

## ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНЫЕ МАГНИТНЫЕ ИЗМЕРЕНИЯ ПРИ КРИОГЕННЫХ ТЕМПЕРАТУРАХ

### HIGH-SENSITIVE MAGNETIC MEASUREMENTS AT CRYOGENIC TEMPERATURES

*Д. А. Великанов*

*D. A. Velikanov*

Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук –  
Обособленное подразделение ФИЦ КНЦ СО РАН, Красноярск, Россия

Kirensky Institute of Physics, Federal Research Center KSC SB RAS, Krasnoyarsk, Russia

Описана оригинальная аппаратура для магнитных измерений на основе сверхпроводящего квантового интерферометра. Даны конструкция, параметры и функциональные схемы СКВИД-магнитометра и его новых узлов. Предложены методы измерения магнитных параметров, оптимизирующие процесс измерений. Возможности и преимущества разработанной аппаратуры продемонстрированы примерами выполненных фундаментальных исследований.

The original equipment for magnetic measurements based on a superconducting quantum interferometer is described. The design, parameters, and functional schemes of the SQUID magnetometer and its new units are reported. The methods for magnetic parameters measuring that optimize the measurement process are proposed. The capabilities and advantages of the developed equipment are demonstrated by the specific examples of basic research performed.

При магнитных измерениях образцов небольшого размера и массы, каковыми являются типичные объекты исследования в большинстве научно-исследовательских институтов, необходимо эффективно передать магнитный поток, индуцируемый магнитным моментом образца, к магниточувствительному датчику. Наиболее успешно это удается с помощью таких методов, как индукционный и метод СКВИД-магнитометра. Последний наилучшим образом подходит для проведения низкотемпературных исследований. Будучи непревзойденным по чувствительности, метод СКВИД-магнитометра находит широкое применение в физическом эксперименте при исследованиях магнитного момента в диапазоне температур от гелиевых до комнатной [1].

Разработанный в ИФ СО РАН СКВИД-магнитометр (рис. 1) предназначен для исследования статических магнитных свойств широкого спектра объектов: от сильномагнитных ферро- и ферромагнетиков до спиновых стекол, мультислойных пленок и наноструктур. В нем в качестве детектора магнитного потока применен сверхпроводящий квантовый интерферометр постоянного

тока в интегральном исполнении – СКВИД 1. Дополнительно магнитометр снабжен оптическим трактом, что позволяет проводить сверхвысокочувствительные измерения фотоиндуцированных изменений магнитного момента фоточувствительных кристаллов.

Магнитный поток от исследуемого образца 2 к СКВИДу передается посредством короткозамкнутого сверхпроводящего трансформатора, имеющего две приемные катушки 3, включенные встречно-последовательно, и входную катушку 4 СКВИДа. Градиентометрическое включение приемных катушек способствует подавлению помех, вызванных вариациями намагничивающего поля и микрофонным эффектом. СКВИД через согласующий LC-контур, а также катушка 5 модуляции и обратной связи подключены к блоку 6 электроники, в котором производится усиление и обработка полезного сигнала, а также формируются сигналы для катушки 5.

Криогенная часть магнитометра состоит из криостата на основе стеклянных сосудов Дьюара для криоагентов, подключенного к откачным и газовым коммуникациям, и криогенной вставки.

Намагничивающее поле создается сверхпроводящим соленоидом 7, работающим в короткозамкнутом режиме. Соленоид и трансформатор потока оборудованы нагревателями 8, 9, переводящими участки сверхпроводящих проводов соленоида и трансформатора потока в нормальное состояние при смене величины намагничивающего поля. Питается соленоид от источника 10 тока с цифровым индикатором, на котором отображается текущее значение напряженности поля в эрстедах. Имеется три поддиапазона установки намагничивающего поля:  $0.00 \div \pm 40.00$  Э,  $0.0 \div \pm 400.0$  Э,  $0 \div \pm 1500$  Э.

шающих механических напряжений в стенках стеклянных сосудов Дьюара, позволяет минимизировать потери дорогостоящего криоагента.

Исследуемый образец 2 помещается в медную ампулу, которая теплоизолирована от гелиевой ванны с помощью вакуумной рубашки. Температуру образца можно изменять в пределах  $4.2 \div 370$  К. Для контроля температуры служит дифференциальная термопара Au/0.07% Fe–Cu, ее первый спай 11 размещен вблизи образца, а второй спай 12 помещен в термостат 13, внутри которого поддерживается стабильная температура 323 К. В электронном блоке 14 термо-ЭДС термопары усиливается и затем обрабатывается по схеме АЦП–ПЗУ–ЦАП, для того чтобы сформировать постоянное напряжение, которое линейно пропорционально абсолютной температуре образца. 12-разрядное ПЗУ запрограммировано под используемый тип термопары.

