



TECHNISCHE UNIVERSITÄT MÜNCHEN

Physik Department, Lehrstuhl für Topologie korrelierter Systeme

Neutronenstreuung an Skymionengittern in chiralen Magneten

Dipl.-Phys. Univ. Tim Adams

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Priv.-Doz. Dr. Dietrich Einzel

Prüfer der Dissertation: 1. Univ.-Prof. Dr. Christian Pfeleiderer
2. Priv.-Doz. Dr. Rudi Hackl

Die Dissertation wurde am 09.06.2015 an der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am 18.08.2015 angenommen.

Kurzdarstellung

Das Skyrmionengitter chiraler Magneten stellt eine neue magnetische Spinstruktur aus topologisch nicht-trivialen Wirbeln dar, dessen Entdeckung in den letzten Jahren zahlreiche experimentelle und theoretische Untersuchungen inspirierte [1,2]. Dabei existieren vielversprechende Vorschläge zu neuen technischen Anwendungen dieser magnetischen Struktur, wie in der Spintronik [3–6] und insbesondere in der Datenspeichertechnologie [7]. In der B20-Metallverbindung MnSi wurde das Skyrmionengitter erstmals mittels Neutronenstreuung experimentell nachgewiesen und das Material gilt als Modell-Verbindung zur Untersuchung dieser neuartigen magnetischen Struktur. Das Phasendiagramm dieses Helimagneten zeigt knapp unterhalb von $T_c = 29.5\text{ K}$ bei etwa $B = 200\text{ mT}$ eine kleine Phase, in der das Skyrmionengitter auftritt. Entsprechende Neutronenstreudaten zeigen sechs symmetrische Intensitätspeaks, die sich senkrecht zu dem extern angelegten Magnetfelds in einer Ebene befinden. Die Struktur ist somit in erster Näherung unabhängig vom Kristallfeld und richtet sich entlang des externen Magnetfelds aus.

Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde die Neutronenstreuung höherer Ordnung am Skyrmionengitter in MnSi eingehend untersucht [8]. Die Beobachtung derselben stellt für sich genommen einen weiteren Nachweis für die Existenz des Skyrmionengitters in Volumenkristallen von MnSi dar. Die Intensität der Streuung höherer Ordnung im Verhältnis zu der Streuung erster Ordnung ist sehr klein und bestätigt damit, dass sich das Skyrmionengitter durch ein einfaches Modell von drei superponierten Helices und einer uniformen Magnetisierung beschreiben lässt. Deformationen von dieser idealen Sinusmodulation sind entsprechend den Ergebnissen dieser Arbeit nur sehr klein und in erster Näherung vernachlässigbar. Über die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit der Streuung höherer Ordnung kann weiterhin auf die genaue Phasenlage der drei Helices geschlossen werden und die mikroskopische Struktur weiter bestimmt werden.

Weiterhin wurde das genaue Verhalten des Skyrmionengitters als Funktion der Kristallorientierung untersucht. Dazu wurden entsprechende Rockingscans durchgeführt, um die genaue Ausrichtung des Skyrmionengitters im Kristall zu bestimmen. Ein wichtiges Ergebnis dieser Messungen ist, dass die Struktur für alle Kristallorientierungen stabil bleibt. Dies stützt das theoretische Modell von Rosch et al., wonach thermische Fluktuationen zur Stabilisierung des Skyrmionengitters führen [1]. Außerdem kann ein Mäandern des Normalenvektors der Skyrmionengitterebene um die Magnetfeldrichtung und ein weicher Übergang zwischen zwei azimuthalen Orientierungen in der Ebene beobachtet werden.

Aus diesem Verhalten kann, mittels einfacher Symmetriebetrachtungen, die zugehörigen Anisotropieterme des Kristallfelds von MnSi ermittelt werden. Damit kann die mikroskopische Struktur und das genaue Verhalten des Skyrmionengitters in MnSi, mit Hilfe eines verhältnismäßig einfachen theoretischen Modells mit wenigen Parametern, sehr präzise beschrieben werden.

In weiteren Neutronenstreuexperimenten, die im Rahmen dieser Doktorarbeit an einem Volumenkristall von Cu_2OSeO_3 durchgeführt wurden, konnte das Skyrmionengitter erstmals in einer völlig neuen Materialklasse nachgewiesen werden [9]. Nach den ersten Beobachtungen in einigen B20-Systemen, wie dem Halbleiter $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, den dotierten Mn-Verbindungen $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ und $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ und den Metallverbindungen FeGe und MnGe, ist Cu_2OSeO_3 der erste Isolator, in dem ein Skyrmionengitter auftritt. Dabei zeigt sich, dass das Phasendiagramm von Cu_2OSeO_3 sehr ähnlich aufgebaut ist, wie das von MnSi. Es ergeben sich ähnliche Phasengrenzen und die mikroskopischen Spinstrukturen der einzelnen Phasen decken sich im Wesentlichen mit denen von MnSi. Allerdings lassen sich nicht alle Ergebnisse aus MnSi auf Cu_2OSeO_3 übertragen. So zeigt die Isolatorverbindung teils hysteretisches Verhalten und die Anisotropien zeigen deutlich komplexeres Verhalten als in MnSi.

Der zweite Teil der Dissertation befasst sich mit einem technischen Entwicklungsprojekt. Es wird der Aufbau und die Funktionsweise des neu konstruierten elliptischen Leiter Moduls vorgestellt, mit dessen Hilfe der Neutronenstrahl auf eine zu untersuchende Probe fokussiert werden kann [10]. Neu an dem System ist der modulare Aufbau und die Möglichkeit, das elliptische Leitersystem in wenigen Stunden zu installieren. Wie die Testmessungen an dem transversalen Spindichtewellen-Zustand von Chrom zeigen, kann die Signalintensität deutlich verstärkt werden. Dabei ist der Verstärkungsfaktor für elastische Messungen, aufgrund der künstlichen Divergenz des Moduls, auf etwa drei bis vier begrenzt. Für inelastische Messungen können aber Intensitätsgewinne von 30 bis 40 erzielt werden. Die Vorteile des Moduls werden erst bei dem Einsatz von sehr kleinen Proben mit schwachem Signal voll ausgenutzt. Dies spielt insbesondere bei Experimenten unter extremen Bedingungen eine Rolle, wie z.B. hohe Drücke. Hier wird durch das Leitermodul nicht nur die Signalintensität erhöht, sondern auch der Untergrund stark reduziert, was bei solchen Experimenten von großer Bedeutung ist.

Inhaltsverzeichnis

I	Skyrmionengitter	1
1	Stand der Forschung	3
1.1	Skyrmionen im Kontext von Topologie	4
1.2	Modell des Skyrmionengitters in chiralen Magneten	8
1.2.1	Ginzburg-Landau-Theorie	8
1.2.2	Topologische Windungszahl	13
1.3	Helimagnetismus in MnSi	15
1.4	Skyrmionengitter in weiteren Verbindungen	18
1.4.1	Eigenschaften von Cu_2OSeO_3	18
1.4.2	Andere Systeme	20
2	Experimentelle Methoden	23
2.1	Neutronenstreuung	23
2.1.1	Magnetische Neutronenstreuung	24
2.1.2	Neutronenstreuung an Helimagneten	26
2.2	Kleinwinkel-Neutronenstreuung	30
2.2.1	Auflösung von SANS	30
2.2.2	Das Kleinwinkel-Diffraktometer V4 am HZB	32
2.2.3	Das Instrument MIRA am MLZ	33
2.3	Renninger-Scan	37
3	Topologie des Skyrmionengitters in MnSi	39
3.1	Experimentelle Minimierung parasitärer Effekte	40
3.2	Nachweis von Streuung höherer Ordnung	42
3.3	Renninger-Scans	45
3.4	Theoretische Deutung und Diskussion	46
4	Anisotropie des Skyrmionengitters in MnSi	55
4.1	Motivation	55
4.2	Experimentelle Methoden	56
4.2.1	Experimenteller Aufbau	56
4.2.2	Messmethodik	59
4.3	Experimentelle Ergebnisse	61
4.3.1	Typische Rohdaten	61
4.3.2	Methodik der Auswertung	61

4.3.3	Orientierungsabhängigkeit des Skyrmionengitters	64
4.4	Diskussion der Ergebnisse	66
4.5	Zusammenfassung und Ausblick	70
5	Skyrmionengitter in Cu_2OSeO_3	73
5.1	Herstellung der Proben	73
5.2	Magnetisierung	74
5.3	Kleinwinkel-Neutronenstreuung	77
5.3.1	Helikale Phase	77
5.3.2	Konische Phase	79
5.3.3	Skyrmionengitter	80
5.3.4	Phasengrenzen	81
5.4	Diskussion	83
6	Zusammenfassung und Ausblick	87
II	Weiterführende Methoden	89
7	Modul für elliptische Neutronenleiter	91
7.1	Stand der Forschung	91
7.2	Entwicklung des elliptischen Leitermoduls	94
7.3	Testmessungen mit elliptischen Leitern	99
7.3.1	Effekt von uniaxialem Druck auf Chrom	99
7.3.2	Inelastische Messungen an Chrom	105
7.4	Zusammenfassung	105
	Publikationen	107
	Danksagung	109
	Literaturverzeichnis	111

Teil I

Skymionengitter

Kapitel 1

Stand der Forschung

Aus dem mathematischen Satz von Poincaré-Hopf [11–13] leitet sich die Aussage ab, dass es auf unserer Erde zu jedem Zeitpunkt an mindestens einem Punkt windstill sein muss. Dabei wird die atmosphärische Bewegung auf unserer Erdoberfläche als zweidimensionales Vektorfeld betrachtet. Da unsere Atmosphäre dreidimensional ist und somit auch vertikale Komponenten der Winde erlaubt sind, ist dies nur bedingt richtig. Trotzdem fasziniert die Aussage, da sie sich rein aus den topologischen Eigenschaften der Kugelform unserer Erde ableiten lässt.

Anschaulich befasst sich Topologie mit Eigenschaften von geometrischen Objekten und Räumen, die invariant gegenüber bestimmten Transformationen sind. Auch wenn die Erde keine perfekte Kugel ist, so kann sie in eine solche stetig umgeformt werden und erbt damit alle topologischen Eigenschaften derselben. Da die Euler-Charakteristik einer 2-Sphäre (zweidimensionale Einheitssphäre) gleich 2 ist, muss ein zweidimensionales Vektorfeld auf der Kugeloberfläche mindestens in einem Punkt verschwinden [13]. Daraus folgt die obige Aussage über die Winde auf der Erdoberfläche. Topologische Eigenschaften hängen also nicht von der exakten Form eines Objekts ab.

Da ein Homöomorphismus zwischen der Form einer Tasse und der eines Donuts existiert, sind diese topologisch äquivalent. Ein Homöomorphismus ist dabei definiert als eine Abbildung $f : \text{Tasse} \rightarrow \text{Donut}$ mit: (i) f ist bijektiv, (ii) f ist stetig und (iii) die Umkehrfunktion f^{-1} ist ebenfalls stetig [14]. Eine Kugel ist dagegen nicht homöomorph zu einem Donut, da das Loch im Donut eine stetige Umformung zwischen diesen beiden Formen unmöglich macht. Daher hat ein Donut auch eine andere Euler-Charakteristik und wäre unsere Erde ein Torus, so wäre eine Situation vorstellbar, in der der Wind auf der Torusoberfläche nirgends verschwindet.

Topologische Eigenschaften spielen auch in Teil 1 dieser Doktorarbeit eine wichtige Rolle, die sich mit der komplexen magnetischen Struktur des Skyrmionengitters [1] befasst. Das Skyrmionengitter stellt eine hexagonale, topologisch nicht-triviale Spinstruktur dar. Aus der besonderen Topologie dieser magnetischen Struktur folgen einige interessante

Aspekte. Die Struktur kann als ein Gitter von Quasiteilchen, den Skyrmionen, betrachtet werden. Die Skyrmionen sind topologisch geschützt, da die nicht-triviale Topologie zu einer speziellen Stabilität der Quasiteilchen führt. Makroskopisch kann in Materialien mit Skyrmionengitter ein zusätzlicher Beitrag im Hall-Effekt, der topologische Hall-Effekt, gemessen werden [15]. Und auch der in der Skyrmionen-Phase von MnSi nachgewiesene Spin-Transfer-Torque-Effekt hängt mittelbar mit der ausgezeichneten Topologie des Skyrmionengitters zusammen [16–19]. Seit dem ersten experimentellen Nachweis des Skyrmionengitters in MnSi 2009 [1] erschien eine hohe Zahl an Publikationen im Kontext dieser neuen magnetischen Struktur. Viele Arbeiten suchen nach technischen Anwendungen, wobei in diesem Zusammenhang insbesondere Racetrack-Speicher zu nennen sind [7].

Teil 1 der Doktorarbeit gliedert sich wie folgt: Nach einem kurzen Überblick zum Stand der Forschung des Skyrmionengitters folgt eine Zusammenfassung der in dieser Arbeit genutzten experimentellen Methoden (Abschnitt 2). Im ersten Ergebnisteil wird die mikroskopische Struktur des Skyrmionengitters in MnSi mit Hilfe von Neutronenstreuung höherer Ordnung untersucht (Abschnitt 3). Dabei wird im Detail die Topologie des Skyrmionengitters betrachtet. Das darauf folgende Kapitel untersucht die Anisotropien des Skyrmionengitters im Kristallfeld von MnSi (Abschnitt 4). Daraus ergeben sich wichtige Erkenntnisse über das theoretische Modell und die Mechanismen, welche der Stabilität des Skyrmionengitters zugrunde liegen. Im Abschnitt 5 werden experimentelle Ergebnisse an dem Isolator Cu_2OSeO_3 dargestellt, in denen mittels Neutronenstreuung das Skyrmionengitter nachgewiesen werden konnte. Abschließend werden die Ergebnisse zusammengefasst und ein kurzer Ausblick über weitere Entwicklungen gegeben (Abschnitt 6).

1.1 Skyrmionen im Kontext von Topologie

Stetige Abbildungen f der n -dimensionalen Sphäre S^n in einen gegebenen Raum X können zu sogenannten Homotopieklassen (Äquivalenzklassen) zusammengefasst werden [20]. Abbildungen ($f : S^n \rightarrow X$) der gleichen Homotopieklassen heißen homotop und können stetig ineinander übergeführt werden. Die Homotopieklassen bilden für die Dimension n die n -te Homotopiegruppe des untersuchten Raumes ($\pi_n(X)$). Die erste Homotopiegruppe $\pi_1(X)$ heißt Fundamentalgruppe. Im Speziellen von Interesse sind die Homotopiegruppen von Sphären: $\pi_i(S^n)$. So bilden z.B. die Windungszahlen von Schleifen die unendliche zyklische Gruppe ($\pi_1(S^1) = \mathbb{Z}$).

In der Physik führen topologische Betrachtungen zu sogenannten topologischen Ladungen, welche topologische Invarianten des zugrunde liegenden Systems sind. Die zugehörigen nicht-trivialen Homotopieklassen bleiben durch die Differentialgleichungen des Systems erhalten und erlangen so eine ausgezeichnete Stabilität. Dies kann anschaulich so verstanden werden, dass die ganzzahligen topologischen Ladungen unter stetigen Verformungen des Systems erhalten bleiben. Dies ist vergleichbar mit dem Beispiel der nicht stetigen Umformbarkeit von einer Kugel zu einem Torus.

Tony Skyrmes Untersuchungen einer nichtlinearen Feldtheorie für wechselwirkende Mesonen in den 1960er Jahren führte zu quantisierten topologisch stabilen Lösungen der Feldgleichungen, den nach ihm benannten Skyrmionen [21–23]. Skyrme konnte weiter zeigen, dass die topologische Ladung der Skyrmionen als Baryonenzahl interpretiert werden kann. Aus der Sicht der Topologie handelt es sich hierbei um die dritte Homotopiegruppe der 3-Sphäre: $\pi_3(S^3) = \mathbb{Z}$. Das Konzept der Skyrmionen kann auf andere Dimensionen verallgemeinert werden. Demnach ist ein Skyrmion eine topologisch stabile Feldkonfiguration mit nicht-trivialer Topologie, welche durch eine Äquivalenzklasse einer Homotopiegruppe $\pi_n(S^n)$ repräsentiert wird.

Das Konzept der Skyrmionen wurde später erfolgreich in der Quantenchromodynamik [24], Stringtheorie [25] und Kosmologie [26] angewandt. Auch in der Festkörperphysik wurden Skyrmionenstrukturen untersucht, wie z.B. in dem Bose-Einstein-Kondensat von superfluidem ^4He [27, 28], im Kontext des Quantenhall-Effekts [29] und die blauen Phasen in Flüssigkristall-Systemen [30, 31]. Auch in topologischen Isolatoren kann die Spinstruktur als Skyrmion identifiziert werden, allerdings nicht im Real-, sondern im Impulsraum [32, 33]. Diese Universalität verdeutlicht noch einmal, wie fundamental das mathematische Konzept der Skyrmionen in der Natur ist.

Schließlich sagten einige theoretische Arbeiten voraus, dass Skyrmionen auch in chiralen Magneten als stabile Spinstrukturen auftreten können [34–38]. Ein erster experimenteller Nachweis eines magnetischen Skyrmionengitters in MnSi gelang Mühlbauer et al. 2009 mittels Neutronenstreuung [1]. Weitere Nachweise gelangen für verschiedene Materialien mit Hilfe von Lorentz-Transmissionselektronenmikroskopie (LTEM) [39, 40] und mittels Spin-auflösender Rastertunnelmikroskopie [41]. Die magnetischen Skyrmionen können einzeln auftreten, oder bilden ein zweidimensionales hexagonales Gitter von Skyrmionenschläuchen. Im Fall des Skyrmionengitters verlaufen die Skyrmionenschläuche parallel zu dem extern angelegten Magnetfeld und weisen große Ähnlichkeiten mit Abrikosov-Wirbeln in Typ II Supraleitern auf [42].

Ein einzelnes magnetisches Skyrmion kann als stabile Spinkonfiguration betrachtet werden, welche durch eine surjektive Abbildung aus dem Realraum in den Ordnungsparameterraum gegeben ist. Dies soll zunächst für den eindimensionalen Fall veranschaulicht werden. Gegeben sei die Fundamentalgruppe $\pi_1(S^1)$, es werden also stetige Abbildungen von einer 1-Sphäre auf eine weitere 1-Sphäre betrachtet. Die erste 1-Sphäre stellt dabei die Spinkonfiguration im Realraum dar, die dann auf die zweite 1-Sphäre im Ordnungsparameterraum abgebildet wird.

Abb. 1.1 zeigt verschiedene Spinkonfigurationen im Realraum und deren Abbildung auf den Ordnungsparameterraum [43]. Der Ordnungsparameter ist hier durch den Winkel der Spins gegeben. Im ersten Fall (a) zeigen alle Spins in dieselbe Richtung (Ferromagneten) und werden somit auf einen Winkel im Ordnungsparameterraum abgebildet. Im Teilbild (b) drehen die Spins innerhalb von 180° , führen jedoch keine komplette 360° Drehung durch. Entsprechend kann die Abbildung im Ordnungsparameterraum stetig auf den trivialen Fall (a) umgeformt werden. Somit gehören die beiden Spinkonfigurationen in (a) und (b) zu der gleichen Homotopieklasse mit Windungszahl $w = 0$ und sind topologisch

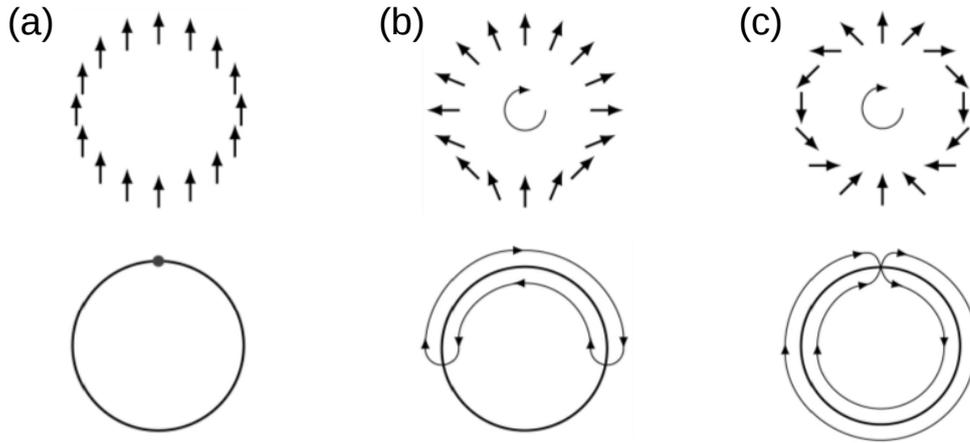


Abbildung 1.1: Fundamentalgruppe der Sphären $\pi_1(S^1)$. Die Spinkonfiguration einer 1-Sphäre (oben) wird auf den Ordnungsparameterraum abgebildet (unten). (a) Für eine ferromagnetische Anordnung der Spins ergibt sich eine Abbildung auf einen Punkt im Ordnungsparameterraum. (b) Obwohl die Spins die Richtung ändern, führt dies nicht zu einer ganzen Windungszahl im Ordnungsparameterraum. Dort kann die Kurve stetig auf einen Punkt zusammengezogen werden und ist daher topologisch äquivalent zu der trivialen Lösung des Ferromagneten. (c) Die Spins führen im Uhrzeigersinn zwei volle Drehungen durch. Entsprechend ergibt sich im Ordnungsparameterraum die Windungszahl $w = 2$. Abb. aus Ref. [43].

äquivalent. Anders im dritten Fall (c), dort führen die Spins insgesamt zwei volle Drehungen durch. Dies führt im Ordnungsparameterraum zu zwei vollen Windungen, die durch keine stetige Abbildung in den trivialen Fall übergeführt werden kann. Es handelt sich hier um die nicht-triviale Homotopieklasse mit der Windungszahl $w = 2$. Die Windungszahl ist dabei definiert durch:

$$w = \frac{1}{2\pi} \oint \nabla \rho \cdot dl \quad (1.1)$$

Die Windungszahl stellt hier die topologische Invariante dar, die für alle stetigen Umformungen des Spinsystem erhalten bleibt. In der ersten Fundamentalgruppe $\pi_1(S^1)$ der Sphären wird über die Windungszahl gezählt, wie oft sich die erste Sphäre über die Abbildung um die zweite Sphäre windet.

