

脉冲强磁场磁特性科学测量系统及其应用*

刘永杰 林梓泉 王俊峰[†]

(华中科技大学 国家脉冲强磁场科学中心 武汉 430074)

2015-04-24收到

[†] email: jfwang@mail.hust.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20160103

A pulsed high magnetic field facility for magnetic property measurements and its applications

LIU Yong-Jie LIN Zi-Quan WANG Jun-Feng[†]

(Wuhan National High Magnetic Field Center, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China)

摘要 作为一种极端条件下的实验技术,脉冲强磁场下的磁化测量在磁性材料等研究领域发挥着重要作用。武汉国家脉冲强磁场科学中心建成了两套先进的脉冲强磁场磁化测量系统,并已对外开放运行。文章介绍了该测量系统的组成、测量原理和系统特点,以及该系统在量子磁性材料、功能磁性材料、强关联材料等研究领域中的应用,并对未来的发展提出了展望。

关键词 强磁场, 磁化强度, 磁相变

Abstract The measurement of magnetization under the extreme conditions of a pulsed high magnetic field is a powerful tool for magnetic materials studies. The Wuhan National High Magnetic Field Center has constructed two sets of this kind of advanced system, already open to outside users. This facility, its principle of operation, and special features will be described in detail, as well as its applications in various research areas. Finally, we propose some ideas for future improvements in the system.

Keywords high magnetic fields, magnetization, magnetic transition

1 引言

当前,物质科学研究越来越依赖强磁场等极端实验条件。由于磁场能够直接与自旋相互作用,强磁场实验技术是研究物质内部磁结构、自旋相互作用和探索新奇物理现象的重要手段之一^[1]。并且,随着磁场强度的提高,所能开展的科学研究也越来越广泛。目前,商业磁学测量系统(SQUID)测量的磁场范围一般最高到7 T,国际上稳态强磁场的测量极限是45 T。对于更高磁场下

的科学研究,需要在超强脉冲磁场下完成。脉冲强磁场下的磁特性测量包括磁化率、磁化强度、磁致伸缩和磁扭矩等物理参数的测量。其中磁化率和磁化强度的测量是最基本和最重要的实验测量技术,具有悠久历史。磁致伸缩和磁扭矩测量则分别于上世纪90年代开始引入到脉冲场实验技术中。这些磁特性测量技术目前已经成功地应用到100 T的脉冲强磁场科学研究中^[2, 3]。

武汉国家脉冲强磁场科学中心根据科学实验需求建成了两套磁特性科学测量系统,并已顺利通过国家验收。本文主要介绍相关的磁化测量系统、装置特点及其在前沿科学研究中的应用。

* 国家自然科学基金(批准号: 11574098)资助项目

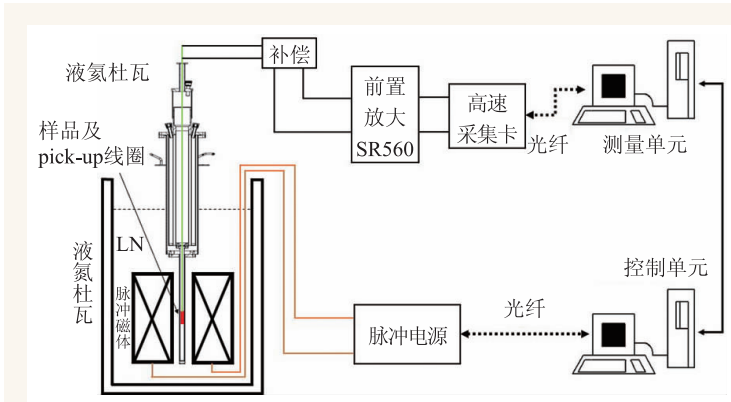


图1 脉冲强磁场磁化测量系统组成(图中LN为液氮)

