

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ  
ФИЗИЧЕСКИЙ ИНСТИТУТ ИМ. П.Н. ЛЕБЕДЕВА РАН

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

диссертация на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

научный руководитель  
д.ф.-м.н. Пудалов В.М.

Москва — 2013

# Оглавление

<b>1</b>	<b>Введение</b>	<b>4</b>
<b>2</b>	<b>Обзор современного состояния исследований</b>	<b>12</b>
2.1	Структура и фазовая диаграмма солей Бечгаарда . . . . .	12
2.2	Свойства фазы волны спиновой плотности . . . . .	17
2.3	Свойства сверхпроводящей фазы . . . . .	27
2.3.1	Сверхпроводимость в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . . . . .	29
2.3.2	Сверхпроводимость в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . . . . .	31
2.3.3	Возможные механизмы сверхпроводимости . . . . .	35
2.4	Сосуществование сверхпроводимости и антиферромагнитного изолятора в $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Методика эксперимента</b>	<b>47</b>
3.1	Образцы . . . . .	48
3.2	Магнитные системы . . . . .	51
3.3	Низкотемпературные системы . . . . .	52
3.3.1	Температурные вставки на основе $^3\text{He}$ или $^4\text{He}$ . . . . .	52
3.3.2	Термометрия . . . . .	54
3.3.3	Вращение при низких температурах . . . . .	54
3.4	Техника высоких давлений . . . . .	57
3.5	Измерение малых сигналов от низкоомных образцов . . . . .	59

3.6	Управление степенью анионного упорядочения в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . . . . .	62
<b>4</b>	<b>Анизотропия установления волны спиновой плотности в <math>(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6</math> в магнитном поле</b> . . . . .	<b>66</b>
4.1	Введение . . . . .	66
4.2	Результаты . . . . .	68
4.2.1	Ориентация $\mathbf{H}  \mathbf{c}^*$ . . . . .	68
4.2.2	Ориентации $\mathbf{H}  \mathbf{a}, \mathbf{b}'$ . . . . .	70
4.3	Обсуждение . . . . .	73
4.4	Выводы . . . . .	76
4.5	Приложение. Оценка отношения туннельных интегралов из анизотропии $T_{SDW}(\mathbf{H})$ . . . . .	77
<b>5</b>	<b>Сосуществование волны спиновой плотности и сверхпроводимости в <math>(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4</math></b> . . . . .	<b>79</b>
5.1	Введение . . . . .	79
5.2	Результаты и обсуждение . . . . .	81
5.2.1	Эволюция температурных зависимостей с беспорядком . . . . .	81
5.2.2	Угловые зависимости магнитосопротивления в двухфазном состоянии . . . . .	85
5.2.3	Усиление критического поля в двухфазном состоянии . . . . .	87
5.3	Выводы . . . . .	89
<b>6</b>	<b>Пространственная структура сверхпроводящей фазы в <math>(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4</math></b> . . . . .	<b>91</b>
6.1	Введение . . . . .	91
6.2	Идея эксперимента . . . . .	93
6.3	Результаты . . . . .	95
6.3.1	Анизотропия в плоскости $\mathbf{a} - \mathbf{c}$ . . . . .	95
6.3.2	Анизотропия в плоскости $\mathbf{a} - \mathbf{b}$ . . . . .	98
6.3.3	Гистерезис . . . . .	99

6.3.4	Влияние скорости охлаждения . . . . .	100
6.3.5	Анизотропия в плоскости $\mathbf{b} - \mathbf{c}$ . . . . .	100
6.3.6	Поведение критического поля в области сосуществования СП/ВСП .	102
6.4	Обсуждение результатов . . . . .	104
6.4.1	Роль анион-упорядоченных включений . . . . .	104
6.4.2	Нестинг в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . . . . .	105
6.4.3	Солитонная фаза . . . . .	106
6.4.4	Фазовое расслоение . . . . .	108
6.4.5	Гистерезис . . . . .	110
6.4.6	Особенности сверхпроводящего состояния . . . . .	110
6.5	Выводы . . . . .	111
<b>7</b>	<b>Заключение</b>	<b>113</b>
7.1	Выводы . . . . .	113
7.2	Список публикаций по результатам работы . . . . .	115
7.3	Благодарности . . . . .	117

# Глава 1

## Введение

Природа сверхпроводимости в системах с сильными электрон-электронными корреляциями является одной из самых актуальных проблем современной физики конденсированного состояния. После создания электрон-фононной теории сверхпроводимости[1] для элементарных сверхпроводников был открыт целый ряд новых “нестандартных”, в том числе высокотемпературных, сверхпроводников в тяжело-фермионных и органических системах, а также соединениях на основе железа и оксидов меди. Есть основания полагать, что в них механизм сверхпроводимости отличается от классического[2].

Вскоре после открытия высокотемпературных сверхпроводников на основе оксидов меди (купратов), Андерсоном[3] были сформулированы три важных “ингредиента” этих соединений: (1) квази-двумерность или слабая связь между слоями, (2) возникновение сверхпроводимости при легировании моттовского изолятора и (3) близость магнетизма и сверхпроводимости на фазовой диаграмме в сочетании с пониженной размерностью[4]. Последний из них оказался объединяющим свойством “нестандартных” сверхпроводников[2, 5].

Третий “ингредиент” можно условно перефразировать в значительное взаимопроникновение фаз за счет сильных флуктуаций. В сверхпроводящем состоянии в “нестандартных” сверхпроводниках наблюдаются возбуждения, которые присущи родительской, магнитно-упорядоченной, фазе. При этом, характерный энергетический масштаб таких

возбуждений коррелирует с температурой сверхпроводящего перехода,  $T_c$ [5, 6]. Более того, в ряде соединений максимум  $T_c$  приходится на область параметров вблизи границы магнитной фазы (см. например [7]). Эти особенности позволяют предположить, что магнетизм может вносить вклад в механизмы сверхпроводящего спаривания. Последнее в этом случае может быть построено на отталкивании (см. например [8]), а не на слабом притяжении за счет фононов. Принципиальным следствием спаривания на отталкивании является зависимость сверхпроводящей щели от направления импульса.

На пути к пониманию такого рода механизмов спаривания лежит принципиальный вопрос: как происходит переход от магнетизма к сверхпроводимости? На данный момент существует распространенное мнение, что между этими фазами лежат одно или несколько промежуточных состояний[9, 10]. В зависимости от детальной природы магнетизма и степени беспорядка в системе теория предсказывает как существование статического фазового расслоения, так и динамических пространственных структур[10]. Действительно, фазовое расслоение наблюдается во многих высокотемпературных сверхпроводниках, а в недавних работах в них также были обнаружены динамические электронные структуры (см. обзор [11]). Поэтому наиболее актуальными на данный момент являются следующие вопросы: как эволюционирует сверхпроводимость из такой промежуточной фазы в однородную и какова роль этих промежуточных фаз в свойствах сверхпроводимости?

В данной работе мы попытаемся решить эти вопросы в одном характерном классе сильно-коррелированных нестандартных сверхпроводников – в квазиодномерных органических соединениях. Квазиодномерные (Q1D) электронные системы представляют собой множество взаимодействующих друг с другом одномерных систем. Помимо принципиального фундаментального интереса к природе таких систем, попытки их синтеза были мотивированы теоретическими работами Фрëлиха[12], где было предложено существование (сверх)проводящей коллективной моды, и Литтла[13], предсказавшего возможность в них высокотемпературной сверхпроводимости задолго до открытия купратов. Q1D системы были получены в ряде неорганических соединений, например, в  $\text{Li}_{0.9}\text{Mo}_6\text{O}_{17}$  или в

трихалькогенидах  $\text{NbSe}_3$  и  $\text{TaS}_3$ , но наиболее широко они представлены органическими соединениями. Действительно, большая анизотропия почти плоских органических молекул приводит к сильной ковалентной связи,  $t_{\parallel}$ , внутри молекулярных цепочек (стопок) и лишь небольшому перекрытию,  $t_{\perp}$ , волновых функций между соседними цепочками.

Строго одномерные системы являются предельным случаем взаимодействующих систем: в них кулоновское отталкивание локализует отдельные заряды и оставляет возможность лишь коллективных возбуждений (т.н. латтинджеровская жидкость). При усилении туннельного перекрытия между электронами на соседних цепочках,  $t_{\perp}$ , картина меняется: между собой начинают конкурировать ширина энергетической зоны в поперечном направлении и энергия взаимодействия. В случае слабой связи такие квази-одномерные органические соединения являются моттовскими изоляторами, в том числе и с богатыми магнитными свойствами[14]. На этом шаге проявляется первое принципиальное отличие органических соединений от других классов сверхпроводников: в силу особенностей структуры органические соединения крайне затруднительно легировать. Тем не менее, путем комбинации химического замещения и давления удается увеличить  $t_{\perp}$  и/или усилить экранирование[15], что приводит к постепенной делокализации носителей и появлению при низких температурах металлического и даже сверхпроводящего состояния (см. Рис. 1.1). В органических соединениях сверхпроводимость была впервые реализована в солях Бечгаарда –  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [16] и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ [17] – синтезированных на основе молекулы тетраметилтетраселенфульвалена ( $\text{TMTSF}$ ).

Как видно из Рис. 1.1, на фазовой диаграмме  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  сверхпроводящее и магнитное состояния граничат друг с другом. Изучение поведения теплоемкости  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  в магнитном поле вдали от этой границы указывают на отличную от сферической симметрию сверхпроводящего параметра порядка[19]. Измерения времени спин-решеточной релаксации в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [20] продемонстрировали существование субкритических антиферромагнитных флуктуаций в области давлений, при которых наблюдается сверхпроводимость. В нормальном состоянии  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  наблюдается сильно анизотропная по-

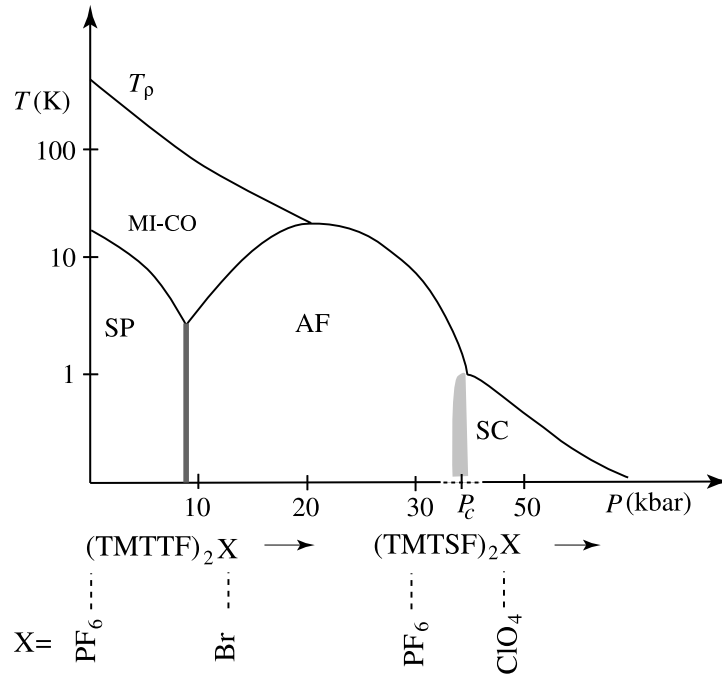


Рис. 1.1: Обобщенная фазовая диаграмма квазиодномерных органических соединений на примере класса солей Бечгаарда-Фабри. По оси абсцисс отложено давление относительно наиболее анизотропного соединения в этом классе -  $(\text{TMTTF})_2\text{PF}_6$ . Молекулы TMTTF и TMTSF отличаются наличием соответственно серы S или селена Se в структуре типа фульвалена. Обозначения: MI - моттовский изолятор; SP - спин-пайерлсовский изолятор (аналог изолятора Пайерлса, где роль кулоновского взаимодействия играет обменное); AF - антиферромагнитный изолятор (волна спиновой плотности); SC - сверхпроводник. Рисунок взят из работы [18].

верхность Ферми [21], но вместе с этим в оптических спектрах присутствует также и моттовская щель<sup>1</sup>. Наряду с близостью фазы волны зарядовой плотности [22, 23], оптические данные указывают на возможность существования также значительных зарядовых флуктуаций в металлическом или сверхпроводящем состоянии. Все эти данные позволяют с уверенностью отнести  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  к описанным выше “нестандартным” сверхпроводникам (см. также раздел 2.3).

Основным предметом исследования данной работы является область промежуточного состояния между антиферромагнитной и сверхпроводящей фазами (см. Рис. 1.1). В орга-

<sup>1</sup>Моттовская щель не превышает величины перекрытия между цепочками,  $\Delta_\rho \lesssim t_\perp$ .



нических соединениях  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  для  $\text{X}=\text{ReO}_4$ [24],  $\text{AsF}_6$ [25],  $\text{ClO}_4$ [26] и  $\text{PF}_6$ [27] вблизи границы фаз волны спиновой плотности и сверхпроводника в сопротивлении или восприимчивости наблюдаются присутствие одновременно обеих фаз. Наиболее подробно это состояние было изучено в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , где в небольшом диапазоне по давлению была обнаружена макроскопическая пространственная сегрегация фаз волны спиновой плотности и металла/сверхпроводника. Такой вывод был сделан как на основе транспортных и магнитотранспортных измерений[28, 29, 30], так и ЯМР измерений[31, 30]. Во всех этих работах вблизи границы СП-ВСП наблюдалось существование доменов одной из фаз на фоне другой. Соотношением фаз можно управлять как за счет изменения температуры[28, 30], так и магнитного поля[29]. В пользу разбиения на домены выступает значительное усиление критического поля[32] в таком неоднородном состоянии. Особый интерес связан с возможным триплетным спариванием в этом соединении[33], которое выживает и в неоднородном состоянии[34].

Был предложен целый ряд теорий, призванных объяснить такое фазовое расслоение применительно к  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Первая группа основана на поиске минимума свободной энергии в присутствии двух параметров порядка[30, 35]. Другой подход базируется на рассмотрении сверхпроводимости внутри электронных и дырочных карманов, которые образуются на фоне щелевого состояния ВСП[36]. В перечисленных теориях система рассматривается просто как сильно анизотропная Ферми-жидкость без учета возможной роли спиновых и зарядовых корреляций. Вторая группа теорий непосредственно берет в расчет существование одномерных молекулярных цепочек в Q1D сверхпроводниках. Сюда относится рассмотрение расслоения фаз приближенно с позиций латтинжеровской жидкости[37]. В ней заложена граница между волной спиновой плотности и триплетным сверхпроводником[38], что применительно к Q1D соединениям может приводить к сосуществованию двух фаз в некотором диапазоне давлений[37, 39]. Особый интерес здесь представляет модель солитонной фазы[40, 41], которая в Q1D случае предполагает образование макроскопических подвижных доменных стенок в волне спиновой плотности,

внутри которых может установиться сверхпроводимость.

Экспериментальное определение 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 анизотропии транспорта в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [42] привели к противоречивым результатам, показав формирование нематической сверхпроводящей фазы вдоль направления наихудшей проводимости в кристалле, что до сих пор не находит самосогласованного объяснения[43]. Такое расхождение теории и эксперимента может являться либо следствием каких-либо неучтенных особенностей конкретного соединения  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , либо следствием какого-то более общего механизма формирования промежуточного состояния, подобно высокотемпературным сверхпроводникам [10].

В то же время, 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.

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.

Поставленная цель достигается в несколько этапов. Во-первых, изучена роль трехмерной дисперсии в устойчивости ВСП, на которую указывали как на возможную причину образования нематической структуры [42, 43]. Это сделано на основе измерений анизотропии термодинамических свойств ВСП в магнитном поле в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Для изучения универсальности переходов сверхпроводник-волна спиновой плотности наиболее перспективным объектом является родственное соединение  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В нем этот переход наблюдается при нормальном давлении[26], что позволяет зафиксировать все кроме одного параметры зонного спектра. В то же время существует масса указаний на  $d$ -волновую

симметрию сверхпроводящего параметра порядка в этом соединении вдали от границы с волной спиновой плотности, что также позволяет исследовать необходимость установления триплетного спаривания ( $p$  или  $f$  симметрия) при переходе в промежуточное состояние.

## Структура диссертации

Во второй главе диссертации дается краткий обзор основных представлений о природе ВСП и возможных симметриях сверхпроводящего спаривания в Q1D соединениях, а также подробно рассматриваются накопленные на данный момент теоретические и экспериментальные данные по вопросу сосуществования фаз. Третья глава посвящена описанию техники эксперимента и ряду методических вопросов, в том числе, особенностям управления фазовой диаграммой  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ .

В четвертой главе основное внимание уделено роли трехмерной дисперсии в подавлении волны спиновой плотности на примере  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Для этого используется эффект  $3D \rightarrow 2D$  кроссовера в магнитном поле, который позволяет эффективно “исключить” одну из компонент поперечной дисперсии,  $t_\perp$ . Мы исследовали разницу в температуре перехода в волну спиновой плотности в отсутствие и в присутствии поля в различных ориентациях. В пределах экспериментальной точности мы не обнаруживаем заметного вклада трехмерной дисперсии в подавление волны спиновой плотности даже вблизи критического давления. Таким образом, наши данные указывают либо на крайне незначительную роль, которую она играет в стабильности волны спиновой плотности, либо на существенные отклонения от в остальном успешной “стандартной” теории волны спиновой плотности.

Пятая глава посвящена изучению характера сосуществования фаз ВСП и СП в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В промежуточном, двухфазном, состоянии в транспортных характеристиках наблюдается гистерезис при изменении температуры или магнитного поля, сильная анизотропия пространственной текстуры и усиление критического поля. Эти данные противоречат ранним исследованиям[26], предполагавшим, что сосуществование фаз связано с пространственной неоднородностью образца, вызванной кинетикой упорядочения

анионов  $\text{ClO}_4$  вблизи структурного перехода. Мы же напротив показываем, что сосуществование носит, подобно  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , самосогласованный характер и определяется изменениями димеризационной щели при разных степенях упорядочения анионов  $\text{ClO}_4$ . Для этого мы прямыми измерениями показываем увеличение этой щели при переходе от ВСП к сверхпроводнику. Димеризационная щель играет роль в некотором смысле подобную давлению в соединениях  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ , где X - центросимметричный анион. Таким образом, мы показываем, что макроскопическая сегрегация фаз вблизи границы СП с ВСП является общим свойством Q1D органических сверхпроводников.

В шестой главе мы подробно останавливаемся на центральной, на данный момент, проблеме переходов между волной спиновой плотности и сверхпроводником – на нематичности пространственной текстуры промежуточного состояния. Для этого мы проводим подробные измерения ее эволюции по мере подавления волны спиновой плотности за счет упорядочения анионов в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Принципиальной особенностью наших измерений является то, что анионное упорядочение эффективно легирует образец и тем самым воздействует на волну спиновой плотности, практически не меняя при этом интегралы перекрытия и упругие свойства кристаллической решетки. Даже при такой постановке эксперимента мы обнаруживаем, что наблюдаемая в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  нематичность двухфазного состояния сохраняется и в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , что позволяет нам говорить об универсальности данного поведения и выявить основной управляющий параметр – увеличение числа делокализованных носителей. Мы анализируем полученные результаты с позиций двух конкурирующих теорий – образования солитонной фазы и неоднородных деформаций в анизотропной решетке. Хотя в исходном виде солитонный сценарий предполагает иную текстуру двухфазного состояния, мы предлагаем качественную аргументацию на основе взаимодействия между доменами, которая позволяет естественным образом описать наблюдаемые результаты. Модель создания неоднородных деформаций, напротив, оказывается более чувствительна к параметрам системы, поэтому мы ее отвергаем в пользу солитонной фазы.

## Глава 2

# Обзор современного состояния исследований

### 2.1 Структура и фазовая диаграмма солей Бечгаарда

В основе структуры солей Бечгаарда,  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ , лежат органические молекулы тетраметилтетраселенфульвален, TMTSF, химическая формула которых приведена на Рис. 2.1а. Основной вклад в НОМО (валентная молекулярная орбиталь) дают  $\pi_z$ -электроны проводимости Se (см. Рис. 2.1б). В кристалле молекулы TMTSF упакованы в цепочки (направление **a**), при этом расстояние между ними порядка ван-дер-ваальсового радиус атомов Se, так что в этом направлении образуется сильная ковалентная связь (см. Рис. 2.1в). Интеграл перекрытия в этом направлении имеет наибольшее значение,  $t_a \sim 0.3 \text{ эВ}$ [44]. Молекулы имеют анизотропную форму: действительно с одних краев атомы Se окружены метиловыми группами, тогда как с перпендикулярных – свободны. По этой причине при упаковке молекулярных цепочек в кристалле имеются два характерных направления. Вдоль одного из них, **b**, молекулярные цепочки образуют слои. Внутри слоя они расположены бок о бок сторонами со свободным Se. Связь в этом направлении значительно слабее, чем в **a**, и составляет порядка  $t_b \sim 12 \text{ мэВ}$ [21]. Молекулярные слои

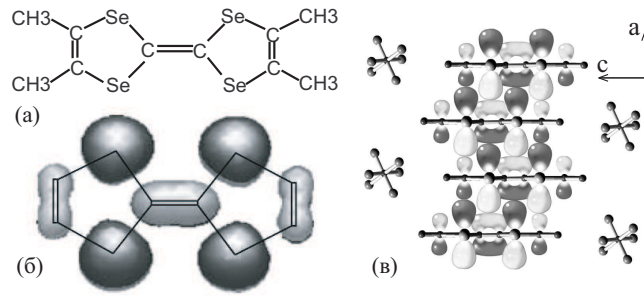


Рис. 2.1: (а) схематический вид и химическая формула; (б) НОМО полученная из расчетов: в темных областях вклад орбитальных функций – в фазе, в светлых – в противофазе [45]; (в) кристаллическая структура  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$

чередуются со слоями анионов в направлении  $\mathbf{c}$ . Расстояние между молекулами в данном случае оказывается наибольшим (см. таблицу 2.1), что приводит к наиболее слабой связи. До настоящего времени межслоевой интеграл перескока не был измерен прямыми методами, однако из косвенных оценок и вычислений следует, что он лежит в интервале  $0.2 \leq t_c \leq 1.5 \text{ мэВ}$  [21]. Следует отметить, что хотя квазиодномерные органические соединения очевидно имеют сильно анизотропные электронные свойства, они отличаются от других широко известных слоистых систем, таких как квазидвумерные органические соединения или высокотемпературные сверхпроводники на основе оксидов меди. По сравнению с Q1D системами в них межслоевые туннельные интегралы нередко бывают меньше 1 мэВ (и даже меньше 1 К), тогда как внутри слоев они почти изотропны [46].

Кристаллы  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  имеют триклинную структуру, характерные параметры которой приведены в таблице 2.1. В большинстве случаев, однако, используют орторомбическое приближение, где ось  $\mathbf{a}$  остается прежней, а перпендикулярные ей внутри- и

Таблица 2.1: Параметры кристаллических решеток  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  при  $T = 300 \text{ К}$ .

Соединение	Тип решетки	$a, \text{ \AA}$	$b, \text{ \AA}$	$c, \text{ \AA}$	$\alpha, \text{ град}$	$\beta, \text{ град}$	$\gamma, \text{ град}$
$(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ [47]	триклинная	7.297	7.711	13.522	83.39	86.27	71.01
$(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ [48]	триклинная	7.266	7.678	13.275	84.58	86.73	70.43

межслоевое направления обозначаются как  $\mathbf{b}'$  и  $\mathbf{c}^*$ . В дальнейшем, если не оговорено обратное, мы будем использовать именно орторомбическое приближение и соответствие  $x : y : z \equiv a : b' : c^*$ . Естественно, при обсуждении рентгеновских данных будет применяться реальная триклинная кристаллическая структура.

В элементарной ячейке находятся две молекулы TMTSF и один анион: первые являются донорами электронов, вторые - акцепторами. Такого рода соединения называются солями с переносом заряда. Соотношение переноса составляет, очевидно, 2 : 1 или 1 электрон с 4 атомов Se. Ожидаемая степень заполнения в этом случае – 1/4, однако слабая димеризация (образование пар молекул внутри цепочки) приводит к расщеплению уровней и открытию щели. В результате степень заполнения оказывается равной 1/2. С позиций зонной теории в отсутствие взаимодействия данные соединения должны быть металлами. Признаки металлического поведения действительно наблюдаются при высоких температурах в большинстве соединений  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  по крайней мере для внутрислоевого сопротивления.

В то же время, как отмечалось во введении, благодаря своей квазиодномерной структуре соли Бечгаарда являются сильновзаимодействующими системами. Это приводит к большому разнообразию основных состояний, которые сменяют друг друга при варьировании таких параметров как давление и магнитное поле. Роль давления ( $P$ ) сводится к изменению силы связи между цепочками (переход 1D-3D) и, следовательно, определяет устойчивость состояния изолятора. Следует отметить, что помимо непосредственного “физического” давления существует также его аналог – “химическое”, выраженное в изменении периодов решетки при использовании анионов с различными размерами (см. также Рис. 1.1). Увеличение магнитного поля ( $H$ ) оказывает обратное действие: вызывает переход 3D-1D. Природа этого эффекта менее очевидна и будет подробнее рассмотрена в следующем разделе.

Экспериментальные низкотемпературные  $T - P - H$  фазовые диаграммы для соединений  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , которым в основном посвящена данная диссертация,

представлены на рисунках 2.2а,б соответственно. Как видно из рисунков, основное состояние данных систем при нормальном давлении – антиферромагнитный изолятор (волна спиновой плотности). С ростом давления температура перехода ВСП постепенно уменьшается, пока мы не приходим к металлическому (или сверхпроводящему при более низких температурах) состоянию. Вблизи давления, при котором исчезает ВСП, существует небольшая область на фазовой диаграмме, когда в образце наблюдается присутствие одновременно фаз металла(сверхпроводника) и волны спиновой плотности. Такого рода области являются основным объектом изучения в данной работе. Дальнейшее увеличение давления приводит к постепенному понижению температуры сверхпроводящего перехода<sup>1</sup>. Приложение весьма слабых магнитных полей приводит к исчезновению сверхпроводимости. В более сильных полях система снова становится изолятором через каскад переходов между фазами т.н. индуцированных полем волн спиновой плотности (о них пойдет речь ниже).

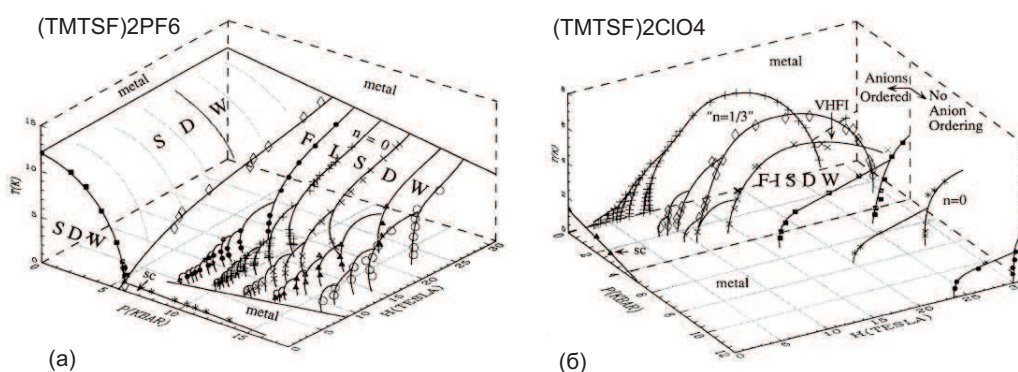


Рис. 2.2:  $T - P - H$  фазовые диаграммы соединений (а)  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и (б)  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  из работы [50]. Обозначения: SDW – волна спиновой плотности, SC – сверхпроводник, metal – металл, FISDW – индуцированная полем ВСП, VHF – высокополевая “металлическая” фаза[51]. На рисунке (б) пунктирной линией показана граница по давлению, при которой исчезает анионное упорядочение.

На фазовой диаграмме  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  неявно присутствует еще одна ось – степень

<sup>1</sup>Понижение  $T_c$  может быть связано, согласно классическим представлениям, с изменением плотности состояний, однако есть и альтернативная гипотеза об ослаблении субкритических флуктуаций по мере удаления от границы фаз[49].



упорядочения анионов. В отличие от centrosymmetricных  $\text{PF}_6^-$ , тетраэдрические анионы  $\text{ClO}_4^-$  не имеют центра инверсии и обладают встроенным дипольным моментом. Ориентации этих моментов при высоких температурах направлены хаотично, однако при понижении температуры имеет место структурный переход ( $T_{AO} = 24 \text{ K}$ ), при котором моменты упорядочиваются в сверхструктуру с периодом  $(0, 1/2, 0)$ . Характерная энергия, требуемая для разворота тетраэдра, значительно превышает температуру перехода и составляет порядка 240 К. Такое различие обуславливает очень плавную кинетику структурного перехода. При очень медленном охлаждении  $\sim 10 \text{ мК/мин}$  анионы успевают по большей части упорядочиться (релаксированное состояние), тогда как при более быстром прохождении перехода возможно частично заморозить высокотемпературный беспорядок. Таким образом, мы можем управлять степенью упорядочения анионов за счет варьирования скорости охлаждения образца.

Рентгеноструктурные измерения показывают, что упорядочение сопровождается также периодическим смещением анионов в элементарной ячейке ближе к одной из молекул  $\text{TMTSF}$ [52]. Считается, что в результате усиливается взаимодействие аниона с метиловыми группами молекулы и в последней происходит пространственное перераспределение электронной плотности (см. например [22]). Посредством этого механизма упорядочение анионов оказывает влияние на зонную структуру. А именно, поскольку соседние цепочки в слое теперь не идентичны, то ветвь закона дисперсии расщепляется на две, разделенные т.н. анионной щелью.

Вариация степени упорядочения сказывается и на основном состоянии: в анионупорядоченном  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  им является сверхпроводник, тогда как в случае замороженного беспорядка – волна спиновой плотности. Природа этого эффекта и возможность контролируемого анионным упорядочением перехода между СП и ВСП подробно изучается в данной работе.

## 2.2 Свойства фазы волны спиновой плотности

Свойства волны спиновой плотности исследовались очень активно, и их обзрение выходит далеко за пределы диссертации. В этом разделе мы сосредоточимся на вопросах устойчивости данной фазы и целевого состояния. В качестве внешних параметров, которые могут воздействовать на стабильность ВСП, обычно рассматривают давление и магнитное поле. Для этого случая была разработана и успешно выдержала экспериментальную проверку так называемая “стандартная” модель, которая рассмотрена ниже.

Образование волны спиновой плотности вызвано кулоновским отталкивающим взаимодействием между электронами с противоположной ориентацией спинов [53]. Возникающая модуляция спина приводит к открытию щели на уровне Ферми, в результате чего энергия системы понижается за счет ухода большого количества электронов с поверхности Ферми под щель. Для описания ВСП перехода в контексте  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  используется среднеполевая теория в приближении случайных фаз (RPA). Переходу в ВСП отвечает расходимость перенормированной энергии взаимодействия

$$U(\mathbf{Q}) = \frac{u(\mathbf{Q})}{1 + u(\mathbf{Q})\Pi(\mathbf{Q}, \omega_0)}, \quad (2.1)$$

где  $u(\mathbf{Q})$  - исходная энергия взаимодействия,  $\Pi(\mathbf{Q}, \omega)$  - поляризационный оператор, пропорциональный магнитной восприимчивости (см. например [41]). Вектор  $\mathbf{Q}$  называется вектором нестинга. Его величина и направление определяются так, чтобы значение  $\Pi$  было максимальным.  $\mathbf{Q}$  имеет смысл вектора в обратном пространстве, который идеально совмещает два противоположных участка поверхности Ферми,  $E(\mathbf{k}+\mathbf{Q}) = -E(\mathbf{k})$  [53]. Действительно, в этом случае количество состояний, взаимодействующих с одним вектором, - максимально, что и дает максимум в  $\Pi$ . Вектор нестинга может совмещать поверхности Ферми не целиком, так что остаются участки, где  $\epsilon = E(\mathbf{k} + \mathbf{Q}) + E(\mathbf{k}) \neq 0$ . Величину  $\epsilon$  обычно называют антинестинговым членом закона дисперсии. При малых  $\epsilon$  образование ВСП по-прежнему возможно, но, как будет показано в дальнейшем, при более низкой температура перехода,  $T_{SDW}$ .

Когда знаменатель в 2.1 обращается в нуль, происходит переход в ВСП. Линия переходов  $T_{SDW}(\epsilon, \mathbf{Q})$  задается уравнением[40]:

$$\ln \left( \frac{T_{SDW0}}{T_{SDW}} \right) = \Re \left\langle \Psi \left( \frac{1}{2} + \frac{i(\hbar v_F(Q_x - 2k_F) + t_{\perp}(k_{\perp}) + t_{\perp}(k_{\perp} - Q_{\perp}))}{2\pi T_{SDW}} \right) \right\rangle_{k_{\perp}} - \Psi \left( \frac{1}{2} \right), \quad (2.2)$$

где  $T_{SDW0}$  - температура перехода в идеальном случае,  $\epsilon = 0$ ,  $\Psi(x)$  - дигамма функция. Уравнения (2.1) и (2.2) являются отправными точками при построении фазовой диаграммы ВСП в зависимости от входящих в  $\epsilon$  членов закона дисперсии и внешних параметров, таких как магнитное поле  $H$  или давление  $P$ .

Приложение внешнего гидростатического давления понижает температуру ВСП перехода. Для описания этого эффекта в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  хорошо работает так называемая модель неидеального нестинга, впервые предложенная в работе [54] для  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . В ее основе лежит идея о том, что с ростом давления нестинг поверхности Ферми нарушается за счет увеличения членов второго порядка в законе дисперсии. Наибольшим из таких членов является интеграл перескока на следующих за ближайшими соседями в направлении  $\mathbf{b}$ ,  $t'_b = t_b^2/t_a$ . Закон дисперсии при этом приобретает вид (направление  $\mathbf{c}$  для простоты опущено):

$$E(\mathbf{k}) = \hbar v_F(k_x \pm k_F) - 2t_b \cos(k_y b) - 2t'_b \cos(2k_y b). \quad (2.3)$$

При увеличении давления перекрытие волновых функций на соседних цепочках будет возрастать, тем самым увеличивая  $\epsilon \equiv t'_b$ , что эквивалентно увеличению двумерности системы. Как было показано теоретически, это приведет к снижению  $T_{SDW}$  [54].