Für zweidimensionale Skyrmionen muss die höher dimensionale Homotopiegruppe $\pi_2(S^2)$ betrachtet werden. Anschaulich wird dabei untersucht, wie oft sich die Spinkonfiguration der 2-Sphäre im Realraum um die 2-Sphäre im Ordnungsparameterraum stülpt [44]. Dabei ist die Windungszahl definiert als:

$$W = \frac{1}{4\pi} \int dx dy \hat{\mathbf{M}} \cdot (\partial_x \hat{\mathbf{M}} \times \partial_y \hat{\mathbf{M}}) \quad (1.2)$$

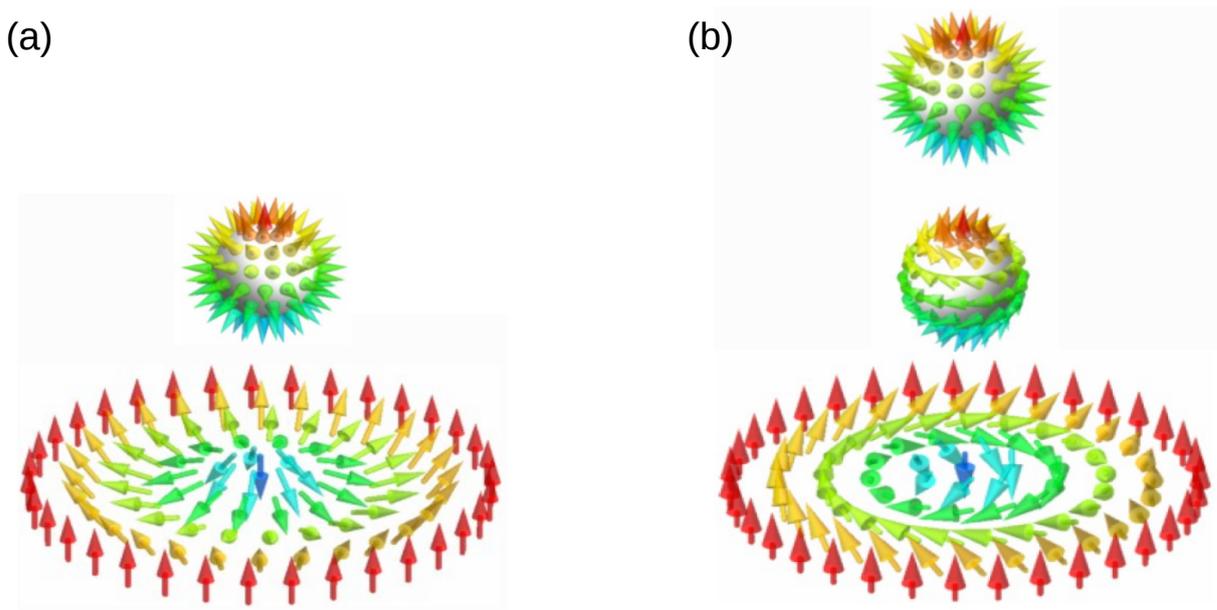


Abbildung 1.2: Sphärische Projektion von einer Igelkugel auf die Ebene $\mathbb{R} \times \mathbb{R} \cup \infty$. Dabei wird der Nordpol auf die Spins im Unendlichen abgebildet und der Spin am Südpol entsprechend auf den Ursprung. (a) Für eine Igelkugel mit Spins die alle radial nach außen gerichtet sind ergibt sich in $\mathbb{R} \times \mathbb{R} \cup \infty$ ein Skymion mit nicht-trivialer Topologie. (b) Zusätzlich kann die Igelkugel am Äquator in eine Richtung gekämmt werden, woraus sich ein chirales Skymion wie abgebildet ergibt. Dabei ist anzumerken, dass sich die Topologie der Struktur durch die stetige Umformung des Kämms nicht ändert. Abb. aus Ref. [45].

mit der normierten lokalen Magnetisierung $\hat{\mathbf{M}}$. Die entsprechende Integration über eine Einheitszelle ergibt als topologische Invariante die Windungszahl des darin enthaltenen Skymions an. Wie im 1-dimensionalen Fall gibt es auch hier eine triviale Lösung $W = 0$, die z.B. durch einen Ferromagneten oder einen Helimagneten gegeben ist. Für ein magnetisches Skymion, wie es in MnSi gefunden werden kann, zeigt sich, dass die Windungszahl eines Skymions $W = -1$ ist. Genauer handelt es sich also um ein hexagonales Gitter von Antiskyrmionen [1].

In Abb. 1.2 (a) ist ein anschauliches Bild der Spinstruktur eines Skymions gezeigt. Es handelt sich um eine sphärische Projektion von einer Kugeloberfläche mit parallel nach außen gerichteten Spins, im Folgenden Igelkugel genannt, auf eine Ebene $\mathbb{R} \times \mathbb{R} \cup \infty$ [46]. Mit der Nebenbedingung, dass die Spins im Unendlichen alle in dieselbe Richtung zeigen, ist die Ebene damit topologisch äquivalent zu der Igelkugel und erbt die nicht-triviale Topologie derselben. Im Teilbild (b) wird die Igelkugel zusätzlich am Äquator gekämmt. Da der Kämmsvorgang eine stetige Umformung der Spinstruktur darstellt, bleibt die Topologie erhalten. Allerdings wechselt die Spinstruktur von einem inversionssymmetrischen Skymion zu einem chiralen Skymion, wie es in chiralen magnetischen Materialien wie MnSi gefunden werden kann [47]. Tatsächlich können viele verschiedene Strukturen von Skymionen mit unterschiedlicher Windungszahl und Chiralität konstruiert werden [44, 47].

Wichtig anzumerken ist, dass ein einfacher zweidimensionaler Wirbel im dreidimensionalen Raum eine triviale Topologie darstellt und explizit kein Skyrmion ist. Dies kann einfach veranschaulicht werden, wenn man sich ein Gummiband (2D-Wirbel) um den Äquator einer Kugel (Ordnungsparameterraum) gespannt vorstellt. Das Band kann kontinuierlich auf einen Punkt zusammengezogen werden und stellt damit die triviale Homotopieklasse eines Ferromagneten dar.

Wie oben bereits erwähnt erhält das Skyrmion als topologische Invariante eine spezielle Stabilität. Dabei muss allerdings beachtet werden, dass die Stabilität nur mittelbar durch die nicht-triviale Topologie verursacht wird. Die Topologie besagt, dass keine stetige Umformung von der nicht-trivialen in eine triviale Spinstruktur möglich ist. Die Stabilität wird aber erst durch die ferromagnetische Wechselwirkung der Spins gewährleistet. Eine unstetige Neuordnung der Spinstruktur stellt dann eine Energiebarriere dar und verleiht dem Skyrmion die besondere Stabilität.

In dem folgenden Abschnitt wird das Modell des Skyrmionengitters in chiralen Magneten näher beschrieben. Wenn in den anschließenden Kapiteln von Skyrmionen die Rede ist, so wird dabei immer ein magnetisches Skyrmion, wie es in chiralen Magneten auftritt, gemeint.

1.2 Modell des Skyrmionengitters in chiralen Magneten

Bereits 20 Jahre vor dem experimentellen Nachweis des Skyrmionengitters in MnSi zeigte Bogdanov et al., dass in magnetischen Materialien mit fehlender Inversionssymmetrie die chirale Wechselwirkung zu Grundzuständen des Skyrmionengitters führen kann [34, 48]. Bogdanov stellte auf dem Niveau einer Molekularfeld-Analyse fest, dass in kubischen Systemen wie MnSi ohne Berücksichtigung von Anisotropietermen die Energie der konischen Phase immer unterhalb derer des Skyrmionengitters bleibt. Um von dem metastabilen zu einem globalen Grundzustand zu gelangen, wurden weitere phänomenologische Parameter jenseits des Ginzburg-Landau Ansatzes untersucht [36]. Im Gegensatz dazu konnte Rosch et al. zeigen, dass thermische Fluktuationen ausreichen, um das Skyrmionengitter im Rahmen der Ginzburg-Landau-Theorie zu stabilisieren [1].

1.2.1 Ginzburg-Landau-Theorie

Die Ginzburg-Landau-Theorie ist eine phänomenologische Theorie zur Beschreibung von Phasenübergängen. Das Konzept basiert auf der Existenz eines Ordnungsparameters, der innerhalb der geordneten Phase unterhalb der kritischen Temperatur T_c ungleich Null ist. Nahe des Phasenübergangs ist der Ordnungsparameter klein, und das Energiefunktional kann als eine Potenzreihe des Ordnungsparameters entwickelt werden. Die Minimierung

dieses Funktionals führt zum thermodynamischen Gleichgewichtszustand des untersuchten Systems. Im Folgenden wird die Ginzburg-Landau-Theorie auf helimagnetische Systeme angewendet.

Helimagnetische Ordnung

Die helimagnetische Ordnung in MnSi kann durch das folgende Ginzburg-Landau-Funktional beschrieben werden [49, 50]:

$$F[\mathbf{M}] = \int d^3r (r_0 \mathbf{M}^2 + J(\nabla \mathbf{M})^2 + 2D \mathbf{M} \cdot (\nabla \times \mathbf{M}) + U \mathbf{M}^4 - \mathbf{B} \cdot \mathbf{M}) \quad (1.3)$$

mit dem externen Magnetfeld \mathbf{B} und den Parametern r_0 , J , D und U . Das Funktional hängt von der kontinuierlich variierenden Magnetisierung \mathbf{M} ab. Der zweite Term beschreibt mit $J > 0$ die ferromagnetische Wechselwirkung. Der dritte Term repräsentiert die Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung, wobei sich für $D > 0$ zusammen mit dem ferromagnetischen Term eine linkshändige Helix mit der Länge $Q \sim J/D$ ergibt [50]. Spin-Orbit-Kopplungen höherer Ordnung führen zu Anisotropietermen, die zu der Ausrichtung der Helices im Nullfeld führen. Sie sind hier nicht explizit berücksichtigt (vgl. hierzu Abschnitt 4.4). Für MnSi führt dies zu der helikalen Ordnung mit Helices entlang der $\langle 111 \rangle$ -Hauptachsen.

Spin-Flop-Übergang

Der letzte Term beschreibt eine Kopplung mit dem externen Magnetfeld. Das externe Magnetfeld führt zu einer uniformen Magnetisierung $\mathbf{M}_f = \int \mathbf{M}(\mathbf{r}) d^3\mathbf{r} / V$, wobei V das Volumen darstellt, über das gemittelt wird. Daraus ergibt sich für die konische Phase folgende mikroskopische Magnetisierung:

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} \sqrt{2}\Phi \cos(qz) \\ \sqrt{2}\Phi \sin(qz) \\ 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ M_f \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

Die konische Phase besteht somit aus Helices entlang der Magnetfeldrichtung z . Die überlagerte uniforme Magnetisierung \mathbf{M}_f führt zu der konischen Verkipfung der Spins in z -Richtung.

Skymionenphase

Die folgenden Ausführungen zu der energetischen Betrachtung des Skymionengitters halten sich an die Argumentation aus Ref [1].

Lineare Kombinationen von Helices führen durch den vierten Term (UM^4) in Gleichung (1.3) zur Minimierung der freien Energie. Dieser Term vierter Ordnung kann umgeschrieben werden in:

$$\mathbf{M}^4 = \mathbf{M}_f^4 + 4\mathbf{M}_f^2\Phi \cdot \mathbf{M}_f + 2\mathbf{M}_f^2\Phi^2 + 4(\mathbf{M}_f \cdot \Phi)^2 + 4\Phi^2\Phi \cdot \mathbf{M}_f + \Phi^4 \quad (1.5)$$

Dabei wird der Ordnungsparameter $\Phi = \mathbf{M} - \mathbf{M}_f$ eingeführt. Der vorletzte Term, welcher kubisch im Ordnungsparameter ist, begünstigt die Bildung des Skymionengitters. Eine Fouriertransformation führt zu:

$$\int \mathbf{M}_f \cdot \Phi \Phi^2 d^3\mathbf{r} = \sum_{\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \mathbf{q}_3 \neq 0} (\mathbf{M}_f \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{q}_1})(\mathbf{m}_{\mathbf{q}_2} \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{q}_3})\delta(\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3) \quad (1.6)$$

Dabei ist $\mathbf{m}_{\mathbf{q}}$ die Fouriertransformierte von $\mathbf{M}(\mathbf{r})$. Dies führt zur Superposition von drei Wellenvektoren mit der Nebenbedingung $\mathbf{Q}_1 + \mathbf{Q}_2 + \mathbf{Q}_3 = 0$. Daraus folgt direkt, dass alle drei \mathbf{Q}_i in einer Ebene liegen müssen, welche durch den Normalenvektor $\hat{\mathbf{n}}$ definiert wird ($\hat{\mathbf{Q}}_i \hat{\mathbf{n}} = 0$ für alle i).

Im einfachsten Fall gilt weiterhin $|\mathbf{Q}_i| = |\mathbf{Q}|$, wobei Abweichungen davon zu Verzerrungen führen, die in dem theoretischen Modell explizit nicht ausgeschlossen sind. Für den Fall, dass der magnetische Zustand keine Verzerrungen aufweist, ergibt sich schließlich eine Superposition von drei Helices mit der Länge $Q \sim J/D$, die in einer Ebene senkrecht zum Feld im Winkel von 120° zueinander liegen und darüber hinaus einer überlagerten uniformen Magnetisierung in Feldrichtung:

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) \approx \mathbf{M}_f + \sum_{i=1}^3 \mathbf{M}_i^{\text{helix}}(\mathbf{r}, \Delta\alpha_i) \quad (1.7)$$

mit der Magnetisierung der einzelnen Helices:

$$\mathbf{M}_i^{\text{helix}}(\mathbf{r}) = \sqrt{2}\Phi(\hat{\mathbf{n}}_i^I \cos(\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r}) - \hat{\mathbf{n}}_i^{II} \sin(\mathbf{q}_i \cdot \mathbf{r})) \quad (1.8)$$

Dabei definiert $\sqrt{2}\Phi$ die Amplitude und $\Delta\alpha_i$ die Phasenlage der drei Helices. Außerdem bilden \mathbf{q}^i , $\hat{\mathbf{n}}_i^I$, $\hat{\mathbf{n}}_i^{II}$ eine orthogonale Basis. Alle drei Helices sind linkshändig, da gilt: $\mathbf{q}^i = \hat{\mathbf{n}}_i^I \times \hat{\mathbf{n}}_i^{II}$ für $i = 1, 2, 3$. Zusätzlich gilt für alle drei Helices $\mathbf{q}^i \perp \vec{B}$. Daher richtet sich

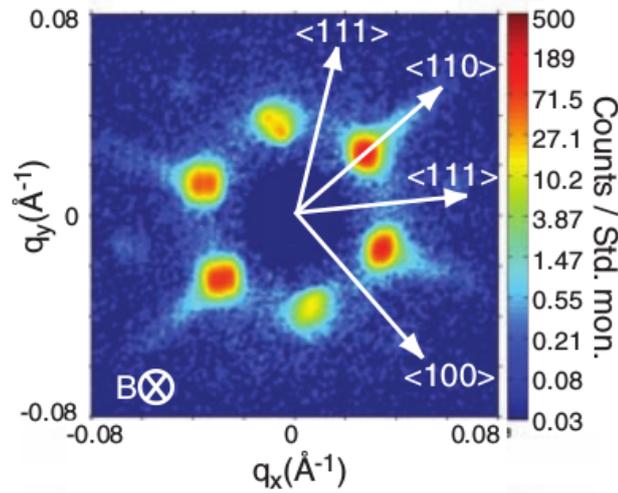


Abbildung 1.3: Neutronenstreubild in der A-Phase von MnSi wie in Ref. [1] gemessen. Es lassen sich sechs Intensitätspeaks mit keiner oder nur sehr schwachen Streuung höherer Ordnung beobachten. Außerdem zeigt das Streubild Artefakte von nach außen abfallenden Intensitätsstreifen.

der Normalenvektor der Skymionengitterebene in erster Näherung unabhängig von der Kristallorientierungen parallel zu dem Magnetfeld aus. Eine genaue Betrachtung dieser 3-q-Struktur zeigt, dass es sich um ein hexagonales Gitter von Skymionen handelt, wie diese in Abschnitt 1.1 definiert sind (vgl. Abb 1.2). Die Struktur ist invariant in Magnetfeldrichtung und bildet somit Skymionenschläuche ähnlich zu Abrikosov-Wirbeln in Typ II Supraleitern.

Die drei Phasen $\Delta\alpha_i$ der Helices können bei geeigneter Wahl des Koordinatensystems auf eine einzelne Phase α reduziert werden. Es zeigt sich, dass die mikroskopische Struktur des Skymionengitters stark von der Phasenbeziehung α der Helices abhängt [37, 51, 52]. Da Neutronenstreuung erster Ordnung über $|\mathbf{m}_{\mathbf{q}_j}|^2$ mittelt, kann hieraus keine Information über die Phasenbeziehung gewonnen werden.

Ausgehend von einer perfekten sinusförmigen Modulation des Skymionengitter-Modells wird Streuung höherer Ordnung zunächst nicht erwartet. Zur Bestimmung der freien Energie werden alle reziproken Gitterpunkte $n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2$ bis zu einer bestimmten Grenze $|n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2| \leq \Gamma$ berücksichtigt [1]. Eine numerische Minimierung der freien Energie in Abhängigkeit der Amplituden und Phasen aller Moden führt zu leichten Deformationen von der idealen Form in Gleichung (1.6). Die Messungen in MnSi aus Kapitel 3 dieser Doktorarbeit zeigen die daraus resultierende schwache Streuintensität höherer Ordnung. Dies liefert einen unmittelbaren mikroskopischen Beweis für die Existenz des Skymionengitters. Außerdem kann letztlich indirekt auf die Phasenbeziehung $\alpha = 0$ und damit auf die genaue mikroskopische Struktur des Skymionengitters geschlossen werden.

Zusammengefasst lassen sich mit diesem Modell des Skymionengitters alle Ergebnisse aus den Neutronen-Streubildern (vgl. Abb. 1.3) erklären [1]. Für unpolarisierte Neutronen kann zwischen den Propagationsvektoren $-\mathbf{Q}$ und $+\mathbf{Q}$ nicht unterschieden werden, sodass

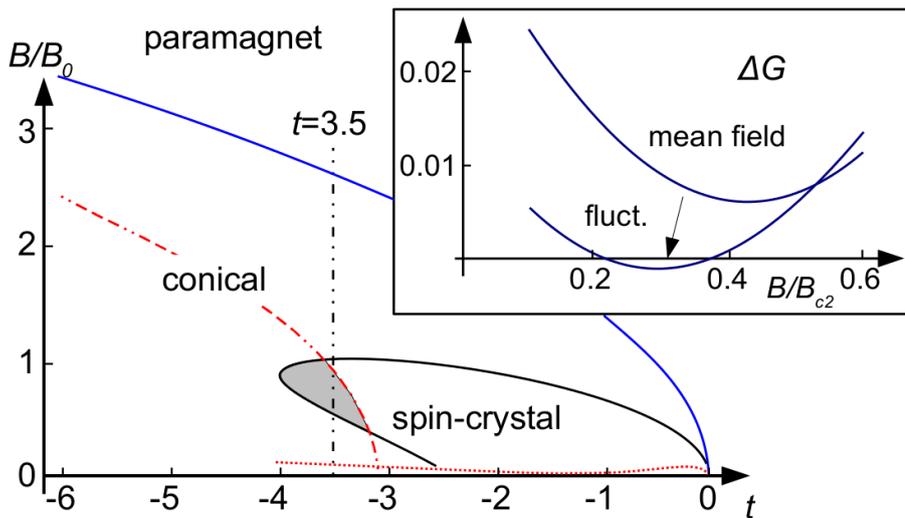


Abbildung 1.4: Theoretisches Phasendiagramm der verschiedenen magnetischen Phasen in MnSi als Funktion von Magnetfeld und Temperatur. Die gestrichelte rote Linie markiert den Bereich, in dem die thermische Fluktuationen kleiner als 20% vom Beitrag der Molekularfeldtheorie sind. Rechts dieser Linie kann keine klare Aussage mehr über die Stabilität des Skyrmionengitters getroffen werden. Kleines Teilbild rechts oben: Energiedifferenz des Skyrmionengitters und der konischen Phase. Werden thermische Fluktuationen berücksichtigt wird die Phase des Skyrmionengitters zum globalen Minimum. Abb. aus Ref. [1].

sich zu jeder Helix zwei Intensitätspeaks ergeben. Die Superposition der drei Helices führt somit in den Streubildern zu den sechs Intensitätspeaks, wobei in erster Näherung keine Streuung höherer Ordnung auftritt. In der Publikation von 2009 zeigten die sechs Peaks Artefakte in Form von schwachen, radial nach außen abfallenden Intensitätsstreifen [1], die nicht hinreichend erklärt werden konnten. Messungen aus Kapitel 3 dieser Doktorarbeit zeigen, dass solche Artefakte für eine geeignete Probenform verschwinden.

Experimentelle Neutronenstreudaten zeigen entsprechend dem theoretischen Modell, dass sich der Normalenvektor der Skyrmionengitterebene in erster Näherung immer parallel zu dem angelegten Magnetfeld ausrichtet. Die Streubilder zeigen also unabhängig von der Kristallorientierung immer die typischen sechs Intensitätspeaks. Das obige Modell des Skyrmionengitters ist aber zunächst invariant gegenüber Drehungen der Struktur in der Ebene. Daher müssen Anisotropieterme, die in Gleichung (1.3) noch nicht berücksichtigt sind, eingeführt werden. In Kapitel 4 dieser Doktorarbeit werden genaue Messungen der Orientierung des Skyrmionengitters in Bezug auf das Magnetfeld als Funktion der Kristallorientierung dargestellt. Es ergibt sich ein weicher Übergang zweier Orientierungen des Skyrmionengitters in der Ebene. Außerdem führen die Anisotropiefelder zu leichten Abweichungen des Normalenvektors der Skyrmionengitterebene. Die systematische Auswertung führt mittels einfacher Symmetriebetrachtungen zur quantitativen Bestimmung der kubischen Anisotropieterme. Diese Terme spielen auch bei dem von Fluktuationen getriebenen Brazovskii-Übergang in MnSi von der paramagnetischen in die helikale Phase eine Rolle [53–55].

Thermische Fluktuationen

Im Folgenden wird gezeigt, wie der zunächst metastabile Zustand des Skyrmionengitters durch thermische Fluktuation zum stabilen Grundzustand wird [1]. Werden thermische Fluktuationen berücksichtigt, führen diese zu einem zusätzlichen Beitrag zu der freien Energie. Von Interesse ist die Differenz der freien Energie zwischen konischer Phase und der Phase des Skyrmionengitters:

$$\Delta G_{\text{mf}} = G_{\text{mf}}^{\text{Skyr}} - G_{\text{mf}}^{\text{kon}} \quad (1.9)$$

Das kleine Teilbild in Abb. 1.4 zeigt das lokale Minimum von ΔG_{mf} . In Ref. [1] wurde auch gezeigt, dass in dem Magnetfeldbereich von $B \approx 0.4B_{c2}$ bzw. für die uniformen Magnetisierung $M_f = 0.78$, in dem das Skyrmionengitter am stabilsten scheint, die Amplitude der Magnetisierung $|\mathbf{M}(\mathbf{r})|$ fast konstant ist. Dies lässt sich leicht verstehen, da Modulationen der Amplitude der Magnetisierung energetisch sehr ungünstig sind. Trotzdem bleibt es bei einem metastabilen Zustand, und die konische Phase stellt innerhalb der Molekularfeldtheorie den stabilen Grundzustand dar. Werden nun thermische Fluktuationen berücksichtigt, zeigen die theoretischen Betrachtungen aus Ref. [1], dass ΔG_{flukt} zu einem globalen Minimum wird (vgl. kleines Teilbild in Abb. 1.9):

$$\Delta G_{\text{flukt}} = G_{\text{flukt}}^{\text{Skyr}} - G_{\text{flukt}}^{\text{kon}} \quad (1.10)$$

Das theoretische Phasendiagramm in Abb. 1.4 zeigt die verschiedenen magnetischen Phasen in MnSi als Funktion von Magnetfeld und Temperatur. Der mit "spin-crystal" bezeichnete Bereich begrenzt die Phase des Skyrmionengitters. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die thermischen Fluktuationen nicht zu groß sein dürfen, damit die theoretischen Berechnungen noch ihre Gültigkeit behalten. Daher markiert die gestrichelte rote Linie den Bereich, in dem diese kleiner als 20% vom Beitrag der Molekularfeldtheorie sind. Rechts dieser Linie kann keine klare Aussage mehr über die Stabilität des Skyrmionengitters getroffen werden.

