A sp空间分辨光学方法测量热扩散率 ty

F. Sun、S. Mishra、P. H. McGuinness、Z. H.Filipiak、I. Markovi´c 和 D.A. Sokolov马克斯·普朗克化学物理固体研究所，德国德累斯顿 *01187*

N. Kikugawa

日本国立材料科学研究所，日本茨城 *305-0003*

J. W. Orenstein

加州大学伯克利分校物理系，美国加利福尼亚州伯克利 *94720*；以及劳伦斯伯克利国家实验室材料科学部，美国加利福尼亚州伯克利 *94720*

S. A. Hartnoll

剑桥大学应用数学与理论物理系，英国剑桥 *CB3 0WA*

A. P. Mackenzie

马克斯·普朗克化学物理固体研究所，德国德累斯顿 *01187*；圣安德鲁斯大学物理与天文学院，英国圣安德鲁斯 *KY16 9SS*

V. Sunko*

马克斯·普朗克化学物理固体研究所，德国德累斯顿 *01187*；加州大学伯克利分校物理系，美国加利福尼亚州 *94720*

（*通讯作者：vsunko@berkeley.edu）

（日期：2023年3月6日）

arXiv:2303.02017v1 [cond-mat.str-el] 3 Mar 2023

摘要

我们介绍了一种光学方法，可直接测量反射性单晶样品在宽温度范围内的位置依赖的热扩散率，用于凝聚态物理研究。该方法使用两束激光：一束作为光源，在局部调制样品温度；另一束作为探测光束，用于探测样品反射率，而样品反射率是调制温度的函数。热扩散率通过光源信号与探测信号之间的相位延迟获得。我们将该技术与光学低温恒温器中的显微镜装置相结合，其中样品置于三轴压电位移台上，从而实现空间分辨测量。此外，我们通过实验和数学证明，当两束激光重叠而不是按照传统方式将其分开时，可以获得各向同性面内扩散率；这进一步将空间分辨率提升至微米尺度，在研究非均匀或多畴样品时尤其有价值。我们详细讨论了该技术具有应用价值的实验条件，并在两种化学计量比双层钌酸盐上展示了其性能：$Sr_3Ru_2O_7$ 和 $Ca_3Ru_2O_7$。空间分辨率使我们能够研究后者单畴中的扩散率，并揭示了温度依赖的面内扩散率各向异性。最后，我们利用两束光重叠所带来的增强空间分辨率，测量了掺杂 Ti 的 $Ca_3Ru_2O_7$，的温度依赖的扩散率；该材料表现出金属-绝缘体转变。我们观察到同一样品中的转变温度存在较大变化，这源于掺杂不均匀性，并表明空间分辨技术在获取材料固有性质方面具有强大能力。

一、引言

热输运实验是凝聚态物理中用于理解关联材料中电子、声子及其相互作用基本物理特性的关键工具之一，研究覆盖广泛的温度范围。热导率（κ）被视为一种特征量，常用于研究输运行为和散射机制[1–3]。结合电阻率测量，可构建维德曼–弗兰兹比 [4], ，从而提供有关电子和声子散射的重要信息。然而，热辐射通常会将低温恒温器中的 κ 测量限制在低温范围内（多数情况下低于 100 K）；在更高温度下进行测量则需要专门搭建装置，并特别注意校准和修正辐射损耗。这些损耗由样品与周围低温恒温器之间的温差引起，而低温恒温器通常维持在液氦的温度（4 K） [5]。这一实验限制导致，在电输运测量中已观测到普适的“普朗克型”散射率的宽广温度范围内，热输运测量却寥寥无几 [6–10]。

热导率通常通过测量样品两端由已知热流引起的温差来确定，其中样品与环境进行了热隔离。这种方法具有许多优点，尤其是易于在低温装置中实施，并且可以使用同一组电极接触测量电输运。因此，在评估热导率与电导率之比时，几何不确定性会大幅降低。然而，该方法要求样品在至少数百微米的长度范围内保持均匀，并且与环境进行热隔离。此外，对热输运各向异性的研究需要制备具有不同接触几何形状的多个样品，这是一个繁琐的过程，并可能引入系统误差。尽管上述限制在尺寸较大的均匀单晶中可以克服，但对于不均匀材料，或表现出自发畴形成的对称性破缺相，这些限制很可能会引入误差。此外，对于无法与其生长所在的衬底进行热隔离的薄膜，以及通常尺寸仅为数十微米的范德华异质结构，相同的限制将变得难以克服。

上述考虑促使我们采用不同的方法来研究热输运。近期的研究成果 [11–14], 对我们影响尤为显著，该研究指出，在高温区间，热扩散率（D）或许比

热导率（κ）更能有效地描述热输运，至少在瞬态条件下是如此。传统上，热扩散率是通过分别测量 κ 和热容（c）获得的（$D = \kappa / c$），因此不仅继承了热导率测量的局限性，还会产生与两次独立测量相关的不确定性。实际样品中还经常存在非均匀性，这些非均匀性可能源于化学成分差异，也可能是由于形成了所关注的有序态中的畴，因此需要采用具有高空间分辨率的技术。多个研究领域的大量工作表明，可以采用光学方法实现这一点：使用两束激光束，一束用于局部加热样品，另一束用于探测样品对加热的响应。如果以非零频率施加热量，探测信号和加热信号之间的相对相位便包含有关热扩散率的信息。基于这一原理的技术，即调制热反射显微术或光热反射显微术，已广泛应用于材料科学领域，并经过改进，形成了紧凑型台式仪器，用于材料的室温表征 [15–20]。然而，对于上述凝聚态物理中的物理问题，室温测量并不足够。必须将光学系统与低温技术相结合，研制出能够在较大温度范围内进行测量的仪器。此外，还希望具备微米尺度空间分辨率，例如以便研究本质上具有非均匀性的样品。本文将介绍我们设计此类仪器的方法及其应用。

利用激光直接测量D始于20世纪60年代在高温下采用的闪光法：用光脉冲加热厘米尺度样品后，记录温度随时间的变化 [21, 22]。该方法依赖于直接测量激光加热导致的温升，因此难以考虑热损失和界面间的阻抗，面临的问题与接触法类似。此外，测量半透明材料可能会带来其他问题，但可以通过一些特殊技巧解决[23, 24]。自20世纪90年代起，人们开始采用光偏转法测量D，无需直接测量温度，而是监测样品表面上方气体折射率的变化。不过，该技术仍要求样品达到毫米尺度，而且不适用于低于氮的沸点（77 K）的低温应用 [25–27]。通过使用两个激光光斑（一个作为热源，另一个用于探测样品反射率），所需样品尺寸进一步缩小至 $\sim$50 μm [28]。这一原理也应用于材料科学，促成了上述室温显微术的发展。对于凝聚态物理应用，还可以采用低温恒温器，从而使该方法能够用于量子材料

[13, 14, 28, 29]。

为了使基于激光的技术更适用于量子材料研究，理想情况下，应在宽广的温度范围内同时尽可能提高空间分辨率和空间范围（即可扫描的区域）。为此，我们在上述前期工作的基础上，结合近期为低温光学实验开发的技术，对方法进行了多项改进。我们在专用光学低温恒温器（Montana Instruments Cryostation S50）中于真空环境下工作，并通过压电驱动扫描台移动样品，以获得较大的扫描范围和较高的分辨率。虽然我们也可以移动激光光斑，但其移动范围有限得多，因此大多数实验采用样品移动、光学元件固定的模式。为了充分利用扫描台所提供的高空间分辨率，我们通过数学分析和实验演示了：源光束和探测光束重叠时，可以测量面内扩散率。结合这些方法，我们构建了一台仪器，可扫描 $\sim 4000 \times 4000$ μm 的区域，空间分辨率为 ~ 1 μm，适用温度范围为 5 K 至 330 K。此外，我们详细介绍了如何最大限度地减少装置热收缩造成的伪影，并说明了能够可靠定量测量扩散率的参数范围。

II. 实验设计

A. 实验设置

用于热扩散率测量的光学装置如图 1(a) 所示。我们使用两束激光，一束作为源光束（780nm），用于局部提高样品温度；另一束作为反射率探测光束（633nm），而反射率是样品温度的函数。源光束和探测光束由同一物镜聚焦到样品表面，形成半径为 ~ 2 μm 的光斑。源光束由机械斩波器调制，从而以斩波器设定的频率进行周期性加热。由探测光束检测到的样品温度也以相同频率变化。然而，温度变化并非瞬时发生；其发生的时间尺度取决于热扩散率，因此可通过源信号与探测信号之间的相位延迟求得热扩散率。为了测量源光束与探测光束之间的相位差，我们使用了两个锁相放大器。一个记录源信号，另一个测量探测信号，两者共享光学斩波器的调制频率。测量分为