Выходы блоков 6, 14 подключаются к регистрирующему устройству 15. Для настройки и визуального контроля за работой магнитометра используется многоканальный осциллограф 16. Динамический диапазон магнитометра составляет  $2 \cdot 10^{-8} \div 5 \cdot 10^{-2}$  Гс·см<sup>3</sup>.

При фотомагнитных исследованиях в качестве источника 17 оптического излучения задействован гелий-неоновый лазер типа ЛГ-75 ( $\lambda = 0.63$  мкм). Электромеханическая заслонка 18 служит для модуляции светового потока. Поляризатор 19 используется для регулировки интенсивности подводимого к образцу света. Лазерное излучение при помощи линзы 20 фокусируется на торец оптоволоконного световода 21 и затем по световоду подводится к исследуемому образцу 2. При изучении временного поведения фотоиндуцированного изменения магнитного момента на вход X регистрирующего устройства 15 подается сигнал с блока временных разверток.

В большинстве практических применений, с целью расширения динамического диапазона магнитометра, СКВИДы используются в режиме нуль-детектора. Работа СКВИДа в качестве нуль-детектора основана на периодической зависимости напряжения на СКВИДе от приложенного к его контуру магнитного потока [1]. Для обслуживания СКВИДа постоянного тока разработана электрическая схема, основные функциональные узлы которой представлены на рис. 2.

Прототипом для нее послужила схема, приведенная в [3], которая была существенно модернизирована. Здесь ток обратной связи подается через резистор  $R_{OC}$  в катушку  $L_M$ , поддерживая полный магнитный поток через контур интерферометра

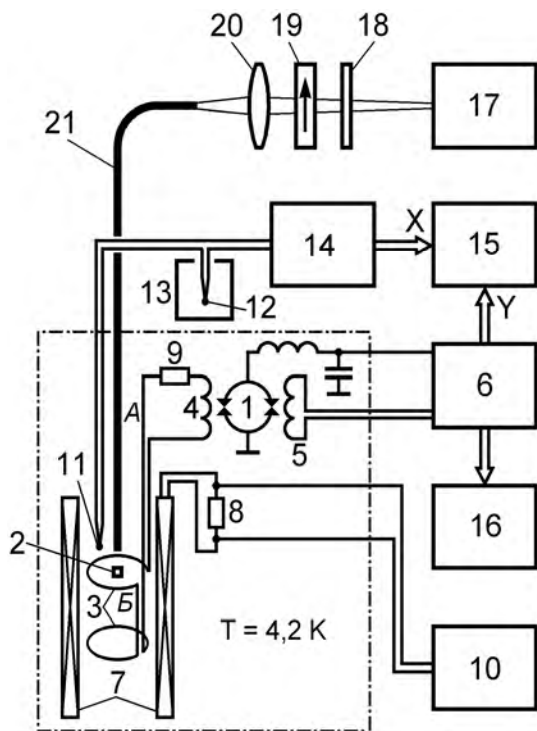


Рис. 1. СКВИД-магнитометр. Общая экспериментальная схема: 1 – СКВИД, 2 – образец, 3 – приемные катушки, 4 – входная катушка СКВИДа, 5 – катушка модуляции и обратной связи, 6 – блок электроники СКВИДа, 7 – сверхпроводящий соленоид, 8, 9 – нагреватели, 10 – источник тока, 11, 12 – спаи термопары, 13 – термостат, 14 – электронный блок, 15 – регистрирующее устройство, 16 – осциллограф, 17 – источник излучения, 18 – заслонка-модулятор, 19 – поляризатор-аттенюатор, 20 – линза, 21 – оптоволоконный световод

Объем гелиевой ванны составляет 1,2 л. Благодаря ряду конструктивных особенностей криостата [2], его теплоизоляционные свойства сохраняются неизменно высокими, вдобавок отпадает необходимость в периодических ремонтно-восстановительных работах с сосудом Дьюара для жидкого гелия. Конструкция криогенной части исключает при захолаживании появление разру-