Im Ergebnisteil in Kapitel 4 wird noch einmal explizit auf die Mechanismen, die zu der Stabilisierung des Skyrmionengitters führen, eingegangen. Die Ergebnisse dieser Doktorarbeit zeigen, dass das Skyrmionengitter für beliebige Kristallorientierungen stabil bleibt. Damit wird die Theorie von Bogdanov et al. [34,48] entkräftet und gezeigt, dass thermische Fluktuationen für die Stabilisierung des Skyrmionengitters verantwortlich sein müssen.

1.2.2 Topologische Windungszahl

Wie bereits oben in Abschnitt 1.1 erwähnt kann mit Gleichung (1.2) die Windungszahl einer magnetischen Struktur bestimmt werden. Wie in Abb. 1.5 dargestellt ergibt die Inte-

Experimente zur Manipulierung von Spinstrukturen mittels Strom sind ein vielversprechendes Teilgebiet der Spintronik, insbesondere für die Datenspeichertechnologie. So können z.B. Domänenwände mittels starker Strompulse (10^{11} A m^{-2}) bewegt werden [60, 61]. Für das Skyrmionengitter in MnSi kann dagegen schon für extrem kleine Stromdichten (10^6 A m^{-2}) ein entsprechender Spin-Transfer-Torque-Effekt beobachtet werden [16–18]. Der elektrische Strom führt effektiv zu einem Skyrmionenstrom, der zu einem emergenten elektrischen Feld führt, das dem Feld des topologischen Hall-Effekts entgegen gesetzt ist [62, 63]. Auch dieser Effekt lässt sich auf die nicht-triviale Topologie bzw. die endliche Windungszahldichte zurückführen.

1.3 Helimagnetismus in MnSi

Die helimagnetische 3d-Übergangsmetallverbindung MnSi ist ein Vertreter der B20-Übergangsmetallverbindungen, zu denen auch $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, FeGe, mit Fe und Co dotiertes MnSi gehören. Die Kristallstruktur besitzt die Raumgruppe $P2_13$ und ist damit nicht inversionssymmetrisch. Eine ausgezeichnete $\langle 111 \rangle$ -Richtung weist eine dreizählige Rotationssymmetrie auf. Zusätzlich existieren Schraubenachsen entlang $\langle 100 \rangle$ bestehend aus einer zweizähligen Rotation gefolgt von einer Translation um eine halbe Gitterkonstante [64]. Die Gitterkonstante beträgt $a = 4.58 \text{ \AA}$.

Abb. 1.6 zeigt eine Skizze der Einheitszelle entlang der $\langle 111 \rangle$ -Kristallachse mit jeweils vier Mn-Atomen und Si-Atomen an den Atomkoordinaten (u, u, u) , $(1/2+u, 1/2-u, -u)$, $(1/2-u, -u, 1/2+u)$, $(-u, 1/2+u, 1/2-u)$ [65]. Aufgrund der fehlenden Inversionssymmetrie besitzt die Kristallstruktur Chiralität. In Abb. 1.6 (a) ist die linkshändige Struktur mit $u_{Mn} = 0.137$ und $u_{Si} = 0.845$ gezeigt, rechts daneben in Abb. 1.6 (b) ist entsprechend die rechtshändige Struktur mit $u_{Mn} = 0.865$ und $u_{Si} = 0.155$ gezeigt. Die unterschiedliche Händigkeit ist anhand der schwarzen Verbindungslinien der roten Mn-Atome illustriert.

Aufgrund der fehlenden Inversionssymmetrie kommt es zu Dzyaloshinskii-Moriya-Spin-Bahn-Wechselwirkungen [66, 67], welche letztlich aus dem itineranten, schwach ferromagnetischen MnSi einen Helimagneten machen [68–70]. Es ergibt sich eine Hierarchie von drei Energieskalen, wobei die stärkste den ferromagnetischen Austausch darstellt. Die etwas schwächere Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung versucht, benachbarte Spins orthogonal zu stellen: $H_{DM} = D_{ij} \cdot (S_i \times S_j)$. Sie führt zusammen mit der ferromagnetischen Wechselwirkung zu einer helikalen Ordnung der Spins. Aus dem Verhältnis von ferromagnetischer Wechselwirkung und Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung ergibt sich die Länge der Helices [50, 71]. Für MnSi ergeben sich Helices mit einer Länge von etwa 180 \AA [68]. Auf der schwächsten Energieskala wirkt die Kristallanisotropie und orientiert die Propagationsvektoren der Helices in Richtung der $\langle 111 \rangle$ -Kristallachsen.

Abb. 1.7 zeigt das typische Temperatur-Magnetfeld-Phasendiagramm der B20-Verbindungen, wenn die magnetische Wechselwirkungen stark genug sind, um magnetische Ordnung zu erzeugen. Für ein Nullfeld und zunächst hohe Temperaturen befindet sich das

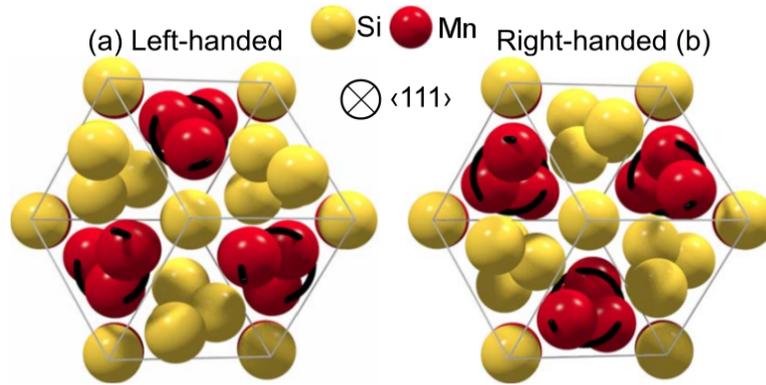


Abbildung 1.6: Kristallstruktur von MnSi entlang der $\langle 111 \rangle$ -Achse. Der $P2_13$ Struktur mit den Atomkoordinaten (u, u, u) , $(1/2+u, 1/2-u, -u)$, $(1/2-u, -u, 1/2+u)$, $(-u, 1/2+u, 1/2-u)$ fehlt die Inversionssymmetrie. (a) Die Chiralität der Kristallstruktur ist linkshändig mit $u_{Mn} = 0.137$ und $u_{Si} = 0.845$. (b) Daneben ist eine rechtshändige Chiralität gezeigt mit $u_{Mn} = 0.865$ und $u_{Si} = 0.155$. Die Händigkeit wird durch die schwarzen Verbindungslinien der roten Mn-Atome angedeutet. Abb. aus Ref. [65].

System in der paramagnetischen Phase. Unterhalb der Ordnungstemperatur T_c kommt es zu helimagnetischer Ordnung, wobei die Helices durch das schwache Anisotropiefeld in Richtung $\langle 111 \rangle$ ausgerichtet werden. Mit steigendem äußeren Magnetfeld werden die Propagationsvektoren der Helices oberhalb des kritischen Feldes B_{c1} in Feldrichtung ausgerichtet. Zusätzlich kippen die Spins der Helices in Feldrichtung, weshalb diese Phase auch konische Phase genannt wird. Dieser Übergang ist sehr ähnlich zu dem Spin-Flop-Übergang bei Antiferromagneten, bei dem oberhalb des kritischen Feldes die magnetische Anisotropie durch die Zeeman-Energie überwunden wird [72] (vgl. Abb. 1.8). Mit zunehmender Feldstärke kippen die Spins zunehmend in Feldrichtung, bis das System oberhalb von B_{c2} zum feldinduzierten Ferromagneten wird.

Knapp unterhalb von $T_c = 29.5\text{ K}$, bei etwa $B = 200\text{ mT}$, befindet sich in MnSi ein kleiner Feldbereich, der aus historischen Gründen als A-Phase bezeichnet wird. Diese Phase ist seit den frühen 1980er Jahren bekannt [74] und kann auch in der Neutronenstreuung nachgewiesen werden [75]. Während sich in der konischen Phase Streubilder mit zwei Intensitätsspeaks in Richtung der Feldachse ergeben, klappen diese beiden Intensitätsspeaks bei dem Übergang in die A-Phase senkrecht zur Feldachse um. Demnach stehen die Helices senkrecht zum Magnetfeld, was jedoch aus energetischen Gründen lange Zeit nicht verstanden werden konnte. Wie bereits oben erwähnt entspricht die konische Phase der stabilen Spin-Flop-Phase in Antiferromagneten (vgl. Abb. 1.8 (b)). Dagegen schien die Konfiguration mit Helices senkrecht zum Feld in der A-Phase energetisch ungünstig, da diese mit antiparallelen Spins zum Feld unnötig Zeeman-Energie kostet (vgl. Abb. 1.8 (a)). Erst die Identifizierung des Skyrmionengitters konnte diese Diskrepanz auflösen und den Grundzustand der A-Phase klären.

Wie im Abschnitt 2.1.2 über die experimentellen Methoden ausgeführt wird, kann die genaue Struktur der A-Phase erst mit einem Instrumentenaufbau nachgewiesen werden,

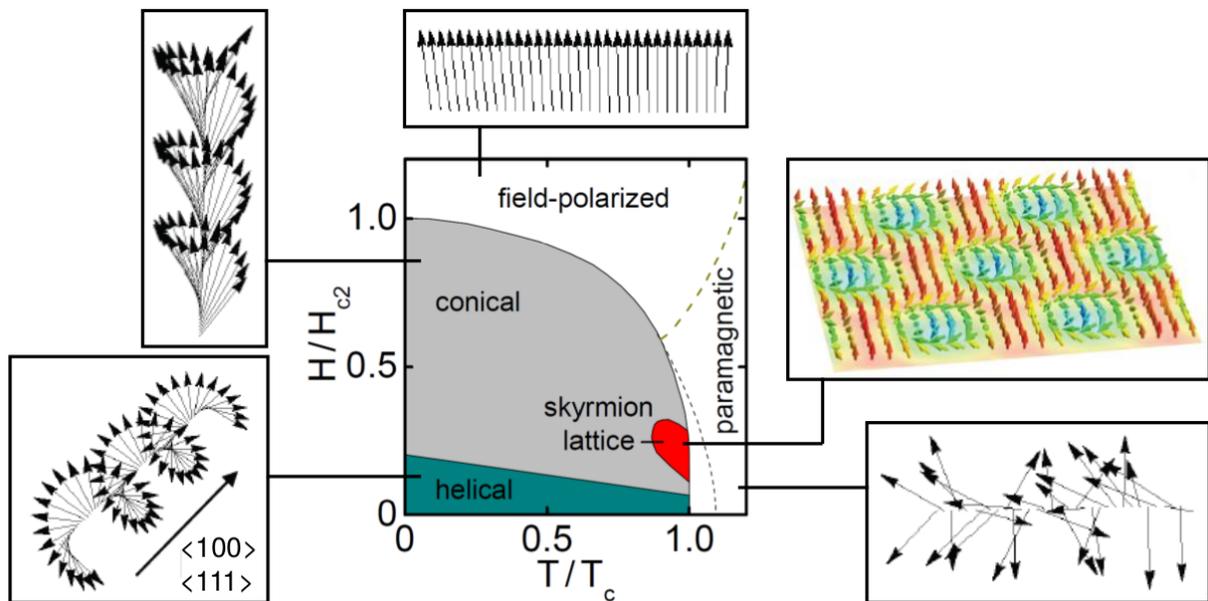


Abbildung 1.7: Temperatur-Magnetfeld-Phasendiagramm von B20-Verbindungen. Unterhalb von T_c ordnen die Systeme helikal, wobei die Helices je nach Kristallanisotropie Richtung $\langle 111 \rangle$ oder $\langle 100 \rangle$ ausgerichtet sind. Oberhalb eines kritischen Magnetfeldes B_{c1} klappen die Helices in Feldrichtung. Zusätzlich kommt es zu einer konischen Verkipfung der Spins in Feldrichtung, weshalb diese Phase auch konische Phase genannt wird. Für hohe Felder kommt es zu einem feldinduziertem Ferromagnetismus. Innerhalb eines kleinen Temperaturbereichs knapp unterhalb von T_c bei mittleren Feldern kann das Skyrmionengitter nachgewiesen werden. Abb. aus Ref. [73].

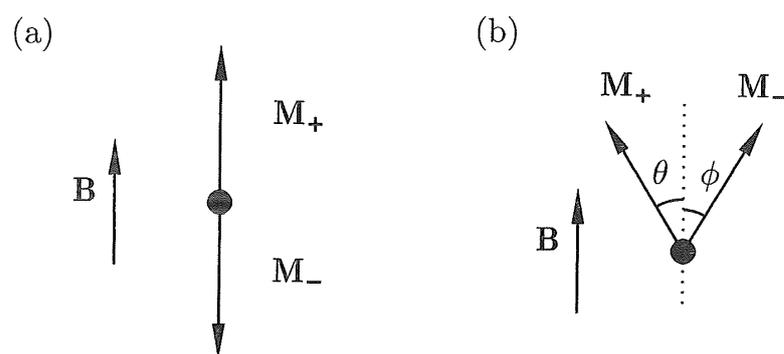


Abbildung 1.8: Spin-Flop-Übergang in Antiferromagneten. Es wird ein Magnetfeld kollinear zu den magnetischen Momenten angelegt. Oberhalb eines kritischen Feldes kommt es aufgrund der Zeeman-Energie zum Übergang in die Spin-Flop-Phase. Der Übergang von der helikalen in die konische Phase von MnSi verhält sich auf eine ganz ähnliche Weise. Abb. aus Ref. [72].

bei dem das Magnetfeld in Richtung des Neutronenstrahls ausgerichtet ist. Dies wurde erstmals im Jahr 2009 für die Verbindung MnSi mittels Kleinwinkelneutronenstreuung (SANS für englisch small angle neutron scattering) durchgeführt, wobei die Streubilder sechs Intensitätsspeaks zeigten (vgl. Abb. 1.3). Dies war der erste Nachweis der topologisch nicht-trivialen Spinstruktur des Skyrmionengitter in einem chiralen Magneten.

1.4 Skyrmionengitter in weiteren Verbindungen

Neben MnSi konnte das Skyrmionengitter inzwischen auch in vielen weiteren Verbindungen beobachtet werden. So auch in dem Oxid Cu_2OSeO_3 , welches im Rahmen dieser Doktorarbeit eingehend mittels SANS-Messungen untersucht wurde und im folgenden Abschnitt betrachtet wird. Anschließend werden weitere Systeme vorgestellt in denen die nicht-triviale Spinstruktur gefunden werden konnte.

1.4.1 Eigenschaften von Cu_2OSeO_3

Die ternäre Verbindung Cu_2OSeO_3 ist der erste Isolator, in dem das Skyrmionengitter nachgewiesen werden konnte [9, 76, 77]. Die Kristallstruktur kann genau wie die binären B20-Systeme (MnSi , $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, FeGe und mit Fe und Co dotiertes MnSi) der nicht zentrosymmetrische Raumgruppe P2_13 zugeordnet werden [78]. Die Einheitszelle mit der Gitterkonstante $a = 8.9235 \text{ \AA}$ ist in Abb. 1.9 schematisch dargestellt [79]. Die Struktur besteht aus CuO_5 Polyedern, deren Cu-Atompositionen in Abb. 1.9 (a) dargestellt sind, und aus SeO_3 Tetraedern, die aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt sind. Es können zwei Cu-Positionen, Cu1 und Cu2, unterschieden werden, die im Verhältnis eins zu drei vorkommen. Die weißen Cu1-Atome sind trigonal bipyramidal von Sauerstoffatomen umgeben. Die blauen Cu2-Atome sind quadratisch pyramidal von von Sauerstoffatomen umgeben. Durchgezogene Linien deuten an, dass die benachbarten CuO_5 Polyeder eine gemeinsame Kante aufweisen, offene Linien bedeuten, dass die Polyeder eine gemeinsame Ecke teilen. Die Atomabstände sind in der Grafik jeweils in Ångström angegeben. Nach Berechnungen des Valenzbandes weisen alle Kupferionen, sowohl an den Cu1 also auch Cu2 Positionen, die Oxidationszahl +2 auf [80].

In Teilbild (b) ist die ferrimagnetische Konfiguration der Spins unterhalb der Ordnungstemperatur $T_c = 58.6 \text{ K}$ gezeigt. Nach den Kanamori-Goodenough-Regeln weisen die Cu-Momente der CuO_5 Polyeder mit gemeinsamer Kante ferromagnetische Wechselwirkung, und CuO_5 Polyeder, die sich eine Ecke teilen, entsprechend eine antiferromagnetische Wechselwirkung auf [79]. Innerhalb der Einheitszelle können vier verzerrte Tetraeder mit jeweils vier Kupferatomen identifiziert werden. Entsprechend den Kanamori-Goodenough-Regeln ordnen innerhalb jedes der Tetraeder jeweils drei Spins ferromagnetisch und der vierte antiferromagnetisch dazu [81]. Die Regeln werden allerdings zwischen den vier Tetraeder nicht mehr erfüllt.

nicht durch Kristallverzerrungen hervorgerufen wird. Möglicherweise deutet dies auf eine neuartige und ungewöhnliche magnetoelektrische Kopplung hin [79].

1.4.2 Andere Systeme

Neben MnSi und Cu_2OSeO_3 konnte das Skyrmionengitter auch in vielen weiteren Verbindungen, insbesondere in einigen magnetischen B20-Systemen ($\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$, FeGe, MnGe, $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ und $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$) beobachtet werden. Zunächst konnte das Skyrmionengitter in dem dotierten Halbleiter $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ mittels Neutronenstreuung nachgewiesen werden [86, 87]. An dünnen Proben von $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ konnte sowohl das Skyrmionengitter als auch einzelne Skyrmionen erstmals im Realraum mit Hilfe von Lorentz-Transmissionselektronenmikroskopie (LTEM) beobachtet werden [39]. Weitere Messungen mit magnetischer Rasterkraftmikroskopie an der Oberfläche von Volumenproben beobachteten den Zerfallsprozess des metastabilen Skyrmionengitters [88]. Numerische Simulationen zeigten, dass dieser Zerfallsprozess durch topologische Defekte getrieben wird, die als magnetische Monopole aufgefasst werden können.

Weitere Untersuchungen an $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ und $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ zeigten, dass das Skyrmionengitter in MnSi unter Dotierung trotz steigender Unordnung im Kristall stabil bleibt. Das bestätigten sowohl Messungen des topologischen Hall-Effekts [89] als auch Neutronenstreuendaten [90, 91]. Für steigende Dotierung nimmt dabei die Gitterkonstante des Skyrmionengitters ab und damit die Skyrmionendichte zu. Damit nimmt der topologische Beitrag des Hall-Effekts entsprechend zu, wobei hierbei weitere Effekte abhängig von der Dotierung berücksichtigt werden müssen.

FeGe ist ein weiteres B20-System, in dem das Skyrmionengitter mittels LTEM gefunden werden konnte [92, 93]. Mit der Ordnungstemperatur von $T_c = 278.2\text{K}$ nahe der Raumtemperatur scheint diese Verbindung besonders interessant. Abb. 1.10 zeigt, wie mit abnehmender Probendicke die Ausdehnung der Skyrmionengitter-Phase als Funktion der Temperatur zunimmt [92]. Entsprechend ist das Phasendiagramm von dickeren Proben vergleichbar mit dem von Volumenproben, in denen das Skyrmionengitter nur über einen relativ kleinen Temperaturbereich stabil bleibt. Theoretische Diskussionen über uniaxiale Anisotropien, die das Skyrmionengitter gegenüber der konischen Phase stabilisieren, bestätigen die experimentellen Befunde [94–97]. Wird die Dicke der Probe von der Größenordnung der Helixlänge oder kleiner, ändert sich die magnetische Anisotropie, bzw. können die Spins entlang des Propagationsvektors in Feldrichtung keine volle Helix-Rotation mehr ausführen. Weitere LTEM konnten in situ die Strom induzierte Bewegung des Skyrmionengitters in dünnen Filmen von FeGe sichtbar machen [98]. Schließlich gelang Huang et al. in epitaktischen dünnen Schichten von FeGe(111) mittels topologischen Hall-Effekts der Nachweis des Skyrmionengitter im Nullfeld [99].

Als letztes B20-System konnte auch in MnGe das Skyrmionengitter nachgewiesen werden [100, 101]. Dabei wurde für unterschiedliche Dotierungskonzentrationen von $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$ die Korrelation der Chiralität der Kristalle mit der der chiralen Skyrmionen verglichen

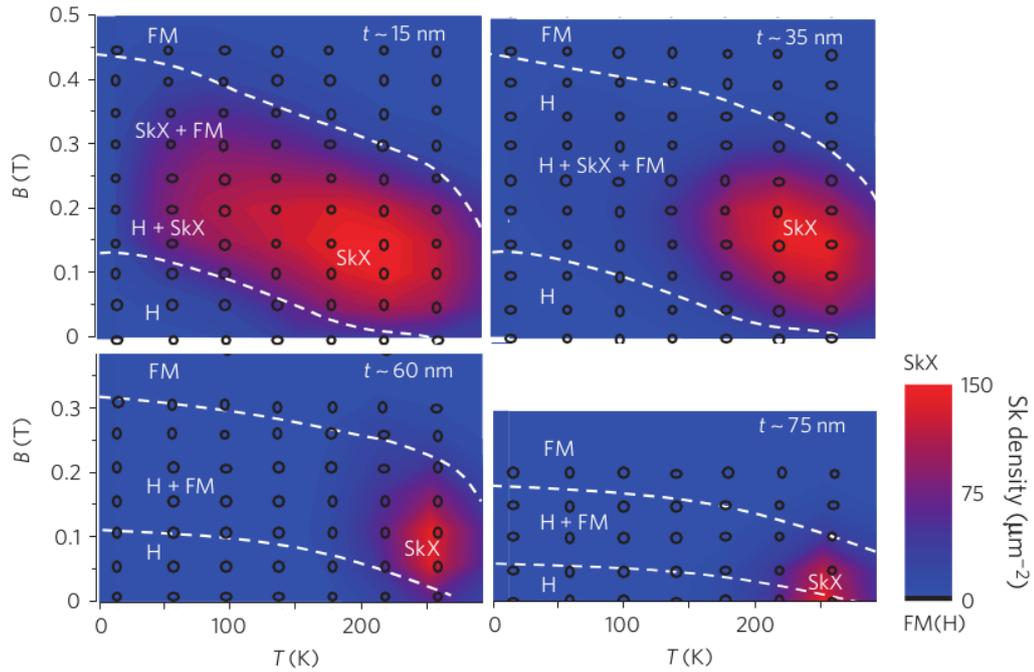


Abbildung 1.10: Ausdehnung der Phase des Skymionengitters in dünnen Proben von FeGe für unterschiedliche Probendicken. Je dünner die Proben sind, desto größer wird die Ausdehnung der Skymionengitter-Phase als Funktion der Temperatur. Abb. aus Ref. [92].