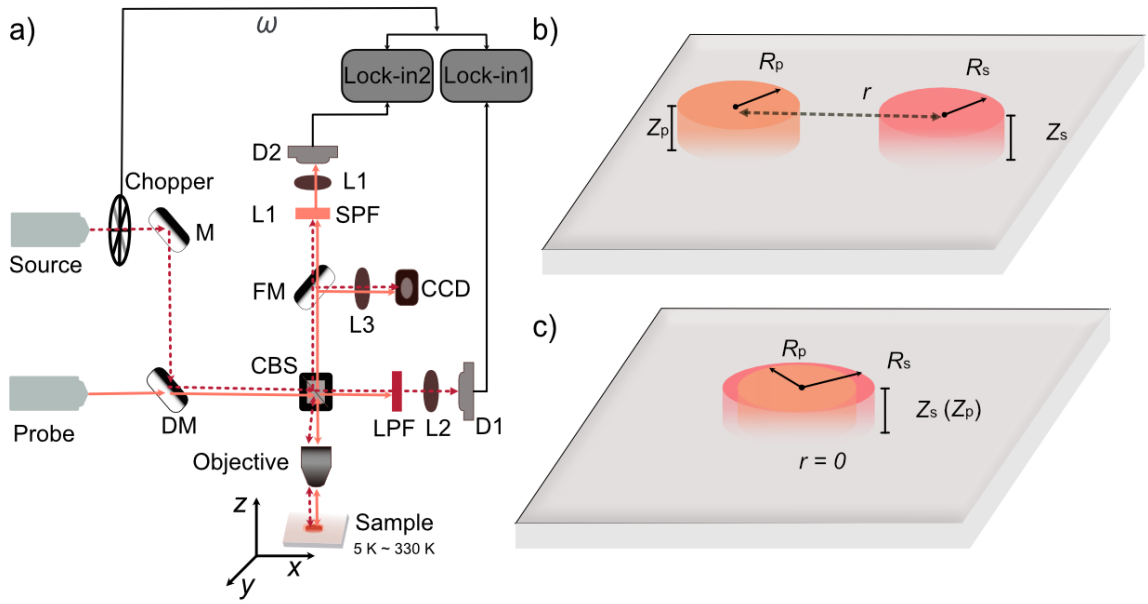


图 1. 光学实验示意图。a）光路设置。M：反射镜；L：透镜；LPF：长通滤光片；SPF：短通滤光片；CBS：立方体分束器；FM：翻转镜；D：光电二极管；DM：二向色镜。样品置于低温恒温器内，可在 5–330 K 范围内进行温度依赖测量。*x*、*y* 和 *z* 分别表示压电台的三个轴。b）分离构型。c）重叠构型。

两种配置进行，我们称之为分离和重叠：前一种配置（用于我们在上文第一节回顾的该领域先前研究）中，两束激光的光斑相距r（图 1(b)）；后一种配置中，两个光斑在空间上重叠（图 1(c)）。在图 1(b、c) 中，R_s 和R_p 分别表示源光束和探测光束的半径，r 表示两个光斑中心之间的距离（分离情形下为有限值，重叠情形下为 0），而z_s 和z_p分别表示源激光和探测激光的穿透深度。

适用于两种构型的实验数学描述基于各向异性扩散方程：

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} - \left(D_x \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 \Phi}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2}\right) = \frac{I}{c}, \tag{1}$$

其中，D_x、D_y 和D_z 分别表示沿晶体三个主方向的热扩散率，c表示热容，$\Phi(x,y,z,t)$表示温度分布，而$I(x,y,z,t)$表示外部热源的强度。由于扩散率张量仅在由其主轴定义的基底中为对角形式，因此在进行基于方程的测量之前，确定主轴的取向十分重要。

1）时，正如我们在测定正交晶系 $Ca_3Ru_2O_7$ 的各向异性扩散率时所做的那样。我们采用两种方法确定主轴：对光学双折射进行空间映射（图3(b)），以及测量扩散率的角度依赖性，其中最大值和最小值分别对应主轴的取向（图3(d)）。光源（$I_s(x,y,z,t)$）和探测光束（$I_P(x,y,z,t)$）的强度分布由以下表达式的实部给出：

$$I_s(x,y,z,t) \propto e^{-(x^2+y^2)/2R_s^2} e^{-z/z_s} e^{-i\omega t}, \tag{2}$$

$$I_p(x,y,z,t) \propto e^{-(x^2+y^2)/2R_p^2} e^{-z/z_p} e^{-i\omega t}, \tag{3}$$

其中，ω 为调制频率，z_s 和 z_p 分别为光源光斑和探测光斑的光在垂直于样品表面方向上的穿透深度，R_s 和 R_p 为两束光的光斑半径。通过求解扩散方程（详见附录 A），我们得到了时空分辨的温度分布，进而得到激发与探测之间的相位延迟。这里讨论两种实验构型。

B. 分离构型（$r \gg R_s,\ R_p$）

在分离构型中（图 1(b)），实验参数的典型值为 $r \approx 25\ \mu m$、$R_s \approx R_p \approx 2\ \mu m$，且源光斑和探测光斑（式 2）均可近似为狄拉克 δ 函数。由于光斑在平面内彼此分离，显然该实验检验的是面内扩散，因此可以忽略光束在垂直于平面方向上的延伸（$z_s = z_p = 0$）。此时，光源与探测光束之间的相位延迟为：

$$\phi = \sqrt{\frac{r^2\omega}{2D}}, \tag{4}$$

其中，D 为热扩散率，ω 为调制频率，r 为源光斑和探测光斑之间的间距，ϕ 为相位差 [13, 29]。相位延迟 ϕ 与调制频率 ω的平方根成正比。因此，可以通过测量相位的频率依赖性，直接检验该模型的有效性。

C. 重叠构型（$r = 0$）

新型重叠构型（图 1(c)）的数学描述较为复杂，因为必须明确考虑两束光的高斯分布。此外，这项实验究竟探测的是面内扩散、

面外扩散，还是两者的组合，并不显而易见。我们对数值求解式 1 时考虑有限穿透深度的结果，与采用完整二维近似得到的结果（附录 B）进行了比较，发现对于现实参数，这项实验主要受面内扩散支配。其背后的物理原因是，光的穿透深度远小于典型的热扩散长度；因此，温度在探测深度范围内基本保持恒定，但会沿光束半径方向下降。在低频极限（$\omega \ll D R_s^2+R_p^2$）下，我们得到相位延迟的解析解：

$$\phi = \sqrt{\frac{(R_s^2 + R_p^2)\omega}{\pi D}}, \tag{5}$$

相位延迟 ϕ 再次与 $\sqrt{\omega}$成正比，这与分离构型类似；但此时的特征长度是光斑尺寸，而非较大的斑点间距。

D. 构型选择

两种测量构型（重叠构型和分离构型）各有优缺点，因此可能适用于不同条件。分离情形中较大的相关长度尺度会产生更大的相位延迟，使其对激光波动、细微的焦点偏移、等系统误差不那么敏感。此外，通过控制两个光斑相对于晶轴的间距方向，可以利用分离构型测量扩散率各向异性。相比之下，重叠情形具有更好的空间分辨率，但对光束重叠不完善和焦点变化更加敏感。在测量扩散率的温度依赖性时，后者尤其成问题：由于样品支架不可避免地发生热膨胀，在温度从 330 K 变化到 50 K 的过程中，观察到样品垂直位置发生了 20-μm 的偏移，使其沿 z 轴偏离焦点。我们通过使用压电位移台调节样品的垂直位置，精确校准并补偿了这一与温度相关的偏移（附录 C）。此外，我们设计了两种在两种测量构型之间切换的方法：一种使用一个反射镜，另一种需要协调两个反射镜。前者更易于操作，适用于单温度实验；后者则在温度依赖性实验中对样品台的 z 偏移更加稳定。详情见附录 D。总而言之，重叠构型具有更好的空

间分辨率，但可能会受到更多实验伪影的影响，因此必须通过谨慎的实验设计和校准加以处理，本文将对此进行介绍。

E. 基本实验信号 $\delta\rho$ 的讨论

在这两种配置中，扩散率倒数与局部温度变化 δT 和导致温度变化的功率源之间的相移的平方成正比。我们实验中测得的基本信号是温度变化引起的反射率变化， $\delta\rho$；当加热足够弱、使系统保持在线性响应区间内时，该信号与 δT 成正比。为确保测量是在这些条件下进行的，重要的是测量 $\delta\rho$ 随源功率的变化关系（附录 E），并选择合适的功率，使系统保持在线性区间内。在相变附近需要特别谨慎，因为反射率和扩散率都可能随温度迅速变化；与远离相变的区间相比，通常需要使用较低的功率。此外，在相变上下不同的温度范围内，可能适合采用不同的功率水平。