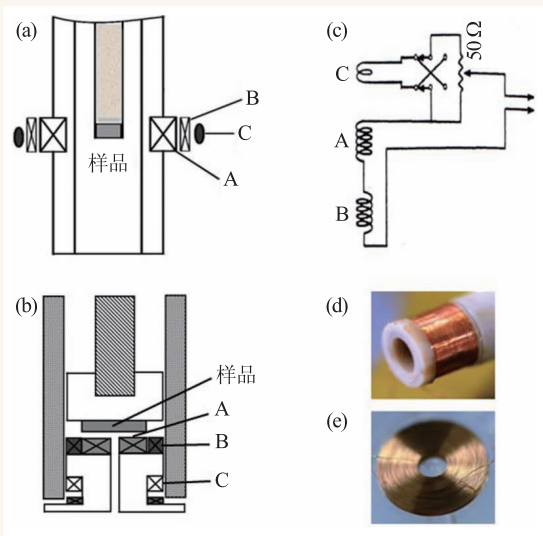


图2 Pick-up线圈结构、实物图和信号补偿电路

2 系统组成与测量原理

脉冲强磁场磁化测量系统组成如图1所示, 主要包括脉冲电源、脉冲磁体、低温系统、信号测量和远程控制几个组成部分。在实验中, 利用脉冲电源对脉冲磁体快速放电, 将会在磁体中心产生快速变化的脉冲磁场(H)。被测量样品位于磁体中心的低温系统中, 在脉冲磁场作用下, 样品磁化强度(M)的改变将会在磁化探测线圈(也称为pick-up线圈)中产生感应电压(V), 并经过信号补偿与放大后被高速数据采集系统获得。最后, 通过数据处理得到样品的磁化率 dM/dH 和磁化强度 M 。基于安全考虑, 控制单元和测量单元位于控制大厅内, 与磁体间通过光纤和光电转换实现远

程控制。

Pick-up线圈是探测样品本征信号的核心部件。针对不同形状的样品, pick-up线圈主要有两种结构: 图2(a)是同轴型线圈, 主要适用于块体和粉末样品的测量; 图2(b)是饼形线圈, 适用于薄膜和片状样品的测量。Pick-up线圈包含正绕线圈(A线圈)和反绕线圈(B线圈), 两组线圈形成的面积近似相等从而互相补偿, 样品主要在A线圈中产生感应电压信号。由于脉冲磁场具有

非常高的扫场速率($>10^3$ T/s), 它会在未完全补偿的pick-up线圈中产生很大的感应电压。故需要引入另一组补偿线圈(C线圈), 通过图2(c)所示的补偿电路将脉冲磁场在pick-up线圈中的感应信号尽可能消除。然而, 实际测量过程中完全消除感应信号还有困难, 因此需要在有样品和无样品条件下分别进行两次测量, 将无样品时的数据作为背底信号扣除, 从而精确得到样品的本征信号。此外, 在pick-up线圈附近绕有一组磁场线圈(dH/dt 线圈), 用来探测脉冲磁场的场强大小。图2(d)和(e)分别显示了两种类型pick-up线圈的实物图。

下面以 MnF_2 单晶的磁化实验为例, 介绍脉冲强磁场磁化测量原理和实验过程。当磁场沿 c 轴方向时, MnF_2 单晶会在 $H=9.3$ T 发生显著的 spin-flop 转变, 因此该实验也常常被用作磁场线圈的标定实验。

实验时, 首先将样品设置在 pick-up 线圈中心, 测量有样品时 pick-up 线圈的信号 $V_{in}(t)$ 和磁场信号 dH/dt , 然后将样品提出, 测量背底信号 $V_{out}(t)$ 。它们分别为

$$V_{in}(t) = \gamma \frac{dH}{dt} + \lambda \frac{dM}{dt}; \quad V_{out}(t) = \gamma \frac{dH}{dt}.$$

由此可得到样品信号为 $\frac{dM}{dt} = \frac{1}{\lambda}(V_{in} - V_{out})$, 如图3(a)所示。图中同时给出了磁场信号 dH/dt , 对其积分可以得到 $H(t)$, 如图中虚线所示。

