

Höchste Magnetfelder

Thomas Herrmannsdörfer, Jochen Wosnitza

Die Erschließung neuer Parameterbereiche hat in den Naturwissenschaften oft zu spektakulären Entdeckungen geführt. Die Entdeckung der Supraleitung anfangs des 20. Jahrhunderts wurde beispielsweise durch Temperaturen von nur wenigen Kelvin möglich – ein Temperaturbereich, der damals erstmalig verfügbar war. Die Entdeckung des ganzzahligen und fraktionierten Quanten-Hall-Effektes geht wiederum darauf zurück, dass in europäischen Labors hohe statische Magnetfelder von etwa 30 Tesla und zugleich tiefe Temperaturen unter 0,1 Kelvin nutzbar waren. Mit Spannung wird daher die Erschließung des Magnetfeldbereiches bis 100 Tesla erwartet, zumal eine Vielzahl von materialwissenschaftlichen Fragestellungen bei Hochtemperatursupraleitern, organischen Supraleitern, niederdimensionalen Spin-Systemen, nanoskaligen Metallclustern, technisch relevanten magnetischen Halbleitern und vielen anderen Systemen Experimente in hohen Magnetfeldern verlangen. Im Institut Hochfeld-Magnetlabor Dresden (HLD) werden die genannten Themen bereits im Rahmen des Forschungsprogramms des FZD und im Rahmen von Kooperationen mit anderen Forschungseinrichtungen bearbeitet. Die herausragenden Ergebnisse im Jahr 2006 konnten wir schließlich in den Materialklassen der Seltenerd-Übergangsmetallverbindungen und der organischen Magnete erzielen.

Magnetfeld beeinflusst Ladungsträgereigenschaften von Seltenerd-Übergangsmetall-Verbindung auf ungewöhnliche Weise

In Metallen treten Änderungen der leitungselektronischen Struktur, d. h. der Energie- und Impulsverteilung der Elektronen, nur in Begleitung magnetischer oder struktureller Phasenübergänge auf. Dies gilt seit langem als gefestigtes Lehrbuchwissen und wurde kaum hinterfragt. Bei der halbmolekularen Verbindung CeBiPt aus den Elementen Cer, Bismut und Platin wurde in Dresden jedoch erstmals gezeigt, dass die leitungselektronischen Eigenschaften eines Metalls allein durch das Anlegen eines hohen Magnetfeldes verändert werden können.

Die ersten Experimente, über die teils bereits im Jahresbericht 2005 berichtet wurde, fanden im Rahmen des Sonderforschungsbereichs „Seltenerd-Übergangsmetallverbindungen: Struktur, Magnetismus

Highest magnetic fields

The extension of parameter ranges has often been the key to new discoveries in natural science. As an example, the finding of superconductivity in the early 20th century has been possible by reaching temperatures of a few Kelvin - a temperature range which was not accessible until then. The discovery of the integer as well as of the fractional quantum Hall effect is a result of the availability of both high magnetic fields up to about 30 T and low temperatures to below 0.1 K. Nowadays, the access to magnetic fields up to 100 Tesla is expected with bated breath. There are numerous challenges in material science related to high-temperature, organic, and other superconductors, to low-dimensional spin systems, nanoscale metal clusters, magnetic semiconductors, and many other systems which demand experiments in high magnetic fields. These scientific topics are already under investigation at the Dresden High Magnetic Field Laboratory (Hochfeld-Magnetlabor Dresden, HLD). The activities are embedded in the in-house and user research program of the Forschungszentrum Dresden-Rossendorf, FZD. Among these, we have achieved outstanding results for rare-earth transition-metal compounds and organic magnets in 2006.