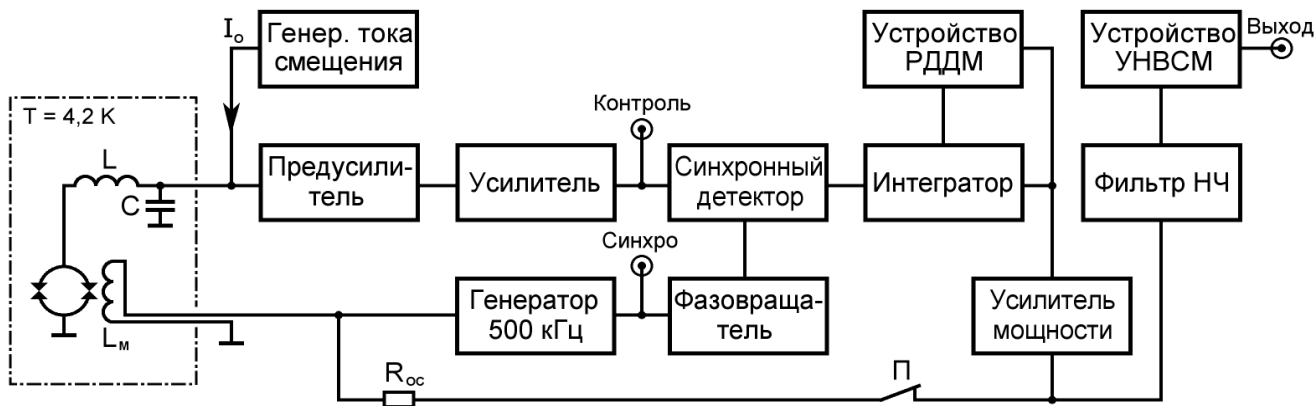


Рис. 2. Блок-схема электроники СКВИДа постоянного тока

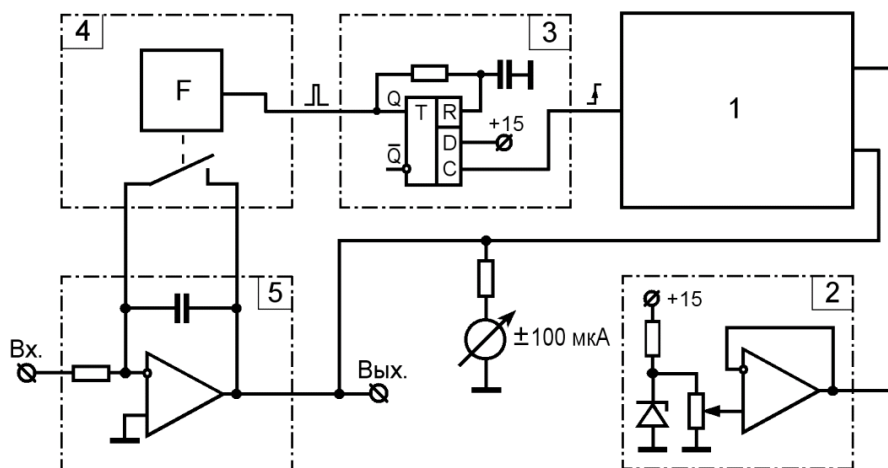


Рис. 3. Устройство РДДМ. Функциональная схема: 1 – двухпороговый регенераторный компаратор, 2 – источник опорного напряжения, 3 – генератор одиночных импульсов, 4 – электронный ключ и его подключение к интегратору 5

неизменным. За счет этого изменению входного потока соответствует приращение напряжения на выходе интегратора.

Обычно по достижении выходным сигналом магнитометра насыщения процесс измерений прекращается. Для преодоления этого ограничения, в электрическую схему включено устройство расширения динамического диапазона магнитометра (РДДМ) [4] (рис. 3), которое осуществляет мониторинг напряжения на выходе интегратора. Как только это напряжение превышает заданные пределы, компаратор 1 переключается, запуская генератор 3, управляющий электронным ключом 4. Замыкание ключа вызывает сброс интегратора. При этом приложенный к СКВИДУ поток, создаваемый током в цепи обратной связи, скачком изменяется на целое число квантов магнитного потока, а компаратор переключается в исходное состояние. СКВИД-магнитометр, оснащенный устройством РДДМ, имеет ряд преимуществ: увеличен динамический диапазон магнитометра без

снижения абсолютной чувствительности; автоматизирована операция обнуления интегратора; исключены мануальные действия оператора.

