

Эффекты спинового упорядочения в квазиодномерных органических соединениях

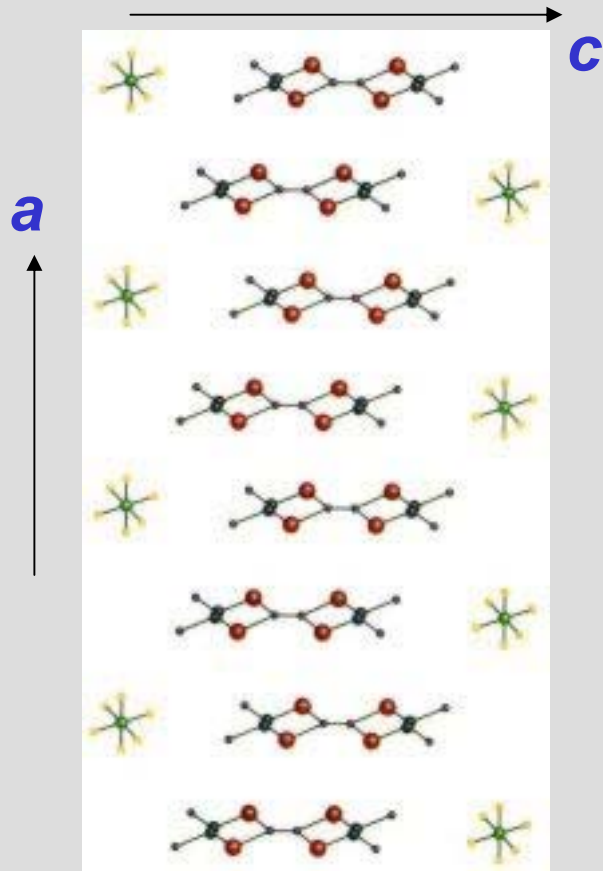
А.В. Корнилов, В.М. Пудалов

- ✓ Волна спиновой плотности, SDW
- ✓ Индуцированная полем SDW
- ✓ Фазовый переход SDW-металл

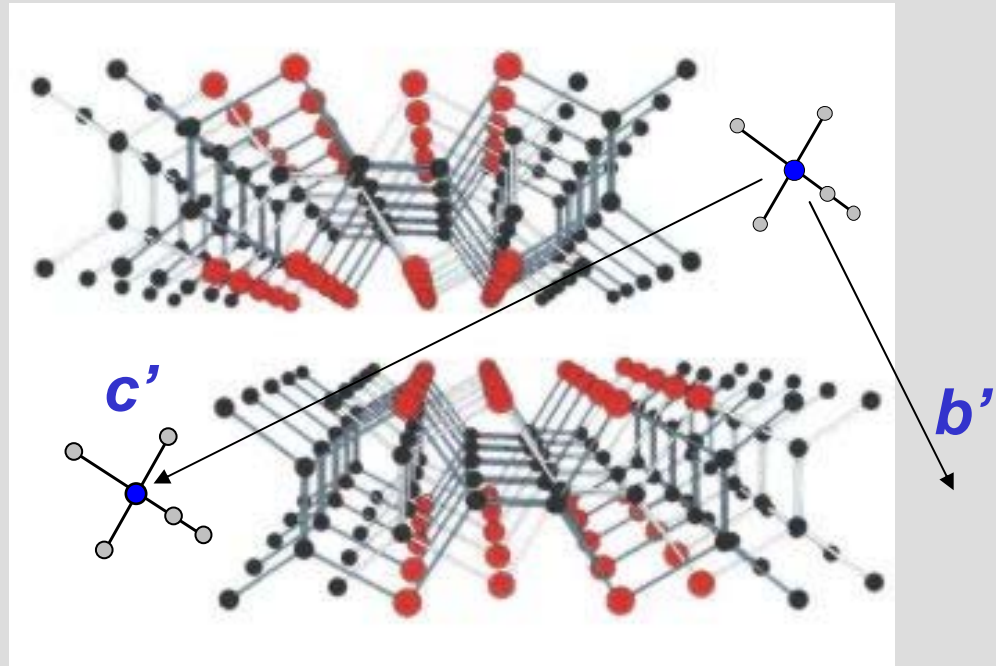
Rapid oscillations in the spin-ordered state

Phase-mixing in the vicinity of the phase transition between PM, SDW, and superconducting states





View along *a*



Charge transfer:

1 electron/unit cell \Rightarrow anyon
 $\frac{1}{2}$ hole left on (TMTSF) molecules.

Dimerization \Rightarrow **$\frac{1}{2}$ - filled band**
(1 carrier/ 10^3 Å)

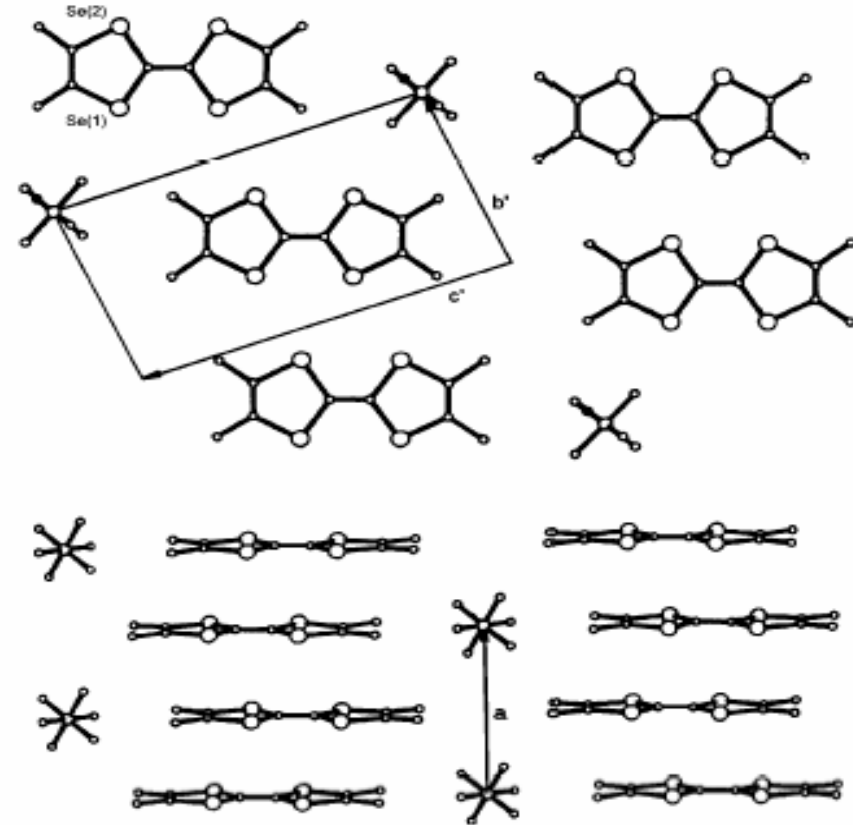
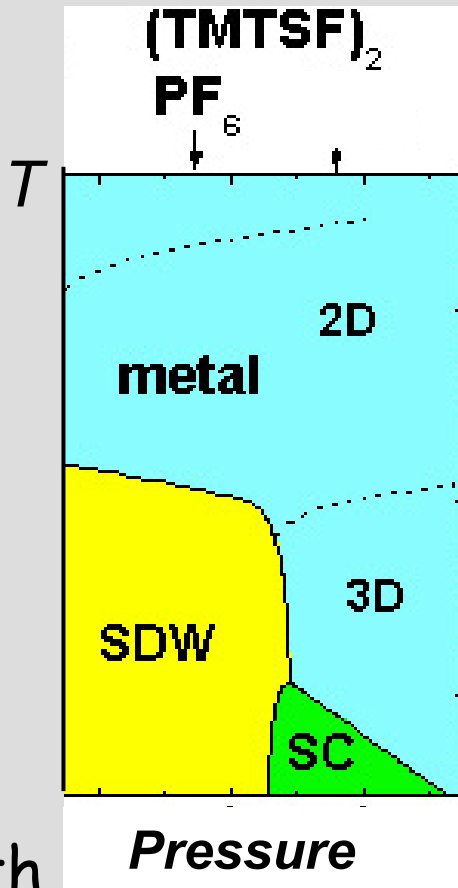
1. Quasi-1D compound: $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$

Q-2D, 3D Metal

Q-1D AFM SDW:
Insulator

Superconductor
 $T_c = 1.2\text{K}$ (p-wave)

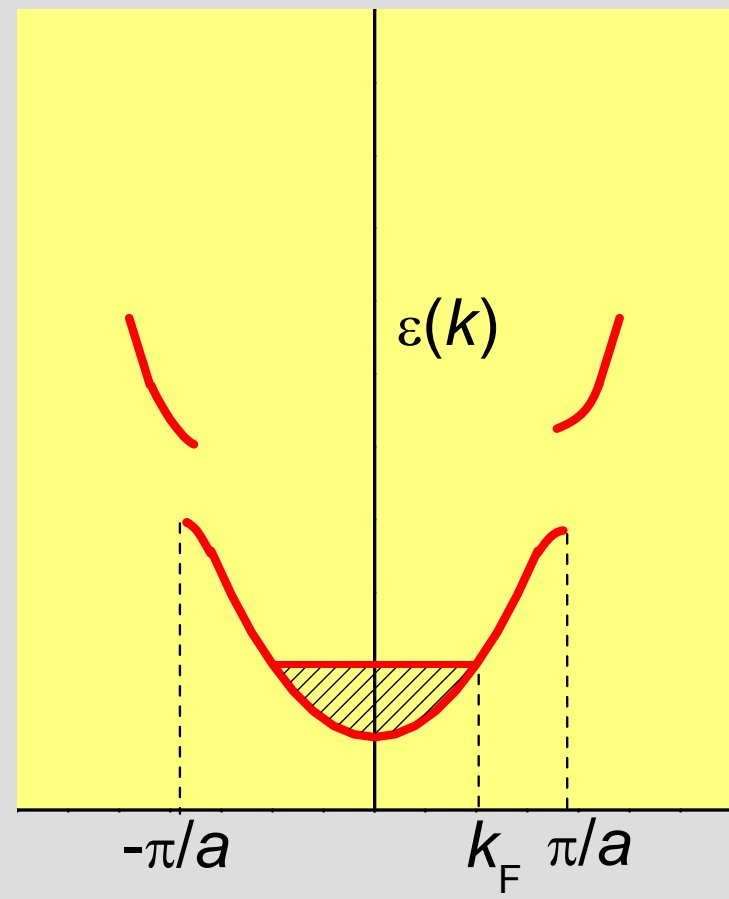
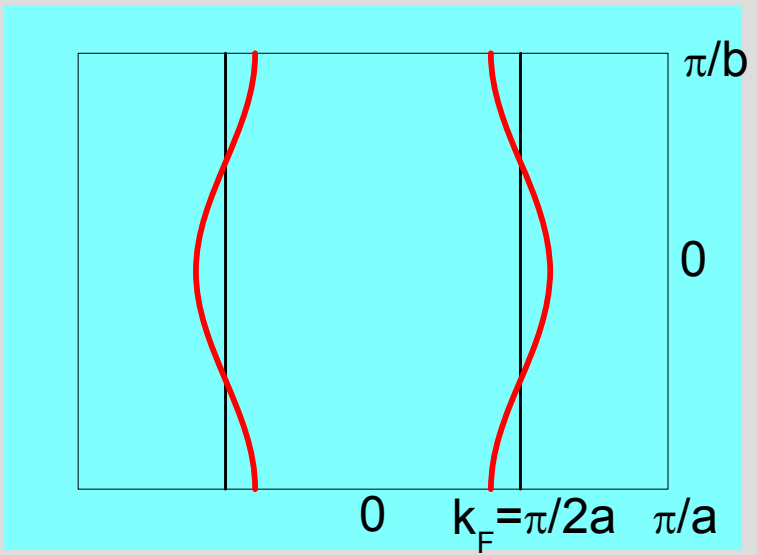
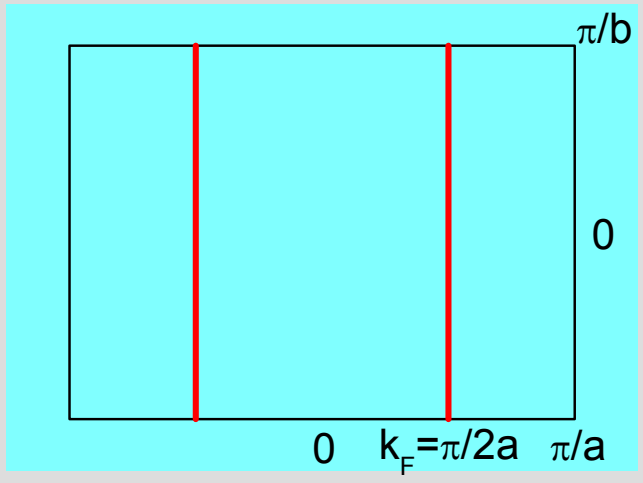
FISDW:
qasi-2D state with
quantized nesting
vector



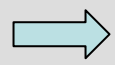
$$\sigma_a : \sigma_b : \sigma_c \sim 10^3 : 10^1 : 10^{-2} / \Omega\text{cm}$$

$$\sigma_a \sim 10^6 / \Omega\text{cm} \quad @ \quad T=4\text{K}$$

Cartoon of the Fermi surface (2D view)

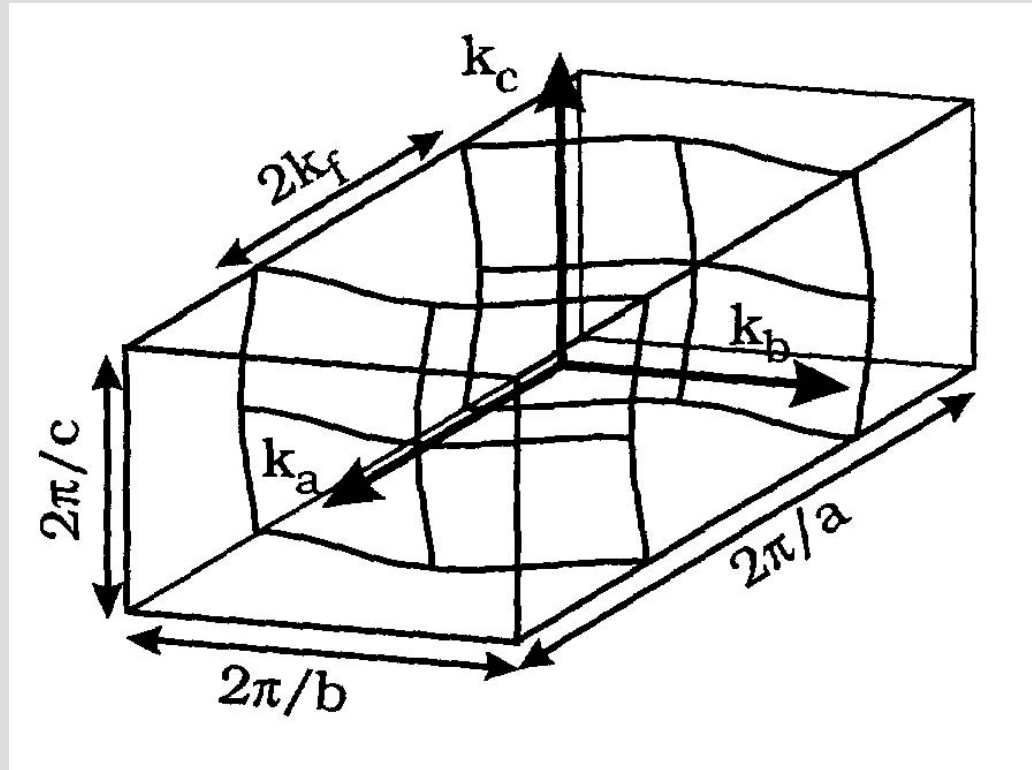


$$\epsilon(k) = v_F(k_x - k_F) - 2t_b \cos(k_y b)$$



$$\epsilon(k) = \hbar^2 k_x^2 / 2m^* - 2t_b \cos(k_y b)$$

3D Cartoon of the idealized Fermi surface



Bandwidth: $4t_a = 1\text{eV}$ along ***a***
 $4t_b = 0.1\text{eV}$ along ***b***
 $4t_c = 3\text{meV}$ along ***c***

2. One-dimensionalization in Magnetic Field

$$\varepsilon(k_x, k_y) = -2t_a \cos k_x a - 2t_b \cos k_y b$$

$$\mathbf{k} \rightarrow i\nabla - e\mathbf{A} / \hbar c$$

substitution

with Landau gauge

$$\mathbf{A} = (0, Hx)$$

$$\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \Psi - 2t_b \cos \left(ib \frac{\partial}{\partial y} - \frac{eHb}{\hbar c} x \right) \Psi = \varepsilon \Psi$$

Сдвигает только "центр масс" на $x^1 \Rightarrow (x - \lambda b k_y / 2\pi)$

1D-equation

$$\frac{\hbar^2}{2m^*} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x) - 2t_b \cos \left(k_y b - \frac{2\pi}{\lambda} x \right) \psi(x) = \varepsilon \psi(x)$$

$$\frac{2\pi}{\lambda} = \frac{eHb}{\hbar c} \quad \text{magnetic length}$$

In a magnetic field, dispersion depends on k_x , $\varepsilon(k_x)$

Linearizing around K_F :

$$\approx v_F (|k_x| - k_F) - 2t_b \cos k_y b$$

$$v_F = 2t_a a \sin a k_F$$

Factorization:

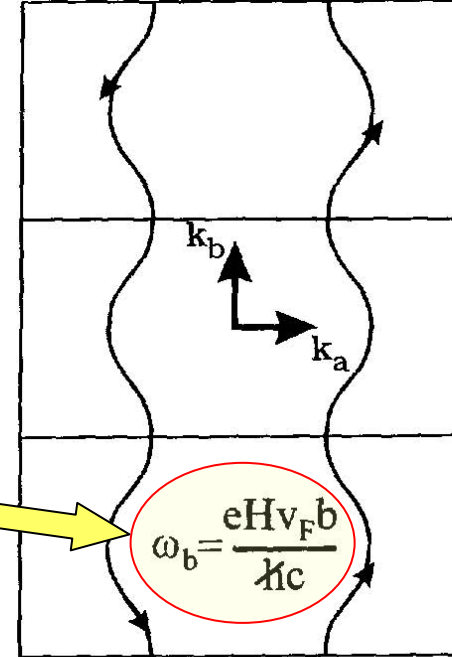
$$\Psi(x, y) = e^{ik_y y} \psi(x)$$

Semiclassical Trajectories:

in k -space

$$\hbar \frac{\partial \mathbf{k}}{\partial t} = e\mathbf{v} \times \mathbf{H} / c$$

$$\omega_b = (dk/dt)/(2\pi/b)$$

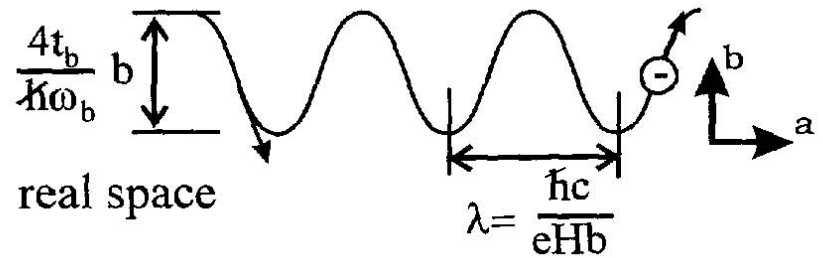


k space

in real space,
dimensional motion

1-

$$\mathbf{v} = \frac{\partial \mathbf{r}}{\partial t}$$



real space

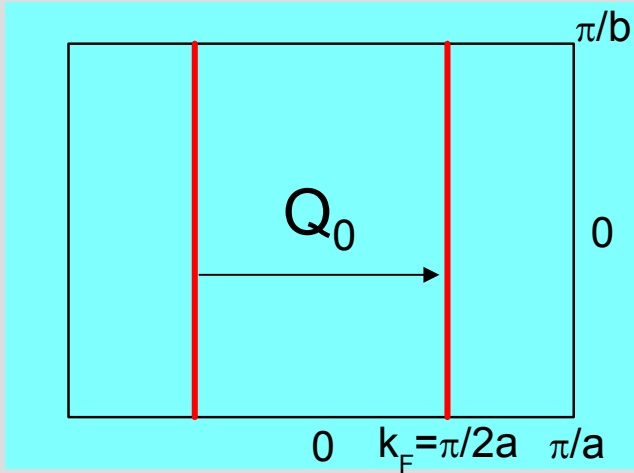
@ $H=10$ Tesla:

Speed in b -direction - 60 chains,

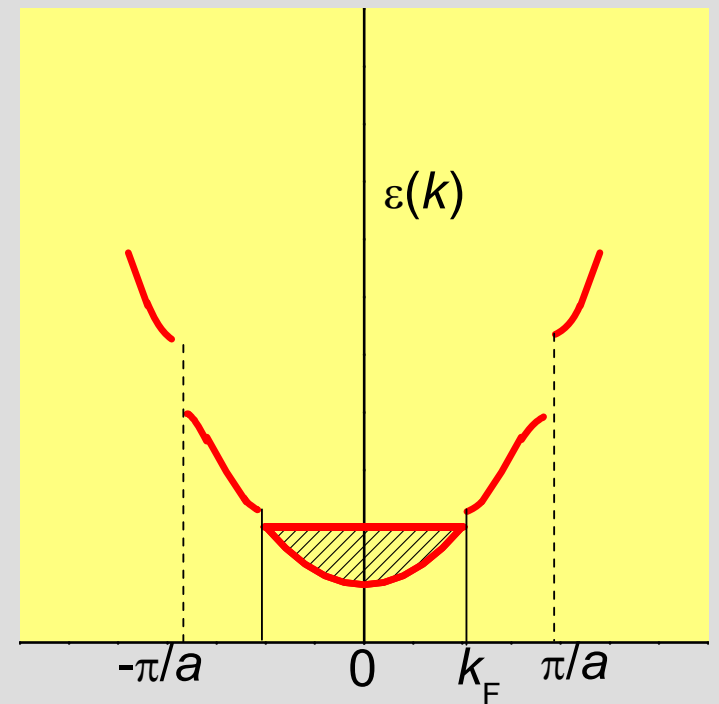
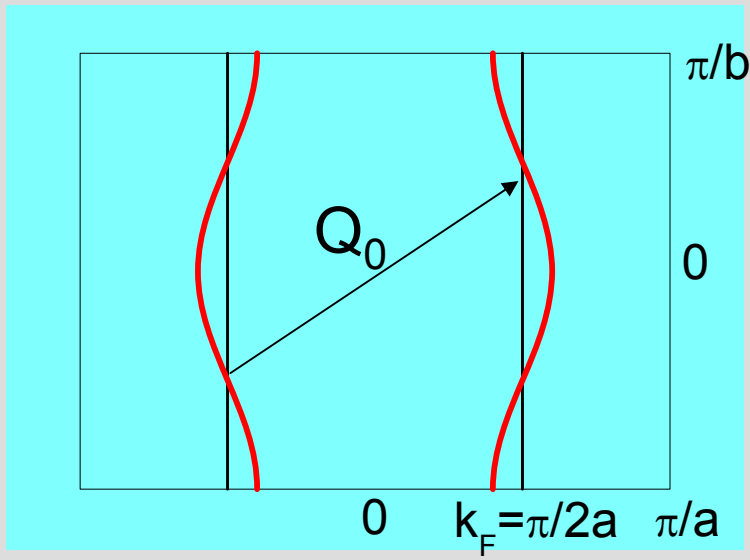
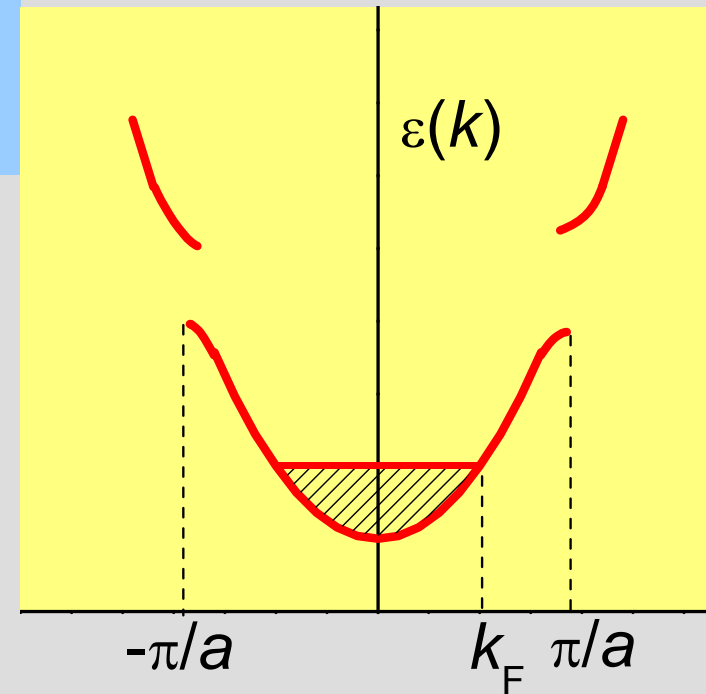
Periodicity in a -direction - 200 unit cells

$$\lambda b H = \Phi_0$$

Cartoon of the Fermi surface (2D view)



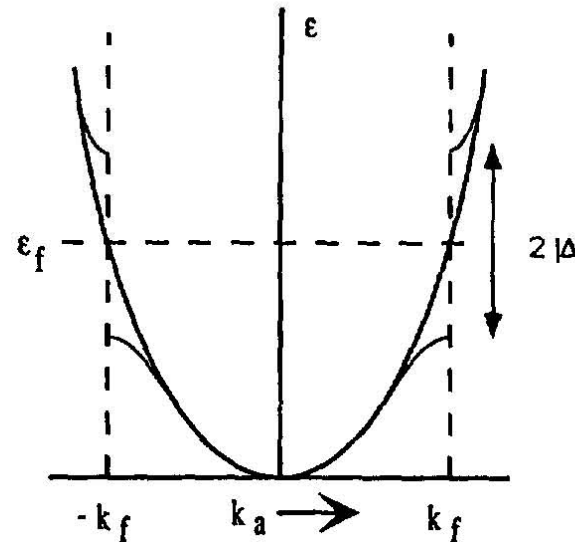
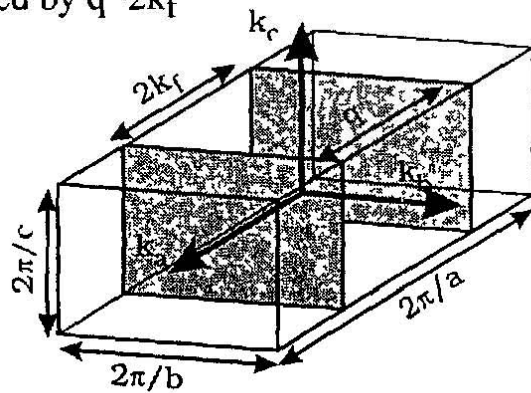
Perfect nesting
 $\varepsilon(\mathbf{k}) = -\varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{Q}_\perp)$



$$\varepsilon(k) = v_F(k_x - k_F) - 2t_b \cos(k_y b)$$

3. Distortion @ $H=0$. Perfect nesting.

1 Dimension
all states at ϵ_f
coupled by $q=2k_f$



ϵ_f in gap everywhere
distortion stable

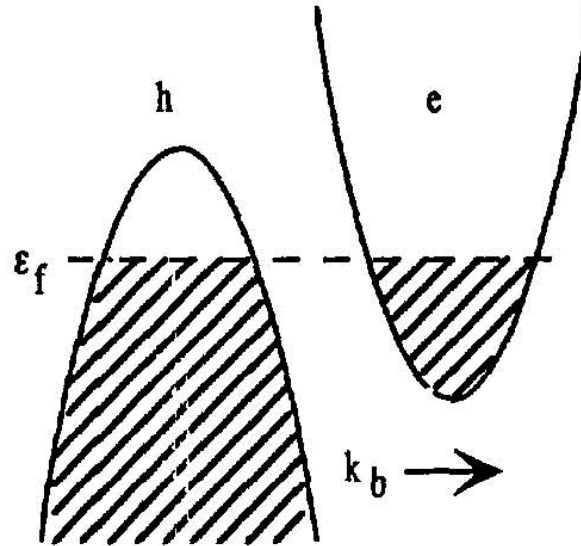
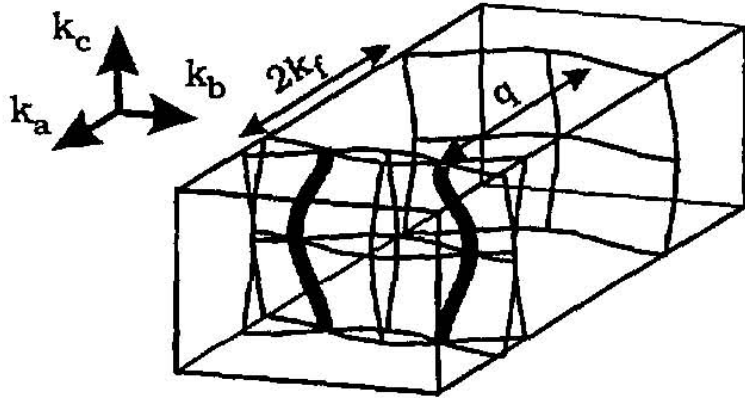
(6a1)