该测量方案要求反射率具有可测量的温度依赖性。由于我们的调制技术能够检测量级为 10^{-6} 的相对反射率变化，并且还可以通过提高源功率来进一步增强信号（同时保持在线性区间内），因此我们预计，对于绝大多数材料，都可以在较宽的温度范围内通过这种光学方法测量热扩散率。一个例外是反射率的温度导数为零这一特殊情况，例如 反射率达到最大值或最小值。即使在这种情况下，采用不同的波长进行测量也可能得到非零的温度导数。至关重要的是，只要测量保持在线性区间内（如我们的实验数学描述〔附录 A〕所示），相移就与反射率及其温度导数的数值无关。然而，相移中的噪声与反射率变化 $\delta\rho$ 的信噪比成正比；因此， $\delta\rho$ 越大，数据质量越好。

F. 面内非均匀性和各向异性

与基于传统热导率和热容测量的方法相比，基于光学的扩散率测量有一项优势：能够进行空间分辨测量。在我们的装置中，这是通过将样品安装在低温恒温器内的三轴压电位移台上实现的。这使得我们能够测量空间分布不均匀的样品的扩散率，无论这种不均匀性是由无序还是畴的形成造成的。

此外，这种非接触技术无需修改装置或额外制备样品，即可测量单个样品的各向异性扩散率。如果沿两个主轴方向的扩散率不同（$D_{\boldsymbol{a}}$ 和 $D_{\boldsymbol{b}}$ 分别对应这两个方向），那么沿任意方向 θ 测得的扩散率为：

$$\frac{1}{D} = \frac{\cos^2\theta}{D_{\boldsymbol{a}}} + \frac{\sin^2\theta}{D_{\boldsymbol{b}}}. \tag{6}$$

公式6的推导与参考文献 [13], 一致，详见附录 A 2。参考文献[30, 31], 给出了热扩散率角度依赖性的表达式，但由于推导中存在错误，所得表达式略有不同。我们将在附录 A 2 中说明并修正这一错误。在实验中，角度 θ 对应于源光斑和探测光斑之间的间距相对于 $\boldsymbol{a}$轴的方向。通过将 θ 从 0 度变至 90 度，可以测量沿两个主方向的扩散率，下面将对此进行演示。

III. 结果

A. 研究材料

我们在两种化学计量比双层钌酸盐 $Ca_3Ru_2O_7$ 和 $Sr_3Ru_2O_7$,以及掺 Ti 的 $Ca_3Ru_2O_7$上测试了我们的技术。$Ca_3Ru_2O_7$ 属于正交晶系空间群 $Bb2_1m$，其晶格常数为 a = 0.5396 nm、b = 0.5545 nm 和 c = 1.961 nm [32, 33]。单晶具有孪晶畴和面内各向异性，使我们能够利用空间分辨率识别畴，并测量此前尚未报道的扩散各向异性。相比之下，$Sr_3Ru_2O_7$ 的晶格常数为 $a = b$ = 0.3890 nm 和 c = 2.0732 nm；在实验分辨率范围内，对于所有高于 2 K 的温度，其 $\boldsymbol{ab}$ 面内的电阻率均呈各向同性 [34–36]。我们对 $Ca_3Ru_2O_7$ 和进行了温度依赖测量

$Sr_3Ru_2O_7$, , 以证明两种测量构型对面内平均扩散率给出一致的结果。

重叠构型提供的更高空间分辨率为研究局域性质创造了机会，尤其是对于具有内在无序的掺杂系统。为验证这一点，我们研究了Ti掺杂的$Ca_3Ru_2O_7$。在$Ca_3Ru_2O_7$ 中进行Ti掺杂以取代Ru位点，已被用于调控磁性和莫特相变 [37, 38]。Ti掺杂的$Ca_3Ru_2O_7$ 会发生金属-绝缘体转变（MIT），其温度强烈依赖于Ti掺杂量。将掺杂水平从3%调至10%，MIT温度会从50 K升至110 K。因此，通过在局域尺度识别MIT温度，我们能够揭示局域掺杂水平，并检验样品的面内化学均匀性。

B. 重叠构型与分离构型的比较

为确认两种构型均可测量面内扩散率，需要验证：(a)上述低频区域在两种构型中都能达到；(b)两种构型得到的扩散率相同。图2(a)和2(b)分别展示了$Ca_3Ru_2O_7$ 在300 K至50 K的多个温度下，相位延迟对调制频率平方根的频率依赖性，以及相应的线性拟合（虚线）；两图分别对应分离构型和重叠构型。线性区间的上限以灰色点线标出，分离光束对应 4×10^4 rad/s，重叠光束对应3.4×10^4 rad/s。我们注意到，两种构型在零频率处都有数度的伪截距。该截距是与温度无关的实验装置伪影，在分析中很容易予以校正：若测得的频率依赖性符合$A + B\sqrt{\omega}$，则可扣除截距A。这一观察强调了测量相位延迟的频率依赖性，而非对其作出假设的重要性。截距扣除并非完美的方法，在相位延迟绝对值较小的情况下可能容易引入误差，正如下文所述。不过，只要截距相对于信号中随频率变化的部分足够小，这种方法就能奏效。

—

接下来，我们比较了在 $Ca_3Ru_2O_7$ 和 $Sr_3Ru_2O_7$ 中通过两种构型获得的扩散率。在$Ca_3Ru_2O_7$，中，通过沿两条主轴分离两个激光光斑，可以测量扩散率各向异性；而重叠测量对平均扩散率敏感（更多细节请参见附录 A）。在图2(c)中，我们绘制了沿两条

主方向在分离构型下测得的扩散率、其平均值，以及重叠构型下的测量结果。分离构型得到的平均值（根据附录 A 中的公式 A.15）与重叠构型得到的数值吻合良好。此外，我们确认，在各向同性的 $Sr_3Ru_2O_7$ 中，通过两种构型获得的温度依赖的扩散率彼此一致（图3(d)）。综上，这些结果明确表明，通过测量重叠光源与探测激光束之间的相位差，可以获得平均面内扩散率，从而能够以衍射极限空间分辨率测量热扩散率。

尽管两种方法总体上吻合良好，但如图3(d)插图中的偏差图所示，我们注意到低温下的差异会增大。如上所述，随着本征延迟相位减小，与截距扣除过程相关的误差会变得更加重要。在低温下，这对重叠构型的影响最为严重，也很可能解释了在该温度范围内，其结果为何比在分离构型下偏差更大。在大多数情况下，对于泵浦与探测脉冲的任一给定构型，低温下的延迟相位都最小。然而，正是在这一低温区域，其他获取扩散率的方法（例如直接结合热导率和热容）最为准确。就我们的研究目的而言，光学技术的全部优势体现在100–300 K这一温度范围内，因为标准热导率测量会受到相当大的系统误差影响。不过，有时即便只是定性的低温信息也很有用，尤其是在结合高空间分辨率时。我们将在后文讨论检测扩散率不均匀性时介绍这样一个案例。

C. $Ca_3Ru_2O_7$中扩散率的面内各向异性

通过偏振光显微镜，可以清晰地看到 $Ca_3Ru_2O_7$ 畴结构的两级对比度（如图3(a)所示），这源于光学双折射 [39]。在我们的具有微米级分辨率的光学装置中，通过采用偏振分析（如图3(b)所示），我们能够测量同一样品中具有空间分辨率的双折射。由于已知 $Ca_3Ru_2O_7$ [39], 中的畴界沿(110)方向，因此观察到对角线畴界使我们能够确定，在我们的测量配置中，主晶轴为竖直方向和水平方向。为了确认热扩散率具有各向异性，我们固定两个激光光斑之间的间距，并使它们同时跨越畴界移动——