Устройство установки нуля выходного сигнала магнитометра (УНВСМ) (рис. 4) разработано для того, чтобы минимизировать влияние, обусловленное дрейфом магнитного момента от элементов криогенной вставки. С помощью устройства УНВСМ нулевое напряжение на выходе магнитометра устанавливается перед снятием каждой экспериментальной точки. Устройство УНВСМ содержит повторитель напряжения (ПН), устройство выборки-хранения (УВХ) и дифференциальный усилитель (ДУ). Устройство УНВСМ имеет два режима: «установка нуля» и «измерение», переключение режимов осуществляется электронным ключом  $K1-1$ . Приведенное схемотехническое построение устройства УНВСМ обеспечивает малое время ( $\sim 1$  мс) и высокую точность ( $\sim 0,02$  % от верхней границы динамического диапазона на каждом из пределов измерений) установки нуля

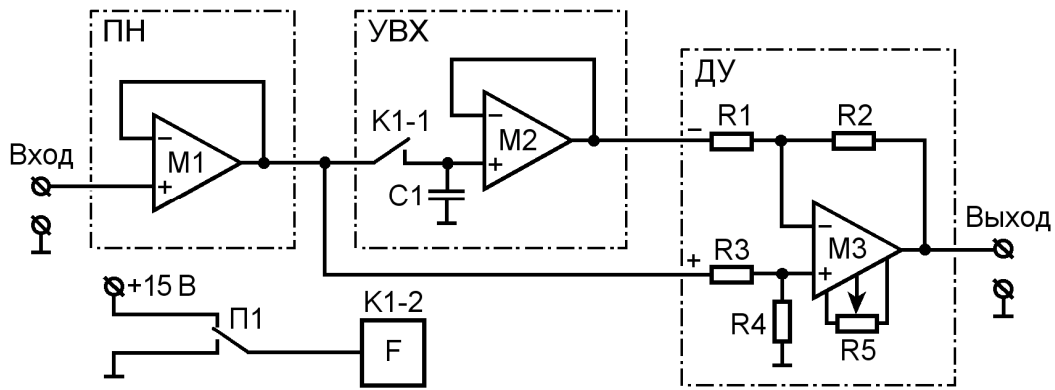


Рис. 4. Устройство УНВСМ: принципиальная электрическая схема:  $M1, M3$  – КР140УД608,  $M2$  – КР544УД1А,  $K1$  – КР590КН7,  $C1$  – К73-17-160В-1.5 мкФ±20%-В,  $R1 \div R4$  – С2-10-0.25-2.05 кОм±0.5%,  $R5$  – СП5-3В-1.0-4.7кОм±5%,  $\Pi 1$  – ПКН6-1

выходного сигнала прибора. УНВСМ позволяет исключить неоднозначность установки «нуля», обусловленную мануальным характером действий оператора, что, в свою очередь, способствует снижению погрешности измерений.

Конструктивно электроника СКВИДа выполнена в виде двух блоков. Все функциональные узлы, за исключением предварительного усилителя, смонтированы внутри приборного корпуса, имеющего габариты 480×360×100 мм<sup>3</sup>. Предусилитель смонтирован в титановом корпусе с габаритами Ø32×80 мм<sup>3</sup>, который закреплен на капке криостата, и соединен с основным блоком экранирующим кабелем длиной 2 м.

С целью оптимизации процесса магнитных измерений на СКВИД-магнитометре были разработаны и оснащены технически методы измерения магнитного момента.

1. Измерение статических магнитных свойств образцов, у которых величина магнитного момента меньше верхнего предела измерений СКВИД-магнитометра [5]. Образец 2 (см. рис. 1) на штоке помещается на удалении от приемных катушек 3 вверх (положение А). С помощью устройства УНВСМ на выходе магнитометра устанавливается нулевое напряжение. Затем образец механически передвигается вниз в положение несколько ниже верхней приемной катушки (положение Б). По мере перемещения образца происходит изменение магнитного потока через приемные катушки, величина которого зависит от местоположения образца (рис. 5). Наведенный сигнал преобразуется СКВИДом, усиливается и детектируется. Выходное напряжение  $U$  магнитометра, пропорциональное изменению магнитного потока, достигает своей максимальной величины  $U_{MAX}$ , когда образец

располагается по центру верхней приемной катушки. Из величины  $U_{MAX}$  определяется магнитный момент  $m$  образца в соответствии с выражением

$$m = k \cdot U_{MAX} - m_D,$$

где  $k$  – калибровочная константа,  $m_D$  – вклад от держателя образца. Константа  $k$  определяется при калибровке СКВИД-магнитометра по эталонному образцу.