对上述样品信号积分, 可以得到

$$M(t) = \frac{1}{\lambda} \int_0^t (V_{in} - V_{out}) dt + M_0,$$

式中 τ 为脉冲磁场的持续时间， M_0 是样品的起始磁化强度。以 $H(t)$ 为横坐标， $M(t)$ 为纵坐标作图，可以得到 $M(H)$ 磁化曲线；同样，由样品信号和磁场信号也可以推导出磁化率曲线 $\chi(H) = dM/dH$ 。数据处理结果如图3(b)所示。

以上公式中， γ 和 λ 是与pick-up线圈有关的因子。 γ 与线圈结构有关，而 λ 与线圈灵敏度、样品填充情况均相关。在实际测量中， λ 因子很难精确确定，因此实验得到的是相对磁化强度(λM)。为了获得脉冲强磁场下磁化强度的绝对值，可以将结果与稳态场中测量得到的磁化曲线进行对比。

3 测量系统的特点

稳态场下的磁性测量一般采用振动样品磁强计(VSM)的方法，即在某一恒定磁场下，样品以一定的频率振动，利用位置固定的pick-up线圈探测磁通量改变，从而得到样品在该磁场下的磁化强度值，并通过不同恒定磁场下的测量得到 $M(H)$ 曲线。脉冲强磁场下的测量与之不同，测量时，在一个短时间脉冲内，样品和pick-up线圈位置都固定不变。信号探测的原理是，在瞬态磁场下样品的磁化强度随之发生快速变化，从而在pick-up线圈中引起磁通量改变。

脉冲强磁场的最大优势是磁场强度高，近20年来，磁场强度已经由原来的70 T提高到现在的100 T左右。此外，脉冲强磁场磁化测量还具有以下特点：

(1)测量时间短。脉冲磁场的持续时间(τ)非常短，在毫秒量级。对于绝缘性质的样品， τ 越小，感应信号越强，通常选择 $\tau=6-12$ ms；对于金属性质的样品，为避免涡流效应，选择 $\tau=40-60$ ms。实际测量时间主要取决于脉冲磁体的冷却时间，一般每次强磁场实验间隔在35分钟左右。

(2)扫场速度快。扫场速率可以高达 10^3-10^5 T/s，因此可以通过调节扫场速率来研究诸如与自旋动力学相关的科学问题。

(3)对相变灵敏。由于脉冲时间极短和扫场速

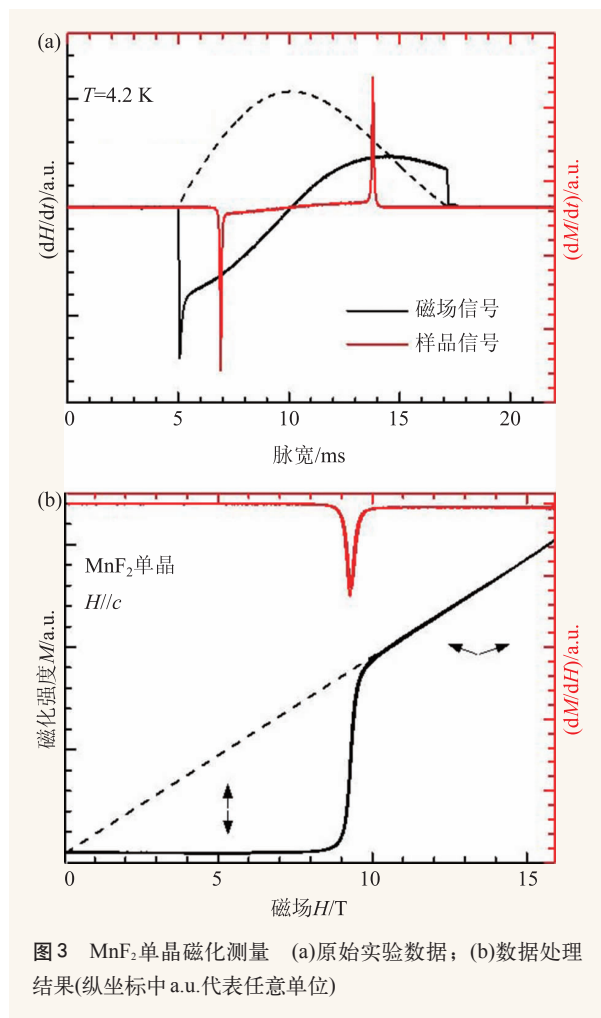


图3 MnF₂单晶磁化测量 (a)原始实验数据；(b)数据处理结果(纵坐标中a.u.代表任意单位)