Unusual influence of the magnetic field on the conduction-electron properties of rare-earth transition-metal compounds

In metals, changes of the band structure, i.e., of the energy distribution of charge carriers in momentum space, usually occur in connection with magnetic or structural phase transitions. This was widely accepted as a fact which was never questioned. Investigations of the semimetal CeBiPt which consists of the elements cerium, bismuth, and platinum, however, have demonstrated for the first time that conduction-electron properties of a metal can be influenced by only applying a large magnetic field. First experiments, already reported in the annual report of 2005, have been performed in the pilot facility of the Dresden High Magnetic Field Laboratory at the Leibniz Institute for Solid State and Materials Research, Dresden (IFW). This activity is embedded in the DFG-Sonderforschungsbereich „Seltenerd-Übergangsmetallverbindungen: Struktur, Magnetismus und Transport“. The first experiments have been carried out in fields up to 47 Tesla.

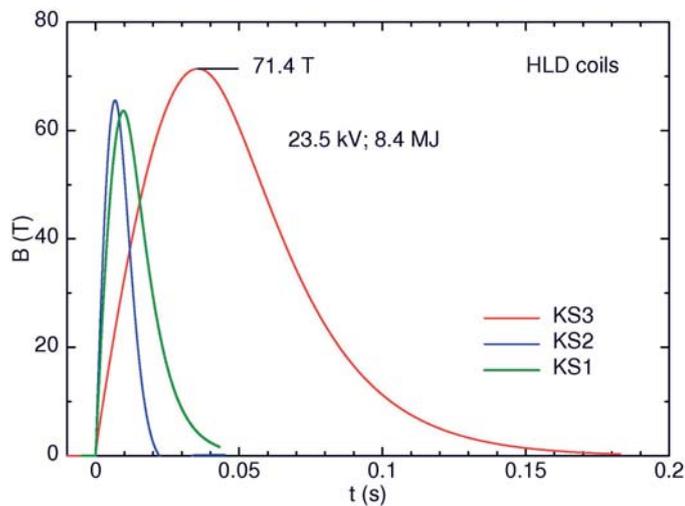
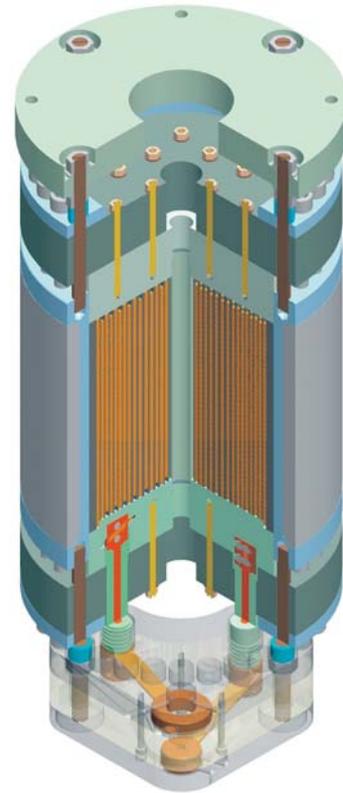


Fig. 1: Magnetpulse verschiedener für den Nutzerbetrieb am HLD entwickelter Magnetfeldspulen und Schnittzeichnung der Kompaktspule der dritten Serie (KS3), mit der Pulse bis über 70 Tesla in einem Probenraumdurchmesser von 24 mm möglich sind.

Pulse forms of several magnets designed for the user program of the HLD as well as a sectional drawing of a compact coil (Kompaktspule) of the third design series (KS3). KS3 is in use for the generation of magnetic field pulses to above 70 Tesla in a sample-space diameter of 24 mm.



und Transport“ am Pilotlabor der Dresdner Hochfeldinitiative im Leibniz-Institut für Festkörper- und Werkstofforschung (IFW) Dresden in Magnetfeldern bis zu 47 Tesla durchgeführt. Das Spulenentwicklungsprogramm des FZD-Instituts Hochfeld-Magnetlabor Dresden ermöglicht mittlerweile Experimente bis etwa 72 Tesla, einem Wert, der weltweit nur in wenigen Labors erreicht werden kann. Einzigartig ist, dass im HLD diese Feldstärke für eine lange Pulsdauer bereitgestellt wird, die eine entscheidend genauere Messstatistik erlaubt. Zudem steht für Experimente ein außergewöhnlich großer Durchmesser des Probenraumes zur Verfügung (siehe Fig. 1). So konnten nun 2006 weitere Messungen der Quantenoszillationen des elektrischen Widerstandes (Shubnikov-de Haas-Effekt) von CeBiPt unter verbesserten Bedingungen durchgeführt werden. Neben komplett neu entwickelten Versuchsaufbauten der Magnetumgebung (siehe Fig. 2) und der Experimenteinsätze wurde dabei am HLD eine zweite Referenzprobe untersucht. Auch in diesem völlig unabhängigen Experiment zeigte sich eine deutliche Änderung der leitungselektronischen Struktur von CeBiPt. Dies äußert sich darin, dass die Quantenoszillationen, also die Oszillationen des elektrischen Widerstandes als Funktion des Magnetfeldes, oberhalb von 40 Tesla ausbleiben. Bei den Experimenten, die im Jahr 2006 am HLD im erweiterten Feldbereich durchgeführt wurden, konnte vor allem gezeigt werden, dass bis 70 Tesla keine neuen