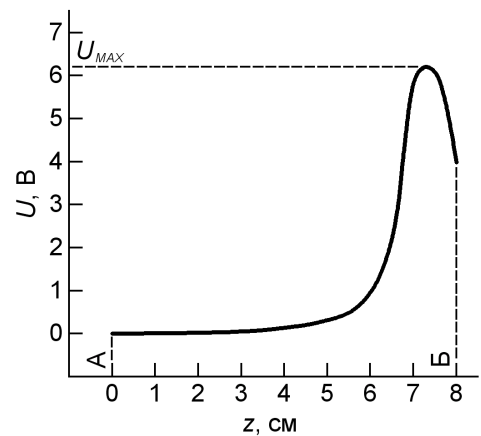


Рис. 5. Зависимость выходного сигнала магнитометра от положения образца

2. Измерение статических магнитных свойств образцов, у которых величина магнитного момента превышает верхний предел измерений СКВИД-магнитометра, производится главным образом при снятии температурных зависимостей магнитного момента  $m(T)$ . Исследуемый образец охлаждается до гелиевой температуры и неподвижно фиксируется в центре верхней приемной катушки. Юстировка положения образца производится по макси-

муму выходного сигнала магнитометра. После этого образец начинает нагреваться, и одновременно включается непрерывная запись выходного сигнала магнитометра. Когда сигнал выходит за пределы измерений, то с помощью устройства РДДМ производится обнуление интегратора, и запись экспериментальной кривой продолжается. Снятая зависимость  $m(T)$  состоит из нескольких отдельных участков, которые затем стыкуются друг с другом, для того чтобы получить искомую экспериментальную кривую.

3. Измерение фотоиндуцированного изменения магнитного момента проводится для фотомангнитных кристаллов. В этом случае изучаются зависимости магнитного момента от времени  $m(t)$ . С помощью модулятора 18 (см. рис. 1) производится подача световых импульсов (рис. 6, а), которые проходят по световоду 21 и облучают исследуемый образец 2, размещенный в центре верхней приемной катушки 3. При этом в приемной катушке наводится сигнал (рис. 6, б) пропорциональный изменению  $\Delta m$  магнитного момента образца, вызванного облучением.

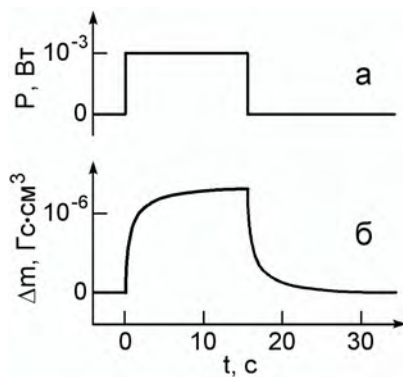


Рис. 6. Фотомагнитные измерения: а – импульс оптического излучения; б – фотоиндуцированное изменение магнитного момента

Приведем несколько примеров фундаментальных исследований, выполненных на описанном физическом приборе. Ниже представлены данные магнитных измерений для монокристаллов, впервые синтезированных в ИФ СО РАН. Так, магнитная восприимчивость  $\chi$  тетрагональных монокристаллов метабората меди  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  при температурах выше 21 К подчиняется закону Кюри–Вейсса, в то время как при  $T < 21$  К она резко анизотропна (рис. 7) [6]. При температурах 21 К и 10 К на зависимости  $\chi(T)$  при ориентации поля перпендикулярно оси  $c$  кристалла наблюдаются резкие аномалии. При той же ориентации в интервале  $10 \div 21$  К на магнитополевых зависимостях намагниченно-

сти  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  имеется резкий излом, положение которого зависит от температуры, что свидетельствует о переходе  $\text{CuV}_2\text{O}_4$  в индуцированное полем слабоферромагнитное состояние с магнитными моментами подрешеток, лежащими в базисной плоскости кристалла.

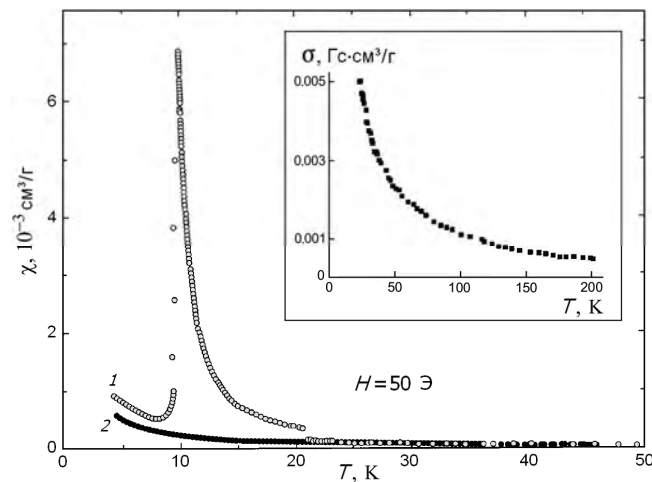


Рис. 7. Температурная зависимость магнитной восприимчивости монокристалла  $\text{CuV}_2\text{O}_4$ . Магнитное поле  $H = 50$  Э перпендикулярно (1) и параллельно (2) оси  $c$  кристалла. На вставке – высокотемпературная часть температурной зависимости намагниченности