Влияние магнитного поля на стабильность ВСП фазы является более сложным. В отличие от волны зарядовой плотности, где происходит взаимодействие электронов с одинаковым спином, эффект Зеемана не играет значимой роли в стабильности ВСП, поскольку зеемановская щель не может перекрыть щель ВСП (см. обзор [55]). Орбитальный эффект магнитного поля связан с открытостью поверхностей Ферми в квазиодномерных соединениях. Для иллюстрации этого эффекта вновь ограничимся двумерным законом дисперсии:

$$E(\mathbf{k}) = \hbar v_F(k_x \pm k_F) - 2t_b \cos(k_y b) \quad (2.4)$$

Пусть магнитное поле приложено в направлении, перпендикулярном плоскости  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$ ,  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . Для начала рассмотрим ситуацию в квазиклассическом приближении. Электроны вынуждены двигаться по поверхностям постоянной энергии в плоскости, перпендикулярной полю, что в нашем случае соответствует движению в направлении  $k_y$  вдоль контуров поверхности Ферми. При приближении к границам зоны  $k_y = \pm\pi/b$  скорость электрона  $v_y = \partial E(\mathbf{k})/\partial k_y$  проходит через ноль и меняет знак, что соответствует перескоку электрона на противоположный участок поверхности Ферми в схеме приведенных зон. В схеме расширенных зон этому соответствует периодическое движение в направлении  $k_y$ . Для получения орбиты в реальном пространстве необходимо орбиту в обратном пространстве развернуть на  $\pi/2$ . Полученная орбита окажется протяженной в направлении  $\mathbf{a}$  и осциллирующей в направлении  $\mathbf{b}$ , причем размах осцилляций в этом направлении будет пропорционален  $4t_b/\hbar\omega_c$ , где  $\omega_c$  - аналог циклотронной частоты, который в данном случае соответствует частоте пересечения границ зоны Бриллюэна. Отсюда видно, что с увеличением магнитного поля электронная орбита будет сжиматься до одной проводящей цепочки, что на качественном уровне оказывает обратный давлению эффект и, следовательно, должно приводить к стабилизации ВСП.

Аналогичные рассуждения можно провести и в квантово-механическом случае. Действительно, в магнитном поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  мы должны произвести замену квазиимпульса на канонический импульс  $\mathbf{p} \rightarrow (\mathbf{p} - \frac{e}{c}\mathbf{A})$ . Соответствующее уравнение Шредингера будет иметь вид[56]:

$$\left( \pm i v_F \frac{d}{dx} + 2t_b \cos \left[ k_y b - \frac{2\omega_c(H)x}{v_F} \right] \right) \psi = (\epsilon - \epsilon_F) \psi. \quad (2.5)$$

Из этого уравнения видно, что в магнитном поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  дисперсия в направлении  $k_y$  исчезает, что можно на качественном уровне интерпретировать как усреднение энергии в этом направлении за счет периодического прохождения всех состояний. Более того, в магнитном поле  $\mathbf{H} \perp \mathbf{a}$  меняется размерность волновой функции, что привело к предсказанию большого количества нетривиальных эффектов в наклонных полях, среди которых наиболее известны высокополевая сверхпроводимость и аномалии в  $T_{SDW}(\mathbf{H})$ . Идея размерного

кроссовера волновых функций была выдвинута А.Г. Лебедем (см. обзор в [56]).

В эксперименте влияние магнитного поля приводит к появлению двух эффектов: индуцированной полем волны спиновой плотности и росту  $T_{SDW}$ . Первый эффект связан с абсолютной неустойчивостью металлического состояния в бесконечно малом  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$  к образованию ВСП. Неидеальный нестинг приводит к формированию электронных карманов на фоне закрытой щелью поверхности Ферми. В магнитном поле вектор нестинга подстраивается в обратном пространстве так, чтобы уровни Ландау в этих карманах были полностью заполнены, и уровень Ферми лежал в щели. Такого рода квантование восстанавливает состояние изолятора и носит название индуцированных полем ВСП. Этот эффект наблюдается в множестве квазиодномерных органических соединений в виде каскада переходов между состояниями с различным значением вектора нестинга (см. обзоры [56, 57, 58, 59]). Его рассмотрение, однако, выходит за пределы данной диссертации.

Формализм для вычисления температуры перехода между фазами металла и ВСП (границы неустойчивости металлической фазы) в магнитном поле был введен в работе [60] для описания индуцированной полем ВСП. В дальнейшем он был применен для определения полевой зависимости  $T_{SDW}(H)$  в фазе ВСП. Приближенное решение в пределе малых полей,  $\omega_c/T \ll 1$ , для случая  $\epsilon = t'_b$  и  $H||c$  было получено в работе [61], где было показано, что температура перехода возрастает квадратично с ростом поля:

$$T_{SDW}(H) = T_{SDW}(0) + f\left(\frac{t'_b}{t'^*_b}\right) \frac{\omega_c^2}{t'^*_b}, \quad (2.6)$$

где  $t'^*_b$  - значение антинестингового параметра, при котором ВСП полностью исчезает, а  $f\left(\frac{t'_b}{t'^*_b}\right)$  - монотонно возрастающая функция. Решение (2.6) получается путем разложения в ряд по степеням параметра  $\omega_c/T$ , так что пределы применимости определяются условием  $\omega_c/T < \inf\{1, (T/t'_b)^{3/2}\}$ . Таким образом, вблизи критического давления хотя и имеет место более быстрый рост  $T_{SDW}$  в магнитном поле, но квадратичный характер сохраняется лишь в узком диапазоне полей. Качественно при  $\omega_c \gg t'_b$  зависимость  $T_{SDW}(H)$  будет насыщаться и стремиться к идеальному значению  $T_{SDW}(t'_b = 0)$ . Полная зависимость

$T_{SDW}(H)$ , вычисленная в работах [62, 63] для случая  $\epsilon = t'_b$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$ , имеет вид:

$$\ln \left[ \frac{T_{SDW}(H)}{T_{SDW0}} \right] = \sum_{l=-\infty}^{\infty} J_l^2 \left( \frac{\epsilon_0}{\omega_c} \right) \left\{ \Re \Psi \left( \frac{1}{2} + \frac{i l \omega_c}{2\pi T_{SDW}(H=0)} \right) - \Psi \left( \frac{1}{2} \right) \right\}, \quad (2.7)$$

где  $T_{SDW0} = T_{SDW}(t'_b = 0)$  - температура перехода в случае идеального нестинга,  $J$  - функции Бесселя. Эта зависимость количественно подтверждает описанную выше качественную картину и в пределе слабых полей переходит в результат вида (2.6) [64].

Следует отметить, что в работе [62] зависимость  $T_{SDW}(H)$  была получена для произвольной ориентации поля в плоскости  $\mathbf{b}$  -  $\mathbf{c}$ . По аналогии с описанным выше влиянием поля  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$  на дисперсию  $E(k_y)$ , поле  $\mathbf{H}||\mathbf{b}$  оказывает влияние на дисперсию  $E(k_z)$ . По этой причине при рассмотрении эффекта наклонного поля в  $\epsilon_0$  необходимо учитывать анти-нестинговые члены, в которые входит зависимость от  $k_z$ . Наибольшим из таких членов является  $t'_{bc} = t_b t_c / t_a$  (для реальных кристаллов с триклинной симметрией и димеризацией молекулярных цепочек таких членов больше), на который влияют как  $\mathbf{H}||\mathbf{b}$ , так и  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$ . Такое рассмотрение, очевидно, выходит за пределы двумерной модели неидеального нестинга и будет рассматриваться подробнее в данной работе.

Интерес к наклонным полям был вызван наличием т.н. “лебедевских углов” [65] или резонансов для ориентаций поля

$$\tan \theta = (p/q)(b/c), \quad (2.8)$$

где  $\theta$  - угол от оси  $\mathbf{c}$  в плоскости  $\mathbf{b}$  -  $\mathbf{c}$ ,  $p, q$  - целые числа, а  $b, c$  - периоды решетки. Действительно, свойства волновой функции при таких ориентациях поля качественно меняются [65, 59], что должно находить отражение в различных физических эффектах. Одним из первых для ориентаций (2.8) было предсказано уменьшение величины поля, при котором происходит переход из металла в индуцированную полем ВСП [65]. Похожий эффект наблюдался экспериментально, но был очень мал по величине [66]. По аналогии, в лебедевских углах ожидался бы более сильный рост  $T_{SDW}(H)$ , что пока не наблюдалось экспериментально. В то время как в термодинамических характеристиках лебедевские углы

проявляются слабо, они особенно четко выделены на угловых зависимостях магнитосопротивления в металлическом состоянии, где им соответствуют острые провалы [66, 20].

Вместе с моделью неидеального нестинга [54] работы [60, 62] и составляют упомянутую выше “стандартную” модель, которая представляет большое количество способов экспериментальной проверки. Наряду с ростом  $T_{SDW}$  (см. (2.6) и (2.7)) в магнитном поле и зависимостью  $T_{SDW}(\epsilon)$  (см. (2.2)) также предсказывается необычное поведение активационной энергии (эфффективной щели) в ВСП фазе:

$$\Delta_e = \sqrt{\Delta_0^2 - \epsilon^2}, \quad (2.9)$$

где  $\Delta_0$  - прямая ( $\delta k = 0$ ) щель.

В экспериментах большой рост  $T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{c})$  вблизи критического давления в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  был отмечен еще в ранних работах [67], но не исследовался систематически. Такое исследование зависимости  $T_{SDW}(P, H)$  в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  вдали от критического давления было проведено в работе [68] на основе транспортных,  $R_{xx}$ , измерений. Авторы подтвердили, что в слабых полях  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$  имеет место квадратичное увеличение  $T_{SDW}$ . На основе этих данных и измерений активационной щели при разных давлениях при помощи формул (2.6) и (2.9) авторы извлекли двумя независимыми путями величину  $t'_b$ , причем оба результата хорошо согласовывались друг с другом. Зависимость  $T_{SDW}(t'_b)$  также хорошо удовлетворяла уравнению (2.2) из “стандартной” модели, но оказалось, что при нормальном давлении система далека от идеального нестинга, хотя предполагаемая идеальная температура  $T_{SDW0} \approx 13 \text{ K}$  не сильно отличалась от наблюдаемой в при нормальном давлении. Следует отметить, что в этой работе [68] авторы ограничились лишь высокотемпературным диапазоном  $T > 4 \text{ K}$  для определения активационной энергии, что в общем случае неверно [69]. Это могло сказаться на ошибках в экспериментальных оценках, как будет видно ниже.

Похожие измерения были проведены в более сильных полях и при разных ориентациях в работе [70], где на основе самосогласованной процедуры [61, 70] из температуры перехода и наклона  $dT_{SDW}/dH$  была оценена критическая величина параметра антине-

стинга  $t_b^* \approx 11.3\text{K}$ , что также согласуется с наклоном вблизи  $P = P_c$  [67]. Одновременно с этим было показано, что параболический ход  $T_{SDW}(H)$  сохраняется в больших полях,  $\omega_c \approx 27\text{K} \gg t_b' \approx 4.5\text{K}$ , вопреки ожидаемому насыщению. В ориентациях  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}, \mathbf{b}$  при нормальном давлении никакого роста температуры перехода обнаружено не было даже в полях до 30 Тесла. Последний результат согласуется с простым предположением о том, что нестинг поверхности Ферми ухудшается за счет увеличения степени двумерности системы под давлением. Действительно, как было показано выше, магнитное поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$  приводит к исчезновению дисперсии в направлении  $k_z$ , что повлияло бы и на параметры антинестинга в направлении  $k_z$  и привело бы к возрастанию  $T_{SDW}$ .

Наконец, в работе [71] была предпринята попытка сравнения свойств ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  с полной теорией [62]. Для этого были проведены измерения  $T_{SDW}(H, P)$  при нескольких давлениях в больших полях, после чего по теории извлекались параметры  $T_{SDW0}$ ,  $v_F$  и  $\epsilon_0$ . Полученные данные оказались в хорошем согласии с предсказаниями теории при  $T_{SDW0} = 16\text{K}$ , что снимает вопрос о насыщении  $T_{SDW}(H)$  в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  в экспериментально достижимых полях. Значение фермиевской скорости также удовлетворяло независимым измерениям.

Отдельно следует остановиться на свойствах ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В этом соединении ВСП можно стабилизировать воспрепятствовав упорядочению анионов  $\text{ClO}_4^-$ . В этом случае можно ожидать, что поверхность Ферми будет похожа на  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , но с другими эффективными массами. Следуя этому предположению были проведены измерения  $T_{SDW}(H)$  в импульсных полях, где была впервые обнаружена отчетливая тенденция к насыщению температуры перехода с  $T_{SDW0} \approx 13\text{K}$  [64], что явилось финальным подтверждением эффективности “стандартной” модели при описании ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ .

Совершенно иная ситуация наблюдается, если анионам дать возможность упорядочиться. Тогда энергии электронов на соседних цепочках с противоположными ориентациями анионов будут заметно отличаться, что эквивалентно расщеплению исходного (высокотемпературного) закона дисперсии на две ветви (см. Рис. 2.3в). Поверхность Ферми



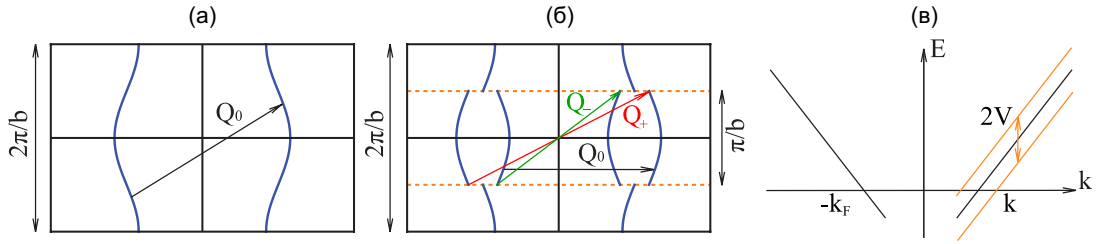


Рис. 2.3: (а) Поверхность Ферми  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  или  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  в отсутствие анионного упорядочения. Волновой вектор  $Q_0$  идеально совмещает противоположные участки поверхности Ферми. (б) Поверхность Ферми  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  в анион-упорядоченном случае. Пунктирная линия отмечает новые границы зоны Бриллюэна, возникающие за счет удвоения периода вдоль оси  $b$ . Теперь поверхность Ферми состоит из четырех участков, которые можно совместить при помощи вектора  $Q_0$  только если димеризационная щель  $V$  мала. При большом расщеплении нестинг осуществляется, по-видимому, независимо внутри электронной ( $Q_-$ ) и дырочной ( $Q_+$ ) подзон. (в) Линеаризованный закон дисперсии  $E(k_x)$  вблизи уровня Ферми: анионное упорядочение приводит к перераспределению заряда между соседними цепочками и, как следствие, к расщеплению исходных (черные) ветвей дисперсии на электронную и дырочную (оранжевые).

будет составлена из двух дырочных участков и одного электронного как показано на рисунке 2.3б. Межзонный (e-h) нестинг становится, очевидно, невыгоден, однако появляются два других вектора нестинга в каждой из зон, e-e и h-h ( $Q_{\pm}$  на Рис. 2.3б). Тем не менее, основным состоянием  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  вместо этого является сверхпроводник, а не волна спиновой плотности. При увеличении магнитного поля  $H||c$  сверхпроводимость сменяется металлическим состоянием, а после – каскадом индуцированных полем волн спиновой плотности вплоть до достижения фазы FISDW0, которая эквивалентна обычной ВСП. Оказалось, что в фазе FISDW0 имеют место два разнесенных по температуре ВСП перехода, которые и были связаны с образованием ВСП на внутри дырочной и электронной поверхности Ферми [51].

Возможен также и случай частичного анионного беспорядка. Такие промежуточные, хотя и не в строгом смысле, степени упорядочения можно получить варьируя скорость охлаждения вблизи структурного перехода анионов  $\text{ClO}_4$ . Представленные в работе [69] транспортные измерения при промежуточных скоростях охлаждения показали, что

сильно-полевая фазовая диаграмма качественно отличается от случая полного анионного упорядочения описанного в [51]. Основным отличием являются гораздо более высокие температуры перехода  $T_{SDW}$  в сильных магнитных полях, как при металлическом основном состоянии, так и в случае образования ВСП при низких температурах [69]. Однако, результаты систематических исследований роста  $T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{c})$  в ВСП фазе при промежуточных упорядочениях хорошо описывались “стандартной” моделью, хотя и с непонятным, но строго двумерным параметром антинестинга [72]. В результате, в работе [69] было высказано предположение о том, что параметром антинестинга может являться величина расщепления спектра (или димеризационная щель).

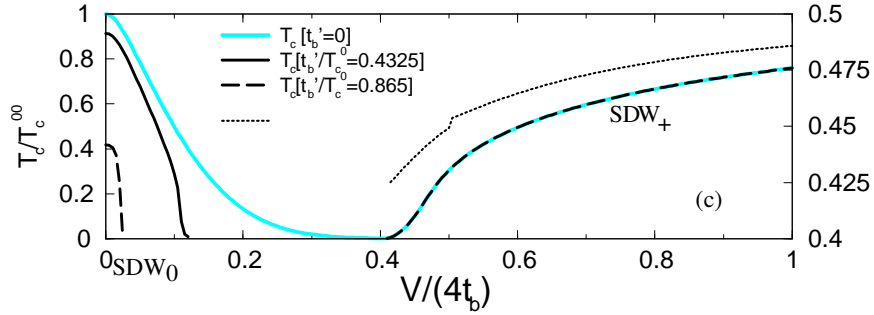


Рис. 2.4: Теоретическая фазовая диаграмма  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  в координатах  $T - V$  (температура – расщепление зон). Обозначения:  $\text{SDW}_0$  – ВСП0,  $\text{SDW}_+$  – ВСП1 (см. текст). Голубой кривой показан случай идеального нестинга,  $t'_b = 0$ . Пунктирной кривой показаны границы фаз при реалистичном параметре  $t'_b$  в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , таким что  $T_{SDW}(V = 0, t'_b)$  совпадает с экспериментальными значениями в сильных беспорядках. Рисунок взят из работы [73].

Теоретическое описание фазовой диаграммы ВСП в присутствии димеризационной щели было дано независимо в работах [73, 74] с использованием формализма “стандартной” модели [54, 60, 62]. Авторы [73] учитывали два возможных вклада в антинестинговый член: стандартный от  $t'_b$  и от димеризационной щели  $V$ , причем при изменении степени упорядочения анионов изменялась только  $V$ , а  $t'_b$  подбиралась так, чтобы  $T_{SDW}(V = 0)$  соответствовала максимальной наблюдаемой в эксперименте температуре перехода. Пример фазовой диаграммы из работы [73] приведен на Рис. 2.4. Основным результатом является

существование двух принципиально различных фаз вблизи малых и больших значений  $V$ . В случае замораживания анионного беспорядка  $V \rightarrow 0$  и, как уже отмечалось ранее, поверхность Ферми становится похожа на  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . При малых  $V$  будет возникать лишь слабое отклонение от исходной формы поверхности Ферми, что можно трактовать как неидеальный нестинг. Очевидно, что вектор нестинга в этом случае будет таким же, как и для  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  ( $Q_0$  на Рис. 2.3а). Такая фаза получила название ВСП0, и она быстро подавляется с ростом степени упорядочения. При больших  $V$  оказалась стабильной фаза ВСП1, где спаривание на разных участках поверхности Ферми происходит независимо (см. Рис. 2.3б). Однако, получить настолько большие значения  $V$  в эксперименте затруднительно, если вообще возможно в случае  $\text{ClO}_4$ , поэтому даже в сильно упорядоченном состоянии вещество не переходит в ВСП. Магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$  помогает сместить границу переходов в область меньших  $V$ , что, по-видимому, и позволяет наблюдать экспериментально фазу ВСП1. Следует отметить, что свойства FISDW и ВСП1 фаз в анионупорядоченном состоянии еще далеки от понимания. Одним из удивительных результатов является подавление ВСП1 фазы и восстановление металлического состояния с замкнутыми орбитами при дальнейшем увеличении поля  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$ [51]. В данной диссертации мы не будем останавливаться на этом подробно, поскольку основным объектом наших исследований является фаза ВСП0.

Итак, как видно из приведенного выше описания стандартная модель успешно и в качественном и в количественном отношении описывает фазу волны спиновой плотности в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  и может на данном этапе даже служить инструментом для измерения параметров энергетического спектра. Как было отмечено, стандартная модель опирается на изменение степени двумерности системы в магнитном поле и под давлением. Хотя она и делает предсказания относительно трехмерного поведения ВСП, но именно в этой области остаются основные вопросы. Какова размерность вектора нестинга? Насколько слаб эффект магнитного поля  $\mathbf{H}||\mathbf{b}$ ? С чем связано наблюдение двух активационных энергий в транспортных характеристиках? Как зависит активационная щель от магнитного поля?

С чем связаны различия в поведении компонент транспорта вдоль различных кристаллографических направлений?

## 2.3 Свойства сверхпроводящей фазы

В данном разделе внимание сосредоточено на описании сверхпроводящих свойств двух соединений в классе солей Бечгаарда:  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  – первого органического сверхпроводника и первого органического сверхпроводника при нормальном давлении. В обоих соединениях сверхпроводимость возникает когда фаза ВСП подавлена либо приложением давления как в случае  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , либо упорядочением анионов как в случае  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  (см. также Рис. 2.2b). В данном разделе речь пойдет о свойствах сверхпроводящей фазы вдали от границы с волной спиновой плотности.

Объемная и однородная сверхпроводимость в этих соединениях была подтверждена уже ранними измерениями эффекта Мейсснера[75] и теплоемкости[76]. Сразу же отметим, что сверхпроводимость в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  носит трехмерный характер, то есть подразумевает существование трехмерной когерентной поверхности Ферми, на которой и происходит спаривание. С учетом линейно-цепочечной структуры  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  и на основе ранних экспериментальных данных рассматривался также альтернативный сценарий “квазиодномерной” сверхпроводимости [77]. В силу больших флуктуаций в строго одномерном случае температура образования дальнего порядка  $T_c = 0$ , однако флуктуационный параметр порядка может существовать на отдельных молекулярных цепочках TMTSF при больших температурах. Конечное перекрытие между цепочками приводит к возникновению протекания между флуктуационными участками с ненулевым параметром порядка и, как следствие, к трехмерному переходу с  $T_c \neq 0$ . В поддержку приводилось данные туннельной спектроскопии, демонстрирующие “псевдощелевую” особенность порядка 40 К, которая противоречила малым экспериментальным  $T_c \approx 1.5$  К [77]. С другой стороны, прецизионные измерения анизотропии критического поля [78] показали, что поперечные длины

когерентности заметно больше расстояний между цепочками, а степень внутрислоевой анизотропии не слишком велика,  $t_a/t_b \sim 10$ ; такой результат говорит в пользу трехмерной сверхпроводимости. Сюда же можно отнести и малую ширину особенности в теплоемкости вблизи перехода [76], которая указывает на малость флуктуаций. В последующей дискуссии [79, 80] были также указаны внутренняя несогласованность и количественные расхождения квазиодномерного сценария с экспериментом, что в совокупности позволяет его отвергнуть в пользу трехмерной сверхпроводимости.

Отдельно следует остановиться на возможной роли одномерности в сверхпроводящих свойствах. Поиск органических сверхпроводников был мотивирован пионерской работой Литтла [13], в которой он в качестве “клея” вместо фононов предложил использовать поляризацию больших молекул движущимися вдоль одномерной цепочки электронами. Тем не менее, современные квазиодномерные органические сверхпроводники далеки от этих представлений [15], в том числе и потому, что одномерная металлическая цепочка в присутствии кулоновского взаимодействия станет Пайерлсовским изолятором. Уникальность же этих соединений связана с эффектом уменьшения размерности волновой функции в магнитном поле [59]. Последний, как отмечалось ранее, является фундаментальным свойством систем с открытыми поверхностями Ферми. Действительно, в сильном поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$  волновая функция будет сосредоточена в пределах мономолекулярного слоя. В таком случае орбитальное подавление сверхпроводимости теряет смысл. Второй механизм подавления сверхпроводимости магнитным полем связан с конкуренцией Зеемановской и сверхпроводящей щелей (так называемый предел Паули,  $H_P$ ), которая имеет место в случае синглетного спаривания, но отсутствует при триплетном спаривании. Следовательно, при наличии триплетного спаривания в квазиодномерных соединениях по мере увеличения поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$  сначала за счет орбитального предела подавляется низкополевая сверхпроводимость, а в больших полях, где система становится эквивалентна множеству независимых монослоев, сверхпроводимость может возникнуть снова. Этот эффект восстановления сверхпроводимости (“reentrant superconductivity”) был предложен Лебедем [81] и в дальнейшем развит

Дюпуа, Монтамбо и Са де Мело[82].

Возможность триплетного спаривания в этих соединениях была предложена Абрикосовым [83] на основе поведения в присутствии беспорядка, а также Горьковым и Джеромом[84] на основе потенциального превышения предела Паули.

### 2.3.1 Сверхпроводимость в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$

Первым указанием на отличную от  $s$ -типа симметрию спаривания явились эксперименты по облучению образцов протонами [85], показавшие чувствительность  $T_c$  уже к малым дозам. Качественно полученная зависимость соответствовала предсказанной Абрикосовым[83] для триплетного спаривания.

Независимые результаты по симметрии спаривания были получены при помощи измерений температурных зависимостей критического поля (на основе  $R_{zz}(T)$ ), мотивированных поиском описанного выше эффекта восстановления сверхпроводимости[59, 81, 82]. К наиболее ярким данным можно отнести четырехкратное превышение предела Паули критическим полем  $H_{c2}||\mathbf{b}$  (двукратное для  $H_{c2}||\mathbf{a}$ ) и выраженную положительную кривизну зависимости  $H_{c2}(T)$  без признаков насыщения [86, 34]. Такое поведение  $H_{c2}(T)$  можно было бы связать с установлением фазы Ларкина-Овчинникова-Фульде-Ферелла (ЛОФФ), однако при понижении температуры в магнитных полях не наблюдалось признаков ожидаемого в этом случае фазового перехода первого рода [34]. Таким образом, эти данные указывают в пользу триплетного сверхпроводящего спаривания.

Еще одной необычной особенностью поведения  $H_{c2}(T)$  является ее анизотропия в плоскости  $\mathbf{a}$  -  $\mathbf{b}$  молекулярных слоев: тогда как вблизи  $T_c$  наклон  $dH_{c2}/dT$  выше для ориентации  $\mathbf{a}$ , при понижении температуры  $H_{c2}||\mathbf{b}$  сначала сравнивается с  $H_{c2}||\mathbf{a}$ , а затем и вовсе становится заметно больше[86]. Более того, в области высоких температур зависимость  $H_{c2}(T)$  для ориентации  $\mathbf{a}$  ведет себя подобно обычному сверхпроводнику второго рода, однако с понижением температуры появляется положительная кривизна. Для ориентации  $\mathbf{b}$ , напротив, никаких признаков классического поведения не наблюдается. Схожий характер

анизотропии наблюдается также и в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , где он исследован более подробно (о чем пойдет речь ниже). Эта особенность, как было показано в работе [87] указывает, напротив, на установление фазы ЛОФФ при низких температурах.

Заметим, что авторы [34, 86] отмечают универсальность описанного выше поведения  $H_{c2}(T)$  для всех критериев, используемых для определения критического поля на основе температурных зависимостей сопротивления. Это, однако, не позволяет утверждать, что выводы справедливы и для термодинамического критического поля. Следует также отметить, что максимальные значения  $H_{c2}$ , в которых  $R_{zz}$  по-прежнему обращается в нуль, лишь незначительно превышают верхние “либеральные” (основанные на ряде существенных допущений) оценки предела Паули [34, 88].

Одним из критических тестов для триплетного сценария сверхпроводимости явились измерения ЯМР спектров на ядрах  $^{77}\text{Se}$  проведенные Ли и др. для ориентаций поля  $H \parallel \mathbf{a}$  [33] и  $H \parallel \mathbf{b}$  [89]. Они показали отсутствие температурной зависимости сдвига Найта,  $K$ , при переходе в сверхпроводящее состояние. Сдвиг Найта связан со вкладом спинов электронов в сверхтонкое расщепление, так что в него входит в том числе восприимчивость Паули  $\chi_s$ . Последняя должна исчезать при  $T = 0$  в случае изотропного синглетного параметра порядка, что, следовательно, приведет к изменению сдвига Найта  $\delta K \propto \chi_s$ . Отсутствие температурной зависимости  $K(T)$  означает сохранение спиновой намагниченности ниже  $T_c$ . Такое поведение строго противоречит синглетному спариванию и может быть интерпретировано в пользу триплетного спаривания, при условии, что вектор поляризации пары сонаправлен с внешним полем [20]. В качестве альтернативы авторы рассматривали возможный вклад нормальных центров вихрей, но он должен быть мал для лежащего в плоскости слоев магнитного поля. Более того, это приводило бы к заметному расщеплению ЯМР пика, исходя из ожидаемой величины  $\delta K$  для синглетного случая. Здесь следует отметить, что измерения были ограничены диапазоном  $T \geq 0.3 - 0.4T_c$  из-за разогрева образца ВЧ-импульсами [20]. Тем не менее, интерпретация данных не до конца однозначна, так как остаются под вопросом однородность образца (резистивный хвост ниже  $T_c$ ), дина-

мика вихрей и неожиданно сильная чувствительность  $T_1$  к величине магнитного поля[89]. Наконец, выбор величины магнитного поля, при котором проводятся измерения, также может играть роль, как впоследствии показали эксперименты на  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ .

Таким образом, совокупность известных на данный момент экспериментальных фактов указывает на триплетный характер спаривания в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Тем не менее, крайне необычные свойства сверхпроводящего состояния в этом соединении далеки от понимания. Существующие теоретические модели, в том числе сценарии изменения размерности в поле и образования ЛОФФ-фазы, не позволяют количественно описать наблюдаемые величины критического поля без привлечения триплетных эффектов[90, 91]. Важно также отметить, что в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  характер сверхпроводимости, по-видимому, одинаков по обе стороны от критической точки волны спиновой плотности:  $H_{c2}$  даже возрастает при переходе в пространственно-неоднородное двухфазное состояние, где сосуществуют фазы сверхпроводника и волны спиновой плотности[34]. Этот результат также накладывает ограничения на возможные теоретические модели.

### 2.3.2 Сверхпроводимость в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

Возможность наблюдать сверхпроводимость в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  при нормальном давлении позволяет применить гораздо больше методик для изучения СП фазы.

Первые свидетельства в пользу нестандартной сверхпроводимости также были получены при изучении влияния беспорядка. Сюда можно отнести ранние эксперименты по замещению молекул[92], продемонстрировавшие подавление  $T_c$ . Эти результаты были подтверждены в работе[93] дальнейшими исследованиями сверхпроводимости в твердых растворах  $(\text{TMTSF})_2(\text{ClO}_4)_{1-x}(\text{ReO}_4)_x$ , где также наблюдалось подавление  $T_c$ . Однако, в этих экспериментах под вопросом оставалась однородность образца.

Оказалось, что гораздо больше возможностей представляет изучение роли собственно анионного беспорядка. В работе[94] было измерено поведение скачка теплоемкости для умеренных скоростей охлаждения, которое выявило подавление  $T_c$  при сохранении плот-



ности состояний. Последующие транспортные измерения[95] показали, что поведение  $T_c$  при изменении степени анионного беспорядка описывается теорией Абрикосова-Горькова для сверхпроводника  $d$ -типа. Для количественной оценки беспорядка использовалось значение сопротивления насыщения. Эти результаты являются сильным аргументом в пользу отличного от  $s$ -типа параметра порядка.

В ЯМР экспериментах на протонах метиловых групп[96] была обнаружена  $1/T_1 \propto T^3$  кубическая температурная зависимость скорости спин-решеточной релаксации. При изотропном параметре порядка количество свободных носителей, которые отвечают за релаксацию ядерного спина, экспоненциально уменьшается с понижением температуры, поэтому отклонения от такого поведения указывают на нодальный (обращающийся в нуль для определенных  $k$ ) параметр порядка. В теоретической работе[97] было показано, что  $T^3$  зависимость соответствуют либо синглетному  $\Delta_s \cos(k_y b)$ , либо триплетному  $\Delta_p \sin(k_y b)$  параметру порядка. Следует отметить, что в работе [96] измерения были ограничены диапазоном  $T \geq T_c/2$ , и в области низких температур поведение  $1/T_1$  зависимость становилась слабее  $T^3$ .

В работе[98] были представлены измерения теплопроводности при сверхнизких температурах ( $T \sim T_c/10$ ) в различных полях, однако дополнительного вклада, который должен был бы присутствовать при нодальном параметре порядка, обнаружено не было. Авторы отмечают, что такое поведение не противоречит  $p_x$  симметрии. Данные результаты остаются по-прежнему без объяснения, но, возможно, они вызваны специфическими свойствами низкотемпературной СП фазы, о которых пойдет речь ниже.

Измерения температурных зависимостей критического поля на основе резистивных переходов обнаружили положительную кривизну  $H_{c2}(T)$  и почти двукратное превышение предела Паули,  $H_P$ , в ориентации  $H \parallel \mathbf{b}$  [99, 100]. Эти результаты согласуются с наблюдениями в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , однако величины  $H_{c2}$  оказываются заметно меньше. Последующие магнитометрические измерения[88] подтвердили двукратное превышение предела Паули и показали хорошее согласие с резистивными данными по  $H_{c2}$ . Следует отметить, что хотя

магнитные измерения дают термодинамическое подтверждение установления СП состояния, особенность намагниченности при  $H_{c2}$  все же весьма мала. Таким образом, данная группа результатов указывает на возможное триплетное спаривание в СП состоянии в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ .

Еще одним источником данных о симметрии параметра порядка являются туннельные спектры. Один из таких экспериментов был проведен на специально отобранном “бикристалле”, состоящим из двух кристаллов, сросшихся под некоторым углом [101]. Низкотемпературные измерения вольт-амперных характеристик показали, что данная структура ведет себя подобно S-N-S контакту. В туннельных спектрах был обнаружен большой пик дифференциальной проводимости при нулевом смещении, который авторы связывают с образованием андреевских состояний в контакте. Такой результат качественно расходится с поведением характерным наличием сферически симметричного параметра порядка, и исходя из геометрии структуры может указывать на  $p_z$ -симметрию [101]. К сожалению, дальнейшие эксперименты на таких структурах пока выполнены не были.

Измерения [102] сдвига Найта и ЯМР-спектров на ядрах  $^{77}\text{Se}$  вскрыли крайне необычную особенность сверхпроводящей фазы в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ : существование двух принципиально разных областей на  $H - T$  фазовой диаграмме. Данные в эксперименте были получены для двух значений поля  $H' \approx 1 \text{ Тл}$  и  $H'' \approx 4 \text{ Тл}$  параллельно ориентации  $\mathbf{b}$ . В малых полях,  $H' < H_P$ , отчетливо наблюдался сдвиг Найта при переходе из нормального в сверхпроводящее состояние, как и ожидалось бы в случае синглетной СП. Однако в больших полях,  $H_P < H'' < H_{c2}$  сдвиг Найта оказался равен нулю, что свидетельствует о конечной намагниченности в СП состоянии и, по-видимому, указывает на триплетную сверхпроводимость. Более того, температурная зависимость  $1/T_1$  в поле  $H''$  не демонстрирует никаких особенностей вблизи резистивного перехода. Природа остаточной намагниченности в больших полях по-прежнему остается загадкой. В своих данных авторы [102] не обнаружили перехода к ЛОФФ-фазе.

