и соответствующих вкладов различных туннельных интегралов. Таким образом, измерения пространственной текстуры в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ позволяют выявить параметр, который отвечает за анизотропию и фазовое расслоение.

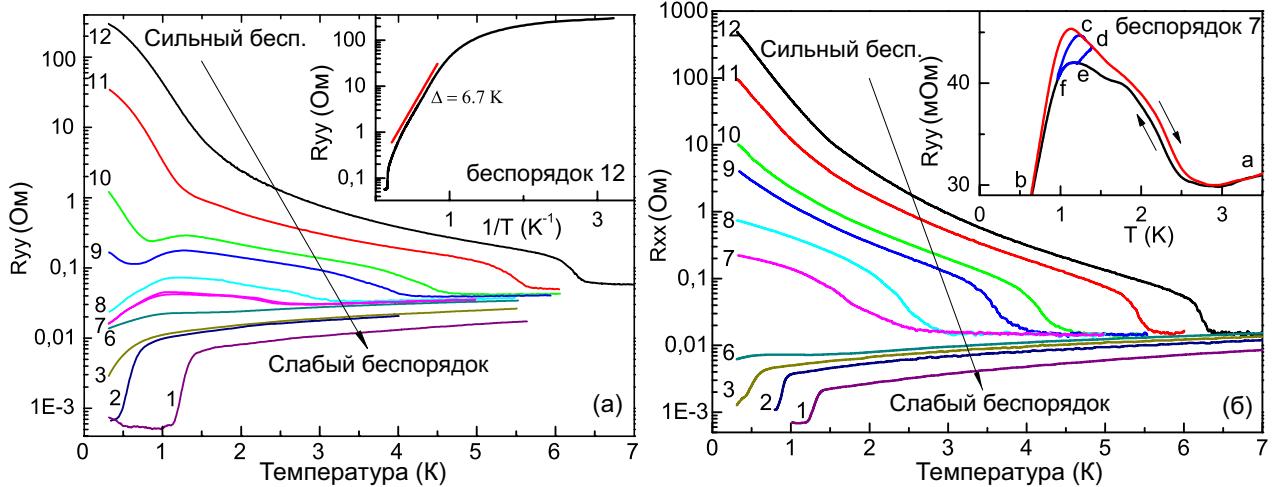


Рис. 6: Температурные зависимости внутрислоевых (а) R_{yy} и (б) R_{xx} сопротивлений для различных беспорядков в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$. На вставке к графику (а) приведена в Аррениусовых координатах зависимость $R_{yy}(T)$ для самого сильного беспорядка. Вставка к графику (б) демонстрирует гистерезис на зависимости $R_{yy}(T)$ для беспорядка #7. Приведены две траектории разворота температуры: (а-е-ф-б-с-д-а), включающая в себя $T_{SDW} \approx 2 \text{ K}$, и (с-д-е-ф-с), полностью лежащая при $T < T_{SDW}$.

Прямым способом изучения эволюции текстуры двухфазного состояния было бы измерение трех компонент сопротивления R_{xx} , R_{yy} и R_{zz} на разных образцах при варьировании беспорядка. Этот подход, однако, требует точного определения степени упорядочения, что представляет собой сложную задачу. Вместо этого мы в одном и том же образце измеряли сразу две компоненты сопротивления: R_{xx} - R_{zz} и R_{xx} - R_{yy} . Это позволяет напрямую определить эволюцию анизотропии текстуры в плоскостях $a - b$ и $a - c$. Для получения

данных об анизотропии в плоскости $b - c$ транспортные измерения проводились на двух образцах, охлажденных одновременно, и дополнялись измерением зависимостей $H_{c2}(T)$ при различных беспорядках. Во всех измерениях для плавного увеличения степени упорядочения использовался постепенный отжиг первоначально быстро охлажденных образцов.