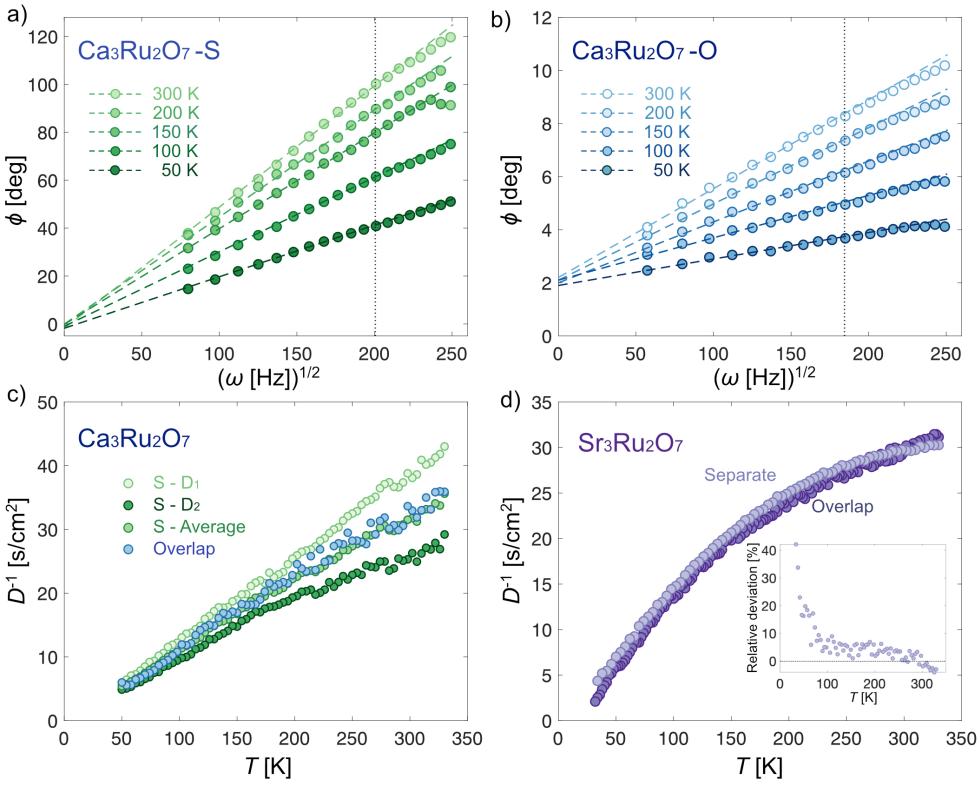


图2. 在温度范围为 300K 至 50 K 时，使用 a) 分离构型 (S) 和 b) 重叠构型 (O) 测量 $Ca_3Ru_2O_7$ 的频率依赖的相位延迟，并将其绘制为调制频率平方根的函数。圆圈表示实验数据，虚线表示线性拟合。竖直点线估算了线性区间的上限。c) 通过两种构型获得的 $Ca_3Ru_2O_7$, 的热扩散率。对于分离构型，图中显示了两个畴 (D_1 和 D_2) 中的结果及其平均值。d) 通过两种构型获得的 $Sr_3Ru_2O_7$, 的热扩散率。插图显示了两种构型所得结果之间的相对偏差。

界。沿源光斑和探测光斑间距的不同方向进行这种一维线扫描。如果斑点间距保持固定并沿竖直（水平）方向，则测量对畴1中的扩散率 D_b （D_a）以及畴2中的扩散率 D_a （D_b）敏感。沿一条穿过畴界的一维直线，测量作为位置函数的变化，会显示出畴界处的阶跃，如图3(c)中竖直（紫色）和水平（橙色）间距所示。此外，我们可以使光斑围绕彼此连续旋转，从而获得相位差作为斑点间距与主轴之间角度 θ 的函数（图3(d)）。实验结果的正弦变化（空心圆）

这进一步证明扩散率确实具有各向异性。紫色曲线是对公式6的拟合。

此外，我们的扫描装置能够绘制大面积二维区域的扩散率分布。图4(a-c)展示了三个选定温度下，300 μm × 250 μm区域内的相位延迟；相位延迟与扩散率直接相关（公式4）。由此可得出两个主要观察结果。首先，清晰地识别出双畴结构，证实热扩散率具有各向异性；其次，各向异性随温度降低而减弱。此外，畴界附近相位延迟的增大（图3）表明畴界处存在增强散射，凸显了空间分辨测量在探测均匀畴本征行为方面的优势。

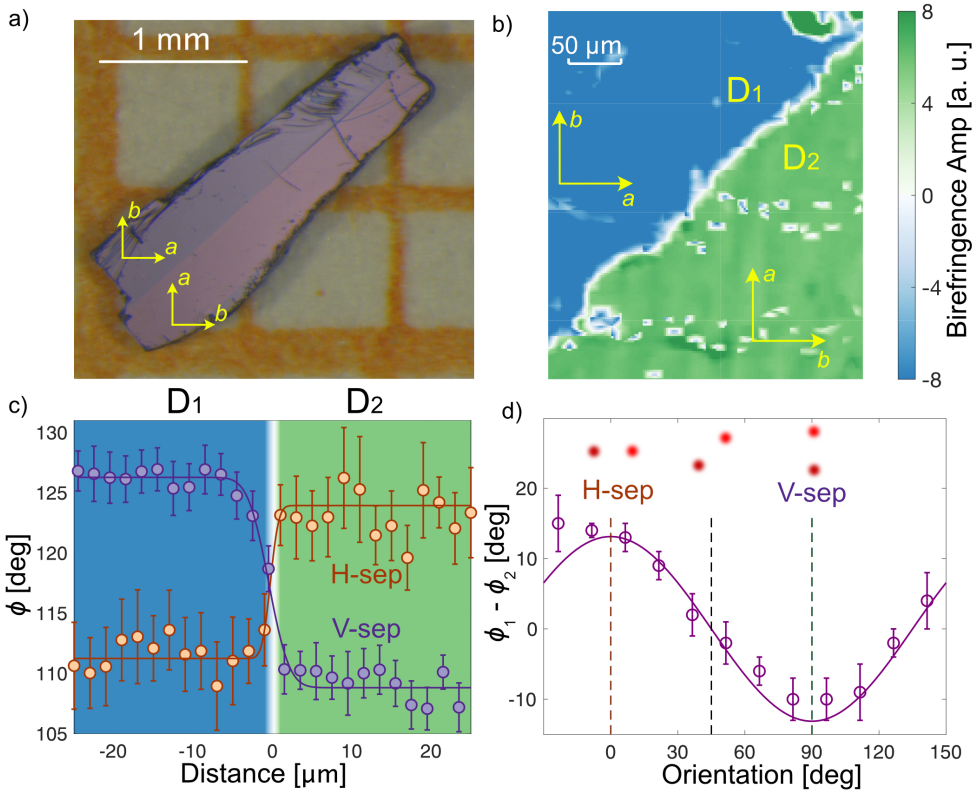


图3。a）$Ca_3Ru_2O_7$ 的偏振光学显微图像显示出两个畴。b）使用扫描光学装置在55K下绘制的a）所示样品部分的光学双折射图；c）沿垂直（V-sep）和水平方向（H-sep）分离的光束测得的跨越畴界的相位差随位置的变化；d）相位差随斑点间距与水平轴夹角的变化。实线曲线是对公式6的拟合。图上方的红点以示意图形式显示了源光斑和探测光斑的相对朝向。

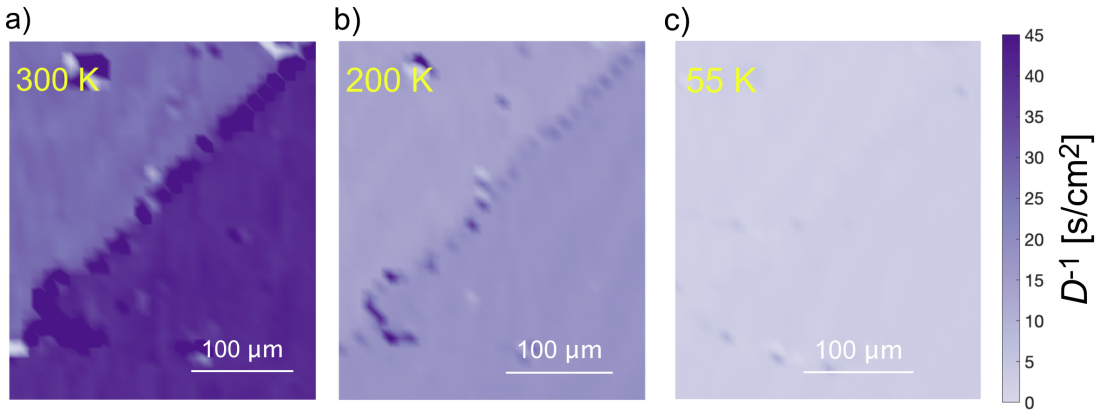


图4. $Ca_3Ru_2O_7$ 在 a) 300 K、b) 200 K 和 c) 55 K 时的热扩散率映射。高温下可以清晰地观察到两个畴，表明热扩散率存在各向异性，且这种各向异性会随着温度降低而减弱。

D. 检测扩散率非均匀性

重叠构型最大的优势是空间分辨率更高。分辨率受光束半径限制，在我们的测量中，探测光束的半径为1.9 μm，光源光束的半径为2.5 μm（附录F）；但在衍射极限实验中，光束半径可小至0.5 μm。空间分辨率对于研究非均匀系统至关重要，例如掺杂样品，其中掺杂水平可能在晶体内部有所变化，进而导致物理性质（包括热扩散率）发生变化。图5展示了同一Ti掺杂样品 $Ca_3(Ru_{1-x}Ti_x)_2O_7$, 在三个不同位置处温度依赖的相位延迟，其名义掺杂水平为x =5%（相应的样品位置标示在图5的双折射插图中）。相位的突变表明发生了金属-绝缘体转变；对于彼此仅相距 $\sim 70\,\mu$m的样品位置，转变温度在50 K至80 K之间变化。宏观样品中转变温度的这种变化源于固有的掺杂不均匀性；对于该样品，其幅度与名义掺杂水平本身相当。重叠构型的高空间分辨率使我们能够清晰观察到转变温度的变化。与传统的体材料测量，甚至与分离光斑光学测量相比，这是一项宝贵的改进，因为这两种方法都不可避免地需要对泵浦光与