Для более детальных исследований двухфазной, возможно синглетной, сверхпрово-

димости в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  в работе[103] были проведены измерения анизотропии  $H_{c2}$  в плоскости  $\mathbf{a}-\mathbf{b}$  при различных температурах. При высоких температурах/малых полях угловая зависимость почти изотропна, за исключением пиков вблизи ориентации  $\mathbf{a}$ . Ось симметрии в этом случае является  $\mathbf{b}'$ . С повышением поля до  $H \gtrsim H_P$  зависимость становится сильно анизотропной: в фиксированном поле  $T_c(H)$  в ориентации  $\mathbf{a}$  становится заметно меньше, чем в  $\mathbf{b}'$ . Вместе с этим появляется новая ось симметрии, которая не совпадает с какими-либо кристаллографическими направлениями, и ее угловое положение зависит от величины поля. С одной стороны, эволюция анизотропии с полем демонстрирует важную роль изменения размерности в свойствах СП фазы. С другой, вращение оси симметрии указывают на возможную синглетную сверхпроводимость с образованием ЛОФФ фазы[103]. Отдельно стоит отметить чувствительность анизотропии  $H_{c2}$  к величине времени рассеяния: высокополевые особенности были сильно размыты в более “грязном” образце[104]. Этот результат также говорит в пользу образования ЛОФФ фазы.

В одной из самых поздних на данный момент работ[19] были проведены разрешенные по углу измерения теплоемкости в магнитном поле в сверхпроводящей фазе  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Было обнаружено, что термодинамическое критическое поле,  $H_{th}$ , в плоскости  $\mathbf{a}-\mathbf{b}$  четко ограничено пределом Паули. Напротив, в ориентации  $H \parallel \mathbf{c}^*$ , как и ожидалось, наблюдается орбитальное подавление сверхпроводимости. Таким образом, полученные данные являются сильным свидетельством в пользу синглетного спаривания. Помимо этого была измерена угловая зависимость электронной теплоемкости в магнитных полях, лежащих в плоскости  $\mathbf{a}-\mathbf{b}$ . Эти данные позволили с рядом допущений восстановить распределение плотности квазичастичных состояний в обратном пространстве: параметр порядка скорее всего обладает нодальной  $d$ -волновой симметрией. Еще одним важным результатом является то, что высокополевая СП фаза[102], существующая в полях  $H > H_{th}$ , не дает какого-либо значимого вклада в энтропию. При этом, наблюдавшееся ранее поле необратимости[88] и поле, при котором исчезает сдвиг Найта[102], примерно соответствуют  $H_{th}$ . Тем не менее, вклад сверхпроводимости отчетливо наблюдается и в транспортных и в

магнитных измерениях в сильных полях. Природа этого состояния по-прежнему остается под вопросом.

Таким образом, сверхпроводящая фаза в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  обладает, по-видимому, но-дальной  $d$ -волновой симметрией и синглетным типом спаривания. В сильных полях име-ются признаки установления ЛОФФ-фазы.

### 2.3.3 Возможные механизмы сверхпроводимости

Из приведенного выше обзора экспериментальных работ становится очевидным, что ме-ханизм сверхпроводимости в квазиодномерных органических системах по-прежнему да-лек от объяснения. Относительно небольшие температуры перехода  $T_c \approx 1.5\text{ K}$ , скачок теплоемкости[76] и размер щели[101] примерно согласуются с теорией БКШ. Однако, и  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  являются нетрадиционными сверхпроводниками с отлич-ным от  $s$ -типа спариванием[19, 89] и с признаками образования ЛОФФ состояния в силь-ных полях.

В литературе предлагалось множество различных теорий сверхпроводимости, реали-зующих синглетное или триплетное спаривания и разнообразные симметрии параметра порядка (см. обзор [105]). К наиболее актуальным из них можно отнести недавние теорети-ческие работы [87] и [91], рассматривающие природу низкотемпературной/высокополевой фазы в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В первой в качестве основного сценария рассматривается син-глетная ЛОФФ-фаза в анизотропной решетке[87]. Во второй предлагается необычная комбинация ЛОФФ-фазы и изменения размерности в магнитном поле при синглетном спаривании[91].

При поиске возможных механизмов сверхпроводимости важно учитывать, что соеди-нения  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  “приведены” к сверхпроводимости путем ослабления различного рода электронных корреляций (см. Рис. 1.1). Они также могут вносить вклад в нормальные и сверхпроводящие свойства (см. обзор [23]). С феноменологических позиций близость фаз СП и ВСП и сопутствующие этому антиферромагнитные флуктуации способствуют

синглетному спариванию с  $d$ -волновой симметрией параметра порядка[106]. Такой сценарий, очевидно, не удовлетворяет экспериментам в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . В дальнейших поисках микроскопической теории сверхпроводимости в этих соединениях область параметров в моделях очень сильно расширилась. Ниже мы остановимся на некоторых интересных следствиях.

В ряде теоретических работ изучалась роль  $2k_F$  спиновых и зарядовых флуктуаций в механизмах сверхпроводимости. При сильно анизотропных спиновых флуктуациях и электрон-фононном взаимодействии может реализовываться триплетное  $p$ -волновое спаривание[107]. В работе[108] показано, что спиновые флуктуации в случае обычной Q1D поверхности Ферми делают выгодной спин-синглетную нодальную  $d$ -волновую симметрию, тогда как при учете зарядовых флуктуаций более предпочтительной становится спин-триплетная нодальная  $f$ -волновая симметрия. Особую роль, очевидно, играет и расщепление зон за счет анионного упорядочения. Так, в работе[109] было показано, что в случае сильных спиновых флуктуаций с увеличением анионной щели нули параметра порядка должны исчезать. Этот результат противоречит экспериментальным наблюдениям [19]. В то же время, если сильнее оказываются зарядовые флуктуации между цепочками, то наиболее выгодным оказывается синглетная нодальная  $d$ -волновая сверхпроводимость[110].

В свете вышесказанного возникает вопрос о том, проявляются ли данные флуктуации в каких-либо характеристиках в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$ ? На присутствие зарядовых флуктуаций указывает наблюдавшееся в рентгеновских экспериментах сосуществование волн зарядовой и спиновой плотности[22]. Подобный эффект также возникает в ренорм-групповых теоретических расчетах[23], однако на данный момент дополнительных свидетельств в его пользу обнаружено не было. Спиновые флуктуации были исследованы гораздо подробнее в ЯМР-измерениях[20]. Так, в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  было обнаружено, что при давлениях  $P > P_c$  в металлической фазе существуют субкритические антиферромагнитные флуктуации[111], величина которых уменьшается с ростом давления[20, 112]. В недавней теоретической работе[49] было также показано, что в случае Q1D поверхности Ферми

они дают линейный по температуре вклад в сопротивление в металлическом состоянии. С рядом серьезных допущений данный результат качественно согласуется с температурными зависимостями сопротивления в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [49]. Таким образом, в  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  есть значимые основания рассматривать вклад по крайней мере спиновых флуктуаций в сверхпроводимость.

В качестве заключения к данному подразделу можно сказать, что свойства сверхпроводящего состояния вблизи границы с ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  практически не исследованы, а в области сосуществования СП/ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  – не изучены вообще. В то же время, данный вопрос представляет огромный интерес с теоретических позиций из-за возможности трансформации симметрии спаривания за счет усиления антиферромагнитных флуктуаций с одной стороны и уменьшения расщепления зон – с другой. В представленных в данной работе экспериментах мы частично ответим на этот вопрос.

## 2.4 Сосуществование сверхпроводимости и антиферромагнитного изолятора в $(\text{TMTSF})_2\text{X}$

По причине отсутствия какой-либо законченной модели сосуществования металла/СП и ВСП в данном разделе будут достаточно подробно описаны почти все экспериментальные факты и конкурирующие теории для их объяснения.

Впервые сверхпроводящий переход на фоне состояния изолятора наблюдался в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  в работе [27], в которой на одном и том же образце были проведены измерения  $R_{xx}(T)$  для двух давлений – 6.5 и 10.5 кбар. При большем давлении образец демонстрировал монотонный металлический ход сопротивления вплоть до  $T = T_c$ . При меньшем давлении  $R_{xx}(T)$  меняла ход с металлической на зависимость типа изолятора вблизи  $T_{MI} \approx 6$  К, однако при дальнейшем понижении температуры наблюдался переход в сверхпроводящее состояние с  $T_c(P = 6.5) > T_c(P = 10.5)$ . Такое поведение указывает на то, что сверхпроводимость возникает на фоне щелевого состояния

ВСП, так как наличие не закрытых щелью ВСП участков поверхности Ферми давало бы металлический ход сопротивления. Заметное (в 5 раз) увеличение критического поля  $H_{c2}||b$  при  $P = 6.5$  кбар по сравнению с  $P = 10.5$  кбар позволило предположить наличие пространственно-неоднородного состояния (например, за счет негидростатичности давления), однако критические токи практически не отличались для этих двух давлений, на основе чего авторы отвергли эту гипотезу[27]. Как будет показано ниже, последний результат не опровергает пространственно-неоднородного разделения фаз, в силу более сложной текстуры сверхпроводящей фазы.

Систематическое исследование СП-ВСП фазовой диаграммы  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  по давлению было проведено гораздо позже в работе [28]. Была проведена серия измерений температурных зависимостей  $R_{xx}(T)$  при различных давлениях, причем для изменения давления необходимо было отогреть камеру до комнатной температуры. Было выделено три области на фазовой диаграмме: (i) однородной ВСП, (ii) однородного СП и (iii) неоднородной ВСП (см. Рис. 2.5а). В третьей области отчетливо наблюдалось присутствие двух фаз - волны спиновой плотности и либо металла ( $T > T_c$ ), либо сверхпроводника ( $T < T_c$ ). Это выражалось в огромном гистерезисе на температурной зависимости сопротивления в интервале  $T_c \leq T \leq T_{SDW}$ , а также в загибе вниз температурной зависимости вблизи  $T_c$  (см. Рис. 2.5б). Также по мере увеличения давления наблюдался заметный рост критического тока и сильно падение сопротивления при  $T < T_{SDW}$ . Это позволило сделать вывод о том, что: (i) состояние является пространственно неоднородным, (ii) доля/расположение металлических областей на фоне волны спиновой плотности меняется с температурой и (iii) доля металлической/сверхпроводящей фазы увеличивается с ростом давления. На основе простой вариационной модели было показано, что неоднородное состояние вблизи критического давления является более выгодным, по сравнению с однородным.

Подробное изучение поведения критического поля вблизи фазовой границы ВСП в работе [32] показало, что заметное возрастание  $H_{c2}$  начинается при приближении к критическому давлению  $P = P_c$  со стороны сверхпроводящей фазы. Возрастание затраги-

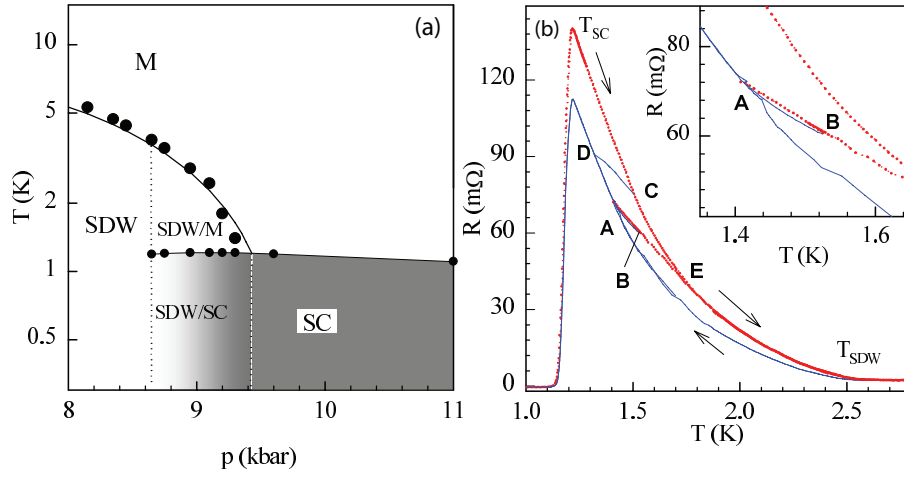


Рис. 2.5: (а)  $T - P$  фазовая диаграмма для  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Обозначения: SDW - волна спиновой плотности; SC - сверхпроводник; SDW/M - неоднородное состояние, в котором сосуществуют фазы ВСП и металла, а ниже  $T \approx 1.2$  К - фазы ВСП и СП (SDW/SC). Градиентная заливка показывает увеличение доли сверхпроводящей фазы. Рисунок взят из работы [28]. (б) Температурная зависимость  $R_{xx}(T)$  при давлении  $P = 9.1$  кбар. Сплошная и пунктирная линии обозначают охлаждение и нагрев образца соответственно. На рисунке показано три петли: (i)  $T_{SDW} \rightarrow A \rightarrow E \rightarrow T_{SDW}$ , (ii)  $T_c \rightarrow C \rightarrow D \rightarrow T_c$  и (iii)  $T_{SDW} \rightarrow A \rightarrow B \rightarrow T_c$ . На вставке показано положение точки B. Рисунок взят из работы [28].

вает компоненты  $H_{c2}$  вдоль всех принципиальных кристаллографических осей. Увеличение критического поля также сопровождается появлением положительной кривизны на температурной зависимости, вопреки стандартной БКШ-модели. Для объяснения такого поведения был предложен сценарий самопроизвольного разбиения образца на домены сверхпроводника и волны спиновой плотности. С точки зрения минимизации кинетической энергии экранирующих токов следовало, что домены должны чередоваться вдоль оси  $\mathbf{a}$  (т.к.  $\lambda_a \ll \lambda_{b,c}$ ) – это косвенно подтверждается сохранением анизотропии  $H_{c2}^c \ll H_{c2}^{a,b}$ . Возрастание  $H_{c2}$  связывалось с изменением орбитального предела за счет уменьшения сечения СП доменов вдоль оси  $\mathbf{a}$  при понижении давления  $P < P_c$ , а положительная кривизна являлась следствием минимизации энергии при добавлении изолирующего домена. Такая трактовка позже подверглась критике, на основе того, что добавление слишком тонкого домена ВСП - меньше длины когерентности ВСП,  $d < \xi_{SDW}$ , - перестает быть



энергетически выгодным [113].

Вопрос о характере сосуществования фаз ВСП и металла/СП в присутствии магнитного поля был рассмотрен в работе [29]. В основе работы лежит идея о том, что границу металл/ВСП можно пересечь также за счет увеличения критического поля, которое делает металлическое состояние неустойчивым. Вновь, вблизи критического давления наблюдались огромные гистерезисы на зависимостях  $R_{xx}(H)$ , которые явно указывали на неоднородность состояния и важность предыстории. На основе этого делался вывод о том, что граница между фазами ВСП и металла относится к первому роду. В этом случае при пересечении границы на фоне мажоритарной фазы остаются включения миноритарной фазы, количество которых уменьшается при отходе от границы и не восстанавливается до нового ее пересечения. На основе таких же аргументов можно объяснить и поведение температурных зависимостей  $R_{xx}(T)$  в работе [28] (см. также Рис. 2.56).

В работе [30] был поставлен вопрос о размере металлических доменов, эволюции их количества с температурой и взаимном влиянии фаз в области сосуществования. ЯМР-измерения показали примерно линейное падение металлического вклада в поглощение при  $T < T_{SDW}$ . Взаимное влияние оказалось малым, так как локальное (индуцированное) поле не превышало  $10 \text{ Э}$  при  $H = 0.29 \text{ Тл}$ . Макроскопические, порядка микрона, размеры доменов следовали из наблюдения четких  $a - c$  и  $a - b$  угловых осцилляций магнитосопротивления.

В более ранних ЯМР-измерениях [31] ставился вопрос о существовании квантовой критической точки. На основе измерений времен спин-решеточной релаксации по обе стороны от перехода было показано, что температура затухания критических флуктуаций вблизи  $P = P_c$  отлична от нуля, что указывает на существование трикритической точки. Однако, существование квантовой критической точки не отвергается авторами [31] на основе того, что беспорядок в системе может модифицировать критическое поведение.

Трикритическая точка возникает при наличии зависимости одного из коэффициентов

в разложении Ландау от внешнего параметра[114]. Действительно, в разложении вида:

$$\delta F = A(T - T_c)\phi^2 + B(x)\phi^4 + C\phi^6 \quad (2.10)$$

при  $T > T_c$  свободная энергия имеет один минимум при  $B(x), C > 0$ , что соответствует переходу второго рода, и три минимума при  $B(x) < 0, C > 0$ , что соответствует переходу первого рода. Точка, где  $B(x)$  меняет знак, является трикритической точкой. Применительно к переходу металл-ВСП в роли параметра  $x$  может выступать деформация кристаллической решетки[28, 30]. В этом случае трикритическую точку можно получить[30], если ввести зависимость температуры перехода в ВСП вида  $T_{SDW}(x) = T_{SDW}^0 - x(\partial T_{SDW}/\partial x)$  и добавить к  $\delta F$  энергию деформации  $Kx^2/2$ , после чего определить  $x$  из условия минимума  $\delta F$ . Уравнение (2.10) приводится тогда к виду:

$$\delta F = A(T - T_{SDW}^0)\phi^2 + \left[ B - \frac{A^2(\partial T_{SDW}/\partial x)^2}{2K} \right] \phi^4 + C\phi^6. \quad (2.11)$$

При  $T_{SDW} \rightarrow 0$  наклон  $\partial T_{SDW}/\partial P \sim \partial T_{SDW}/\partial x \rightarrow \infty$ , в результате чего член перед  $\phi^4$  меняет знак.

Следует отметить, что, вопреки казалось бы фиксированному в эксперименте давлению, ниже трикритической точки расслоение фаз соответствует случаю постоянного объема. В литературе [28, 31, 29, 30] этот аспект обычно списывают на негидростатические условия в камере давления. Давление создается при комнатной температуре, когда образец находится в жидкости, температура затвердевания которой гораздо выше температуры ВСП-перехода. В результате, во время охлаждения камеры в затвердевшей среде могут возникать неоднородности давления, которые и могут привести к расслоению фаз. Однако в этом случае фазово неоднородное состояние может являться просто артефактом эксперимента и, в принципе, возможно даже выше трикритической точки. Основным аргументом против такого сценария считается заметное возрастание критического поля и появление положительной кривизны у зависимости  $H_{c2}(T)$ , что указывает на самосогласованное расслоение фаз.

К проблеме сосуществования фаз ВСП и сверхпроводника с возможно триплетным типом спаривания имеется большой теоретический интерес. Действительно, антиферромагнитный порядок должен сильно подавлять триплетную сверхпроводимость, по примеру того как ферромагнитный – синглетную [35]. Одна группа теорий изначально рассматривает сосуществование ВСП и триплетного СП, тогда как другая группа не фиксирует с самого начала характер спаривания и ищет более выгодный. Из обсуждения выше видно, что основными экспериментальными фактами, которые, по меньшей мере, должна объяснить теория, являются разделение фаз и необычное поведение критического поля при приближении к границе ВСП фазы.

К первой группе относятся  $SO(4)$ -симметричная теория[39] и вариационная теория[35]. В первой работе с учетом ряда допущений показано, что сильно-анизотропная Ферми-жидкость в  $(TMTSF)_2PF_6$  может рассматриваться с позиций латтинжеровского гамильтониана с  $SO(4)$  симметрией при половинном заполнении[37]. При такой симметрии имеется переход первого рода между антиферромагнетиком и триплетным сверхпроводником, который на  $T - P$  фазовой диаграмме приводит пространственно-неоднородному сосуществованию фаз антиферромагнетика и металла/триплетного сверхпроводника[39]. В работе также предсказывается фазовый переход первого рода между нормальным металлом и триплетным сверхпроводником и возникновение нового типа коллективных возбуждений, наблюдение которых явилось бы сильным свидетельством справедливости  $SO(4)$ -описания[39]. Последние предполагалось наблюдать либо по возникновению пика в нейтронном рассеянии или в туннельных экспериментах в структурах типа синглетный СП - антиферромагнитный изолятор - триплетный сверхпроводник [37]. В силу большой технической сложности такого типа эксперименты пока не были проведены.

Во второй работе [35] в рамках вариационного подхода рассматриваются взаимодействующие параметры порядка ВСП и триплетного СП. В зависимости от значений коэффициентов при четвертой степени параметров порядка могут появляться бикритические или тетракритические точки [114]. Бикритическая точка соответствует слиянию двух ли-

ний фазовых переходов второго рода в одну линию первого рода, разграничивающую фазы. Такая линия на  $T-P$  фазовой диаграмме будет перпендикулярна оси  $P$ [35], что в условиях  $P = \text{const}$  сводит область сосуществования к линии  $P = P_c$ , а в условиях  $V = \text{const}$  давала бы очень узкую область сосуществования (что расходится с экспериментом [28]), так как отклонения от гидростатичности - малы. Авторы [35] склоняются к случаю тетра критической точки, хотя тогда область сосуществования фаз отделена от однородных областей линией фазовых переходов второго рода. Они показывают, что для  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  параметры порядка отталкиваются, что приводит к пространственному расслоению фаз, причем модуляция задается вектором нестинга ВСП. Авторы также указывают, что связь между параметрами порядка может отразиться на свойствах сверхпроводящей фазы в силу присутствия спин-флоп перехода в ВСП при увеличении поля[35], однако это касается только ориентации  $\mathbf{H}||\mathbf{b}$  вдоль оси легкого намагничивания.

Ко второй группе теорий относятся сценарии появления сверхпроводимости в доменных стенках ВСП [41, 113, 115] и на фоне не закрытых щелью ВСП участков поверхности Ферми [36]. В работе [41] авторы развивают идею о том, что существование конечного интервала по давлению, где фазы металла и ВСП разделены в пространстве, является следствием возникновения “солитонной” фазы вблизи  $P = P_c$ . В качестве иллюстрации понятия солитонных/доменных стенок можно рассмотреть модельную задачу об упорядоченной системе в рамках теории среднего поля. Свободная энергия  $F$  такой системы имеет два эквивалентных минимума при разных по знаку значениях параметра порядка,  $\pm m_0$ . Если на систему наложены граничные условия, с  $m = +m_0$  при  $x \rightarrow \infty$  и  $m = -m_0$  при  $x \rightarrow -\infty$ , то в ней возникнет топологический дефект, связанный с переходом от одного значения  $m$  к другому, который невозможно удалить не изменив граничные условия [114]. Состояние системы с топологическим дефектом имеет большую энергию как в силу модуляции  $m$  так и за счет зависимости  $F(m)$ , что можно выразить в виде:

$$\frac{F}{A} = \int \left[ F - F_0 + \frac{1}{2}D(dm/dx)^2 \right] dx, \quad (2.12)$$

где  $A$  - площадь в поперечном  $x$  сечении,  $F_0 = F(m_0)$ . Поверхностная плотность энергии

такого дефекта определяется  $E_0$  – энергией локального максимума  $F(m)$  – и размером  $l^*$  дефекта. Из минимизации энергии можно вычислить оптимальный размер дефекта, который обычно определяется средне-полевой длиной когерентности (в разложении до  $m^4$  это можно показать явно)[114]. В работах [116, 117, 118] было показано, что подобного рода дефекты могут возникать в волнах зарядовой или спиновой плотности и обладают свойствами солитонов.

Для волны спиновой плотности характерны нейтральные солитоны с энергией возбуждения:

$$E_S = 2\Delta_0/\pi, \quad (2.13)$$

в пересчете на одну цепочку, что меньше энергии обычных черезщелевых возбуждений  $E_{OG} = 2\Delta_0$ , где  $\Delta_0$  - щель волны плотности. Энергетический уровень солитонов лежит внутри щели [119], но за счет конечного туннелирования между одномерными цепочками,  $t_\perp(p_\perp)$ , образуются протяженные состояния с дисперсией  $p_\perp$  и вместо одиночных дефектов на различных цепочках получается солитонная стенка. Энергию такой стенки в пересчете на одну цепочку можно записать как[41]:

$$A(t_\perp) = 2\Delta_0/\pi - \int_{t_\perp \leq 0} t_\perp(p_\perp) b dp_\perp / (2\pi), \quad (2.14)$$

где  $b$  - период решетки в направлении поперек цепочек. В этом уравнении есть два конкурирующих вклада - затраты на создание солитона и выигрыш от кинетической энергии при формировании стенки. Очевидно, что формирование стенки станет выгодно, когда  $A \leq 0$ . Основная идея авторов [41] состоит в том, что при увеличении давления возрастает также и  $t_\perp$ , в результате чего, при достаточно больших  $t_\perp$  вблизи  $P = P_c$  энергия стенки становится отрицательной. При этом фазовый переход второго рода между металлом и ВСП меняется на переход первого рода между металлом и солитонной фазой. Температурные гистерезисы авторы связывают с изменением количества солитонов с температурой. Важно отметить, что в теории для основного антинестингового члена  $t'_b$  ширина солитонной фазы на  $T - t'_b$  фазовой диаграмме оказывается нулевой [41], однако члены старшего

порядка дают отличную от нуля ширину. В дальнейшем было показано [115], что внутри солитонных стенок может возникать сверхпроводимость, причем триpletное спаривание оказывается более выгодно по сравнению с синглетным. Вопрос о потенциальном возрастании критического поля и его положительной кривизне в солитонной фазе был рассмотрен в работе [113]. Подход базируется на влиянии малости размеров солитонов на критическое поле.

Фазовое расслоение можно объяснить с вариационных позиций, подобно тому, как это было сделано в работах [28, 30], что, однако, обходит стороной причину возрастания критического поля. В качестве альтернативы солитонной фазы в работе [36] был рассмотрен сценарий “стандартного” подавления ВСП под давлением, когда на не закрытых ВСП-щелью участках поверхности Ферми образуются электронные карманы. Было показано, что такие электроны могут образовать сверхпроводящий конденсат, причем tripletное спаривание снова выигрывает по сравнению с синглетным. Критическое поле может возрастать за счет сильно модифицированного присутствием щели закона дисперсии [36].

Следует отметить, что ряд теорий [35, 41] предсказывает нетривиальную пространственную структуру сверхпроводящей фазы, которую можно было бы наблюдать в измерениях анизотропии транспорта. Такие измерения были проведены в работе [42], где было обнаружено, что сверхпроводимость возникает сначала вдоль оси  $c$ , то есть между проводящими слоями, а не внутри них, как ожидалось бы из модели [41]. В остальном, при возрастании  $P \rightarrow P_c$  СП текстура меняется от “одномерной” вдоль оси  $c$  к “двумерной” в плоскости  $\mathbf{b}$ - $c$  и, наконец, к однородной. Важно отметить, что сверхпроводимость устанавливается перпендикулярно к оси  $\mathbf{a}$ , что может являться значимым указанием в поддержку образования солитонной фазы. Для объяснения противоречия в порядке установления СП авторы [42] предлагают модель подавления ВСП где межслоевой интеграл перескоков  $t_c$  вместо “стандартного”  $t'_b$  является антинестинговым параметром. В качестве подтверждения они приводят данные о неопределенности поперечной компоненты  $Q_z$  вектора нестинга как указание на то, что нестинг носит двумерный характер и трехмерная

дисперсия является лишь возмущением.

Таким образом, в вопросе механизмов сосуществования ВСП и СП в квазиодномерных соединениях остается ряд принципиальных вопросов и противоречий в интерпретации данных. Это касается как свойств самой ВСП, так и СП фазы на ее фоне. Какова размерность нестинга ВСП и что же является антинестинговым параметром? Какой параметр управляет пространственной текстурой двухфазного состояния? Обязательно ли характер СП фазы на фоне ВСП должен быть триплетным и если да, то можно ли наблюдать переход от синглетного к триплетному типу при приближении к ВСП? Является ли солитонная фаза общим механизмом сосуществования СП и ВСП в квазиодномерных соединениях? Можно ли ее рассматривать как проявление флуктуационной страйп-фазы[10]?

# Глава 3

## Методика эксперимента

В данной работе переходы между волной спиновой плотности и сверхпроводником изучались при помощи измерения электротранспортных характеристик. Оба этих состояния отчетливо наблюдаются на температурных зависимостях сопротивления. Волна спиновой плотности является щелевым изолятором, поэтому ниже точки перехода зависимость  $R(T)$  носит активационный характер. Установлению сверхпроводимости, напротив, соответствует падению сопротивления до нуля. Наконец, транспортные характеристики являются локальными в том смысле, что они чувствительны к пространственной текстуре образца в двухфазном (СП и ВСП) состоянии, в отличие от, например, магнитной восприимчивости, которая показывает соотношение долей фаз.

Представленные в данной работе измерения проводились, в зависимости от конкретной задачи, на образцах монокристаллов  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , при низких температурах (до 0.3 К) в магнитных полях (до 19 Тл) и под давлением (до 5 кбар). Ниже мы последовательно рассмотрим техническую сторону измерений, в том числе, особенности измерения малых сопротивлений в таких условиях, а затем остановимся на некоторых методических аспектах управления анионным беспорядком.



## 3.1 Образцы

Используемые в данной работе монокристаллы  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  были выращены д-ром Джереми Кволлсом в Университете Сономы (США) и д-ром Джун-ичи Ямадой в Университете Хьюго (Япония) с использованием стандартной электрохимической методики. Кристаллы растут преимущественно вдоль молекулярных цепочек, поэтому обычно имеют игольчатую форму. Их длина вдоль оси  $\mathbf{a}$  может достигать десятков миллиметров, тогда как в поперечном направлении размеры не превышают 0.5 мм. Кристаллы можно легко расколоть в плоскости перпендикулярной оси  $\mathbf{a}$ , что позволяет разделить один кристалл на несколько частей и проводить над ними измерения в различных конфигурациях.

При подготовке образцов кристаллографическая ориентация монокристаллов определялась визуально по соотношению толщины и ширины: большинство из них имеет малую толщину (направление  $\mathbf{c}$ ) и большую ширину (направление  $\mathbf{b}$ ). Правильность ориентации всегда проверялась по транспортным и магнитотранспортным характеристикам. В качестве маркеров в зависимости от внешних условий и доступных методик использовались: (i) немонотонная температурная зависимость сопротивления при высоких температурах (принципиальная особенность  $R_{zz}$ ); (ii) анизотропия магнитосопротивления в металлическом или ВСП состоянии; (iii) анизотропия критического поля в сверхпроводящем состоянии.

При изготовлении образцов большое внимание также уделялось их однородности. Нередко несколько кристаллов срастаются, причем необязательно вдоль одинаковых осей. При измерении анизотропии транспорта это может приводить к нетривиальным траекториям протекания тока и сильно затруднять интерпретацию результатов. Следовательно, такие кристаллы не использовались. Внутри крупных кристаллов при росте могут образовываться полости (на это также обращалось внимание в работе [120]), что тоже приводит к неоднозначным результатам. В свете вышесказанного для измерений отбирались, в ос-

новном, сравнительно тонкие (30-50 мкм) и узкие (60-100 мкм) кристаллы.

В силу большой анизотропии и малой силы связей кристаллы  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  – очень хрупкие. При высоких температурах (эмпирическая оценка  $T \geq 400\text{ K}$ ) в них наступают, по-видимому, необратимые изменения, если судить по величине сопротивления. Эти особенности и малые размеры затрудняют работу с кристаллами и сильно ограничивают набор методик изготовления контактов. В то же время, несмотря на слоистую структуру, они плохо расщепляются (см. комментарий о  $t_c$  во введении), что несколько улучшает ситуацию. В данной работе для изготовления контактов использовались проводящие пасты: с мелкими частицами серебра в эпоксидной смоле (DuPont 4242) или графита (JEOL) без добавок. В качестве растворителя в обоих случаях применялся DuPont Cellosolve, основным компонентом которого является бутилацетат,  $\text{C}_6\text{H}_{12}\text{O}_2$ . Благодаря небольшому количеству добавок он испаряется гораздо медленнее бутилацетата, что позволяет пасте растекаться по образцу. Это обеспечивает более хорошие механические (важно для измерений под давлением) и электрические свойства контактов. Следует отметить, что бутилацетат и ацетон – основные растворители используемых проводящих паст – медленно растворяют и кристаллы  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , а также, возможно, меняют приповерхностные свойства. По этой причине в экспериментах мы избегали отмывания неудачных контактов и использовали только те образцы, контакты к которым были сделаны с первого раза. Исходя из тех же соображений для манипуляций с кристаллами и удаления с них загрязнений использовался этанол.

В ряде представленных в данной работе экспериментов использовались образцы с напыленными золотыми контактными площадками. Они изготавливались путем термического испарения золота в вакуумной камере с использованием теневых масок. Методика была разработана Ш.В. Сандуляну совместно с автором и изложена в его дипломной работе [121]. В процессе напыления температура образца не превышала  $20-50^\circ\text{C}$ . Типичные толщины слоев золота составляли  $70-200\text{ нм}$ . Использование золотых контактных площадок позволило снизить сопротивление контактов с  $30-50\text{ Ом}$  до  $\sim 7\text{ Ом}$  и приблизить

сопротивления разных контактов к одному и тому же образцу. Последнее особенно важно для низкоомных измерений (см. ниже). Наконец, золотые площадки частично защищают кристалл от влияния растворителя.

Во всех экспериментах образцы были подвешены на тонких (10 мкм в диаметре), длинных отожженных платиновых проволочках, один конец которых припаивался к обтюратору камеры давления/площадке держателя, а другой приклеивался пастой к образцу. В такой конструкции механические силы, действующие на образец, оказывались незначительными, поэтому при термоциклировании он оставался целым. Об этом можно судить по малому (0-4) числу скачков сопротивления при охлаждении. Последние связаны с напряжениями, возникающими вследствие заметного различия коэффициентов теплового расширения образца и контактов. Наилучшие результаты достигались при использовании золотых контактных площадок. Примеры различных вариантов монтажа показаны на Рис. 3.1.

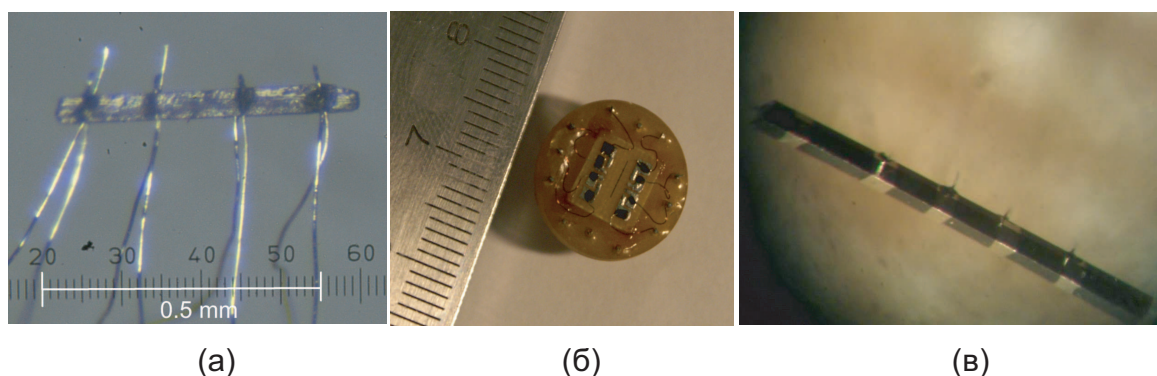


Рис. 3.1: (а) образец  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  на обтюраторе камеры давления; (б) образец  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  на ТО-8 держателе для измерений при нормальном давлении; (в) образец  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  с напыленными золотыми площадками. На рисунках (а)-(б) приведена конфигурация контактов для измерений  $R_{xx}$  и  $R_{zz}$ , на рисунке (в) показаны кольцевые контакты для измерения  $R_{xx}$ .