Пример таких измерений представлен на Рис. 6, где показана эволюция с беспорядком температурных зависимостей сопротивления в плоскости $a - b$: $R_{xx}(T)$ и $R_{yy}(T)$. При больших беспорядках в $R_{yy}(T)$ наблюдается активационная зависимость, характерная для ВСП (см. вставку к Рис. 6а). Замедление роста возникает лишь при $T \approx 1\text{ K}$. С понижением беспорядка такое поведение эволюционирует сначала в провал а потом в загиб вниз на температурной зависимости. Эта особенность исчезает в магнитном поле и, таким образом, связана с установлением сверхпроводимости. В $R_{xx}(T)$ при тех же самых беспорядках, напротив, подобных особенностей не наблюдается (см. Рис. 6б). Это позволяет утверждать, что сверхпроводящие домены вытянуты в направлении оси b в плоскости $a - b$.

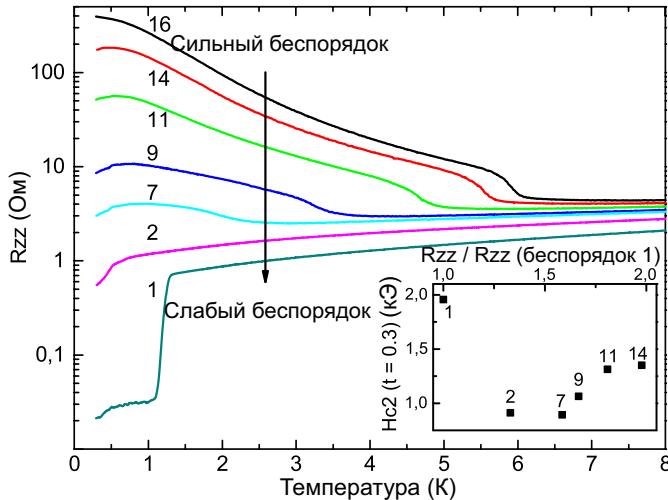


Рис. 7: Температурные зависимости R_{zz} для набора беспорядков. На вставке приведено поведение $H_{c2}\parallel c^*$ при нормированной температуре $T/T_c = 0.3$ для тех же самых беспорядков. H_{c2} определялось по началу (99%) перехода в $R_{zz}(H)$. Беспорядки на горизонтальной оси характеризуются по отношению сопротивления $R_{zz}(T = 8\text{ K})$ к нему же в анион-упорядоченном состоянии.

На вставке к Рис. 7 приведена зависимость $H_{c2}\parallel c^*$ при низких температурах от степени упорядочения. Известно, что величина критического поля чувствительна к пространственным размерам СП доменов в плоскости $a - b$. Из рисунка видно, что критическое поле практически не изменяется в то время как на зависимости $R_{zz}(T)$ (см. Рис. 7) постепенно проявляется связанный с развитием сверхпроводимости загиб вниз. При дальнейшем понижении беспорядка H_{c2} уменьшается, что свидетельствует о начале роста СП доменов в плоскости $a - b$.

На основе проведенных измерений можно сделать следующие вы-

воды: (i) металлические (СП) области возникают внутри мажоритарной фазы ВСП изначально в виде квази-одномерных нитей, вытянутых в межслоевом (*c*) направлении; (ii) эти области сливаются в листы в плоскости *b* – *c* по мере дальнейшего подавления ВСП в более слабых беспорядках; (iii) несмотря на то, что температурные зависимости демонстрируют гистерезис в двухфазном состоянии (см. вставку к Рис. 6б), пространственная текстура не зависит от направления изменения температуры, т.е. от предыстории. Более того, (iv) небольшие анион-упорядоченные включения, неизбежно возникающие внутри однородно разупорядоченной структуры, увеличивают долю металлической фазы (как видно, например, из отклонения температурной зависимости от активационной при сильных беспорядках), но не влияют на пространственную анизотропию. Сходство анизотропии пространственной текстуры в наших измерениях на $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ и в измерениях Кэнга и др.[12] в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ позволяет говорить о том, что свойства (i)-(iii) присущи сосуществованию металла(СП) и ВСП в различных органических квази-одномерных системах.