Energy **gain**: $\Delta^2 \ln(\epsilon_F/\Delta)$
cost: $\kappa \Delta^2$

Metallic state is unstable

Imperfect nesting. $H=0$

Imperfect Nesting leaves pockets



distortion

not stable

(6a2)

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = v_F (|k_x| - k_F) + \varepsilon_{\perp}(\mathbf{k})$$

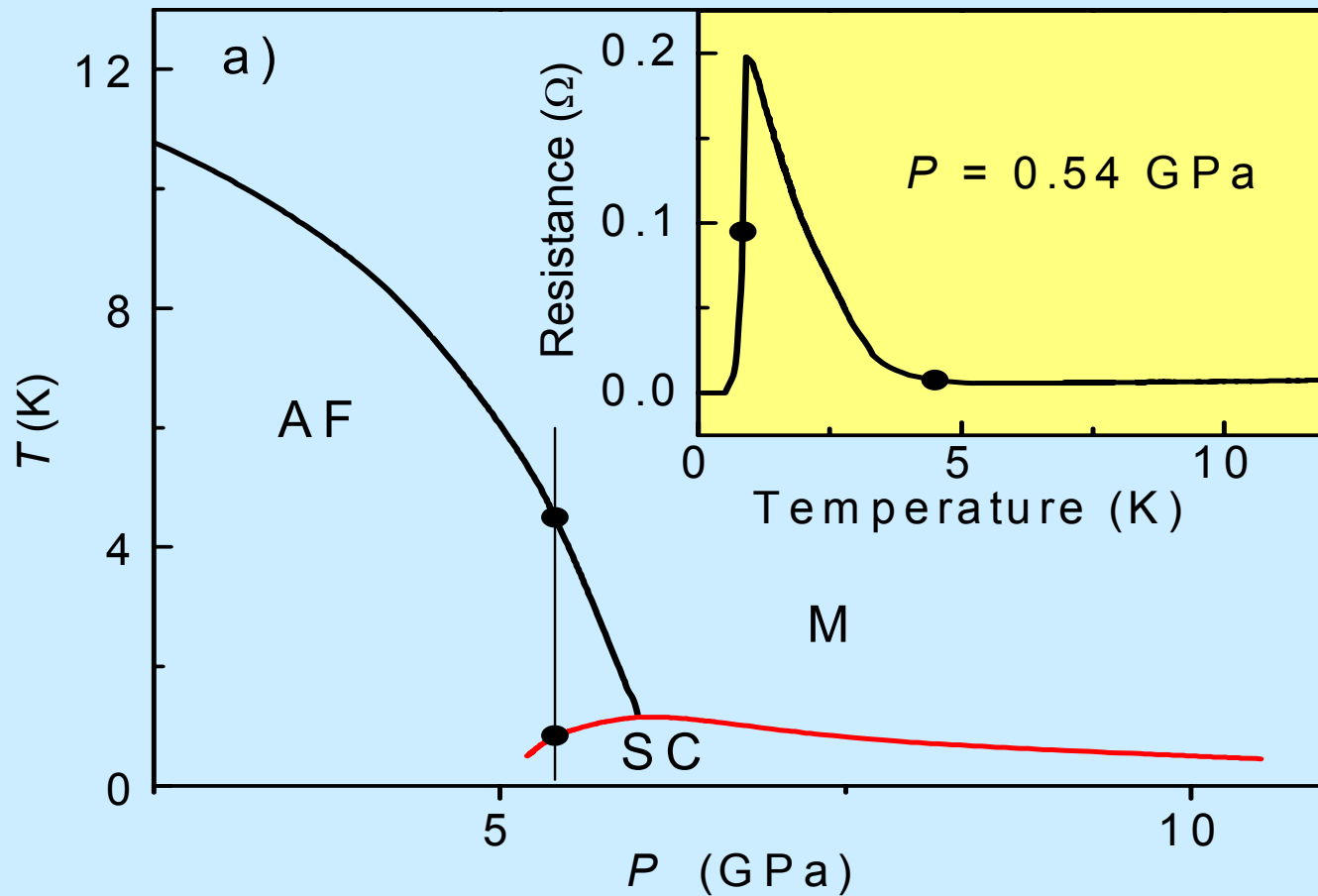
$$\varepsilon_{\perp}(\mathbf{k}) = -2t_b \cos(k_y b) - 2t'_b \cos(2k_y b) - 2t_c \cos(k_z c)$$

Energy **gain:** $\Delta^m \ln(\varepsilon_F/\Delta)$ ($m \geq 3$)

cost: $\kappa \Delta^2$

Metallic state is stable down to " $T = 0$ ".

This is the state in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ @ $P > 5.5 \text{ kbar}$ and $H = 0$



P - T фазовая диаграмма $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ при $B=0$.

M – парамагнитный металл,

AF – антиферромагнитный изолятор (**SDW**),

SC - сверхпроводник

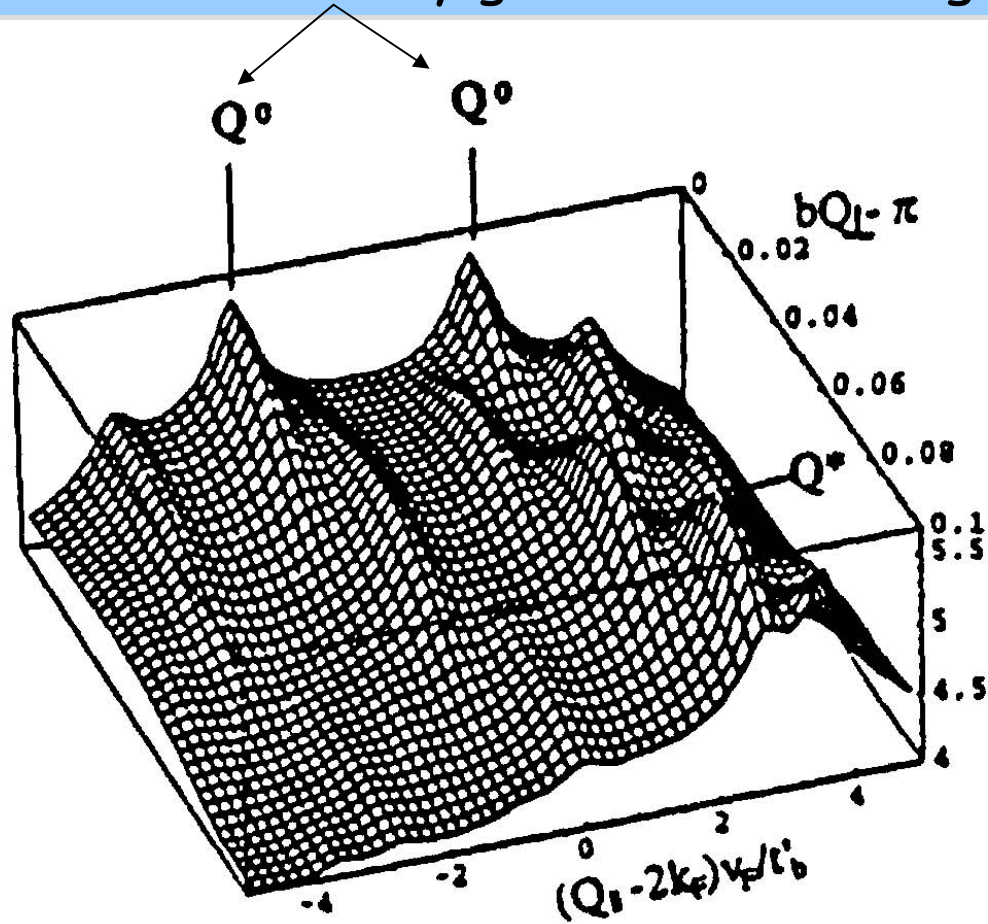
4. Field induced SDW (FISDW)

Susceptibility χ vs
distortion wave vector Q

In magnetic field:

$Q_0 = 2k_F \pm N2\pi/\lambda$ along a
nesting vectors

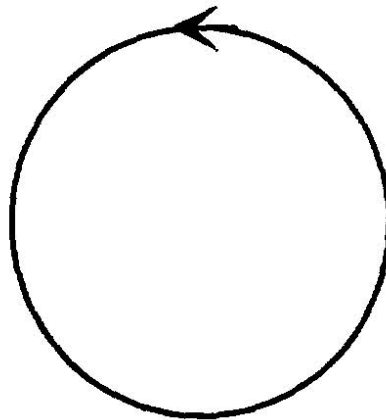
Stoner instability grows with cooling



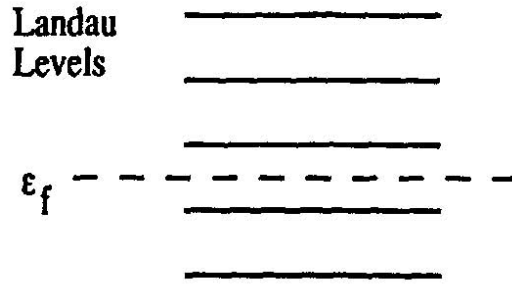
4.1. Open and closed orbits in quantized H -field

Landau
quantization

Closed
Orbit



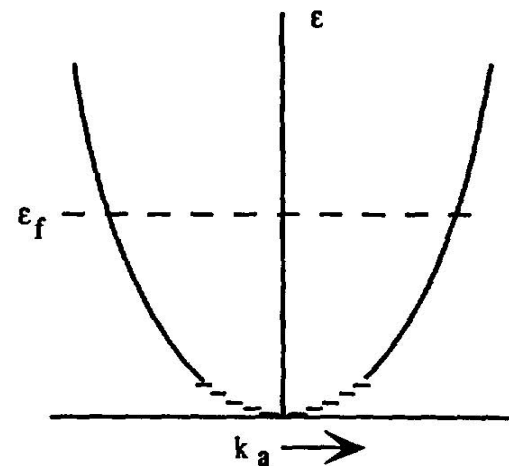
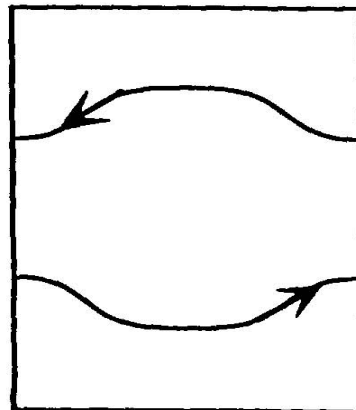
Landau
Levels



$$E_n = (n + 1/2) \hbar \omega_c$$

Magnetic Field

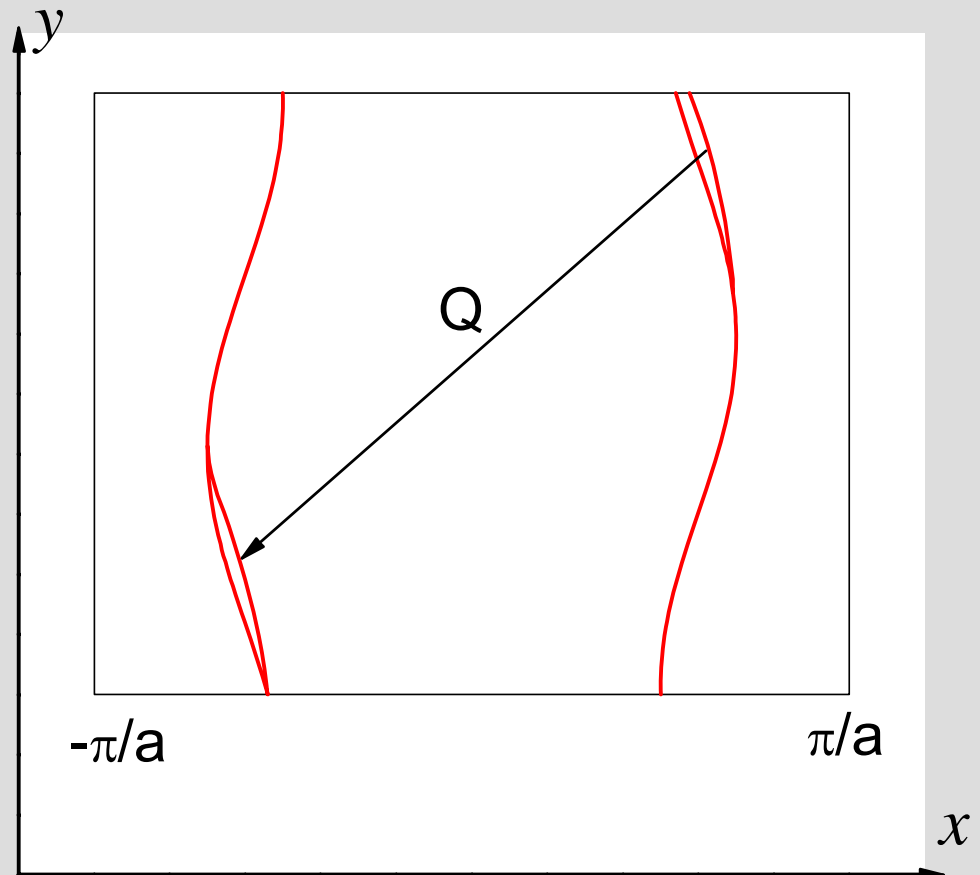
Quasi-1D
Open Orbit



NO Landau
quantization

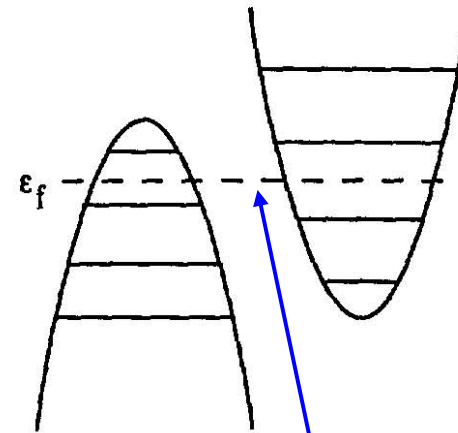
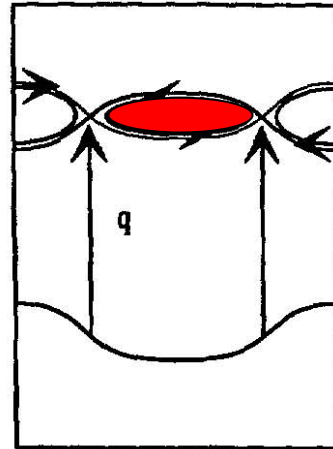
4.2. Field-Induced SDW states (FISDW)

$$Q_x = 2k_F - N \frac{eBb}{h}$$



"Standard model" (Quantized nesting model): SDW in magnetic field

Distortion + Field



ϵ_f in Gap
distortion
stable
+
Landau Quantization
QHE

For SDW state to survive, the area in the k-space must be

$$N \text{ (eH/hc)}$$

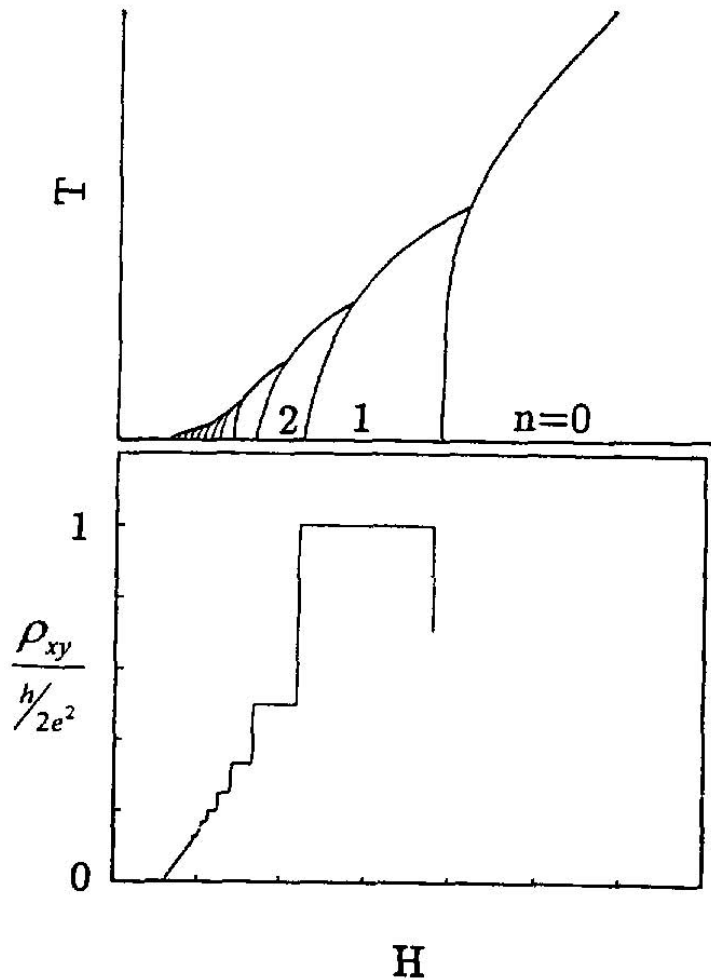
As the field varies, the Q_{SDW} must change to keep ϵ_F in the gap

Without a gap at ϵ_F , the SDW would collapse, since the energy gain does not compensate the distortion cost

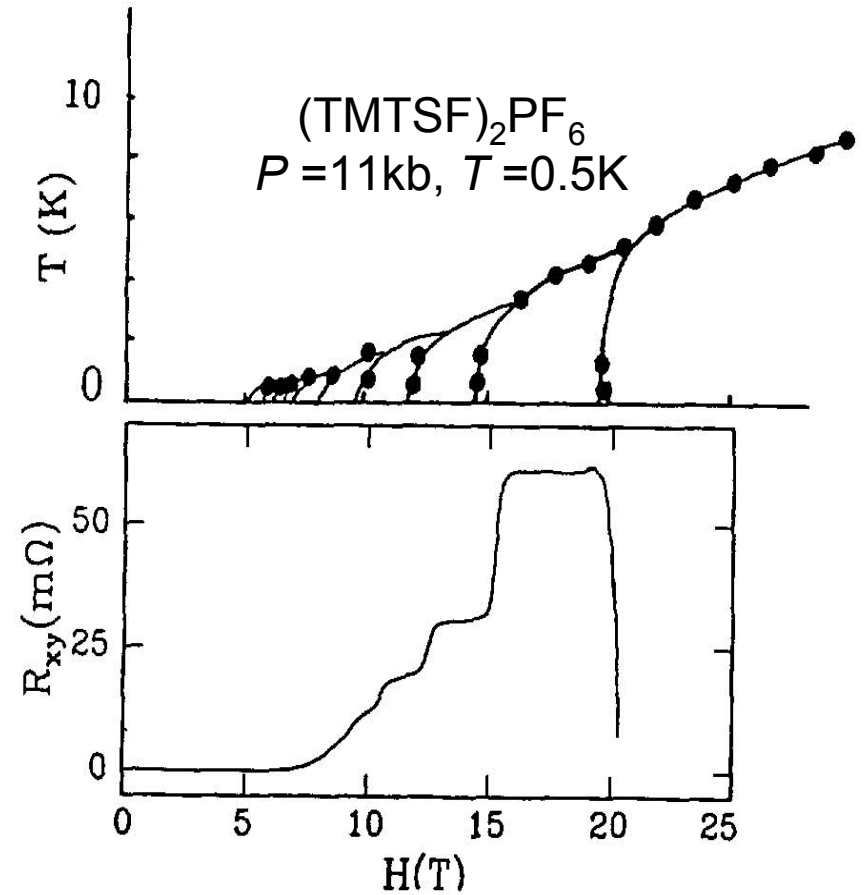
$$Q_{SDW} = (2k_F \pm n2\pi/\lambda, \pi/b+\epsilon)$$

Ideally, $n = N$ (integer)

4.3. FISDW in magnetotransport



Idealized theoretical picture



Experimental picture

Каскад индуцированных полем состояний с волной спиновой плотности (FISDW)

$$Q_x = 2k_F - N \frac{eBb}{h}$$

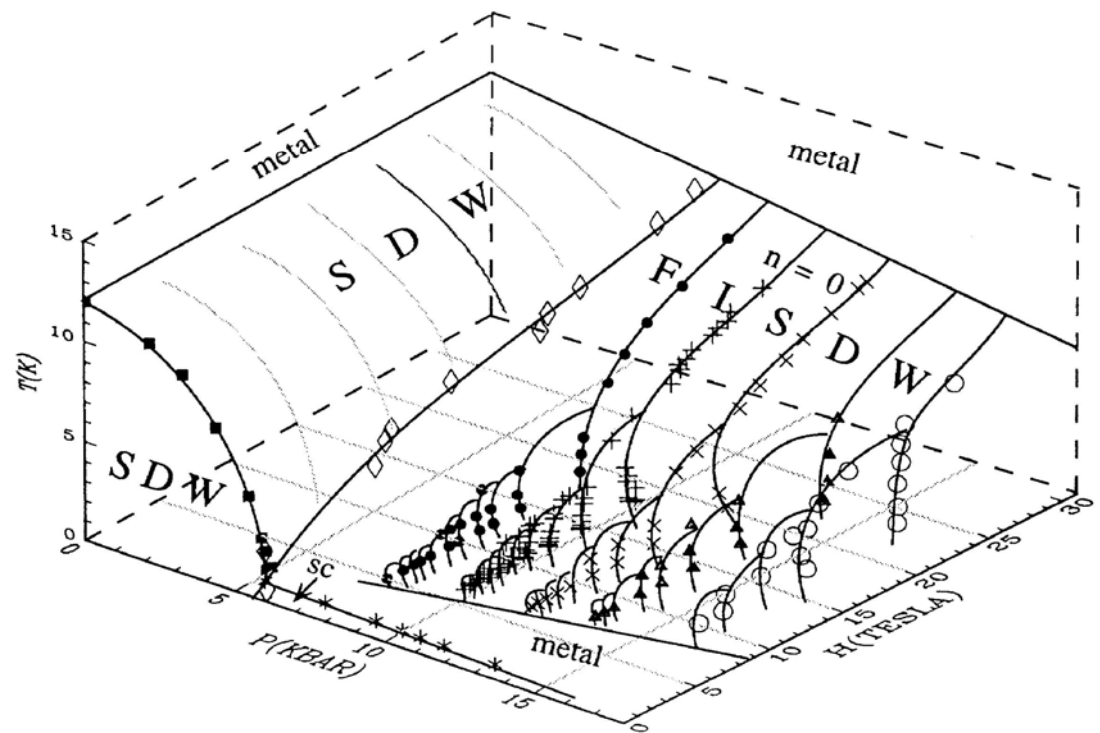
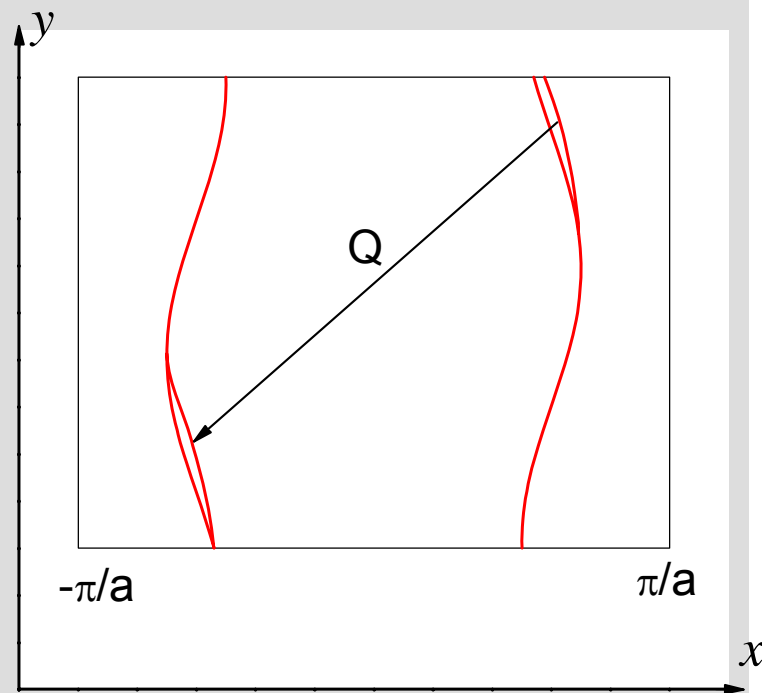


FIG. 1. Pressure–magnetic-field–temperature phase diagram of $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$. The lines are guides to eye.