[102]. Für SANS-Daten an polykristalline Proben von MnGe wurden neue Formen von Skymionenkristallen diskutiert, wobei sowohl quadratische als auch kubische Spin-Strukturen vorgeschlagen wurden [103]. Es existieren entsprechende Monte Carlo Simulationen zu zweidimensionalen Skymionengitter [104, 105] als auch theoretische Untersuchungen zu dreidimensionalen Strukturen [106]. Weitere experimentelle Publikationen versuchen, dreidimensionale topologisch nicht-triviale Spinstrukturen nachzuweisen [107, 108].

Auch in MnSi wurden ähnliche Strukturen schon lange vor dem experimentellen Nachweis des Skymionengitters vorgeschlagen. Untersuchungen unter hydrostatischem Druck weisen auf ein Abweichen vom Fermi-Flüssigkeitsverhalten hin [109–115]. Entsprechende Daten der Neutronenstreuung oberhalb vom kritischen Druck von $p = 14.6$ kbar zeigen eine partielle Ordnung [116], die ebenfalls als eine dreidimensionale, topologisch nicht-triviale Spinstruktur gedeutet werden kann [37, 51].

Das Material beta-Mn-Typ Co-Zn-Mn ist ein komplett neues System, in dem das Skymionengitter mittels LTEM gefunden werden konnte [117]. Die Kristallstruktur dieser Verbindung weist auch eine andere Raumgruppe als die der B20-Systeme auf. Außerdem ist im Hinblick auf technische Anwendungen im Zusammenhang von Skymionen die hohe, von der Dotierung abhängige Übergangstemperatur bis weit über Raumtemperatur bemerkenswert.

Mittels Spin-auflösender Rastertunnelmikroskopie konnte Heinze et al. eine quadratisches Gitter von Skymionen in dünnen Filmen von Fe auf einem Ir(111)-Substrat nachwei-

sen [41]. In einem leicht modifiziertem Dünnschicht-System konnte dieselbe Arbeitsgruppe mit dieser Technik einzelne Skyrmionen schreiben und löschen [3]. Dies ist ein entscheidender Schritt zur technischen Anwendung von Skyrmionen als Informationsträger in der Datenspeichertechnologie.

Kapitel 2

Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel werden die experimentellen Methoden dieser Doktorarbeit dargestellt. Nach einem grundlegenden Überblick über die Neutronenstreuung an magnetischen Strukturen, im Speziellen an helikalen Ordnungen, in Abschnitt 2.1 wird in Abschnitt 2.2 das Funktionsprinzip und Auflösungsvermögen von Kleinwinkel-Diffraktometern hergeleitet. Darauf aufbauend werden die beiden in dieser Arbeit genutzten Neutronenstreulinstrumente V4 (HZB) und MIRA (FRM II) vorgestellt. Der Renninger-Scan, der in Abschnitt 2.3 beschrieben wird, ist eine spezielle Technik, um parasitäre Doppelstreuung zu unterdrücken und so Streuung höherer Ordnung quantitativ messen zu können.

2.1 Neutronenstreuung

Neutronenstreuung ist eine ausgezeichnete Methode, um Strukturen und Anregungen in der Festkörperphysik zu untersuchen. Elastische und inelastische Neutronenstreuung wird seit den 1960er Jahren intensiv genutzt und ständig instrumentell weiterentwickelt. Der Erfolg dieser Methode beruht auf folgenden Eigenschaften von kalten und thermischen Neutronen:

- Neutronen sind, wie der Name schon besagt, elektrisch neutral. Im Gegensatz zu Elektronen, Protonen und elektromagnetischen Wellen erfährt das Neutron somit keine Coulomb-Barriere beim Eintritt in kondensierte Materie. Neutronen dringen deshalb bis tief in die Probe ein und liefern damit Informationen über die gesamte Probe. Im Gegensatz hierzu liefern geladene Teilchen oft nur Informationen über die Oberfläche der Probe.
- Das Neutron wechselwirkt über die starke Wechselwirkung, die eine extrem kurze Reichweite besitzt (einige fm), mit den Atomkernen. Dies hat zwei Konsequenzen. Zum einen ist der Formfaktor der nuklearen Neutronenstreuung konstant eins und

unabhängig vom Streuwinkel. Zum anderen unterliegt die Stärke der Wechselwirkung mit den Atomkernen keiner einfachen Gesetzmäßigkeit, wie dies bei geladenen Teilchen der Fall ist ($I \propto q^2$). Somit variiert der Streuquerschnitt der Neutronen an verschiedenen benachbarten Atomen und sogar Isotopen stark. Auf diese Weise kann z.B. Wasserstoff 1H , der mit geladenen Teilchen kaum wechselwirkt, mittels Neutronenstreuung leicht sichtbar gemacht werden.

- Da die Wellenlänge thermischer Neutronen die gleiche Größenordnung wie atomare Abstände in Festkörpern und Flüssigkeiten hat, können diese Strukturen sehr einfach und genau mittels Streuprozessen analysiert werden.
- Ebenso sind Energien thermischer Neutronen vergleichbar mit typischen dynamischen Prozessen und Anregungen in kondensierter Materie.
- Neutronen besitzen ein magnetisches Moment, mit dem sie an anderen magnetischen Momenten wie Spins oder Bahndrehmomenten von Elektronen in Festkörpern streuen können. Damit stellt Neutronenstreuung eine ideale Methode dar, um komplexe magnetische Strukturen zu untersuchen.

In diesem Kapitel wird auf eine allgemeine Einführung in die Neutronenstreuung verzichtet und auf Literatur verwiesen [118–121]. In der vorliegenden Arbeit geht es um Neutronenstreuung an komplexen magnetischen Strukturen. Daher wird an dieser Stelle im Speziellen auf die magnetische Neutronenstreuung eingegangen. Die Herleitungen und Streuformeln folgen der Einführungen von Shirane, Shapiro und Tranquada [122].

2.1.1 Magnetische Neutronenstreuung

Da Neutronen, wie bereits erwähnt, ein magnetisches Dipolmoment tragen, führt dies zu kohärenter Streuung an allen geordneten magnetischen Strukturen in einer Probe. Das magnetische Moment eines Neutrons ist:

$$\mathbf{m}_n = -\gamma\mu_n\boldsymbol{\sigma} \quad (2.1)$$

mit dem gyromagnetischen Verhältnis $\gamma = 1.913$, dem nuklearen Magneton μ_n und dem Spinoperator $\boldsymbol{\sigma}$.

Für einen unpolarisierten Neutronenstrahl sind alle Spinrichtungen gleichverteilt, und die Wahrscheinlichkeit für Spin-up bzw. Spin-down Prozesse ist gleich. Die Streulänge besteht nun aus zwei Komponenten, einem nuklearen aufgrund der starken Wechselwirkung und einem magnetischen Beitrag aufgrund der magnetischen Dipol-Wechselwirkung. Magnetische Momente in Festkörpern treten zum einen als Spins der Atomkerne und zum anderen als Spins und Bahndrehmomente der Elektronenhülle auf. Um das Problem zu vereinfachen, werden im Folgenden nur die Elektronen-Spins im Festkörper betrachtet

und im Weiteren die Bahnanteile des magnetischen Moments der Elektronenhülle vernachlässigt. Die magnetischen Momente der Atomkerne sind sehr schwach und in der Festkörperphysik in der Regel zu vernachlässigen. Der magnetische Formfaktor $f(\mathbf{q})$ eines Atoms ist durch die Fourier-Transformierte der normalisierten, ungepaarten Spindichte der Elektronenhülle $\varrho_m(\mathbf{r})$ gegeben:

$$f(\mathbf{q}) = \int \varrho_m(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} \quad (2.2)$$

mit $f(0) \equiv 1$.

Nach Halpern und Johnson [123] kann unter Vernachlässigung des magnetischen Bahndrehmoments der Elektronen der magnetische Streuquerschnitt hergeleitet werden. Analog zu dem nuklearen Streuquerschnitt wird hierzu Fermis Goldene Regel genutzt. Der magnetische Streuquerschnitt hängt nun nicht nur von dem initialen und finalen Zustand des Systems, sondern auch von dem Neutronen-Spin-Zustand s_i und s_f mit $\mathbf{s} = \boldsymbol{\sigma}/2$ ab, wobei

$$\left. \frac{d^2\sigma}{d\Omega_f dE_f} \right|_{s_i \rightarrow s_f} = \frac{k_f}{k_i} \sum P(\lambda_i) \left| \langle \lambda_f | \sum_j e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}j} U_j^{s_i s_f} | \lambda_i \rangle \right|^2 \delta(\hbar\omega + E_i - E_f) \quad (2.3)$$

Dabei geht das System von einem Anfangszustand λ_i mit der Energie E_i in den Endzustand λ_f mit der Energie E_f über. In der Probe wird im Allgemeinen die Anregung $\hbar\omega$ erzeugt. Die atomare Streuamplitude $U_j^{s_i s_f}$ am Atomplatz j für den Übergang des Spin-Zustandes des Neutrons von s_i nach s_f ist gegeben durch:

$$U_j^{s_i s_f} = \langle s_f | b_j - p_j \mathbf{S}_{\perp j} \boldsymbol{\sigma} + B_j \mathbf{I}_j \boldsymbol{\sigma} \rangle \quad (2.4)$$

Dabei ist b_j die kohärente nukleare Streulänge, B_j die spinabhängige nukleare Amplitude und \mathbf{I}_j der nukleare Spin-Operator. Der magnetische Wechselwirkungsvektor $\mathbf{S}_{\perp j}$ wurde 1963 von Gennes [124] eingeführt und 1969 von Moon, Riste und Koehler übernommen [125]. Er ist gegeben durch:

$$\mathbf{S}_{\perp j} = \mathbf{q}_e \times (\mathbf{S} \times \mathbf{q}_e) \quad (2.5)$$

Der Einheits-Streuvektor ist dabei definiert durch $\mathbf{q}_e = \frac{\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f}{|\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f|}$. Dies bedeutet, dass Neutronen nur an Spins, die senkrecht auf den Einheits-Streuvektor \mathbf{q}_e stehen, magnetisch gestreut werden. Wenn die magnetischen Momente der Probe auf einem Bravais-Gitter

angeordnet sind, kann der kohärente elastische Streuquerschnitt für magnetische Streuung von unpolarisierten Neutronen auf folgende Formel vereinfacht werden:

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega_f} \right|_{el} = N_m \frac{(2\pi)^3}{v_m} \sum_{\mathbf{G}_m} \delta(\mathbf{q} - \mathbf{G}_m) |\mathbf{F}_m(\mathbf{G}_m)|^2 \quad (2.6)$$

mit dem reziproken magnetischen Gittervektor \mathbf{G}_m und dem magnetischen Strukturfaktor $\mathbf{F}_m(\mathbf{G}_m)$. Der Index m identifiziert die Anzahl N_m und das Volumen v_m der magnetischen Einheitszellen. Typischerweise sind die magnetischen Einheitszellen größer als die chemischen des atomaren Gitters, sodass der neue magnetische reziproke Gittervektor \mathbf{G}_m eingeführt werden muss. Der magnetische Strukturfaktor $\mathbf{F}_m(\mathbf{G}_m)$ lautet:

$$\mathbf{F}_m(\mathbf{G}_m) = \sum_j p_j \mathbf{S}_{\perp j} e^{i\mathbf{G}_m \cdot \mathbf{d}_j} e^{W_j} \quad (2.7)$$

Summiert wird über alle Plätze j der magnetischen Einheitszelle. Der temperaturabhängige Debye-Waller-Faktor W_j ist ein Maß für thermische Fluktuation der Atome. Er reduziert die Intensität der Bragg-Peaks und erklärt den inkohärenten Untergrund.

2.1.2 Neutronenstreuung an Helimagneten

Modulierte magnetische Strukturen besitzen eine größere Periodizität der Spinmodulation als die Periodizität des zugrunde liegenden atomaren Gitters. Der reziproke Propagationsvektor $\mathbf{q} = \frac{2\pi}{\lambda}$ legt dabei die Modulationslänge λ der magnetischen Struktur fest. Als Spezialfall kann dabei ein Ferromagnet durch einen Wellenvektor $q = 0$ dargestellt werden oder ein Typ-II Antiferromagnet durch $\mathbf{q} = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ [126]. Die betrachtete magnetische Struktur ist inkommensurabel, wenn die Länge des reziproken Propagationsvektors keine rationalen Komponenten enthält.

Helimagnetische Strukturen sind eine spezielle Klasse von modulierten, magnetischen Strukturen. Dabei lassen sich die Spins folgendermaßen beschreiben:

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \boldsymbol{\alpha}_\lambda \cos(\boldsymbol{\lambda}\mathbf{r}) + \boldsymbol{\beta}_\lambda \sin(\boldsymbol{\lambda}\mathbf{r}) \quad (2.8)$$

Die Spin-Dichte $\mathbf{S}(\mathbf{r})$ legt die Richtung der Spins und damit auch die der lokalen Magnetisierung fest. Die Spins der Helix winden sich dabei um den Propagationsvektor $\boldsymbol{\lambda}$, dessen Richtung im Nullfeld durch magnetische Anisotropien bestimmt ist. Für eine ideale Helix gilt:

$$|\boldsymbol{\alpha}_\lambda| = |\boldsymbol{\beta}_\lambda|, \quad \boldsymbol{\alpha}_\lambda \perp \boldsymbol{\beta}_\lambda, \quad (\boldsymbol{\alpha}_\lambda \times \boldsymbol{\beta}_\lambda) \parallel \boldsymbol{\lambda} \quad (2.9)$$

Die Fourier-Transformation dieser Spinhelix ergibt sich mit:

$$\mathbf{S}(\mathbf{q}) = \int \mathbf{S}(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} d^3r \quad (2.10)$$

Daraus folgt ein Streuquerschnitt proportional zu:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega_f} \propto \mathbf{S}_{\mathbf{q}} \frac{(2\pi)^2}{v_0} \sum_{\mathbf{G}} \delta^3(\mathbf{q}' - \mathbf{G} - \mathbf{q}) + \mathbf{S}_{\mathbf{q}}^* \frac{(2\pi)^2}{v_0} \sum_{\mathbf{G}} \delta^3(\mathbf{q}' - \mathbf{G} + \mathbf{q}) \quad (2.11)$$

Dabei ist $\mathbf{S}_{\mathbf{q}} = \boldsymbol{\alpha}_{\mathbf{q}} + i\boldsymbol{\beta}_{\mathbf{q}}$, \mathbf{G} repräsentiert jeden beliebigen reziproken Gittervektor und $\frac{(2\pi)^2}{v_0}$ stellt das Volumen der reziproken Einheitszelle dar. Die helikale Ordnung führt also im Fall von unpolarisierten Neutronen zu zwei sogenannten Satelliten-Bragg-Peaks bei $\mathbf{q}' = \mathbf{G} + \mathbf{q}$ und $\mathbf{q}' = \mathbf{G} - \mathbf{q}$ jeweils um alle atomaren reziproken Gittervektoren \mathbf{G} . Diese Satelliten-Peaks treten insbesondere um den direkten Strahl bei $\mathbf{G} = \langle 000 \rangle$ auf, wobei $\mathbf{q}' = \mathbf{q}$ gilt.

Bei den in dieser Doktorarbeit behandelten Materialien ist die Helixlänge deutlich größer als typische atomare Strukturen, was bei thermischen Neutronen zu kleinen Streuwinkeln führt. Für kleine Streuwinkel kann die Ewaldkugel durch eine Tangentialebene angenähert werden. Diese Tangentialebene definiert die Streuebene, die am Detektor gemessen werden kann. In diesem Fall wird die Bragg-Bedingung in erster Näherung also genau dann erfüllt, wenn die Propagationsvektoren der Satelliten-Peaks in der Streuebene liegen, also in etwa senkrecht auf den einfallenden Neutronenstrahl stehen.

Die Bragg-Streuung der helikalen Satelliten-Peaks ist in Abb. 2.1 veranschaulicht. In Teilbild (a) ist der Streuprozess im reziproken Raum an dem Streuvektor $+\mathbf{q}_1$ mit einfallendem Neutronenstrahl \mathbf{k}_i und gestreutem Neutronenstrahl \mathbf{k}_f schematisch dargestellt. Das gezeigte Streubild in Abb. 2.1 (b) ist Ergebnis eines Rocking-Scans, bei dem die Probe samt Magnetfeld über einen bestimmten Winkelbereich und eine kleine Schrittweite horizontal bzw. vertikale gedreht wird. Zu jedem Rockingwinkel wird ein Detektorbild aufgenommen und die Summation ergibt das gezeigte Summenstreubild.

Mit Hilfe von polarisierten Neutronen kann zusätzlich die Chiralität der magnetischen Helix bestimmt werden. Sind die Neutronen parallel zu der Richtung des Propagationsvektor der Helix polarisiert, tritt je nach Chiralität der Helix nur einer der beiden Satelliten-Peaks $+\mathbf{q}$ oder $-\mathbf{q}$ auf [127].

Wie in Kapitel 1 beschrieben kann das Skyrmionengitter in der A-Phase von MnSi und verwandten Materialien in erster Näherung als eine multi-q-Struktur interpretiert werden. Dabei liegt eine Superposition von drei in einer Ebene liegenden Helices vor, die phasenstarr in einem Winkel von 120° zueinander stehen. Für unpolarisierte Neutronen ergeben sich in der Kleinwinkelstreuung bei normaler Auflösung sechs Bragg-Peaks in einem sechszähligen Streubild. Da die Ebene der Propagationsvektoren unabhängig von der

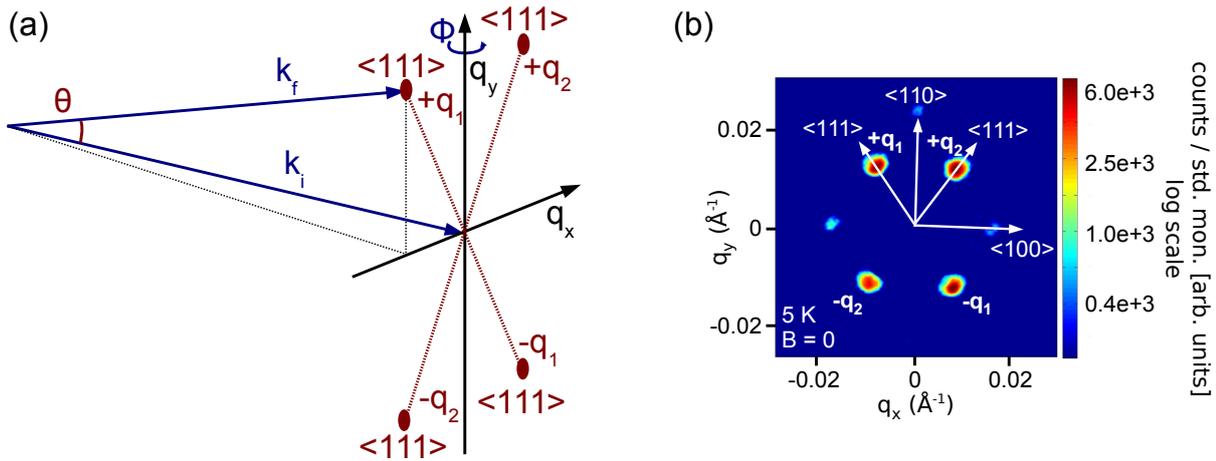


Abbildung 2.1: Bragg-Streuung von Neutronen an der helikalen magnetischen Struktur von MnSi. (a) Der Streuwinkel θ , der durch den Vektor \mathbf{k}_i des einfallenden und \mathbf{k}_f des ausfallenden Neutronenstrahls aufgespannt wird, ist durch den reziproken Propagationsvektor $\mathbf{q} = \frac{2\pi}{\lambda}$ der Helix festgelegt. Das Kristallfeld der helikalen Ordnung in MnSi lässt die Spinhelices entlang der $\langle 111 \rangle$ Achsen propagieren. Für unpolarisierte Neutronen treten dabei in der Streuebene Satellitenpeaks bei $+\mathbf{q}_1$, $-\mathbf{q}_1$ und $+\mathbf{q}_2$, $-\mathbf{q}_2$ für die zwei $\langle 111 \rangle$ Richtungen in der Streuebene auf. (b) Gezeigt ist die Summation der Streubilder eines Rocking-Scans im Nullfeld bei $T = 5$ K. Die vier Satellitenpeaks treten entlang der $\langle 111 \rangle$ Domänen in der Streuebene auf. Die sehr schwachen zusätzlichen Peaks entstehen durch Doppelstreuung.

Kristallorientierung senkrecht auf das externe angelegte Magnetfeld liegt, kann das volle sechszählige Streubild der Skyrmionengitter-Phase nur mit einem Setup gemessen werden, in dem das Magnetfeld parallel zu dem Neutronenstrahl ausgerichtet ist (vgl. Abb. 2.2). Für ein externes angelegtes Magnetfeld senkrecht zu dem einfallenden Neutronenstrahl, wie es in den ersten Publikationen über die A-Phase in MnSi der Fall war, können im besten Fall nur zwei Satellitenpeaks die Bragg-Bedingung erfüllen.

Ausgehend von einem Modell ungestörter helikaler Spinhelices (vgl. Gleichung (2.9)) liegt eine perfekte Sinusmodulation der Spinstruktur vor. Damit ergibt sich für eine Fourier-Transformation nur eine Fourierkomponente λ , während Streuung an höheren Ordnungen in einem Neutronen-Diffraktions-Experiment nicht zu erwarten ist. Erst anharmonische Effekte aufgrund einer Verzerrung der idealen Sinus-Modulation durch das externe Magnetfeld kann zu zusätzlichen Fourierkomponenten und damit zu Streuung höherer Ordnung führen. Die Schwierigkeit, Streuung höherer Ordnung von einfacher Doppelstreuung zu unterscheiden, kann mit Hilfe einer speziellen Technik, die in Abschnitt 2.3 beschrieben wird, bewältigt werden.