Полученные результаты позволяют пересмотреть ряд ранее предложенных теорий. Никакой специальной пространственной структуры двухфазного состояния не предполагается в рамках таких подходов как $\text{SO}(4)$ симметрия[10] или формирование полуметалла в ВСП[9]. В ряде других теорий такая структура вводилась исходя из выигрыша в энергии СП фазы[6], взаимной модуляции параметров порядка СП и ВСП[8] или вариации параметра порядка ВСП в солитонной фазе (СФ)[11]. Наконец, в рамках вариационного подхода[4], где энергия ВСП зависит от деформаций решетки, анизотропию двухфазного состояния можно связать с анизотропией кристаллической решетки.

Аргументация теорий [6, 8], однако, неприменима к расслоению металла и ВСП при температурах выше СП перехода. В данной работе было показано, что сценарий[4] может объяснить наблюдаемую анизотропию, но лишь при специальном выборе параметров решетки и ВСП. Наконец, теория СФ[11] предполагает образование металлических (СП) доменных стенок перпендикулярно оси *a*, однако не предсказывает существования квази-одномерных доменов. В данной работе было дано качественное объяснение наблюдаемой анизотропии в рамках модели солитонной фазы. Предложенный сценарий применим в общем случае к Q1D системам и, на данный момент, наилучшим образом объясняет полученные экспериментальные результаты.

В главе 7 “Заключение” сформулированы основные результаты и обсуждаются дальнейшие перспективы исследований по данной теме:

1. При нормальном давлении и при $P = 0.5\text{ГПа}$ измерена анизотропия температуры перехода в волну спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в зависимости от ориентации магнитного поля. Установлено, что сдвиг температуры перехода отсутствует или крайне мал когда магнитное поле направлено вдоль слоев. Следовательно, межслоевая дисперсия не вносит значимого вклада в подавление волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ даже вблизи границы со сверхпроводящей фазой под давлением.
2. Прямыми измерениями угловых зависимостей магнитосопротивления в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ показано, что димеризационная щель уменьшается при снижении степени анионного упорядочения. Обнаружено качественное согласие с теоретической зависимостью температуры перехода в фазу волны спиновой плотности от величины димеризационной щели.
3. На основе (магнито)транспортных измерений в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ при различных степенях анионного упорядочения установлено, что в небольшом диапазоне по анионному упорядочению имеет место макроскопическое расслоение фаз, которое сопровождается гистерезисом температурных зависимостей сопротивления, сильной анизотропией пространственной текстуры в сверхпроводящей фазе и возрастанием критических полей. Такое поведение аналогично наблюдаемому в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ под давлением, только в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ его роль играет димеризационная щель. Это позволяет говорить об универсальности механизма переходов между волной спиновой плотности и сверхпроводником в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ и $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$.
4. Обнаружено, что при варьировании беспорядка, по мере подавления волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ сверхпроводящие области сначала образуются в межслоевом с направлении, затем объединяются в полоски в плоскости $b - c$, перпендикулярные направлению a вдоль цепочек. Установлено, что такого рода анизотропия свойственна для Q1D систем и возникает в результате перестройки двухфазного состояния при увеличении количества делокализованных носителей. На основе теории

солитонной фазы предложена качественная модель, объясняющая такого рода пространственную анизотропию сверхпроводящей фазы. С учетом ряда допущений предложена альтернативная трактовка, связанная с неоднородными деформациями в образце, возникающими вблизи критической точки волны спиновой плотности.

Полученные результаты опубликованы в следующих работах.