FISDW vs QHE in 2D: Similarity and Difference:

FISDW

$$\rho_{xy} = h/2Ne^2$$

$$\rho_{xx} \rightarrow 0 \text{ as } T \rightarrow 0$$

$\rho_{xy}(\mathbf{H})$ doesn't sit on the line
(because n varies with \mathbf{H})

QHE in 2D

$$\rho_{xy} = h/Ne^2$$

$$\rho_{xx} \rightarrow 0 \text{ as } T \rightarrow 0$$

$\rho_{xy}(\mathbf{H}) \rightarrow 0$ as $\mathbf{H} \rightarrow 0$ and sits on
the classical line \mathbf{H}/nc

Plateau-plateau transitions:

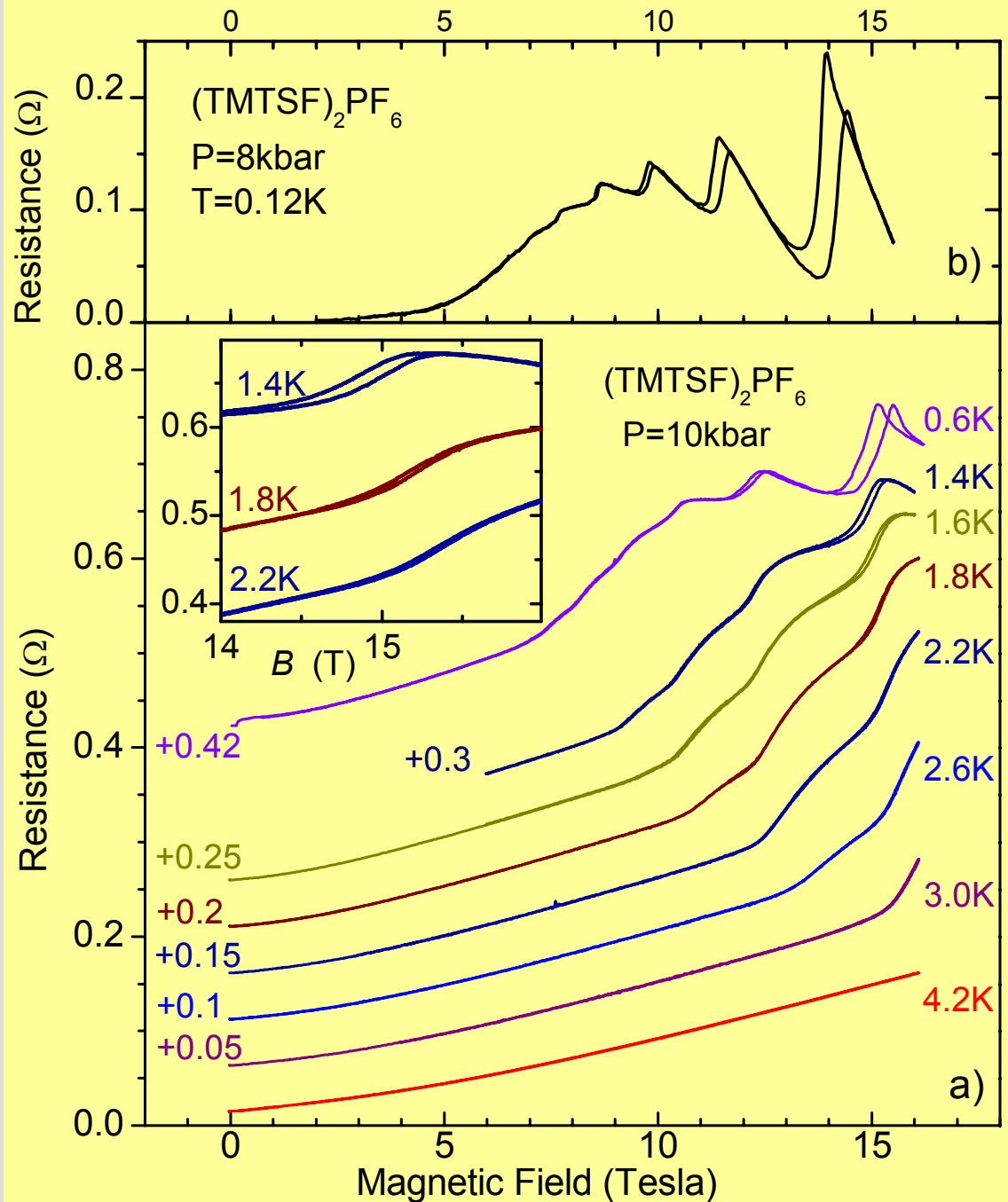
1st order
(no linear transitions),
step-like changes in ρ_{xy}
as $T \rightarrow 0$ & $1/\tau \rightarrow 0$

Each transition has its own
 $T_{\text{FISDW}}(N, H)$ and free
energy $F_{\text{FISDW}}(N, H, T)$

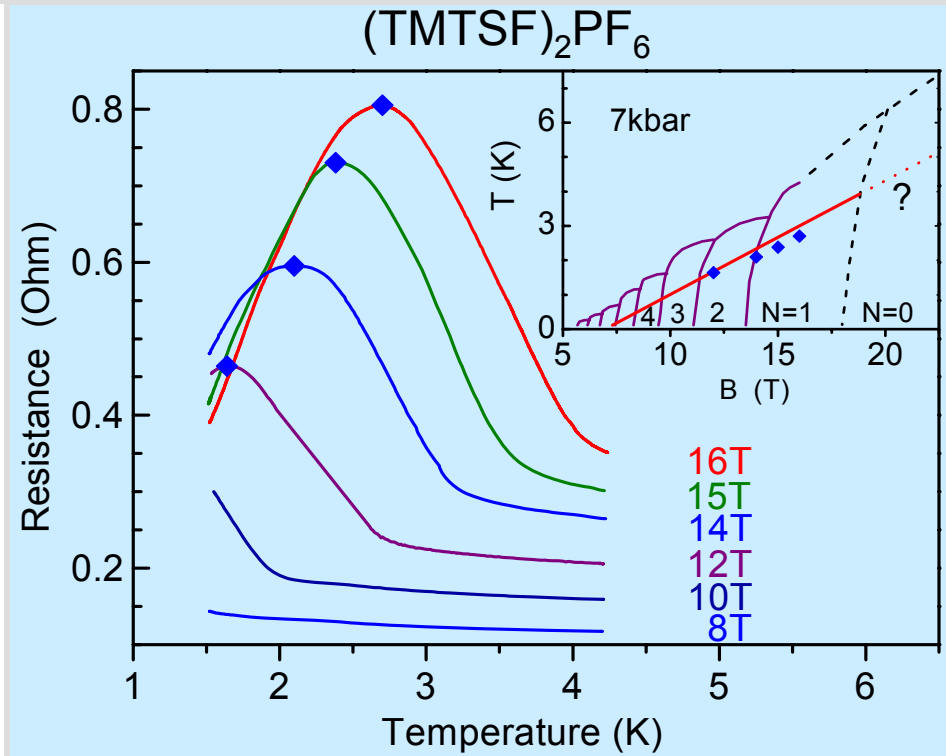
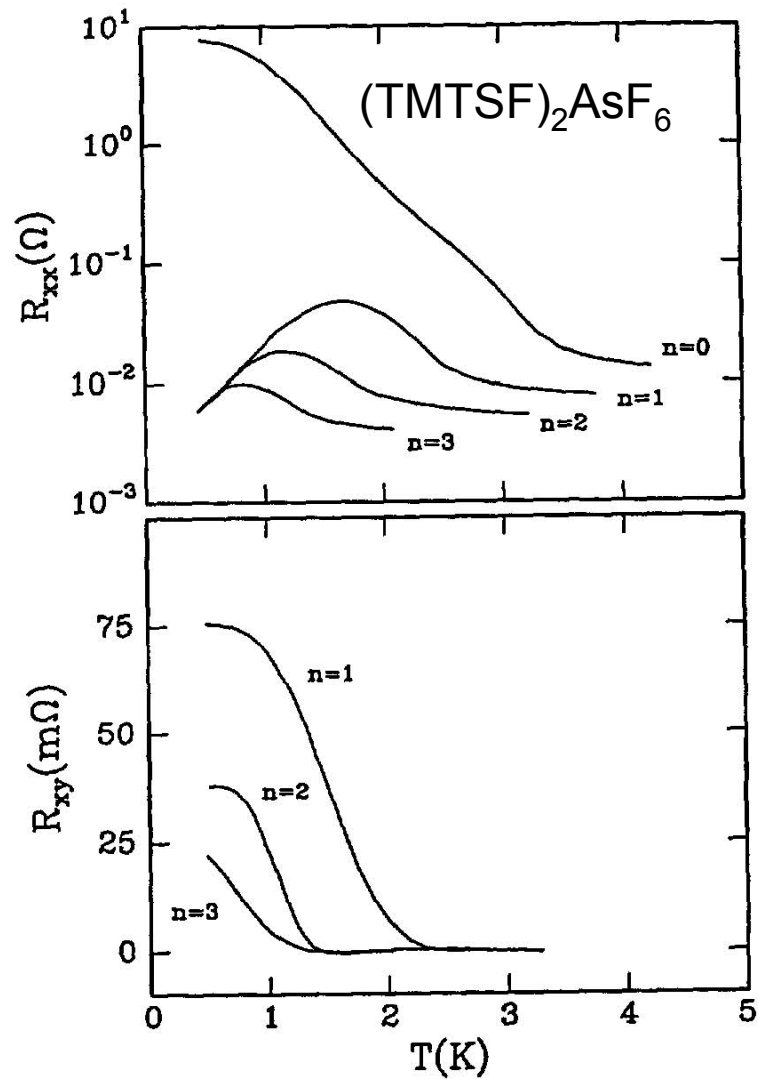
continuous QPT,
linear transitions in ρ_{xy}
as $T \rightarrow 0$ & $1/\tau \rightarrow 0$

Transitions are equivalent

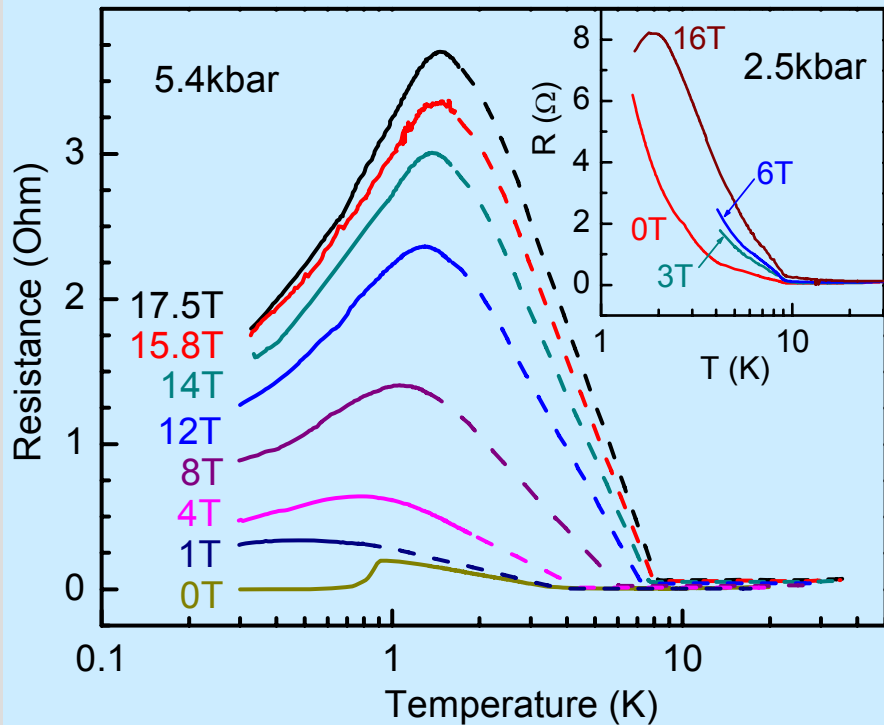
Temperature evolution of ρ_{xx}



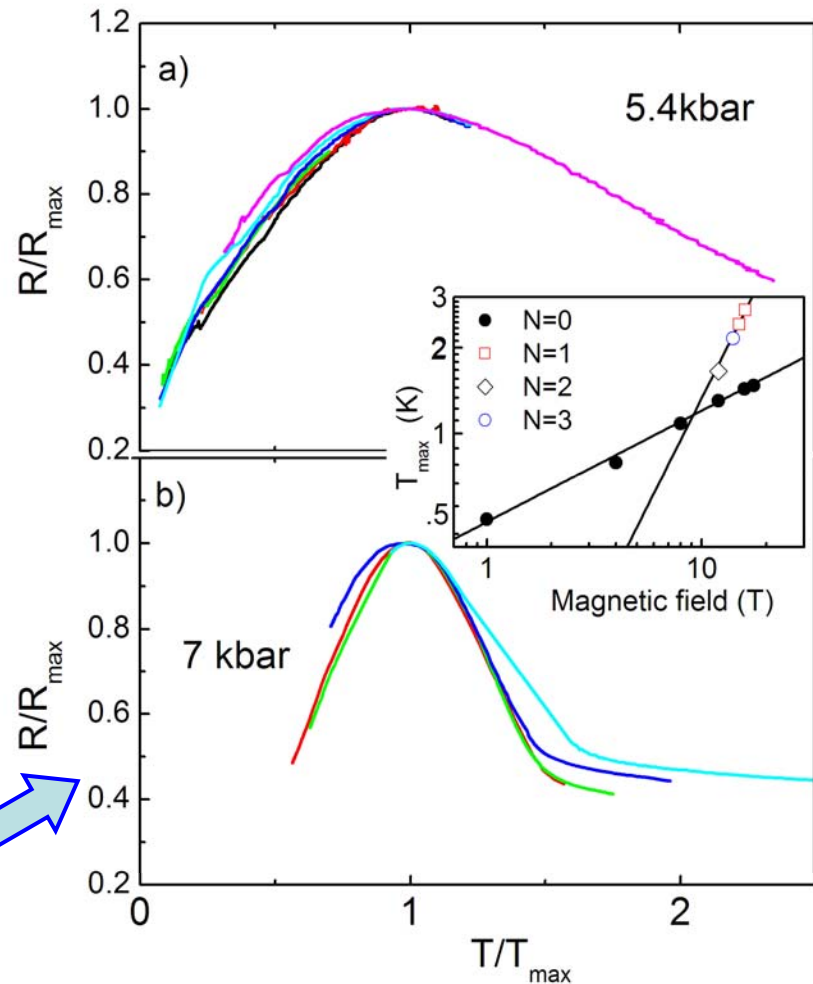
$\rho_{xx} \rightarrow 0$ as $T \rightarrow 0$



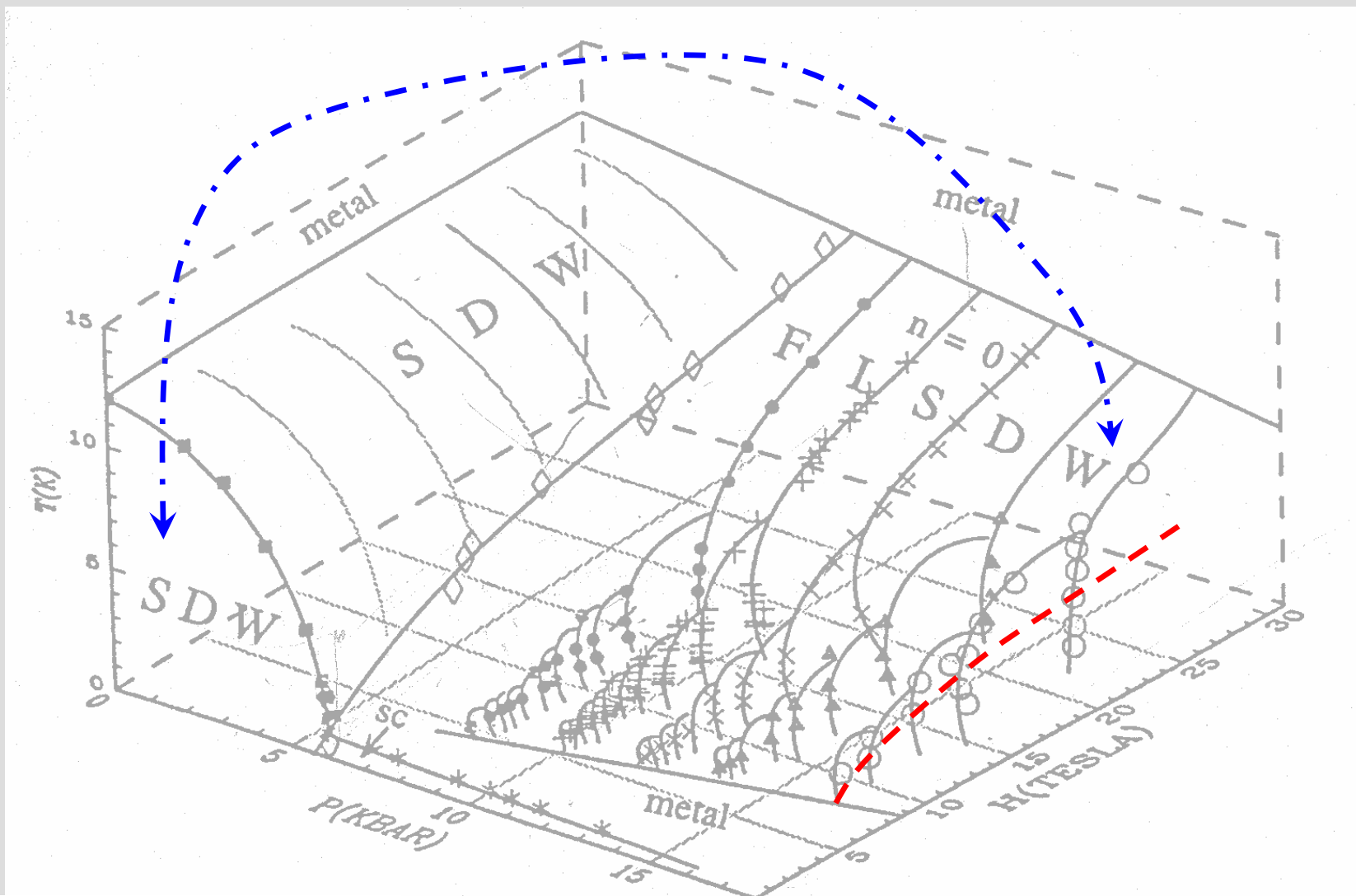
4.4. $N=0$ FISDW phase



$R(T)$ scaling shows that the $N=0$ -phase has origin different from $N \geq 1$ -phases



P-B-T phase diagram of $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$



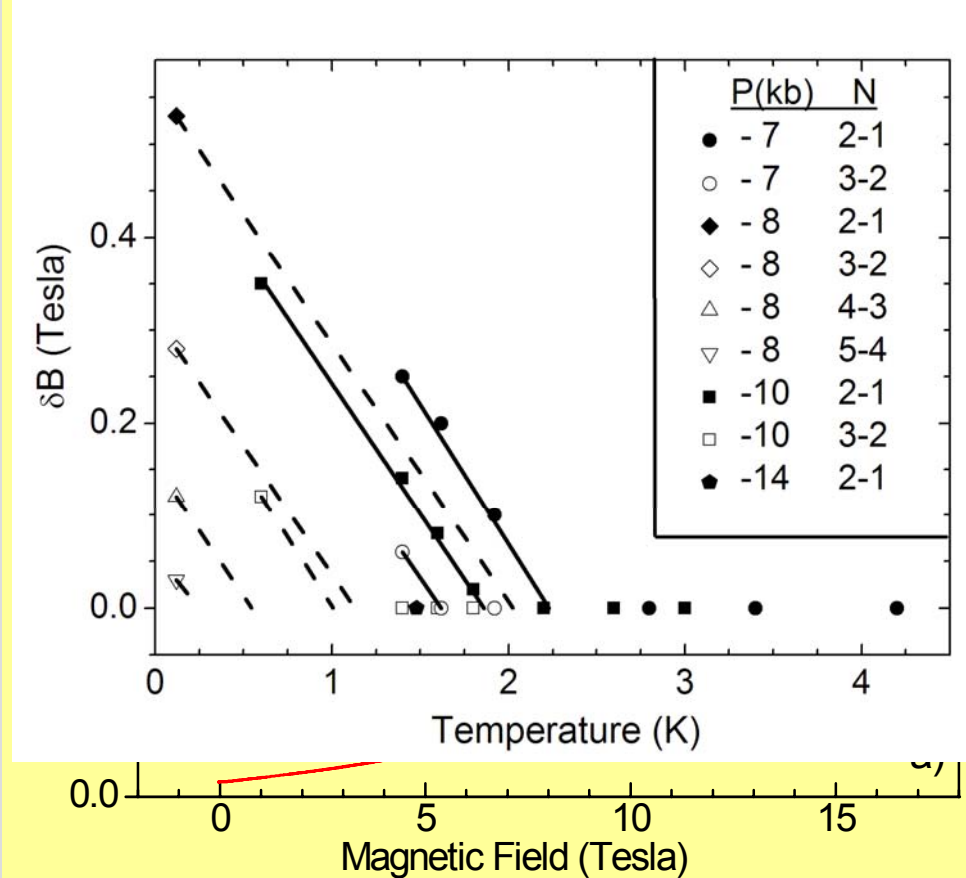
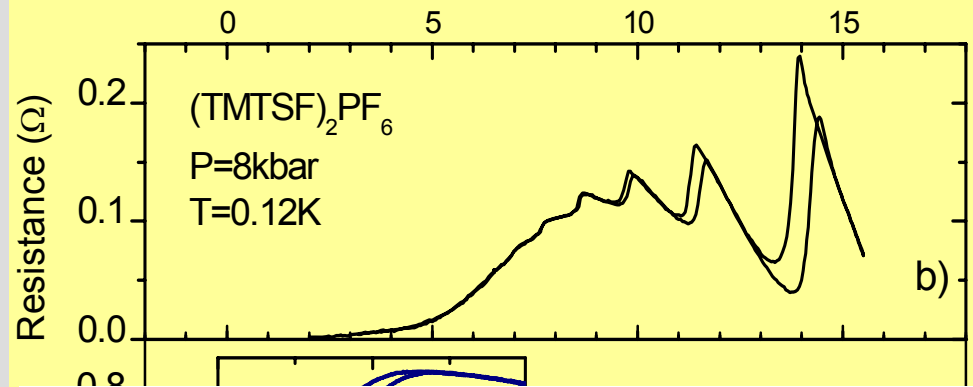
P. Chaikin et al. (1996)

A.V. Kornilov, V.P. et al *Phys. Rev. B* (2002)

4.5. Revision of the "Standard model"

Q: Whether the FISDW transitions are always of the 1st order?

No,
this is the case
only at low T 's



Revised FISDW phase diagram

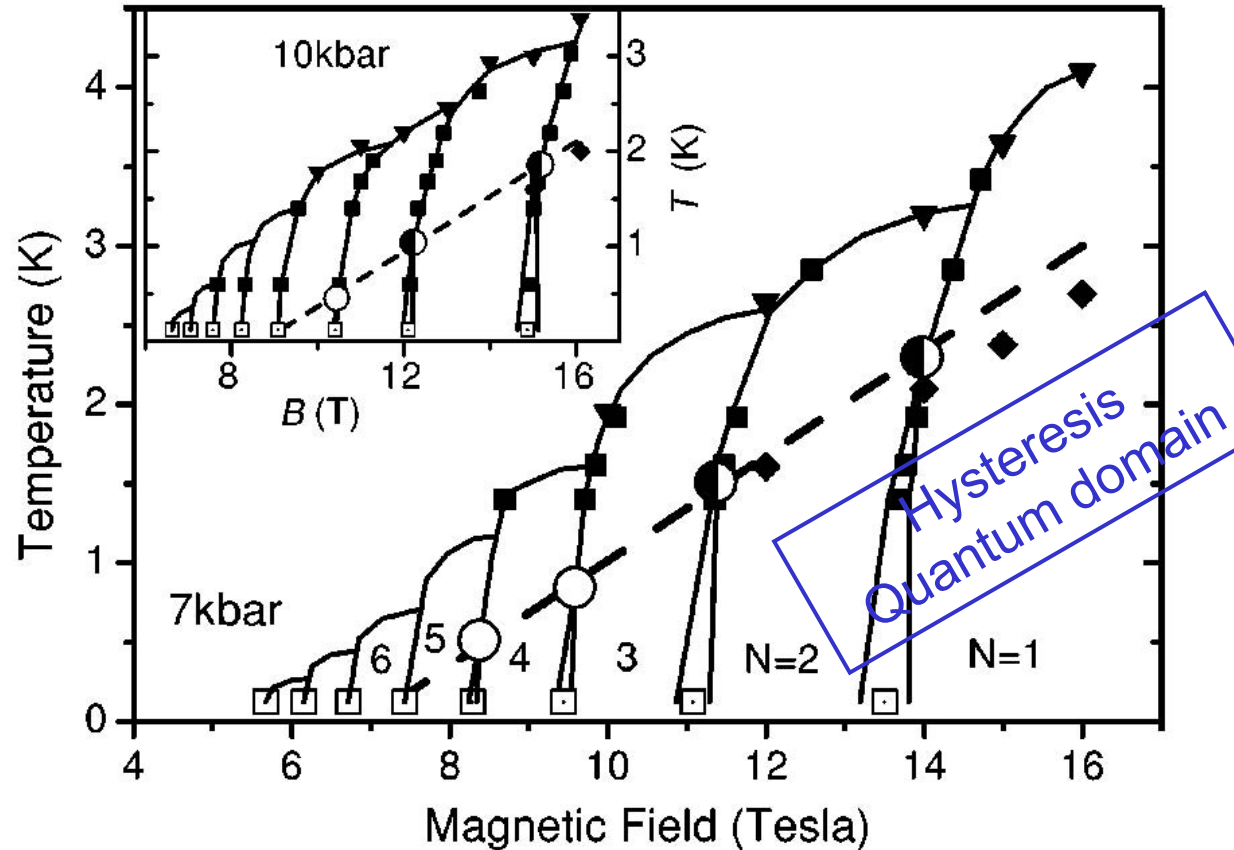
Lebed' revised model for FISDW (PRL 2002):

Low-T domain:

- quantum FISDW
- 1st order transitions
- hysteresis
- Jumps in the nesting vector

High T -domain:

- o Semiclassical FISDW
- o Crossovers
- o No hysteresis



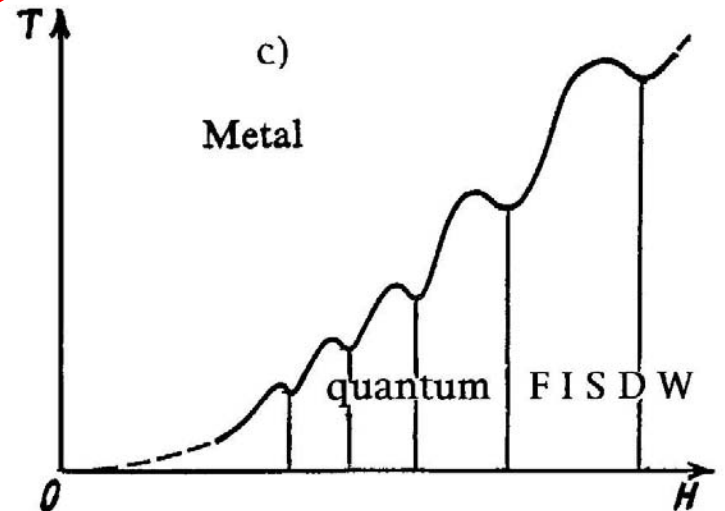
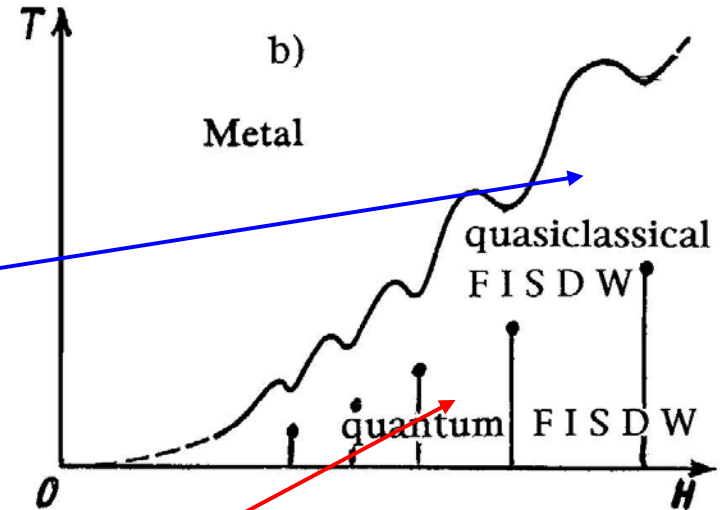
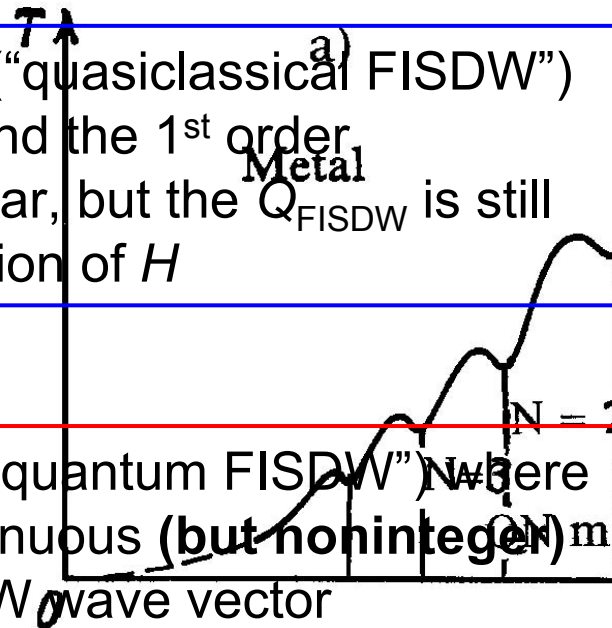
A.Корнилов, ВП и др. *Phys.Rev.B* (2002)