Thanks to the status of the coil-design program of the Dresden High Magnetic Field Laboratory, experiments to about 72 Tesla have already been made possible at the HLD in 2006. Pulsed fields of this size are disposable in only a few labs worldwide. Uniquely, at the HLD this high magnetic field is provided for long pulse durations which permits more precise measuring statistics and allows an outstandingly large sample-space diameter (see Fig. 1) for experiments. Consequently, further electrical resistance measurements of the quantum oscillations as a function of the applied magnetic field (Shubnikov-de Haas effect) of CeBiPt have been performed in 2006 under upgraded conditions. For that purpose, the newly developed pulsed magnets and technical installations (see Fig. 2) as well as the customized experimental insets have been used. In addition, a new sample was prepared for the measurements. As mentioned before, the data demonstrated a clear field-induced change of the electronic band structure. This was clearly observed in the disappearance of the quantum oscillations at fields above 40 Tesla. In particular, the new experiments performed at the HLD have demonstrated that up to 70 Tesla no new quantum oscillations emerge. This observation allows for a deeper insight into the exotic properties of the metal CeBiPt. The change of the charge-carrier density induced by the magnetic field is understood as an effect both arising from the low number of charge carriers and from the



Fig. 2: Kompaktpule der dritten Serie (KS3) für Magnetfeldpulse bis über 70 Tesla in einer der fünf Pulsfeldkammern des Hochfeld-Magnetlabors Dresden.

Compact coil KS3 for the generation of magnetic field pulses to above 70 Tesla installed in one of the five magnet cells of the Hochfeld-Magnetlabor Dresden, HLD.

Quantenoszillationen auftreten. Diese Beobachtung unterstützt das genauere Verständnis des Metalls CeBiPt, wonach die magnetfeldinduzierte Änderung der Ladungsträgerdichte in CeBiPt sowohl auf die niedrige Leitungselektronendichte als auch auf die speziellen Eigenschaften der Bandstruktur der von den Cer-Atomen beigesteuerten 4f-Elektronen zurückzuführen ist. Dass die 4f-Elektronen von Cer eine wesentliche Rolle spielen, wurde ganz anschaulich durch Untersuchungen an der Vergleichssubstanz LaBiPt (Lanthan besitzt keine 4f-Elektronen) demonstriert. In LaBiPt existieren gewöhnliche leitungselektronische Eigenschaften. Dort wurde im gesamten untersuchten Magnetfeldbereich kein Abbruch der Quantenoszillationen beobachtet. Ein Hinweis für eine vom Magnetfeld hervorgerufene Änderung der Elektronenkonzentration in CeBiPt gelang ebenfalls. Es konnte beobachtet werden, dass die Hall-Spannung und der Hall-Widerstand (ρ_{xy} in Fig. 3), die als Messgrößen direkt über die Dichte der frei beweglichen Ladungsträger Auskunft geben, ihre Steigung als Funktionen des Magnetfeldes oberhalb von 40 Tesla ändern (siehe Fig. 3).