探测光束。此外，金属-绝缘体转变以下电子被冻结时，扩散率反而上升而不是下降，这表明 Ti掺杂样品的扩散率在高温下主要由声子主导。这一观察支持了前述观点，即使是对低温扩散率的定性了解也可能非常有用。

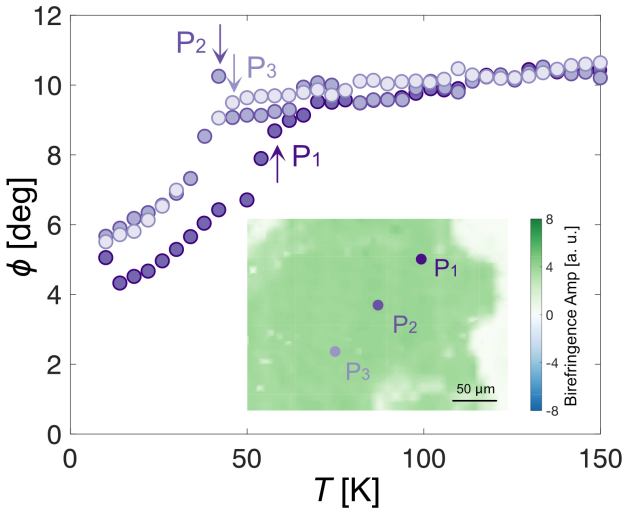


图 5。同一样品 Ti掺杂 $Ca_3Ru_2O_7$上三个不同位置的温度依赖的相位差。箭头标示金属-绝缘体转变，其温度随样品位置而变化。插图为样品双折射分布图，其中标出了测量点 P_1, P_2 和 P_3, ，表明数据采集于单畴内。

IV. 结论

我们的结果展示了在低温显微镜装置中采用光学方法进行热扩散率测量的潜力。分离构型和重叠光束配置对热扩散率的测量结果一致，且各有优缺点：分离构型可用于识别面内各向异性，而重叠构型具有更高的空间分辨率，在研究可能存在不均匀性的系统时尤其有帮助。可以研究畴内以及跨越畴边界的热扩散率。对于金属，随着温度降低、扩散率升高，我们的基本信号——相移——会减小。这意味着光学方法在低温下的准确度会降低。然而，这一特点与以下方法形成了有益的互补：

传统方法通过热导率和热容测量结果推导扩散率，因为传统热导率测量在高温下准确度最低。我们相信，结合这两种方法将为跨越多个数量级的温度范围进行测量铺平道路，获得比目前可用信息质量更高的数据。更广泛地说，我们的装置使我们能够研究对称性破缺的探测手段，例如双折射、克尔旋转、二次谐波产生，等等，并达到与本文所展示的热扩散率测量相同的空间分辨率。将这些方法结合起来，将使我们能够探索并可视化关联材料对称性破缺相中的热学性质。

致谢

我们感谢 Aharon Kapitulnik 和 Jiecheng Zhang 与我们进行有益的讨论，并提醒我们关注文献 [14]中的独立研究。我们还感谢 Elena Hassinger 和 Ulrike Stockert 与我们进行的有益讨论。VS 获得加州大学伯克利分校米勒基础科学研究所的资助。NK 获得日本学术振兴会（JSPS）科研补助金（KAKENHI）（项目编号：17H06136、18K04715 和 21H01033）以及核心对核心计划（项目编号：JPJSCCA20170002）的资助，并获得 JST-Mirai计划（项目编号：JPMJMI18A3）的资助。APM 和 SM 感谢德国研究联合会（DFG）提供的经费支持——TRR 288（项目编号：422213477，项目 A10）。德累斯顿的研究得益于德国研究联合会卓越集群 ct.qmat（EXC 2147，项目编号：390858940）提供的研究环境。

作者声明

利益冲突

作者没有需要披露的利益冲突。

作者贡献

FS 概念化（同等）；正式分析（同等）；调查（同等）；撰写—初稿（同等）；撰写—审阅与编辑（同等）；**SM** 概念化（支持）；正式分析（同等）；调查（同等）；撰写—初稿（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）

（支持）；**PHM** 调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**ZHF**调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**IM**调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**DAS** 调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**NK** 调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**JWO**概念化（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**SAH** 概念化（同等）；调查（支持）；撰写—审阅与编辑（支持）；**APM** 概念化（同等）；监督（同等）；撰写—初稿（同等）；撰写—审阅与编辑（同等）；**VS**概念化（同等）；调查（同等）；监督（同等）；撰写—初稿（同等）；撰写—审阅与编辑（同等）；

数据可用性声明

支持本研究结果的数据可在提出合理请求后向通讯作者获取。

附录 A：扩散方程的解

扩散输运由扩散方程控制

$$\frac{\partial \Phi}{\partial t} - (D_x \frac{\partial^2 \Phi}{\partial x^2} + D_y \frac{\partial^2 \Phi}{\partial y^2} + D_z \frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2}) = \frac{I_s}{c}, \tag{A.1}$$

$\Phi(x, y, z, t)$ 为温度分布；$I_s(x, y, z, t)$ 为外部热源；c为热容；D_x、D_y 和D_z 分别为沿三个主方向的热扩散率，前提是这些方向与热扩散率张量的主轴重合。两个实验构型均由同一方程描述；关键区别在于，在分离构型中，源项$I(x, y, z, t)$可近似为狄拉克δ函数，而在重叠情形中则必须用高斯函数描述。

我们假设，当温度涨落较小，即 δT 时，热容和热扩散率均保持恒定。我们采用格林函数法求解 Eq.A.1。首先，对温度分布和源项进行傅里叶变换：

$$\Phi(x, y, z, t) = \int \Phi_k(k_x, k_y, k_z, t) e^{-i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} d\boldsymbol{k}, \tag{A.2}$$

$$I_s(x, y, z, t) = \int I_{sk}(k_x, k_y, k_z, t) e^{-i\boldsymbol{k}\boldsymbol{r}} d\boldsymbol{k}, \tag{A.3}$$

利用傅里叶变换 Φ_k 和I_{sk}，Eq.A.1 可写为：

$$(\frac{\partial}{\partial t} + D_x k_x^2 + D_y k_y^2 + D_z k_z^2)\Phi_k = \frac{I_{sk}}{c}, \tag{A.4}$$

其中k_x、k_y 和k_z 是动量空间中的三个基向量。动量空间中算子 $(\frac{\partial}{\partial t} + D_x k_x^2 + D_y k_y^2 + D_z k_z^2)$ 的格林函数可表示为：

$$G(k_x, k_y, k_z, t) = \Theta(t) e^{-(D_x k_x^2 + D_y k_y^2 + D_z k_z^2)t}, \tag{A.5}$$

实空间中的格林函数由逆傅里叶变换得到。考虑到表面处禁止热流流出材料的边界条件，我们得到：

$$G(x, y, z, t, z') = -\frac{\Theta(t)}{2\pi^3} \int dk_x dk_y dk_z e^{i(k_x x + k_y y)} \cos(k_z z) \cos(k_z z') e^{-(D_x k_x^2 + D_y k_y^2 + D_z k_z^2)t}, \tag{A.6}$$

注意到，表达式显式依赖于z 和 z'，这是由样品表面处平移对称性的破缺导致的。利用格林函数，我们可以得到方程 A.1 的解。

$$\Phi(x,y,z,t) = \int dt'dx'dy'dz'G(x-x',y-y',t,z,z')\frac{I_k(x',y',z',t')}{c}, \tag{A.7}$$

我们测量的反射率瞬态变化 δR 与局部温度瞬态变化 δT成正比，后者通过对探测区域内的温度分布 $\phi(x,\ y,\ z,\ t)$ 积分得到：

$$\delta T \propto \int dtdxdydz\Phi(x,y,z,t)I_p(x,y,z,t), \tag{A.8}$$

上述推导的所有表达式对两种测量构型均适用；差异源于源光束和探测光束的相对位置不同，具体如下所述。

1. 重叠构型

探测光束和光源均采用高斯形式：

$$I_s(x,y,z,t) \propto e^{-(x^2+y^2)/2R_s^2}e^{-z/z_s}e^{-i\omega t}, \tag{A.9}$$

$$I_p(x,y,z,t) \propto e^{-(x^2+y^2)/2R_p^2}e^{-z/z_p}e^{-i\omega' t}, \tag{A.10}$$

其中，R_s 和R_p 分别为源光束和探测光束的半径；z_s 和z_p 为穿透深度：我们假设$z_s = z_p$。现在可以对公式 A.8 中的位置进行积分，得到：

$$\delta T \propto \int d^3k \frac{e^{-(k_x^2+k_y^2)(R_s^2+R_p^2)}}{(1+k_z^2z_s^2)^2}\frac{1}{i\omega-(D_xk_x^2+D_yk_y^2+D_zk_z^2)}, \tag{A.11}$$