Revised QN model

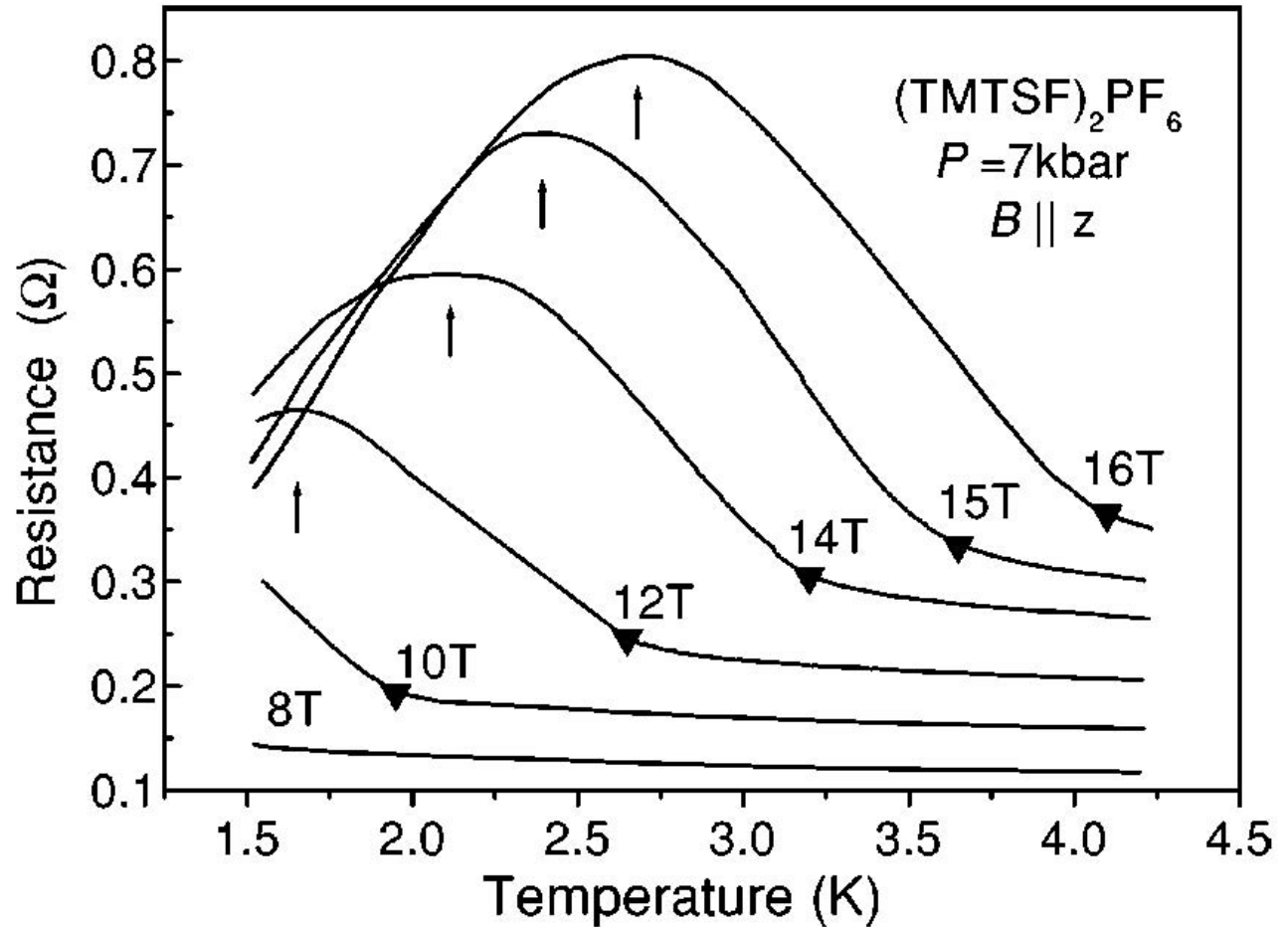
Standard model ignores the lack of e - h symmetry; it is valid (i) only roughly and (ii) for $\pi T_{\text{FISDW}}(N, H) < \hbar\omega_c$

✓ a high T -region ("quasiclassical FISDW") where the jumps and the 1st order transitions disappear, but the Q_{FISDW} is still an oscillating function of H

✓ a low- T region ("quantum FISDW") where there exist discontinuous (but noninteger) jumps of the FISDW wave vector

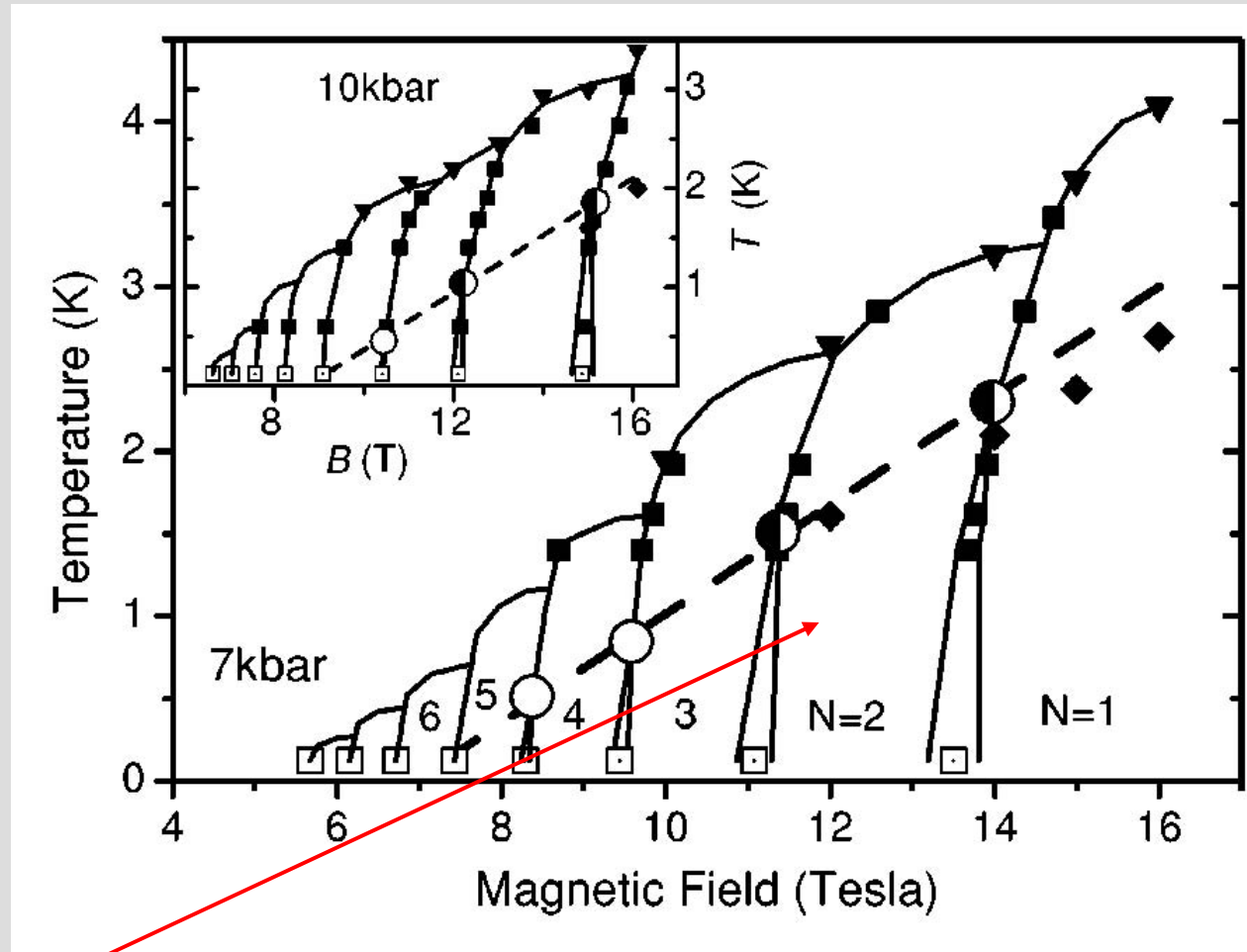


$R(T)$ maxima also occur at the same $T_0(H)$,
indicating its fundamental meaning



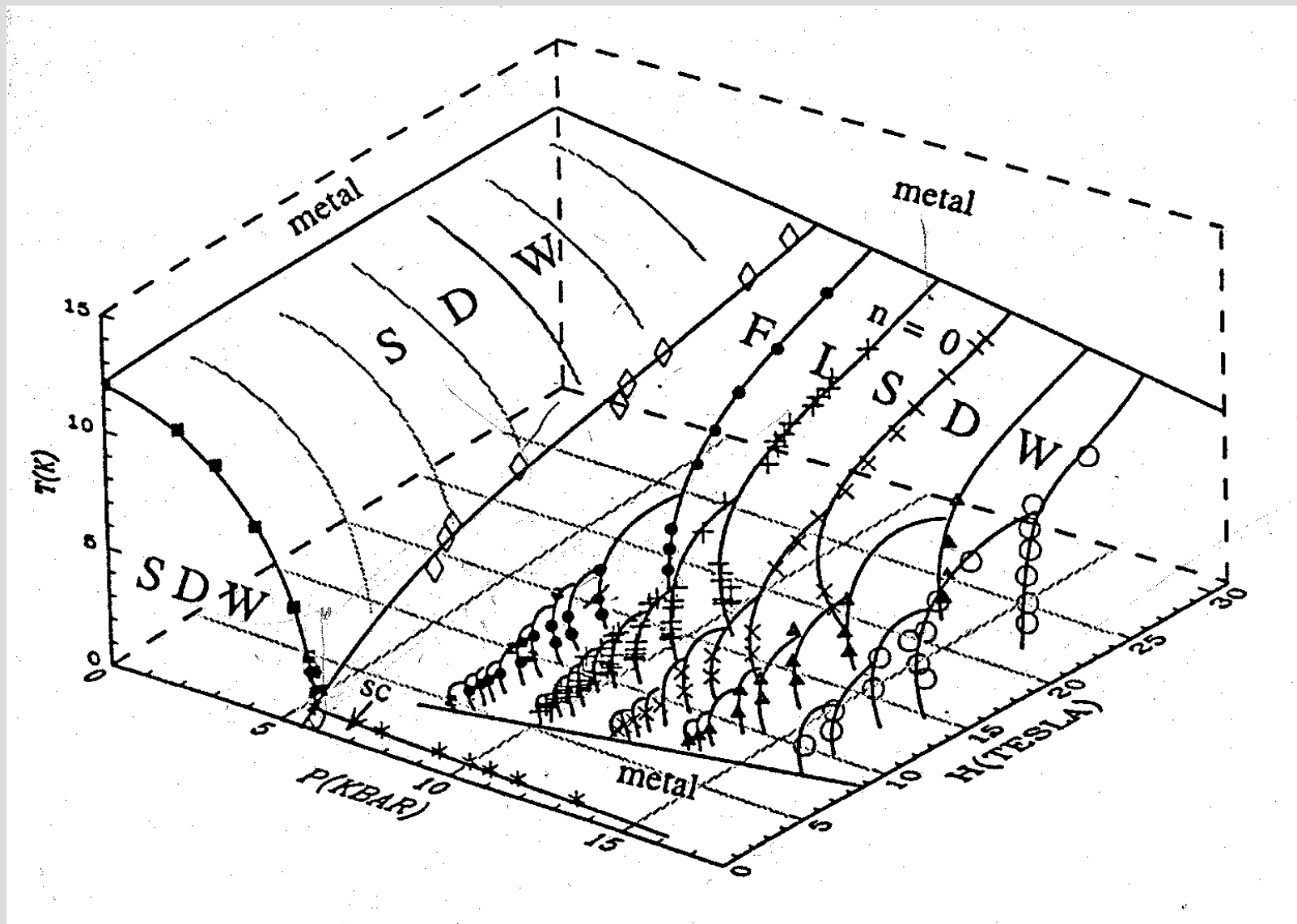
А.Корнилов, ВП и др. *Phys.Rev.B* (2002)

Theory conclusion (to be verified experimentally)

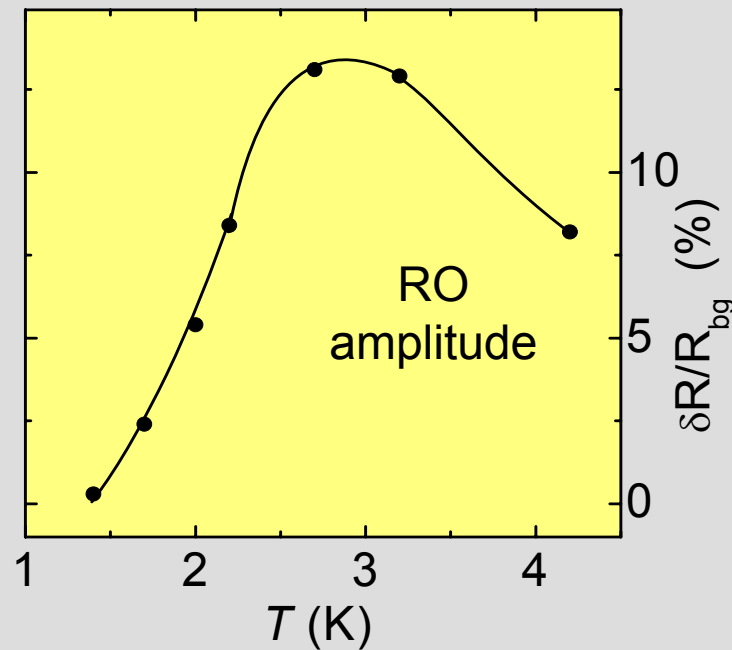
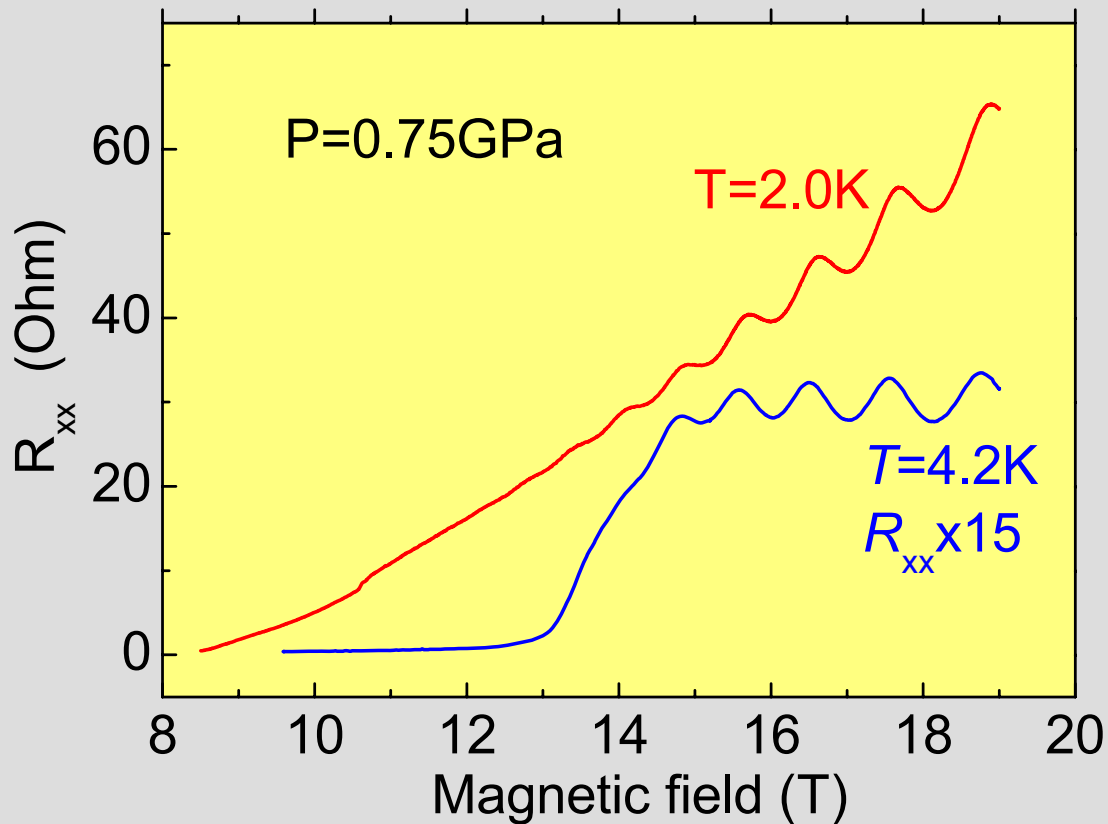


QHE may exist only in the [quantum FISDW domain](#), for $T < T_0(N, P)$
It can't be observed, e.g., for $N > 6$ at this pressure, 7kbar

5. "Rapid Oscillations" in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$



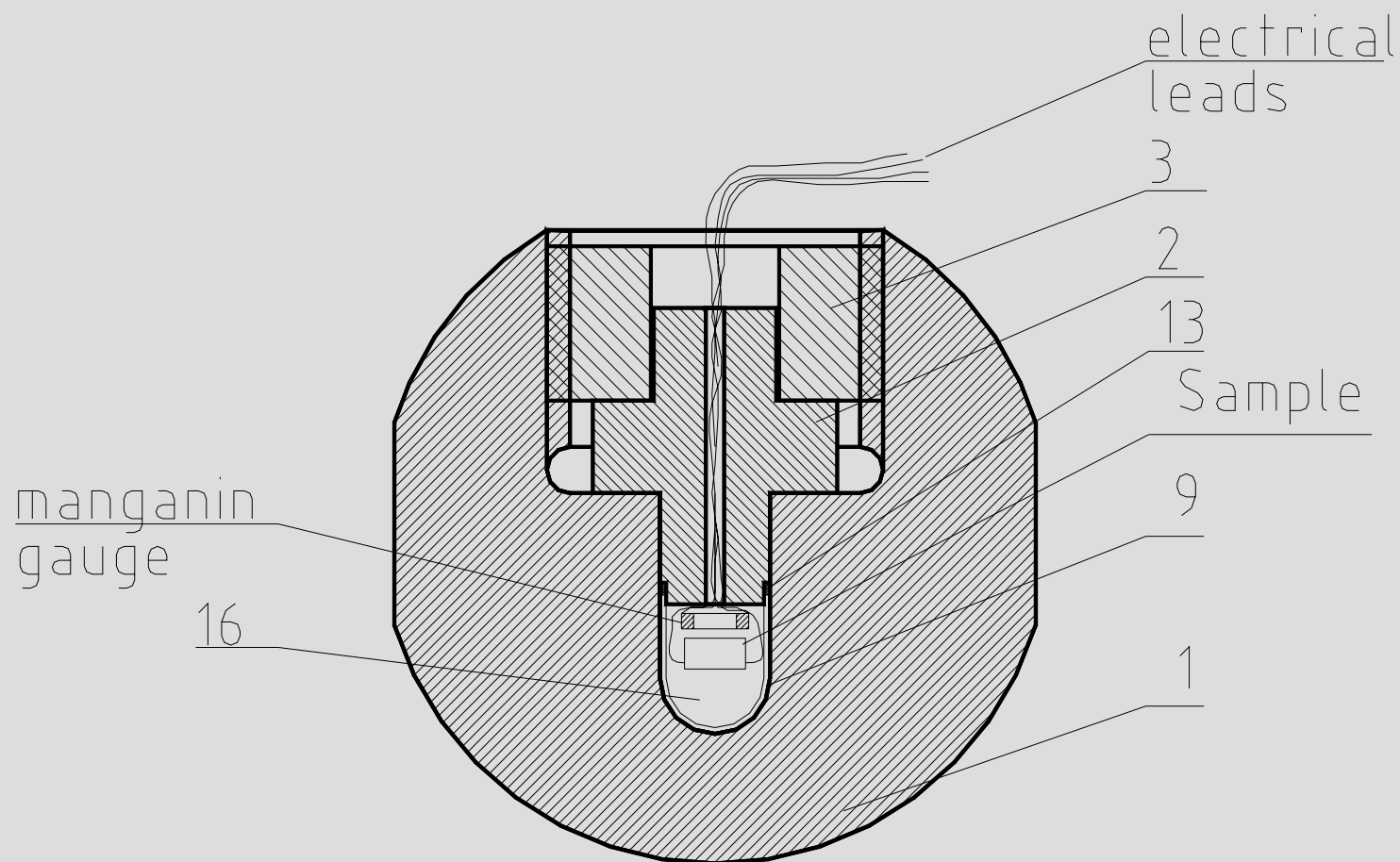
Загадка "Быстрых осцилляций" (RO) в фазе **изолятора**



Problems to be addressed:

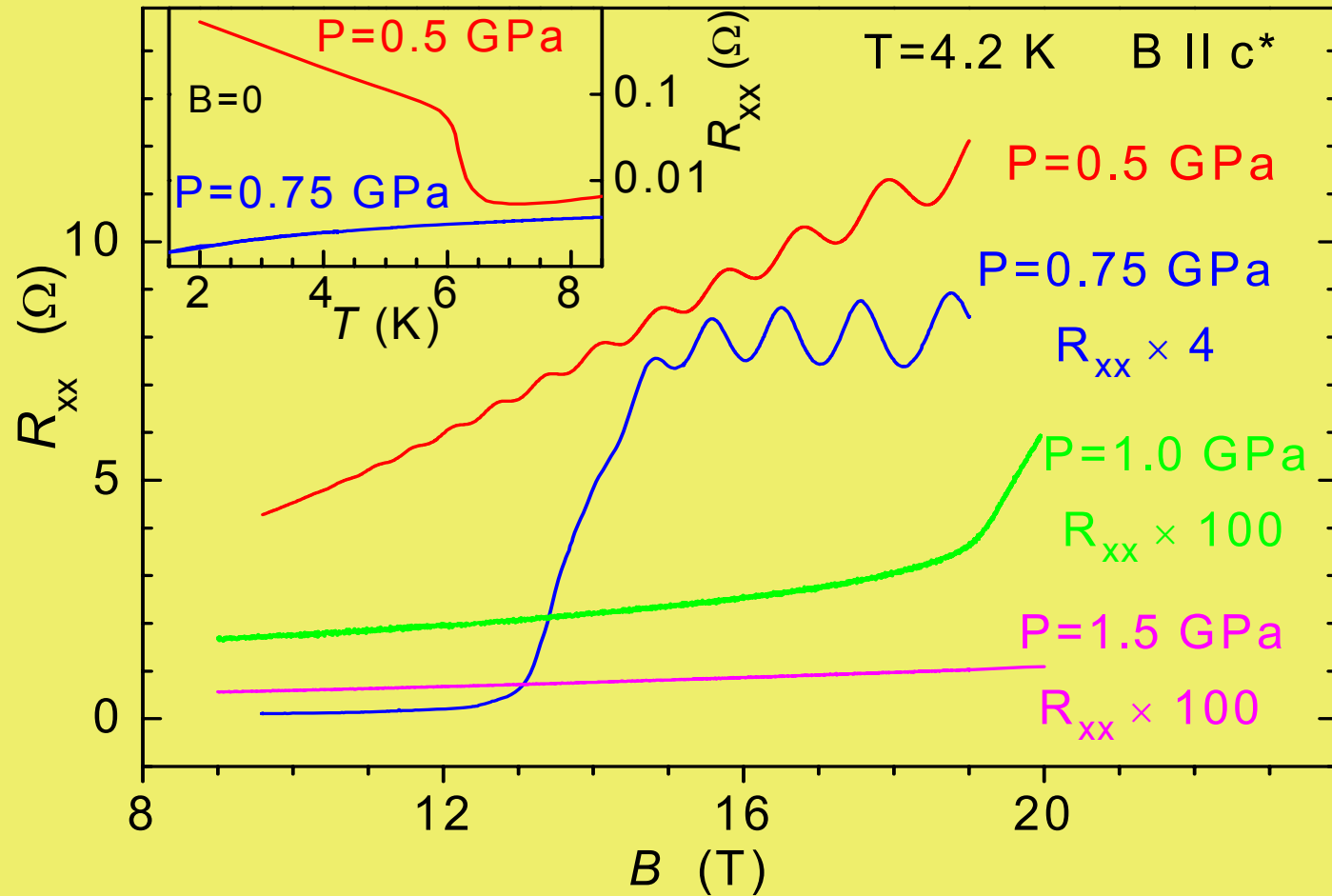
- Как/откуда возникают “Rapid Oscillations” (RO)?
- Куда/почему RO исчезают ?
- Как RO связаны со спиновым упорядочением ?

5.1. Сферическая камера высокого давления – источник новых экспериментальных данных!