На рис. 8 приведены результаты магнитных измерений монокристаллического  $\beta\text{-Cu}_3\text{Fe}_4(\text{VO}_4)_6$  [7]. Температурные зависимости намагниченности сняты для двух режимов охлаждения. Резкий пик магнитной восприимчивости характерен для спиновых стекол и связан с температурой замораживания, которая существенно зависит от ориентации монокристалла по отношению к магнитному полю и, в зависимости от направления измерения, смещается от 10 К до 2,5 К. При этом ниже температуры замораживания наблюдается четкое различие между ZFC и FC зависимостями. В то же время, характер магнитополевых зависимостей не выявляет заметной анизотропии магнитных свойств. Релаксация термоостаточной намагниченности при  $T = 4,2$  К также указывает, что кристалл  $\beta\text{-Cu}_3\text{Fe}_4(\text{VO}_4)_6$  представляет собой анизотропное спиновое стекло.

Энергетический зазор между основным и первым возбужденным состояниями составляет около  $\Delta \sim 600$  К. Отсюда следует, что при низких температурах магнитный момент должен полностью отсутствовать и возникать лишь при повышении температуры по мере заселения состояния  $e_{2g}^3 t_{2g}^1$  ( $S = 1$ ).

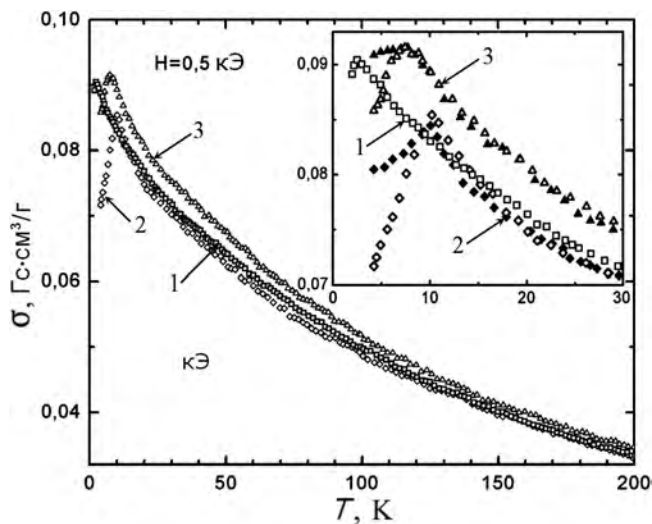


Рис. 8. Температурные зависимости намагниченности монокристаллических образцов  $\beta\text{-Cu}_3\text{Fe}_4(\text{VO}_4)_6$ , измеренные в поле  $H=0,5$  кЭ в трех взаимно перпендикулярных направлениях: открытые значки – ZFC, сплошные значки – FC

Максимум магнитной восприимчивости при  $T \approx 500$  К (рис. 9) связан как раз с заселением этого уровня. Низкотемпературные особенности интерпретируются в рамках модели примесных центров. При подгонке экспериментальных кривых с помощью функций Ланжевена определены магнитные моменты возникающих вследствие нестехиометрии кристалла кластеров железа, число атомов в кластере и концентрация кластеров в образцах.

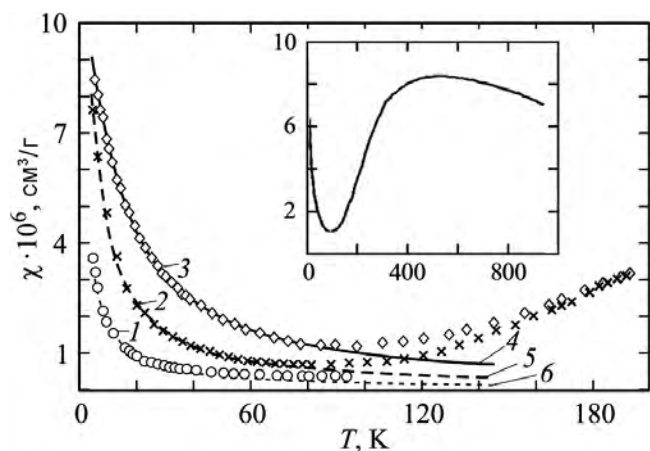


Рис. 9. Зависимости  $\chi(T)$  кристаллов FeSi: 1, 2 – поликристаллические образцы, 3 – монокристалл. Точки 1–3 – эксперимент, линии 6, 5 и 4 – теоретические подгонки с помощью функций Ланжевена. Поле измерения  $H=600$  Э. На вставке – зависимость  $\chi(T)$  в интервале температур  $4,2 \div 950$  К