该表达式通常必须进行数值求解。在各向同性二维扩散的特殊情况下（$D_x = D_y = D$，$z_s \to 0$），也可以进行解析求解：

$$\delta T \propto \int d^3k e^{\frac{i(R_s^2+R_p^2)\omega}{2D}}\mathrm{Erfc}\left(\sqrt{-\frac{i(R_s^2+R_p^2)\omega}{2D}}\right) \tag{A.12}$$

在低频极限（$\omega \ll D(R_s^2+R_p^2)$）下，~~我们~~发现热量与温度变化（$\phi = \mathrm{Arg}(\delta T)$）之间的相位偏移为：

$$\phi = \sqrt{\frac{(R_s^2+R_p^2)\omega}{\pi D}} \tag{A.13}$$

值得注意的是，对于各向异性情形，即 $D_x \neq D_y$，我们通过公式 A.13 得到的扩散率 D 是两个面内方向 D_x 和 D_y的平均扩散率 D_{ave}。在这种情况下，相位偏移也可以从公式 A.11 中提取，并由椭圆积分给出：

$$\phi = \sqrt{\frac{\pi(R_s^2+R_p^2)\omega}{4}}\left[\int_0^{\frac{\pi}{2}}\left(\frac{\cos^2\theta}{D_y}+\frac{\sin^2\theta}{D_x}\right)^{-\frac{1}{2}}d\theta\right]^{-1} \tag{A.14}$$

因此，将式 A.13 与式 A.14 比较，可得平均扩散率。对于面内各向异性系统，这就是我们通过重叠构型测得的值：

$$D_{\text{ave}}^{\frac{1}{2}} = \frac{2}{\pi}\int_0^{\frac{\pi}{2}}\left(\frac{\cos^2\theta}{D_y}+\frac{\sin^2\theta}{D_x}\right)^{-\frac{1}{2}}d\theta \tag{A.15}$$

我们通过实验验证了，在 $Ca_3Ru_2O_7$ 中，二维扩散率近似是成立的。

2. 分离构型

显然，在分离构型下进行的实验探测的是面内扩散，垂直于平面的光束范围可以忽略（$z_s = z_p = 0$）。两束光都可以近似为狄拉克 δ 函数：

$$I_s(x,y,z,t) \propto \delta(x-x_s)\delta(y-y_s)\delta(z)e^{-i\omega t}, \tag{A.16}$$

$$I_p(x,y,z,t) \propto \delta(x-x_p)\delta(y-y_p)\delta(z)e^{-i\omega' t}, \tag{A.17}$$

此时温度变化为：

$$\delta T \propto \int d^3k e^{i(k_x(x-x')+k_y(y-y'))}\frac{\delta(\omega+\omega')}{i\omega - D_x k_x^2 + D_y k_y^2 + D_z k_z^2}, \tag{A.18}$$

该积分可以解析求解：

$$\delta T \propto \int \frac{kdk}{\sqrt{k^2 - i\omega}} J_0\left(k\sqrt{\frac{\Delta x^2}{D_x}+\frac{\Delta y^2}{D_y}}\right) \tag{A.19}$$

其中，Δx 和 Δy 表示两个方向上两个光斑之间的间距，J_0 是第一类零阶贝塞尔函数。根据式 A.19，我们得到源光束和探测光束之间的相位差：

$$\phi = \sqrt{\frac{\omega}{2}\left(\frac{\Delta x^2}{D_x}+\frac{\Delta y^2}{D_y}\right)} \tag{A.20}$$

如果 系统在面内各向同性，我们有$D_x = D_y = D$，则公式A.20变为 es:

$$\phi = \sqrt{\frac{r^2\omega}{2D}} \tag{A.21}$$

其中$r^2 = \Delta x^2 + \Delta y^2$。公式A.21用于测量分离构型下的扩散率（正文中的公式4）。此外，若比较公式A.20和A.21，我们可以得到平均扩散率D与单轴扩散率（D_x和D_y）之间的关系，即正文中的公式6。

扩散率的角度依赖性（公式6）与文献 [13]中的表达式一致。然而，我们注意到，我们的表达式与文献 [30, 31],中的表达式之间存在不一致，这是由于这些文献中所采用的推导存在错误所致，如下所示。他们的出发点是其二次表示下的热导率张量（文献 [31]中的公式3）：

$$\kappa_x x^2 + \kappa_y y^2 + \kappa_z z^2 = 1 \tag{A.22}$$

这个称为“热导率椭球”的方程与文献 [40], 中的结果一致；该文献在文献 [31] 中也被引用为文献 12。然而，由于椭球的半轴分别为 $\sqrt{\frac{1}{\kappa_x}}$、 $\sqrt{\frac{1}{\kappa_y}}$ 和 $\sqrt{\frac{1}{\kappa_z}}$，对于任意方向（$\alpha$、$\beta$、 γ），应有:

$$\left(\sqrt{\frac{1}{\kappa_{\alpha\beta\gamma}}}\right)^2 = \left(\sqrt{\frac{1}{\kappa_x}}\cos\alpha\right)^2 + \left(\sqrt{\frac{1}{\kappa_y}}\cos\beta\right)^2 + \left(\sqrt{\frac{1}{\kappa_z}}\cos\gamma\right)^2, \tag{A.23}$$

这与文献 [31] 中的公式4相矛盾。

由于热容不是方向相关的量，热扩散率遵循与热导率相同的角度依赖性，因此正文中的公式6给出了二维情况下扩散率各向异性的表达式。

附录 B：穿透深度

如正文所述，在重叠构型下进行的实验究竟主要探测面内扩散还是面外扩散，并非显而易见。这里我们基于实际参数给出公式 A.11 的数值解：$R_s = R_p = 2.3\ \mu\text{m}$、$D = D_x = D_y = 5\times10^{-6}\ \text{m}^2/\text{s}$，以及 $D_z = 0.01D$。在图 A.1(a) 中，我们展示了相位延迟随频率平方根的变化。实线绿色曲线表示有限穿透深度为 $z_s = z_p = 50\ \text{nm}$ 时的数值解，虚线表示穿透深度为零时的解

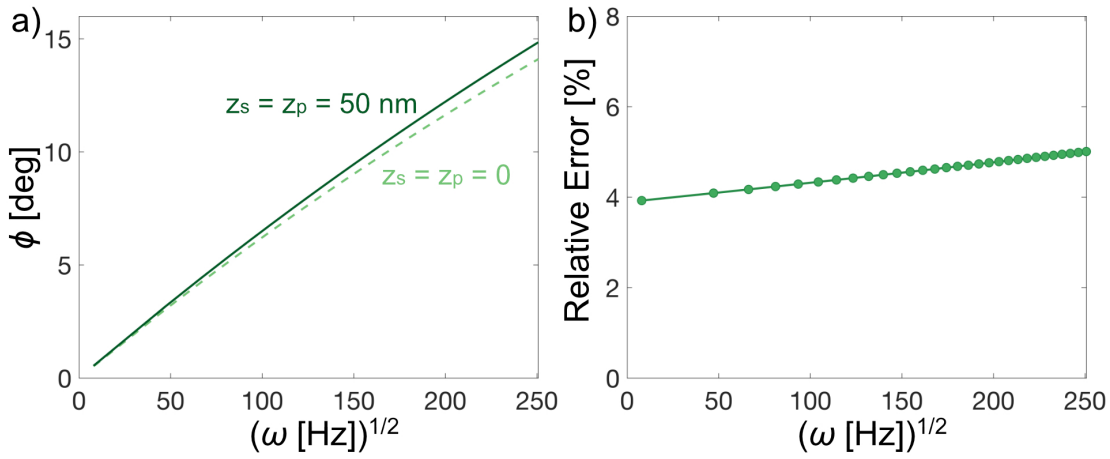


图 A.1. a) 基于公式 A.11 得到的相位延迟数值解。实线曲线对应光源和探测光束的穿透深度均为 50 nm 的情况，虚线曲线对应穿透深度为零的情况。b) a) 中两种情况之间的相对误差。

的情况。尤其在较低频率下，可以看到较小的偏差。在图 A.1(b) 中，我们绘制了数值解与二维近似之间的相对误差，发现最大误差为 4–5%。数值解表明，即使在重叠构型下，光源与探测光束之间的相位延迟仍主要由面内扩散决定。

附录 C：焦点校准

进行温度依赖测量时，应特别注意热膨胀导致的样品高度偏移。在重叠构型下，微小的z向位移会改变激光光斑的大小，从而显著改变相位延迟（如图 A.2(a) 所示）。为补偿这种偏移，我们首先沿z方向扫描位移台，并记录反射率的温度调制振幅以及相位延迟。如图 A.2(b) 所示，在焦点位置处，振幅达到最大值，相位达到最小值。通过进行此类z向扫描，我们能够以 1 μm 的精度确定焦点。此外，通过测量z向扫描随温度的变化，我们能够量化位移台热膨胀导致的焦点位置变化（图 A.2(c)）。测得这种偏移后，可使用压电位移台进行补偿，从而获得