度极快，测量系统对样品磁化强度的改变(dM/dt)非常敏感。通过高速数据采集系统(>250 k/s 采样速率)及大数据量采集，可以清楚地探测到微小的磁转变行为。

正是由于以上特点，脉冲强磁场磁化测量成为一种快速、高效和功能强大的实验测量技术。

4 强磁场下的科学研究

磁场对磁性材料的影响主要是通过改变内部磁性离子或自旋之间的交换作用而进行的。由于交换作用类型不同，在磁场作用下，磁性材料展现出丰富的相变行为。由于这些交换作用力往往比较大，有时高达几十甚至上百特斯拉，脉冲强磁场下的磁化测量因此成为极端条

件下研究磁相变和探索新奇磁有序态的重要实验手段。

强磁场下的磁性材料研究非常广泛，下面我们列举一些有代表性的研究工作，来简单介绍脉冲强磁场磁化测量在研究自旋能隙、量子相变、磁化平台、自旋相互作用、新奇量子物态等方面的重要应用。

4.1 量子磁性材料

具有低维和阻挫特征的量子磁性材料，通常

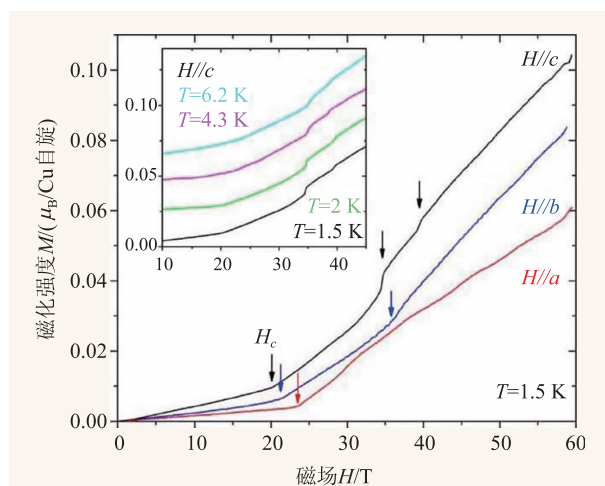


图4 自旋梯子材料BiCu₂PO₆在强磁场下的量子相变(纵坐标M以每个Cu自旋的玻尔磁矩表示)

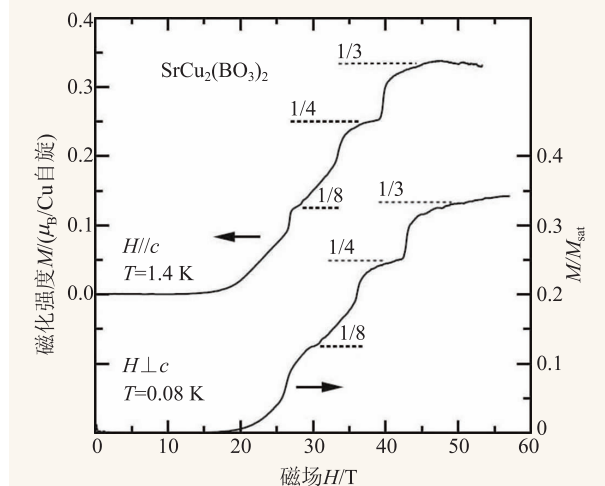


图5 SrCu₂(BO₃)₂量子材料的分数磁化平台研究(左边纵坐标给出了磁化强度的实验值,以每个Cu自旋的玻尔磁矩为单位;右边纵坐标显示了归一化的磁化平台分数值M/M_{sat},M和M_{sat}分别为磁化强度和饱和磁化强度)