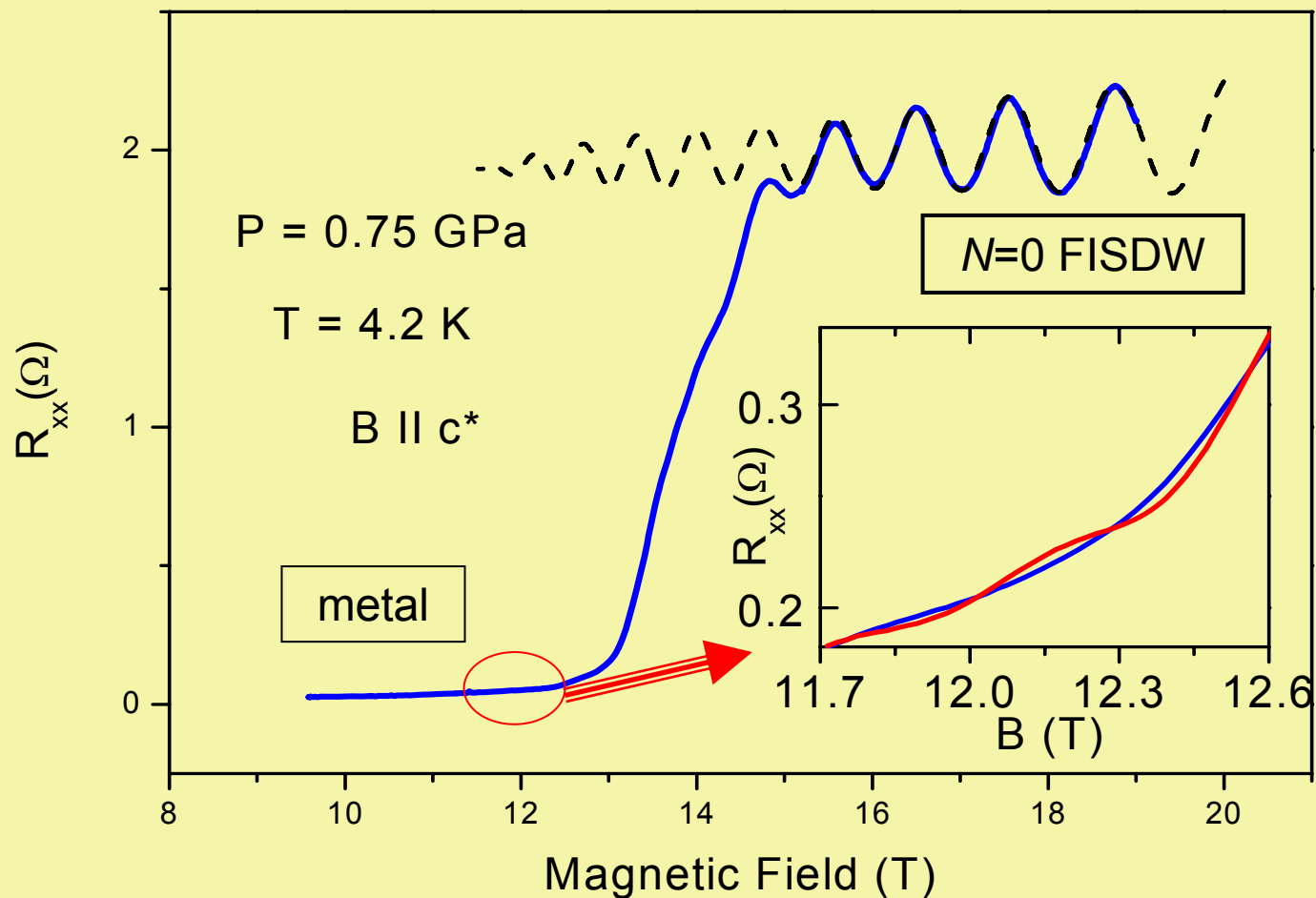


А.Корнилов, В.П., ПТЭ (1999)

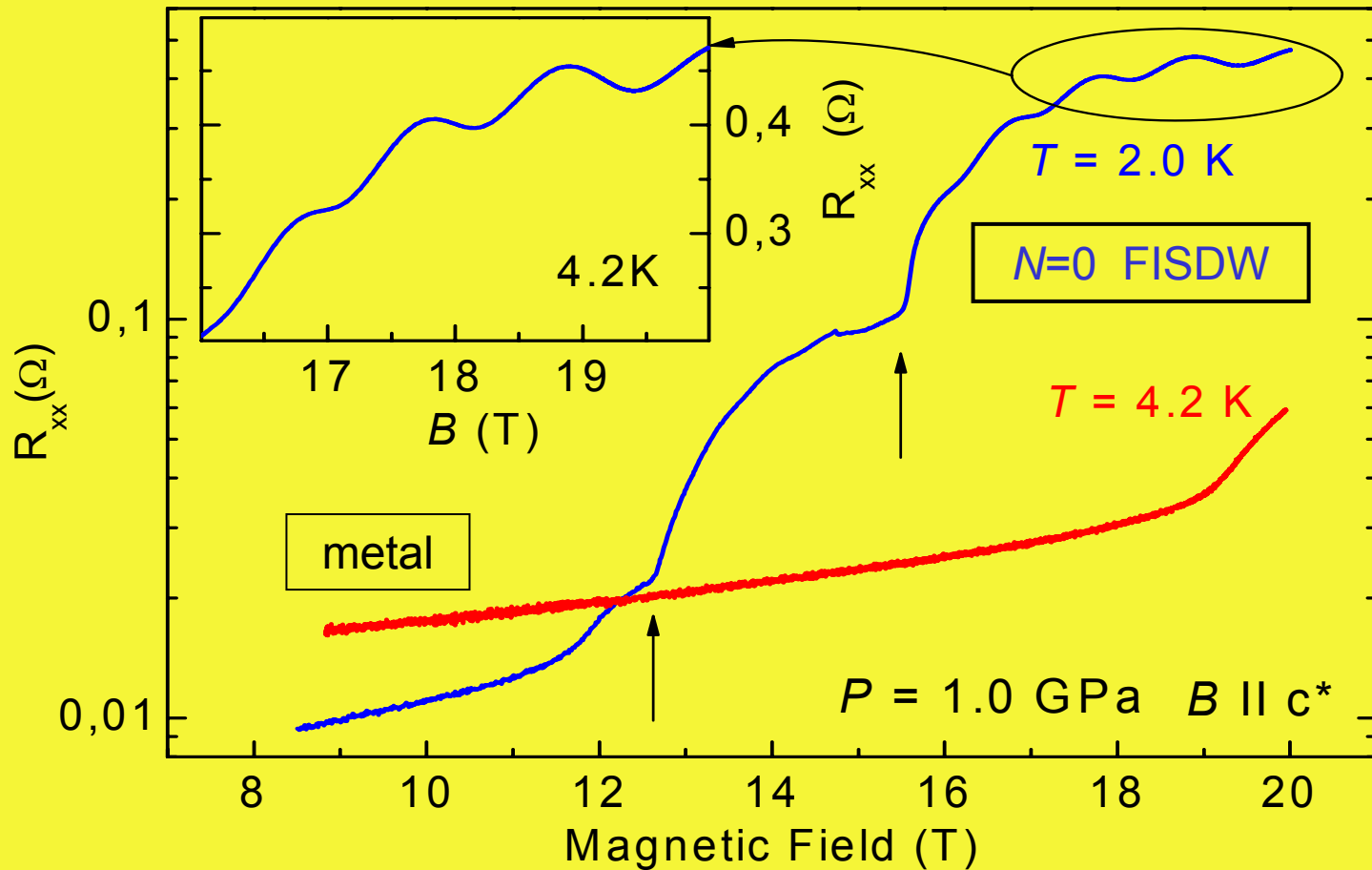
5.2. Existence of RO at different pressures



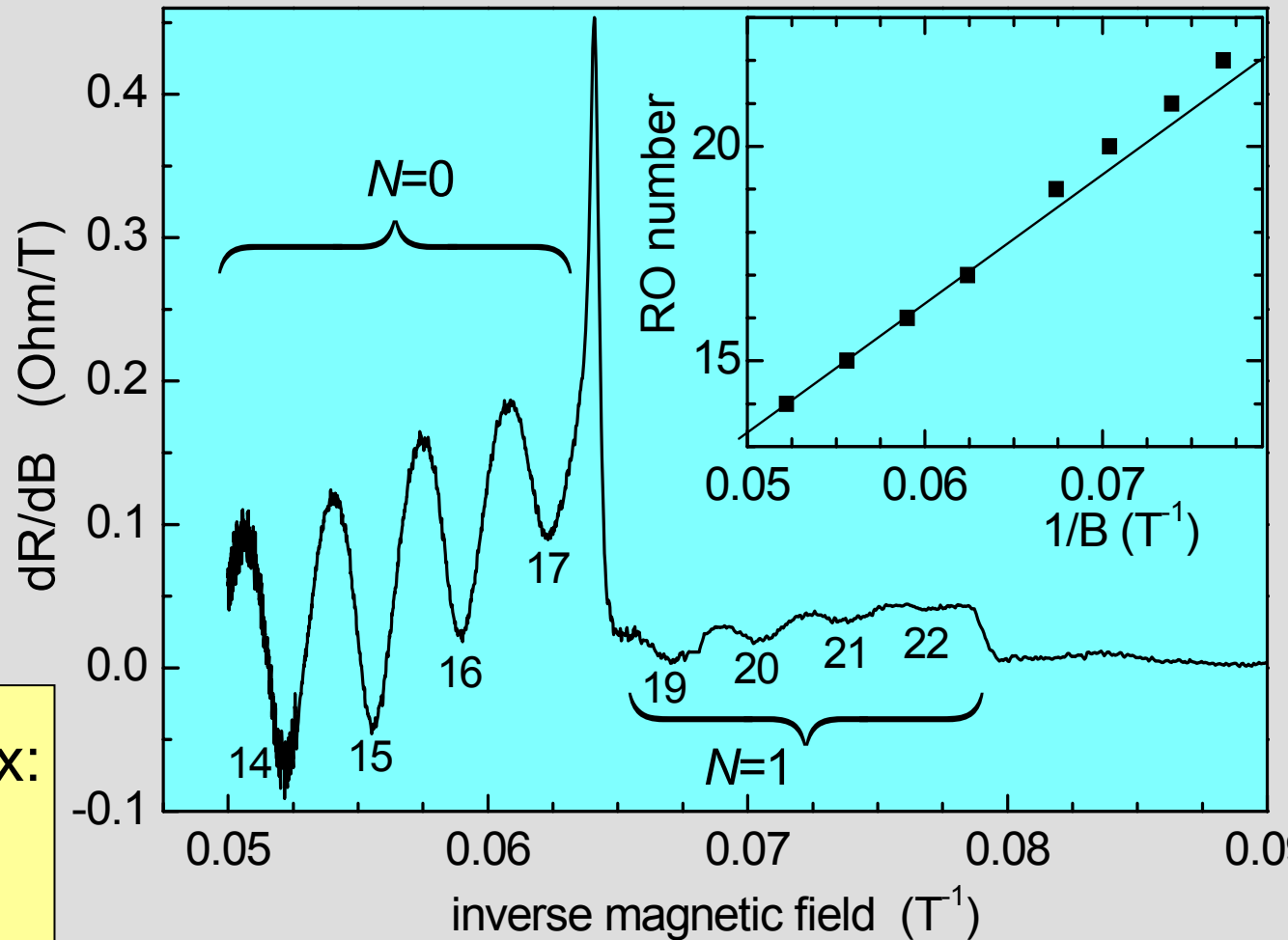
5.3. Existence of RO in different magnetic field ranges



5.4. Existence of RO at different temperatures



5.5. Existence of RO in various FISDW phases



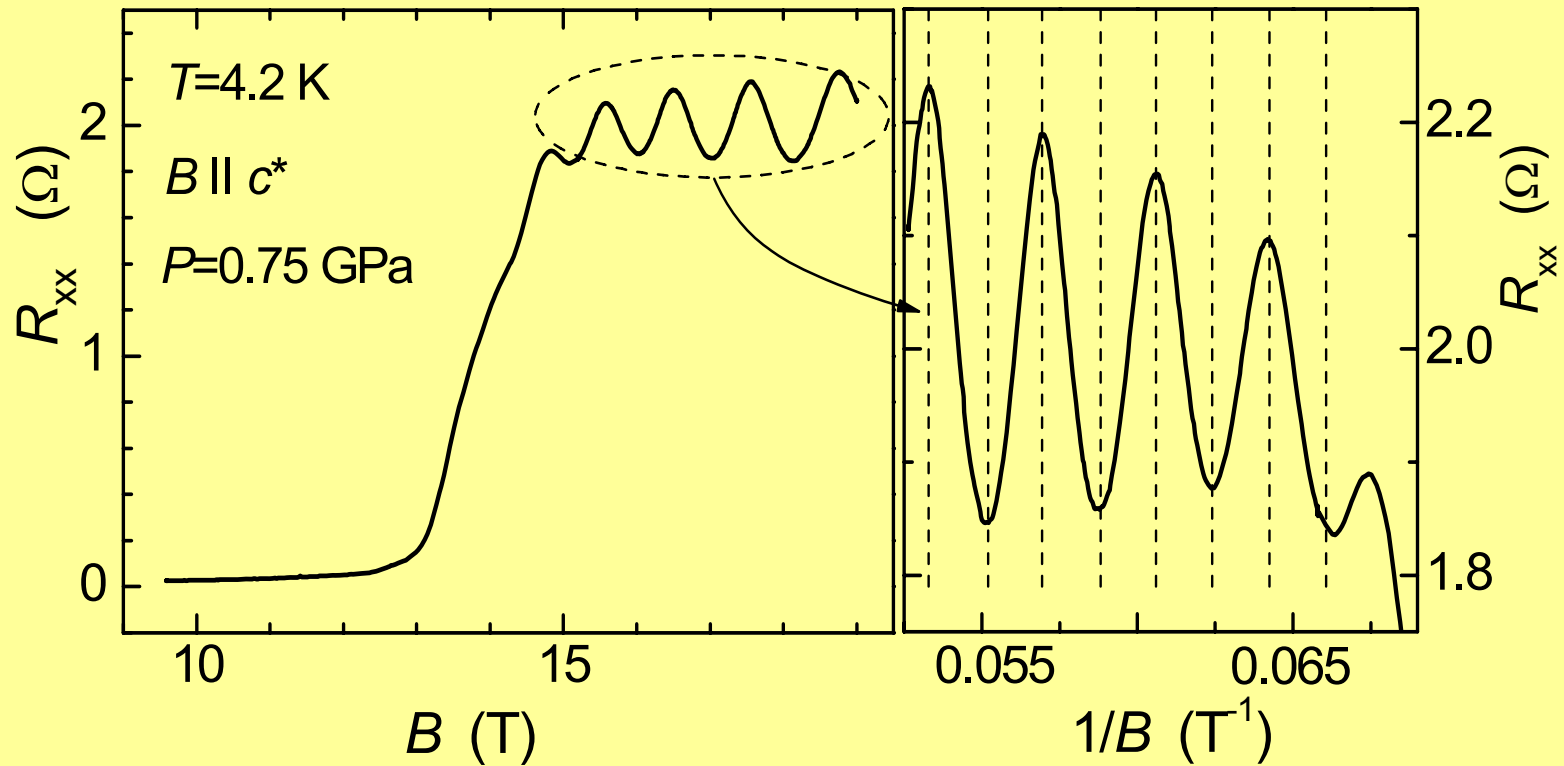
RO видны в фазах:

- SDW
- FISDW $N=0$
- FISDW $N=1$

Brief summary

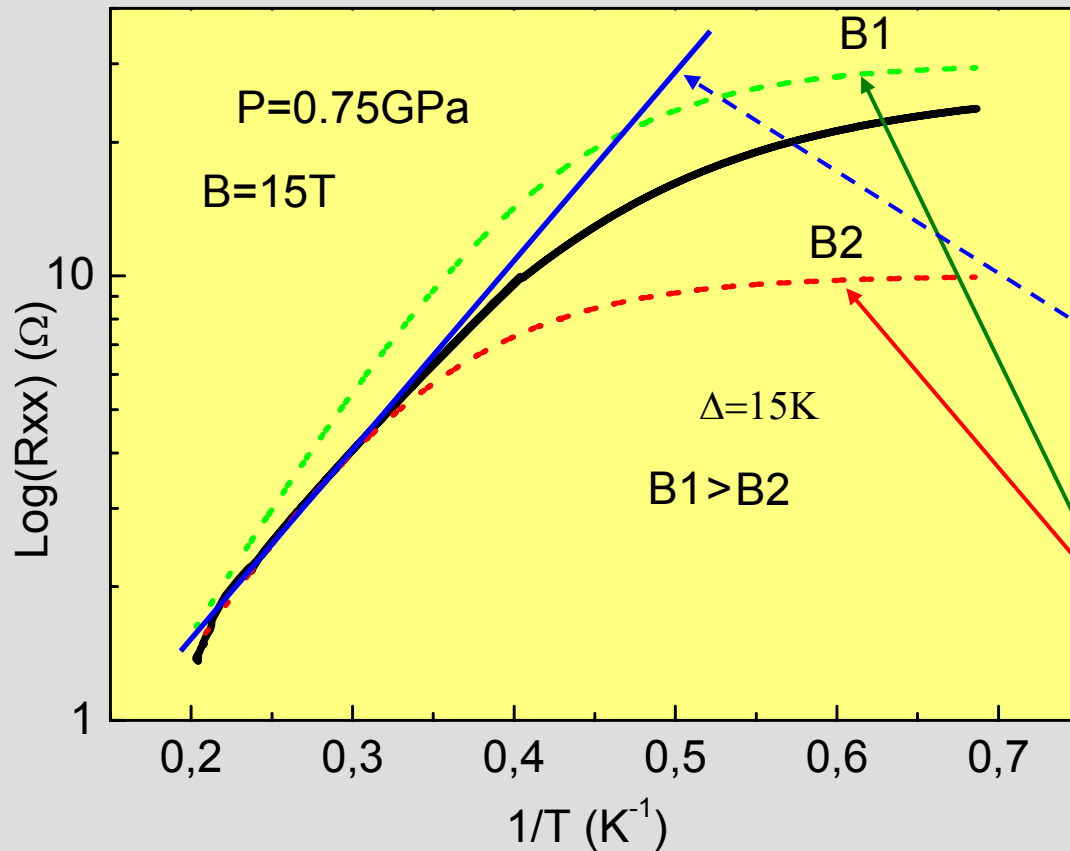
- RO in $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ do not exist in the metallic state
- RO are intrinsic to the Spin-Ordered State

5.6. $1/B$ periodicity of oscillations:



in the apparent insulating state
there exist “closed orbits” ?

5.7. Temperature dependence of the monotonic (background) resistance



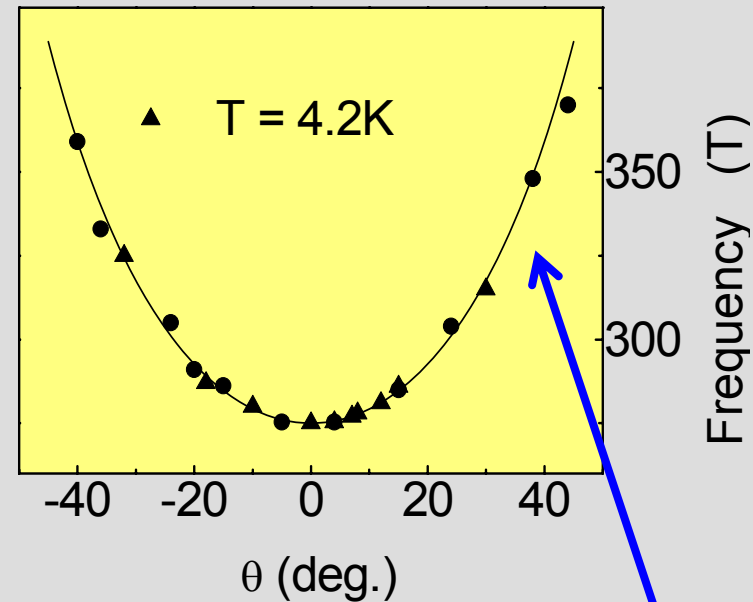
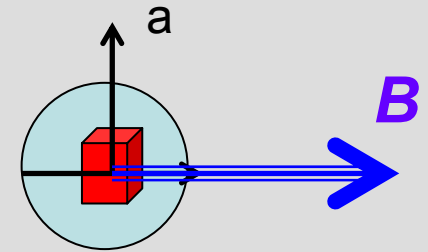
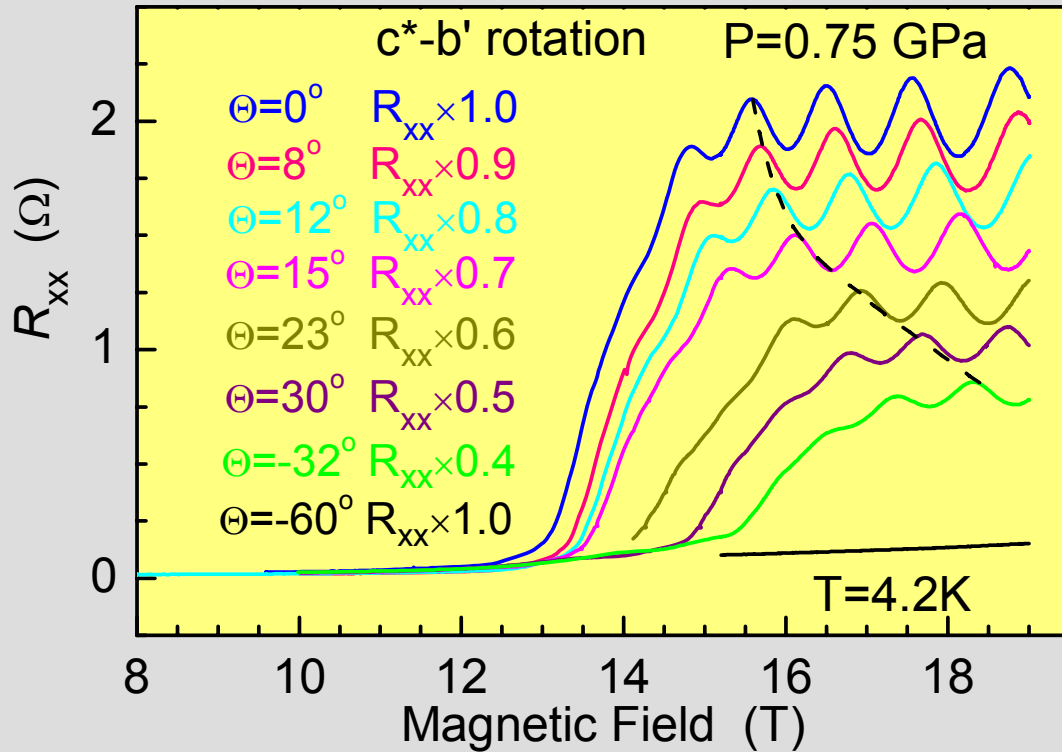
$$\sigma_{ins} + \sigma_{met}$$

$$\sigma_{ins} = A \exp\left(-\frac{\Delta}{T}\right)$$

$$\sigma_{met} = B = \text{const}$$

Looks like the delocalized states really exist

5.8. Rotation of the sample in magnetic field



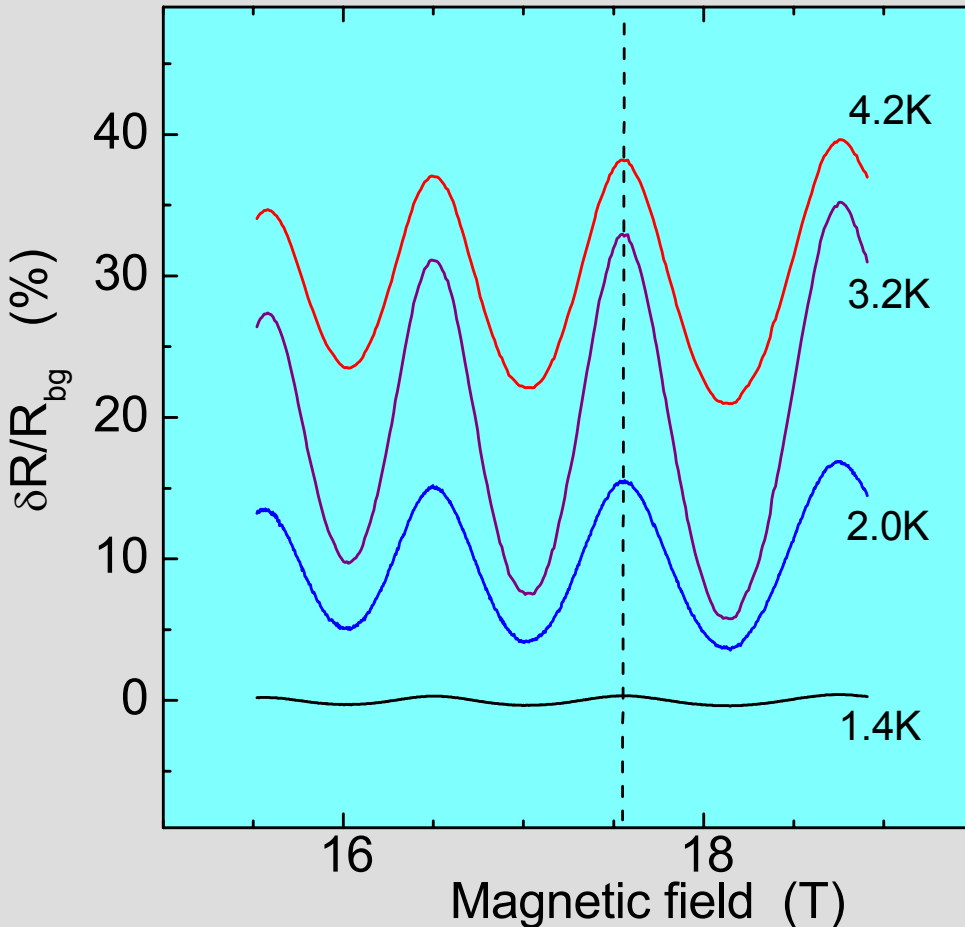
$275/\cos(\theta)$

The closed orbits are

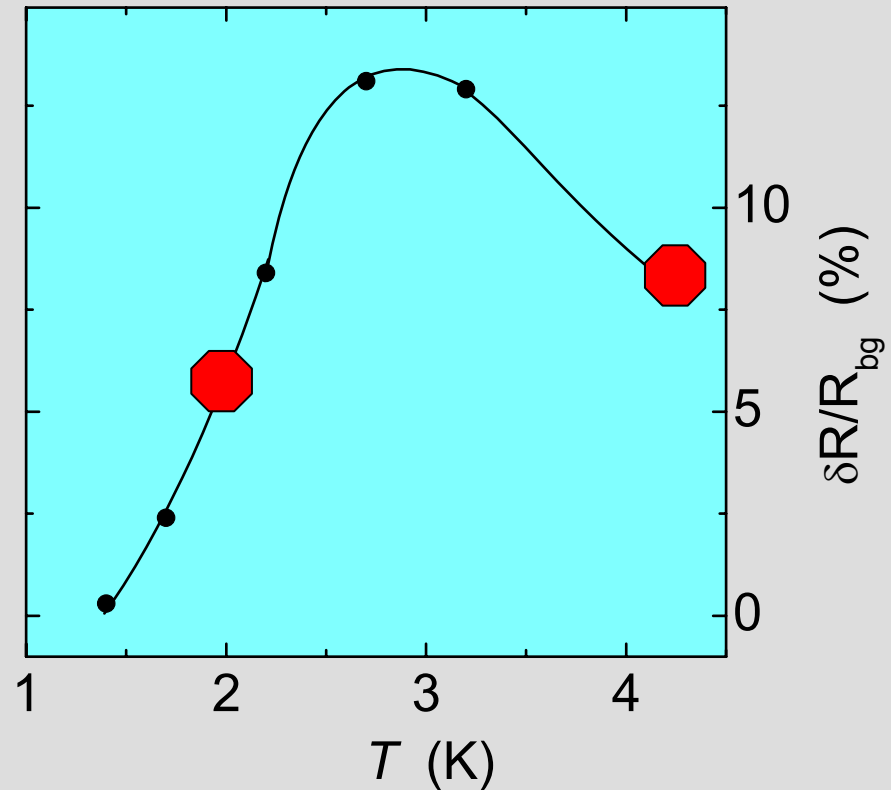
(1) two-dimensional;

(2) lie in the **a-b** crystal plane

5.9. Temperature dependence of the RO

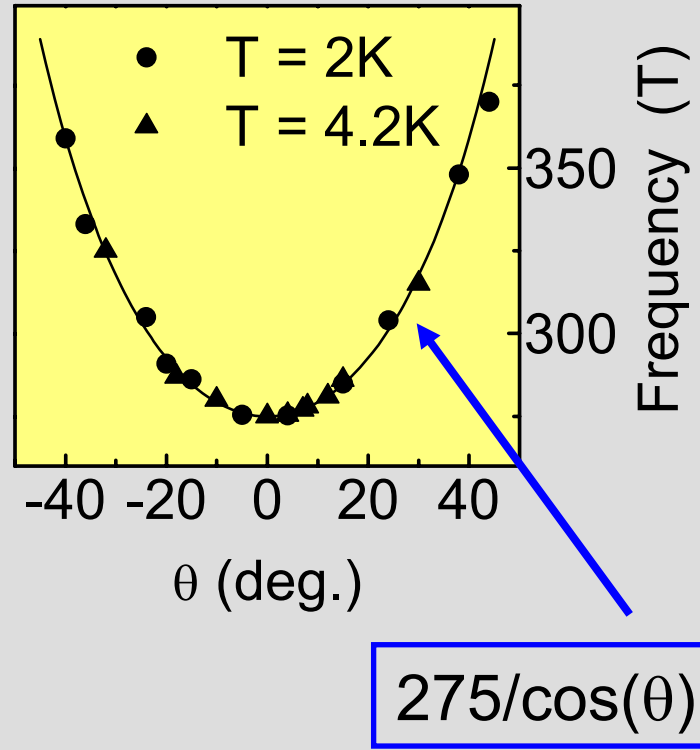
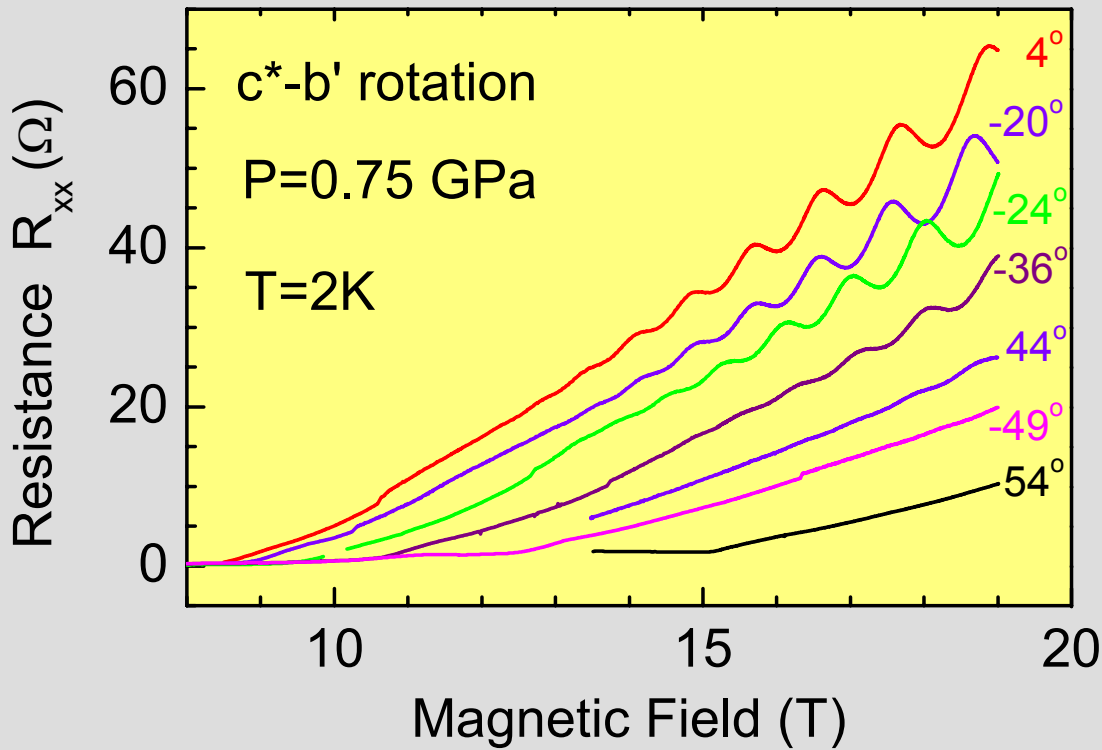


RO amplitude at $H = 17.5T$



RO disappear with lowering T , **however**
their frequency and phase are not changed

5.10. Rotation of the sample in magnetic field (Low T)



Despite weakening of the RO

neither size nor orientation of the closed orbits vary with T

With lowering \mathcal{T} :

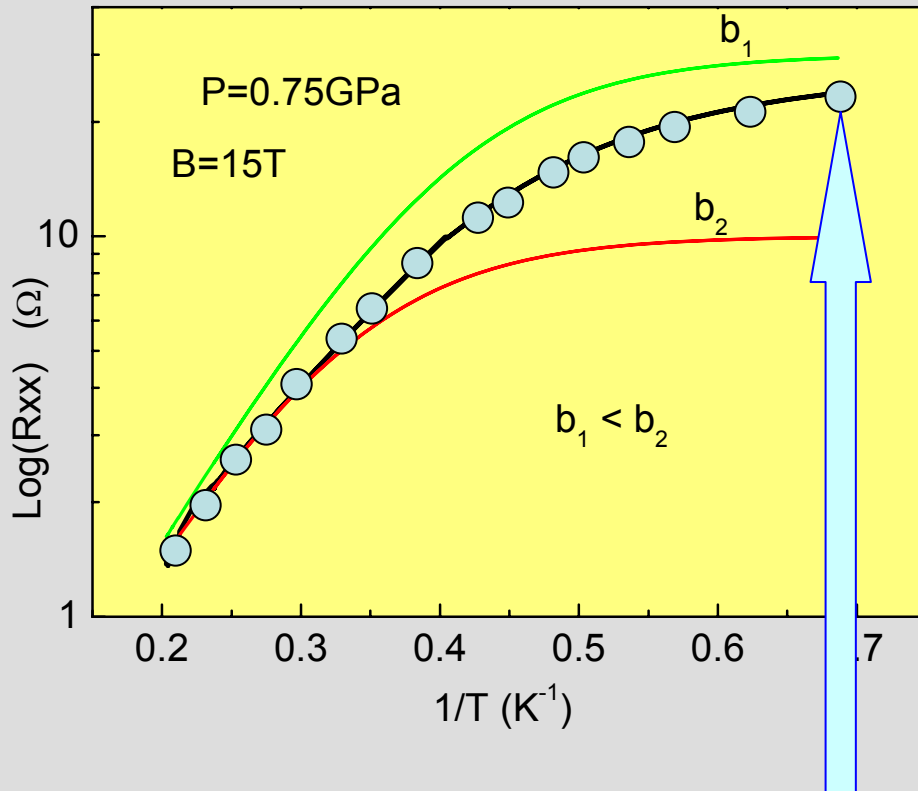
Closed orbits change
neither size, nor orientation.