Wie oben bereits angedeutet sind die Wellenlängen der Helices im Realraum im Normalfall deutlich größer als atomare Abstände. So betragen die Längen bei allen in dieser Arbeit untersuchten Materialien einige hundert \AA , womit sich bei thermischen Neutronen relativ kleine Streuwinkel ergeben. Gleiches gilt für das Skyrmionengitter, das vergleichbare Dimensionen aufweist wie die magnetische Struktur in der helikalen Ordnung. Daher sind Instrumente für Kleinwinkel-Neutronenstreuung (SANS: small-angle neutron scattering)

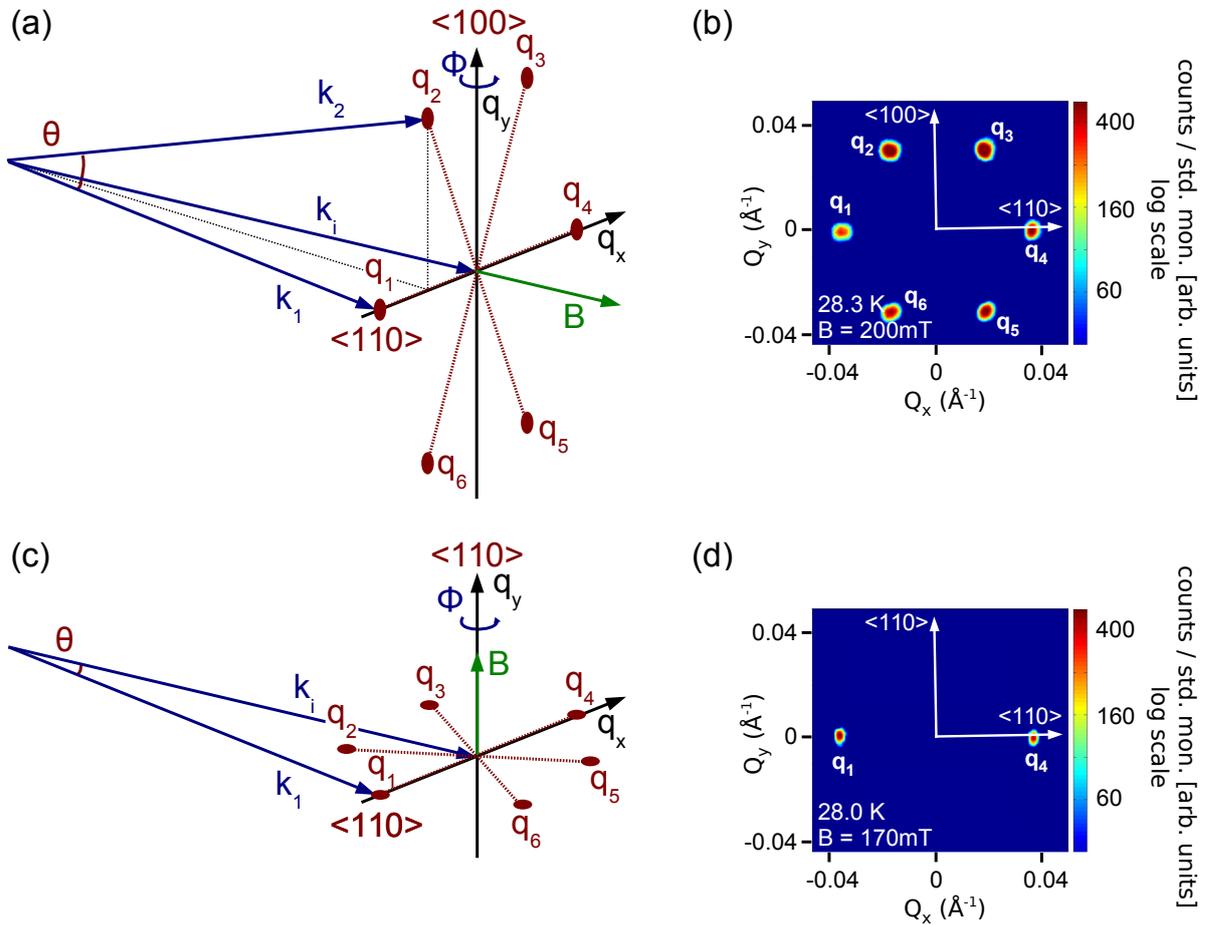


Abbildung 2.2: Bragg-Streuung von Neutronen Skyrmionengitter von MnSi. (a) In diesem Setup ist das Magnetfeld parallel zu dem einfallenden Neutronenstrahl \mathbf{k}_i ausgerichtet. Wie in Abschnitt 1.2 gezeigt lässt sich das Skyrmionengitter als multi- q -Struktur, bei der drei q -Vektoren $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3 = 0$ in erster Ordnung unabhängig von der Kristallorientierung senkrecht zu dem Magnetfeld gerichtet sind, darstellen. (b) Damit liegen alle drei q -Vektoren in der Streuebene und können nach Summation über einen Rocking-Scan als Funktion des Winkels Φ gemessen werden. Da unpolarisierte Neutronen unsensitiv auf die Chiralität der Helices sind, treten pro q -Vektor aufgrund der Strahlendivergenz immer zwei Satelliten-Peaks auf, und es ergibt sich so die vollständige sechszählige Symmetrie des Streubildes. In dem hier gezeigten Streubild handelt es sich um die A-Phase in MnSi bei $T = 28.3$ K und $B = 200$ mT. (c) Für ein Magnetfeld senkrecht zum Neutronenstrahl zeigen sich zwei Satellitenpeaks, die die Bragg-Bedingung erfüllen. (d) Dies führt zu einem Streubild mit zwei Peaks senkrecht zu dem externen angelegten Magnetfeld.

die geeignete Wahl zur Untersuchung solcher inkommensurabler magnetischen Strukturen. In einem typischen SANS-Setup werden die Satelliten-Peaks um den direkten Strahl bei $\mathbf{G} = \langle 000 \rangle$ gemessen.

2.2 Kleinwinkel-Neutronenstreuung

Kleinwinkel-Neutronenstreulinstrumente (SANS) sind auf die Untersuchung von Strukturen spezialisiert, die im Vergleich zu atomaren Dimensionen groß sind (1 - 100 nm). Typische Winkel bei SANS-Experimenten liegen zwischen 0.1° und 10° bei einer Winkelauflösung von bis zu 0.05° [128]. Für inkommensurable Spinstrukturen mit einigen 100 Å Länge wird eine möglichst große Wellenlänge der Neutronen und eine hohe Kollimation des Neutronenstrahls benötigt, um die resultierenden kleine Streuwinkel gut auflösen zu können.

2.2.1 Auflösung von SANS

Im Folgenden wird das Auflösungsvermögen von SANS-Anlagen entsprechend der Vorgehensweise von Pedersen [129] hergeleitet. Die Auflösung bei SANS-Anlagen ist dabei prinzipiell durch drei Faktoren begrenzt. Die drei Beiträge zu der Gesamtauflösung werden als voneinander unabhängig betrachtet und jeweils als Gauß-Funktion angenähert:

- die geometrisch optische Auflösung des Blendensystems
- die Wellenlängenunschärfe $\frac{\Delta\lambda}{\lambda}$
- die Ortsauflösung des Detektors

Wie in Abb. 2.3 (c) zu sehen ist, ist $\Delta\beta_1$ definiert als Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum) der Divergenz in der durch k_i und k_f aufgespannten Ebene und $\Delta\beta_2$ entsprechend als FWHM senkrecht zu dieser Ebene. Abb. 2.3 (a) und (c) zeigt den schematischen Aufbau eines typischen SANS-Blendensystems. Eine SANS-Anlage hat im Allgemeinen runde Blenden, die mit den Radien R_1 nach dem Selektor und dem Radius R_2 direkt vor der Probe beschrieben werden können. Die Blenden sind meist in einem festen Abstand L_1 zueinander montiert, während der Abstand L_2 vom Detektor zu der Probe variabel ist. Für $\Delta\beta_1$ und $\Delta\beta_2$ folgt [129]:

$$\begin{aligned} \Delta\beta_1 &= \frac{2R_1}{L_1} - \frac{1}{2} \frac{R_2^2 \cos^4(2\theta)}{R_1 L_2^2 L_1} \left(L_1 + \frac{L_2}{\cos^2(2\theta)} \right)^2 \quad \text{für } \alpha_1 \geq \alpha_2 \\ \Delta\beta_1 &= 2R_2 \left(\frac{1}{L_1} + \frac{\cos^2(2\theta)}{L_2} \right) - \frac{1}{2} \frac{R_1^2 L_2}{R_2^2 L_1 \cos^2(2\theta) (L_1 + L_2 / \cos^2(2\theta))} \quad \text{für } \alpha_1 < \alpha_2 \end{aligned} \quad (2.12)$$

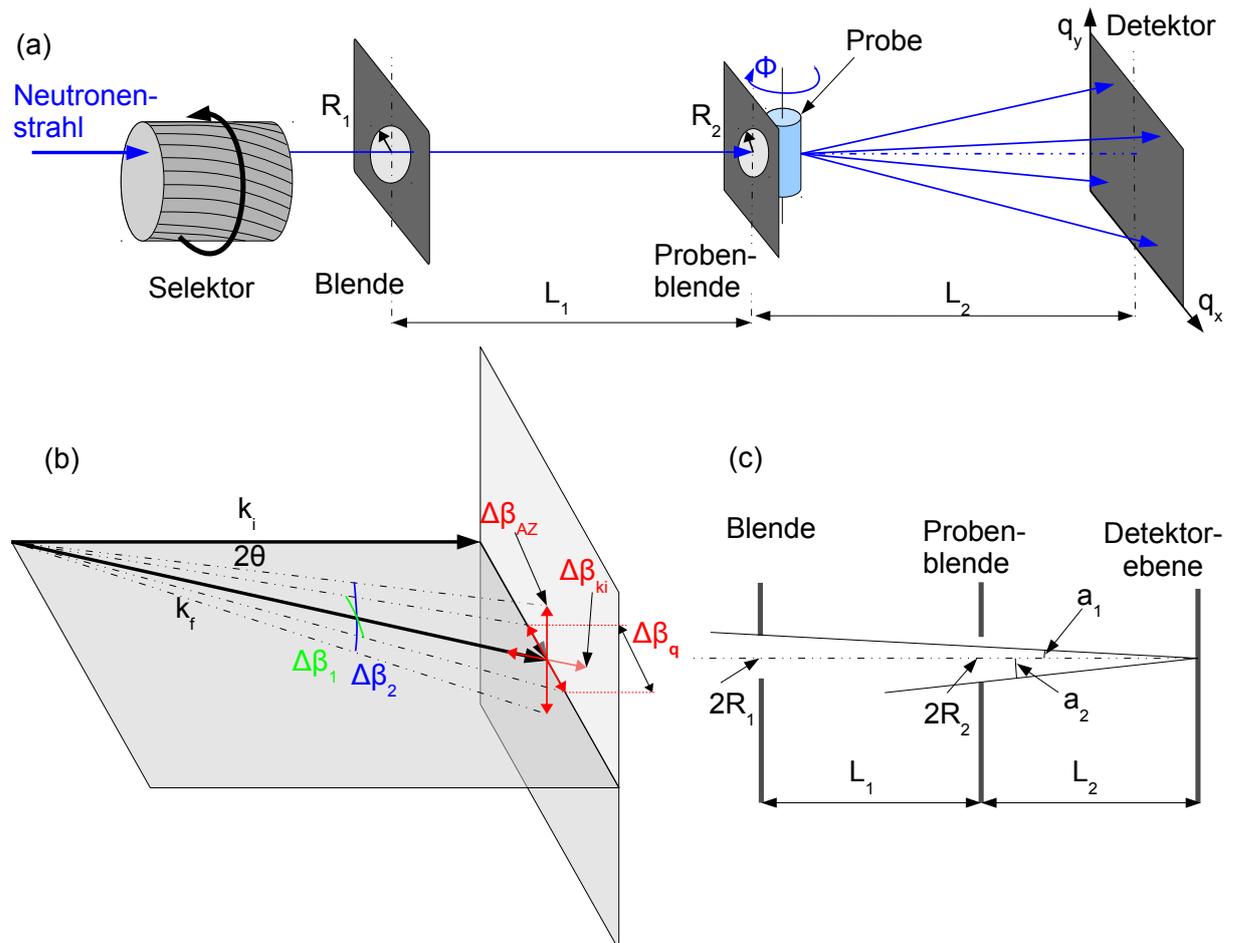


Abbildung 2.3: Schemazeichnung zu der Auflösung von SANS-Anlagen. (a) Schema einer SANS-Anlage mit zwei Lochblenden mit den Radien R_1 und R_2 zur Kollimation des Neutronenstrahls. (b) Direkter Strahl \mathbf{k}_i und gestreuter Strahl \mathbf{k}_f mit den Fehlern $\Delta\beta_1$ in der durch \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f aufgespannten Ebene und $\Delta\beta_2$ senkrecht dazu. (c) 2D-Schema der Blenden 1 und 2 mit den Winkeln α_1 und α_2 . Für die grafische Darstellung danke ich Sebastian Mühlbauer.

$$\begin{aligned}\Delta\beta_2 &= \frac{2R_1}{L_1} - \frac{1}{2} \frac{R_2^2 \cos^2(2\theta)}{R_1 L_2^2 L_1} \left(L_1 + \frac{L_2}{\cos(2\theta)} \right)^2 \quad \text{für } \alpha_1 \geq \alpha_2 \\ \Delta\beta_2 &= 2R_2 \left(\frac{1}{L_1} + \frac{\cos(2\theta)}{L_2} \right) - \frac{1}{2} \frac{R_1^2 L_2}{R_2^2 L_1 \cos(2\theta) (L_1 + L_2/\cos(2\theta))} \quad \text{für } \alpha_1 < \alpha_2\end{aligned}\tag{2.13}$$

mit den Winkeln α_1 und α_2 in Abb. 2.3 (b). Bei der Berechnung der Instrumentenauflösung wird die Dreiecks- oder Trapezfunktion der Divergenz mit einer Gauß-Funktion angenähert. Computersimulationen zeigen, dass diese Vereinfachung gute Ergebnisse liefert [129].

Die Wellenlängenunschärfe $U_\lambda = \frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ ist abhängig vom Selektor oder Monochromator. Dies resultiert direkt proportional in einer Winkelunschärfe mit dem Fehler:

$$\Delta\beta_\lambda = U_\lambda \cdot 2 \cdot \theta\tag{2.14}$$

wobei θ der Streuwinkel ist.

Der Fehler, der aus der Detektorauflösung ΔX resultiert, ist abhängig von dem Detektorabstand und ergibt einen Fehler von:

$$\Delta\beta_{\text{det}} = \arctan(\Delta X/L_2)\tag{2.15}$$

Die einzelnen Fehler ergeben am Ende mit Gauß'scher Fehlerfortpflanzung einen Gesamtfehler von:

$$\Delta\beta_{\text{sum}1/2} = \sqrt{\Delta\beta_{1/2}^2 + \Delta\beta_\lambda^2 + \Delta\beta_{\text{det}}^2}\tag{2.16}$$

In einem letzten Schritt ergibt sich mittels einfacher Geometrie aus $\Delta\beta_{\text{sum}1}$ der radiale Fehler $\Delta\beta_q$ in Å und aus $\Delta\beta_{\text{sum}2}$ der azimutale Fehler $\Delta\beta_{\text{azi}}$ in $^\circ$. $\Delta\beta_{\text{ki}}$ bezeichnet den Fehler in Richtung von \mathbf{k}_i . Er ist im Wesentlichen durch das Blendensystem bestimmt.

2.2.2 Das Kleinwinkel-Diffraktometer V4 am HZB

Das Kleinwinkel-Diffraktometer V4 am Helmholtz-Zentrum in Berlin (HZB) [130] ist eine dedizierte SANS-Anlage und verfügt über einen hohen Fluss von $2 \cdot 10^7 \frac{n}{\text{cm}^2}$ (bei $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 10\%$ und 2 m Kollimation). Es können Strukturen von 0.5 nm bis zu 400 nm aufgelöst werden. Damit ist das V4 ideal für die Untersuchung von helikalen magnetischen Strukturen geeignet. Das Instrument V4 wurde bei einigen Messungen aus dieser Arbeit genutzt (vgl. Ergebnisse in Abschnitt 3).

Parameter	Werte
Wellenlängenbereich	4.5 – 20 Å
Wellenlängen-Auflösung	8% – 18% FWHM
Monochromatischer Fluss	$2 \cdot 10^7 \frac{n}{s \cdot cm^2}$ (bei $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 10\%$ und 2 m Kollimation)
Messbare Längenskalen	0.5 nm - 400 nm
Polarisationsanalyse	SANSPOL-Option
Kollimation	Längen: 1 m, 2 m, 4 m, 8 m, 12 m, 16 m
Proben-Detektor-Abstand	1 m bis 16 m

Tabelle 2.1: Instrumentenparameter von V4 (HZB)

Das Instrument ist wie eine klassische Kleinwinkelanlage aufgebaut. Die Neutronen werden von dem Leiter NL 3A in die evakuierte, 16 m lange Kollimationsröhre geleitet, erreichen daraufhin den Probenbereich, um schließlich auf den 2D-Detektor in der ebenfalls evakuierten 16 m langen Detektorröhre zu treffen. Der monochromatische Neutronenstrahl wird mit Hilfe eines sich in der Kollimationsröhre befindenden Geschwindigkeitsselektors erzeugt. Der Selektor kann Wellenlängen im Bereich von $4.5 \text{ \AA} < \lambda < 20 \text{ \AA}$ mit einer Unschärfe von 8% – 18% FWHM auswählen. Eine Zusammenfassung der technischen Daten des Instruments V4 ist in Tabelle 2.1 gegeben.

Für die Messungen als Teil dieser Doktorarbeit wurden die Proben an einem Probenstab kontaktiert, der sich in einem mit flüssigem Stickstoff und Helium gekühlter Kryostaten [131] befand. Dies ermöglichte Messungen in einem Temperaturbereich von 3.5 – 300 K. Die Temperatur wurde durch ein Thermometer und einen Widerstandsheizter nahe der Probe geregelt. Da der Standardmagnet am Instrument nur Magnetfelder senkrecht zum Neutronenstrahl erlaubt, wurde ein Helmholtz-Spulenpaar vom Instrument MIRA 2.2.3 ausgeliehen und eingesetzt. Mit diesem Magnet konnten Felder parallel zum Strahl bei Feldstärken bis zu 450 mT erzeugt werden.

2.2.3 Das Instrument MIRA am MLZ

Weitere Messungen als Teil dieser Arbeit wurden an dem Diffraktometer MIRA (vgl. Abb. 2.4) an der Forschungs-Neutronenquelle Heinz-Maier-Leibnitz (FRM II) durchgeführt [132]. MIRA ist an den kalten Neutronenleiter NL6b in der Neutronenleiterhalle des FRM II angeschlossen. Da das Instrument modular aufgebaut ist, kann die Konfiguration schnell und einfach umgebaut werden. MIRA eignet sich daher ideal als Testplattform für neue Experimente. Es bietet eine Vielzahl von verschiedenen Messoptionen wie z.B. [133] polarisierte und unpolarisierte Reflektometrie, polarisierte und unpolarisierte SANS, klassisches NRSE (Neutron Resonance Spin Echo) und MIEZE (Modulated Intensity by Zero Effort) [134] und 3D-Polarisationsanalyse mit Hilfe von μ PAD [135]. In den Experimenten dieser Arbeit wurde MIRA als Kleinwinkel-Einkristall-Diffraktometer genutzt.

Der Neutronenleiter am MIRA liefert kalte Neutronen mit einer minimalen Wellenlänge $\lambda_{\min} = 8 \text{ \AA}$. Mit Hilfe eines Multischicht-Monochromators (vgl. Abb. 2.4 (a)) können Wellenlängen im Bereich von $\lambda_{\min} = 8 \text{ \AA}$ bis 30 \AA selektiert werden. Dabei erreicht das Instrument eine Wellenlängenunschärfe von $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx 5\%$. Als Detektor (vgl. Abb. 2.4 (a)) dienen entweder ein Einzel- ^3He -Zählrohr oder ein zweidimensionaler positionsempfindlicher ^3He -Detektor (PSD). Das Auflösungsvermögen des PSD beträgt horizontal 1 mm und vertikal 2 mm.

Der Probenstisch (vgl. Abb. 2.4 (b) und (c)) ist mit Hilfe von einem dreidimensionalen Goniometer in alle Richtungen kippbar und schiebbar. Um Rocking-Scans durchführen zu können, ist der gesamte Tisch zusammen mit den Magnetspulen um die vertikale Achse drehbar. Zwei rechteckige automatisch verstellbare Blenden sind in einem Abstand von etwa 1.5 Metern nach dem Monochromator und direkt vor der Probe für die Kollimation des Neutronenstrahls angebracht. Alle Systeme sind mit der Instrumentensoftware komplett steuerbar. Tabelle 2.2 gibt einen Überblick über alle wichtigen Instrumentenparameter.

Als Probenumgebung dient ein kryogenfreier Probenrohr-Kryostat (CCR: closed cycle refrigerator cryostat) [136], der mittels Pulsröhrenkühler gekühlt wird. Die thermische Kopplung der an dem Probenstab montierten Probe an das Kühlsystem wird durch Niederdruck- ^4He -Austauschgas gewährleistet. Die Proben temperatur wird durch Widerstandsthermometer und einen Widerstandsheizler nahe der Probe reguliert. Es stehen zwei Typen von Probenstäben zur Verfügung, einmal mit fester Achse und einmal ein Drehprobenstab mit drehbarer Achse. Mit Hilfe des Drehprobenstabs kann die eingebaute Probe im Kryostaten um die vertikale Probenstabachse um 360° auf 1° genau mittels Motor gedreht werden. Auf diese Weise ist es möglich, Skript-gesteuert Messungen bei vielen verschiedenen Kristallorientierungen durchzuführen. Mit diesem Aufbau kann, je nach Temperaturbereich und Probenstab, eine Temperaturstabilität von $T \pm 0.01 \text{ K}$, im Optimalfall bis zu $T \pm 0.001 \text{ K}$ erreicht werden. Die tiefste erreichbare Temperatur dieses Standardaufbaus liegt bei etwa $T = 3.5 \text{ K}$. Abb. 2.4 (b) zeigt den Kryostaten auf dem Probenstisch mit dem Pulsröhrenkühler.

Das Magnetfeld am Probenort wird durch ein wassergekühltes Helmholtz-Spulenpaar [137] bei einer maximalen Feldstärke von 450 mT erzeugt. Wie in Abb. 2.5 (b) und (c) schematisch gezeigt kann das Spulenpaar sowohl senkrecht als auch parallel zu dem Neutronenstrahl ausgerichtet werden. Dies ist insbesondere für die Messung des Skyrmionengitters entscheidend, da nur mit einem Magnetfeld parallel zum Neutronenstrahl die komplette sechszählige Struktur bestimmt werden kann (vgl. Abschnitt 2.1.2). Die Kalibrierung des Magnetfeldes erfolgt durch eine Hallsonde. Innerhalb von einigen Zentimetern im Probenbereich ist das Feld auf $\pm 1 \text{ mT}$ homogen.

Der dominierende Faktor der Instrumentenaufösung an MIRA ist die Divergenz des Neutronenstrahls. Für die Umrechnung der quadratischen Blenden auf runde Blenden kann folgender Zusammenhang angewendet werden: $R_{1/2} = \sqrt{l_{1/2}^2/\pi}$ mit den Blendenkantelängen $l_{1/2}$.