## 3.2 Магнитные системы

В зависимости от характера измерений, использовались различные магнитные системы. С экспериментальной точки зрения важны два параметра системы: величина и точность установки поля. Исследования сверхпроводящих свойств  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  проводились при помощи сверхпроводящего NbTi соленоида с максимальным полем 7 Тесла при токе 70 Ампер. Соответственно, в нем можно было точно стабилизировать малые поля 0 - 2000 Эрстед при помощи лабораторного источника тока Keithley 2400, что было особенно важно при измерении критических полей в неоднородном состоянии. Исследования анизотропии установления волны спиновой плотности проводились на комбинированных NbTi/Nb<sub>3</sub>Sn сверхпроводящих соленоидах с максимальным полем либо до 17.2 Тесла (в Институте Физики Твердого Тела РАН), либо до 20 Тесла (в Оксфордском университете). Часть измерений была выполнена на NbTi соленоиде с полем до 9 Тесла, установленным в системе PPMS-9 производства Quantum Design.

Сверхпроводящие соленоиды работают обычно при температуре 4.2 К. Для этого они устанавливаются в криостаты, которые представляют собой большие сосуды Дьюара, заполненные жидким <sup>4</sup>He. В итоге, установка состоит из гелиевого криостата со сверхпроводящим соленоидом и установленной в него низкотемпературной системы (см. Рис. 3.2). При этом последняя охлаждается за счет циркуляции <sup>4</sup>He из криостата. В качестве дополнительной тепловой изоляции в них используются азотные экраны (77 К) и структурированные отражающие покрытия (т.н. “суперизоляция”), что позволяет держать всю установку охлажденной длительное время (месяцы) и систематически проводить измерения без отогрева образцов.

## 3.3 Низкотемпературные системы

### 3.3.1 Температурные вставки на основе $^3\text{He}$ или $^4\text{He}$

На фазовой диаграмме соединений  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  сверхпроводящая область расположена при температурах  $T \lesssim 1.5\text{ K}$  (см. Рис. 2.2). Для получения температур ниже 1 К необходимо использовать криогенные системы на основе откачки изотопа  $^3\text{He}$ . В данной работе использовались слегка различные стандартные  $^3\text{He}$  системы [122], построенные по схожему принципу. Установка представляет собой замкнутую систему, изготовленную в основном из аустенитной нержавеющей стали, в состав которой входят следующие принципиальные компоненты: (i) внешний баллон для хранения  $^3\text{He}$ , (ii) низкотемпературный сорбционный насос на основе активированного угля для откачки паров  $^3\text{He}$ , (iii) температурная вставка с тепловой изоляцией (дьюаровский стакан) с отдельными объемами  $^3\text{He}$  и  $^4\text{He}$ , находящимися в некоторой точке в тепловом контакте. Объем  $^3\text{He}$  представляет собой сплошной цилиндр, допускающий загрузку образца сверху на специальном штоке. Образец находится непосредственно в жидкости  $^3\text{He}$ . Объем  $^4\text{He}$  образует т.н. градусную камеру, представляющую собой небольшую емкость с возможностью забора жидкого  $^4\text{He}$  и линией внешней откачки. На этой ступени происходит конденсация  $^3\text{He}$ . При помощи откачки паров  $^4\text{He}$  температуру градусной камеры можно понизить до  $T_{\text{cond}} \approx 1.2\text{ K}$ , что позволяет сконденсировать почти весь газ  $^3\text{He}$  (давление паров  $^3\text{He}$  при этой температуре составляет  $\sim 20\text{ Торр}$ ).

В ходе эксперимента температура градусной камеры поддерживается ниже 2 К путем непрерывной откачки  $^4\text{He}$ . Для получения температур ниже  $T_{\text{cond}}$  пары  $^3\text{He}$  откачивались при помощи сорбционного насоса. В зависимости от диаметра труб откачки и величины теплопритока минимально достижимые в наших экспериментах температуры варьировались в интервале  $T_{\text{min}} = 0.28 - 0.4\text{ K}$ . Для получения температур выше  $T_{\text{cond}}$  жидкий  $^3\text{He}$  испарялся и нагревался оставшийся газ. Поскольку в этом случае основной отток тепла происходит за счет конвекции между областью образца и градусной камерой, то плавность

изменения температуры можно контролировать количеством газа. В результате, система позволяет плавно и непрерывно менять температуру в пределах 0.3-100 К.

Стабилизация температур в интервале  $T_{min} - T_{cond}$  легко осуществляется при помощи стабилизации давления паров  $^3\text{He}$ . Для этого достаточно поддерживать постоянной температуру адсорбента при помощи нагревателя и PID-регулятора. Для минимизации теплопритока за счет токов Фуко вблизи  $T_{min}$ , где хладопроизводительность системы стремится к нулю, изменение магнитного поля производилось с небольшой скоростью. Также при конструировании низкотемпературных частей минимизировалась площадь замкнутых контуров, перпендикулярных магнитному полю.

В ряде измерений применялись более простые системы с жидким  $^4\text{He}$ , в которых низкие температуры также получаются за счет откачки паров. В используемых нами конструкциях они позволяли получать температуры до 1.27 К. В основе температурной вставки лежит дьюаровский стакан. На определенной высоте (чуть выше верха соленоида) в нем имеется перемычка между стенками, через которую осуществляется тепловой контакт между внутренним объемом и жидким  $^4\text{He}$  в криостате. При температурах выше 4.2 К охлаждение идет преимущественно за счет конвекции между перемычкой и дном стакана. Скорость и плавность охлаждения в этом случае регулируется количеством газа, как было описано выше. Для получения более низких температур в стакан сверху, при помощи вакуумированной линии, из внешнего сосуда заливался жидкий  $^4\text{He}$ . Откачка паров осуществлялась внешним форвакуумным насосом ( $\sim 250$  л/мин). Такая конструкция, хотя и в ущерб простоте в обращении, оставляет много места (диаметр  $\sim 35$  мм) для размещения, например, системы двухосного вращения и при этом не требует использования низкотемпературных вакуумных уплотнений.

Для минимизации теплопритока и получения более низких температур использовались стандартные методики, детально описанные, например, в книге [123], так что останавливаться на них подробно мы не будем.

### 3.3.2 Термометрия

Отдельно следует остановиться на вопросе термометрии. В отсутствие магнитного поля для этого использовались заранее откалиброванные термопары Cu-Fe/Cu ( $4.2 - 300\text{ K}$ ) и резистивные термометры: Lakeshore Cernox-1030 ( $0.3 - 300\text{ K}$ ), платиновые ( $20 - 300\text{ K}$ ) и на основе окиси рутения RuO ( $0.3 - 40\text{ K}$ ). В качестве опорной точки для второго конца термопары использовалась смесь льда с водой, что давало хорошую точность ( $\sim 1 - 5\text{ мК}$ ) и воспроизводимость измерения температуры ( $< 0.01\text{ K}$ ). Подробности измерений с использованием термопары изложены в дипломной работе автора [124].

При измерениях в магнитном поле применялись два подхода: стабилизация температуры в нулевом поле за счет поддержания постоянным давления паров и введение поправок на магнитосопротивление термометров. В диапазоне надежной работы платиновых термометров влияние магнитного поля очень мало и в пределах нашей точности не учитывалось. При использовании термометров Cernox поправки от магнитосопротивления становятся заметны при  $T < 10\text{ K}$ , и их эмпирические зависимости хорошо изучены [125, 126]. Применяемые нами термометры на основе окиси рутения имеют два типа магнитополевых зависимостей при фиксированной температуре: положительное почти параболическое магнитосопротивление или же небольшое отрицательное магнитосопротивление в слабых полях и насыщение при дальнейшем росте поля. Для измерений при  $T < 1\text{ K}$  использовались термометры второго типа. Когда это было необходимо, температурные зависимости в магнитном поле получались путем измерения полевых зависимостей в нескольких реперных точках и последующей интерполяцией полиномиальной или функциональной зависимостями, характерными для нулевого поля.

### 3.3.3 Вращение при низких температурах

Для изучения угловых зависимостей магнитосопротивления в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  применялась вставка с возможностью одноосного вращения образца для  $^3\text{He}$ , разработанная

О.Е. Омеляновским. В ней вращение передается от установленного при комнатной температуре шагового двигателя при помощи тонкого штока к червячному механизму в низкотемпературной части. На его шестеренку закреплялась платформа, причем ось вращения была перпендикулярна магнитному полю. Для фиксации угла между плоскостью платформы и направлением поля применялся датчик Холла (производство ООО НПФ “Сенсор”), представляющий собой структуру на основе InSb. Для минимизации перегрева и одновременно точного измерения угла показания датчика измерялись импульсно на токе 1 мА. Длительность импульса подбиралась исходя из температуры и шага вращения. После каждого шага и измерения показаний датчика система релаксировала в течение 1-10 секунд и только затем считывалось сопротивление образца.

В экспериментах по определению анизотропии установления ВСП в магнитном поле применялись системы вращения для  $^4\text{He}$  (см. Рис. 3.2). Вращение относительно перпендикулярной полю оси осуществляется за счет протяжки кевларового тросика (8). Он вращает колесо, соединенное с платформой. Один его конец крепится к гайке-бегунку (7), которая перемещается вверх-вниз по резьбе на штоке (3), приводимом во вращение внешним шаговым двигателем (1). Другой конец закреплен на растянутой пружине. Такая конструкция уменьшает как теплоприток (шток не доходит до низких температур), так и диссипацию за счет трения. Среди ее минусов можно отметить небольшой передаваемый момент. В экспериментах удастся реализовать угловое разрешение в такой системе на уровне менее 0.1 градуса при максимальном повороте на 200-270 градусов. Большое передаточное соотношение позволяет реализовать и более точное вращение, однако переменное растяжение тросика и трение меняют предельные характеристики как в зависимости от угла поворота в ходе одного эксперимента, так и между экспериментами. Шаговый двигатель во всех экспериментах управлялся от компьютера.

В системе двухосного вращения (см. Рис. 3.2) вместо платформы используется чаша с цилиндрическим отверстием (11). Внутри него закрепляется держатель образца или камера, которые могут вращаться относительно оси чаши. Для этого по центру вставки сверху



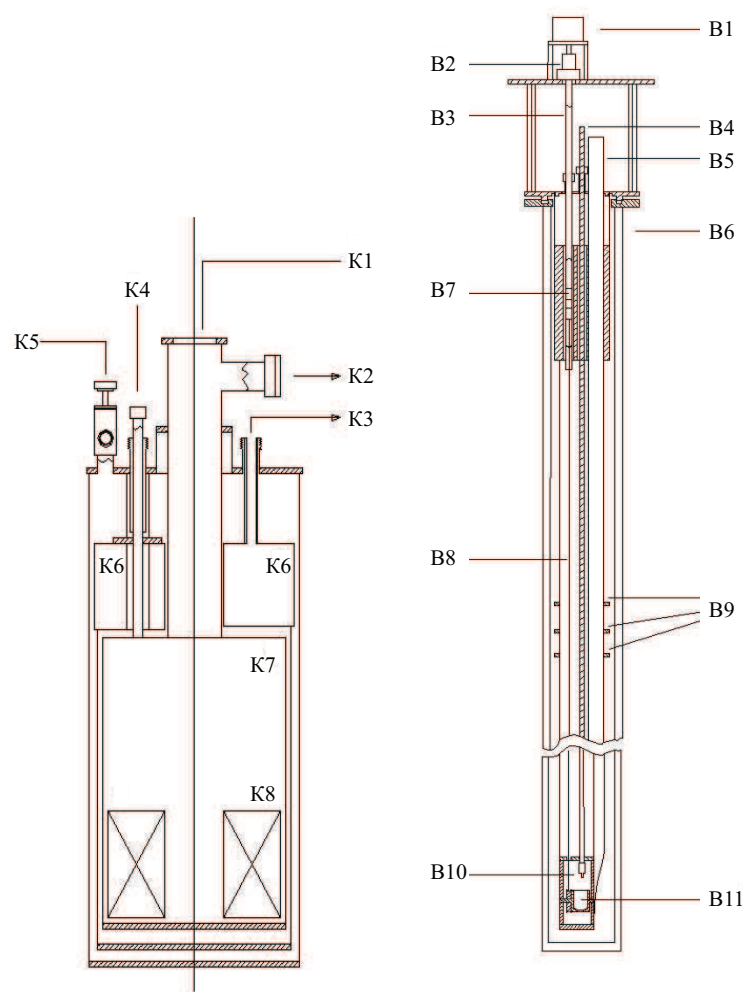


Рис. 3.2: (Слева) Схематический вид криостата с соленоидом: 1 - центральная шахта, 2 - испарение гелия, 3 - заливка жидкого азота, 4 - откачка вакуумного объема, 5 - заливка жидкого гелия, 6 - гелиевая ванна, 7 - СП соленоид, 8 - азотная ванна и экраны. (Справа) Низкотемпературная  $^4\text{He}$  вставка с двухосной системой вращения: 1 - шаговый двигатель, 2 - переходник между штоками, 3 - шток горизонтального вращения, 4 - шток вертикального вращения, 5 - заливка жидкого гелия, 6 - дьюаровский стакан, 7 - бегунок, 8 - кевларовый тросик, 9 - тепловые экраны, 10 - плоский наконечник штока, 11 - чаша.

опущен шток (4) с плоским наконечником (10), а на держателе или камере установлена ответная головка. Когда головка находится под штоком, его можно опустить и повернуть образец на нужный угол. Угловое разрешение для поворотов по этой оси обычно оказывается хуже – немногим менее 1 градуса. Полный угол поворота составляет не менее 360 градусов. Такие разрешения достаточны для наших измерений. Действительно, они соиз-

меримы с угловыми ширинами особенностей на зависимостях сопротивления, по которым образец ориентируется в поле. Угловое положение держателя образца определяется по показаниям двух взаимно перпендикулярных датчиков Холла. Их ориентация подбирается исходя из целей эксперимента так, чтобы на интересующий нас диапазон приходилась наибольшая чувствительность (параллельное поле).

### 3.4 Техника высоких давлений

Для измерений под давлением в работе использовалась разработанная ранее А.В. Корниловым и В.М. Пудаловым сферическая камера системы поршень-цилиндр с внешним диаметром 15 мм (см. Рис. 3.3). В сферической конфигурации канал камеры, в котором создается давление, представляет собой глухое отверстие и, следовательно, герметизировать его нужно только с одной стороны. Это обстоятельство позволяет уменьшить длину камеры до 15-17 мм. Столь малые размеры позволяют вращать ее в магнитном поле: внутренний диаметр СП соленоидов, используемых в данной работе, варьировался от 40 до 45 мм. Образец (5) в камере находится внутри глухого цилиндрического канала в емкости (6) с жидкостью (9). Давление создается при помощи поршня-обтюратора (3), который сдавливает емкость с жидкостью и образцом внутри канала. Положение обтюратора фиксируется при помощи винта (2), который закручивается в корпус камеры (7). Детализация камеры приведена на рисунке 3.3. Для возможности двухосного вращения камеры на нее перпендикулярно оси приклеивается миниатюрная головка под отвертку. Корпус камеры, винт и обтюратор изготовлены из немагнитной стали NiCrAl. Это позволяет использовать камеру для измерений даже в сильных магнитных полях.

Образец монтируется на обтюратор, внутри которого протянуты и залиты эпоксидной смолой (Stycast 2850-FT) изолированные медные провода. В качестве емкости для жидкости используются тонкостенные фторопластовые стаканчики (6). Для герметизации области высокого давления на обтюратор надевается кольцо из бериллиевой бронзы

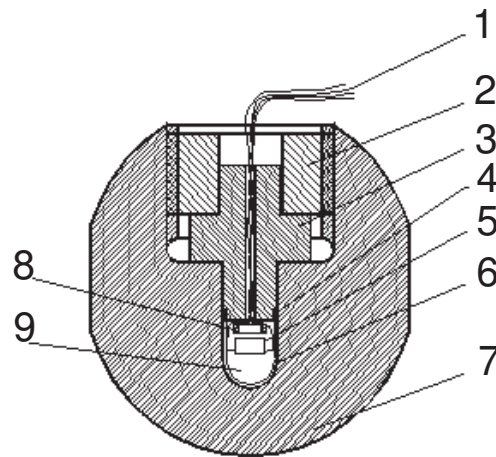


Рис. 3.3: Схематический вид сферической камеры давления в разрезе: 1 - медные провода в изоляции, 2 - винт фиксации, 3 - обтюратор (он же играет роль поршня), 4 - уплотнительное кольцо из BeCu, 5 - образец, 6 - фторопластовый стакан, 7 - корпус камеры, 8 - манганиновый и оловянный датчики давления, 9 - жидкость ПЭС-1.

(4). В качестве жидкости для передачи давления используется полиэтилсилоксан ПЭС-1. Свойства этой жидкости подробно рассмотрены в работе [127]. Она позволяет добиваться высокой гидростатичности в широком диапазоне давлений. Также коэффициенты теплового расширения NiCrAl и ПЭС-1 близки друг к другу, что уменьшает сброс давления при охлаждении.

Давление создавалось при помощи пресса и фиксировалось винтом при комнатной температуре. Для контроля давления применялся манганиновый датчик (8), показания которого также сравнивались с отношением  $F/S$ , где  $F$  - приложенная сила согласно калиброванному тензостолу, а  $S$  - площадь поперечного сечения канала камеры. Согласно [127], основной сброс давления при охлаждении приходится на область температур в которой ПЭС-1 сохраняет свойства жидкости. В области давлений до 20 кбар, применявшихся в данной работе, указанная область температур может составлять до 100 К. По этой причине давление измерялось также и при гелиевых температурах на основе зависимости  $T_c(P)$  для чистого поликристаллического олова (8).

### 3.5 Измерение малых сигналов от низкоомных образцов

В данной работе представлены измерения трех компонент сопротивления,  $R_{xx}$ ,  $R_{yy}$  и  $R_{zz}$  вдоль принципиальных осей  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}'$  и  $\mathbf{c}^*$  соответственно. Сопротивление измерялось по стандартной четырехточечной методике на переменном токе. Измерения фазовой диаграммы СП/ВСП предполагают широкий диапазон по сопротивлениям: от 100 мкОм до 100 кОм. Сопротивления в фазе ВСП не превышают в интересующем нас диапазоне температур значений 100 кОм, так что их измерение можно осуществлять синхродетекторами с входными сопротивлениями 10/100 МОм.

В то же время, монокристаллы  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  являются хорошими металлами и вблизи сверхпроводящего перехода имеют малое сопротивление от сотен микроом до сотен миллиом. При этом контакты имеют сопротивление на несколько порядков больше и иногда достигают 100 Ом. Чтобы избежать перегрева образца при измерениях ниже 1 К необходимо пропускать небольшие токи до 100 мкА. В этом случае измеряемый сигнал составляет не более 10 мкВ. В то время как чувствительность синхродетекторов позволяет надежно измерять сигналы такого уровня, наводки и помехи на длинных подводящих линиях создают большой паразитный сигнал в широком диапазоне частот. Данная проблема проиллюстрирована на рисунке 3.4 распределенными емкостями подводящих проводов и разностью сопротивлений потенциальных контактов.

Действительно, при различии сопротивлений в потенциальных плечах электрической схемы будет генерироваться дифференциальный сигнал за счет, в первую очередь, емкостной наводки на измерительной частоте, но сдвинутый по фазе. Борьба с такими наводками осуществляется четырьмя путями[128]: (i) снижение потенциала образца относительно земли, (ii) уменьшение измерительной частоты, (iii) уменьшение длины подводящих проводов (т.е. снижение распределенной емкости) и (iv) балансировка схемы. Первое требует заземления образца. Для подачи тока в этом случае мы использовали симметричный источник с отключаемым заземлением и трансформаторной развязкой выхода задающего

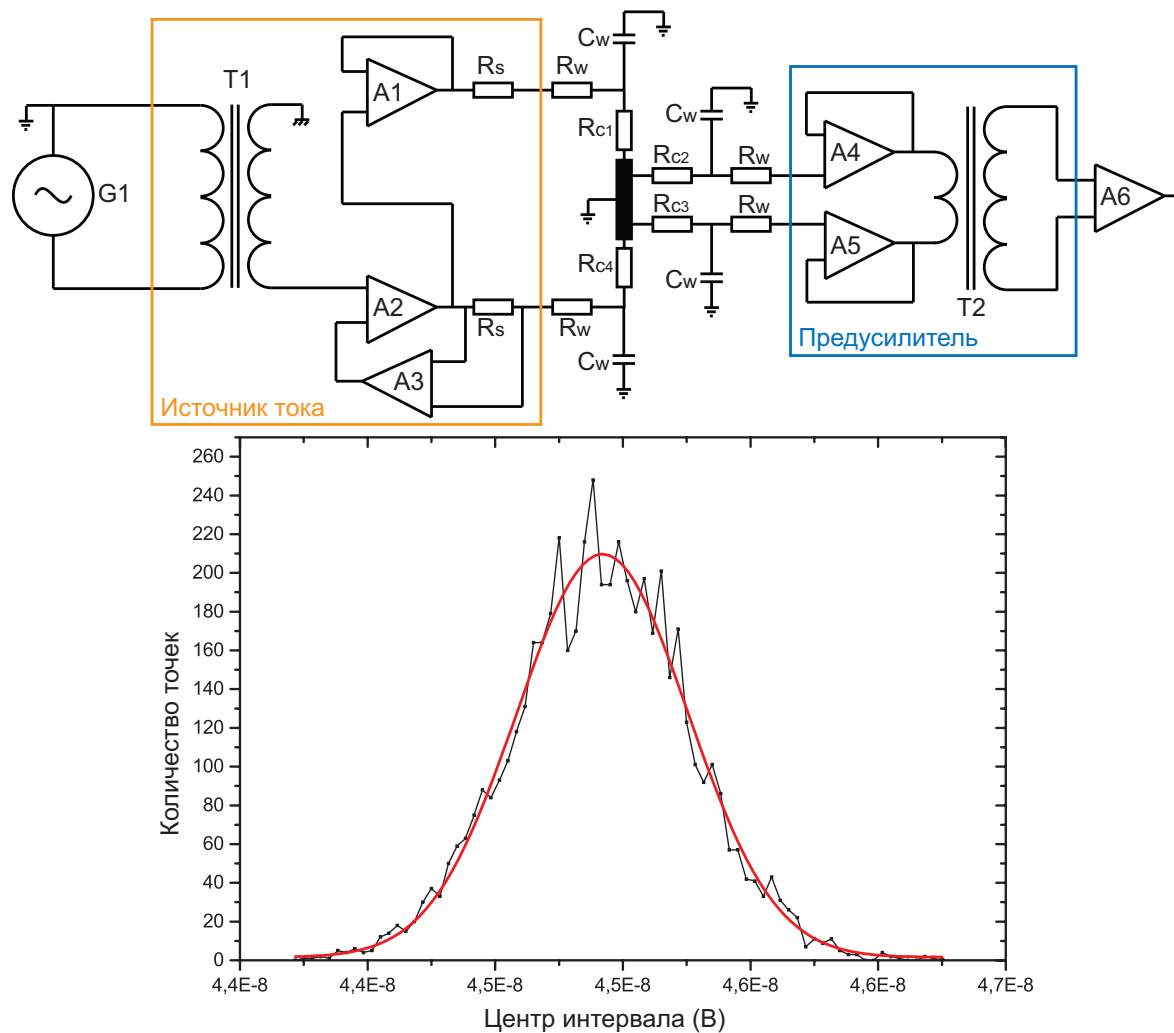


Рис. 3.4: Сверху представлена принципиальная электрическая схема измерений. Снизу показано распределение амплитуд сигнала от тестового образца на временной зависимости длительностью 30 мин. Измерительная частота составляет 273 Гц, частота считывания показаний – 10 Гц, постоянная времени синхродетектора - 100 мс. По оси абсцисс отложена величина сигнала в вольтах, по оси ординат – количество показаний с такой величиной. Красная кривая – интерполяция зависимости кривой Гаусса, ширина распределения составляет порядка 1 нВ.

генератора. Второй способ на самом деле неэффективен, так как при понижении частоты возрастают шумы, в т.ч.  $1/f$ . Применение третьего способа обычно ограничено длиной вставки, так что в эксперименте мы использовали короткие коаксиальные провода между вставкой и усилителями ( $\sim 10 - 15$ ) см. В частных случаях возможно использование низкотемпературных усилителей или дополнительной балансировки схемы за счет индуктивного соединения измерительных и подводящих проводов. В нашей ситуации это было

проблематично, поскольку часть измерений делалась в магнитном поле, которое меняет характеристики таких схем. Наконец, для балансировки схемы мы стремились сделать практически одинаковые контакты с малым сопротивлением.

При измерении низкоомных образцов обычно удается использовать трансформаторные предусилители, обладающие очень низкими шумами, вплоть до  $0.1 \text{ нВ/Гц}^{1/2}$ . Однако, при конструировании низкотемпературных вставок для уменьшения теплоподвода используются высокоомные провода с сопротивлением  $R \gg \omega L$ , где  $L$  - индуктивность первичной обмотки трансформатора, а  $\omega$  - измерительная частота. Это приводит к искажению передаточной характеристики в низких частотах. Частично данную проблему можно решить за счет увеличения  $\omega$ , однако, одновременно с этим увеличивается и емкостная наводка, делая невозможным измерение полезного сигнала. Для согласования импедансов было предложено применять на входе трансформатора повторители сигнала на основе операционных усилителей AD797. При единичном коэффициенте усиления и отсутствии сопротивлений в обратной связи шумы данного предусилителя составляют порядка  $0.9 \text{ нВ/Гц}^{1/2}$  при частотах выше 100 Гц, а эффективный шумовой импеданс составляет порядка 100 Ом, что близко к суммарному сопротивлению подводящих проводов и контактов к образцу. При таком соотношении импедансов усиление шума - минимально[129].

Еще одной важной ступенью уменьшения шумов было разделение компьютерной системы сбора данных и прецизионной измерительной техники. Синхродетекторы и предусилители запитывались от сети при помощи мощного развязывающего трансформатора. Трансформатор, стойки, криостат, синхродетекторы и предусилители заземлялись в одну точку на шине сигнальной земли. Компьютеры, мультиметры, PID-регуляторы подключались отдельно, а их корпуса занулялись. Для гальванической развязки компьютера и синхродетекторов использовалась оптическая развязка USB-каналов.

В результате оптимизации схемы измерения низкоомных образцов проводились на частотах 270-300 Гц, а шумы не превышали единиц  $\text{нВ/Гц}^{1/2}$ . Пример распределения амплитуды сигнала от тестового образца на временной зависимости длительностью 30 мин

приведен на рисунке 3.4.

## 3.6 Управление степенью анионного упорядочения в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

Важной частью данной работы является систематическое изучение влияния анионного упорядочения на зонную структуру и, следовательно, на основное состояние в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Принцип воздействия на степень упорядочения был описан в предыдущей главе и основывается на медленной кинетике структурного перехода. В данном разделе мы подробно остановимся на особенностях управления этим процессом, приготовлении и характеристике различных анионных беспорядков.

В ЯМР-измерениях времени спин-спиновой релаксации [130] наблюдается пик при температурах выше  $T \sim 30 \text{ K} > T_{AO}$ , свидетельствующий о флуктуациях в положении анионов в элементарной ячейке. По этой причине в качестве характерной температуры, необходимой для “сброса” беспорядка можно взять температуру появления пика. Отогрев образца выше активационной энергии разворота тетраэдра, 240 К, очевидно, гарантирует стирание “памяти” об анионном упорядочении. Однако, в наших измерениях не было замечено существенной разницы между этими двумя методами, поэтому обычно использовался отогрев до температур немного выше  $T_Q$ . Термоциклирование образца до комнатной температуры и обратно не меняло качественно его низкотемпературных свойств, что также позволяет говорить о независимости поведения от конкретной реализации беспорядка в ориентациях анионов.

Образцы устанавливались на  $^3\text{He}$  вставку и охлаждались от комнатной до некоторой температуры  $T_Q \geq T_{AO}$  выше температуры упорядочения анионов со скоростью 0.2-0.3К/мин (для предотвращения образования трещин). Для заморозки высокотемпературного беспорядка в ориентациях анионов образцы резко охлаждались от температуры  $T_Q > T_{AO}$  за счет приведения в тепловой контакт с одноградусной ступенью низкотемпе-

ратурной вставки. Скорость охлаждения определялась либо по показаниям термометра, либо при помощи сравнения сопротивления образца с равновесной зависимостью  $R(T)$ . Оба метода демонстрировали пропорциональные и похожие результаты, поэтому обычно использовался первый из них, как более простой. Таким способом удавалось достигнуть скоростей охлаждения (здесь и далее QR - quench rate)  $\approx 600\text{K}/\text{мин}$  вблизи  $T_{AO}$ . Меньшие скорости охлаждения, например  $100\text{K}/\text{мин}$ , достигались путем резкого нагрева держателя образца и последующего неконтролируемого охлаждения. После заморозки высокотемпературного беспорядка более слабые беспорядки получались путем отжига образца при различных температурах  $T^* < T_{AO}$  [26, 52]. Эффективность отжига определяется двумя параметрами - температурой и длительностью. В сильных беспорядках достаточно было 10-30 мин отжига при 15 К для уменьшения  $T_{SDW}$  на несколько десятых градуса на фоне 6.5 К. Полукасовой отжиг в 17 К дает  $T_{SDW}$  уже порядка 3.5-4 К. С учетом этих особенностей, в сильных беспорядках мы избегали манипуляций с образцом при высоких температурах и ограничивались зависимостями ниже 8 К. Для получения анион-упорядоченного состояния образцы охлаждались от 40 К до 20 К за 12 часов.

Отдельный интерес представляет собой вопрос о воспроизводимости степени беспорядка при повторном охлаждении. Для этого мы провели цикл измерений, где изначально охладили образец со скоростью  $9\text{K}/\text{мин}$  от  $T_Q = 40\text{K}$ , затем отогрели до  $T_Q$ , охладили медленно и снова нагрели, после чего повторили начальное охлаждение. Величина сопротивления и поведение температурной зависимости практически не изменились между начальным и конечным беспорядками. Это позволяет говорить о хорошей воспроизводимости средней степени упорядочения в образце.

Важно отметить, что при быстром охлаждении образцов неизбежно возникновение пространственных неоднородностей на малых масштабах длин. Это является неизбежным следствием больших времен, которые требуются для упорядочения анионов [52], – гораздо больших, чем фигурирующие при быстром охлаждении в данном эксперименте. В результате образуются анион-упорядоченные включения малых размеров на фоне



разупорядоченного объема.

В эксперименте мы имеем возможность изменять два независимых параметра: начальную температуру и скорость охлаждения. Последний определяет преимущественно степень упорядочения, поскольку при больших скоростях доля анион-упорядоченных включений проявляет тенденцию к насыщению[52]. Роль  $T_Q$  оказывается более сложной. С одной стороны, в работе [26] было обнаружено, что степень упорядочения увеличивается с понижением начальной температуры охлаждения. С другой стороны, вариация  $T_Q$  приводит к измерению доли упорядоченных включений за счет флуктуаций анионного упорядочения, появляющихся, как уже отмечалось ранее, при температурах ниже  $\sim 30$  К[130].

Для характеристики результирующего беспорядка мы измеряли две характеристики: температуру и ширину перехода в ВСП. Первая из них определяется величиной димеризационной щели  $V$ , так что высокие температуры перехода говорят о низкой степени упорядочения. Типичные значения  $T_{SDW}$ , полученные после быстрого охлаждения, составляют 6-6.5 К, что близко к наблюдавшимся в экспериментах других групп [26, 64]. ВСП переход имеет малую ширину при больших скоростях и начальных температурах охлаждения. Однако она увеличивается с понижением  $T_Q$ . Следовательно, узкий переход в ВСП при высоких температурах является признаком слабо упорядоченного состояния с малым количеством анион-упорядоченных включений. Широкий переход при высоких температурах указывает на слабо упорядоченное состояние с большим количеством таких включений.

Быстрое охлаждение может приводить к разного рода неоднородностям и дефектам в образце. Для изучения влияния этих особенностей были измерены низкотемпературные зависимости сопротивления на различных контактах в разных частях образца. Температура и ширина ВСП перехода воспроизводились с высокой точностью, что говорит об отсутствии неоднородностей анионного упорядочения на больших масштабах.

Что касается дефектов, то естественно предположить, что они возникают в результате релаксации напряжений, которые создаются из-за разности коэффициентов теплового

расширения образца и материала контактов (золотые площадки, графитовая паста). К возможным источникам также можно отнести деформации платиновых проволочек. С учетом того, что температура Дебая в измерениях теплоемкости в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  оценивается в  $\theta_D = 213 \text{ K}$ [76], на основании формулы Грюнайзена мы можем сделать вывод, что при релевантных в эксперименте температурах  $T_Q \leq 40 \text{ K}$  тепловым расширением можно пренебречь. Следовательно, быстрое охлаждение не создает дополнительных напряжений. В то же время, оно может приводить к релаксации накопленных ранее напряжений. Принято считать, что этот процесс приводит к образованию микротрещин в образце, которые могут создавать параллельные каналы проводимости в направлении оси  $c$  [88]. Было предложено, что такой канал может изменять характер зависимости  $R_{zz}(\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}')$ , в частности, приводить к насыщению магнитосопротивления в сильных полях[88]. Однако, в наших образцах не наблюдалось значительного шунтирования в полях до 13 Тл, что говорит о малом количестве микротрещин.

# Глава 4

## Анизотропия установления волны спиновой плотности в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ в магнитном поле

### 4.1 Введение

Образование волны спиновой плотности приводит к локализации заряда на масштабах порядка периода решетки и, в общем случае[53], представляет собой конкурирующий со сверхпроводимостью механизм спаривания. Как было подробно описано в разделе 2.2, ВСП может существовать и при конечном количестве делокализованных носителей. Последние, очевидно, могут являться кандидатами для образования СП конденсата. Важным вопросом в связи с этим является природа этих носителей, в том числе, их закон дисперсии (как, например, в сценарии образования электрон-дырочных карманов[36]). Иными словами, это вопрос о параметрах антинестинга в ВСП фазе.

“Стандартная” модель (см. раздел 2.2) опирается на минимальное описание с использованием  $t'_b$  в качестве единственного параметра:

$$\mathcal{E}_0(\mathbf{k}) = \pm \hbar v_F (k_x \mp k_F) - 2t_b \cos(k_y b') - 2t'_b \cos(2k_y b') - 2t_c \cos(k_z c^*), \quad (4.1)$$

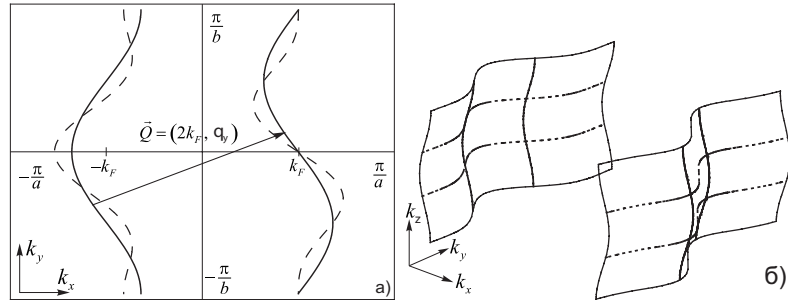


Рис. 4.1: (а) Схематический вид поверхности Ферми в модели неидеального нестинга. Пунктирная и сплошная линии показывают вид Ферми-поверхности с  $t'_b$  слагаемым в спектре (4.1) и без него (величина  $t'_b$  сильно преувеличена для наглядности).  $Q$  – вектор нестинга. (б) Схематическое изображение трёхмерной поверхности Ферми.