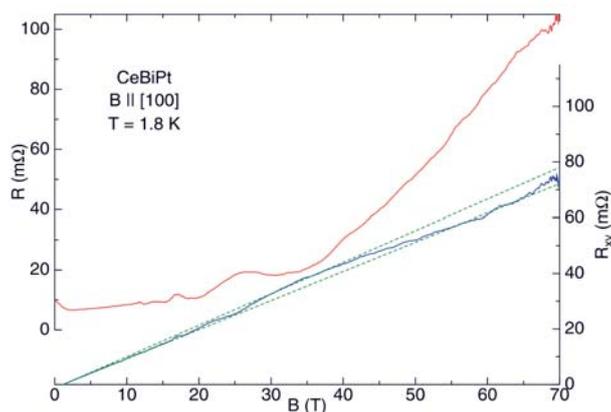
Diese Ergebnisse [1, 2] wurden bereits auf internationalen Konferenzen vorgestellt und dort mit großem Interesse wahrgenommen. In Folge haben bereits einige externe Arbeitsgruppen Messanträge am HLD gestellt, um die einzigartigen Messbedingungen nutzen zu können. Die ersten Schritte zum Nutzerlabor wurden so mit diesen Experimenten im Jahr 2006 getan.

Fig. 3: Magnetfeldabhängigkeit des Widerstandes (rote Linie) und des Hall-Widerstandes (blaue Linie) des Metalls CeBiPt. Die blaue Linie zeigt die Änderung der Ladungsträgerdichte an.

Electrical resistance (red curve) and Hall-resistance (blue curve) of the metal CeBiPt. The blue line indicates a change of the charge-carrier density.

special properties of the electronic structure influenced by the 4f electrons of the cerium atoms. The fact that the 4f electrons of cerium play an essential role became quite clear by comparative investigations of the reference compound LaBiPt (La has no 4f electrons). For this material no vanishing of the quantum oscillations was observed in the whole magnetic-field range examined. For CeBiPt further evidence for a field-induced change of the charge-carrier density was found; it was observed that the slope of the Hall voltage and the Hall resistance (ρ_{xy} in Fig. 3) which are direct measures of the charge-carrier density changes above 40 Tesla (see Fig. 3).

These findings [1, 2], presented e.g. on international conferences, were recognized with strong interest. As a result, several external research teams have already applied for magnet time at the HLD. Thus, triggered by these experiments in 2006, first steps towards a user facility have been taken.



Dreidimensionales Polymer mit ungewöhnlichem Magnetismus

Während des Jahres 2006 gelang im Rahmen eines weiteren Kooperationsprojektes des HLD mit Arbeitsgruppen aus Cheney (Washington, USA), Argonne (Illinois, USA), Oxford (UK), Chilton (UK) und Raleigh (North Carolina, USA) der Nachweis eines ungewöhnlichen magnetischen Phasenüberganges in einer dreidimensionalen organischen Verbindung. In dem neuartigen Polymer aus $[\text{Cu}(\text{HF}_2)(\text{pyrazin})_2]\text{BF}_4$ -Gruppen (siehe Fig. 4), das vornehmlich aus Wasserstoff, Fluor, Kohlenstoff und Kupfer aufgebaut ist, wurde erstmals eine antiferromagnetische Anordnung von atomaren magnetischen Momenten beobachtet. Die magnetischen Spin-Beiträge stammen von den im Polymer eingebetteten Kupferionen, die z. B. in metallischem (unmagnetischem) Kupfer nicht ausgebildet werden. Das überaus stabile dreidimensionale Polymer wurde von Chemikern um Jamie Manson an der Eastern Washington University hergestellt und anschließend von Physikerteams in Großbritannien und im HLD untersucht.