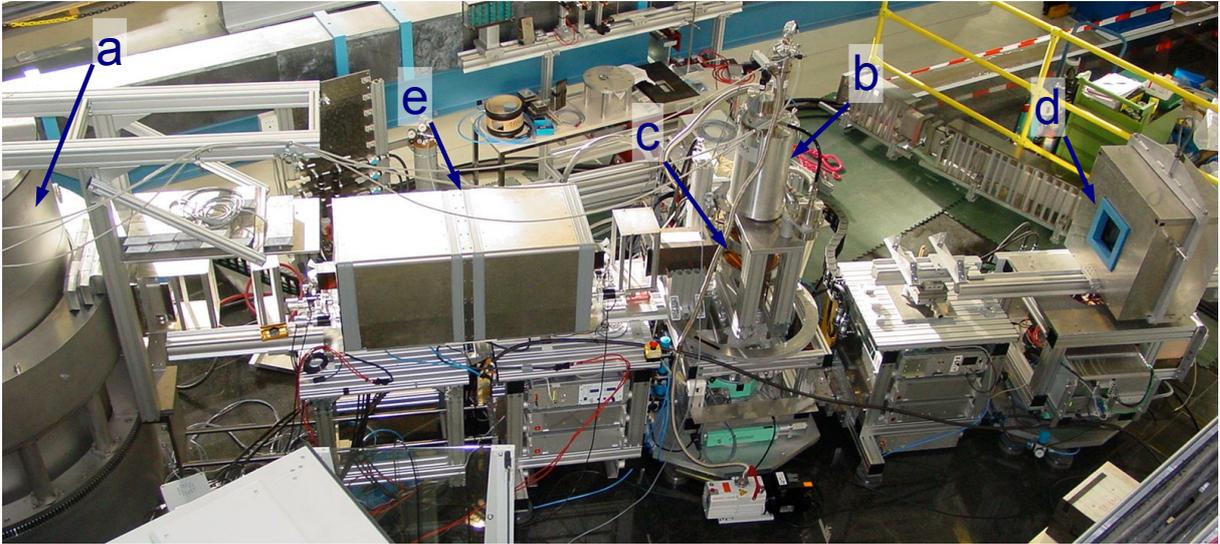


Abbildung 2.4: Illustration des Instruments MIRA. (a) Burg 1 von MIRA mit Multischicht-Monochromator. (b) Pulsröhrenkühler mit Probenrohr. (c) Wassergekühltes Helmholtz-Spulenpaar mit Probenrohr. (d) Zweidimensionaler positionsempfindlicher ^3He -Detektor (PSD). (e) In der gezeigten Abbildung ist zudem das MIEZE System montiert.

Parameter	Werte
Wellenlängenbereich	8 – 30 Å
monochromatischer Fluss	$4 \cdot 10^5 \frac{n}{\text{s} \cdot \text{cm}^2}$ bei 10 Å
messbarer Impulsübertrag	$0.002 \text{ Å}^{-1} < q < 1.0 \text{ Å}^{-1}$
größte messbare Längenskalen	$0.4 \cdot 10^{-6} \text{m}$
Winkelauflösung	0.05°
Temperaturbereich	180 mK - 2000 K
Magnetfeld	$B < 0.5 \text{ T}$ horizontal oder vertikal
Polarisationsanalyse	Multischicht BENDER, ^3He Spin Filter, μPad
Detektor	200 mm x 200 mm PSD Auflösung: 1 mm x 2 mm (horizontal, vertikal) Einzel- ^3He -Zählrohr.

Tabelle 2.2: Instrumentenparameter von MIRA-1 am FRM II [132]

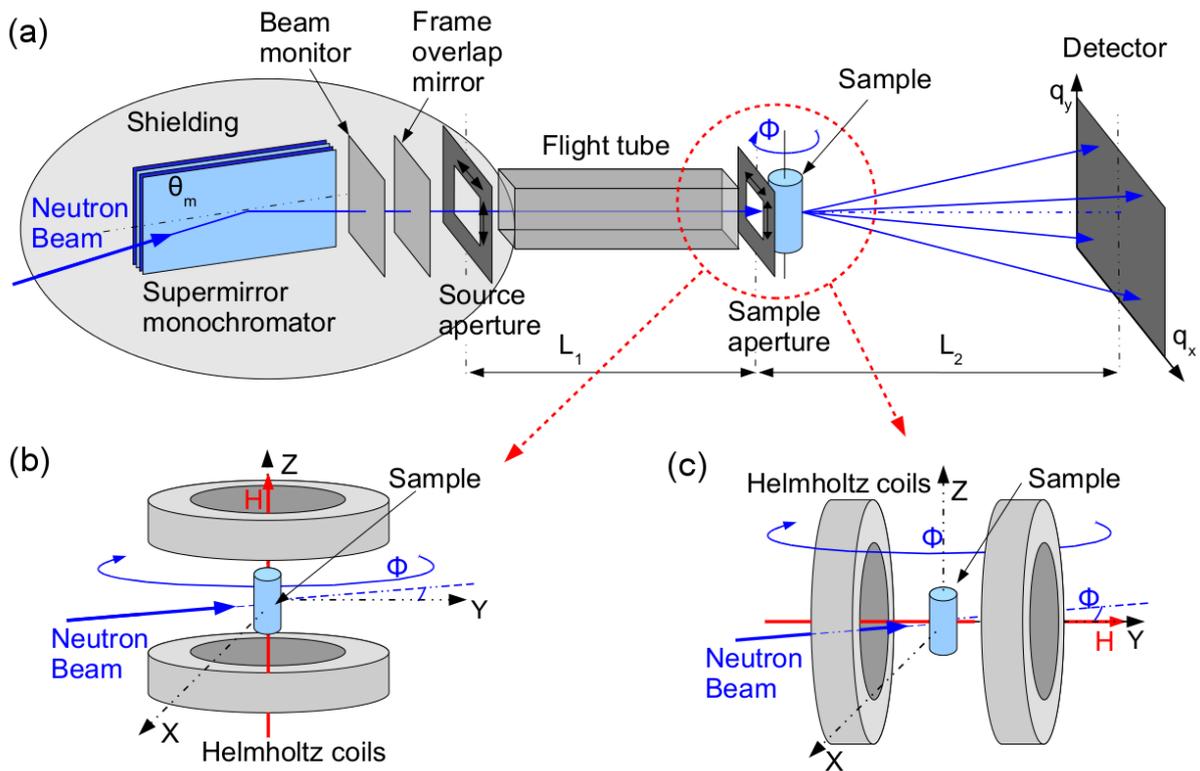


Abbildung 2.5: Schematischer Aufbau des Instrumentes MIRA. (a) Die Wellenlänge des einfallenden Neutronenstrahls wird an einem Multischicht-Monochromator selektiert. Das rechteckige Blendensystem mit den Blenden nach dem Monochromator und direkt vor der Probe in dem Abstand $L_1 = 1.5$ m sorgt für die Kollimation des Strahls. Der Probentisch mit der Probenumgebung, der Probe und den Magnetspulen ist um den Winkel Φ um eine vertikale Achse drehbar. Die gestreuten Neutronen werden mit einem zweidimensionalen positionsempfindlichen ^3He -Detektor (PSD) gemessen. (b) Schematischer Aufbau mit dem Helmholtz-Spulenpaar senkrecht zu dem Neutronenstrahl orientiert. (c) Schematischer Aufbau mit dem Helmholtz-Spulenpaar parallel zu dem Neutronenstrahl orientiert. Für die Grafik danke ich Sebastian Mühlbauer [138].

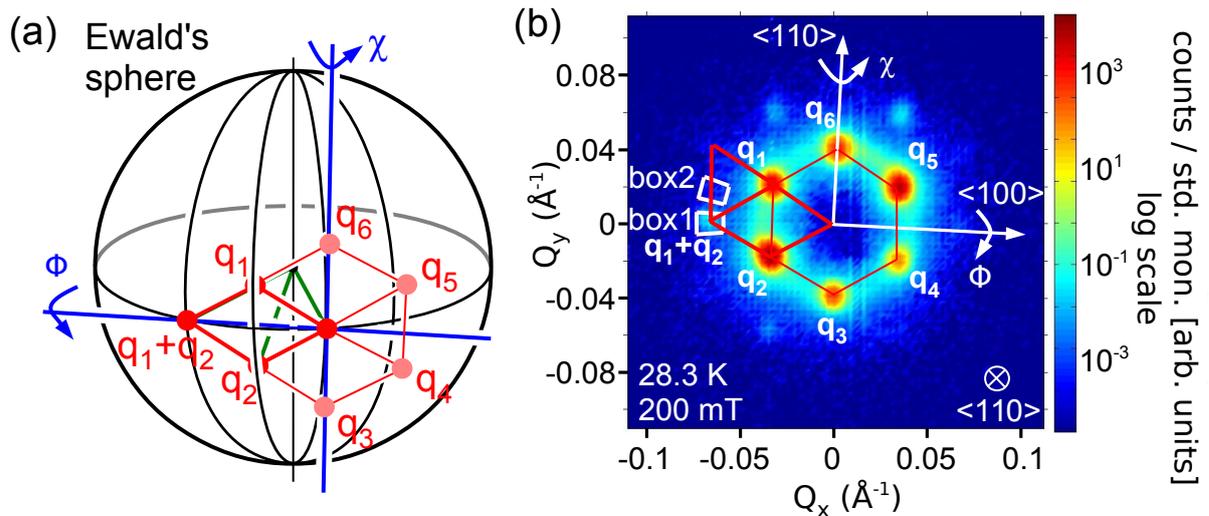


Abbildung 2.6: Illustration sogenannter Renninger-Scans zum Nachweis von Streuung an höherer Ordnung. (a) Der Renninger-Scan in der Ewaldkonstruktion. (b) Typisches Streubild in der Skyrmionenphase in MnSi nach Summation über alle Rockingwinkel ϕ und Subtraktion des Hintergrundes, gemessen bei hoher Temperatur über T_c . Abb. aus Ref. [8].

Der monochromatische Fluss und die Auflösung des Instruments MIRA reicht für einige Experimente nicht aus. Deshalb wurden einige Untersuchungen an der SANS-Anlage V4 in Berlin durchgeführt (vgl. Abschnitt oben 2.2.2).

2.3 Renninger-Scan

Im Ergebnisteil in Abschnitt 3 wird das Auftreten von Streuung höherer Ordnung an der magnetischen Struktur von MnSi untersucht. Eine entscheidende Herausforderung bei dieser Messung ist somit die Diskriminierung der Streuung höherer Ordnung gegenüber ebenfalls auftretender Doppelstreuung. Eine geeignete Methode dazu stellt der sogenannte Renninger-Scan dar [122]. Zur Illustration ist in Teilbild (a) Abb. 2.6 die Ewaldkugel mit den sechs bei dem Skyrmionengitter auftretenden Satelliten-Bragg-Peaks q_1 bis q_6 skizziert. In Teilbild (b) ist das zugehörige Detektor-Streubild abgebildet. An den Positionen $q_1 + q_2$ bzw. $q_2 + q_3$ etc. tritt ein zusätzliches schwaches Signal auf, das sich aus dem Prozess der Doppelstreuung und, wie im Ergebnisteil gezeigt wird, Streuung höherer Ordnung zusammensetzt.

Der Renninger-Scan besteht aus zwei Schritten. Im ersten Schritt wird die Probe in einem Rocking-Scan um die vertikale Achse χ in der Art gedreht, dass sich der Vektor $q_1 + q_2$ mit der Ewaldkugel deckt und damit die Streubedingung erfüllt ist. Es wird an dieser Stelle am Detektor maximale Intensität beobachtet. In einem zweiten Rocking-Scan um die horizontale Achse wird die Intensität an der Stelle $q_1 + q_2$ als Funktion von dem Winkel ϕ aufgezeichnet.

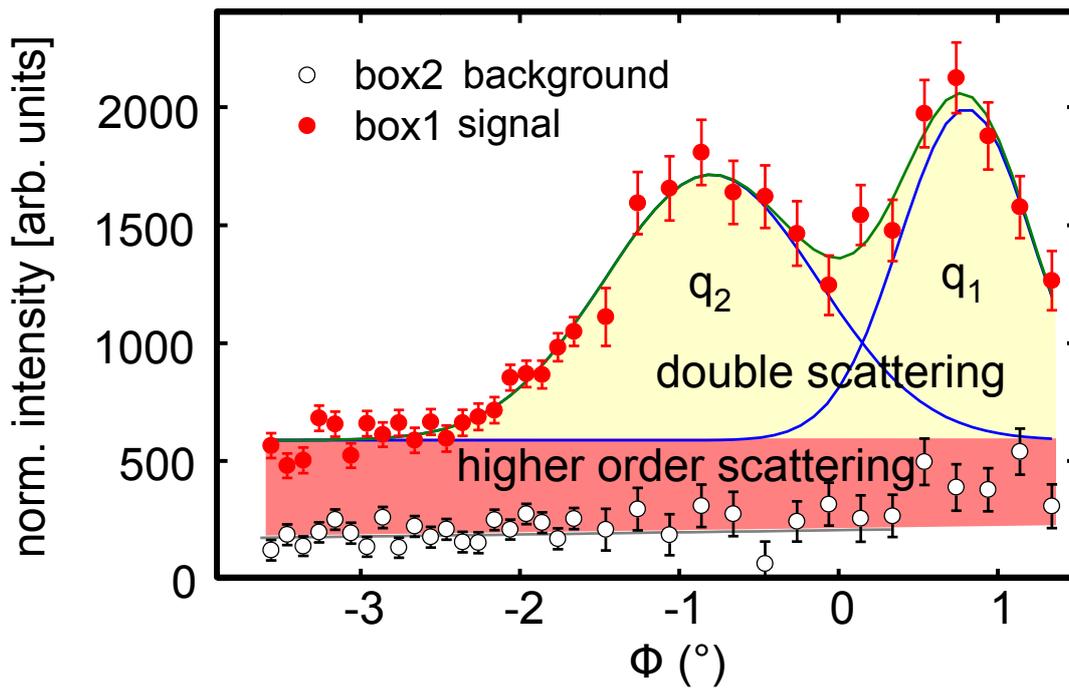


Abbildung 2.7: Intensitäten als Funktion des Rockingwinkels ϕ in einem typischen Renninger-Scan. Die Intensitäten ergeben sich durch Integration über die Box 1 bzw. Box 2 aus Abb. 2.6 (b). Abb. aus Ref. [8].

Die roten Datenpunkte in Abb. 2.7 stellen einen typischen Renninger-Scan dar. Sie geben die Integration über die Intensität in dem Bereich des Detektors von der Box 1 in Abb. 2.6 (b) an. Zum Vergleich dienen die schwarzen Datenpunkte, die den Untergrund in der Box 2 knapp oberhalb von Box 1 angeben. Wie dem Plot entnommen werden kann, setzt sich das Signal aus zwei Gauß-Kurven und einem konstanten Beitrag oberhalb des Untergrundes zusammen. Die zwei Gauß-Kurven lassen sich dadurch erklären, dass jeweils die Bragg-Peaks erste Ordnung q_1 bzw. q_2 während des Renninger-Scans durch die Ewaldkugel tauchen und damit zu maximaler Doppelstreuung beitragen. Die gelbe gefittete Fläche korrespondiert also mit der unerwünschten Doppelstreuung. Für große Winkel ϕ wird die Doppelstreuung aus der Streubedingung “herausgedreht“, während die Streuung höherer Ordnung weiterhin die Streubedingung erfüllt. Es bleibt ein konstanter Beitrag an Streuung über dem Untergrund, der die Streuung höherer Ordnung eindeutig belegt (vgl. rote Fläche).

Kapitel 3

Topologie des Skymionengitters in MnSi

Experimentell zeigt sich in der Neutronenstreuung für die A-Phase von MnSi ein sechszähliges Streubild. Die sechszählige Symmetrie alleine ist noch kein eindeutiger Beweis für die Existenz des Skymionengitters, da sie nicht erlaubt, zwischen single-k multi-Domänen Zuständen und einem single-Domänen multi-q-Zustand zu unterscheiden. Erst der Nachweis der nicht-trivialen Topologie bestätigt die Bildung eines Skymionengitters zweifelsfrei.

In den im Folgenden zusammengefassten Messungen gelang es, mittels sogenannter Renninger-Scans (vgl. Abschnitt 2.3) [122] parasitäre Doppelstreuung zu vermeiden und so die Neutronenstreuung höherer Ordnung der A-Phase in MnSi nachzuweisen. Die Magnetfeld- und Temperaturabhängigkeit dieser schwachen Streuung höherer Ordnung lässt sich quantitativ auf einen Interferenzeffekt zurückführen und bietet ein Verständnis von der genauen lokalen Magnetisierung des Skymionengitters in der A-Phase von MnSi. Damit gelang ein direkter mikroskopischer Beweis für die topologisch nicht-triviale magnetische Struktur des Skymionengitters in der A-Phase von MnSi [8].

Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse und die Methoden der Messung dargestellt. Im ersten Abschnitt 3.1 wird auf parasitäre Effekte in der Neutronenstreuung eingegangen. Durch geeignete Probenform und gute Kollimation des Neutronenstrahls können diese auch für das Skymionengitter in der A-Phase minimiert werden. Anschließend werden erste Testmessungen der Streuung höherer Ordnung am Skymionengitter präsentiert (vgl. Abschnitt 3.2), aber erst mit Hilfe der speziellen Methode des Renninger-Scans kann diese zweifelsfrei nachgewiesen und quantitativ bestimmt werden (vgl. Abschnitt 3.3). Die Ergebnisse werden in Abschnitt 3.4 diskutiert und theoretisch eingeordnet. Es zeigt sich eine halbquantitative Übereinstimmung von Experiment und Theorie, eine vollständige quantitative Betrachtung ist aufgrund von experimentellen Unsicherheiten nicht möglich.

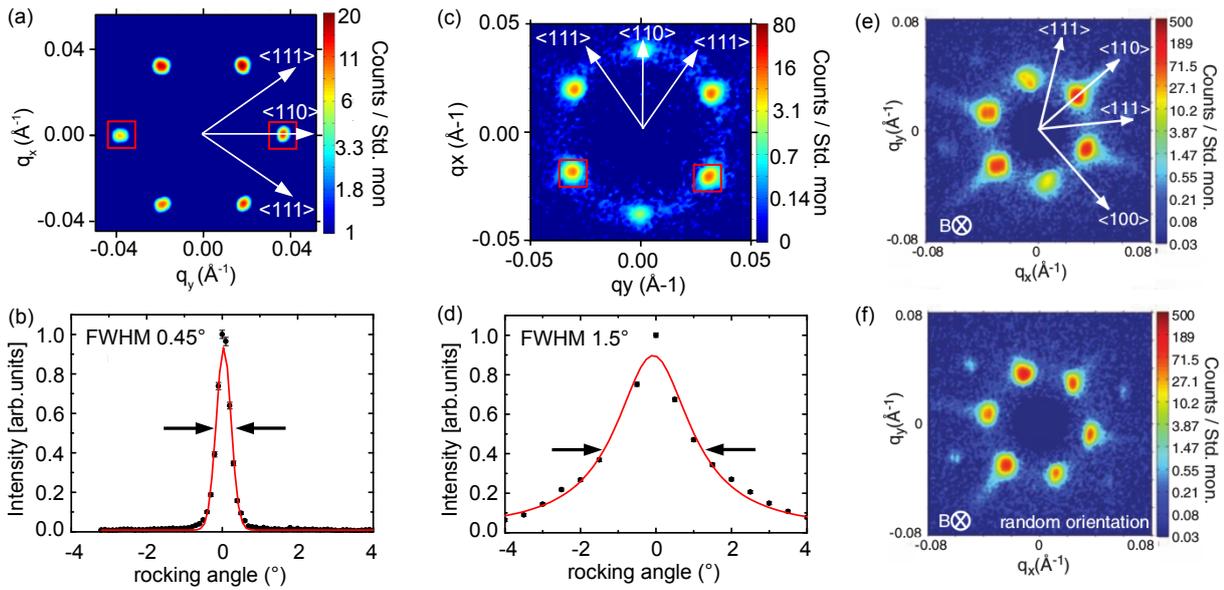


Abbildung 3.1: Typische SANS-Daten in der A-Phase von MnSi. (a) Summation über die Streubilder eines hochauflösenden Rockingscans in der A-Phase für eine dünne Probe (Probe A) bei $B = 200$ mT. (b) Hochauflösende Rockingkurve der Daten aus (a) mit scharfem Lorentzförmigen Funktionsverlauf. (c) Summe über Streubilder eines Rocking-Scans in der A-Phase. (d) Zugehöriger Intensitätsverlauf als Funktion des Rockingwinkels zeigt eine relativ breite Verteilung. (e) Streubild in der A-Phase für $\vec{B} \parallel \langle 110 \rangle$ mit schwachen, radial nach außen abfallenden Intensitätsstreifen. (f) Auch für eine zufällige Orientierung zeigt das Streubild in der A-Phase diese streifenförmigen Artefakte. Die Bilder aus (c-f) zeigen Daten aus Mühlbauer et al. [1]. Abb. aus Ref. [1, 8].

3.1 Experimentelle Minimierung parasitärer Effekte

Die ersten experimentellen Untersuchungen der A-Phase in MnSi zeigten unmittelbar, dass die magnetische Struktur nur sehr schwach an das atomare Gitter gekoppelt ist und in erster Näherung der Richtung des angelegten Magnetfeldes folgt. Es ist deshalb sofort klar, dass für hochauflösende Rocking-Scans innerhalb der Probe absolute homogene magnetische Felder vorliegen müssen. Störende anisotrope Entmagnetisierungseffekte können durch die Wahl einer geeigneten Form der Probe minimiert werden.

Für die Messung der Streuung höherer Ordnung wurden daher zwei Scheiben des gleichen MnSi-Einkristalls mit $14 \times 9 \times 1.4$ mm³ (Probe A) und $12 \times 7 \times 1.0$ mm³ (Probe B) präpariert. Die kristalline Achse $\langle 110 \rangle$ lag dabei jeweils normal zu der Probenfläche. Messungen der spezifischen Wärme und des elektrischen Widerstandes der MnSi-Kristalle waren in exzellenter Übereinstimmung mit der Literatur und wiesen ein gutes Restwiderstandsverhältnis von 100 auf. Die kristalline Mosaizität betrug etwa 0.15° . Die Probenscheibe wurde mittels Röntgen-Laue vor-orientiert ($\pm 3^\circ$) und dann an der SANS-Anlage mit Hilfe der helikalen Peaks in den $\langle 111 \rangle$ Kristallrichtungen exakt im Kryostat orientiert ($\pm 0.1^\circ$). Die dünne Probenscheibe wurde nur in der Mitte von dem Neutronenstrahl durchleucht-

tet, um ein in Richtung und Stärke homogenes Magnetfeld in der Probe zu erhalten und parasitäre Doppelstreuung zu minimieren.