具有能量简并的量子基态、元激发和量子相变行为,在外加磁场下往往呈现出许多内涵极为丰富的物理特性。BiCu₂PO₆是一种具有阻挫效应的自旋梯子材料,基态存在自旋能隙。图4显示了BiCu₂PO₆在强磁场下沿3个晶轴方向的磁化曲线,插图给出了不同温度下磁场沿c轴方向的磁化曲线。可以看出,当磁场小于20 T时,磁化强度缓慢增加,表明该体系存在较大的自旋能隙。在20 T附近,磁化强度突然增大,表明此时系统的自旋能隙被强磁场完全关闭,如图中箭头所示。随着磁场进一步增大,一些新的磁相变特征在更高的磁场下被探测到。通过变温磁化测量,以及结合强磁场下的磁致伸缩和磁比热测量,可以构造出BiCu₂PO₆的强磁场磁相图,并深入研究磁场诱导的量子相变行为^[4]。

另一个受到广泛关注的现象是分数磁化平台。它是一种磁场诱导的宏观量子现象,在不同体系的低维与阻挫材料中都能被观察到^[5-9]。最具代表性的是具有二维 Shastry—Sutherland 阻挫结构的 SrCu₂(BO₃)₂,基态时其相邻两个自旋相互耦合形成自旋二聚体(dimer)。如图5所示,自旋能隙在20 T时被完全抑制,在50 T强磁场下分别出现1/8、1/4和1/3磁化平台^[6]。最近,在高达100 T磁场下2/5和1/2磁化平台被相继发现和研究^[3, 7]。不同磁化平台的形成机制至今仍然是研究的热点。

量子磁性材料还是研究各种新奇量子物态和物理效应的理想载体,如在强磁场下出现的自旋超固态^[7]、nematic态^[10, 11]、玻色—爱因斯坦凝聚(BEC)现象^[12, 13]等。例如,我国秦代兵马俑和汉代陶瓷中曾使用过一种紫色染料,其化学成分是BaCuSi₂O₆,也称为“汉紫”。科学家证实,这种材料实际上是一种量子磁性材料。它是由大量成对的S=1/2自旋二聚体组成,具有S=0的单重态基态和S=1的三重态激发态。这种带有整数自旋的粒子系统是服从玻色统计的,因此可以通过调节磁振子的密度来实现自旋的玻色—爱因斯坦凝聚现象。由于材料中较大的交换相互作用和各向异性,这一物理现象通常需要在强磁场

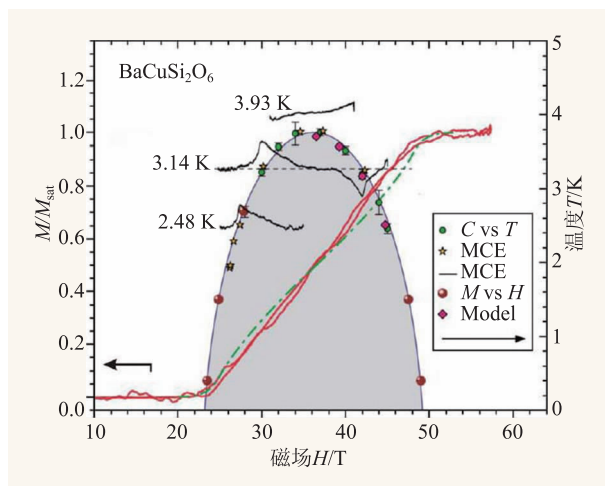


图6 BaCuSi₂O₆量子磁性材料的玻色—爱因斯坦凝聚效应研究(左边纵坐标 M 和 M_{sat} 分别代表磁化强度和饱和磁化强度;右边纵坐标 T 为实验测量温度。图中的磁相图分别由强磁场下的比热(C vs T)、热卡效应(MCE)和磁化强度(M vs H)等实验确定,实验结果与理论结果(Model)完全一致)