Mittels Messung der statischen Magnetisierung, der Wärmekapazität, der Myonen-Spin-Resonanz und zuletzt auch der differentiellen Wechselfeldsuszeptibilität konnte nachgewiesen werden, dass der antiferromagnetische Zustand unterhalb von 1,54 Kelvin, also 1,54 Grad über dem absoluten Nullpunkt von $-273,15\text{ }^\circ\text{C}$, eintritt [3]. Diese antiferromagnetische Ordnung ist besonders interessant, da das Polymer sich durch eine neuartige und ungewöhnliche Struktur auszeichnet, in der die Kupferionen nahezu kubische Gitterplätze belegen, d. h. auf einfache Weise im Raum angeordnet sind, obwohl sie gleichzeitig mit organischen Pyrazin-Molekülen Ebenen bilden, die wiederum über Brücken aus Wasserstoff und Fluor miteinander verbunden sind. Der einfachen räumlichen Anordnung der Kupferionen steht folglich eine komplexere chemische Umgebung und damit eine interessante elektronische Struktur gegenüber, die beste Voraussetzungen für konkurrierende Elektronenaustauschwechselwirkungen liefert und somit ein reichhaltiges Magnetfeld-Temperatur-Phasendiagramm ermöglichen kann. Zum besseren Verständnis der mikroskopischen Wechselwirkungen zwischen den magnetischen Momenten untereinander und zur Klärung, inwieweit die Kopplung zwischen Kupferionen und organischen Einheiten daran beteiligt ist, werden nun weitere Messungen am HLD durchgeführt. Zur Bestimmung des magnetischen Phasendiagramms werden vor allem Experimente bei höheren Magnetfeldern und tieferen Temperaturen anvisiert.

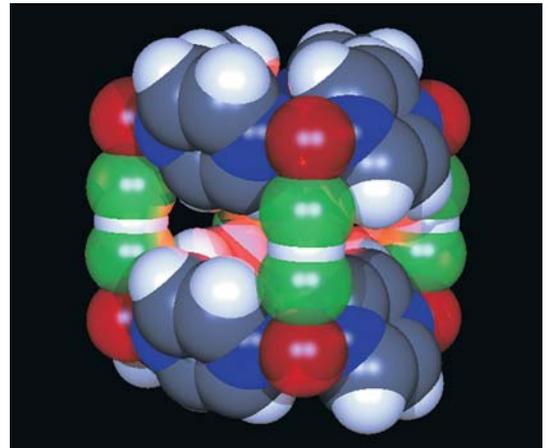


Fig. 4: Kubisches Polymer $[\text{Cu}(\text{HF}_2)(\text{pyrazin})_2]\text{BF}_4$ (hergestellt von Jamie Manson).

Rot: Kupferionen, grün: Bifluoridionen, blau: Pyrazineinheiten.

The cubic polymer $[\text{Cu}(\text{HF}_2)(\text{pyrazine})_2]\text{BF}_4$ which has been synthesized by Jamie Manson.

Red: copper ions, green: bifluoride ions, blue: pyrazine units.

Three-dimensional polymer with unusual magnetic properties

During 2006, another cooperation of the HLD with teams from Cheney (Washington, USA), Argonne (Illinois, USA), Oxford (UK), Chilton (UK), and Raleigh (North Carolina, USA) succeeded in observing an unusual magnetic phase transition in a three dimensional organic compound. In this new polymer consisting of $[\text{Cu}(\text{HF}_2)(\text{pyrazine})_2]\text{BF}_4$ units (see Fig. 4) mainly containing hydrogen, fluorine, carbon, and copper, an antiferromagnetic arrangement of atomic magnetic moments has been deduced. The source of this magnetism is the spin of the copper ions embedded inside the polymer. This contrasts nonmagnetic metallic copper. The three-dimensional polymer, which is highly stable, was synthesized by Jamie Manson at the Eastern Washington University in Cheney and investigated by physicists in UK and at the HLD. By means of static magnetization, heat capacity, muon-spin rotation, and recently by differential ac-susceptibility measurements the antiferromagnetic ground state was demonstrated to occur below 1.54 K [3]. The antiferromagnetic order is exceptional, as the copper ions occupy sites on an almost cubic lattice. In spite of the complicated molecular structure, the copper ions are arranged in this simple geometrical fashion. The copper ions and the pyrazine molecules build layers which are connected by hydrogen and fluorine bridges. As a consequence, the simple copper-ion lattice is embedded in a complex molecular structure which gives rise to competing electronic exchange interactions. Further investigations are in progress at the HLD to understand the microscopic interactions