Das Instrument MIRA am FRM II wurde bei dieser Messung auf gute Auflösung, also hohe Kollimation, ausgelegt. Der Monochromator lieferte dabei Neutronen mit einer Wellenlänge von $\lambda = 11.5 \text{ \AA}$ und einer Wellenlängenunschärfe von $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \approx 0.05$. Die Blendenöffnung direkt nach dem Monochromator betrug $4 \times 4 \text{ mm}^2$. Die zweite Blende in dem Abstand $L_1 = 1.5 \text{ m}$ zur ersten Blende hatte eine quadratische Öffnung von $3 \times 3 \text{ mm}^2$. Der Abstand des Detektors von der Probe betrug $L_2 = 1.1 \text{ m}$. Zusammengefasst ergibt sich aus diesem Instrumentenaufbau (vgl. Abschnitt 2.2.1) in azimuthaler Richtung eine Auflösung von $\Delta\beta_{\text{az}} = 4^\circ$, in radialer $|\mathbf{q}|$ Richtung $\Delta\beta_q = 0.004 \text{ \AA}^{-1}$ und senkrecht zu $|\mathbf{q}|$ in Richtung von \mathbf{k}_f eine Auflösung von $\Delta\beta_{k_f} = 0.35^\circ$.

Die unter diesen Voraussetzungen durchgeführten Messungen des Skymionengitters mit der Probe A ergeben hochauflösende Rockingkurven. In Abb. 3.1 (a) ist die Summation über alle Streubilder eines Rocking-Scan dargestellt. Das Streubild zeigt sechs scharfe Reflexe ohne störende Artefakte. Eine Auswertung des Rocking-Scans ist in Teilbild (b) gezeigt. Es ist die Integration über die Intensität eines Peaks als Funktion des Rockingwinkels aufgetragen. Die Daten können mit einer Lorentz-Kurve gefittet werden, woraus eine Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 0.45^\circ$, nahe der Auflösungsgrenze von 0.35° des Instruments MIRA, resultiert. Über die Breite der Rockingkurven kann mit folgender Beziehung die Korrelationslänge ξ der untersuchten Struktur hergeleitet werden [54]:

$$\frac{d\sigma(q)}{d\Omega} \propto \frac{1}{q^2 + (1/\xi)^2} \quad (3.1)$$

Damit ergibt sich eine Korrelationslänge des hier untersuchten Skymionengitters von etwa $\xi = 100 \text{ \mu m}$. Vergleichbare Untersuchungen der helikalen Phase in MnSi ergeben Rocking-Scans mit einer Breite von etwa $\text{FWHM} = 1.6^\circ$ und einer daraus resultierenden Korrelationslänge von etwa $\xi = 1 \text{ \mu m}$ [75, 113]. Das Skymionengitter stellt somit ein hoch geordnetes System dar, und die Korrelationslänge übertrifft die der helikalen Phase um zwei Größenordnungen.

Die Teilbilder (c-f) aus Abb. 3.1 zeigen Daten aus einer älteren Publikation von Mühlbauer et al. [1]. Damals wurde das Skymionengitter erstmals mit Hilfe von Kleinwinkel-Neutronenstreuung experimentell nachgewiesen. Teilbild (c) zeigt das Summenstreubild eines Rocking-Scans und Teilbild (d) die zugehörige Rockingkurve. Die Rockingbreite beträgt in diesen Messungen etwa 1.5° und ist vergleichbar mit der der helikalen Phase.

In den Teilbildern (e-f) sind weitere Summen von Rocking-Scans der Skymionengitter-Phase aus Ref. [1] dargestellt, einmal für eine Kristallorientierung $\vec{B} \parallel \langle 110 \rangle$ und einmal für eine zufällige Orientierung der Probe. Verglichen mit dem Streubild der aktuellen Messung aus Teilbild (a) fällt zunächst auf, dass die sechs Peaks deutlich breiter sind. Das liegt offensichtlich an der eingesetzten Kollimation der Blenden am SANS-Instrument. Zusätzlich sind deutlich sichtbare Reflexe von Doppelstreuung bei $\mathbf{q}_i + \mathbf{q}_j$ zu erkennen.

Ausgehend von den sechs Hauptreflexen treten schwache Intensitäten von radial nach außen verlaufender, exponentiell abfallender Streifen auf. Diese Artefakte machen nur 1% der Gesamtintensität der Streubilder aus, können aber mit dem klassischen Modell des Skyrmionengitters nicht erklärt werden. Es kam bei Mühlbauer et al. zudem zu einer Phasenkoexistenz zwischen der Skyrmionengitter-Phase und der konischen Phase, die nicht hinreichend erklärt werden konnte.

Die neuen Messungen des Skyrmionengitters zeigen, dass sich mit geeigneter Probenform und Kollimation des Neutronenstrahls die Artefakte beseitigen lassen. Es ergeben sich scharfe Rockingkurven, die darauf schließen lassen, dass das Skyrmionengitter eine hervorragend und langreichweitig geordnete magnetische Spinstruktur darstellt. Die neuen Messungen stellen damit einen deutlichen Qualitätsgewinn zu denen der ersten Publikation aus dem Jahr 2009 von Mühlbauer et al. [1] dar. Außerdem diente das Experiment an dem Instrument MIRA als Vorbereitung auf die folgenden Messungen der Streuung höherer Ordnung am Instrument V4 in Berlin. Hochauflösende Rocking-Scans sind die Grundvoraussetzung für die erfolgreiche Durchführung der Renninger-Scans, die zu dem Nachweis von Streuung höherer Ordnung dienen.

3.2 Nachweis von Streuung höherer Ordnung

Die im Folgenden beschriebene Suche nach Streuung höherer Ordnung wurde an dem Instrument V4 am HZB durchgeführt. Im Vergleich zu MIRA am FRM II bietet das Instrument V4 einen um zwei Größenordnungen höheren Neutronenfluss. Damit war es möglich, die schwachen Bragg-Peaks höherer Ordnung zu messen. Typische Daten der Messungen am V4 sind in Abb. 3.2 zusammengefasst. Die Streubilder in der linken Spalte zeigen jeweils die Summe von Rocking-Scans an MnSi in der A-Phase. Für die weitere Auswertung wird über die in rot eingezeichneten Sektorboxen integriert. Für die Streuvektoren \mathbf{q}_2 und \mathbf{q}_5 ergibt sich in Rocking-Scans der in Abb. 3.2 (b) gezeigte typische Verlauf der Intensität als Funktion des Rockingwinkels. In den Teilbildern (c) und (d) sind analog die Intensitäten für $\mathbf{q}_3 + \mathbf{q}_4$ bzw. $\mathbf{q}_6 + \mathbf{q}_1$ dargestellt, die deutliche Peaks aufweisen. Dagegen werden im Streubild (e) innerhalb der Boxen $2 \times \mathbf{q}_1$ und $2 \times \mathbf{q}_4$ keine Maxima beobachtet. Erst die Integration über die Sektorboxen als Funktion des Rockingwinkels führt zu schwachen Maxima (vgl. Teilbild (f)).

Zusammengefasst zeigen die Daten, dass deutliche bzw. schwache Korrelationen bei $\mathbf{q}_n + \mathbf{q}_m$ bzw. $2 \times \mathbf{q}_n$ auftreten. Ungeklärt bleibt in diesen einfachen Rocking-Scans der Ursprung der Korrelationen. Es liegt nahe, dass diese nicht ausschließlich durch Streuung höherer Ordnung verursacht werden. So führt Mehrfachstreuung, die zweimalige Bragg-Streuung eines Neutrons an \mathbf{q}_n , ebenfalls zu einer erhöhten Intensität bei $\mathbf{q}_n + \mathbf{q}_m$ bzw. $2 \times \mathbf{q}_n$. Dabei lässt sich mit einfachen Rocking-Scans nicht zwischen Streuung höherer Ordnung und Doppelstreuung unterscheiden. Um Streuung höherer Ordnung nachzuweisen und um diese quantitativ zu bestimmen, ist die spezielle Technik des Renninger-Scans notwendig (vgl. Abschnitt 2.3).

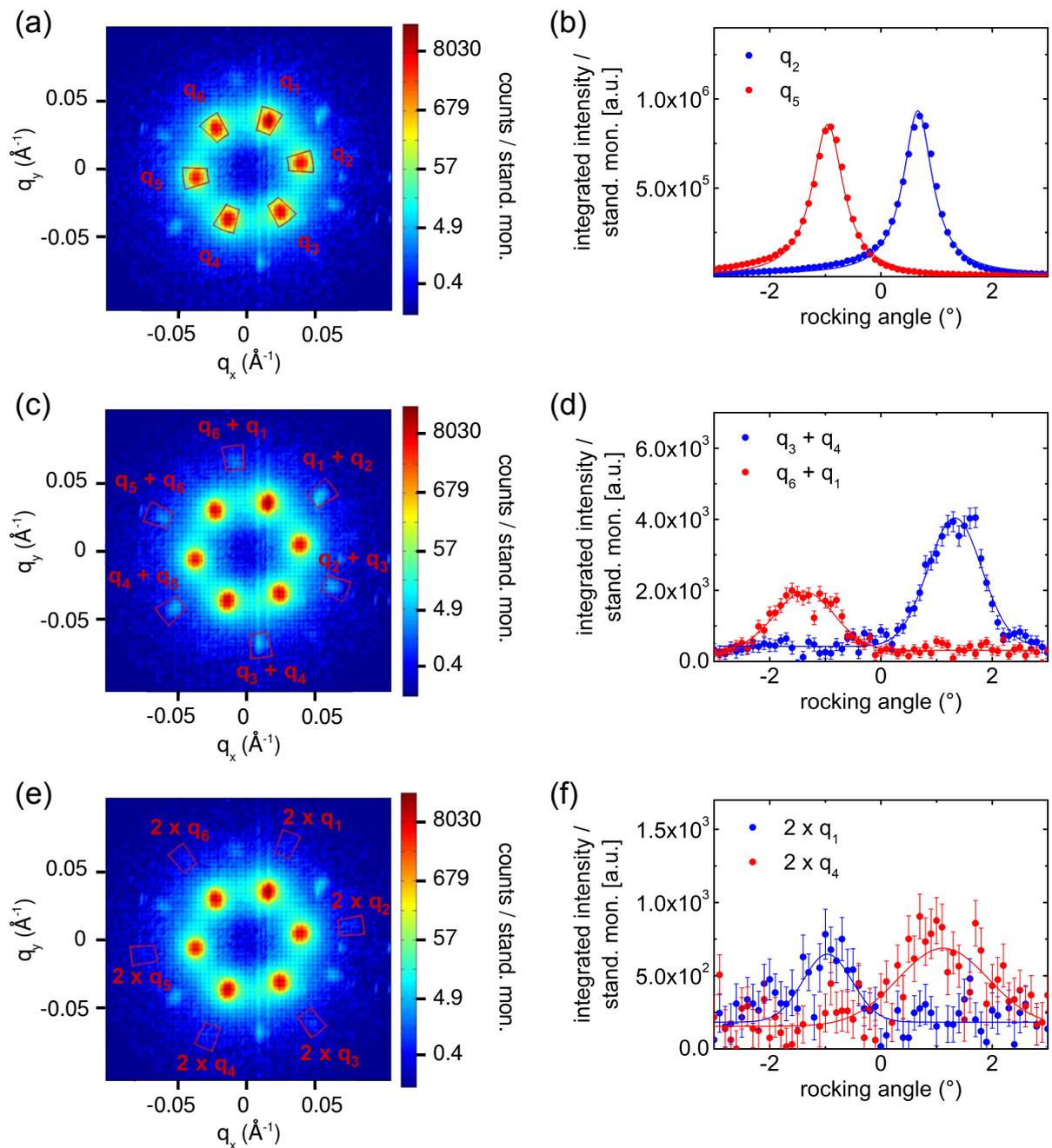


Abbildung 3.2: Summenstreubilder und Intensitätsverlauf von Rocking-Scans in der A-Phase von MnSi. Die linken Teilbilder (a), (c) und (e) zeigen jeweils die Summe der Neutronenstreubilder eines Rocking-Scans. Aus den roten Boxen, die den Integrationsbereich definieren, ergeben sich die Intensitätsdiagramme der rechten Teilbilder (b, d, f). (b) Die Intensität als Funktion des Rockingwinkels der ersten Ordnung bei \mathbf{q}_2 und \mathbf{q}_5 aus Teilbild (a) zeigt einen für Rocking-Scans typischen Verlauf. Die Daten sind mit einer Lorentz-Kurve gefittet. (d) In der Intensitätsverteilung für $\mathbf{q}_3 + \mathbf{q}_4$ und $\mathbf{q}_6 + \mathbf{q}_1$ aus Teilbild (c) sind noch klare Maxima erkennbar. (f) Die Maxima bei $2 \times \mathbf{q}_1$ und $2 \times \mathbf{q}_4$ aus Teilbild (e) sind nur noch sehr schwach ausgeprägt.

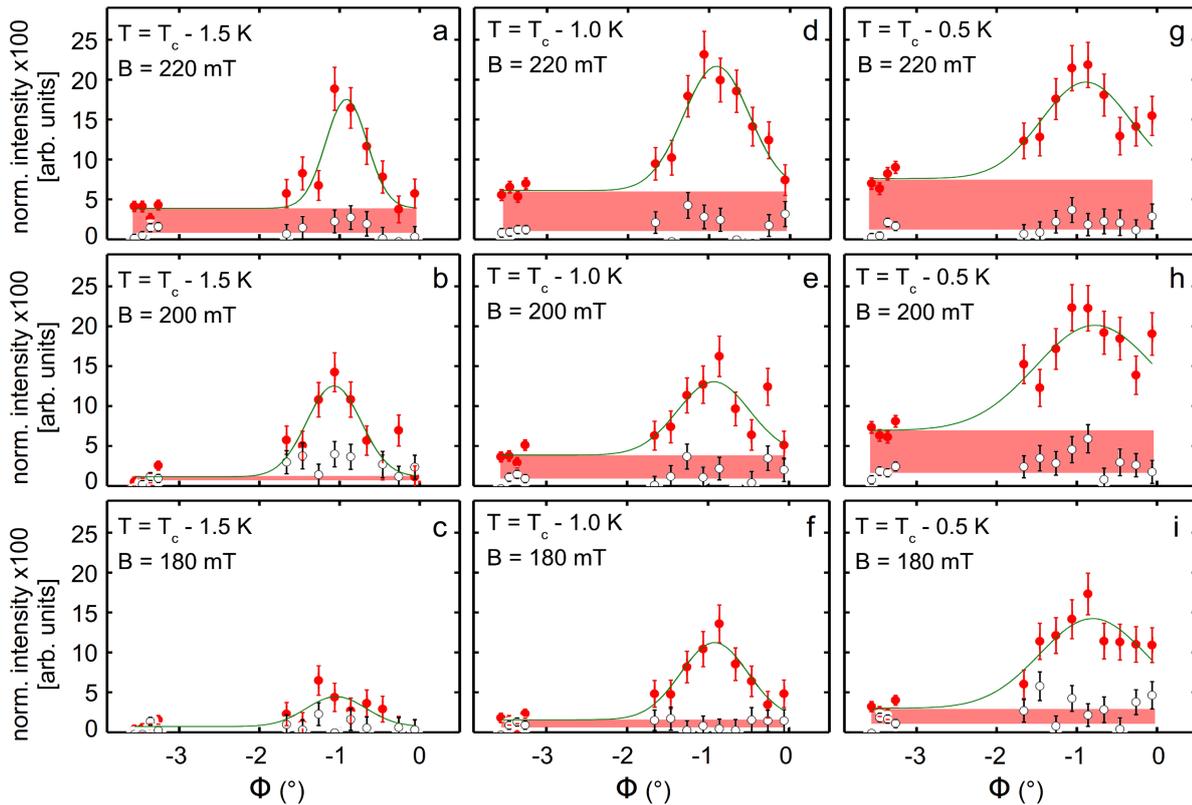


Abbildung 3.3: Typische Renninger-Scans für verschiedene Temperaturen und Magnetfelder in der A-Phase von MnSi. Die Renninger-Scans sind nach Größe des Magnetfelds und der Temperatur angeordnet. Von links nach rechts nimmt die Temperatur zu, von oben nach unten nimmt das Magnetfeld ab. Als Funktion des Winkels Φ wird Doppelstreuung reduziert und verschwindet für hinreichend hohe Φ . Das konstante Signal höherer Ordnung ist rot schattiert. Dieses Signal nimmt mit steigendem Magnetfeld und steigender Temperatur zu.

3.3 Renninger-Scans

Für die im Folgenden beschriebenen Messungen an dem Instrument V4 (HZB) wurden die dünnen Probenscheiben mittig mit dem Neutronenstrahl ausgeleuchtet. Außerdem wurde auf eine gute Kollimation geachtet, um möglichst hochauflösende Rockingkurven zu erhalten. Probe B wurde dabei mit einer $\langle 110 \rangle$ Kristallachse parallel zu dem Neutronenstrahl und einer $\langle 110 \rangle$ Achse in vertikaler Richtung eingebaut und orientiert. Der Selektor wurde auf eine Wellenlänge von $\lambda = 4.5 \text{ \AA}$ bei einer Wellenlängenunschärfe von $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 0.1$ eingestellt. Zur Kollimation wurden zwei Kreisblenden vor der Probe mit den Durchmessern $D_1 = 3 \text{ mm}$ und $D_2 = 7 \text{ mm}$ und einem Abstand von $L_1 = 12 \text{ m}$ eingesetzt. Der Probe-Detektor-Abstand betrug $L_2 = 4.2 \text{ m}$. Für die Instrumentenauflösung ergibt sich daraus nach Abschnitt 2.2.1) in azimutaler Richtung eine Auflösung von $\Delta\beta_{\text{az}} = 4.9^\circ$, in radialer $|\mathbf{q}|$ Richtung $\Delta\beta_q = 0.003 \text{ \AA}^{-1}$ und senkrecht zu $|\mathbf{q}|$ in Richtung von \mathbf{k}_f die Auflösung $\Delta\beta_{k_f} = 0.21^\circ$.

Für alle Rocking-Scans wurde zu jedem Rockingwinkel eine Hintergrundmessung weit über T_c durchgeführt und abgezogen. Das genaue Setup und die Funktionsweise des Renninger-Scans wird in Abschnitt 2.3 erläutert. Die Abb. 2.6 und 2.7 illustrieren das Messprinzip und die Auswertung eines Renninger-Scans. In Abb. 3.3 sind verschiedene Renninger-Scans als Funktion des Rockingwinkels ϕ für verschiedene Temperaturen und Magnetfeldstärken gezeigt. Untersucht sind Temperaturen von $T = T_c - 1.5 \text{ K}$, $T = T_c - 1.0 \text{ K}$ und $T = T_c - 0.5 \text{ K}$ (vgl. erste, zweite und dritte Spalte in 3.3) bei Magnetfeldern von $B = 180 \text{ mT}$, $B = 200 \text{ mT}$ und $B = 220 \text{ mT}$. Die roten Datenpunkte stellen dabei die integrierte Intensität aus Box 1, also der Position des reziproken Punktes bei $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$, dar. Wie in Abschnitt 2.3 dargestellt setzt sich das Signal dabei aus einer Faltung zweier Gauß-Kurven bestehend aus Doppelstreuung und einem konstanten Signal von Streuung höherer Ordnung zusammen. Zum Vergleich sind zusätzlich die schwarzen Datenpunkte der Box 2 bei einem q knapp neben dem erwarteten Signal der magnetischen Struktur eingezeichnet, um eine Abschätzung für den Untergrund zu erhalten.

Aus den Renninger-Scans ist sofort ersichtlich, dass das Signal höherer Ordnung im Vergleich zu dem Signal der Doppelstreuung schwach ist. Die entscheidende Größe ist hier aber nicht die absolute Intensität, sondern das Verhältnis des Signals höherer Ordnung zu der Intensität der ersten Ordnung. Dieses Verhältnis gibt Aufschluss über die Bedeutung der Korrekturen höherer Ordnung der magnetischen Struktur. Für diesen Zweck sind die Abhängigkeiten der ersten Ordnung von Temperatur und Magnetfeld zu berücksichtigen. In Abb. 3.4 (a) ist die integrierte Intensität der Streuung erster Ordnung des Peaks \mathbf{q}_1 als Funktion des Magnetfeldes bei einer Temperatur von $T = T_c - 0.5 \text{ K}$ gezeigt.

Der Quotient aus der Intensität höherer Ordnung bei $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$ und der Intensität erster Ordnung bei \mathbf{q}_1 als Funktion des Magnetfeldes ist in Abb. 3.4 (b) gezeigt. Zunächst ist bemerkenswert, dass dieses relative Verhältnis sehr klein und von der Größenordnung 10^{-3} ist. Gezeigt sind Datenpunkte für die drei Temperaturen $T = T_c - 1.5 \text{ K}$ (blau), $T = T_c - 1.0 \text{ K}$ (rot) und $T = T_c - 0.5 \text{ K}$ (schwarz). Mit steigender Temperatur nimmt der Quotient aus höherer Ordnung und erster Ordnung leicht zu. Dies erscheint zunächst über-

raschend, da intuitiv zu erwarten wäre, dass die nichtlinearen Effekte die zu der Streuung höherer Ordnung führen, genau wie alle anderen Amplituden mit steigender Temperatur an Intensität abnehmen. Weiter unten wird auf das Temperaturverhalten im Detail im Rahmen einer Molekularfeld-Analyse eingegangen. Wie die Linien zur Führung des Auges andeuten, steigt der Quotient auch mit steigendem Magnetfeld. Für Magnetfelder unterhalb von $B = 180 \text{ mT}$ ist die Streuintensität schließlich zu gering für eine sinnvolle Auswertung. Als Hauptergebnis lässt sich ein Magnetfeld $B \approx B_{\min}$ innerhalb der A-Phase identifizieren, für welches der Quotient aus höherer Ordnung und erster Ordnung nahezu verschwindet. Die genaue physikalische Bedeutung dieses Felds ist Gegenstand der anschließenden Diskussion.

Zusammenfassend lassen sich folgende vier Ergebnisse festhalten: (1) Es konnte eindeutig Streuung höherer Ordnung quantitativ nachgewiesen und die parasitäre Doppelstreuung mit Hilfe von Renninger-Scans unterdrückt werden. Die Streuung höherer Ordnung bei $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$ schließt dabei für sich genommen bereits aus, dass die sechs Peaks des Streubilds erster Ordnung durch drei single-k-Zustände erzeugt werden. Damit liefert diese Messung einen unmittelbaren mikroskopischen Nachweis für die Existenz des Skyrmionengitters in MnSi dar. (2) Die Intensität der höheren Ordnung ist um drei Größenordnungen kleiner als die der Streuung erster Ordnung. Damit stellt das Modell der Superposition von drei Helices plus uniforme Magnetisierung eine sehr gute Näherung der realen Struktur in der A-Phase dar. Abweichungen in Form von Deformationen einer reinen Sinus-Modulation sind sehr klein. (3) Die Streuung höherer Ordnung nimmt mit steigender Temperatur zu. (4) Es existiert eine starke Magnetfeldabhängigkeit der Streuung höherer Ordnung. Für ein charakteristisches Magnetfeld in der Mitte der A-Phase nahe $B = 180 \text{ mT}$ scheint die Streuung höherer Ordnung zu verschwinden. Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse im Kontext einer Molekularfeldtheorie halbquantitativ gedeutet.