Статьи:

1. Anisotropy of the Spin-Density Wave Onset in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ in Magnetic Field / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, V. N. Zverev, A.-K. Klehe, J. S. Qualls // Physical Review B. – 2009. – Vol. 80. – P. 184417.
2. Role of Anion Ordering in the Coexistence of Spin-Density Wave and Superconductivity in $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, S. V. Sanduleanu, J. S. Qualls and V. M. Pudalov // Письма в ЖЭТФ. – 2013. – Том 97. – Стр. 585. (JETP Letters. – 2013. – Vol. 97. – P. 419.)
3. Coexistence of Superconductor and Spin-Density Wave in $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$: Spatial Structure of the Two-phase State / Ya. A. Gerasimenko, S. V. Sanduleanu, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, J. Yamada, J. S. Qualls and V. M. Pudalov // arXiv:1310.3710. – 2013.

Доклады на конференциях:

1. Anisotropy of the spin-density wave onset in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ in magnetic field / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, V. N. Zverev, A. Ardavan, A.-K. Klehe, J.S. Qualls // I.F. Schegolev Memorial Conference “Low-Dimensional Metallic and Superconducting Systems”. – 2008. – P. 73
2. Anisotropy of the spin-density wave onset in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ in magnetic field / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, V. N. Zverev, A. Ardavan, A.-K. Klehe, J.S. Qualls // I.F. Schegolev Memorial Conference “Low-Dimensional Metallic and Superconducting Systems”. – 2008. – P. 73

- dalov, V. N. Zverev, A. Ardavan, A.-K. Klehe, J.S. Qualls // International Conference on MagnetoScience, Nijmegen, Netherlands. – 2009. – P. 94.
3. Filamentary superconductivity at the superconductor - antiferromagnetic insulator transition tuned by anion disorder in $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, P. D. Grigoriev // Strongly-correlated Systems in High Magnetic Fields, Les Houches, France. – 201. – P. 29.
 4. Disorder-tuned Transition from Bulk through Filamentary Superconductivity to AF insulator in Q1D metal / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov // Advanced Research Workshop “MESO-2012”: Mesoscopic and strongly correlated electron systems - 6. – 2012. – P. 41.
 5. Disorder-tuned Transition from Bulk through Filamentary Superconductivity to AF insulator in Q1D metal / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov // 8th Advanced Research Workshop “Fundamentals of Electronic Nanosystems” NanoПитер-2012. – 2012. – P. 40.
 6. Coexistence of superconductivity and spin-density wave in $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ tuned by anion ordering / Ya. A. Gerasimenko, V. A. Prudkoglyad, A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, J. S. Qualls, P. D. Grigoriev // The 10th International Symposium on Crystalline Organic Metals Superconductors and Magnets (ISCOM2013). – 2013. – P. 2.

Список цитируемой в автореферате литературы

- [1] Norman M. J. The challenge of unconventional superconductivity // Science. — 2011. — Vol. 332. — P. 196.
- [2] Uemura Y. J. Superconductivity: Commonalities in phase and mode // Nat. Mater. — 2009. — Vol. 8. — P. 253–255.
- [3] Hirschfeld P. J., Korshunov M. M., Mazin I. I. Gap symmetry and structure

of Fe-based superconductors // Reports on Progress in Physics. — 2011. — Vol. 74, no. 12. — P. 124508.