条件下实现和开展研究。图6显示了BaCuSi₂O₆的玻色—爱因斯坦凝聚(BEC)效应研究结果,强磁场磁化曲线反映出自旋单重态到自旋三重态的转变过程^[12]。

4.2 功能磁性材料

具有磁电耦合效应的多铁性材料具有重要的应用前景,是近些年的研究热点。其中磁致多铁性材料的铁电性起源于特定的磁序,其铁电性与磁性紧密关联。因此,强磁场是研究这类材料中磁序诱导铁电机制的有力工具^[14, 15]。图7是EuMnO₃在强磁场下的磁性质和铁电性质。图7(a)是 $H//b$ 时沿 a 轴方向的电极化强度变化,图7(b)和(c)分别是不同温度下磁场沿 b 轴方向的磁化曲线。可以看出,电极化的改变是与磁相变行为密切关联的。如图7(b)插图所示, dM/dH 曲线清楚的反应出46 T附近的铁电相变,表明脉冲强磁场磁化测量对磁相变非常灵敏。通过对Y元素掺杂的Eu_{0.6}Y_{0.4}MnO₃的强磁场磁化和铁电研究,进一步揭示出一种来源于自旋交换伸缩机制的新型多铁态^[14]。

对于磁性合金材料,通过强磁场磁化测量和

磁相变研究,并根据分子场理论,可以精确获得自旋相互作用、磁各向异性等参数^[16, 17]。图8是Er₂Co₁₇合金材料在强磁场下的磁化曲线。当磁场平行于 c 轴时,在40 T条件下,发生共线亚铁磁结构到伞状自旋结构的一级相变,并伴随强烈的磁致伸缩转变。该结果很好的被分子场理论所描述,根据转变磁场可以确定该化合物的磁各向异性常数等^[16]。

此外,利用脉冲场扫场速度快和可调节的特点,可以研究庞磁阻材料和磁卡材料中的磁相变

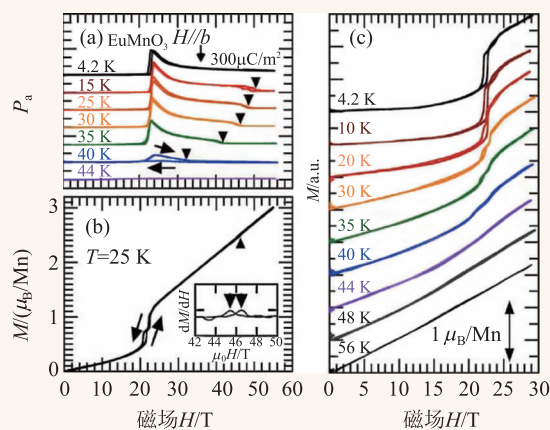


图7 EuMnO₃多铁材料的强磁场研究(图(a)纵坐标为电极化强度 P_a ,单位和大小见图中标尺所示;图(b)纵坐标为磁化强度 M ,以每个Mn自旋的玻尔磁矩为单位;图(c)纵坐标为任意单位)

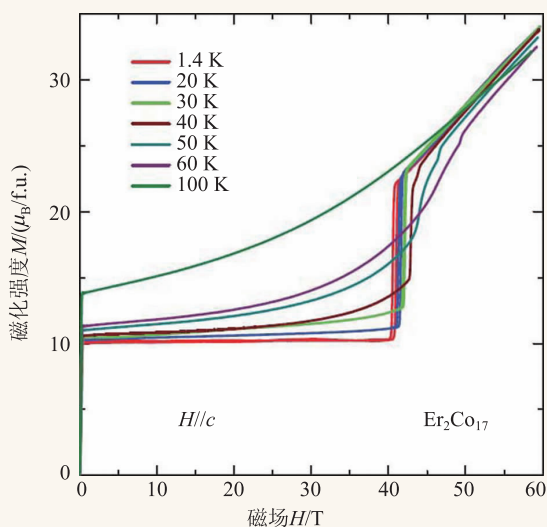


图8 Er₂Co₁₇磁性合金的强磁场磁化研究(纵坐标以每个化学分子式(f.u.)的玻尔磁矩为单位)