где  $t_b$  и  $t_c$  - интегралы перекрытия между ближайшими соседями в направлениях  $b'$  и  $c^*$  соответственно, а  $t'_b$  – интеграл перекрытия между соседями второго порядка. Двумерное сечение  $k_z = 0$  для идеального и неидеального нестинга и трехмерная поверхность Ферми для спектра вида (4.1) показаны на рисунке 4.1а, б соответственно.

Справедливость предположения о том, что именно двумерная дисперсия отвечает за ухудшение нестинга, подтверждена целым рядом экспериментов[67, 68, 70, 71]. С другой стороны, любые интегралы перекрытия второго порядка также нарушают идеальность нестинга; часть из них включает в себя трехмерную дисперсию. В то же время, межслоевой интеграл перескока весьма мал и даже соизмерим по величине с  $t'_b$ . Это наблюдение представляет особый интерес в контексте ЯМР-измерений[131], в которых не удалось обнаружить  $k_z$ -компоненту вектора нестинга, и исчезающе малого влияния наклонных полей на температуру перехода индуцированном полем ВСП[66]. Действительно, если нестинг имеет место только в плоскости  $k_x - k_y$ , а модуляция спина в межслоевом направлении – хаотична, то  $t_c$  следует также рассматривать в роли параметра антинестинга.

Перечисленные выше результаты ставят вопрос о роли трехмерной дисперсии и других возможных параметров антинестинга в подавлении ВСП. Для изучения этого вопроса стандартная модель представляет необходимый инструментарий – это измерения анизотропии установления ВСП в различных ориентациях магнитного поля. В то время как для

$\mathbf{H}||\mathbf{c}^{*1}$  ориентации существует достаточно много экспериментальных данных, для ориентаций  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  был проведен лишь один эксперимент без давления [70] и ни одного под давлением. Даннер и др. [70] не наблюдали сдвига температуры перехода при  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  в магнитном поле при нулевом давлении. Отсутствие полевой зависимости, однако, не может рассматриваться как критическая проверка теории, так как эффект магнитного поля может быть мал при нулевом давлении. Согласно теории внешнее давление увеличивает любые отклонения от идеального нестинга и можно ожидать более сильного влияния магнитного поля на систему. Наиболее сильным этот эффект должен быть при давлениях, близких к критическому значению. Цель настоящей работы состоит в экспериментальном изучении  $T_{SDW}(\mathbf{H})$  при  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  ориентациях магнитного поля под давлением, близким к критическому.

В данной главе будут приведены результаты измерений сдвига  $T_{SDW}$  в магнитном поле, проведённых при  $P = 0$  и  $P = 5$  кбар для трёх ориентаций магнитного поля  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ . На основе этих данных мы оценим роль отличных от  $t'_b$  параметров антинестинга в подавлении ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ .

## 4.2 Результаты

Результаты измерений на трёх образцах из одной партии качественно совпадали, поэтому далее мы приводим данные лишь для двух образцов.

### 4.2.1 Ориентация $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$

На Рисунке 4.2 показаны температурные зависимости  $R_{zz}$  при нулевом давлении для набора магнитных полей. Температурная зависимость  $R_{zz}(H = 0)$  при нулевом давлении в широком диапазоне температур показана на врезке к Рисунку 4.2а: при понижении темпе-

---

<sup>1</sup>В этой главе будет явно использоваться орторомбическое приближение, так как именно орторомбические ориентации надежно определяются из угловых зависимостей магнитосопротивления в ВСП.

температуры сопротивление образца монотонно падает, затем испытывает резкий скачкообразный рост и далее растёт по закону активационного типа. Скачок при 12 К соответствует переходу в состояние ВСП. Далее мы определяем температуру перехода по пику величины  $d \ln R_{zz} / d(1/T)$  – логарифмической производной сопротивления по обратной температуре. По мере возрастания величины магнитного поля, приложенного вдоль оси  $\mathbf{c}^*$ ,  $T_{SDW}$  возрастает (Рисунок 4.2б). Величина сдвига растёт квадратично по полю, как показано на Рисунке 4.2б.

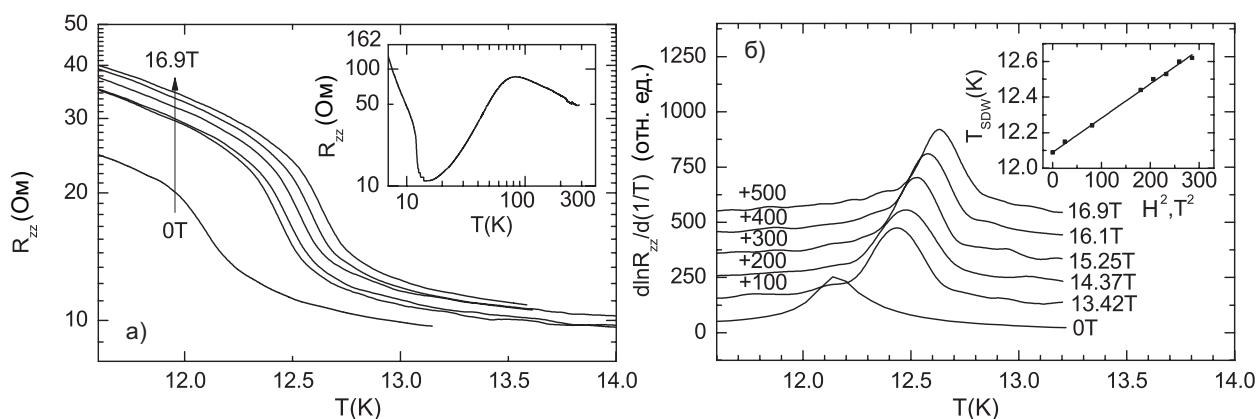


Рис. 4.2: Температурная зависимость  $R_{zz}$  при нулевом давлении для шести значений магнитного поля (как показано на рисунке(б)),  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*$ . (а)  $R_{zz}(T)$  для набора магнитных полей; (б) логарифмические производные тех же данных. Врезка к рисунку (а) демонстрирует типичное поведение  $R_{zz}(T)$ . На врезке к рисунку (б) показана линейная аппроксимация зависимости  $T_{SDW}$  от  $H^2$ .

Приложение давления 0.5 ГПа снижает температуру перехода до 6.75 К (Рисунки 4.3а и 4.3б). Известно, что зависимость температуры перехода от давления – сильно нелинейная [68], её наклон мал при низких давлениях и резко возрастает вблизи критического значения. Поэтому падение  $T_{SDW}(P)$  почти в 2 раза (от 12 К до 6,75 К, Рисунки 4.2 и 4.3) говорит о том, что давление близко к критическому. При давлении 0.5 ГПа и в магнитном поле вдоль  $\mathbf{c}^*$ -оси, температура  $T_{SDW}$  растёт квадратично по полю,  $\Delta T_{SDW} \propto H^2$  (см. врезку к Рисунку 4.3а). Этот результат качественно похож на результат, полученный при нулевом давлении, однако количественно под давлением величина эффекта гораздо сильнее (см. Рисунки 4.3б и врезку к рисунку 4.2а).

Приложение магнитного поля также увеличивает величину сопротивления в ВСП-состоянии (см. Рисунки 4.2а и 4.3а). В принципе, рост сопротивления может быть связан с ростом  $T_{SDW}$ , т.е. с ростом величины щели в магнитном поле [63]. Тем не менее, данные, приведённые на Рисунке 4.3, и предыдущие наблюдения (см. например [71]) говорят о том, что  $R_{zz}(T)$  не описывается простой активационной зависимостью как в нулевом, так и в ненулевом магнитных полях. Очевидно, что зависимость  $R_{zz}(T, B)$  обусловлена ростом интенсивности волны спиновой плотности и магнитосопротивлением. Без адекватной модели для зависимости  $R_{zz}(T, B)$ , однако, эти два вклада нельзя разделить, хотя по нашим экспериментальным данным явно видна корреляция роста сопротивления и роста  $T_{SDW}$ .

Зависимость  $T_{SDW}(H)$  (Рисунок 4.3) в наших образцах при  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  качественно согласуется с теоретическими предсказаниями [61, 62] и результатами других групп [67, 68, 70, 71]. С точки зрения теории, давление ухудшает нестинг, увеличивая член с  $t'_b$  в энергетическом спектре (4.1). Следовательно, под давлением число несстингованных носителей увеличивается по сравнению со случаем нулевого давления. В противоположность действию давления, магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  улучшает условия нестинга как при нулевом давлении, так и под давлением, причём число несстингованных носителей во втором случае больше. На основании этого теория предсказывает усиление зависимости  $T_{SDW}(H)$  под давлением.

Наши данные (см. вставку к Рисунку 4.3а) подтверждают теоретически предсказанное усиление полевой зависимости  $T_{SDW}$  при давлении близком к критическому. Мы, исходя из этого, ожидаем, что если зависимость  $T_{SDW}(H)$  для других ориентаций поля и существует, то она должна усиливаться приложением давления. Соответственно, нами было проведено исследование этой зависимости под давлением, близким к критическому.

## 4.2.2 Ориентации $\mathbf{H}||\mathbf{a}, \mathbf{b}'$

Когда магнитное поле приложено в  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$  плоскости, его влияние на температуру ВСП-перехода либо отсутствует, либо, по крайней мере, намного меньше, чем в случае  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ . Ри-

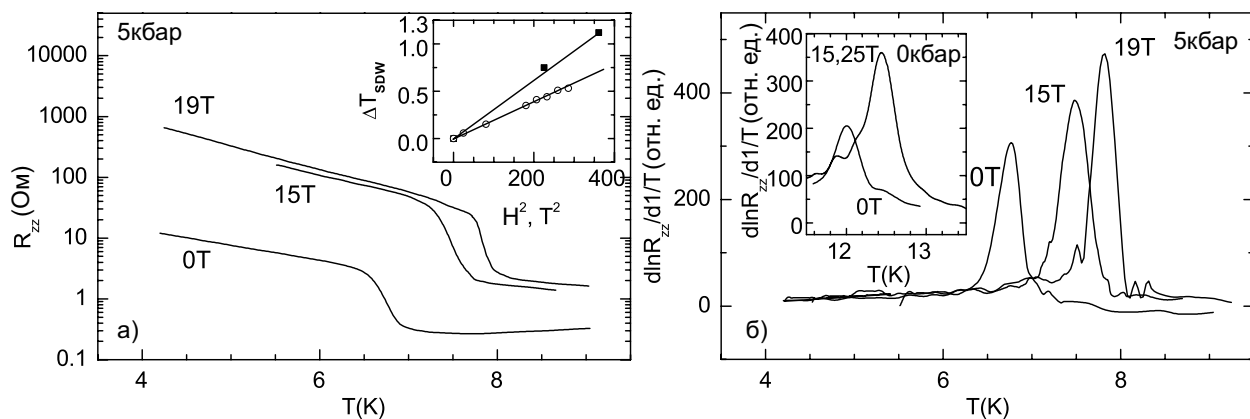


Рис. 4.3: Температурные зависимости  $R_{zz}$  под давлением 5 кбар,  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ . (а)  $R_{zz}(T)$  для набора магнитных полей. Врезка показывает зависимости  $\Delta T_{SDW}$  от  $H^2$  для  $P = 5$  кбар (чёрные точки) и  $P = 0$  (белые точки). (б) Логарифмические производные тех же данных. На врезке показано, что сдвиг  $T_{SDW}$  в магнитном поле становится гораздо больше под давлением.

сунки 4.4а и 4.5б демонстрируют этот результат для одной из ориентаций,  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$ . Несмотря на то, что форма кривых  $R_{zz}(T)$  в магнитном поле слегка меняется, температура перехода остаётся неизменной в пределах погрешности наших измерений  $\sim 0.03$  К. Для сравнения, на тех же рисунках приведены кривые для случая  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ , показывающие, что в этом случае сдвиг  $T_{SDW}$  в том же поле  $H = 9$  Тл на порядок больше по величине.

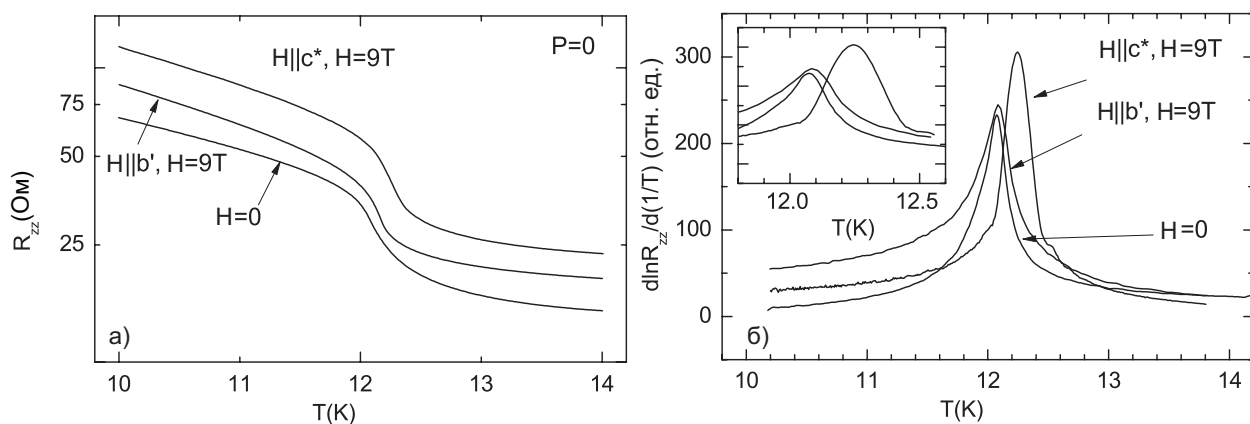


Рис. 4.4: Сравнение температурных зависимостей  $R_{zz}$  при нулевом давлении в магнитном поле 9 Тл для  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  и  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  ориентаций. (а)  $R_{zz}(T)$ ; (б) логарифмические производные. Графики производных в увеличенном масштабе показаны на врезке.

По аналогии с ориентацией  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  можно ожидать, что сдвиг  $T_{SDW}$  (если он существует)



будет усиливаться под давлением. На Рисунках 4.4а и 4.5б показан основной результат работы: зависимости  $R_{zz}(T)$  в районе перехода, измеренные во всех трёх ориентациях ( $\mathbf{H}||\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}'$  и  $\mathbf{c}^*$ ) под давлением  $P = 5$  кбар, близким к критическому. При  $P = 5$  кбар и в поле  $H = 19$  Тл сдвиг  $\Delta T_{SDW}(H)$  составляет 1 К для  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  ориентации, в то время как для  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}'$  сдвиг либо отсутствует, либо исчезающе мал (по меньшей мере в 20 раз меньше, см. Рисунок 4.5б).

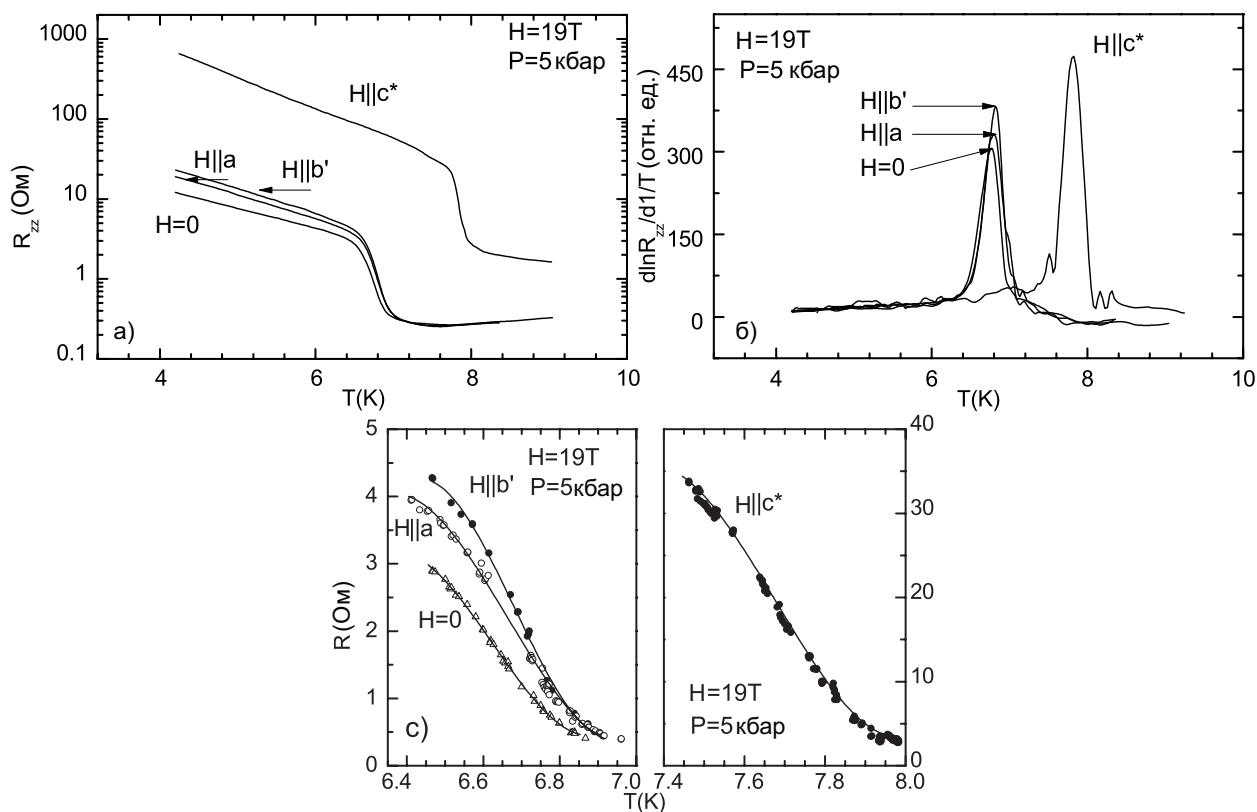


Рис. 4.5: Сравнение температурных зависимостей  $R_{zz}$  под давлением  $P = 5$  кбар в магнитном поле 19Тл, направленном вдоль  $\mathbf{a}$  и  $\mathbf{b}'$  осей и вдоль оси  $\mathbf{c}^*$ . (а)  $R_{zz}(T)$ ; (б) логарифмические производные. Эти кривые построены с учётом поправки на магнитосопротивление  $\text{RuO}_2$  термометра. (в) Более детальное изображение зависимостей в районе перехода. Сплошные кривые – кубическая аппроксимация экспериментальных данных.

Более подробное рассмотрение поведения  $R_{zz}(T)$  (Рисунок 4.5в) показывает, что кривые для  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}'$  слегка сдвинуты относительно кривой  $H = 0$ . Наша измерительная погрешность, однако, имеет тот же порядок, поэтому далее мы рассмотрим возможные её источники. Есть два основных источника погрешности: 1) погрешность калибровки  $\text{RuO}_2$

термометра в магнитных полях и 2) погрешность процедуры определения  $T_{SDW}$ . Последний вклад оценён нами по ширине перехода и составляет величину  $\sim 0.02-0.03$  К. Первый же вклад возник из-за того, что магнитосопротивление  $\text{RuO}_2$  термометра, использовавшегося при измерениях, было калибровано лишь при 4.2 К. Возможные изменения магнитосопротивления  $\text{RuO}_2$  при изменении температуры от 4.2 К до 6.7 К дают основной вклад в измерительную погрешность, которую мы оцениваем 0.04 К. То есть мы можем говорить с уверенностью только об изменениях температуры больших, чем 50 мК. Если  $T_{SDW}$  и меняется в магнитном поле при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}, \mathbf{b}'$ , то величина этого изменения должна быть меньше приведённого выше значения.

### 4.3 Обсуждение

(i) В теории [61, 62] понижение температуры перехода связано с неидеальностью нестинга. За эту неидеальность в энергетическом спектре (4.1) отвечает единственный член  $t'_b \cos(2k_y b')$ . Когда магнитное поле приложено вдоль оси  $\mathbf{c}^*$ , гамильтониан системы перестаёт зависеть от импульса в направлении  $\mathbf{b}'$  [56]. Этот эффект качественно схож с квазиклассическим влиянием силы Лоренца на движение электронов. Сила Лоренца направлена вдоль оси  $\mathbf{b}'$ , так как фермиевская скорость  $v_F$  направлена, в среднем, вдоль оси  $\mathbf{a}$ . Эта сила заставляет электроны на поверхности Ферми пересекать зону Бриллюэна в направлении  $k_y$  [см. Рис. 4.1(a)]. Такое движение приводит к усреднению энергии электронов по всем состояниям  $k_y$  [56], то есть в спектре (4.1) исчезают члены, которые содержат  $\cos(k_y b)$ . Член с  $t'_b$ , приводящий к неидеальному нестингу, также исчезает из спектра и, таким образом, магнитное поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*$  улучшает условия нестинга: в результате температура перехода растёт. Этот эффект описывается в рамках теории среднего поля [61, 62]. Напротив, магнитное поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$  не влияет на  $t'_b$  и, следовательно, температура перехода не должна меняться при этой ориентации поля. Наши измерения не противоречат этому предсказанию теории: действительно, сдвиг температуры перехода для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$

гораздо меньше, чем для ориентации  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ .

(ii) В принципе, магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  все же может оказывать влияние на дисперсию электронов в направлении  $\mathbf{c}^*$ . В теории [61] такого рода дисперсией пренебрегают и считают, что  $t'_b$  – это единственный параметр, ответственный за неидеальность нестинга. В общем случае, помимо  $t'_b$  существуют и другие антинестинговые члены, которые могут привести к росту температуры перехода в ориентации  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$ . Изучение анизотропии температуры перехода для различных ориентаций магнитного поля позволяет, в принципе, оценить отношение интегралов перекрытия  $t_b/t_c$ . Ниже мы сделаем оценку отношения  $t_b/t_c$  на основании наших экспериментальных данных. Для этого мы дополним энергетический спектр (4.1):

$$\mathcal{E}_1(\mathbf{k}) = \mathcal{E}_0(\mathbf{k}) - 2t'_{bc} \cos(k_y b') \cos(k_z c^*) - 2t'_c \cos(2k_z c^*), \quad (4.2)$$

где  $t'_{bc}$  и  $t'_c$  - интегралы перескока на следующих за ближайшими соседями. В модели (4.2) для ориентации поля  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$  вклад члена с  $t'_{bc}$  в рост температуры перехода пренебрежимо мал по сравнению с вкладом от  $t'_b$ , поскольку  $t_b/t_c \gg 1$ . Таким образом, зависимость  $T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{c}^*)$  практически не изменяется, если учесть член  $t'_{bc}$ . Однако, для ориентации  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  ситуация кардинально меняется. Теперь на электроны действует сила Лоренца, направленная вдоль оси  $\mathbf{c}^*$ , и соответствующее движение в направлении  $k_z$  усредняет все члены с  $\cos(k_z c^*)$  в спектре (4.2). Следовательно, вклад от  $t'_{bc}$  в зависимость  $T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{b}')$  становится основным.

(iii) Магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$  не оказывает влияния на движение электронов, поскольку сила Лоренца в среднем равна нулю. Соответственно, в данной ориентации магнитное поле не оказывает влияния на вид спектра, и можно ожидать, что температура перехода не зависит от поля  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$ .

Из приведенных выше рассуждений мы делаем вывод, что температура перехода может, в принципе, зависеть от поля  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$ . Vjelic и Maki в статье [62] учли член  $t'_{bc}$  и получили уравнение для температуры перехода в наклонном магнитном поле. Основываясь на этом результате, можно показать (см. раздел 4.5), что в сильных магнитных полях анизотропия

связана с отношением  $t_b/t_c$  следующим образом:

$$\frac{T_{SDW}(H||c^*) - T_{SDW}(0)}{T_{SDW}(H||b') - T_{SDW}(0)} \approx \beta \frac{1}{4} \left(\frac{t_b}{t_c}\right)^2 \left(\frac{\omega_c}{\omega_b}\right)^2, \quad (4.3)$$

где  $\beta \approx 1$  - численный коэффициент. Поскольку в приведенное выше соотношение входит  $(t_b/t_c)^2$ , можно ожидать, что сдвиг  $T_{SDW}$  для  $\mathbf{H}||\mathbf{b}'$  окажется значительно меньше, чем для  $\mathbf{H}||\mathbf{c}^*$ . На рисунке 4.5 представлены экспериментальные данные для перехода в ВСП при трех ориентациях  $\mathbf{H}||\mathbf{a}, \mathbf{b}', \mathbf{c}^*$ . С помощью этих данных и уравнения (4.3) можно, в принципе, оценить отношение  $t_b/t_c$ . Однако, прямое сравнение температуры перехода в  $H = 19$  Тл и  $H = 0$  приведет к большой погрешности, связанной с магнитосопротивлением термометра. Чтобы исключить эту погрешность, мы медленно меняли температуру вблизи перехода в фиксированном магнитном поле 19Т и измеряли  $R_{zz}(T)$ . Эту процедуру мы повторили для всех трех ориентаций поля ( $\mathbf{H}||\mathbf{a}, \mathbf{b}', \mathbf{c}^*$ ), вращая *in situ* камеру давления с образцом в магнитном поле. Измеренная таким образом зависимость  $T_{SDW}(\mathbf{H})$  использовалась для оценки  $t_b/t_c$  из уравнения (4.2). При расчете мы заменили  $T_{SDW}(H = 0)$  на  $T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{a})$ , поскольку, как обсуждалось в (iii) магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{a}$  не влияет на температуру перехода. Описанная процедура позволила нам избавиться от погрешности, связанной с магнитосопротивлением RuO<sub>2</sub> термометра. Разность  $\Delta T_{ab} = T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{b}') - T_{SDW}(\mathbf{H}||\mathbf{a})$  оказалась в пределах погрешности методики, 0.02 К, но верхняя граница нашей оценки согласно уравнению (4.2) соответствует нижней границе отношения  $t_b/t_c \approx 7$ . Полученная оценка согласуется с результатом  $t_b/t_c \approx 6$  полученным из измерений угловой зависимости магнитосопротивления в металлическом состоянии при 7 кбар [132]. Полученные оценки отношения  $t_b/t_c$  позволяют утверждать, что вклад от члена  $t'_{bc}$  в температуру перехода пренебрежимо мал, по крайней мере, в 50 раз меньше, чем вклад от  $t'_b$ .

(iv) Наконец, следует рассмотреть еще один вариант, когда нестинг является двумерным, т.е. компонента  $Q_z$  не определена. Как уже отмечалось, о потенциальной возможности такого сценария говорят данные ЯМР-измерений[131]. С позиций “стандартной” модели(см. раздел 2.2) существование дополнительного числа делокализованных носителей, связанных с конечной дисперсией в  $k_z$  направлении, приводит к понижению  $T_{SDW}$ .

В то же время, приложение очень большого магнитного поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$ ,  $\hbar\omega_c \gg 4t_c$ , привело бы к эффективному сжатию волновой функции в пределы одного молекулярного слоя  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$ , что эквивалентно исчезновению поперечной дисперсии в направлении  $k_z$ . В этом случае температура перехода  $T_{SDW}$  возрастет. Хотя в строгом смысле теория для наклонных полей [62] (см. также раздел 4.5) здесь неприменима, можно ожидать, что рост  $T_{SDW}$  начнется уже в слабых полях и будет тем сильнее, чем ниже  $T_{SDW}(H = 0)$ . В поле 19 Тл (см. Рис. 4.5) характерная магнитная энергия составляет  $\hbar\omega_b \approx 32\text{ К}$ , что соизмеримо с  $4t_c \gtrsim 23.2\text{ К}$  [132], и сдвиг  $T_{SDW}$  не должен быть мал. Если воспользоваться “стандартной” моделью для оценки возрастания  $T_{SDW}$  при таких значениях поля и  $t_c$ , то в силу близости значений  $t_c$  и  $t'_b$  получается  $\Delta T_{SDW}(\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}', P = 5) \approx \Delta T_{SDW}(\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*, P = 0) \approx 0.5\text{ К}$ , что гораздо больше полученной нами экспериментальной оценки. Таким образом, крайне малый сдвиг  $T_{SDW}(\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}')$  говорит в пользу трехмерного нестинга поверхности Ферми и малой роли трехмерной дисперсии в стабильности волны спиновой плотности.

## 4.4 Выводы

В данной главе мы описали измерения влияния магнитного поля на температуру перехода  $T_{SDW}$  в состоянии волны спиновой плотности в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  в полях  $H = 19\text{ Тл}$  для трех ориентаций  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}, \mathbf{b}', \mathbf{c}^*$  и при давлениях до 5 кбар. Данные для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*$  качественно согласуются с теорией среднего поля [61, 62] и результатами других групп [67, 68, 70, 71]. Наши данные подтверждают усиление полевой зависимости  $T_{SDW}$  по мере того как давление увеличивается и приближается к критическому. Измерения температуры перехода в ориентациях  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$  проделаны впервые. Основной результат нашей работы состоит в том, что зависимость температуры перехода от магнитного поля в ориентациях  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$  либо отсутствует вообще, либо очень слабая (по крайней мере в 20 раз слабее, чем для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*$ ) даже вблизи критического давления и в поле  $H = 19\text{ Тл}$ . Этот результат подтверждает допущение теорий о том, что  $T_{SDW}$  определяется антинестинго-

выми членами и самый большой вклад принадлежит члену  $t'_b$  в электронном спектре, а роль трехмерной дисперсии в стабильности волны спиновой плотности – крайне мала.

## 4.5 Приложение. Оценка отношения туннельных интегралов из анизотропии $T_{SDW}(\mathbf{H})$

Вjelis и Maki в работе [62] учли член вида  $t'_{bc}$  при вычислении температуры ВСП перехода в магнитом поле, лежащим в плоскости  $\mathbf{b}' - \mathbf{c}^*$ . Общий вид этого уравнения представляет из себя бесконечную сумму произведений функций Бесселя. В сильных полях эту зависимость можно упростить, оставив лишь наибольшие члены. Для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}^*$  оно приобретает тогда вид:

$$\ln \left[ \frac{T_{SDW}(H \parallel \mathbf{c}^*)}{T_{SDW}} \right] \approx J_1^2 \left( \frac{t'_b}{\omega_b} \right) J_0^2 \left( \frac{t'_{bc}}{\omega_b} \right) \left[ \operatorname{Re} \Psi \left( \frac{1}{2} + \frac{i2\omega_b}{4\pi T_{SDW}} \right) - \Psi \left( \frac{1}{2} \right) \right] \quad (4.4)$$

А для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$ :

$$\ln \left[ \frac{T_{SDW}(H \parallel \mathbf{b}')}{T_{SDW}} \right] \approx J_1^2 \left( \frac{t'_{bc}}{\omega_c} \right) \left[ \operatorname{Re} \Psi \left( \frac{1}{2} + \frac{i\omega_c}{4\pi T_{SDW}} \right) - \Psi \left( \frac{1}{2} \right) \right] \quad (4.5)$$

Здесь  $T_{SDW} = T_{SDW}(H = 0)$ ,  $J_{0,1}$  – функции Бесселя, а  $\Psi$  – дигамма-функция. Если магнитное поле направлено вдоль оси  $\mathbf{c}^*$ , то сила Лоренца заставляет электрон пересекать границы зоны Бриллюэна в направлении  $k_y$  с характерной частотой  $\omega_b = ev_F B b$ . Для ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}'$  соответствующая частота равна  $\omega_c = ev_F B c$ , что в два раза больше, чем  $\omega_b$ . Подставляя  $v_F \sim 1.1 \cdot 10^5$  м/с [71], получаем  $\omega_b \approx 0.985 \cdot H$  К. Следовательно, в сильных полях  $t'_b/\omega_b$  и  $t'_{bc}/\omega_b$  стремятся к нулю, оставляя в исходных рядах только функции Бесселя младших порядков, что и записано в уравнениях (4.4) и (4.5).

Раскладывая экспоненты в ряд можно показать, что:

$$\frac{T_{SDW}(B \parallel \mathbf{c}^*) - T_{SDW}(0)}{T_{SDW}(B \parallel \mathbf{b}') - T_{SDW}(0)} \approx \beta \frac{J_1^2 \left( \frac{t'_b}{\omega_b} \right) J_0^2 \left( \frac{t'_{bc}}{\omega_b} \right)}{J_1^2 \left( \frac{t'_{bc}}{\omega_c} \right)}, \quad (4.6)$$

где  $\beta \approx 1$  – числовой множитель. Подставляя сюда асимптотические выражения для функций Бесселя с малыми аргументами, получаем:

$$\frac{T_{\text{SDW}}(B\|c^*) - T_{\text{SDW}}(0)}{T_{\text{SDW}}(B\|b') - T_{\text{SDW}}(0)} \approx \beta \frac{1}{4} \left( \frac{t_b}{t_c} \right)^2 \left( \frac{\omega_c}{\omega_b} \right)^2. \quad (4.7)$$

Следовательно, на основе измерений сдвигов температур ВСП переходов в сильных полях при различных его ориентациях можно оценить отношение интегралов перекрытия  $t_b/t_c$ .

## Глава 5

# Сосуществование волны спиновой плотности и сверхпроводимости в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

### 5.1 Введение

Данная глава посвящена исследованию универсальности переходов метал(СП)/ВСП в квазиодномерных соединениях. Действительно, все рассмотренные в разделе 2.4 сценарии этого перехода в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , не связанные напрямую с триплетной СП, являются применимыми в общем случае. Термодинамические аргументы, такие как возникновение трикритической точки, основаны на (i) зависимости энергии ВСП от деформаций и (ii) почти вертикальной границе между фазами металла и ВСП вблизи критического давления [30, 114]. В соответствии со “стандартной” моделью условия (i)-(ii) выполняются во всем классе соединений  $(\text{TMTSF})_2X$ . То же самое можно сказать и про образование солитонной фазы или электрон-дырочных карманов[40].

В то же время, в, казалось бы, похожем соединении  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  сосуществование СП и ВСП имеет существенные отличия от  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . В силу того, что скорость



упорядочения анионов в точке перехода – конечна[52], степенью анионного упорядочения можно управлять, изменяя скорость охлаждения вблизи  $T_{AO}$ . Это приводит к необычной фазовой диаграмме, где фаза ВСП выгодна при высоких беспорядках, ВСП и СП сосуществуют при промежуточных беспорядках, а однородное сверхпроводящее состояние устанавливается при слабых беспорядках[26]. Ранние измерения на  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  не выявили каких-либо особенностей сосуществования фаз ВСП и СП, подобно тем, что наблюдаются в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Была предложена модель, в которой сосуществование фаз связывалось с присутствием анион-упорядоченных включений на фоне анион-неупорядоченной фазы ВСП изолятора[26]. Эта модель в дальнейшем получила поддержку в связи с подробными рентгеновскими исследованиями, в которых действительно наблюдались анион-упорядоченные включения[52].