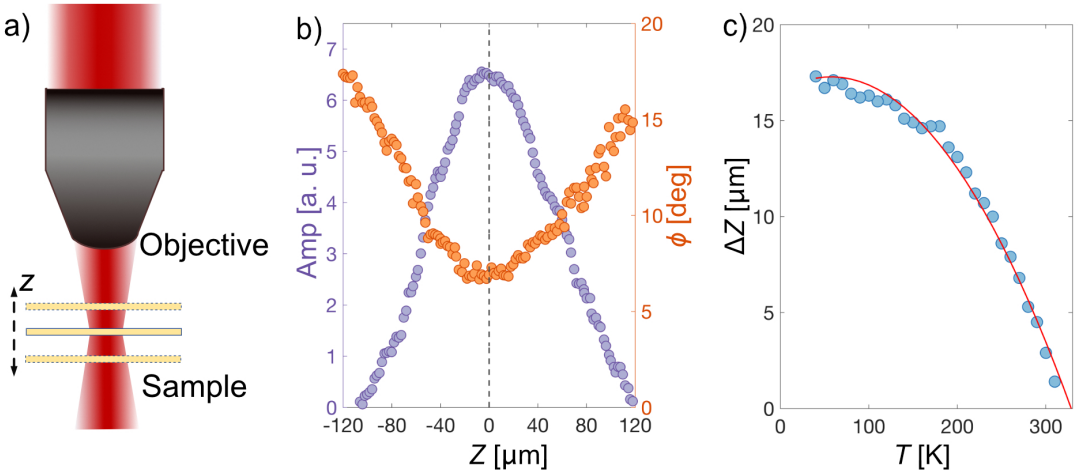


图 A.2. 温度变化期间z位移的校准。a）z扫描示意图，展示样品位置在聚焦光束轮廓中的变化。b）信号的振幅（紫色）和相位（橙色）随样品高度的变化。灰色虚线标示样品位于光束焦点处的位置。c）温度斜坡期间沿z 方向的载物台位移校准。红色曲线为多项式拟合。

可靠的相位延迟测量。

附录 D：控制激光光斑位置的两种方法

在分离构型中，由于源光束和探测激光的直径都远小于两个光斑之间的间距，激光光斑尺寸的微小变化不会影响相位。然而，如果激光路径彼此不平行，两个光斑之间的间距可能会随着z方向上的位移而变化。实际操作中，为便于探测，我们将探测光束路径固定，并使其垂直于样品表面。源光束可以通过两种方式移动（图 A.3）。第一种方法（图 A.3(a)）是调节二向色镜（DM），从而使源位置能够在样品上连续移动。当我们希望改变间距，或在固定温度下切换重叠与分离构型时，这种方法既实用又方便。此外，我们还可以使用压电式镜架控制二向色镜，实现间距的自动扫描。然而，这种方法的缺点是，由于源路径倾斜，在温度依赖测量过程中，样品沿z方向移动会导致光斑间距发生变化。因此，我们

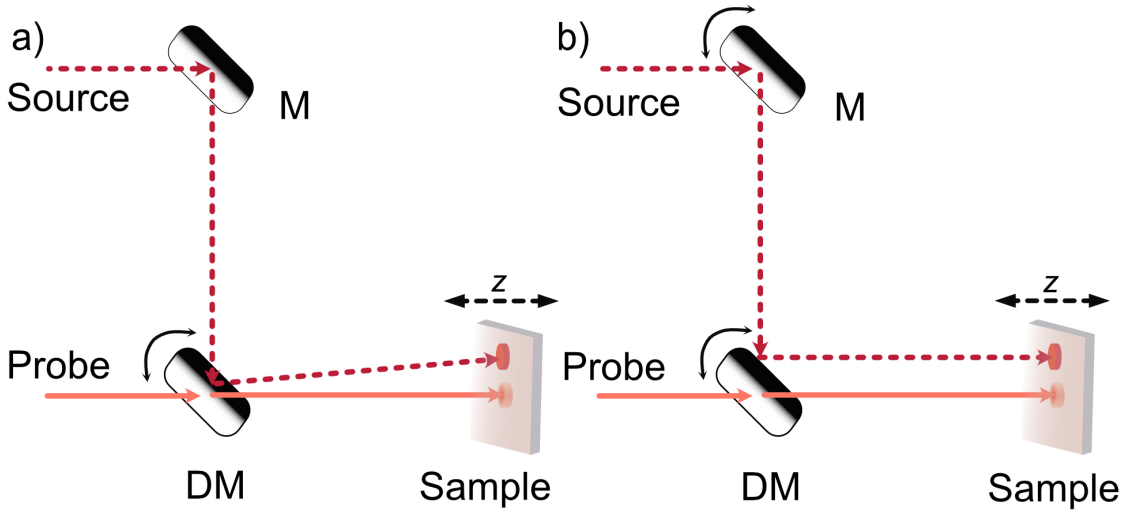


图 A.3. 分离激光束的两种方法。a) 调整二向色镜（DM），移动源光束，同时保持探测光束固定。此方法更易操作，但两束光之间的间距容易受样品位置偏移影响；b) 协调移动 M 和 DM，使源光束移动，同时保持两束光垂直于样品表面。此时，间距受样品位置偏移的影响较小。

采用了第二种控制光束间距的方法（图 A.3(b)），即协调控制两面反射镜（M 和 DM），以同时控制光束位置和入射角。这样，间距对于z方向上的微小变化更加稳定。

附录 E： δR **的线性区间**

如正文所述，必须谨慎选择源激光功率。由此引起的温度变化 δT 应足够大，以产生可测量的 δR 信号，但也应足够小，以确保测量在线性区间内进行，此时 $\delta R \sim \delta T$。为确认这一点，每次进行扩散率测量前，都应在实验条件（材料、构型、频率、温度）下测量 δR 对源功率的依赖关系。图A.4展示了$Ca_3Ru_2O_7$ 在分离和重叠构型下的此类测量结果，其中两种构型下 δR 均与源功率呈完美线性关系。实验中使用的源功率以箭头标出，且均处于线性区间内。

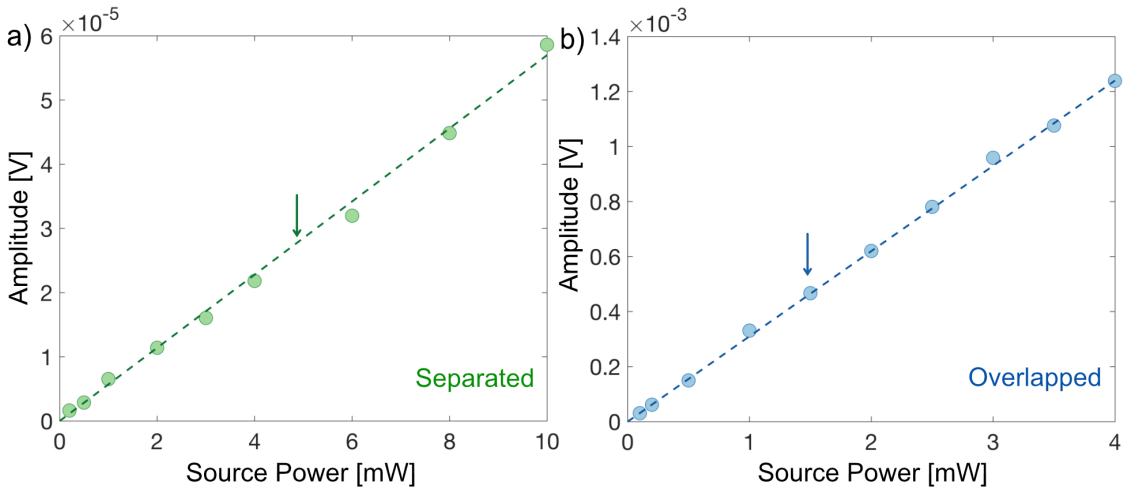


图 A.4. $Ca_3Ru_2O_7$ 中光源功率依赖的信号，分别对应 (a) 分离构型和 (b) 重叠构型。振幅（单位为 V）由锁相放大器在调制频率下直接测得，代表差分反射率。扩散率实验中使用的源功率分别以箭头标出，二者均在线性范围内。

附录F：光斑尺寸和间距的确定

为精确确定光斑尺寸和间距，我们利用聚焦离子束（FIB）制备了微结构校准样品。该样品包含一系列间隔为5 μm的镀金（明亮）和未镀金（暗色）条纹，如图A.5（a）所示。通过同时拍摄校准条纹和激光光斑的CCD图像，可以直接测量距离。更精确地说，可以通过高斯函数拟合分析激光束的轮廓。图A.5（b）展示了一个示例，其中源光束和探测光束的半径分别测得为2.5 μm和1.9 μm，间距为20.6 μm。