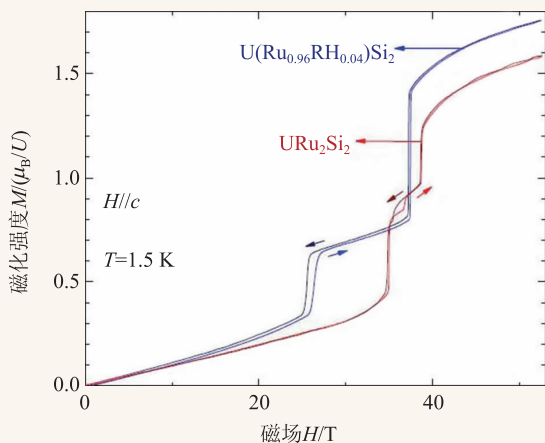


图9 $U(Ru_{1-x}Rh_x)_2Si_2$ 在强磁场下的磁相变(纵坐标以每个U自旋的玻尔磁矩为单位)

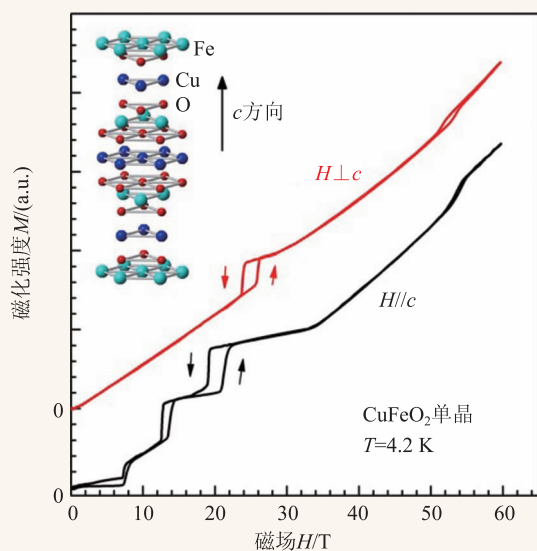


图10 $CuFeO_2$ 多铁材料的强磁场磁化曲线

及自旋动力学过程^[18, 19], 这里不一一陈述。

4.3 强关联材料

重费米子材料由于与非常规超导电性和量子临界现象紧密关联, 一直是强关联物理的研究热点, 并在强磁场下得到广泛研究^[20, 21]。 URu_2Si_2

在 17.5 K 以下出现隐藏序(hidden order), 在磁场和压力下表现出复杂的集体行为和量子相变。 URu_2Si_2 在 35—40 T 发生两个连续相变(相变 II 和相变 III), 从隐藏序进入到铁磁极化态; 通过 4% Rh 掺杂, $U(Ru_{0.96}Rh_{0.04})_2Si_2$ 在 26—38 T 之间发生 1/3 磁化平台相变, 如图 9 所示。该结果说明与隐藏序关联的第 II 相具有“up-up-down”型自旋结构, 这一结论其后通过强磁场下的中子衍射得到证实^[20]。

5 结束语与展望

磁化测量是最基本也是最广泛应用的脉冲场实验技术, 本文主要介绍了脉冲强磁场下的磁化测量系统及其在前沿科学研究中的应用。武汉强磁场科学中心已经建成了两套磁化测量系统, 分别用于绝缘体和金属性磁性材料的磁化强度和磁化率测量; 它配备的低温系统包括 He-3 和 He-4 系统, 可以实现最低实验温度 0.4 K; 磁化测量系统的磁场强度最高达 90.6 T。在国际评估和国家验收中, 系统的整体性能和指标被认为达到国际先进水平。图 10 是我们测量的一个典型实验数据, 显示了 $CuFeO_2$ 多铁材料在强磁场下的磁化曲线和磁相变行为。目前, 实验装置已经向国内外用户运行开放, 并在量子磁性材料和磁性功能材料等领域取得了一批卓有成效的研究成果^[22—25]。在磁化测量系统的基础上, 我们也成功研制了脉冲强磁场下的电极化测量系统。并且, 也正在研制介电、磁致伸缩、磁扭矩(cantilever)等测量技术。在未来的科学研究中, 综合利用这些相关的磁性测量手段, 将会大大拓展人们在强磁场下的研究内容和空间, 并极有可能获得一些重要的学术突破。