Позже было показано, что чем ниже  $T_{SDW}$ , тем сильнее на нее влияет магнитное поле  $\mathbf{H}||\mathbf{c}$ [64, 69, 72], в полном согласии со “стандартной” моделью ВСП фазы [62]. Такой результат, в свою очередь, подразумевает, что некоторый параметр, который ухудшает нестинг, увеличивается при уменьшении  $T_{SDW}$ . Последнее происходит при уменьшении анионного беспорядка, когда можно было бы ожидать только изменения степени расщепления зон,  $V$ . Действительно,  $V$  должно играть роль аналогичную роли  $t'_b$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . При самом большом беспорядке поверхности Ферми в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  – одинаковы, и, следовательно, ничего не препятствует нестингу (см. Рис. 2.3а). Постепенное упорядочение анионов приводит к росту  $V$ , которое является в этом случае отклонением от идеального нестинга (см. Рис. 2.3б). Следовательно,  $T_{SDW}$  понижается до тех пор, пока при некотором беспорядке отклонение не достигает некоторого критического значения, при котором ВСП исчезает.

Описанная выше простая модель согласуется с теоретической фазовой диаграммой  $T_{SDW}(V)$ [73, 74] (см. также Рис. 2.4). Подобие фазовых диаграмм ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  указывает на то, что и в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  должно наблюдаться само-согласованное сосуществование фаз ВСП и СП, вопреки предложенной ранее модели

структурно-неоднородного гранулярного СП состояния[26]. Следовательно, для того чтобы разрешить данное противоречие, необходимо провести подробные исследования фазовой диаграммы ВСП и СП как функции  $V$ . Поскольку можно ожидать, что щель  $V$  окажется пространственно-неоднородной в силу структурного беспорядка[52], то ее значение нельзя сопоставлять с остаточным сопротивлением или скоростью охлаждения вблизи  $T_{AO}$  и необходимо измерять напрямую.

В этой главе мы используем несколько видов транспортных измерений для того чтобы охарактеризовать в прямом и обратном пространстве сосуществование фаз ВСП и металла/СП при различных беспорядках. Для получения информации о структуре поверхности Ферми и изменениях щели  $V$  мы используем угловые осцилляции магнитосопротивления, наблюдаемые при вращении поля в плоскости  $\mathbf{a} - \mathbf{c}$ . Выравнивание образцов в магнитном поле осуществлялось с использованием известной анизотропии верхнего критического поля  $H_{c2}$ : в плоскости  $\mathbf{a} - \mathbf{c}$  поле  $H_{c2}$  максимально для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  и минимально для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . Следовательно, направление  $a$  можно определить по провалу сопротивления, связанному с установлением сверхпроводимости, на кривой вращения при фиксированном поле, немного меньшем  $H_{c2} \parallel \mathbf{a}$ . Направление  $\mathbf{c}$  устанавливалось поворотом образца на 90 градусов относительно направления  $\mathbf{a}$ .

## 5.2 Результаты и обсуждение

### 5.2.1 Эволюция температурных зависимостей с беспорядком

На рисунке 5.1 представлены температурные зависимости внутрислоевого сопротивления  $R_{xx}$  для различных беспорядков. При больших беспорядках в образце наблюдается переход в волну спиновой плотности ( $T_{SDW} = 6.6\text{K}$  для #1), и при понижении температуры  $R_{xx}$  имеет зависимость типа изолятора. При понижении беспорядка ВСП постепенно подавляется, что видно из уменьшения  $T_{SDW}$ . Для беспорядков #3 и #4 переход становится сильно размытым, однако при низких температурах сопротивление сохраняет зависимость

типа изолятора, что указывает на присутствие ВСП.

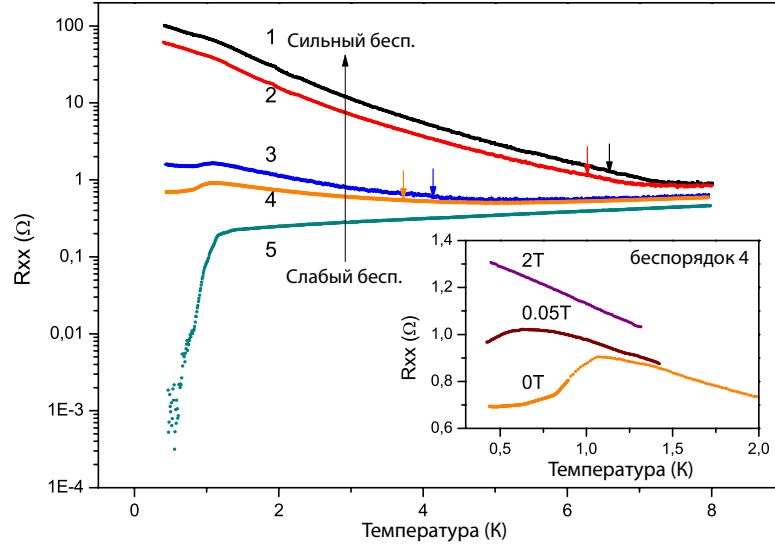


Рис. 5.1: Температурные зависимости внутрислоевого сопротивления  $R_{xx}$  для пяти различных степеней анионного упорядочения. Цвета специфичны для каждого из беспорядков на всех рисунках в этой главе. Стрелки показывают положение температуры перехода в волну спиновой плотности,  $T_{SDW}$ , определенное по пику производной  $d \ln R_{xx} / d(1/T)$ . Вставка показывает зависимость  $R_{xx}(T)$  при различных полях  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  для беспорядка #4.

При больших беспорядках  $d1, d2$  поведение  $R_{xx}(T)$  соответствует изолятору при  $T < T_{SDW}$ , за исключением излома вблизи  $\approx 1.1\text{K}$ , за которым следует более слабый рост сопротивления. Для меньших беспорядков #3, #4 излом сопровождается провалом в сопротивлении. Поведение  $R_{xx}$  при  $T < 1.1\text{K}$  меняется с характерного для изолятора (#3) на металлическое (#4), тем не менее сопротивление остается конечным вплоть до минимальной температуры установки равной  $0.4\text{K}$ . В слабом магнитном поле эта особенность исчезает и восстанавливается зависимость типа изолятора, как показано на вставке к Рис. 5.1. Это наблюдение указывает на то, что излом и провал связаны с присутствием сверхпроводящих включений внутри слоев на фоне фазы ВСП.

Наконец, для самого маленького беспорядка #5 поведение типа изолятора отсутствует и наблюдается переход в сверхпроводящее состояние с падением сопротивления до нуля. В целом поведение  $R_{xx}$  похоже на предыдущие наблюдения Швенка и др. [26], где авторы предложили модель смеси сверхпроводящих анион-упорядоченных включений на фоне

фазы волны спиновой плотности. Увеличение количества и размеров этих включений с уменьшением беспорядка (отжигом образца) приводит к образованию перколяционных сверхпроводящих связей, подобно ситуации наблюдаемой в гранулярных СП[133]. Излом и провал тогда связаны со сверхпроводящим переходом внутри этих включений, а температурная зависимость металлического типа, которая следует за провалом сопротивления, связана с внутрислоевым перколяционным переходом между включениями.

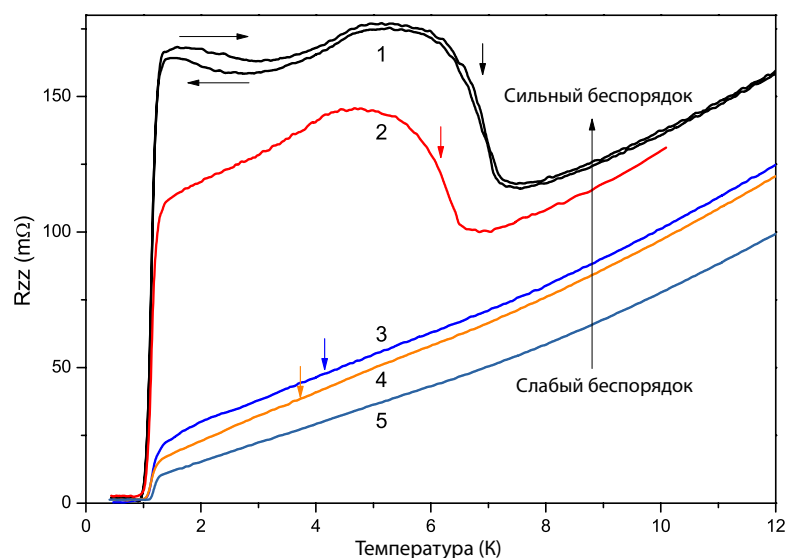


Рис. 5.2: Температурные зависимости межслоевого сопротивления  $R_{zz}$  для пяти различных степеней анионного упорядочения. Стрелки показывают положение перехода в волну спиновой плотности, определенного из данных  $R_{xx}(T)$ .

Поведение межслоевого сопротивления,  $R_{zz}$ , принципиально отличается от поведения внутрислоевого, как показано на Рис. 5.2. Наиболее значимое отличие состоит в полном сверхпроводящем переходе, который наблюдается при всех беспорядках, даже при тех, где в  $R_{xx}$  отчетливо видно присутствие ВСП. В отличие от двухступенчатого перехода, наблюдаемого в  $R_{xx}(T)$  (см. #4) и характерного для гранулярных сверхпроводников, переходы в  $R_{zz}(T)$  являются гладкими. При сильном беспорядке критическая температура  $T_c \approx 1\text{K}$  лишь немного отличается от этой величины в анион-упорядоченном образце,  $T_c \approx 1.3\text{K}$ [95], а сам переход становится шире. В  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  имеются указания [19] на nodальное  $d$ -симметричное спаривание, так что подавление  $T_c$  действительно ожидается

при увеличении беспорядка. Следует отметить, что  $R_{zz}$  изменяется примерно в 3 раза при изменении беспорядка (ср. кривые #1 и #5 на Рис. 5.2 при  $T = 10\text{K}$ ).

Второе различие состоит в том, что металлический характер температурных зависимостей сохраняется в  $R_{zz}$  даже при тех беспорядках, когда в  $R_{xx}$  он явно соответствует изолятору. Резкое возрастание сопротивления  $R_{zz}$  наблюдается для беспорядков #1 и #2 при тех же температурах, при которых в  $R_{xx}$  наблюдается переход в волну спиновой плотности. Тем не менее, это возрастание отсутствует для беспорядков #3, #4 (см. Рис. 5.2). Такое поведение можно ожидать в ситуации, когда поперечное сечение для протекания тока между слоями сокращается при установлении целевого состояния волны спиновой плотности внутри слоев.

Наиболее необычным результатом является наблюдение гистерезиса между кривыми нагрева и охлаждения (см. кривую #1 на Рис. 5.2). Сопротивление несколько выше при нагреве образца от низких температур, а разница между кривыми нагрева и охлаждения исчезает только вблизи  $T_{SDW}$ . Гистерезис на зависимости  $R_{zz}(T)$  является стационарным эффектом и не зависит ни от скорости разворота температуры ни от продолжительности отжига при  $T < T_{SDW}$ . Нет оснований считать, что анионное упорядочение может изменяться при температурах значительно меньших по сравнению со щелью. Действительно, отжиг даже при 10K не оказывает никакого влияния на сопротивление при низких температурах [26]. Ввиду сильного беспорядка существует возможность того, что некоторые части образца имеют более низкую локальную температуру ВСП перехода и, следовательно, становятся изоляторами при более низких температурах, чем основной объем образца. Однако, такие структурные неоднородности не позволяют объяснить гистерезис.

Альтернативное объяснение заключается в том, что такого рода гистерезис возможен если фазовый переход между двумя граничащими фазами, а именно между волной спиновой плотности и металлом, относится к первому роду. В этом случае включения миноритарной фазы будут присутствовать поверх мажоритарной фазы даже ниже  $T_{SDW}$ . Количество миноритарной фазы уменьшается при уменьшении температуры и не восста-

навливается вплоть до нового перехода границы фаз. Линия фазовых переходов первого рода была обнаружена и подтверждена несколькими методами в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [28, 29, 30], где она приводит к весьма похожим гистерезисам на температурной зависимости  $R_{zz}$  [32] в области сосуществования фаз ВСП и СП под давлением.

### 5.2.2 Угловые зависимости магнитосопротивления в двухфазном состоянии

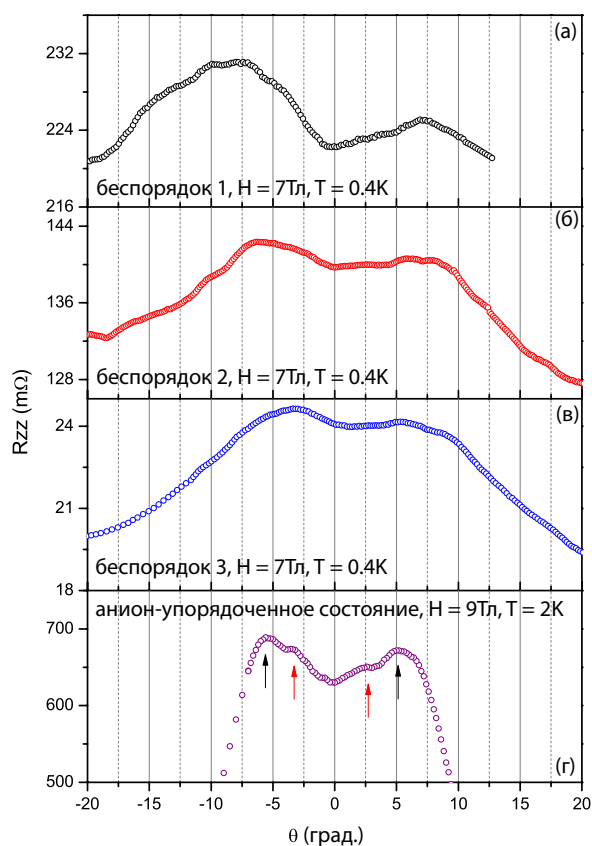


Рис. 5.3: Угловые осцилляции магнитосопротивления в плоскости **a** – **c** для беспорядков #1-#3 и для анион-упорядоченного состояния (а-г). Угол  $\theta$  является отклонением магнитного поля относительно оси **a** в плоскости **a** – **c** и равен нулю для  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ . Черные и красные стрелки соответствуют осцилляциям нулевого и первого порядков. Разница в значении сопротивления в симметричных пиках связана с присутствием конечной компоненты поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{b}$ , вызванной небольшой неточностью в выравнивании образца.

Более детальную информацию о природе сосуществования металла и ВСП можно получить при помощи исследования влияния беспорядка на энергетический спектр. Угловые

зависимости магнитосопротивления являются основным средством для получения информации о структуре поверхности Ферми в квазиодномерных металлах. На рисунке показаны угловые осцилляции магнитосопротивления  $R_{zz}$  (AMRO) полученные при вращении магнитного поля в плоскости  $\mathbf{a} - \mathbf{c}$ . Как видно из Рис. 5.3г, несколько отчетливых пиков расположены вблизи ориентации  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  на фоне монотонной косинусоиды при очень слабом беспорядке. Этот эффект хорошо описывается в терминах больцмановского транспорта и является следствием обнуления средней скорости электронов  $\langle v_z \rangle$  на орбитах определенного типа [20, 21] (см. Рис. 5.4а). Среднее значение  $\langle v_z \rangle$  имеет те же нули, что и функция Бесселя  $J_0\left(\frac{2t_b c}{\hbar v_F} \frac{H_x}{H_z}\right)$ , что соответствует орбитам, которые в точности укладываются в целое число зон Бриллюэна в направлении  $k_z$  (см. схематическую иллюстрацию на Рис. 5.4б)[21]. Несложно увидеть, что угловое расстояние между пиками пропорционально ширине зоны в направлении  $k_y$ , то есть  $2t_b$ . В присутствии анионного беспорядка ширина зоны равна  $t_b - V$  (см. Рис. 5.4а), следовательно, на основе измерения AMRO-эффекта в  $\mathbf{a} - \mathbf{c}$  плоскости мы можем напрямую отслеживать изменения локального значения щели  $V$ . Результаты таких измерений представлены на Рис. 5.3а-в для набора беспорядков, включая и те, при которых наблюдается гистерезис в  $R_{zz}(T)$ . Пики сильно подавлены за счет уменьшения времени рассеяния при больших беспорядках, однако пики нулевого порядка по-прежнему различимы. Из рисунка видно, что при усилении беспорядка пики расходятся в сторону друг от друга, что напрямую указывает на уменьшение расщепления зон  $V$ . Предыдущие попытки [134] измерить зависимость  $V$  от беспорядка были основаны на AMRO-эффекте в  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$  плоскости. Этот эффект связан со слабым увеличением проводимости для определенных направлений магнитного поля, почти параллельных скоростям электронов в точках перегиба поверхности Ферми[20]. Слабое увеличение проводимости сильно подавляется беспорядком, что не позволяет наблюдать  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$  AMRO-эффект при сильном беспорядке.

Рентгеновские измерения[52] указывают на существование анион-упорядоченных включений (гранул) даже в быстро охлажденных образцах (т.е. при сильных беспорядках). Внутри этих зерен выгодно образование сверхпроводника, а не волны спиновой плотности.

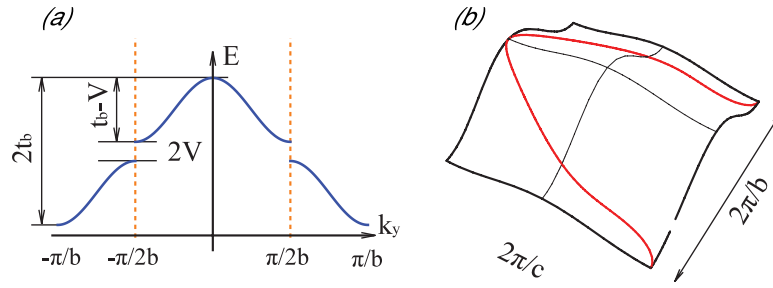


Рис. 5.4: (а) Схематическое изображение ширины зоны в  $k_y$  направлении, которое измеряется при помощи AMRO эффекта в присутствии или отсутствии упорядочения анионов. (б) Один из листов поверхности Ферми с орбитой (красная линия), которая возникает при ориентации магнитного поля в направлении AMRO пика нулевого порядка. Ориентация поля зависит от ширины зоны в направлении  $k_y$ .

Более того, недавние теоретические исследования [135] также показали, что  $d$ -волновая сверхпроводимость может сохраняться в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  и при сильных беспорядках за счет джозефсоновских связей между отдельными СП включениями при условии, что расстояние между ними меньше или порядка длины когерентности. Следовательно, интересно установить вклад анион-упорядоченных включений в наблюдаемые межслоевые СП области. Ослабленные пики в  $a-c$  AMRO однозначно указывают на то, что металлические/СП области являются разупорядоченными, и, более того, не наблюдается дополнительных пиков с угловым положением  $\theta = \pm 5.7$  градусов, соответствующим анион-упорядоченному состоянию (см. Рис. 5.3г). Из этого следует, что либо общий вклад таких включений в проводимость мал, либо что их размер сравним с длиной свободного пробега. В любом случае, анион-упорядоченные включения дают малый вклад в межслоевые СП области.

### 5.2.3 Усиление критического поля в двухфазном состоянии

Другим инструментом, который позволяет обнаружить самосогласованное сосуществование фаз ВСП и СП, является критическое поле. На рисунке 5.5 показаны температурные зависимости  $H_{c2}||c$  для двух беспорядков #1 и #3, которые предположительно соответствуют области сосуществования фаз. Для более сильного беспорядка у кривой  $H_{c2}(T)$  наблюдается заметная выпуклость, а критическое поле значительно выше по сравнению



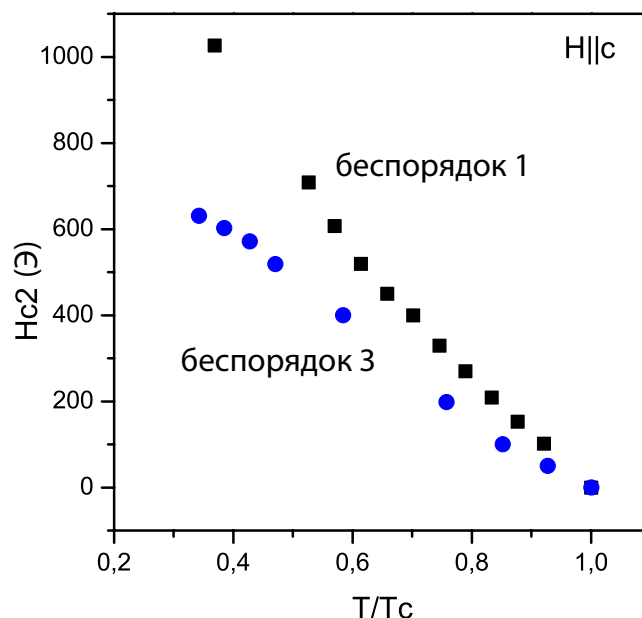


Рис. 5.5: Температурные зависимости критического поля для беспорядков #1 и #3. Критическое поле определялось по середине (50%) резистивного перехода.

с беспорядком #3. Положительная кривизна также отсутствует и для #3, и для анион-упорядоченного состояния[95]. Отсюда следует, что загиб вверх  $H_{c2}$  является специфическим свойством сильных беспорядков, где присутствие волны спиновой плотности в большей степени оказывает влияние на сверхпроводящую фазу.

В теории Гинзбурга-Ландау наклон  $dH_{c2}/dT$  связан с длинами когерентности  $\xi_i\xi_j$  в плоскости, перпендикулярной направлению магнитного поля. В гранулярном сверхпроводнике увеличение наклона возможно при условии малости размера гранул по сравнению с  $\xi$ , однако ни  $R_{zz}(T)$ , ни AMRO зависимости не демонстрируют заметного вклада анион-упорядоченных гранул в межслоевые металлические/СП области. В однородном сверхпроводнике связанная с беспорядком щель  $V$  может влиять на эффективную массу и, тем самым, изменять  $\xi$ . Действительно, возрастание наклона наблюдалось при слабых беспорядках [136], но было гораздо меньше по величине по сравнению с беспорядком #1. С другой стороны, сосуществование фаз ВСП и СП может влиять на СП фазу либо в прямом (например, если размер СП области изменяется за счет самосогласованного формирования пространственно-неоднородного состояния на масштабах  $d \sim \xi$ ), либо в обрат-

ном пространстве (например, за счет изменений эффективной массы при реконструкции поверхности Ферми нестингом). Таким образом, усиление критического поля является значимым свидетельством в пользу сосуществования ВСП и СП.

Сильное возрастание  $H_{c2}||c$  наблюдалось в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [32] и обширно обсуждалось теоретически [35, 36, 113]. Некоторые теории [35, 36] связывают усиление критического поля с взаимодействием между параметрами порядка ВСП и триплетного СП. Согласно данному в разделе 2.3.2 обзору СП фазы, в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  нет оснований считать спаривание триплетным, а в случае анион-упорядоченного  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  недавние измерения теплоемкости в магнитном поле с угловым разрешением указывают на нодальное  $d$ -волновое спаривание [19]. Таким образом, если симметрия спаривания не изменяется при установлении ВСП [36], сценарии [35, 36] неприменимы к случаю  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ .

В другом подходе [113] рассматривается случай пространственно-неоднородного параметра порядка ВСП, когда доменные стенки разделяют соседние области с разным знаком параметра порядка. В таких доменных стенках возможно установление сверхпроводимости, а критическое поле возрастает за счет малой толщины доменных стенок. В рамках этого подхода также предполагается пространственная анизотропия текстуры СП фазы, поскольку доменные стенки образуются перпендикулярно оси  $\mathbf{a}$ . Последнее поддерживается недавними измерениями анизотропии транспорта в области сосуществования ВСП и СП в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [42]. Анизотропия сопротивления и усиления критического поля, которые наблюдаются нами в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , также согласуются со сценарием образования доменных стенок, однако для подтверждения его справедливости требуются дополнительные измерения.

### 5.3 Выводы

При помощи транспортных измерений и вариации степени анионного упорядочения в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  мы изучили внутреннюю структуру двухфазного состояния, в котором

волна спиновой плотности сосуществует либо со сверхпроводимостью (при  $T < T_c$ ), либо с металлической фазой (при  $T > T_c$ ). Гистерезис на температурных зависимостях межслоевого сопротивления указывает на фазовый переход первого рода между металлом и волной спиновой плотности. Мы обнаружили, что металлическая/сверхпроводящая фаза, которая образуется при пересечении этой границы, имеет сильную пространственную анизотропию. При сильных беспорядках она сохраняется в виде областей, вытянутых преимущественно в межслоевом направлении ( $c$ ), тогда как вдоль оси  $a$  сохраняется поведение изолятора присущее волне спиновой плотности. Критическое поле в таких областях усилено по сравнению с однородным сверхпроводящим состоянием, что указывает на сокращение размеров сверхпроводящих областей по мере стабилизации волны спиновой плотности при увеличении беспорядка. В то же время, АМРО измерения в полях выше  $H_{c2}$  показывают, что в металлических/сверхпроводящих областях анионы  $\text{ClO}_4$  по большей части не упорядочены, а димеризационная щель  $V$  – меньше, чем в анион-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 сосуществование волны спиновой плотности и сверхпроводимости в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  управляется димеризационной щелью  $V$  (подобно роли  $t'_b$  в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ), а не структурными неоднородностями, возникающими при упорядочении анионов. Это позволяет объединить картины сосуществования волны спиновой плотности и сверхпроводимости в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  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.

# Глава 6

## Пространственная структура сверхпроводящей фазы в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

### 6.1 Введение

Сосуществование волны спиновой плотности и сверхпроводимости в узком диапазоне давлений на  $T-P$  фазовой диаграмме детально изучалось в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ . Как было подробно описано в разделе 2.4, в этой области фазовой диаграммы фазы СП и ВСП разделены в реальном пространстве. Такого рода расслоение фаз можно представить как результат конкуренции между затратами на упругую деформацию и выигрышем от образования ВСП вблизи фазового перехода первого рода[28, 29, 30]. Эта трактовка находится в согласии с транспортными измерениями, которые указывают на макроскопические размеры металлических(СП) областей[28, 30]. Результаты ЯМР-измерений, напротив, расходятся с такой простой картиной[31, 30]. К тому же, поведение СП критического поля независимо указывает на малые размеры СП доменов[32]. Очевидно, изучение пространственной структуры такого двухфазного состояния могло бы разрешить кажущуюся противоречи-

вость экспериментальных данных.

Для объяснения экспериментов в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  был выдвинут ряд теорий, которые описывают сосуществование фаз металла(СП) и ВСП в Q1D системах. Никакой специальной пространственной структуры двухфазного состояния не предполагается в рамках таких подходов как  $\text{SO}(4)$  симметрия[39] или формирование антинестинговых электрон-дырочных карманов в ВСП[36]. В ряде других теорий пространственная структура вводилась либо исходя из выигрыша в энергии СП фазы[32], взаимной модуляции параметров порядка СП и ВСП[35] или вариации параметра порядка ВСП в солитонной фазе (СФ)[41, 115, 113]. Аргументация теорий [32, 35], однако, неприменима к расслоению металл/ВСП при температурах выше СП перехода.

В то же время, в рамках теории СФ предполагается, что параметр порядка ВСП может стать неоднородным, с образованием металлических(СП) доменных стенок перпендикулярных оси  $\mathbf{a}$ . Такой сценарий[41] согласуется с недавними измерениями анизотропии транспорта в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [42], в которых, однако, наблюдалось необычное явление, когда СП области возникают на фоне ВСП в виде столбиков вдоль оси  $\mathbf{c}$ . Тогда как эти наблюдения способны разрешить противоречия между результатами транспортных и ЯМР измерений, природа собственно фазового расслоения и его анизотропии по-прежнему остаются неясными.

Возникновение металлической(СП) фазы при подавлении ВСП напрямую связано с созданием свободных носителей за счет нарушения нестинга. В экспериментах с  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  давление не только ухудшает нестинг, но и изменяет параметры кристаллической решетки. Эта связь не позволяет разделить влияние изменения в целом числа свободных носителей от особенностей деформации решетки и соответствующих вкладов различных интегралов перескока. Следовательно, для разрешения этой проблемы необходимо изучить эволюцию свойств СП/ВСП фаз при фиксированном давлении, изменяя при этом какой-то другой внешний параметр для управления нестингом. Как нами было показано в предыдущей главе, такая возможность существует в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В этом соеди-

нении фазы СП и ВСП сосуществуют при нормальном давлении, а внешним параметром является анионный беспорядок[26] (см. также главу 5). Роль последнего сводится к вариации расщепления ПФ и, как результат, управлению идеальностью нестинга[73, 74](см. также главу 5).

## 6.2 Идея эксперимента

Данная глава посвящена изучению эволюции пространственной текстуры СП фазы, сосуществующей с фазой ВСП, в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ , когда меняется лишь один зонный параметр – димеризационная щель  $V$ . При помощи подстройки значения  $V$  мы переводим систему через фазовую границу металл(СП)/ВСП на диаграмме  $T - V$ . Конечной целью является наблюдение того, как СП состояние с нулевым сопротивлением возникает в реальном пространстве на фоне состояния ВСП-изолятора. Следовательно, наиболее разумно приготовить образцы в состоянии однородной ВСП, т.е. максимально воспрепятствовать упорядочению анионов. Этого можно достичь быстрым охлаждением образцов от некоторой температуры  $T_Q > T_{AO}$  выше структурного перехода. Больших степеней упорядочения анионов можно добиться более медленным охлаждением, однако такой подход потребовал бы точного определения величины получаемого беспорядка. Вместо этого в данном эксперименте использовался отжиг образцов при некоторой температуре ниже  $T_{AO}$ , который также приводит к постепенному упорядочению анионов. В этом случае нам однозначно известно, что каждый последующий беспорядок будет слабее. Более того, использование отжига позволяет избежать изменения каких-либо других свойств образца кроме степени упорядочения после того, как был создан начальный беспорядок. Напротив, последовательные охлаждения с большими скоростями могут приводить к неконтролируемым изменениям состояния образца, например, к созданию дефектов. Подробности процедуры приведены в разделе 3.6.

Отдельно стоит остановиться на роли анион-упорядоченных включений. Хотя мы и не

можем полностью исключить эти неоднородности, их количеством можно управлять изменением параметров охлаждения (см. раздел 3.6). Для изучения роли анион-упорядоченных включений в текстуре двухфазного состояния ниже будут представлены данные, полученные при различных параметрах охлаждения.

Для извлечения пространственной текстуры будет измеряться анизотропия сопротивления в двухфазном состоянии. В данном эксперименте образцы подготовлены таким образом, чтобы на каждом из них можно было измерять сразу две компоненты сопротивления (см. Рис. 6.1). Такие измерения для набора беспорядков, от сильных до слабых, позволят нам напрямую определить анизотропию пространственной текстуры в двух плоскостях из трех. Для получения данных об анизотропии в третьей плоскости мы одновременно охлаждали два образца. Это позволяет получить близкие начальные условия и просто сравнить результаты. Для подкрепления этих данных мы измерили СП критические поля,  $H_{c2}$ . Они также дают независимую информацию о пространственной текстуре[32].

Для проведения измерений были выбраны следующие пары сопротивлений:  $R_{xx}-R_{zz}$  и  $R_{xx}-R_{yy}$ , как показано на Рис. 6.1. Они были реализованы на различных образцах, чтобы избежать шунтирования сопротивлений контактными площадками. Компоненты сопротивления в одном образце измерялись по очереди.

Определенные таким способом сопротивления не соответствуют в точности значениям удельных сопротивлений  $\rho_{ii}$  в объеме по причине неоднородного растекания тока. Наиболее серьезно эта проблема проявляется в измерениях  $R_{xx}$  в образце  $xx-zz$  (см. Рис. 6.1). Действительно, по причине большой анизотропии сопротивлений ток лишь частично затекает в объем, что приводит к подмешиванию компоненты  $\rho_{zz}$ . Напротив, в образце  $xx-yy$  эта компонента шунтирована контактными площадками (см. Рис. 6.1). Сравнение  $R_{xx}$  измеренных на этих двух образцах позволяет нам разделить особенности характерные для  $\rho_{xx}$  от присущих  $\rho_{zz}$ . Как будет показано ниже, подмешивание  $\rho_{zz}$  не оказывает заметного влияния на результаты наших наблюдений.

Измерения проводились на шести монокристаллах из двух партий. Все они демон-

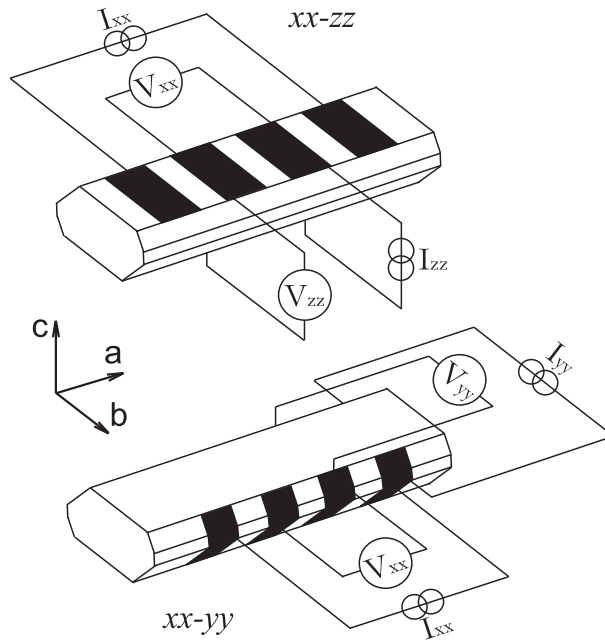


Рис. 6.1: Две измерительные конфигурации, используемые в данном эксперименте:  $xx-zz$  (вверху) и  $xx-yu$  (внизу). Черными прямоугольниками схематически обозначены контактные площадки.

стрировали качественно похожее поведение. Ниже мы приводим результаты для образцов, выколотых из трех различных кристаллов. Данные для каждого из трех кристаллов представлены на рисунках 6.2-6.4. Мы также приводим данные для различных скоростей охлаждения (QR), чтобы убедиться, что анион-упорядоченные включения не меняют наблюдаемой анизотропии.

## 6.3 Результаты

### 6.3.1 Анизотропия в плоскости $a - c$

Набор температурных зависимостей сопротивлений  $R_{xx}$  и  $R_{zz}$ , измеренных на одном и том же образце при различных беспорядках представлен на Рис. 6.2. Этот набор охватывает всю СП/ВСП фазовую диаграмму (Рис. 6.2а): температурные зависимости  $R_{xx}(T)$  постепенно изменяют характер от поведения типа изолятора, к металлическому и затем



сверхпроводящему. При сильных беспорядках (#6-10) наблюдается переход в фазу ВСП, за которым следует температурная зависимость типа изолятора, характерная для щелевого состояния ВСП. Эта зависимость не является активационной, что указывает на возможное наличие металлических включений. Тем не менее, их доля очевидно мала, ниже порога перколяции, поскольку при низких температурах не наблюдается загиба на зависимости  $R(T)$  (указывающего на СП переход), кроме излома вблизи  $T \approx 1$  К, где наклон  $R_{xx}(T)$  становится меньше. Удивительно, но для тех же самых беспорядков (#6-10)  $R_{zz}(T)$  демонстрирует законченный СП переход с  $T_c \approx 1$  К (см. Рис. 6.2б). Более того, ВСП-переход, который наблюдался в  $R_{xx}(T)$ , совпадает с резким ростом сопротивления на  $R_{zz}(T)$  при высоких температурах, однако ниже  $T_{SDW}$  в отличие от  $R_{xx}(T)$  сопротивление уменьшается (#6-10).