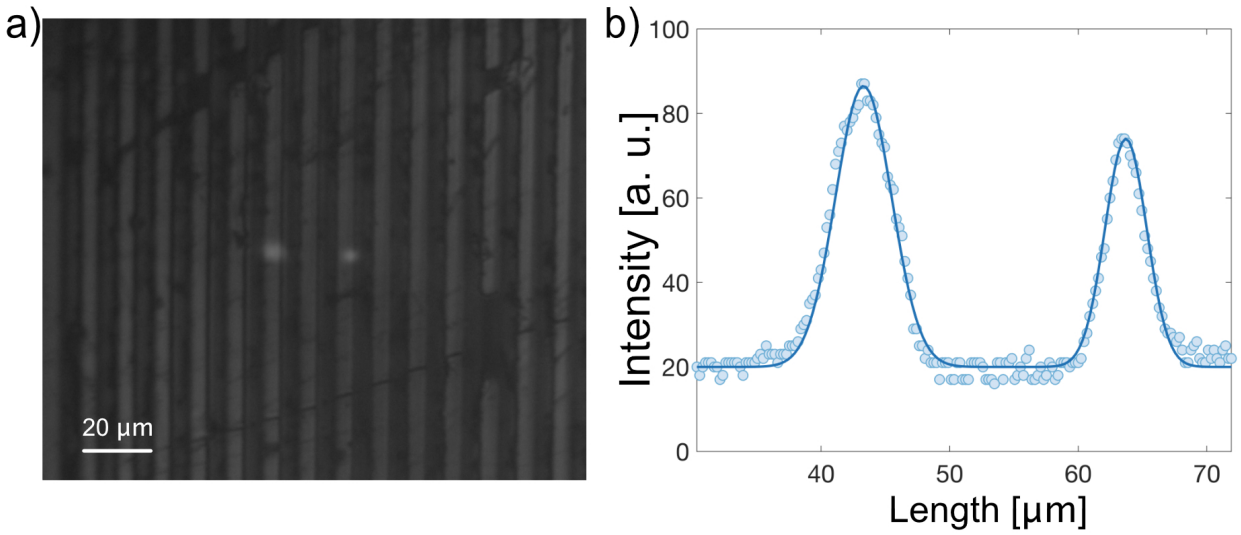


图 A.5. 光斑尺寸和间距的测定。(a) 为 FIB 校准样品及激光光斑的 CCD图像。左侧为源光斑，右侧为探测光斑；(b) 为激光束轮廓高斯拟合的示例。实线曲线为拟合曲线，得出的源光斑半径为 2.5 μm，探测光斑半径为 1.9 μm，间距为 20.6 μm。

[1] P. B. Allen, X. Du, L. Mihaly 和 L. Forro，Physical Review B 49, 9073 (1994)。[2] H. Minami, V. Wittorff, E. Yelland, J. Cooper, C. Changkang 和 J. Hodby，Physical Review B 68, 220503 (2003)。[3] J. Checkelsky, R. Thomale, L. Li, G. Chen, J. Luo, N. Wang 和 N. P. Ong，Physical Review B 86, 180502 (2012)。[4] G. Kumar, G. Prasad 和 R. Pohl，Journal of materials science 28, 4261 (1993)。[5] J. H. Talpe, V. I. Bekeris, M. J. Sanchez 和 G. Simonelli，《科学仪器评论》62, 1054 (1991)。[6] J. Zaanen，Nature 430, 512 (2004)。[7] J. Bruin, H. Sakai, R. Perry 和 A. P. Mackenzie，Science 339, 804 (2013)。[8] A. Legros, S. Benhabib, W. Tabis, F. Laliberté, M. Dion, M. Lizaire, B. Vignolle, D. Vignolles, H. Raffy, Z. Li 等，Nature Physics 15, 142 (2019)。[9] C. H. Mousatov 和 S. A. Hartnoll，Nature Physics 16, 579 (2020)。[10] C. H. Mousatov 和 S. A. Hartnoll，npj Quantum Materials 6, 1 (2021)。[11] S. A. Hartnoll，Nature Physics 11, 54 (2015)。[12] K. Behnia 和 A. Kapitulnik, Journal of Physics: Condensed Matter 31, 405702 (2019)。[13] J. Zhang, E. M. Levenson-Falk, B. J. Ramshaw, D. A. Bonn, R. Liang, W. N. Hardy, S. A. Hartnoll 和 A. Kapitulnik，Proceedings of the National Academy of Sciences 114, 5378 (2017)。[14] J. Zhang，《强关联材料热扩散率的光学测量》（斯坦福大学，2020年）。[15] G. Bocchini, G. Bovesecchi, P. Coppa, S. Corasaniti, R. Montanari 和 A. Varone，International Journal of Thermophysics 37, 1 (2016)。[16] M. Potenza, A. Cataldo, G. Bovesecchi, S. Corasaniti, P. Coppa 和 S. Bellucci，AIP Advances 7, 075214 (2017)。[17] L. Fabbri, D. Fournier, L. Pottier 和 L. Esposito，Journal of materials science 31, 5429 (1996)。[18] D. Fournier, M. Marangolo 和 C. Frétigny，Journal of Applied Physics 128, 241101 (2020)。[19] G. Matsui 和 H. Kato，《科学仪器评论》82, 034905 (2011)。[20] J. Hartmann, P. Voigt 和 M. Reichling，Journal of applied physics 81, 2966 (1997)。[21] W. Parker, R. Jenkins, C. Butler 和 G. Abbott，Journal of applied physics 32, 1679 (1961)。

[22] R. Rudkin, R. Jenkins 和 W. Parker, 《科学仪器评论》**33**, 21 (1962年)。[23] S. Bellucci, G. Bovesecchi, A. Cataldo, P. Coppa, S. Corasaniti 和 M. Potenza, 《材料》 **12**, 696 (2019年)。[24] M. Potenza, P. Coppa, S. Corasaniti 和 G. Bovesecchi, 《传热学报》**143** (2021年)。[25] A. Salazar, A. Sánchez-Lavega 和 J. Fernandez, Journal of applied physics**69**, 1216 (1991年)。[26] A. Salazar, A. Sánchez-Lavega 和 J. Fernández, Journal of applied physics**74**, 1539 (1993年)。[27] M. Bertolotti, R. Li Voti, G. Liakhou 和 C. Sibilia, 《科学仪器评论》 **64**, 1576 (1993年)。[28] X. Wu, G. Kino, J. Fanton 和 A. Kapitulnik, 《科学仪器评论》**64**, 3321 (1993年)。[29] J. Zhang, E. D. Kountz, E. M. Levenson-Falk, D. Song, R. L. Greene 和 A. Kapitulnik, Physical Review B**100**, 241114 (2019年)。[30] A. Salazar, A. Sánchez-Lavega, A. Ocáriz, J. Guitonny, J. Pandey, D. Fournier 和 A. Boccara, 《应用物理快报》**67**, 626 (1995年)。[31] A. Salazar, A. Sánchez-Lavega, A. Ocariz, J. Guitonny, G. Pandey, D. Fournier 和 A. Boccara, Journal of applied physics**79**, 3984 (1996年)。[32] Y. Yoshida, S.-I. Ikeda, H. Matsuhata, N. Shirakawa, C. Lee 和 S. Katano, Physical Review B **72**, 054412 (2005年)。[33] N. Kikugawa, A. W. Rost, C. W. Hicks, A. J. Schofield 和 A. P. Mackenzie, 《日本物理学会杂志》**79**, 024704 (2010年)。[34] H. Shaked, J. Jorgensen, O. Chmaissem, S. Ikeda 和 Y. Maeno, 《固态化学杂志》**154**, 361 (2000年)。[35] B. Hu, G. T. McCandless, M. Menard, V. Nascimento, J. Y. Chan, E. Plummer 和 R. Jin, Physical Review B**81**, 184104 (2010年)。[36] A. P. Mackenzie, J. A. N. Bruin, R. A. Borzi, A. W. Rost 和 S. A. Grigera, Physica C: Supercon- ductivity**481**, 207 (2012年)。[37] X. Ke, J. Peng, D. Singh, T. Hong, W. Tian, C. D. Cruz 和 Z. Mao, Physical Review B **84**, 201102 (2011年)。[38] J. Peng, X. Ke, G. Wang, J. Ortmann, D. Fobes, T. Hong, W. Tian, X. Wu 和 Z. Mao, Physical Review B**87**, 085125 (2013年)。[39] S. Lei, M. Gu, D. Puggioni, G. Stone, J. Peng, J. Ge, Y. Wang, B. Wang, Y. Yuan, K. Wang, Z. Mao, J. M. Rondinelli 和 V. Gopalan, 《纳米快报》**18**, 3088 (2018年)。

[40] J. F. Nye 等，晶体的物理性质：通过张量和矩阵表示（牛津大学出版社，1985年）第11章。