However, RO disappear !

Conjecture:

the delocalized states are depopulated in
favor of the localized ones

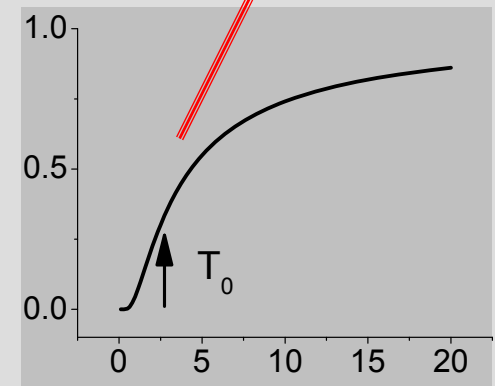
5.11. Back to the temperature dependence of resistance, now with an additional $\sigma_{met}(T)$ dependence



$$\sigma_{ins} + \sigma_{met}$$

$$\sigma_{ins} = A \exp\left(-\frac{\Delta}{T}\right)$$

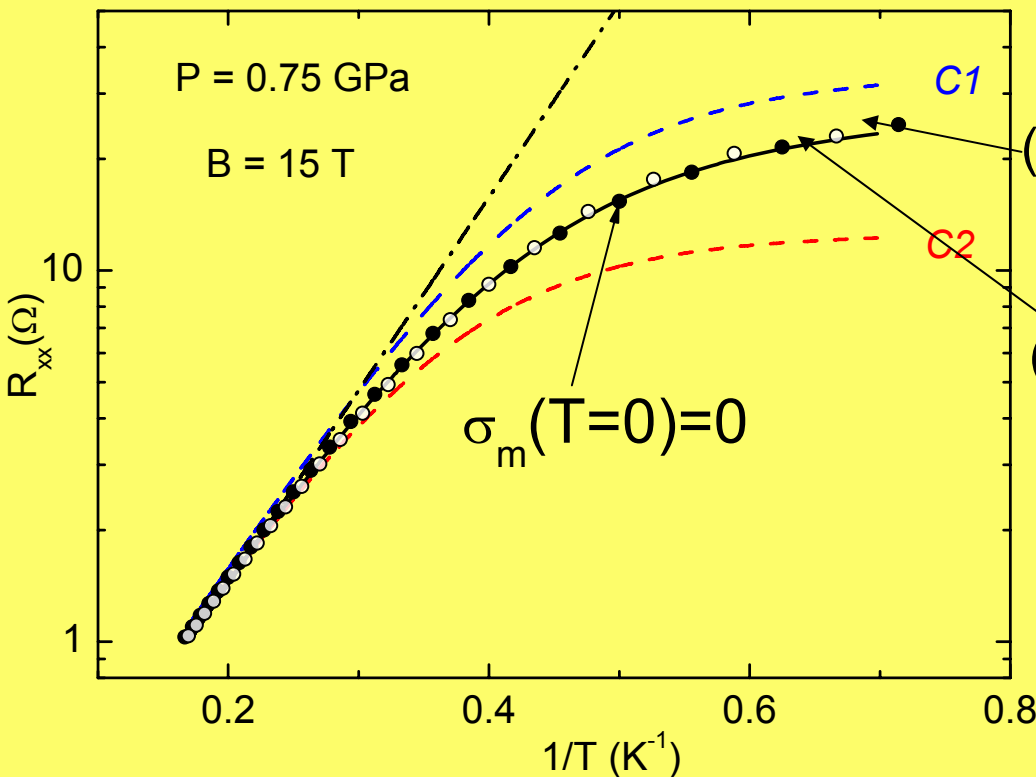
$$\sigma_{met} = b_1 + b_2 \exp\left(-\frac{T_0}{T}\right)$$



Perfect fit with parameters:

$$T_0=2.5\text{K}, \quad b_2/b_1 \sim 5, \quad \Delta=12\text{K}$$

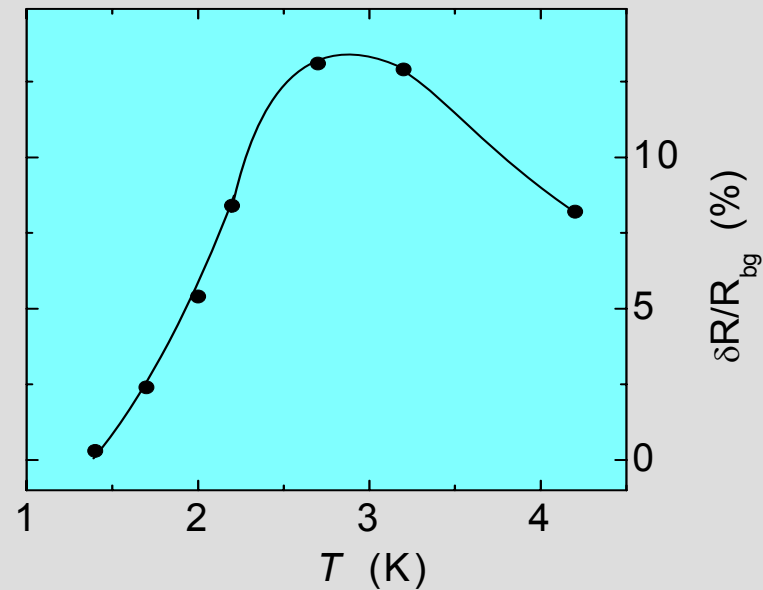
Другой способ эмпирического описания зависимости $R(T)$



Концентрация (делокализованных) носителей на 2D орбитах

$$(1) \quad n_m(T) = n_0 + n_2 \exp\left(-\frac{T_0}{T}\right)$$

$$(2) \quad n_m(T) = n_1 \left(\frac{\delta R}{R}\right)_{RO} \exp\left(+\frac{2\pi^2 kT}{\hbar\omega_c}\right)$$

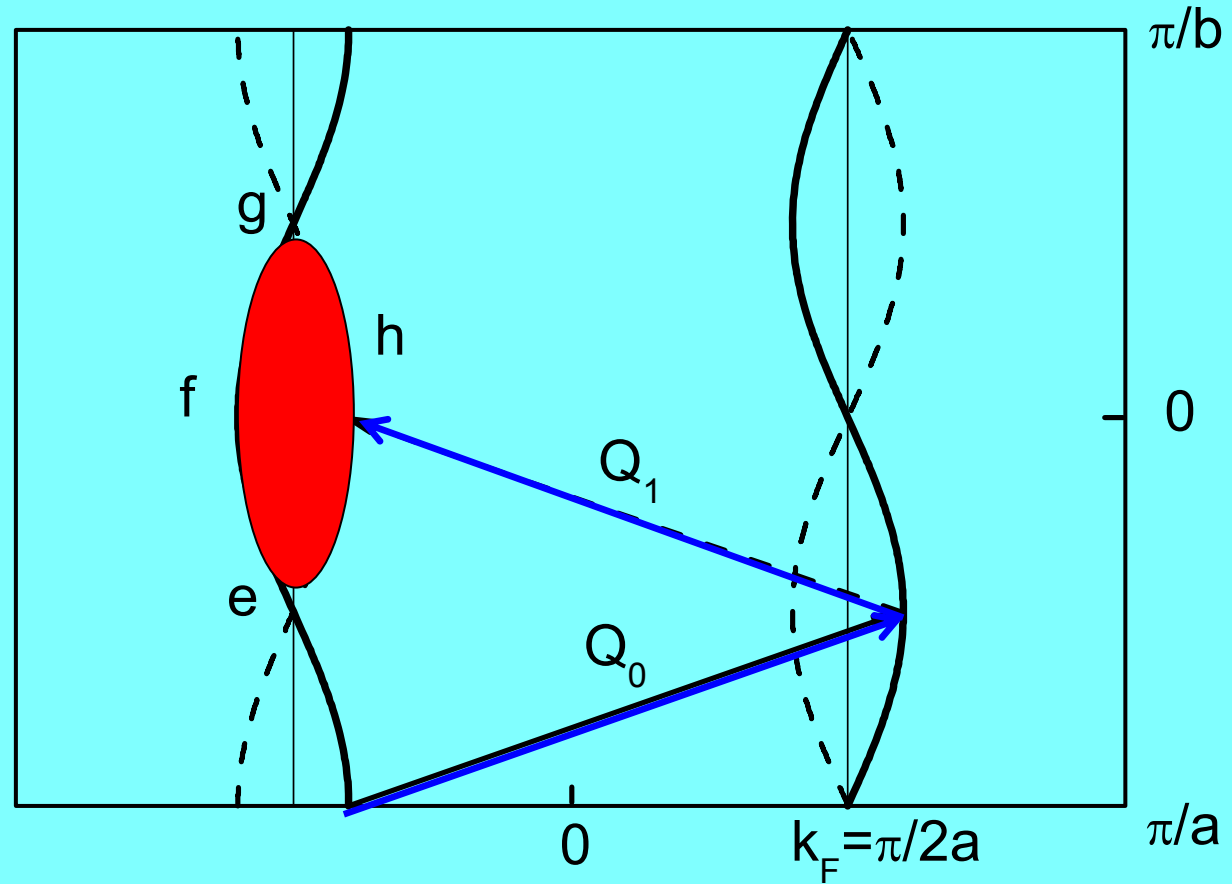


The main experimental results

- (1) RO are intrinsic to the **spin-ordered state**, solely
- (2) $1/B$ periodicity of RO and “imperfect” insulating behavior of $R(T) \Rightarrow$ the existence of **delocalized states (closed orbits) on the FS**
- (3) The pockets are **flat and lie in the a - b crystal plane**
- (4) The delocalized states are **depopulated** in favor of the localized ones, as T decreases

5.12. Две волны спиновой плотности

A.G.Lebed,
Physica Scripta, 1991

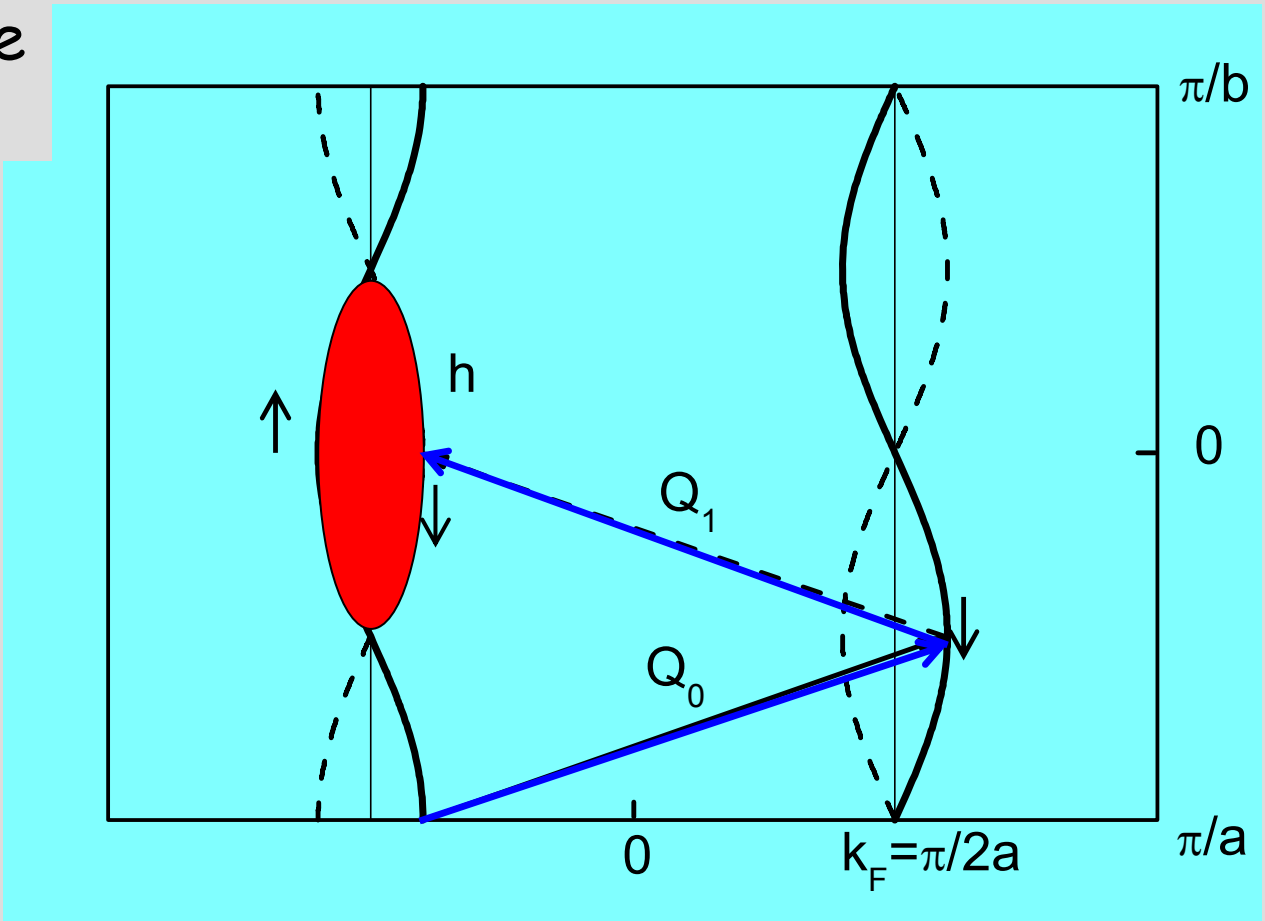
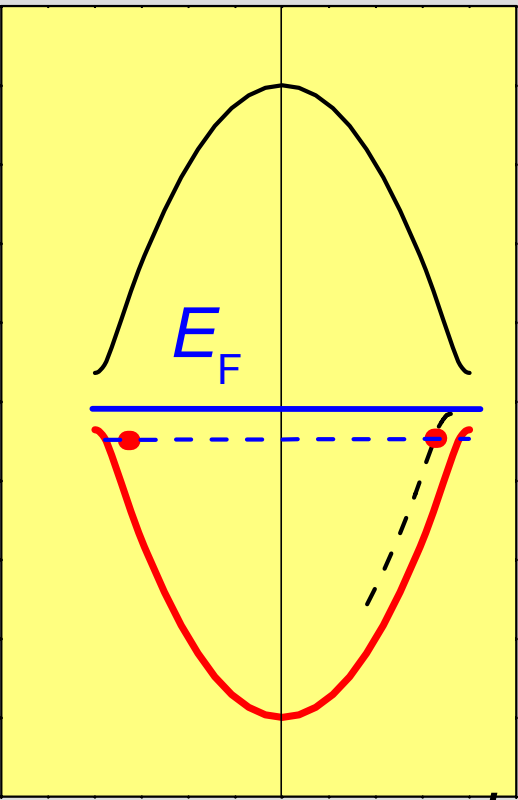


Q_1 – обусловлен процессами переброса

$$Q_1 = Q_0 - \frac{2\pi}{a} = Q_0 - 4k_F$$

$$\frac{4t_b}{\pi e b v_F} = 286T; \quad \frac{t_b = 200K}{v_F = 1.11 \cdot 10^5 \text{ m/s}}$$

5.12. Resonant state at Fermi level



Q_1 – due to Umklapp processes

$$Q_1 = Q_0 - \frac{2\pi}{a} = Q_0 - 4k_F$$

$$\frac{4t_b}{\pi e b v_F} = 286T; \quad \frac{t_b = 200K}{v_F = 1.11 \cdot 10^5 \text{ m/s}}$$

Conclusions

➤ **Причина возникновения RO:**

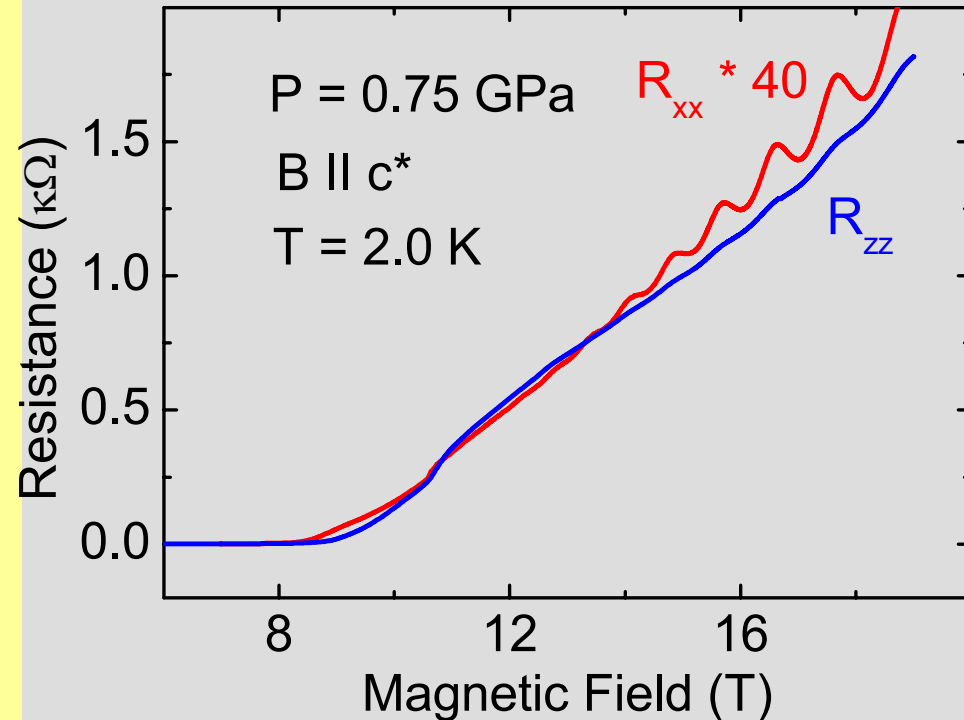
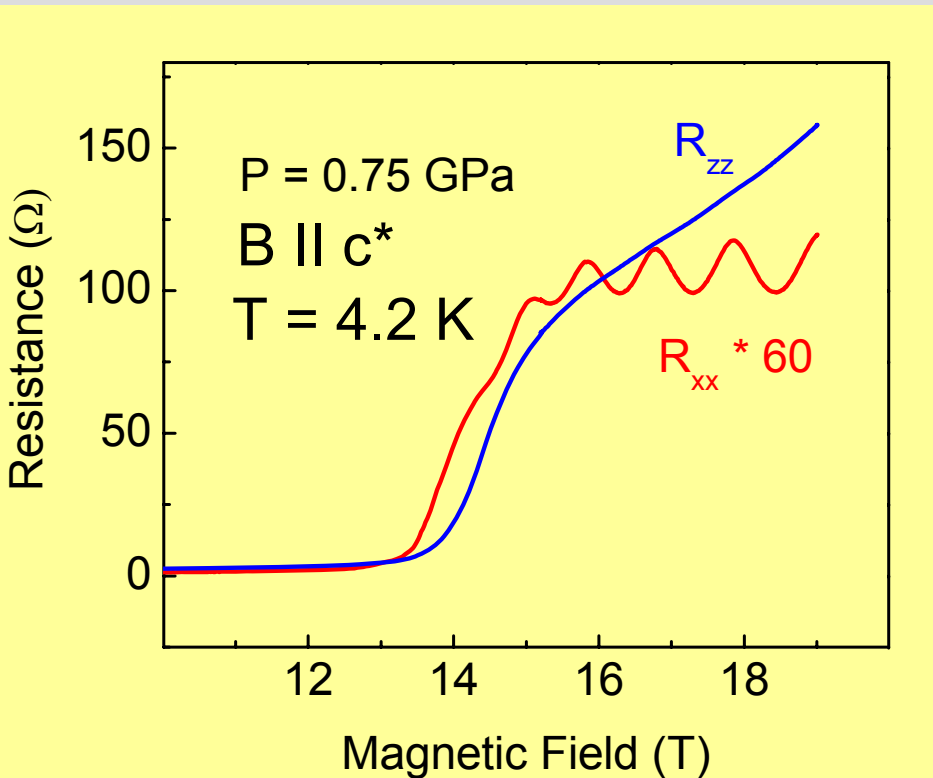
сосуществование 2-х SDW

➤ **Причина исчезновения RO:**

ослабление второй SDW (ослабление процессов переброса)

5.13. Когерентное квантовое движение (ПФ)

вдоль a



Движение по оси z :

некогерентное (нет ПФ)

когерентное (ПФ)

Более подробно про RO см. в:

1. A.V. Kornilov & V.M. Pudalov, in: *The Physics of Organic Superconductors and Conductors* (Springer-Verlag, 2007)
2. Kornilov A.V., Pudalov V.M. et al. Rapid Oscillations in (TMTSF)₂PF₆, *J. Low Temp. Phys.* **142**(3/4), 305 (2006)
3. A.V. Kornilov, V.M. Pudalov, A.-K. Klehe, et al., Origin of Rapid Oscillations in Low Dimensional (TMTSF)₂PF₆, cond-mat/0510666, *Phys. Rev. B*, **76**, 045109 (2007)
4. A.V. Kornilov, V.M. Pudalov, О существовании быстрых осцилляций в различных фазах волны спиновой плотности в (TMTSF)₂PF₆, *Письма в ЖЭТФ*, **84**(11), 744 (2006).