Эти наблюдения демонстрируют, что при сильных беспорядках образец состоит из металлических(СП) областей, существующих на фоне ВСП изолятора. Тогда как в межслоевом направлении они образуют протяженные СП пути, внутри слоев они отделены друг от друга. Изменение наклона  $R_{xx}(T)$  ниже 1 К наблюдается во всех измеренных образцах и однозначно связано с СП переходом. Действительно, можно ожидать, что возникающая внутри металлических областей сверхпроводимость улучшает шунтирование ВСП-изолятора при низких температурах за счет возникновения джозефсоновских связей между соседними областями.

Основной эффект изменения анионного беспорядка в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  состоит в вариации расщепления зон  $V$ , т.е. отклонения от идеального нестинга, как обсуждалось нами ранее. Следовательно, можно ожидать, что по мере ослабления беспорядка прирост числа свободных носителей приведет к увеличению доли металла(СП). Такое поведение действительно наблюдалось в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  при приближении к критической точке ВСП[28].

В согласии с этим предположением, сверхпроводимость возникает на зависимости  $R_{xx}(T)$  плавно по мере ослабления беспорядка (#5-1), подобно поведению, наблюдаемому в гранулярных сверхпроводниках[133]. Более детальный анализ действительно показыва-

ет признаки перколяционного перехода. При ослаблении беспорядка на фоне зависимости  $R_{xx}(T)$  типа изолятора появляется провал вблизи примерно 1 К (кривая #5). Такое поведение указывает на увеличение доли металла(СП), которая однако по-прежнему меньше порога перколяции. При меньших беспорядках (#4-3) провал сопровождается уже металлической температурной зависимостью, что предполагает возникновение СП путей вдоль оси **a**. Действительно, и металлическое поведение и провал исчезают в магнитном поле (см. Рис. 6.2a), что однозначно говорит об их сверхпроводящей природе.

По мере ослабления беспорядка температура, при которой начинается СП переход, остается почти неизменной,  $T_c \sim 1$  К, тогда как сопротивление постепенно уменьшается (# 2-3), пока  $R_{xx}$  не обращается в ноль вдоль обеих осей, **a** и **c** (#1). Последнего результата и следовало ожидать, поскольку  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  является однородным сверхпроводником[94]. Отметим также, что поведение  $T_c$  и  $R(T)$  напоминает плавное развитие перколяционного перехода в гранулярных сверхпроводниках [133].

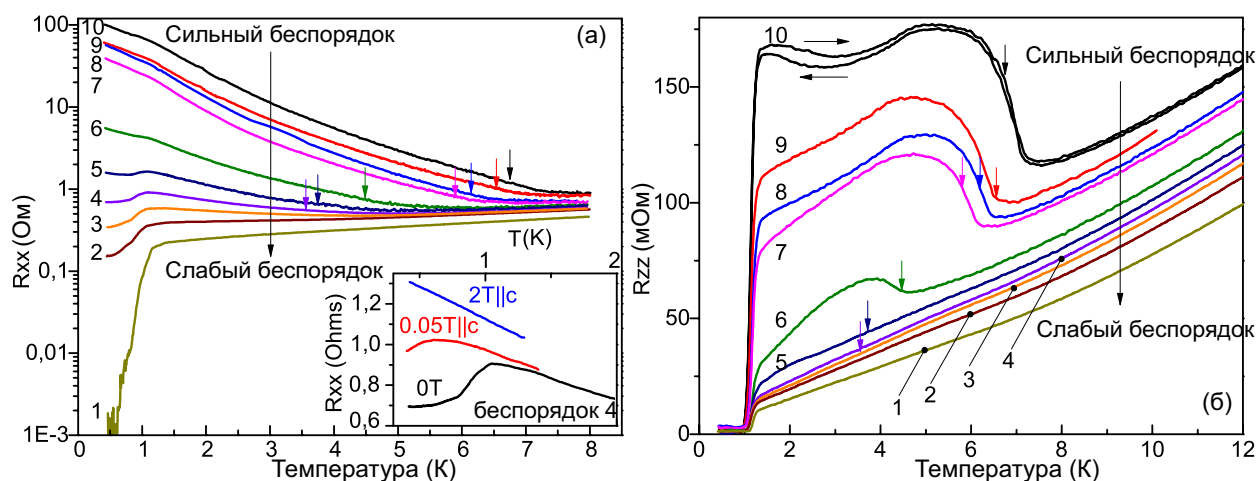


Рис. 6.2: Температурная зависимость (а) внутрислоевого,  $R_{xx}$ , и (б) межслоевого,  $R_{zz}$ , сопротивления для набора беспорядков. Образец охлаждался со скоростью примерно 100 К/мин от  $T_Q = 27$  К. Стрелки на графике (а) и (б) указывают на температуру ВСП перехода,  $T_{SDW}$ , которая определялась как пик в производной  $d \ln R_{xx} / d(1/T)$ . Вставка к графику (а) демонстрирует влияние магнитного поля  $H||c$  на зависимости  $R_{xx}(T)$  для одного из беспорядков (#4).

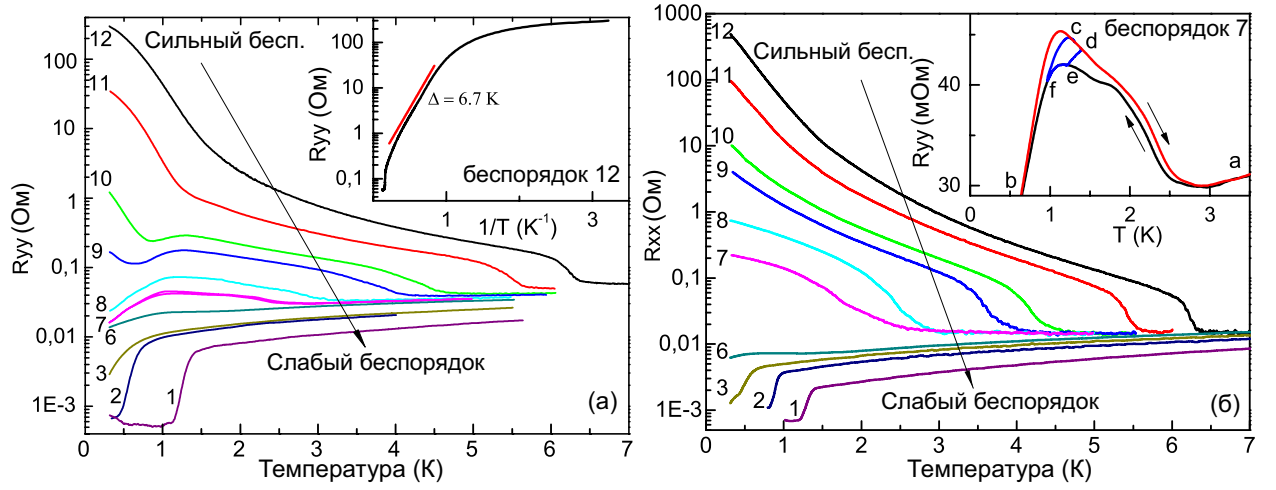


Рис. 6.3: Температурные зависимости внутрислоевого (а)  $R_{xx}$  и (б)  $R_{yy}$  сопротивления для набора беспорядков. Образец охлаждался со скоростью примерно 600 К/мин от  $T_Q = 30$  К. На вставке к графику (а) приведена в Аррениусовских координатах зависимость  $R_{yy}(T)$  для самого сильного беспорядка. Вставка к графику (б) демонстрирует гистерезис на зависимости  $R_{yy}(T)$  для беспорядка #7. Приведены две траектории разворота температуры: (а-е-f-b-c-d-а), включающая в себя  $T_{SDW} \approx 2$  К, и (с-d-e-f-с), полностью лежащая при  $T < T_{SDW}$ .

### 6.3.2 Анизотропия в плоскости а – b

. Рисунок 6.3 демонстрирует эволюцию температурных зависимостей внутрислоевых сопротивлений  $R_{xx}$  и  $R_{yy}$ . В сильных беспорядках наблюдается резкий переход в ВСП фазу, а температурная зависимость сопротивления близка к активационной, по крайней мере при температурах выше  $T \approx 1$  К (см. вставку на Рис. 6.3а). Ниже 1 К наклон  $R_{yy}(T)$  уменьшается. В слабых магнитных полях порядка ожидаемого  $H_{c2} \sim 0.1$  Т эта особенность исчезает. Следовательно, мы приписываем замедление роста  $R_{yy}(T)$  шунтированию, вызванному присутствием малого числа металлических(СП) областей, по аналогии с аргументацией, приведенной выше для образца  $xx - zz$ . В случае последнего данный эффект проявляется гораздо сильнее (см. например #10 in Fig. 6.2а), что говорит о большей доле металлических(СП) областей. Такое различие связано с меньшей скоростью охлаждения (QR) вблизи  $T_{AO}$ , о чем пойдет речь ниже.

В сильных беспорядках обе компоненты сопротивления демонстрируют качественно

похожие зависимости (кривые #12 на Рис. 6.3а, б). Однако при несколько более слабых беспорядках (#10-7) зависимость  $R_{yy}(T)$  становится немонотонной; при температурах ниже 1 К на фоне зависимости типа изолятора сначала появляется провал (#10-9), а затем характер меняется на металлический (#8-7). При тех же самых беспорядках зависимости  $R_{xx}(T)$  остаются монотонными с поведением типа изолятора. Наблюдаемые на  $R_{yy}(T)$  немонотонности связаны с появлением сверхпроводимости, подобно описанному выше случаю образца  $xx - zz$ . При дальнейшем понижении беспорядка (#6-3) металлический ход температурной зависимости ниже 1 К появляется и в  $R_{xx}(T)$ , пока, наконец, обе компоненты сопротивления не демонстрируют законченный сверхпроводящий переход (#2-1), чего и следует ожидать в анион-упорядоченном случае.

Таким образом, приведенные на рисунках 6.2 и 6.3 результаты наглядно демонстрируют, что сверхпроводящие области возникают перпендикулярно к оси **a** молекулярных цепочек.

### 6.3.3 Гистерезис

Одной из наиболее примечательных особенностей в области сосуществования металла(СП) и ВСП является гистерезис, который наблюдается на температурных зависимостях сопротивления между кривыми нагрева и охлаждения (см. #10 на Рис. 6.2б и #7 на вставке к Рис. 6.3б). При нагреве образца из низкотемпературного СП состояния сопротивление оказывается больше, чем при охлаждении из высокотемпературного металлического состояния. Более того, гистерезис исчезает только вблизи ВСП перехода. Это стационарный эффект, который не зависит от скорости разворота температуры. Гистерезис наблюдается только когда на зависимости  $R(T)$  есть область изолятора (т.е. в образце присутствует ВСП-фаза). Когда  $R(T)$  имеет металлический характер, кривые нагрева и охлаждения совпадают в пределах точности наших измерений (см. например кривые #3-1 на Рис. 6.3а). Такое поведение ясно указывает на эффекты предыстории в пространственном распределении двухфазного состояния, к обсуждению которого мы вернемся в следующем разделе.

### 6.3.4 Влияние скорости охлаждения

Несмотря на то, что максимальное значение  $T_{SDW}$  почти совпадает в образцах  $xx - zz$  и  $xx - yy$ , заметные различия в поведении  $R_{xx}(T)$  сильно затрудняют их прямое сравнение. Например, провал на зависимости  $R_{xx}(T)$ , который наблюдается на кривой #5 на Рис. 6.2а в образце  $xx - zz$ , отсутствует вообще на кривой #10 на Рис. 6.3 в образце  $xx - yy$  с почти такой же температурой ВСП-перехода. Этот факт позволяет говорить о том, что в первом случае доля металлической(СП) фазы больше, как обсуждалось ранее для случая  $xx - zz$ . Это не позволяет нам выяснить анизотропию пространственной текстуры сверхпроводящей фазы в плоскости **b** – **c**. Единственный параметр по которому различаются эти два образца – это скорость охлаждения вблизи  $T_{AO}$ , которая была ниже в случае  $xx - zz$ . Поскольку доля металлической фазы меньше при больших скоростях охлаждения, наиболее просто разницу в установлении сверхпроводимости можно наблюдать в образцах, которые охлаждались быстро и с одинаковой скоростью.

### 6.3.5 Анизотропия в плоскости **b** – **c**

Для того чтобы выяснить анизотропию СП фазы в плоскости **b** – **c** мы раскололи кристалл перпендикулярно оси **a** и на двух получившихся частях изготовили контакты для измерения сопротивлений  $R_{yy}$  и  $R_{zz}$  соответственно. Полученные образцы измерялись одновременно. Они были несколько раз охлаждены со скоростями до 600 К/мин вблизи  $T_{AO}$  для достижения одинаковых условий. Результаты одновременного измерения зависимостей  $R_{yy}(T)$  и  $R_{zz}(T)$  представлены на Рис. 6.4. Резкий ВСП-переход и выраженный активационный характер температурных зависимостей свидетельствуют о малом количестве анион-упорядоченной фазы (см. также раздел “Обсуждение”). Уже в сильных беспорядках кривые  $R_{yy}$  и  $R_{zz}$  заметно отличаются, хотя и доля анион-упорядоченных включений и димеризационная щель – малы. Действительно, тогда как зависимость  $R_{yy}(T)$  отклоняется от активационной только вблизи СП перехода,  $R_{zz}(T)$  отличается от нее во всем

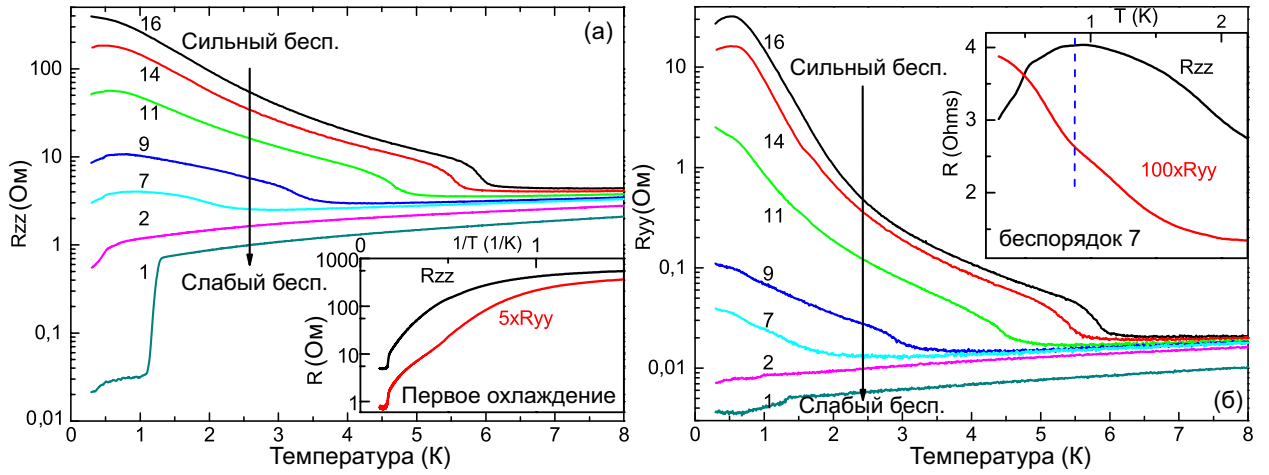


Рис. 6.4: Температурные зависимости (а) межслоевого  $R_{zz}$  и (б) внутрислоевого  $R_{yy}$  сопротивления для набора беспорядков измеренные на двух частях одного кристалла. Образцы охлаждались вместе несколько раз со скоростью примерно 600 К/мин от  $T_Q = 40$  К. Загиб на зависимости  $R_{yy}(T)$  для кривых #15-16 отсутствовал при первом охлаждении (см. вставку к графику (а)) и появился после нескольких быстрых охлаждений, и, следовательно, может быть артефактом. Действительно, он также исчезает при меньших беспорядках. Вставка на графике (а) демонстрирует зависимости, полученные при первом быстром охлаждении образцов со скоростью  $\approx 600$  К/мин. На вставке к графику (б) показано поведение  $R_{yy}$  и  $R_{zz}$  на одном и том же кристалле при промежуточных беспорядках. Пунктирная линия показывает начало сверхпроводящего перехода в  $R_{zz}$  и соответствующий перегиб в  $R_{yy}$ .

диапазоне температур ниже  $T_{SDW}$ , что указывает на значительное шунтирование металлической фазой в межслоевом направлении.

При промежуточных беспорядках поведение кривых  $R_{yy}(T)$  и  $R_{zz}(T)$  заметно отличается вблизи температуры СП-перехода (см. вставку на Рис. 6.4б). Межслоевое сопротивление  $R_{zz}(T)$  демонстрирует металлический характер температурной зависимости, связанный с установлением сверхпроводимости (см. также Рис. 6.2а). Внутрислоевое  $R_{yy}(T)$  сопротивление напротив сохраняет поведение типа изолятора с небольшим перегибом зависимости вблизи  $T_c$ . Похожая особенность, которая при более слабых беспорядках превращалась в провал, наблюдалась также на зависимости  $R_{yy}(T)$  в образце  $xx - yy$  (см. #11-9 на Рис. 6.3а) и указывает на формирование протяженных СП путей вдоль оси  $\mathbf{b}$ . Таким образом, описанные выше результаты демонстрируют, что СП области возника-

ют/увеличиваются сначала в направлении оси  $\mathbf{c}$ .

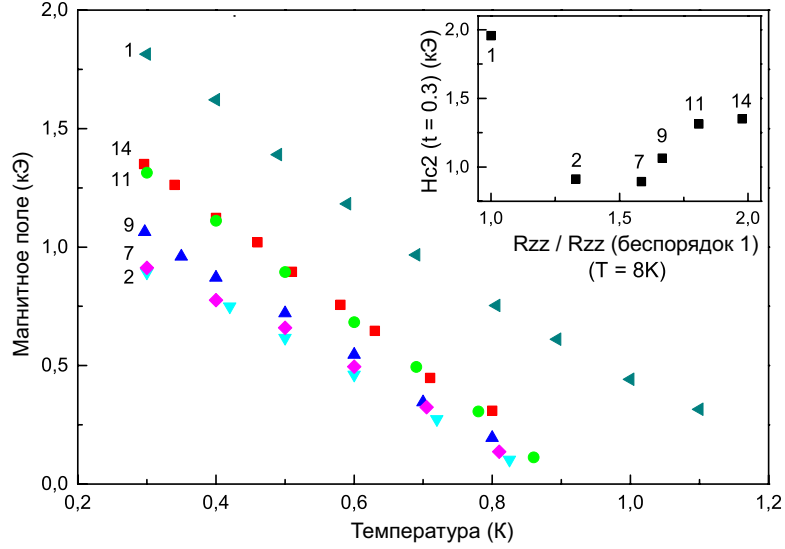


Рис. 6.5: Температурные зависимости критического поля  $H_{c2}||\mathbf{c}^*$  для набора беспорядков с Рис. 6.4.  $H_{c2}$  определялось по началу (99%) резистивного  $R_{zz}(H)$  перехода. На вставке приведено поведение критического поля  $H_{c2}$  при нормированной температуре  $T/T_c = 0.3$ . Различные беспорядки на горизонтальной оси характеризуются по отношению сопротивления  $R_{zz}(T = 8\text{ K})$  к нему же в релаксированном состоянии.

### 6.3.6 Поведение критического поля в области сосуществования СП/ВСП

. Независимым инструментом исследования эволюции внутрислойной текстуры СП фазы является критическое поле  $H_{c2}||\mathbf{c}^*$ . Само поле и наклон  $dH_{c2}/dT$  в этой ориентации пропорциональны длинам когерентности  $\xi_x \xi_y$ . В пределе СП областей с малыми размерами,  $d_i \leq \xi_i$ , вместо длины когерентности  $\xi_i$  критическое поле будет определять этот самый размер  $d_i$ . Такая замена справедлива по крайней мере в сильных беспорядках.

Поскольку ранее мы установили, что СП области возникают изначально перпендикулярно оси  $\mathbf{a}$ , мы считаем что размер  $d_y$  по мере ослабления беспорядка увеличивается гораздо быстрее, чем  $d_x$ . Следовательно, изменение критического поля с беспорядком (в сильных беспорядках) можно связать с изменением размеров  $d_y$  СП доменов преимуще-

ственно вдоль оси **b** .

В сильных беспорядках СП переход не заканчивается в доступном нам диапазоне температур, а лишь только начало перехода отражается в загибе вниз зависимости  $R_{zz}(T)$  (см. например Рис. 6.4а). В качестве индикатора подавления сверхпроводимости мы используем исчезновение этого загиба в магнитном поле и таким способом получаем  $H_{c2}$ . Зависимости  $H_{c2}(T)$  приведены на рисунке 6.5. Из рисунка видно, что и наклон  $dH_{c2}/dT$  и поле  $H_{c2}$  при низких температурах практически не меняются в сильных беспорядках #11-14 (см. вставку на Рис. 6.5). Этот результат говорит о том, что в сильных беспорядках #11-14 СП области практически не растут в плоскости **a** – **b**. Напротив, в направлении оси **c** наблюдается рост СП областей, как следует из появления загиба ниже 1 К в  $R_{zz}(T)$  на фоне температурной зависимости типа изолятора при переходе от беспорядка #16 (без загиба) к #14 (см. Рис. 6.4а).

В более слабых беспорядках (#9-7) критическое поле уменьшается, что указывает на рост  $d_y$ . Этот результат также согласуется с появлением перегиба на зависимости  $R_{yy}(T)$  вблизи  $T_c$  (см. вставку к Рис. 6.4б). При дальнейшем ослаблении беспорядка низкотемпературное значение  $H_{c2}$  постепенно насыщается (беспорядки #7-2 на вставке к Рис. 6.5), чего следует ожидать при  $d_y > \xi_y$ . Итак, на основании описанных выше результатов можно утверждать, что по мере ослабления беспорядка сверхпроводящие области растут изначально в межслоевом направлении, а потом, при промежуточных беспорядках, начинают расти вдоль оси **b** .

Интересно отметить, что в релаксированном состоянии  $H_{c2}$  снова возрастает (см. #1 на Рис. 6.5). Этот эффект, очевидно, никак не связан с размерами СП областей, поскольку упорядоченное состояние считается однородным сверхпроводником[94]. Подобное поведение наблюдалось также в слабых беспорядках в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  [95] и в  $(\text{TMTSF})_2(\text{ClO}_4)_{1-x}(\text{ReO}_4)_x$ [93]. Это необычная особенность связана, по-видимому, с возможным изменением свойств СП состояния (см. например [36]).



## 6.4 Обсуждение результатов

На основе описанных выше измерений анизотропии транспорта и поведения критического поля мы можем заключить, что (i) пространственная текстура металлической(СП) фазы возникающей на фоне состояния ВСП изменяется от сильно анизотропной к почти изотропной и (ii) ее относительная доля зависит от предыстории. В этом разделе мы обсудим оба этих результата в рамках двух конкурирующих подходов. Один из них – это установление солитонной фазы[40, 41], в которой пространственная анизотропия является встроенной. Другой подход основан на сценарии фазового расслоения[28, 30] в анизотропной решетке. Но вначале мы остановимся подробнее на вопросе о том, может ли присутствие анион-упорядоченных включений быть ответственным за наблюдаемую в эксперименте анизотропию.

### 6.4.1 Роль анион-упорядоченных включений

Мы не проводили отдельных исследований для определения доли анион-упорядоченных (АО) областей (где выгодная металлическая(СП) фаза), поэтому для оценок мы воспользуемся доступными в литературе результатами. Так, эксперименты по рентгеновской дифракции[52] показали, что при скорости охлаждения (QR) порядка 100 К/мин доля упорядоченной фазы составляет примерно 20% и представлена маленькими областями с размерами  $l_x = 30$ ,  $l_y = 60$  и  $l_z = 50$  нм вдоль осей **a**, **b** и **c** соответственно. По мере ослабления беспорядка количество АО областей увеличивается, тогда как их размеры практически не изменяются. Учитывая что размеры  $l_y$  и  $l_z$  этих включений почти одинаковы, можно утверждать, что доля в 20% гораздо ниже перколяционного порога круглых областей в плоскости **b – c**. Более того, если СП переход являлся бы следствием перколяции в этой плоскости, то он был бы почти изотропен, что противоречит нашим наблюдениям. Наконец, такого рода переход не может объяснить гистерезиса на зависимости  $R(T)$ .

С другой стороны, большее число АО включений, получаемое при меньших скоростях

охлаждения (QR), очевидно увеличивает долю металлической(СП) фазы, но при этом не изменяет в целом анизотропии пространственной текстуры. Действительно, в этом случае мы наблюдаем заметные различия в поведении  $R_{zz}(T)$ : в быстро охлажденных образцах ( $\sim 600$  К/мин вблизи  $T_{AO}$ ) характер зависимости вдоль оси  $\mathbf{c}$  соответствует изолятору (например, #16 на Рис. 6.4а), тогда как при меньших скоростях охлаждения ( $\sim 100$  К/мин) он имеет признаки металлического поведения (#9 на Рис. 6.2б). Простое объяснение такого поведения состоит в том, что АО включения могут играть роль мостиков между возникающими по мере подавления ВСП областями металла(СП). Поскольку АО включения почти изотропны[52], они не влияют на анизотропию пространственной текстуры в целом. Более детальное объяснение может быть дано по аналогии с ролью беспорядка вблизи фазового перехода первого рода в манганитах[137]. Действительно, когда граница между фазами имеет очень большой наклон  $dT_{SDW}/dV$ , то даже очень малые локальные изменения расщепления зон  $V$  приводят к фазовому переходу. Роль таких локальных возмущений могут играть АО включения и области вокруг них, в которых величина  $V$  заметно отличается от изолирующего окружения.

#### 6.4.2 Нестинг в $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$

. Поскольку анионное упорядочение не может объяснить ни анизотропию, ни гистерезис, можно утверждать, что наблюдаемое в эксперименте двухфазное состояние тесно связано со свойствами ВСП. Как уже отмечалось ранее, за подавление ВСП и создание свободных носителей в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  отвечают два параметра:  $t'_b$ , который управляется давлением, и  $V$ , меняющийся при вариации беспорядка. По своей природе роль параметра  $V$  принципиально отличается от простого изменения степени гофрирования поверхности Ферми под давлением (см. также обзор [22]). Расщепление зон возникает за счет перераспределения заряда между двумя соседними молекулярными цепочками в плоскости  $\mathbf{a} - \mathbf{b}$  за счет смещения анионов  $\text{ClO}_4^-$ [52, 130, 138] относительно молекул TMTSF. Следовательно, его влияние близко по природе к легированию, но вместо изменения числа носителей в фик-

сированной зонной структуре анионное упорядочение сдвигает зоны относительно друг друга при фиксированном химическом потенциале. Этот эффект похож на “физическое легирование” в слоистых купратах, где при приложении электрического поля электроны перераспределяются между соседними слоями[139].

По мере того как отклонения от идеального нестинга увеличиваются, непрямая щель  $\Delta_0 - \epsilon(\mathbf{k}_\perp)$  может стать отрицательной, то есть дно зоны проводимости в центре зоны Бриллюэна может оказаться ниже потолка зоны валентности на ее краю[116]. В этом случае либо возникают электрон-дырочные карманы на фоне закрытой щелью поверхности Ферми, либо избыточные носители могут быть захвачены в солитонные состояния внутри щели, что приводит к пространственной модуляции параметра порядка ВСП[116, 40]. В случае первого сценария расслоение фаз может возникать при условии зависимости энергии ВСП от деформации[30], тогда как во втором случае имеется встроенная пространственная текстура, связанная с упорядочением солитонов.

### 6.4.3 Солитонная фаза

Затраты энергии на создание одиночного солитона на молекулярной цепочке фиксированы и зависят только от прямой щели ВСП,  $2\Delta_0/\pi$ . Упорядочение одиночных солитонов в стенку позволяет добиться двойного заполнения уровней (по спине) и выигрыша в кинетической энергии за счет частичной делокализации. В результате, солитонная зона оказывается в среднем заполнена на половину[40]. Кинетическая энергия, очевидно, выше в случае длинных стенок и больших интегралов перескока в направлении стенки. Следовательно, солитонная фаза оказывается выгодной, если плотность свободных носителей, т.е. длина стенки становится настолько большой, что выигрыш по энергии превосходит стоимость создания солитонов[116, 40]. Как было показано в работе [41], в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  это должно происходить раньше, чем образуется полуметаллическое состояние.

В трехмерном случае солитонные стенки могут возникать либо вдоль осей  $\mathbf{b}$  или  $\mathbf{c}$ , либо в виде двумерных листов в плоскости  $\mathbf{b} - \mathbf{c}$ . Выигрыш в кинетической энергии

максимален для 2D листов, тогда как 1D стенки вдоль оси  $\mathbf{c}$  наименее выгодны с этой точки зрения из-за малого интеграла перескока в этом направлении. Очевидно, что данная аргументация противоречит представленным в данной работе результатам.

В этом контексте случай  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  особенно интересен, поскольку анизотропия не является результатом взаимной игры между зонными параметрами. Единственная величина, которая изменяется с ростом зонного расщепления  $V$  – это число свободных носителей в результате роста неидеальности нестинга. В эксперименте мы обнаружили, что металлические(СП) домены формируются изначально в направлении оси  $\mathbf{c}$ , а затем растут/сливаются в листы в плоскости  $\mathbf{b} - \mathbf{c}$ .

Основным вопросом тогда является то, почему солитонные стенки возникают вначале вдоль оси  $\mathbf{c}$ , а не вдоль  $\mathbf{b}$ ? Для ответа на этот вопрос необходимо сравнить взаимодействие между солитонами внутри одной молекулярной цепочки для этих двух конфигураций стенок. Затраты энергии быстро возрастают (по-началу, экспоненциально) по мере того, как расстояние между солитонами, находящимися на одной и той же молекулярной цепочке уменьшается[40], то есть число солитонных стенок увеличивается. Выигрыш в энергии, напротив, увеличивается линейно с ростом числа стенок. Следовательно, создание длинных стенок является наиболее выгодным, но при этом их длина ограничена максимально допустимой шириной солитонной зоны, которая не должна превышать прямую щель ВСП. Именно в этом аспекте и лежат различия между солитонными стенками вдоль осей  $\mathbf{b}$  и  $\mathbf{c}$ . В случае 1D стенок плотность состояний в зоне возрастает с увеличением расстояния между солитонами в стенке и, следовательно, в направлении оси  $\mathbf{c}$  оказывается больше. Следовательно, при одинаковой ширине солитонной зоны число солитонов входящих в стенку вдоль оси  $\mathbf{c}$  окажется большим, чем в стенке вдоль оси  $\mathbf{b}$ . По этой причине во втором случае количество стенок и, следовательно, взаимодействие между ними, окажется большим, что сделает упорядочение солитонов вдоль оси  $\mathbf{b}$  менее выгодным. Следует отметить, что солитонные стенки теоретически не обязаны быть строго одномерными, но при этом их длина вдоль оси  $\mathbf{c}$  должна быть значительно больше, чем вдоль  $\mathbf{b}$ .

Описанный выше сценарий несколько отличается от рассмотренного теоретически в работе [40], где выигрыш энергии в солитонной фазе вычислялся в пределе малой ширины солитонной зоны, то есть в пределе малого числа стенок. В эксперименте же у нас есть возможность определить пространственную анизотропию металлической(СП) фазы только когда ВСП почти подавлена и  $\epsilon$  велико[64]. В этом случае и ширина солитонной зоны и количество стенок должно быть велико, а, значит, и взаимодействие между ними будет играть значительную роль.

Полученный нами результат о том, что образование солитонных стенок оказывается более выгодным в направлении оси  $c$ , справедлив в общем для сильно-анизотропных систем с  $t_b \gg t_c$ , и должен быть применим также к  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и другим солям Бечгаарда.

#### 6.4.4 Фазовое расслоение

Еще одним из способов размещения избыточных свободных носителей, возникающих по мере подавления ВСП, является создание неоднородных деформаций решетки, которые (в случае постоянного объема образца) приведут к появлению разделенных в пространстве областей металла (сжатые) и ВСП (растянутые). Их размеры будут определяться взаимной игрой между упругой энергией и энергией ВСП. Если в рамках такого сценария учесть анизотропию решетки, то это может, в принципе, объяснить возникновение некой пространственной текстуры в образце.

Основная причина, по которой пространственная сегрегация становится выгодной, была предложена в работе[30] из общих термодинамических соображений: если выигрыш в энергии от образования ВСП зависит от упругой деформации  $\delta x$ , то трикритическая точка и фазовый переход первого рода возникают за счет резкого возрастания производной  $\partial T_{SDW}/\partial x$  вблизи критической точки ВСП. В случае  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  мы можем отслеживать эволюцию пространственной текстуры при фиксированных  $b, c$  и  $t_b, t_c$ , по мере того как мы приближаемся к критической точке и увеличиваем производную  $\partial T_{SDW}/\partial x$  за счет подстройки расщепления зон  $V$  вариацией беспорядка.

Одноосное сжатие вдоль оси  $\mathbf{c}$  несет в себе наименьшие затраты по энергии, однако влияние интегралов перекрытия в этом направлении оказывается малым, как было показано в работе [70] и в главе 4. Следовательно, пространственная анизотропия в рамках такого сценария – неочевидна и требует более детального рассмотрения. В дальнейших рассуждениях мы воспользуемся моделью фазового расслоения, предложенной в работе [28] для оценки взаимных долей фаз металла и ВСП. Для упрощения уравнений мы будем рассматривать деформации вдоль разных осей независимо. В принципе, за счет соотношений Пуассона деформация образца вдоль, скажем, оси  $\mathbf{c}$  приведет к заметно меньшей деформации вдоль осей  $\mathbf{a}$  и  $\mathbf{b}$ , так что наше предположение частично оправдано. В этом случае доля металлической фазы вдоль  $i$ -той оси определяется уравнением [28]:

$$R_i = \frac{1}{2} - K_i |F_{SDW}(t_i)| \left( \frac{\partial F_{SDW}}{\partial t_i} \frac{\partial t_i}{\partial \delta_i} \right)^{-2}, \quad (6.1)$$

где  $K_i$  и  $\delta_i$  – упругая постоянная и деформация вдоль  $i$ -той оси, а  $F_{SDW}$  – выигрыш в энергии от образования ВСП. При увеличении  $V$  единственная величина, которая изменяется в этом уравнении – это  $|F_{SDW}(t_i, V)|(\partial F_{SDW}/\partial t_i)^{-2}$ , тогда как  $K_i(\partial t_i/\partial \delta_i)^{-2}$  зависит только от кристаллической структуры и является, следовательно, постоянной. Первая из этих величин больше в случае  $i = b$ , как обсуждалось нами ранее в контексте теории неидеального нестинга, тогда как вторая вероятнее всего оказывается большей при  $i = c$ . Действительно,  $K_c < K_b$ , а эксперименты по квази-одноосному сжатию на  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [140] выявили большое влияние сжатия вдоль оси  $\mathbf{c}$  на межслоевой транспорт, что указывает на большую величину  $\partial t_c/\partial \delta_c$ .