参考文献

- [1] Motokawa M. Rep. Prog. Phys., 2004, 67: 1995
- [2] Altarawneh M M, Chern G W, Harrison N *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 109: 037201
- [3] Jaime M, Daou R, Crooker S A *et al.* PNAS, 2012, 109: 12404
- [4] Kohama Y, Wang S, Uchida A *et al.* Phys. Rev. Lett., 2012, 109: 167204

- [5] Kikuchi H, Fujii Y, Chiba M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2005, 94: 227201
- [6] Onizuka K, Kageyama H, Narumi Y *et al.* J. Phys. Soc. Jpn., 2000, 69: 1016
- [7] Matsuda Y H, Abe N, Takeyama S *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 111: 137204
- [8] Yoshii S, Yamamoto T, Hagiwara M *et al.* Phys. Rev. Lett., 2008, 101: 087202
- [9] Susuki T, Kurita N, Tanaka T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 267201
- [10] Svistov L E, Fujita T, Yamaguchi H *et al.* JETP. Lett., 2011, 93: 21
- [11] Damle K, Senthil T *et al.* Phys. Rev. Lett., 2006, 97: 067202
- [12] Jaime M, Correa V F, Harrison N *et al.* Phys. Rev. Lett., 2004, 93: 8
- [13] Samulon E C, Kohama Y, McDonald R D *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 047202
- [14] Tokunaga M, Yamasaki Y, Onose Y *et al.* Phys. Rev. Lett., 2009, 103: 187202
- [15] Wang J F, Tokunaga M, He Z Z *et al.* Phys. Rev. B, 2011, 84: 220407
- [16] Andreev A V, Skourski Y, Kuz' min M D *et al.* Phys. Rev. B, 2011, 83: 184422
- [17] Isnard O, Andreev A V, Kuz' min M D *et al.* Phys. Rev. B, 2013, 88: 174406
- [18] Ouyang Z W, Nojiri H, Yoshii S. Phys. Rev. B, 2008, 78: 104404
- [19] Ouyang Z W, Nojiri H, Yoshii S. Phys. Rev. B, 2008, 77: 184426
- [20] Kuwahara K, Yoshii S, Nojiri H *et al.* Phys. Rev. Lett., 2013, 110: 216406
- [21] Kondo A, Wang J F, Kindo K *et al.* Phys. Rev. B, 2011, 83: 180415
- [22] Lu C L, Hu N, Yang M *et al.* Sci. Repts., 2014, 4: 4902
- [23] Li Y S, Pan B Y, Li S Y *et al.* New J. Phys., 2014, 19: 093011
- [24] Lin Z Q, Yang M, Wang H W *et al.* J. Magn. Magn. Mater., 2015, 382: 7
- [25] Shi L R, Xia Z C, Wei M *et al.* J. Appl. Phys., 2014, 116: 173907

读者和编者

订阅《物理》得好礼

——超值回馈《岁月留痕》
—<物理>四十年集萃

部特推出优惠订阅活动：向编辑部连续订阅两年《物理》杂志，将获赠《岁月留痕—<物理>四十年集萃》一本(该书收录了从1972年到2012年在《物理》发表的40篇文章，476页精美印刷，定价68元，值得收藏)。

希望读者们爱上《物理》(编辑部直接订阅优惠价180元/年)

订阅方式

(1) 邮局汇款

收款人地址：北京603信箱，100190

收款人姓名：《物理》编辑部

(2) 银行汇款

开户行：农行北京科院南路支行

为答谢广大读者长期以来的关爱和支持，《物理》编辑部

户名：中国科学院物理研究所

帐号：112 501 010 400 056 99

(请注明《物理》编辑部)

咨询电话：(010)82649266；82649277

Email: physics@iphy.ac.cn