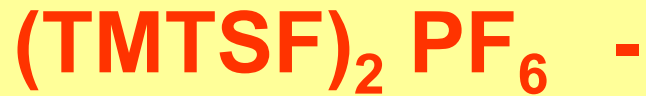
6. Фазовое расслоение на границе
сверхпроводящей, антиферромагнитной и
парамагнитной фаз в $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$

Phys. Rev. B **65** (2002)

JETP Letters **78** (1), (2003)

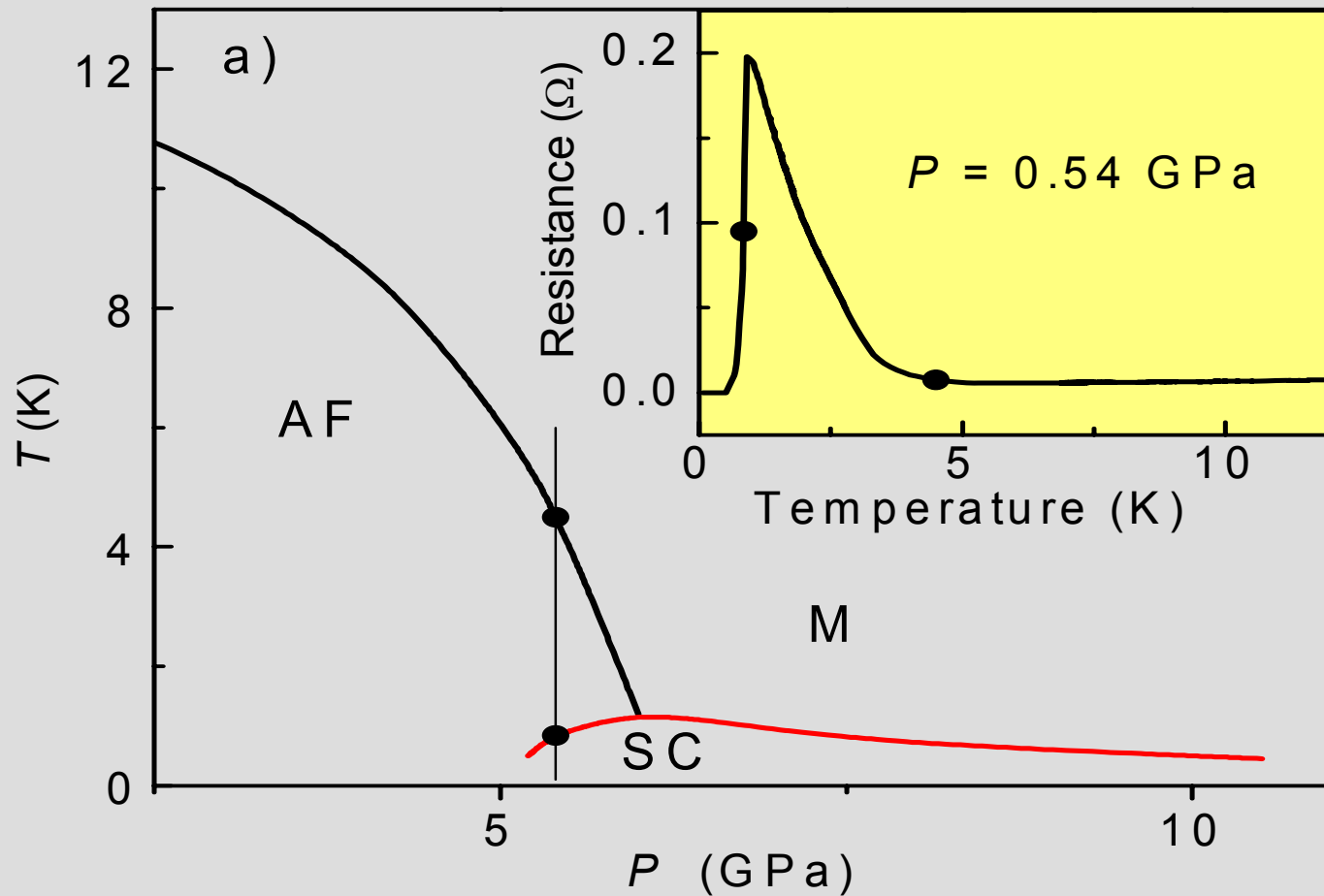
Phys. Rev. B **69** (2004)

Письма в ЖЭТФ (2004)



- ✓ металл,
- ✓ полупроводник,
- ✓ изолятор,
- ✓ сверхпроводник (триплетная СП),
- ✓ антиферромагнетик (SDW),
- ✓ квантованный холловский проводник - каскад FISDW- переходов 1го рода,

При изменении температуры, давления и магнитного поля



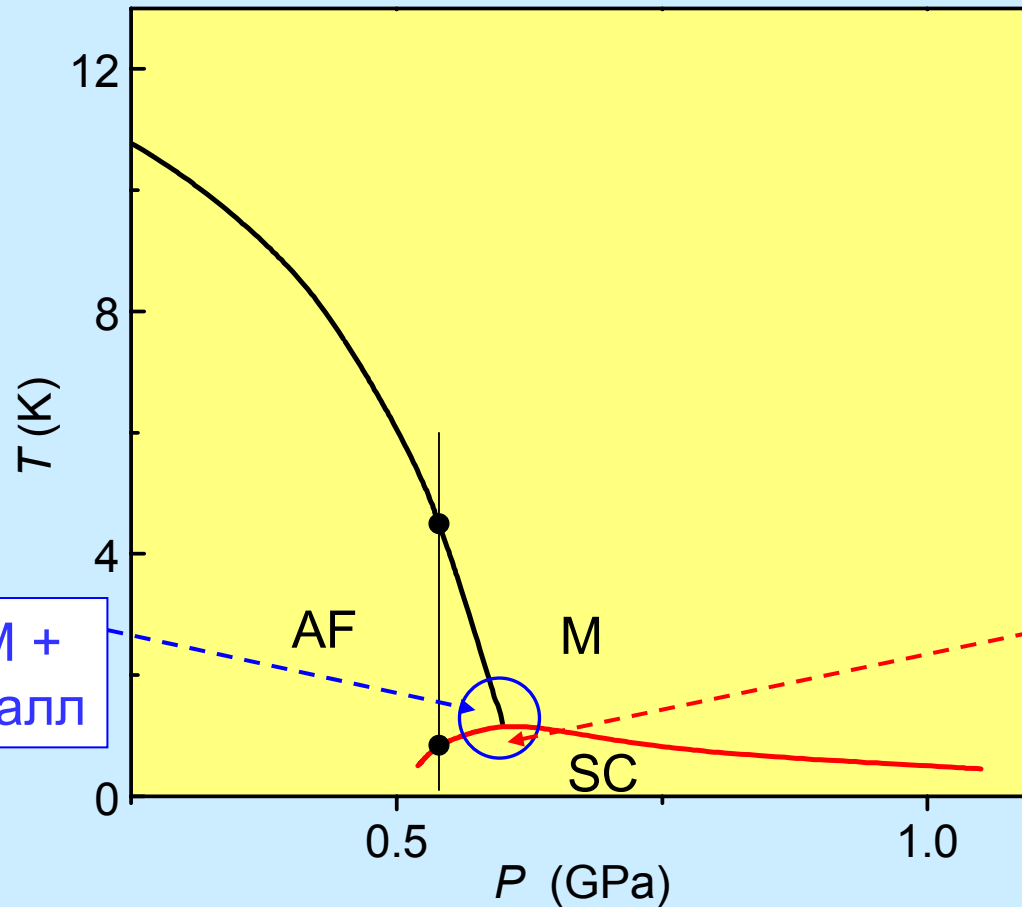
P - T фазовая диаграмма $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ при $B=0$.

M – парамагнитный металл,

AF – антиферромагнитный изолятор (**SDW**),

SC - сверхпроводник

6.1. Фазово-неоднородное смешанное состояние



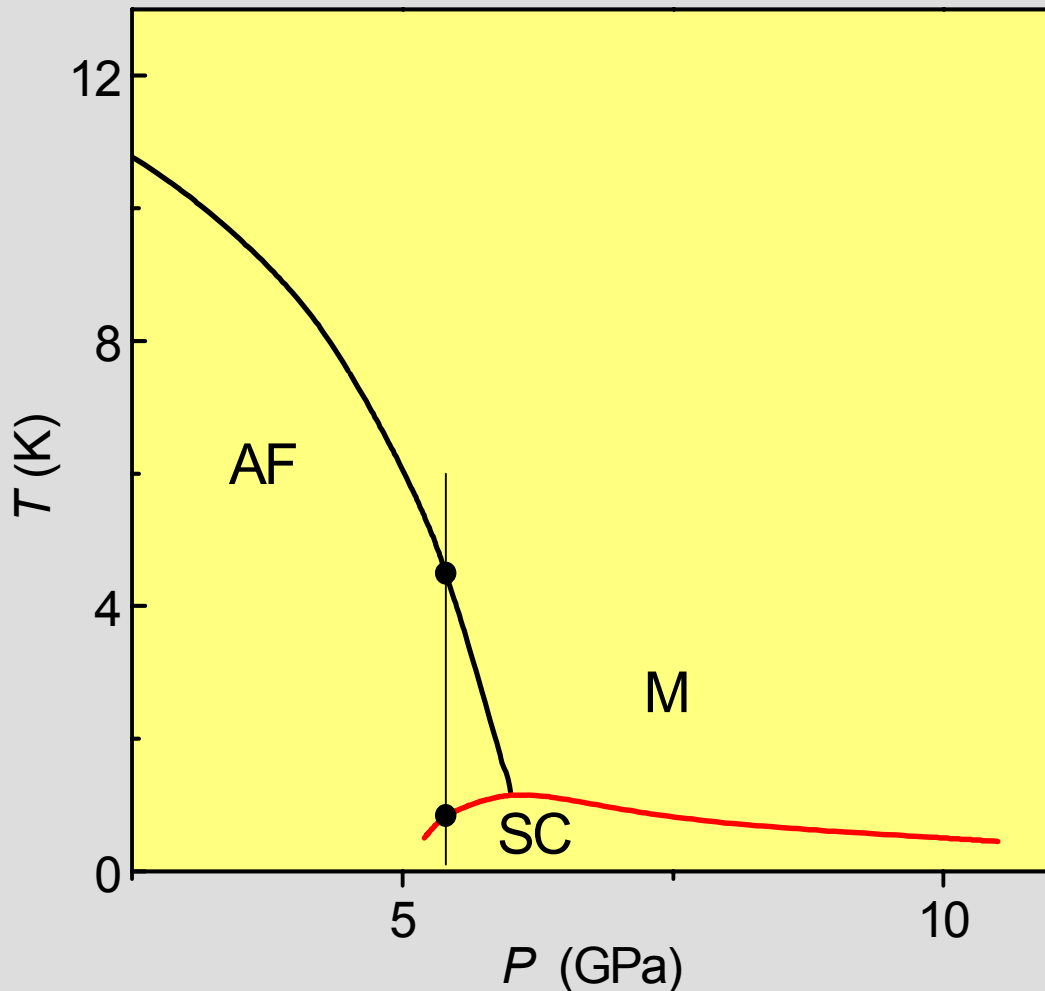
AFM +
металл

СПОНТАННО
ВОЗНИКАЕТ
вблизи границы
раздела фаз
M - SDW - Sc

Sc-AFM

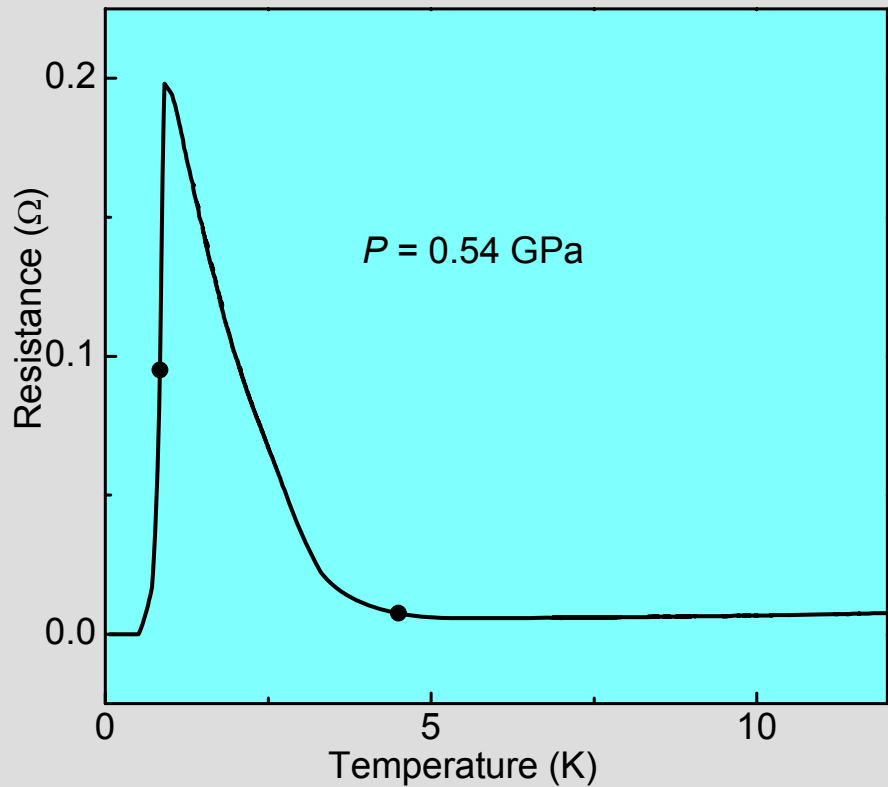
Фундаментальная проблема:

Взаимная игра между *AF* и *PM* состояниями,
характер фазовых переходов *SDW* \Leftrightarrow *Metal* \Leftrightarrow *SC*

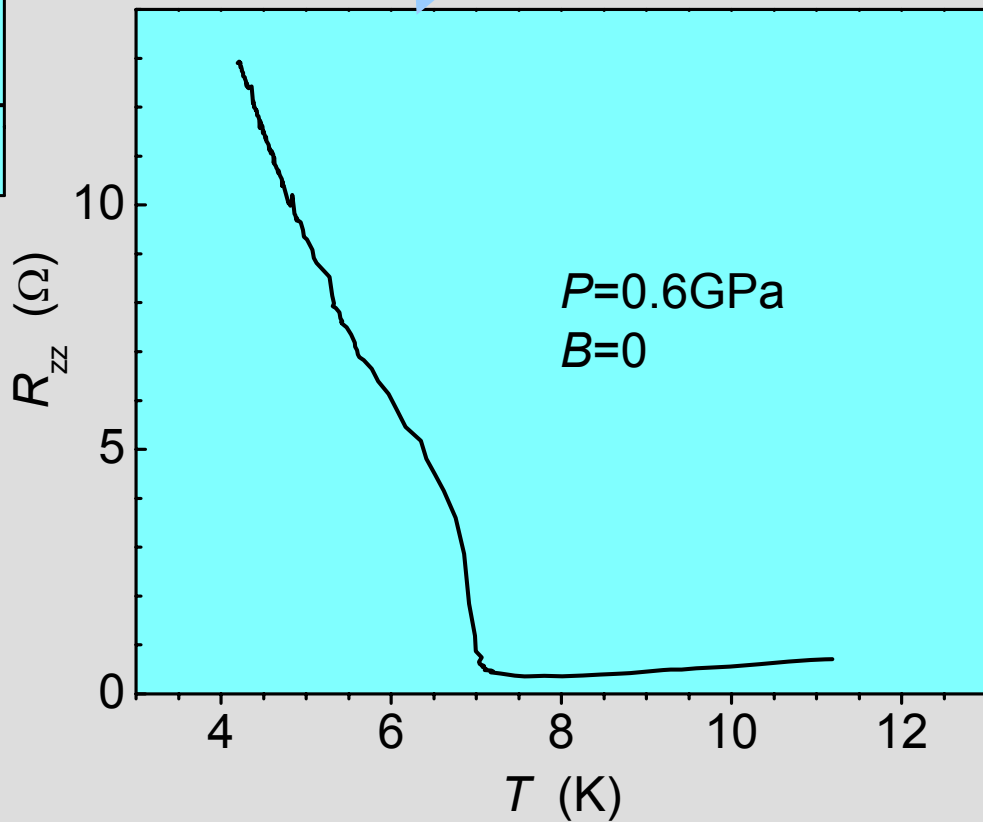


Фазовые переходы
могут происходить
между:

- Однородными состояниями
- Смешанными гетерофазными состояниями



**В транспорте,
переходы SDW-M и
SDW-SC являются
резкими**



Однако, более ранние результаты по ^{77}Se ЯМР указывают на размытый переход SDW-M

Возможные двухфазные состояния:

- Микроскопически-смешанное, SO(5) ?
- **Макроскопически-смешанное с пространственным разделением фаз ?**

Azevedo, Shirber, Engler
Phys Rev B (1983)

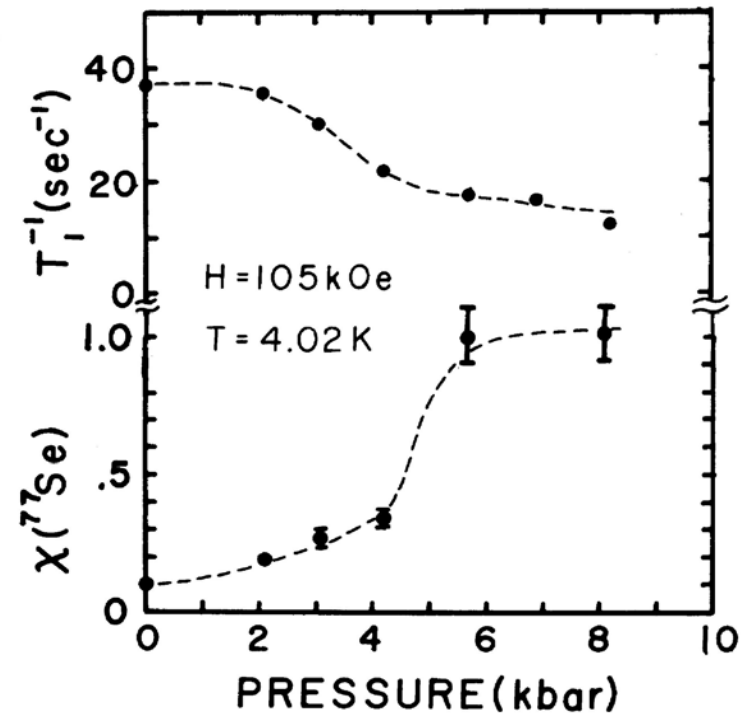
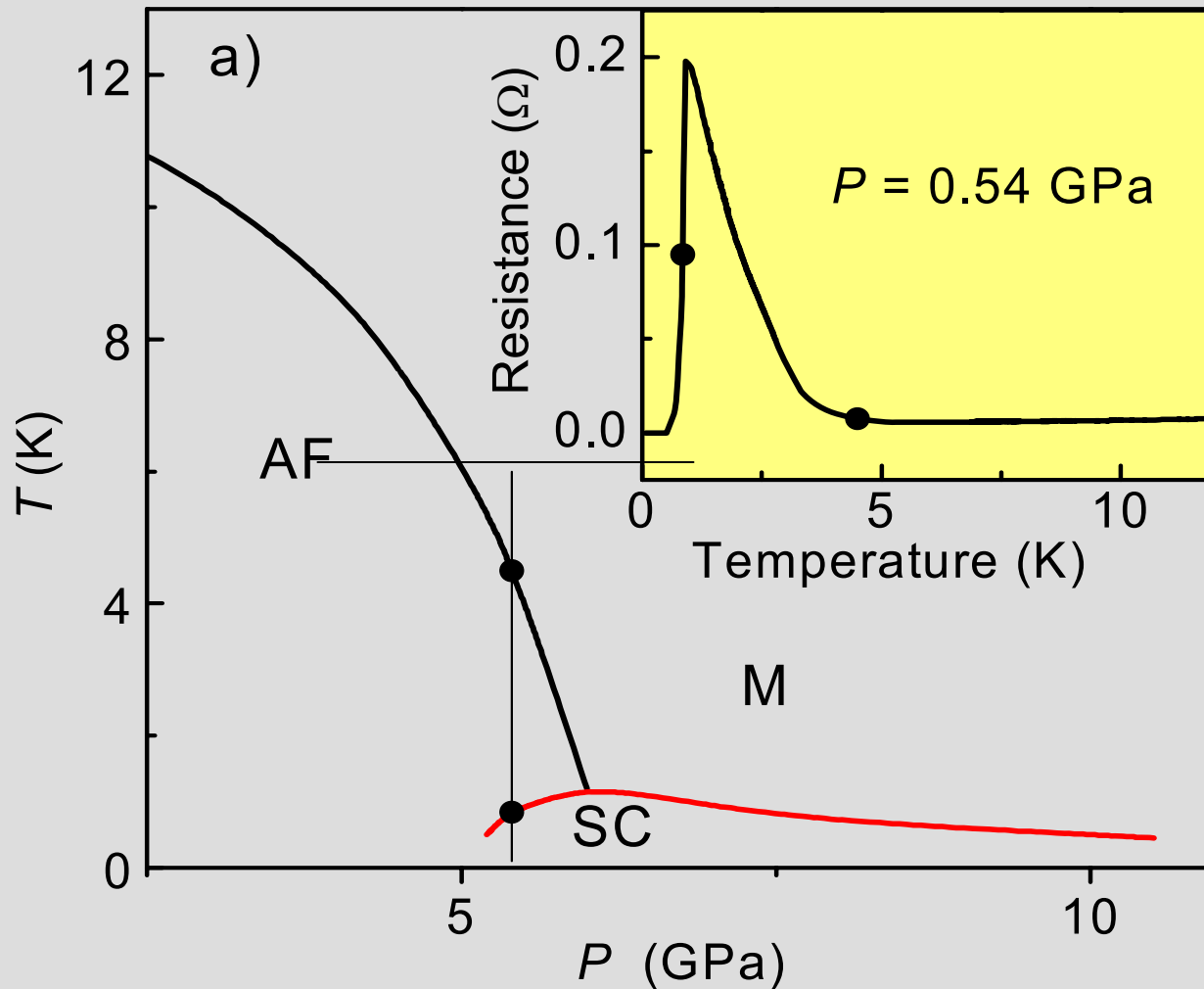


FIG. 4. Spin-lattice relaxation rate (top) and absolute susceptibility (bottom) of ^{77}Se vs pressure at 105 kOe and 4.02 K. The lines are guides for the eye. $\chi = 1.0$ corresponds to all the ^{77}Se in the sample.

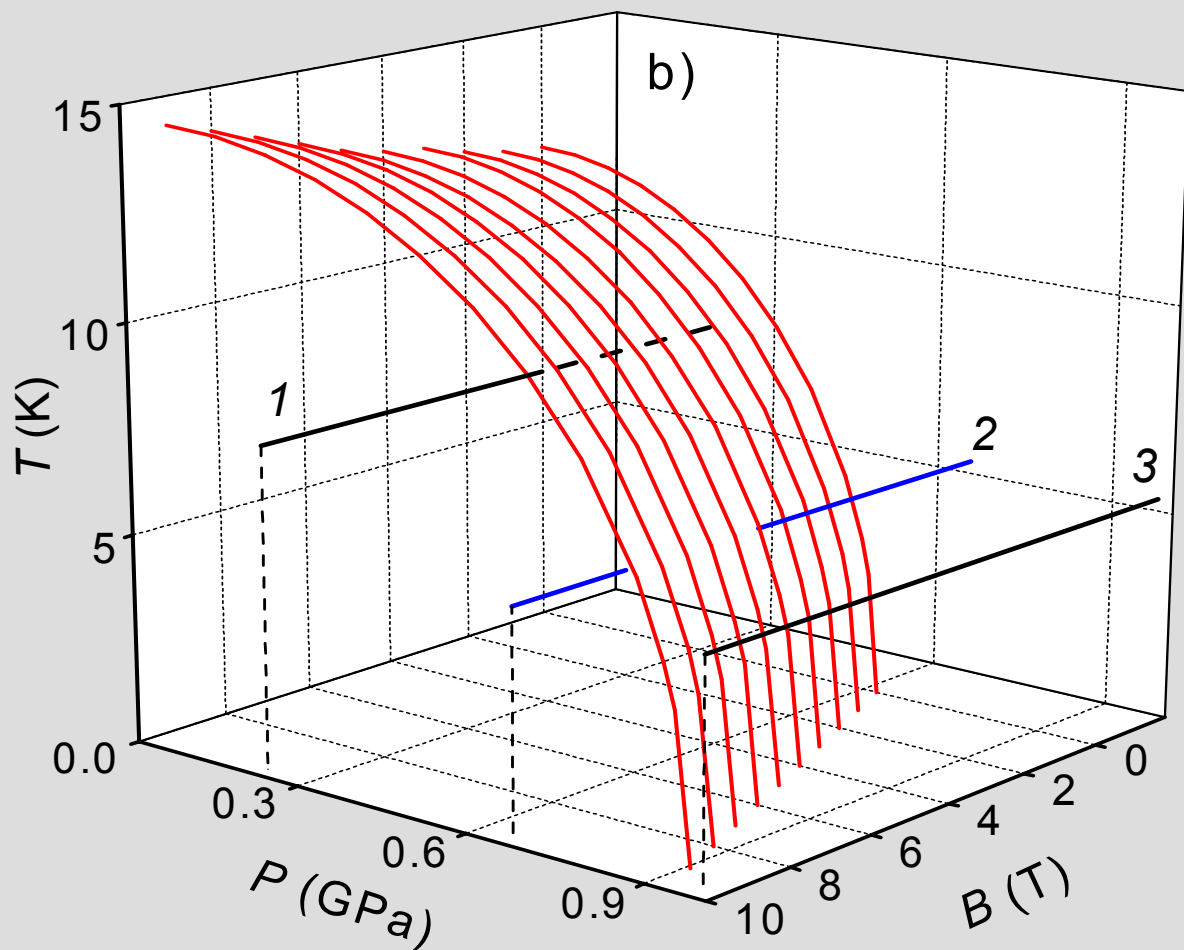
6.2. Традиционный способ изучения фазовых переходов:

(i) Изменение T @ $P = \text{Const}$;

(ii) Изменение P @ $T = \text{Const}$.



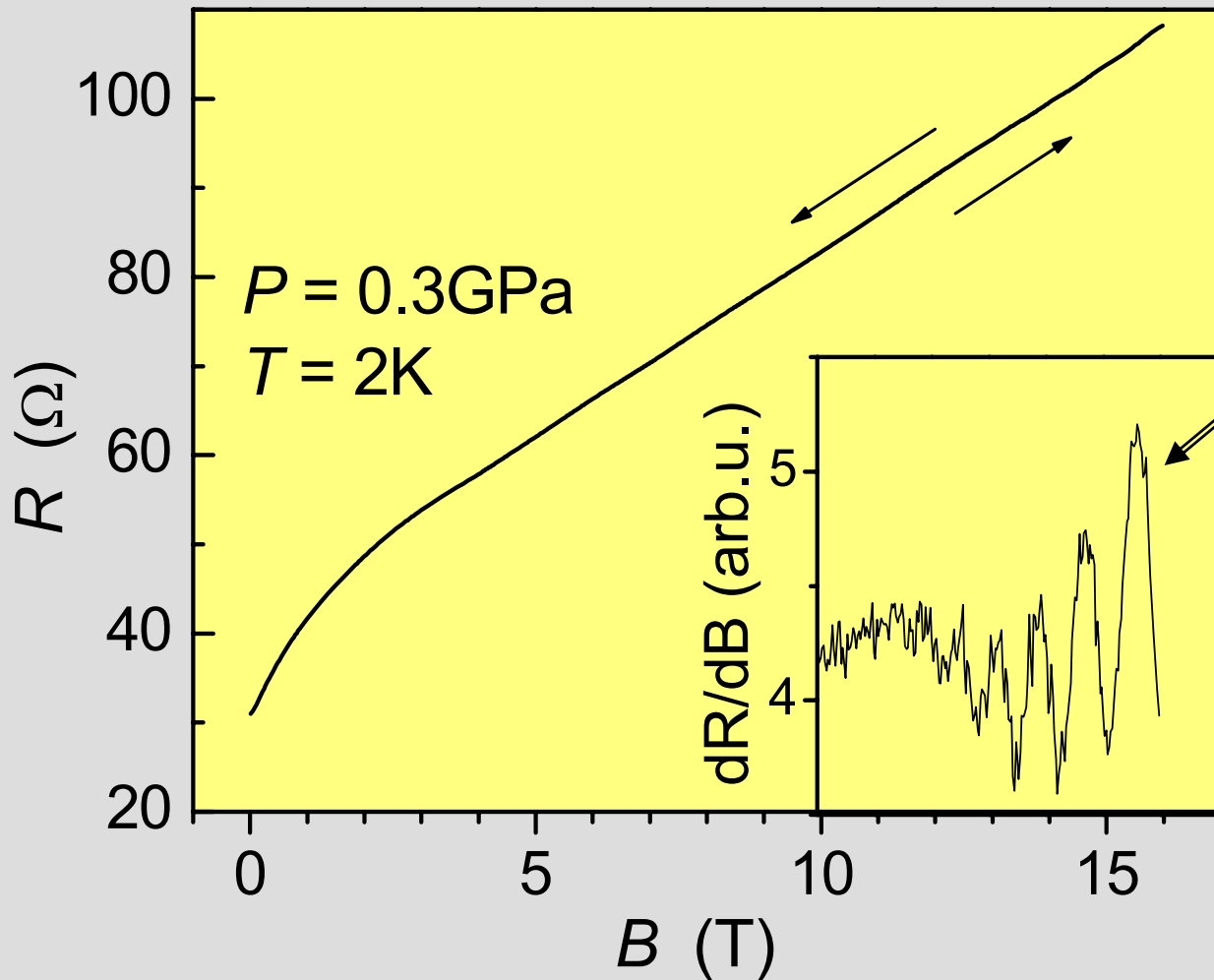
6.3. Схематическая фазовая диаграмма для несверхпроводящей области, $T \geq 1.14\text{K}$.