Im kommenden Jahr sollen weitere Polymer-Proben im Forschungszentrum Dresden-Rossendorf untersucht werden, um den für diese Klasse der Polymere neu entdeckten Magnetismus besser verstehen zu können. Dies wäre ein wichtiger Schritt, um in Zukunft organische Materialien mit maßgeschneiderten magnetischen Eigenschaften herstellen zu können. Mit Eisen und anderen ferromagnetischen Materialien lassen sich Magnete bauen, mit Polymeren ist dies nach derzeitigem Wissenstand nicht möglich. Es bleibt aber die visionäre Hoffnung, bei neuartigen Polymerverbindungen auch auf ferromagnetische Eigenschaften zu stoßen, die schließlich die Herstellung innovativer Magnete erlauben würden.

between the magnetic moments and the coupling between copper ions and organic units. In particular, experiments at high magnetic fields and low temperatures are targeted in order to determine the magnetic phase diagram.

Additional polymeric samples from Jamie Manson's laboratory are planned to be studied at the Forschungszentrum Dresden-Rossendorf in order to examine the newly discovered magnetism for this class of polymers. This would be a significant step to synthesize organic materials with tailored magnetic properties. Permanent magnets can be produced from iron and other ferromagnetic materials, however, from polymers this is, according to the current knowledge, not possible. The great vision to realize ferromagnetic properties for novel polymeric compounds that eventually would permit the development of innovative magnets, however, remains.

Am ersten Vorhaben [1, 2] waren außer dem HLD folgende Institute beteiligt

Project partners of the HLD involved in the first project [1, 2]

- ¹Leibniz-Institut für Festkörper- und Werkstoffforschung (IFW) Dresden, Germany
²Institut für Festkörperphysik, Technische Universität Dresden, Germany
³Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe, Germany
⁴Forschungszentrum Karlsruhe, Institut für Festkörperphysik, Germany
⁵Institut für Mathematische Physik, Technische Universität Braunschweig, Germany
⁶Department of Quantum Matter, ADSM, Hiroshima University, Japan
⁷Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe, Dresden, Germany

Am zweiten Vorhaben [3] waren außer dem HLD folgende Institute beteiligt

Project partners of the HLD involved in the second project [3]

- ¹Department of Chemistry and Biochemistry, Eastern Washington University, Cheney, USA
²Materials Science Division, Argonne National Laboratory, Argonne, USA
³Clarendon Laboratory, Physics Department, Oxford University, UK
⁴ISIS Facility, Rutherford-Appleton Laboratory, Chilton, Didcot, UK
⁵Department of Chemistry, North Carolina State University, Raleigh, USA

[1] "Magnetic-Field-Induced Band-Structure Change in CeBiPt",

¹N. Kozlova, ²J. Hagel, ²M. Doerr, J. Wosnitza, ¹D. Eckert, ¹K.-H. Müller, ¹L. Schultz, ¹I. Opahle, ¹S. Elgazzar, ¹M. Richter, ³G. Goll, ^{3,4}H. v. Löhneysen, ⁵G. Zwicknagl, ⁶T. Yoshino, and ⁶T. Takabatake, Physical Review Letters **95**, 086403 (2005).

[2] "Magnetic-field- and temperature-dependent Fermi surface of CeBiPt",

J. Wosnitza, ³G. Goll, A. D. Bianchi, B. Bergk, ¹N. Kozlova, ¹I. Opahle, ¹S. Elgazzar, ¹Manuel Richter, ⁷O. Stockert, ^{3,4}H. v. Löhneysen, ⁶T. Yoshino, and ⁶T. Takabatake, New Journal of Physics **8**, 174 (2006).

[3] "[Cu(HF₂)(pyz)₂]BF₄ (pyz = pyrazine): Long-Range Magnetic Ordering in a Pseudo-Cubic Coordination Polymer Comprised of Bridging HF₂⁻ and Pyrazine Ligands",

¹J. L. Manson, ¹M. M. Conner, ²J. A. Schlueter, ³T. Lancaster, ³S. J. Blundell, ³M. L. Brooks, ⁴F. L. Pratt, T. Papageorgiou, A. D. Bianchi, J. Wosnitza, ⁵M.-H. Whangbo, Chemical Communications, 4894 (2006).