Для объяснения наблюдаемой в эксперименте пространственной анизотропии необходимо предположить, что  $R_c > R_b$  в сильных беспорядках и  $R_c \approx R_b$  в слабых, вблизи критической точки ВСП. Качественно, в случае почти идеального нестинга производные  $\partial F_{SDW}/\partial t_b$  и  $\partial F_{SDW}/\partial t_c$  – малы, тогда как вблизи критической точки производная в направлении  $\mathbf{b}$  – больше, что действительно дает желаемое поведение. Однако, для того чтобы данный сценарий выполнялся, необходимы определенные соотношения между упругими свойствами решетки и параметрами ВСП, которые входят в уравнение (6.1),

так что данный сценарий в общем случае неприменим для анизотропных систем.

### 6.4.5 Гистерезис

Гистерезис в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  (а также в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  [28]) принципиально отличается от классического случая, связанного с существованием метастабильных фаз вблизи фазового перехода первого рода. Последний имеет место при пересечении границы фаз при изменении, скажем, температуры. Однако, в наших измерениях гистерезис наблюдается не только при переходе через фазовую границу, но и в случае разворота температуры по замкнутому циклу в области заметно ниже  $T_{SDW}$  (см. вставку к Рис. 6.3б). Эти наблюдения свидетельствуют о том, что гистерезис может быть вызван перераспределением фаз металла и ВСП с температурой.

В рамках сценария фазовой сегрегации такого рода гистерезис можно связать с пространственным распределением деформаций. Неоднородные деформации решетки выгодны до тех пор, пока затраты на их создание оказываются меньше суммарного выигрыша в энергии,  $F_{\text{metal}} - F_{SDW} \gtrsim K\delta_x^2$ . Другими словами, затраты на локальное изменение деформаций должны быть меньше, чем на переход между металлом и ВСП. Следовательно, при изменении температуры можно ожидать переходов между почти вырожденными локальными минимумами свободной энергии, которые соответствуют различным распределениям деформаций. Гистерезис в этом случае вызван эффективным “сухим трением”, связанным с небольшими энергетическими барьерами между минимумами. В рамках сценария солитонной фазы гистерезис может быть, в принципе, связан с пиннингом стенок дефектами, однако на данный момент пока не разработано теоретического описания поведения солитонной фазы вблизи границы с металлом.

### 6.4.6 Особенности сверхпроводящего состояния

В данном разделе мы кратко прокомментируем природу СП состояния, сосуществующего с ВСП в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . В данной работе мы использовали СП переход как инстру-

мент для определения пространственной текстуры двухфазного состояния, тогда как сам по себе факт выживания СП внутри разупорядоченных областей крайне удивителен. Действительно, как было описано выше в главе, литературные данные свидетельствуют о том, что в релаксированном состоянии  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  является синглетным сверхпроводником с нодальной  $d$ -волновой симметрией параметра порядка [19]. Более того, в слабых анионных беспорядках  $T_c$  уменьшается, что позволяет рассматривать его в роли рассеивателя для куперовских пар [94, 95]. В более сильных беспорядках, когда возникает двухфазное состояние, в работе [95] было отмечено, что  $T_c$  стремится к насыщению. В той же работе было предложено, что такое поведение возникает потому, что СП в двухфазном состоянии выживает только в анион-упорядоченных включениях. Такая картина находится в прямом противоречии с нашими данными по угловым зависимостям магнитосопротивления (см. Рис. 5.3 в главе 5) и, как было объяснено выше, не может объяснить анизотропии текстуры в двухфазном состоянии. На наш взгляд, этот результат является сильным аргументом в пользу трансформации сверхпроводящих свойств при переходе через границу ВСП. Эта проблема выходит за пределы задач данной диссертации.

## 6.5 Выводы

Была изучена эволюция пространственной текстуры металлической(СП) фазы, возникающей внутри фазы ВСП по мере подавления последней анионным упорядочением в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Степень упорядочения изменяет, в среднем, расщепление зон  $V$ , которое отвечает за подавление ВСП, то есть работает аналогично легированию. В этом  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  принципиально отличается от других  $(\text{TMTSF})_2X$  сверхпроводников, где ВСП исчезает за счет увеличения гофрировки поверхности Ферми под давлением. По этой причине мы использовали контролируемую вариацию анионного беспорядка для разделения вкладов избыточных свободных носителей и деформаций решетки и для определения, таким образом, пространственной текстуры, свойственной в общем случае двухфазному



состоянию СП и ВСП.

Нами было установлено, что (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, пространственная текстура не зависит от направления разворота 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 в 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.[42] 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.

Нами также было дано качественное объяснение наблюдаемой эволюции пространственной текстуры в рамках теории солитонной фазы[40, 41] в сильно анизотропной решетке при помощи учета взаимодействия между солитонными стенками. Тем не менее, природа гистерезиса в рамках данного подхода по-прежнему остается под вопросом. Альтернативный сценарий фазового расслоения оказался менее универсальным, поскольку для объяснения анизотропии требуются специальные допущения относительно упругих свойств решетки.

# Глава 7

## Заключение

### 7.1 Выводы

В проделанной экспериментальной работе на основе транспортных измерений при низких температурах, в магнитных полях и под давлением изучались особенности переходов между состояниями волны спиновой плотности и сверхпроводника в квазиодномерных органических соединениях  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  и  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Целью работы являлась проверка универсальности таких переходов и поиск параметров, которые определяют их характеристики. Основными задачами являлись:

1. Исследование роли трехмерной дисперсии в подавлении волны спиновой плотности в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ .
2. Изучение характера сосуществования фаз волны спиновой плотности и сверхпроводника в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  при нормальном давлении.

В работе были получены следующие результаты:

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 межслоевая дисперсия не вносит значимого вкла-

да в подавление волны спиновой плотности в  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  даже вблизи границы со сверхпроводящей фазой под давлением.

2. Прямые измерения 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, обусловленное конкуренцией между СП и ВСП, 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  $\mathbf{c}$  направлении, затем объединяются в полоски в плоскости  $\mathbf{b}-\mathbf{c}$ , перпендикулярные направлению  $\mathbf{a}$  вдоль цепочек. Установлено, что такого рода анизотропия свойственна данным системам 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.

Некоторые вопросы по-прежнему остаются открытыми. Пока что не получено прямых подтверждений существования солитонной фазы, хотя наблюдаемая текстура хорошо согласуется с данным сценарием. Более подробные исследования по туннельной спектроскопии или анизотропии критического поля могли бы прояснить ситуацию. Они гораздо более просты в техническом плане на  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  по сравнению с  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , поскольку нет необходимости работать с высокими давлениями.

Особый интерес представляет вопрос о симметрии параметра порядка в сверхпроводящем состоянии на фоне волны спиновой плотности. С одной стороны, в анионупорядоченном состоянии  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  является, по-видимому, синглетным сверхпроводником с нодальной  $d$ -симметрией параметра порядка. Такое состояние должно было бы исчезнуть при больших беспорядках, чего не происходит. Огромный теоретический и экспериментальный интерес представляет собой и эволюция высокополевой сверхпроводящей фазы при установлении волны спиновой плотности. Более того, если действительно реализуется сценарий с образованием солитонной фазы, то как было показано теоретически Горьковым и Григорьевым[115], более выгодным оказывается триплетное спаривание. В этом смысле результаты данной работы открывают широкое поле по исследованию трансформации симметрии параметра порядка при изменении анионного упорядочения в  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ .

## 7.2 Список публикаций по результатам работы

Представленные в данной диссертации результаты были опубликованы в следующих статьях:

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.

Также результаты докладывались на международных 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 // 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.

### 7.3 Благодарности

Я хотел бы выразить глубокую и искреннюю признательность моему научному руководителю Владимиру Моисеевичу Пудалову за возможность реализовать себя в фундаментальной физике, за его поддержку и критику, которые помогали мне на всех этапах работы. Я очень ценю ту большую роль в развитии моего интереса к физике конденсированного состояния и в приходе в ФИАН, которую сыграл академик Юрий Васильевич Копаев. Я благодарен Андрею Владимировичу Корнилову, который уделил немало времени моему образованию в области физики органических систем и техники высокого давления, а также предоставил для измерений изготовленные им камеры высокого давления. Мне очень помогли продвинуться в понимании моих результатов обсуждения различных теоретических аспектов с Павлом Дмитриевичем Григорьевым. Я признателен Владимиру Николаевичу Звереву и коллективу Лаборатории электронной кинетики ИФТТ РАН за гостеприимство и возможность проведения измерений в магнитных полях до 17 Тл. Большая часть представленных в данной работе измерений была выполнена с использованием оборудования Центра коллективного пользования ФИАН. Я также хотел бы поблагодарить многих людей, работа или обсуждение с которыми внесли непосредственный вклад в данную работу: В.А. Прудкогляд, Ш.В. Сандуляну, А.В. Филатов, О.Е. Омеляновский,

А.Г. Лебедь, С.А. Бразовский, М.В. Карцовник, А.А. Горбацевич, А.Н. Вороновский, А.Я. Кураков, А. Ардаван, А.-К. Клих, Дж. Кволлс, Дж. Ямада, С. Браун, О. Сепшер, К. Бурбунэ.

Мне исключительно приятно благодарить моих друзей Сашу Кунцевича и Валеру Прудкогляда за их помощь и поддержку, а также за превосходную творческую, научную и повседневную атмосферу в лаборатории. В не меньшей степени эти слова относятся и к Штефану Сандуляну, совместную работу с которым я очень высоко ценю. Мне также хотелось бы поблагодарить коллектив лаборатории, в котором была сделана данная работа: В.С. Тур, В.А. Мальгинов, Ю.Ф. Ельцев, Ю.А. Алещенко, Е.В. Тупиков, П.Е. Долгирев, К.С. Перваков, А.В. Садаков, А.С. Усольцев, Л.А. Моргун, Д.А. Князев, К.В. Меркутов, Л.А. Минкина, Г.В. Рыбальченко, Г.К. Расулова, В.А. Власенко, А.В. Муратов, С.В. Емельянов, В.М. Мишачев.

# Литература

- [1] Bardeen J., Cooper L. N., Schrieffer J. R. Theory of superconductivity // Phys. Rev. — 1957. — Vol. 108. — P. 1175–1204.
- [2] Norman M. J. The challenge of unconventional superconductivity // Science. — 2011. — Vol. 332. — P. 196.
- [3] Anderson P. W. The resonating valence bond state in  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  and superconductivity // Science. — 1987. — Vol. 235. — P. 1196.
- [4] Orenstein J., Millis A. J. Advances in the physics of High-Temperature Superconductivity // Science. — 2000. — Vol. 288. — P. 468.
- [5] Uemura Y. J. Superconductivity: Commonalities in phase and mode // Nat. Mater. — 2009. — Vol. 8. — P. 253–255.
- [6] Uemura Y. J. Condensation, excitation, pairing, and superfluid density in High- $T_c$  superconductors: the magnetic resonance mode as a roton analogue and a possible spin-mediated pairing // Journal of Physics: Condensed Matter. — 2004. — Vol. 16, no. 40. — P. S4515.
- [7] Taillefer L. Scattering and pairing in cuprate superconductors // Annual Review of Condensed Matter Physics. — 2010. — Vol. 1, no. 1. — P. 51–70.



- [8] 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.
- [9] Davis J. C. S., Lee D.-H. Concepts relating magnetic interactions, intertwined electronic orders, and strongly correlated superconductivity // *Proceedings of the National Academy of Sciences*. — 2013. — Vol. 110, no. 44. — P. 17623–17630.
- [10] How to detect fluctuating stripes in the high-temperature superconductors / S. A. Kivelson, I. P. Bindloss, E. Fradkin et al. // *Rev. Mod. Phys.* — 2003. — Vol. 75. — P. 1201–1241.
- [11] Nematic Fermi fluids in condensed matter physics / Eduardo Fradkin, Steven A. Kivelson, Michael J. Lawler et al. // *Annual Review of Condensed Matter Physics*. — 2010. — Vol. 1. — P. 153–178.
- [12] Fröhlich H. On the theory of superconductivity: The one-dimensional case // *Proc. R. Soc. A*. — 1954. — Vol. 223. — P. 296.
- [13] Little W. A. Possibility of synthesizing an organic superconductor // *Phys. Rev.* — 1964. — Vol. 134. — P. A1416–A1424.
- [14] Giamarchi T. From Luttinger to Fermi liquids in organic conductors // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 719–744.
- [15] Jerome D. Historical approach to organic superconductivity // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 3–16.

- [16] Superconductivity in a synthetic organic conductor  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / Jérôme, D., Mazaud, A., Ribault, M., Bechgaard, K. // *J. Physique Lett.* — 1980. — Vol. 41, no. 4. — P. 95–98.
- [17] Zero-pressure organic superconductor: Di-(tetramethyltetraselenafulvalenium)-perchlorate  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / Klaus Bechgaard, Kim Carneiro, Malte Olsen et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1981. — Vol. 46. — P. 852–855.
- [18] Bourbonnais C. Electronic phases of low-dimensional conductors // *Trends in High Magnetic Fields Science* / Ed. by C. Berthier, P. Boebinger, L. P. Levy, G. Martinez. — Springer, New York, 2002. — P. 235–270.
- [19] Nodal superconducting order parameter and thermodynamic phase diagram of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / Shingo Yonezawa, Yoshiteru Maeno, Klaus Bechgaard, Denis Jérôme // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85. — P. 140502.
- [20] Brown S. E., Chaikin P. M., Naughton M. J. La tour des sels de Bechgaard // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 49–88.
- [21] 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.
- [22] Pouget J.-P. Structural aspects of the Bechgaard and Fabre salts: An update // *Crystals.* — 2012. — Vol. 2, no. 2. — P. 466–520.
- [23] Bourbonnais C., Jerome D. Interacting electrons in quasi-one-dimensional organic conductors // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 357–414.

- [24] Tomic S., Jerome D. A hidden low-temperature phase in the organic conductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$  // Journal of Physics: Condensed Matter. — 1989. — Vol. 1, no. 27. — P. 4451.
- [25] Insulating, conducting and superconducting states of  $(\text{TMTSF})_2\text{AsF}_6$  under pressure and magnetic field / Brusetti, R., Ribault, M., Jérôme, D., Bechgaard, K. // J. Phys. France. — 1982. — Vol. 43, no. 5. — P. 801–808.
- [26] 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.
- [27] Greene R. L., Engler E. M. Pressure dependence of superconductivity in an organic superconductor *bis*-tetramethyltetraselenafulvalene hexafluorophosphate // Phys. Rev. Lett. — 1980. — Vol. 45. — P. 1587–1590.
- [28] 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.
- [29] 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.
- [30] 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.
- [31] NMR study of the antiferromagnetic to superconductor phase transition in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / W. Yu, S. E. Brown, F. Zamborsky et al. // International Journal of Modern Physics B. — 2002. — Vol. 16, no. 20-22. — P. 3090–3095.

- [32] Lee I. J., Chaikin P. M., Naughton M. J. Critical field enhancement near a superconductor – insulator transition // *Phys. Rev. Lett.* — 2002. — Vol. 88. — P. 207002.
- [33] 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.
- [34] Lee I. J., Chaikin P. M., Naughton M. J. Exceeding the Pauli paramagnetic limit in the critical field of  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 62. — P. R14669–R14672.
- [35] Zhang W., de Melo C. A. R. S. Coexistence of triplet superconductivity and spin density waves // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 97. — P. 047001.
- [36] 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.
- [37] Podolsky D., Altman E., Demler E. SO(4) symmetry in Bechgaard salts // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 707–718.
- [38] Giamarchi T. *Quantum Physics in One Dimension.* — Oxford : Oxford University Press, 2004.
- [39] 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.
- [40] Brazovskii S. A., Gor'kov L. P., Lebed A. G. Incommensurate superstructures in organic conductors with three-dimensional electronic spectra // *JETP.* — 1982. — Vol. 56, no. 3. — P. 683.
- [41] 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.

- [42] 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.
- [43] Evolution of the spin-density wave-superconductivity texture in the organic superconductor  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  under pressure / C. R. Pasquier, N. Kang, B. Salameh et al. // *Physica B: Condensed Matter.* — 2012. — Vol. 407, no. 11. — P. 1806 – 1809.
- [44] Jacobsen C. S., Tanner D. B., Bechgaard K. Optical and infrared properties of tetramethyltetraselenafulvalene  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  and tetramethyltetrathiafulvalene  $(\text{TMTTF})_2\text{X}$  compounds // *Phys. Rev. B.* — 1983. — Vol. 28. — P. 7019–7032.
- [45] Toyota N., Lang M., Muller J. Low dimensional molecular metals // *Low Dimensional Molecular Metals.* — 2007. — Vol. 154 of Springer series in Solid State Sciences.
- [46] Singleton J. Studies of quasi-two-dimensional organic conductors based on BEDT-TTF using high magnetic fields // *Reports on Progress in Physics.* — 2000. — Vol. 63, no. 8. — P. 1111.
- [47] The structure of di(2,3,6,7-tetramethyl-1,4,5,8-tetraselenafulvalenium) hexafluorophosphate,  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ , the first superconducting organic solid / N. Thorup, G. Rindorf, H. Soling, K. Bechgaard // *Acta Cryst. B.* — 1981. — Vol. 37. — P. 1236–1240.
- [48] Rindorf G., Soling H., Thorup N. The structures of di(2,3,6,7-tetramethyl-1,4,5,8-tetraselenafulvalenium) perrhenate,  $(\text{TMTSF})_2\text{ReO}_4$ , and perchlorate,  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // *Acta Cryst. B.* — 1982. — Vol. 38. — P. 2805.
- [49] Resistor model for the electrical transport in quasi-one-dimensional organic  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  superconductors under pressure / H. Meier, P. Auban-Senzier, C. Pépin, D. Jérôme // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Vol. 87. — P. 125128.

- [50] Kang W., Hannahs S. T., Chaikin P. M. Toward a unified phase diagram in  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  // *Phys. Rev. Lett.* — 1993. — Vol. 70. — P. 3091–3094.
- [51] Competing instabilities and the high field phases of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / S. K. McKernan, S. T. Hannahs, U. M. Scheven et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1995. — Vol. 75. — P. 1630–1633.
- [52] 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.
- [53] Горьков Л. П. Физические явления в новых органических проводниках // *Успехи физических наук.* — 1984. — Т. 144, № 11. — С. 381–413.
- [54] 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.
- [55] Zanchi D., Bjelis A. Charge density waves in strong magnetic fields // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 589–602.
- [56] 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.
- [57] Kornilov A. V., Pudalov V. M. Magnetic field induced spin-density waves and spin-density waves in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 487–524.
- [58] Heritier M. Cascade of FISDW phases: Wave vector quantization and its consequences // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 41–45.

- [59] Lebed A. G., Wu S. Magnetic properties of organic conductors and superconductors as dimensional crossovers // *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* / Ed. by A. G. Lebed. — Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2008. — P. 127–184.
- [60] Gor'kov, L.P., Lebed', A.G. On the stability of the quasi-one-dimensional metallic phase in magnetic fields against the spin density wave formation // *J. Physique Lett.* — 1984. — Vol. 45, no. 9. — P. 433–440.
- [61] 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.
- [62] 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.
- [63] Maki K. Magnetotransport in spin-density waves // *Phys. Rev. B.* — 1993. — Vol. 47. — P. 11506–11509.
- [64] High-magnetic-field phase diagram of a quasi-one-dimensional metal / J. S. Qualls, C. H. Mielke, J. S. Brooks et al. // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 62. — P. 12680–12683.
- [65] Lebed A. G. Anisotropy of an instability for a spin density wave induced by a magnetic field in a q1d conductor // *JETP Lett.* — 1986. — Vol. 43. — P. 174.
- [66] Kang W., Hannahs S. T., Chaikin P. M. Lebed's magic angle effects in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  // *Phys. Rev. Lett.* — 1992. — Vol. 69. — P. 2827–2830.
- [67] Spin-density-wave transitions in a magnetic field / J. F. Kwak, J. E. Schirber, P. M. Chaikin et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1986. — Vol. 56. — P. 972–975.
- [68] Biškup N., Tomić S., Jérôme D. Spin-density-wave state of tetramethyltetraselenafulvalinium phosphate  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ : Pressure and magnetic-field effects // *Phys. Rev. B.* — 1995. — Vol. 51. — P. 17972–17975.

- [69] Spin-density wave and field-induced spin-density wave transitions of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  at high magnetic fields / N. Matsunaga, A. Briggs, A. Ishikawa et al. // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 62. — P. 8611–8614.
- [70] 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.
- [71] Spin-density-wave transition of  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  at high magnetic fields / N. Matsunaga, K. Yamashita, H. Kotani et al. // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 64. — P. 052405.
- [72] Magnetic field dependence of the {SDW} transition in  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / N. Matsunaga, A. Ishikawa, K. Nomura et al. // *Synthetic Metals.* — 1999. — Vol. 103, no. 1–3. — P. 2133 – 2134.
- [73] 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.
- [74] Sengupta K., Dupuis N. Spin-density-wave instabilities in the organic conductors  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ : Role of anion ordering // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 65. — P. 035108.
- [75] Observation of the meissner effect in an organic superconductor / K. Andres, F. Wudl, D. B. McWhan et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 1980. — Vol. 45. — P. 1449–1452.
- [76] Specific heat measurements of organic superconductivity in  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / Garoche, P., Brusetti, R., Jérôme, D., Bechgaard, K. // *J. Physique Lett.* — 1982. — Vol. 43, no. 5. — P. 147–152.
- [77] Jerome D. Organic superconductors: A survey of low dimensional phenomena // *Molecular Crystals and Liquid Crystals.* — 1982. — Vol. 79, no. 1. — P. 511–538.
- [78] Some properties of the  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  superconductors / R. L. Greene, P. Haen, S. Z. Huang et al. // *Molecular Crystals and Liquid Crystals.* — 1982. — Vol. 79, no. 1. — P. 539–553.



- [79] Schulz H. J., Jérôme D., Bechgaard K. Band-structure anisotropy and superconducting fluctuations in ditetramethyltetraselenafulvalenium salts  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  // Phys. Rev. B. — 1983. — Vol. 28, no. 11. — P. 6560–6563.
- [80] Kwak J. F. Fluctuation model of organic superconductivity: Internal inconsistencies and contradictory experimental evidence // Phys. Rev. B. — 1983. — Vol. 28, no. 11. — P. 6564–6566.
- [81] Lebed' A. G. Reversible nature of the orbital mechanism for the suppression of superconductivity // JETP Lett. — 1986. — Vol. 44. — P. 114.
- [82] Dupuis N., Montambaux G., Sá de Melo C. A. R. Quasi-one-dimensional superconductors in strong magnetic field // Phys. Rev. Lett. — 1993. — Vol. 70. — P. 2613–2616.
- [83] Abrikosov A. Superconductivity in a quasi-one-dimensional metal with impurities // Journal of Low Temperature Physics. — 1983. — Vol. 53, no. 3-4. — P. 359–374.
- [84] Gor'kov, L.P., Jerome, D. Back to the problem of the upper critical fields in organic superconductors // J. Physique Lett. — 1985. — Vol. 46, no. 14. — P. 643–646.
- [85] Effect of radiation damage on the metal-insulator transition and low-temperature transport in the tetramethyltetraselenofulvalinium  $\text{PF}_6$  salt  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / M. Y. Choi, P. M. Chaikin, S. Z. Huang et al. // Phys. Rev. B. — 1982. — Vol. 25. — P. 6208–6217.
- [86] Anisotropy of the upper critical field in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / I. J. Lee, M. J. Naughton, G. M. Danner, P. M. Chaikin // Phys. Rev. Lett. — 1997. — Vol. 78. — P. 3555–3558.
- [87] Croitoru M. D., Houzet M., Buzdin A. I. In-plane magnetic field anisotropy of the Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov state in layered superconductors // Phys. Rev. Lett. — 2012. — Vol. 108. — P. 207005.
- [88] Oh J. I., Naughton M. J. Magnetic determination of  $H_{c2}$  under accurate alignment in  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // Phys. Rev. Lett. — 2004. — Vol. 92. — P. 067001.

- [89] Evidence from  $^{77}\text{Se}$  knight shifts for triplet superconductivity in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / I. J. Lee, D. S. Chow, W. G. Clark et al. // *Phys. Rev. B.* — 2003. — Vol. 68. — P. 092510.
- [90] Lebed A. G., Machida K., Ozaki M. Triplet electron pairing and anisotropic spin susceptibility in organic superconductors  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 62. — P. R795–R798.
- [91] Lebed A. G. Hidden reentrant and Larkin-Ovchinnikov-Fulde-Ferrell superconducting phases in a magnetic field in a  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — Vol. 107. — P. 087004.
- [92] Synthesis and properties of trimethyl-tsfc containing alloys of the  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  family / I. Johannsen, K. Bechgaard, C. S. Jacobsen et al. // *Molecular Crystals and Liquid Crystals.* — 1985. — Vol. 119, no. 1. — P. 277–281.
- [93] Suppression of superconductivity by non-magnetic disorder in the organic superconductor  $(\text{TMTSF})_2(\text{ClO}_4)_{1-x}(\text{ReO}_4)_x$  / N. Joo, P. Auban-Senzier, C.R. Pasquier et al. // *Eur. Phys. J. B.* — 2004. — Vol. 40, no. 1. — P. 43–48.
- [94] Pesty F., Wang K., Garoche P. Analysis of the pair breaking effect of the anion disorder  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // *Synthetic Metals.* — 1988. — Vol. 27, no. 3-4. — P. 137 – 143. — Proceedings of the International Conference on Science and Technology of Synthetic Metals (ICSM '88).
- [95] Impurity-controlled superconductivity/spin density wave interplay in the organic superconductor:  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / N. Joo, P. Auban-Senzier, C. R. Pasquier et al. // *Europhys. Lett.* — 2005. — Vol. 72, no. 4. — P. 645–651.
- [96] Takigawa M., Yasuoka H., Saito G. Proton spin relaxation in the superconducting state of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // *Journal of the Physical Society of Japan.* — 1987. — Vol. 56, no. 3. — P. 873–876.

- [97] Hasegawa Y., Fukuyama H. NMR relaxation time of the anisotropic superconducting state in quasi-one-dimensional systems // Journal of the Physical Society of Japan. — 1987. — Vol. 56, no. 3. — P. 877–880.
- [98] Belin S., Behnia K. Thermal conductivity of superconducting  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ : Evidence for a nodeless gap // Phys. Rev. Lett. — 1997. — Vol. 79. — P. 2125–2128.
- [99] Revisiting the superconducting phase diagram of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / I.J. Lee, A.P. Hope, M.J. Leone, M.J. Naughton // Synthetic Metals. — 1995. — Vol. 70, no. 1–3. — P. 747 – 750.
- [100] Critical fields and magnetoresistance in the molecular superconductors  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  / M.J. Naughton, I.J. Lee, P.M. Chaikin, G.M. Danner // Synthetic Metals. — 1997. — Vol. 85, no. 1–3. — P. 1481 – 1485.
- [101] Zero bias conductance peak in an {SNS} weak link bicrystal of the triplet superconductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / H.I. Ha, J.I. Oh, J. Moser, M.J. Naughton // Synthetic Metals. — 2003. — Vol. 137, no. 1–3. — P. 1215 – 1216.
- [102] Superconducting state of the organic conductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / J. Shinagawa, Y. Kurosaki, F. Zhang et al. // Phys. Rev. Lett. — 2007. — Vol. 98. — P. 147002.
- [103] Anomalous in-plane anisotropy of the onset of superconductivity in  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / Shingo Yonezawa, S. Kusaba, Y. Maeno et al. // Phys. Rev. Lett. — 2008. — Vol. 100. — P. 117002.
- [104] Magnetic-field variations of the pair-breaking effects of superconductivity in  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / Shingo Yonezawa, Shuichi Kusaba, Yoshiteru Maeno et al. // Journal of the Physical Society of Japan. — 2008. — Vol. 77, no. 5. — P. 054712.
- [105] Zhang W., Sa De Melo C. A. R. Triplet versus singlet superconductivity in quasi-one-dimensional conductors // Advances in Physics. — 2007. — Vol. 56, no. 4. — P. 545–652.

- [106] Kuroki K. Pairing symmetry competition in organic superconductors // Journal of the Physical Society of Japan. — 2006. — Vol. 75, no. 5. — P. 051013.
- [107] Kohmoto M., Sato M. Spin-triplet superconductivity in quasi-one dimension. — 2000. — arXiv:cond-mat/001331.
- [108] Kuroki K., Tanaka Y. Effect of interchain interaction on pairing symmetry competition in organic superconductors  $(\text{TMTSF})_2\text{X}$  // Journal of the Physical Society of Japan. — 2005. — Vol. 74, no. 6. — P. 1694–1697.
- [109] Shimahara H. Nodeless d-wave superconductivity in a quasi-one-dimensional organic superconductor under anion order // Phys. Rev. B. — 2000. — Vol. 61. — P. R14936–R14939.
- [110] Mizuno Y., Kobayashi A., Suzumura Y. Role of charge fluctuation in {Q1D} organic superconductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  // Physica C: Superconductivity. — 2011. — Vol. 471, no. 3–4. — P. 49 – 54.
- [111] Moriya T., Ueda K. Spin fluctuations and high temperature superconductivity // Advances in Physics. — 2000. — Vol. 49, no. 5. — P. 555–606.
- [112]  $^{77}\text{Se}$  NMR probe of magnetic excitations of the magic angle effect in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  / Weida Wu, P. M. Chaikin, W. Kang et al. // Phys. Rev. Lett. — 2005. — Vol. 94, no. 9. — P. 097004.
- [113] Grigoriev P. D. Superconductivity on the density-wave background with soliton-wall structure // Physica B: Condensed Matter. — 2009. — Vol. 404, no. 3–4. — P. 513 – 516.
- [114] Chaikin P. M., Lubensky T. C. Principles of Condensed Matter Physics. — Cambridge University Press, 1995.
- [115] 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.

- [116] Brazovskii S. A., Gor'kov L. P., Schrieffer J. R. Influence of interchain electron hopping on commensurate one-dimensional conductors // *Physica Scripta*. — 1982. — Vol. 25. — P. 423.
- [117] Su W. P., Schrieffer J. R., Heeger A. J. Solitons in polyacetylene // *Phys. Rev. Lett.* — 1979. — Vol. 42. — P. 1698–1701.
- [118] Su W. P., Schrieffer J. R., Heeger A. J. Soliton excitations in polyacetylene // *Phys. Rev. B*. — 1980. — Vol. 22. — P. 2099–2111.
- [119] Brazovskii S. New routes to solitons in quasi-one-dimensional conductors // *Solid State Sciences*. — 2008. — Vol. 10, no. 12. — P. 1786 – 1789.
- [120] Kang H., Jo Y. J., Kang W. Pressure dependence of the angular magnetoresistance of  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  // *Phys. Rev. B*. — 2004. — Vol. 69. — P. 033103.
- [121] Сандуляну Ш. В. Экспериментальное изучение гибридного состояния волна спиновой плотности/сверхпроводник в органическом соединении  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ . Разработка технологии напыления золотых контактов : дипломная работа бакалавра / Ш. В. Сандуляну ; МФТИ. — 2012.
- [122] Lounasmaa O. V. *Experimental Principles and Methods Below 1K*. — Academic Press, 1974.
- [123] Ekin J. W. *Experimental Techniques for Low Temperature Measurements*. — Oxford University Press, 2006.
- [124] Герасименко Я. А. Изучение анизотропии магнитотранспорта в состоянии с волной спиновой плотности в квазиодномерном органическом кристалле  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  : дипломная работа магистра / Я. А. Герасименко ; МИЭТ. — 2008.

- [125] Brandt B. L., Liu D. W., Rubin L. G. Low temperature thermometry in high magnetic fields. VII. Cernox sensors to 32T // *Review of Scientific Instruments*. — 1999. — Vol. 70. — P. 104–110.
- [126] Calibration of a cernox thermometer magnetoresistance using pulsed magnetic fields : Rep. / National High Magnetic Field Laboratory ; Executor: J. B. Betts, I. Mihut, S. Riggs : 2005.
- [127] Kornilov A. V., Pudalov V. M. A spherical small-sized hydrostatic-pressure cell for measuring anisotropic galvanomagnetic effects // *Instrum. Exp. Tech.* — 1999. — Vol. 42. — P. 127.
- [128] Ott H. W. *Noise Reduction Techniques in Electronic Systems*. — John Wiley and Sons, Inc. (US), 1998.
- [129] Klaassen K. B. *Electronic Measurement and Instrumentation*. — Cambridge University Press, 1996.
- [130] NMR evidence for very slow carrier density fluctuations in the organic metal  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / F. Zhang, Y. Kurosaki, J. Shinagawa et al. // *Phys. Rev. B*. — 2005. — Vol. 72. — P. 060501.
- [131] Determination of SDW characteristics in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  by  $^1\text{H}$ -NMR analysis / Toshihiro Takahashi, Yutaka Maniwa, Hiroki Kawamura, Gunzi Saito // *Journal of the Physical Society of Japan*. — 1986. — Vol. 55, no. 4. — P. 1364–1373.
- [132] Lee I. J., Naughton M. J. Metallic state in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  at low pressure // *Phys. Rev. B*. — 1998. — Vol. 58, no. 20. — P. R13343–R13346.
- [133] Percolation description of granular superconductors / G. Deutscher, O. Entin-Wohlman, S. Fishman, Y. Shapira // *Phys. Rev. B*. — 1980. — Vol. 21. — P. 5041–5047.

- [134] Yoshino H., Shodai S., Murata K. Third angular effect of  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  in R- and Q-states under pressure // *Synthetic Metals*. — 2003. — Vol. 133–134, no. 0. — P. 55 – 56.
- [135] Haddad S., Charfi-Kaddour S., Pouget J.-P. Inhomogeneous superconductivity in organic conductors: the role of disorder and magnetic field // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2011. — Vol. 23, no. 46. — P. 464205.
- [136] The organic superconductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$ : The effect of magnetic fields and anion orientational disorder / C. P. Heidmann, H. Schwenk, K. Andres, F. Wudl // *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*. — 1984. — Vol. 58. — P. 7–13.
- [137] Dagotto E., Hotta T., Moreo A. Colossal magnetoresistant materials: the key role of phase separation // *Physics Reports*. — 2001. — Vol. 344, no. 1–3. — P. 1 – 153.
- [138] Temperature and pressure dependencies of the crystal structure of the organic superconductor  $(\text{TMTSF})_2\text{ClO}_4$  / D. Le Pévelin, J. Gaultier, Y. Barrans et al. // *Eur. Phys. J. B*. — 2001. — Vol. 19. — P. 363.
- [139] Tuning superconductivity by carrier injection / Yuri Koval, Xiaoyue Jin, Christoph Bergmann et al. // *Applied Physics Letters*. — 2010. — Vol. 96, no. 8. — P. 082507.
- [140] Spin density wave transition in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  under uniaxial strain / Fangzhun Guo, Keizo Murata, Akihiro Oda et al. // *Journal of the Physical Society of Japan*. — 2000. — Vol. 69, no. 7. — P. 2164–2169.