Ход температурных зависимостей намагниченности  $\sigma(T)$  многослойных пленок  $(\text{Gd}/\text{Si}/\text{Co}/\text{Si})_{20}$  существенно зависит от толщины кремниевой прослойки  $t_{\text{Si}}$  [9] (рис. 10).

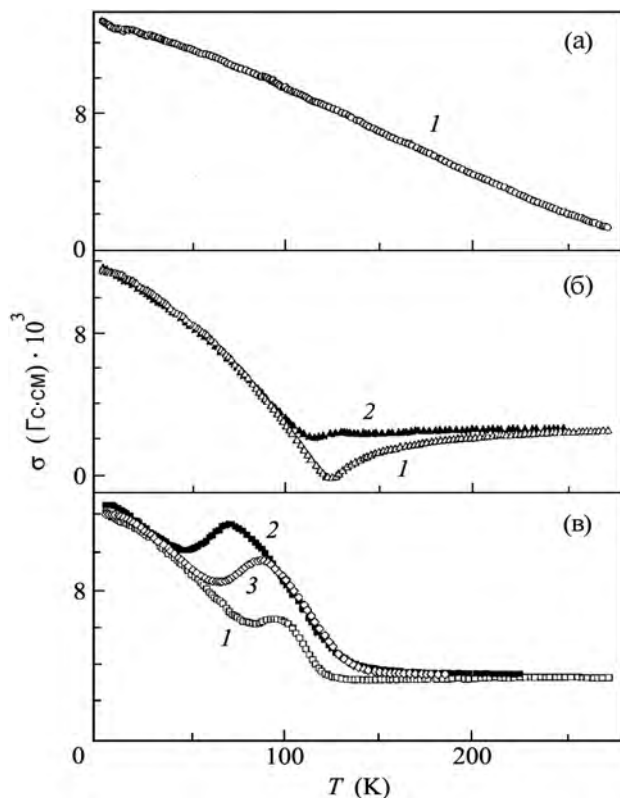


Рис. 10. Температурные зависимости намагниченности пленок  $(\text{Gd}/\text{Si}/\text{Co}/\text{Si})_{20}$ :  $t_{\text{Si}} = 0 \text{ \AA}$  (а),  $t_{\text{Si}} = 5 \text{ \AA}$  (б),  $t_{\text{Si}} = 10 \text{ \AA}$  (в). 1 –  $H=200$  Э, 2 –  $H=1000$  Э, 3 –  $H=500$  Э. Для всех пленок  $t_{\text{Co}} = 35 \text{ \AA}$ ,  $t_{\text{Gd}} = 70 \text{ \AA}$

Создание кремниевой прослойки толщиной  $t_{\text{Si}} = 5 \text{ \AA}$  приводит к появлению точки компенсации, а при увеличении магнитного поля  $H$  на зависимости  $\sigma(T)$  образуется небольшой максимум. У пленки с  $t_{\text{Si}} = 10 \text{ \AA}$  минимум намагниченности, который можно связать с точкой компенсации, наблюдается до полей  $H \sim 100$  Э, и, кроме того, с увеличением поля  $H$  растет максимум на зависимости  $\sigma(T)$ , который смещается в область низких температур. Необычное поведение намагниченности объясняется тем, что взаимодействие редкоземельных слоев с соседними слоями кобальта через слой кремния приводит к образованию неколлинеарной магнитной структуры, представляющей собой конус магнитных моментов слоев редкоземельной подсистемы, суммарный момент которого направлен антипараллельно суммарному магнитному моменту слоев кобальта. При увеличении температуры, на фоне уменьшающегося суммарного момента редкоземельной подсистемы,

происходит схлопывание конуса редкоземельной подсистемы.

Обратимые фотоиндуцированные изменения намагниченности кристаллов бората железа  $\text{FeVO}_3$  (рис. 11) при лазерном облучении ( $\lambda = 0,63$  мкм) весьма незначительны и составляют порядка  $10^{-6} \div 5 \cdot 10^{-4}$  от величины магнитного момента образцов [10].