Новый способ
(траектория 2):

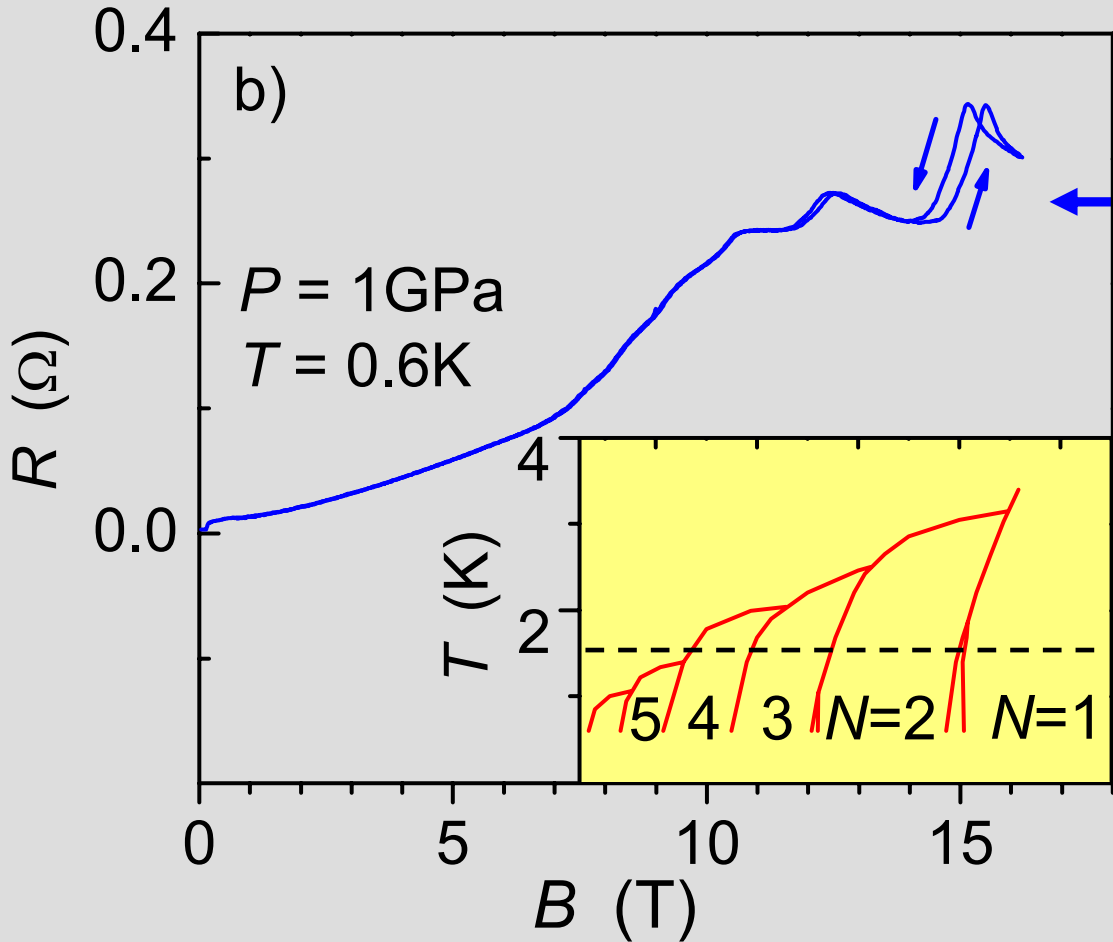
P & $T = \text{Constant}$.
 P_c изменяется с
ПОМОЩЬЮ МАГНИТ-
НОГО ПОЛЯ

$R(B)$ в фазе АF-изолятора
(траектория 1):



RO oscillations,
typical for the
AF phase

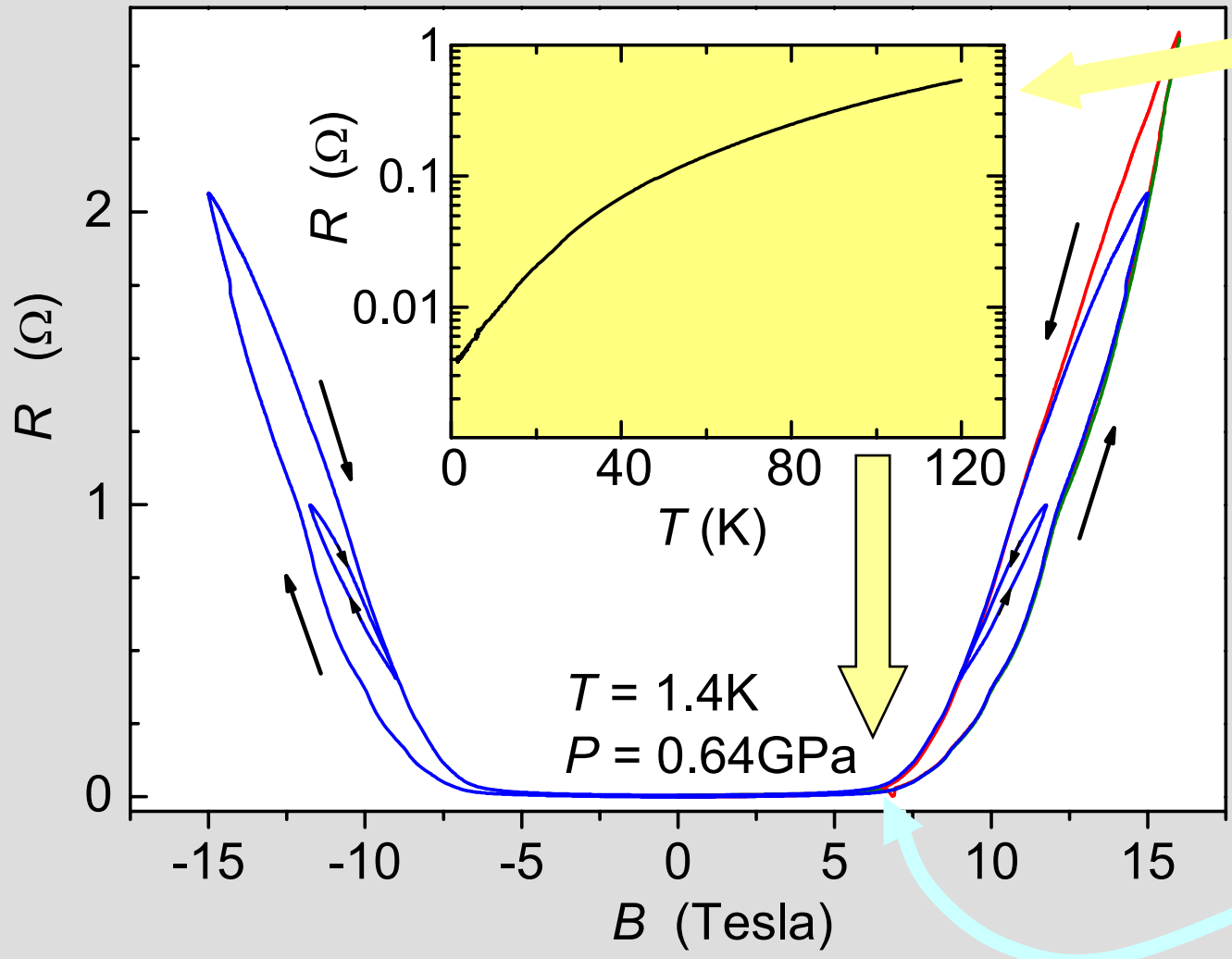
$R(B)$ в металлической (M) фазе
(траектория 3):



Скачки $R(B)$,
типичные для M-
фазы (FISDW фазы с
различными
векторами нестинга).

Фазовая диаграмма
для FISDW области
(M-фаза)

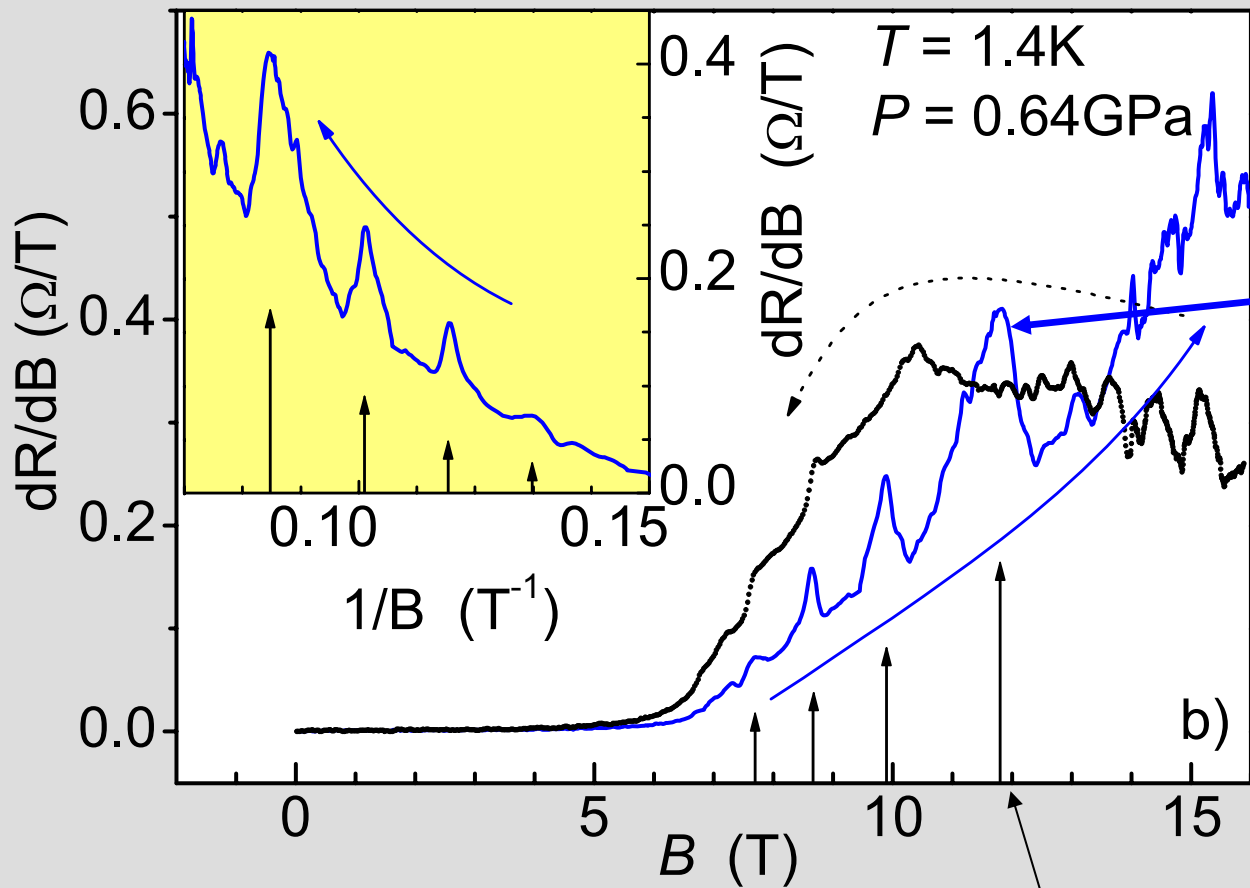
6.4. Вариации $R(B)$ в случае пересечения границы РМ-АФ (траектория 2)



Начальное состояние при $B=0$ - настоящий металл

установление АФ состояния

dR/dB при пересечении границы М/АФ (траектория 2)



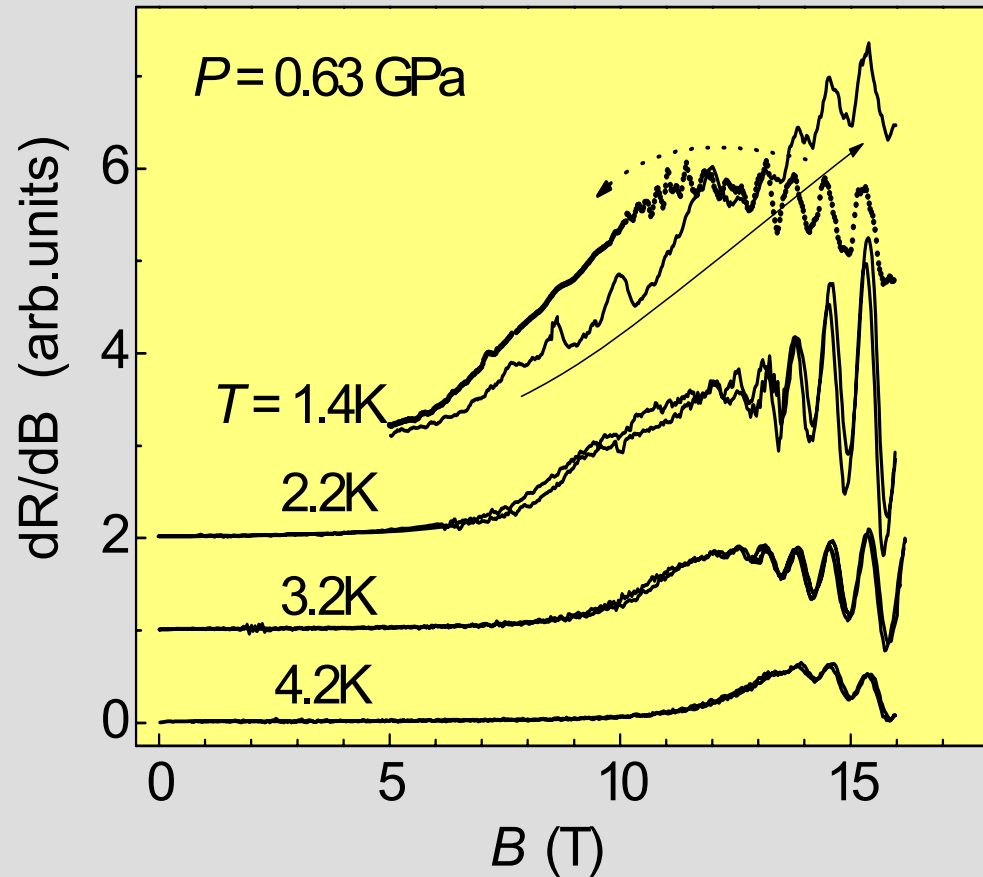
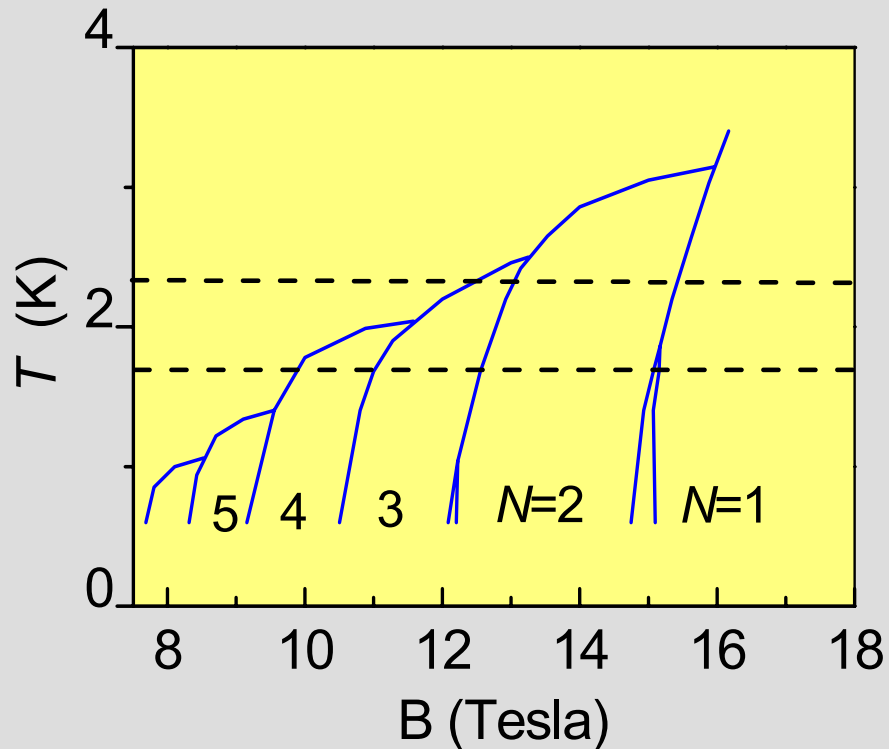
FISDW-скачки:
признаки
PM-состояния

RO:
признаки
AF-состояния

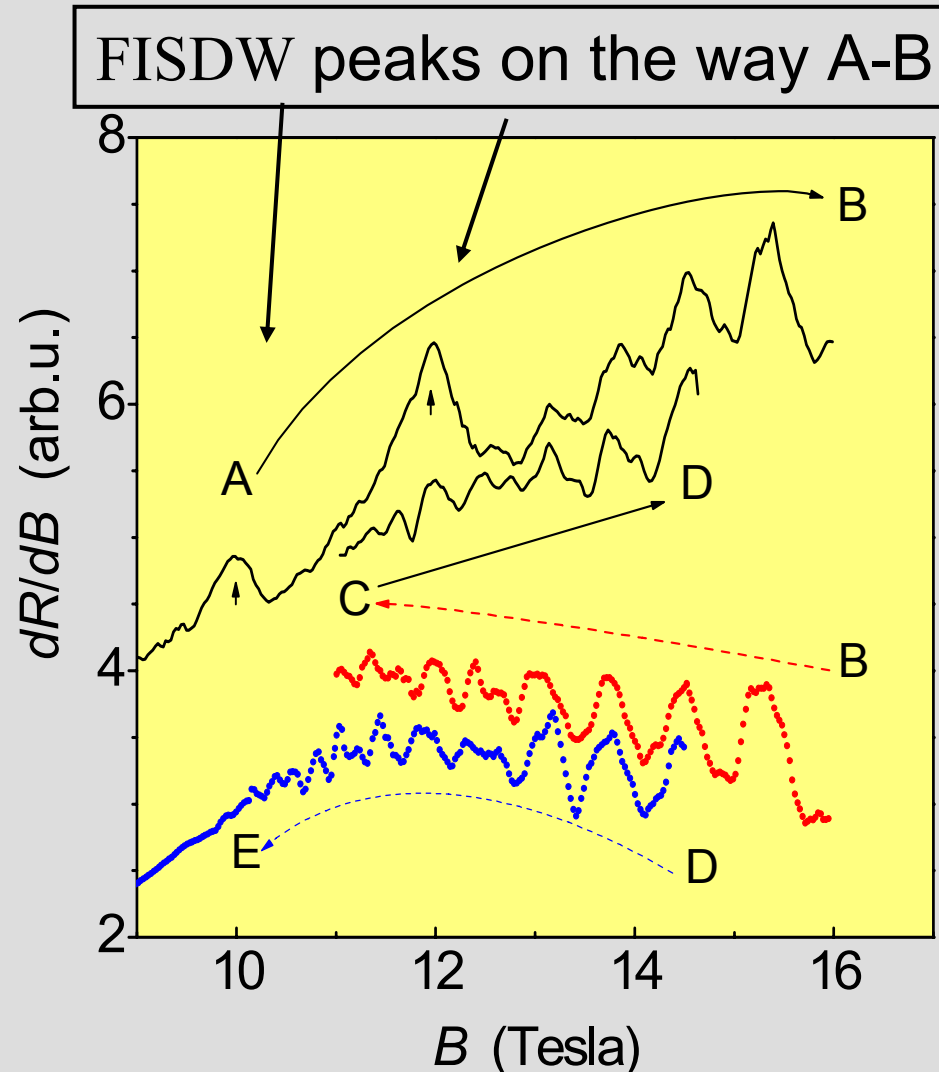
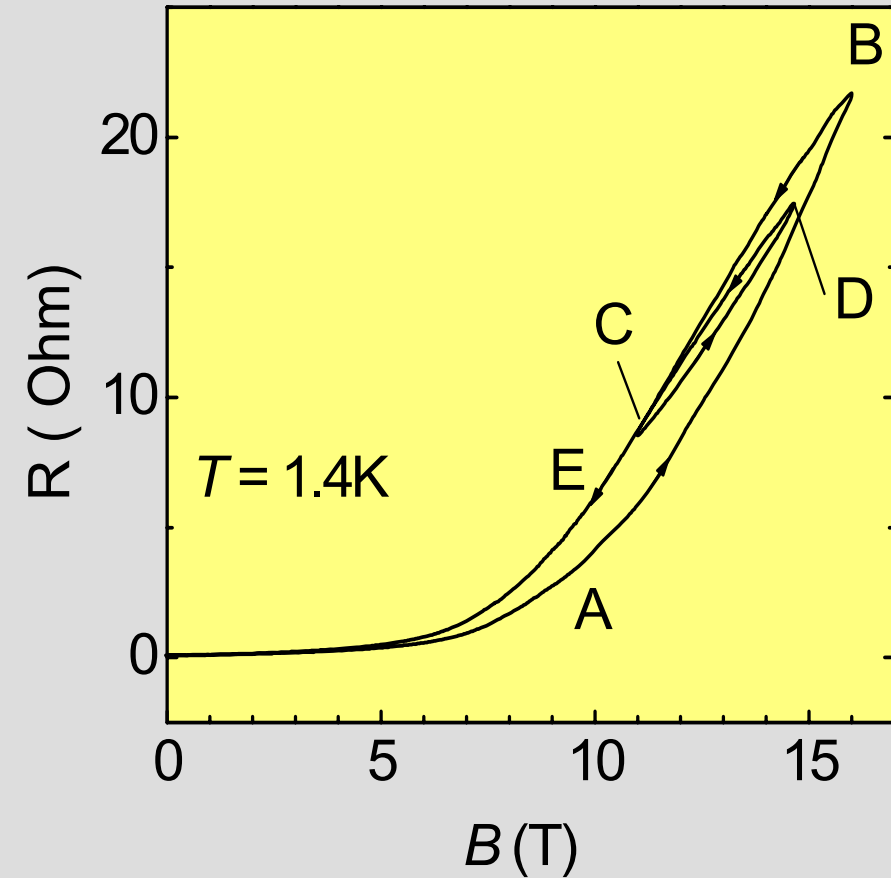
FISDW пики периодичны по $(1/B)$

6.5. dR/dB при разных температурах

При увеличении T
скачки FISDW плавно
исчезают

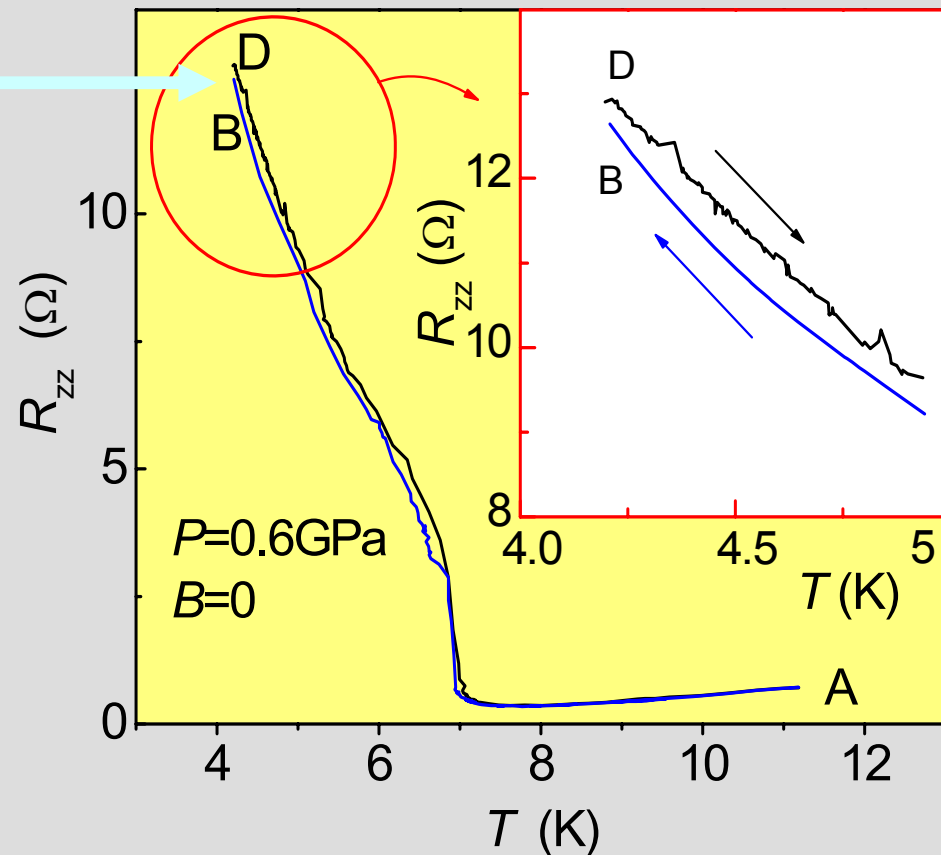
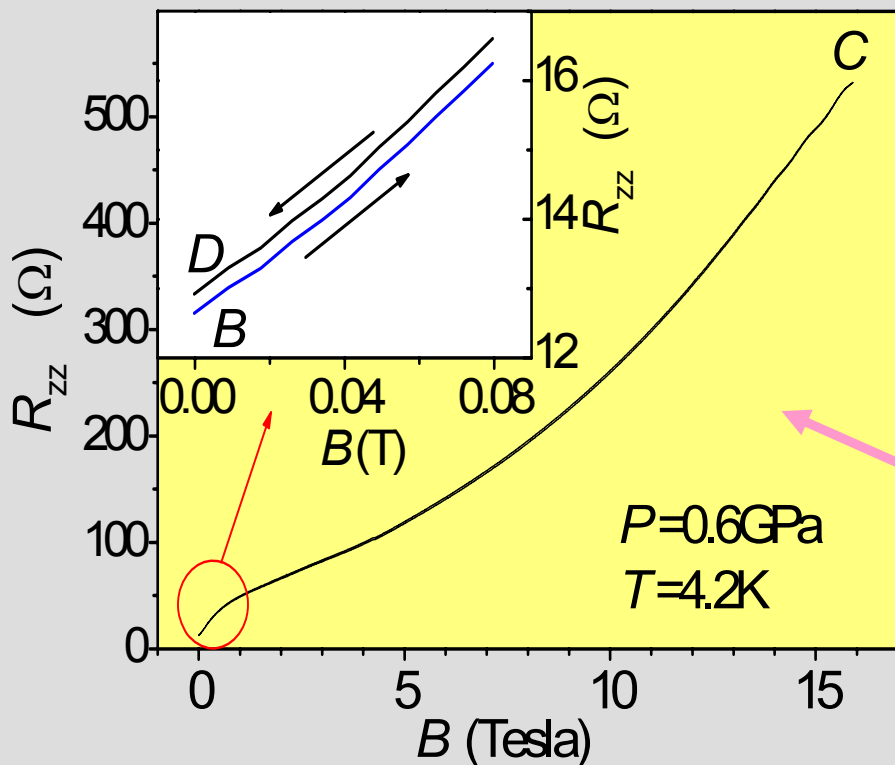


6.6. Эффекты предистории



6.7. Фазовое расслоение в отсутствии поля

Сопротивление в точке **B** слегка уменьшено, из-за остаточных включений хорошо-проводящего РМ состояния



Однородное состояние (точка D) восстановлено после свипа поля до 16Т и обратно до 0.

Основные результаты:

- Гистерезис в $R(B)$ и dR/dB .
- Эффекты предистории: $R(B)$ зависит от траектории
- Признаки миноритарной РМ (АF) фазы заметны довольно далеко от критической точки

Гистерезис – стационарный и хорошо воспроизводимый эффект

Гистерезис и эффекты предистории наблюдаются только вблизи РМ-АF-SC границы

6.8. Заключение

- ✓ Фазово-неоднородное состояние спонтанно возникает вблизи границы раздела **M-SDW-Sc** фаз.
- ✓ В этом состоянии основная фаза содержит включения миноритарной фазы.
- ✓ Однородное состояние системы восстанавливается вдали от границы раздела.

Microscopic mixing vs macroscopic phase separation

The hysteresis, its smooth disappearance, and history effects are inconsistent with:

- a microscopically mixed state and with
- a homogeneous “overcooled” / “overheated” state (1st order PT)

Besides, this is a 2nd order Transition !

7. Резюме всего того, что рассказано

- Новая фазовая граница: **квантовая и квази-классическая в области FISDW**
- **Причина возникновения RO:**
Сосуществование двух волн спиновой плотности (SDW)
- **Причина исчезновения RO при $T \rightarrow 0$:**
ослабление второй волны SDW (ослабление процессов переброса)
- **Когерентный транспорт вдоль a** (и некогерентный по c). Восстановление когерентности по оси c при $T \rightarrow 0$
- Спонтанное образование **смешанного состояния** вблизи границы раздела **M – SDW – Sc**

Спасибо за внимание !