- [4] Coexistence of superconductivity and spin density wave orderings in the organic superconductor $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ / Vuletić, T., Auban-Senzier, P., Pasquier, C. et al. // Eur. Phys. J. B. — 2002. — Vol. 25, no. 3. — P. 319–331.
- [5] Macroscopically inhomogeneous state at the boundary between the superconducting, antiferromagnetic, and metallic phases in quasi-one-dimensional $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ / A. V. Kornilov, V. M. Pudalov, Y. Kitaoka et al. // Phys. Rev. B. — 2004. — Vol. 69. — P. 224404.
- [6] Coexistence of superconductivity and antiferromagnetism probed by simultaneous nuclear magnetic resonance and electrical transport in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ system / I. J. Lee, S. E. Brown, W. Yu et al. // Phys. Rev. Lett. — 2005. — Vol. 94. — P. 197001.
- [7] Triplet superconductivity in an organic superconductor probed by NMR knight shift / I. J. Lee, S. E. Brown, W. G. Clark et al. // Phys. Rev. Lett. — 2001. — Vol. 88. — P. 017004.
- [8] Zhang W., de Melo C. A. R. S. Coexistence of triplet superconductivity and spin density waves // Phys. Rev. Lett. — 2006. — Vol. 97. — P. 047001.
- [9] Grigoriev P. D. Properties of superconductivity on a density wave background with small ungapped Fermi surface parts // Phys. Rev. B. — 2008. — Vol. 77. — P. 224508.
- [10] SO(4) theory of antiferromagnetism and superconductivity in Bechgaard salts / D. Podolsky, E. Altman, T. Rostunov, E. Demler // Phys. Rev. Lett. — 2004. — Vol. 93. — P. 246402.
- [11] Gor'kov L. P., Grigoriev P. D. Soliton phase near antiferromagnetic quantum critical point in Q1D conductors // EPL (Europhysics Letters). — 2005. — Vol. 71, no. 3. — P. 425.
- [12] Domain walls at the spin-density-wave endpoint of the organic superconductor $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ under pressure / N. Kang, B. Salameh, P. Auban-Senzier et al. // Phys. Rev. B. — 2010. — Vol. 81. — P. 100509.

- [13] Zanchi D., Bjeliš A. New SDW phases in quasi-one-dimensional systems dimerized in the transverse direction // EPL (Europhysics Letters). — 2001. — Vol. 56, no. 4. — P. 596.
- [14] Gor'kov L. P., Grigoriev P. D. Nature of the superconducting state in the new phase in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ under pressure // Phys. Rev. B. — 2007. — Vol. 75. — P. 020507.
- [15] Yamaji K. Semimetallic SDW state in quasi one-dimensional conductors // Journal of the Physical Society of Japan. — 1982. — Vol. 51, no. 9. — P. 2787–2797.
- [16] Biškup N., Tomić S., Jérôme D. Spin-density-wave state of tetramethyltraselenafulvalinium phosphate $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$: Pressure and magnetic-field effects // Phys. Rev. B. — 1995. — Vol. 51. — P. 17972.
- [17] Gor'kov, L.P., Lebed', A.G. On the stability of the quasi-onedimensional metallic phase in magnetic fields against the spin density wave formation // J. Physique Lett. — 1984. — Vol. 45, no. 9. — P. 433–440.
- [18] Bjeliš A., Maki K. Spin-density-wave and charge-density-wave phason coherence lengths in magnetic fields // Phys. Rev. B. — 1992. — Vol. 45. — P. 12887–12892.
- [19] Lebed A. G. Field induced spin-density waves and dimensional crossovers // The Physics of Organic Superconductors and Conductors / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 25–40.
- [20] Montambaux G. Metal - spin-density-wave transition in a quasi-one-dimensional conductor: Pressure and magnetic field effects // Phys. Rev. B. — 1988. — Vol. 38. — P. 4788–4795.
- [21] Danner G. M., Chaikin P. M., Hannahs S. T. Critical imperfect nesting in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ // Phys. Rev. B. — 1996. — Vol. 53. — P. 2727–2731.
- [22] High resolution X-Ray scattering study of the anion ordering phase transition of $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ / J.-P. Pouget, S. Kagoshima, T. Tamegai et al. // Journal of the Physical Society of Japan. — 1990. — Vol. 59, no. 6. — P. 2036–2053.

- [23] Schwenk H., Andres K., Wudl F. Resistivity of the organic superconductor ditetramethyltetraselenafulvalenium perchlorate, $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$, in its relaxed, quenched, and intermediate state // Phys. Rev. B. — 1984. — Vol. 29, no. 1. — P. 500–502.
- [24] Danner G. M., Kang W., Chaikin P. M. Measuring the Fermi surface of quasi-one-dimensional metals // Phys. Rev. Lett. — 1994. — Vol. 72, no. 23. — P. 3714–3717.