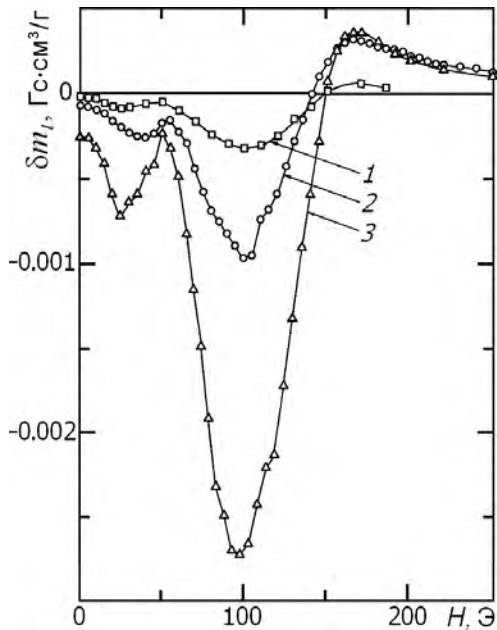


Рис. 11. Магнитопольные зависимости фотоиндуцированного изменения намагниченности кристалла  $\text{FeVO}_3$  при уровнях мощности оптической накачки  $0,02 \text{ Вт/см}^2$  (1),  $0,04 \text{ Вт/см}^2$  (2),  $0,1 \text{ Вт/см}^2$  (3);  $T = 4,2 \text{ К}$

Наблюдаемые экспериментальные особенности объясняются в рамках модели примесного центра — комплекса, содержащего ион  $\text{Fe}^{2+}$ , в предположении, что при освещении происходит перераспределение заселенностей подуровней основного мультиплета  $\text{Fe}^{2+}$  с преимущественным заселением уровня, показывающего сильное анизотропное поведение. Разные пики обусловлены вкладами от ионов  $\text{Fe}^{2+}$ , расположенных в разных кристаллографических позициях относительно направления магнитного поля.

Работа выполнена при поддержке программы президиума РАН № 32.

### Список литературы

1. Fagaly R. L. Superconducting quantum interference device instruments and applications // *Rev. Sci. Instrum.* 2006. V. 77, No. 10. P. 101101-(1–45).
2. Пат. RU 2482381 С1. МПК F17C 3/08, F17C 3/10, F17D 3/10. Криостат / Д. А. Великанов // *Изобретения. Полезные модели.* 2013. № 14.
3. Clarke J., Goubau W. M., Ketchen M. B. Tunnel junction dc SQUID: fabrication, operation, and performance // *J. Low Temp. Phys.* 1976. V. 25, No. 1/2. P. 99–144.
4. Пат. RU 2481591 С1. МПК G01R 33/035. Магнитометр со сверхпроводящим квантовым интерферометрическим датчиком / Д. А. Великанов // *Изобретения. Полезные модели.* 2013. № 13.
5. Пат. RU 2530463 С2. МПК G01R 33/035. Способ измерения магнитного момента образцов на СКВИД-магнитометре / Д. А. Великанов // *Изобретения. Полезные модели.* 2014. № 28.
6. Петраковский Г. А., Саблина К. А., Великанов Д. А. и др. Слабый ферромагнетизм в метаборате меди  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  // *ФТТ.* 1999. Т. 41, № 7. С. 1267–1271.
7. Balaev D. A., Bayukov O. A., Eremin E. V., et al. Synthesis and magnetic properties of  $\beta\text{-Cu}_3\text{Fe}_4(\text{VO}_4)_6$  single crystals // *Solid State Phenomena.* 2015. V. 233–234. P. 137–140.
8. Патрин Г. С., Белецкий В. В., Великанов Д. А. и др. Нестехиометрия и низкотемпературные магнитные свойства кристаллов  $\text{FeSi}$  // *ФТТ.* 2006. Т. 48, №. 4. С. 658–662.
9. Патрин Г. С., Васьковский В. О., Великанов Д. А. и др. Влияние магнитного поля на межслоевое взаимодействие в пленках  $(\text{Co/Si/Gd/Si})_n$  // *Письма ЖЭТФ.* 2002. Т. 75, № 3. С. 188–190.
10. Патрин Г. С., Великанов Д. А., Петраковский Г. А. Изучение фотоиндуцированного магнетизма в кристаллах  $\text{FeVO}_3$  на СКВИД-магнитометре // *ЖЭТФ.* 1993. Т. 103, № 1. С. 234–251.