3.4 Theoretische Deutung und Diskussion

Wie in Abschnitt 1.2.1 erläutert erfordert die vollständig quantitative Betrachtung der A-Phase in MnSi die Berücksichtigung von thermischen Fluktuationen [1]. Dabei weist eine vereinfachte Beschreibung unter Vernachlässigung der thermischen Fluktuationen alle wesentlichen Merkmale der A-Phase auf, und für das freie Energie-Funktional tritt ein lokales Minimum auf. Um die grundlegenden experimentellen Ergebnisse dieser Messung halbquantitativ zu verstehen, wird daher an dieser Stelle eine Beschreibung mit Hilfe der Molekularfeldtheorie ohne thermische Fluktuationen durchgeführt. Betrachtet wird das freie Energie-Funktional F :

$$F = (1 + t)\mathbf{M}^2 + (\nabla\mathbf{M})^2 + 2\mathbf{M}(\nabla \times \mathbf{M}) + \mathbf{M}^4 - \mathbf{B}\mathbf{M} \quad (3.2)$$

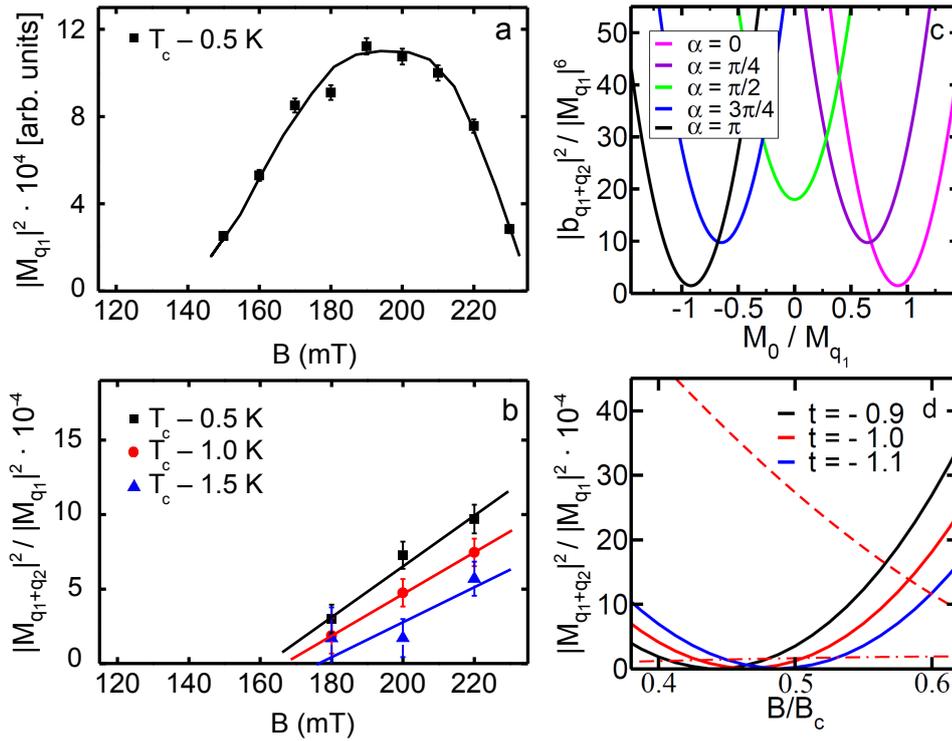


Abbildung 3.4: Intensitäten als Funktion des Magnetfelds und das theoretische Modell der experimentellen Daten. (a) Die gemessene Intensität der Maxima erster Ordnung $|M_{\mathbf{q}_i}|^2$ in der A-Phase von MnSi als Funktion vom Magnetfeld und bei einer Temperatur von $T = T_c - 0.5$ K. Die Linien dienen zur Führung des Auges. (b) Verhältnis der Intensität bei $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$ und des Signals erster Ordnung für verschiedene Temperaturen. Die Linien dienen zur Führung des Auges. (c) Das oszillierende effektive Feld $b_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}$ für unterschiedliche Phasenbeziehungen α zwischen den superponierten Helices. (d) Berechnetes Verhältnis von Streuung höherer Ordnung bei $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2$ und Streuung erster Ordnung, $|M_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}|^2 / |M_{\mathbf{q}_1}|^2$ als Funktion des Magnetfeldes im Rahmen einer Molekularfeldtheorie für die Parameter $t = -0.9, -1$ und -1.1 . Abb. aus Ref. [8].

Dieses wird mit folgendem Ansatz minimiert [139]:

$$\mathbf{M}(\mathbf{x}) = \sum_{n,m \in \mathbb{Z}} e^{i(n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2)\mathbf{x}} \mathbf{M}_{n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2} \quad (3.3)$$

Zur numerischen Berechnung der freien Energie werden alle Wellenvektoren $n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2$ bis zu einer bestimmten Grenze $|n\mathbf{q}_1 + m\mathbf{q}_2| \leq \Gamma$ berücksichtigt. Eine numerische Minimierung unter Berücksichtigung aller Amplituden und der komplexen Phasen führt zu der relativen Intensität der Peaks höherer Ordnung. Die Lösungen für die Maxima zweiter Ordnung $|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}|^2 / |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1}|^2$ sind in Abb. 3.4 (d) dargestellt. Gezeigt sind drei unterschiedliche Temperaturen $t = -0.9, -1$ und -1.1 jeweils als Funktion des Magnetfeldes. Der Parameter t stellt hier ein Maß für den Abstand zu T_c bei $B = 0$ dar. Die gestrichelte Linie zeigt die Berechnungen für $|\mathbf{M}_{2\mathbf{q}_1}|^2 / |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1}|^2$ und die gepunktete Linie für $|\mathbf{M}_{2\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}|^2 / |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1}|^2$ jeweils bei der Temperatur $t = -1.0$. Zu beiden existieren keine experimentellen Daten in Abb. 3.4 (b).

Der Vergleich der theoretischen Vorhersagen und der experimentellen Ergebnisse ist in guter Übereinstimmung möglich. Die molekularfeldtheoretische Betrachtung kann alle wesentlichen experimentellen Befunde halbquantitativ bestätigen. Das gemessene Verhältnis $|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}|^2 / |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1}|^2$ ist sehr klein und vergleichbar mit den theoretischen Vorhersagen. Weiterhin existiert eine starke Abhängigkeit der höheren Ordnung als Funktion des Magnetfeldes. Für die drei Kurven in Abb. 3.4 (d) ergibt sich für jede Temperatur ein charakteristisches Magnetfeld $B \approx B_{\min}$, für welches die relative Intensität der zweiten Ordnung verschwindet. Außerdem erklärt die Theorie, warum die relative Intensität der höheren Ordnung in dem Experiment als Funktion der Temperatur steigt. So sinken für steigende Temperatur prinzipiell alle höheren Ordnung in der Intensität. Dies wird aber durch eine Verschiebung des kritischen Feldes B_{\min} zu kleineren Feldwerten überkompensiert, woraus sich eine gegenteilige Temperaturabhängigkeit ergibt.

Die Frage nach der Unterdrückung des Quotienten $|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2}|^2 / |\mathbf{M}_{\mathbf{q}_1}|^2$ für B_{\min} , beinhaltet ein grundlegendes Verständnis der mikroskopischen Struktur des Skyrmionengitters. Es zeigt sich, wie im Folgenden erläutert wird, dass sich dieses Verhalten als Interferenzeffekt deuten lässt. Da der Beitrag der höheren Ordnung sehr klein ist und die Streuintensität fast vollständig aus den sechs Peaks der ersten Ordnung besteht, kann das Skyrmionengitter in guter Näherung als eine ideale Superposition aus drei Helices mit einer überlagerten uniformen Magnetisierung aufgefasst werden. Abweichungen von diesem sinusförmig modulierten Modell, z.B. in Form von Deformationen, sind, wie dieses Experiment zeigt, nur sehr klein.

Zur Minimierung der freien Energie stehen die Propagationsvektoren dieser drei Helices, wie bereits in Abschnitt 1.2.1 gezeigt, in einer Ebene senkrecht zu dem extern angelegten Magnetfeld mit der Bedingung $\sum_{i=1}^3 \mathbf{q}_i = 0$. Im einfachsten Fall ergibt sich hieraus ein relativer Winkel zueinander von 120° mit relativen Phasen α_1, α_2 und α_3 . Wie im Folgenden gezeigt wird, können zwei der drei Phasen auf Null gesetzt werden, während die letzte Phase $\alpha \equiv \alpha_3$ die genaue lokale Magnetisierung der Struktur bestimmt.

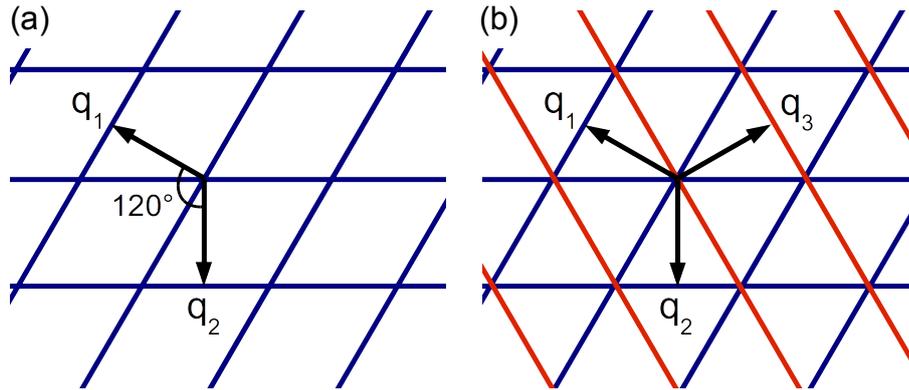


Abbildung 3.5: Superposition der drei Helices des Skyrmionengitters repräsentiert durch Linien gleicher Phase α_i . (a) Die Superposition von zwei Helices q_1 und q_2 im Winkel von 120° zueinander. Entsprechend kreuzen sich auch die Linien gleicher Phase α_i im Winkel von 120° . Eine Verschiebung einer der beiden Phasen α_1 bzw. α_2 ändert die Struktur nicht, sondern führt zu einer Translation der Spinstruktur. (b) Dagegen beeinflusst die Phase α_3 bei Hinzunahme der dritten Helix die Eigenschaften der Struktur entscheidend. Für eine detaillierte Beschreibung siehe Text.

Zur Illustration zeigt Abb. 3.5 die Phasen der drei Helices. Jede Helix wird dabei durch parallele Phasenlinien senkrecht zu dem jeweiligen Propagationsvektor \mathbf{q} repräsentiert. Die Linien bilden somit Bereiche konstanter gleicher Phase. Sie definieren z.B. die Bereiche der Helices, die eine Magnetisierung in Richtung des extern angelegten Magnetfeldes aufweisen. Da die Propagationsvektoren der Helices im Winkel von jeweils 120° zueinander stehen, stehen auch die Phasenlinien jeweils 120° zueinander. Eine Phasenverschiebung bedeutet in diesem Bild, dass sich diese Linien parallel zu dem Propagationsvektor der jeweiligen Helix verschieben.

Werden in einem ersten Schritt nur zwei Helices betrachtet (vgl. Abb. 3.5 (a)), so stellt sich heraus, dass eine Phasenverschiebung einer oder auch beider Helices zueinander letztlich zu einer Translation der magnetischen Struktur in Bezug auf das atomare Gitter führt. Das Skyrmionengitter ist jedoch in erster Näherung unabhängig vom atomaren Gitter. Somit ist die Struktur gegenüber dieser beiden Phasen invariant. Erst das Hinzufügen der dritten Helix mit der Phase $\alpha \equiv \alpha_3$ legt die magnetische Struktur fest (vgl. Abb. 3.5 (b)). Die passende Wahl der Phase $\alpha = 0$ führt dazu, dass sich die Phasenlinien aller drei Helices an den Kreuzungspunkten schneiden. Daraus ergibt sich das Anti-Skyrmionengitter, wie es in dem theoretischen Modell vorhergesagt wird (vgl. Abschnitt 1.2), d.h. im Zentrum eines Skyrmions zeigen alle Spins der drei Helices antiparallel zu dem externen Magnetfeld.

Um den Einfluss der Phase α und der uniformen Magnetisierung M_f auf die Topologie der Spinstruktur zu veranschaulichen, führte Wolfgang Simeth mit Hilfe von Mathematica Simulationen durch. Die Abb. 3.6 zeigt das entsprechende Diagramm der berechneten Topologie. Dabei ist eine Rasterung mit 35 unterschiedlichen uniformen Magnetisierungs- und 100 Phasenwerten angewendet. Die Farbe der Rasterkästchen definiert dabei die berechnete Topologie. Anzumerken ist, dass am Übergang zwischen zwei Bereichen ver-

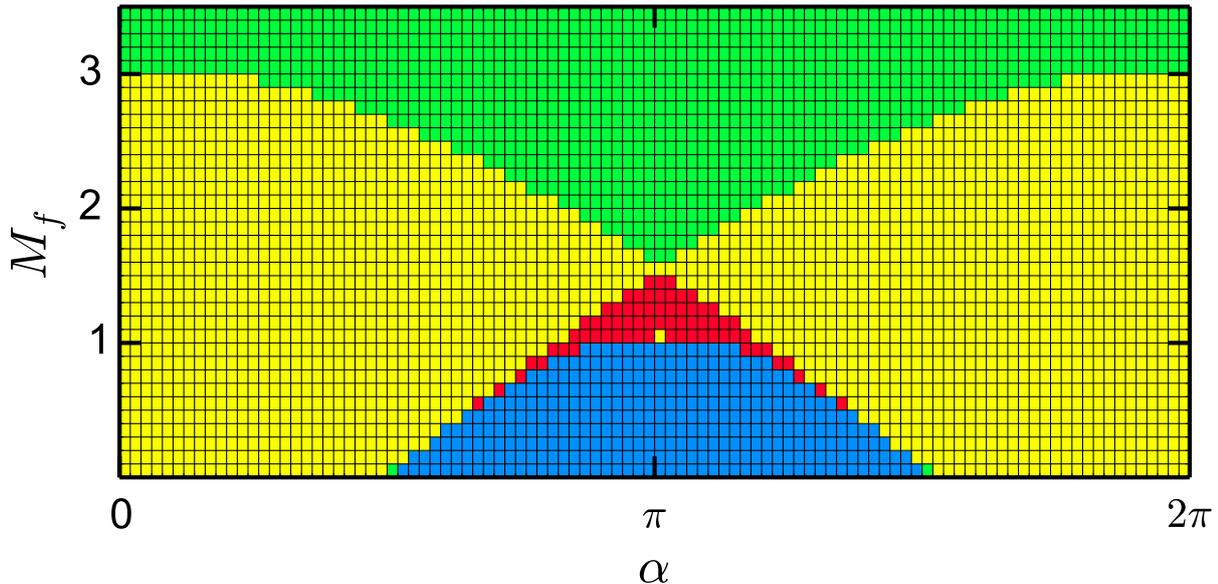


Abbildung 3.6: Simulation der Windungszahl pro Einheitszelle als Funktion von der Phase α und der uniformen Magnetisierung M_f (vgl. Gleichungen (1.2) und (1.7)). Die Simulation wurde mit Mathematica durchgeführt, wobei eine Rasterung mit 35 unterschiedlichen uniformen Magnetisierungs- und 100 Phasenwerten angewendet wurden. Die Farbe der Kästchen definiert dabei die Topologie: Die Simulation ergibt im roten Bereich des Diagramms die Windungszahl $W = -2$ und im blauen $W = +1$. Hohe uniforme Magnetisierungen im grünen Bereich führen zu der trivialen Lösung $W = 0$. Die Windungszahl $W = -1$ ergibt sich im gelben Bereich. Dies trifft insbesondere für die Phase $\alpha = 0$ und die uniforme Magnetisierung $M_f = 0.78$ zu, wie in dem theoretischen Modell des Skyrmionengitters angenommen (vgl. Abschnitt 1.2). Es ist wichtig anzumerken, dass am Übergang zwischen zwei Farbbereichen die numerische Integration manchmal nicht konvergiert und sich daraus vereinzelt falsche Werte ergeben. Für die Simulation danke ich Wolfgang Simeth.

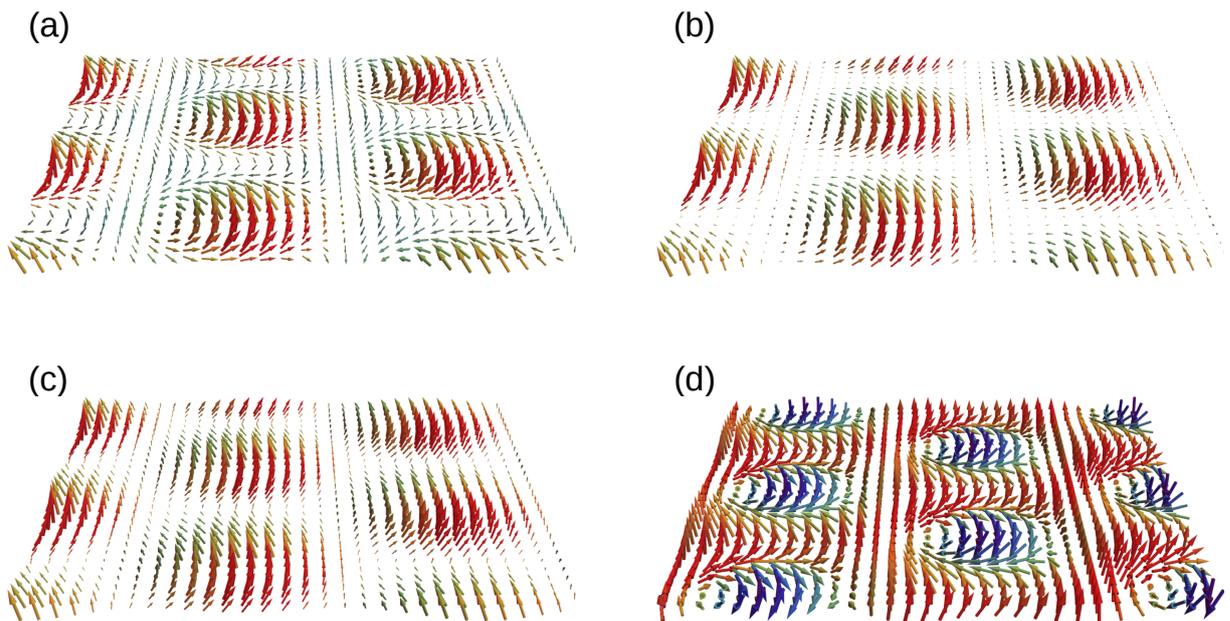


Abbildung 3.7: Simulation der Spinstruktur für eine Superposition dreier Helices und einer uniformen Magnetisierung für verschiedene Parameter (vgl. Gleichung (1.7)). (a) Für die Phasenverschiebung $\alpha = \pi$ und die uniforme Magnetisierung $M_f = 0.78$ ergibt sich eine nicht-triviale Topologie mit $W = +1$. (b) Wird die uniforme Magnetisierung erhöht auf $M_f = 1.3$, springt die Windungszahl auf den Wert $W = -2$. (c) Eine weitere Erhöhung der uniformen Magnetisierung führt zu der trivialen Lösung $W = 0$. Das System ist damit topologisch äquivalent zum Ferromagneten. (d) Die Spinstruktur, wie in dem theoretischen Modell des Skyrmionengitters angenommen (vgl. Abschnitt 1.2), mit Phase $\alpha = 0$ und uniformer Magnetisierung $M_f = 0.78$. Die Antiskyrmionen dieser Struktur ergeben die Windungszahl $W = -1$. Für die Mathematica-Simulation danke ich Wolfgang Simeth.

schiedener Windungszahlen die numerische Integration manchmal nicht konvergiert, und es sich daraus vereinzelt falsche Werte in den Berechnungen ergeben.

Für eine Phase $\alpha \approx \pi$ und kleine uniforme Magnetisierungen $M_f \leq 1$ ergeben sich Skyrmionen der Homotopieklasse mit Windungszahl $W = +1$ (blaue Datenpunkte). Darüber zeigt sich ein kleiner Bereich ($1 < M_f < 1.5$) mit Skyrmionen mit der Windungszahl $W = -2$ (rote Datenpunkte) (vgl. Abb. 3.7 (b)). Für eine noch höhere uniforme Magnetisierung ergibt die Simulation die triviale Lösung mit der trivialen Homotopieklasse $W = 0$ (grüne Datenpunkte). Für einen großen Parameterbereich, insbesondere für $\alpha = 0$ und $M_f = 0.78$ wie in dem Skyrmionengitter-Modell aus Abschnitt 1.2 angenommen, ergibt sich die Homotopieklasse $W = -1$ (gelbe Datenpunkte).

In Abb. 3.7 sind beispielhaft einige simulierte Realbilder von Spinstrukturen für verschiedene Phasen α und uniforme Magnetisierungen M_f gezeigt. Teilbild (a) zeigt die Struktur für $\alpha = \pi$ und $M_f = 0.78$ mit der Windungszahl $W = +1$. Bei gleicher Phase mit der uniformen Magnetisierung $M_f = 1.3$ wechselt die Windungszahl der Struktur auf $W = -2$ (vgl. Teilbild (b)). Da die lokale Magnetisierung zwischen den Skyrmionen fast gegen Null geht, kann die unterschiedliche Windungszahl der Strukturen (a) und (b) kaum erkannt werden. Die uniforme Magnetisierung $M_f = 2$ führt zu der trivialen Lösung aus Teilbild (c), in der nun alle Spins näherungsweise nach oben zeigen. Diese Struktur ist somit topologisch äquivalent zum Ferromagneten und lässt sich daher durch eine kontinuierliche Transformation in diesen überführen. Für alle gezeigten Beispiele mit Phase $\alpha = \pi$ (vgl. Teilbilder (a-c)) variiert die lokale Magnetisierung sehr stark, d.h. die Länge der Pfeile variiert in der Abbildung. Da diese Variation Energie kostet, sind alle drei Strukturen instabil.

Teilbild (d) von Abb. 3.7 zeigt nun die Spinstruktur des idealen Skyrmionengitters mit $\alpha = 0$, $M_f = 0.78$ und $W = -1$, wie bereits in der Einleitung dargestellt (vgl. Abschnitt 1.2). Da mit verschwindender Phase α die lokale Magnetisierung betragsmäßig nahezu konstant bleibt, ist diese Struktur besonders stabil [1]. Wie die Ergebnisse dieser Doktorarbeit zeigen, sind Abweichungen von dieser Idealstruktur in Form von Verzerrungen der Gittervektoren oder Deformationen von der Sinusmodulation nur sehr klein. Dies zeigt vor allem die sehr schwache Intensität der Streuung höherer Ordnung in Relation zu der Streuung erster Ordnung.

Die in dieser Arbeit durchgeführte experimentelle Bestimmung der Phase α ist also von entscheidender Bedeutung für die Beschreibung der genauen mikroskopischen Struktur. Informationen zu der Phase α können aus Neutronenstreuung erster Ordnung nicht gewonnen werden, da diese nur sensitiv auf $|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_n}|^2$ ist. Erst die höheren Ordnungen sind sensitiv auf die Phasenbeziehung der superponierten Helices und erlauben so die genaue Analyse der magnetischen Spinstruktur. Grund dafür sind Interferenzeffekte, die durch die Kombination verschiedener linearer Terme auftreten. Die Streuung höherer Ordnung ist ein nichtlinearer Effekt. Der Term \mathbf{M}^4 aus Gleichung (3.2) besteht aus einer linearen

Kopplung von Termen $\mathbf{M}_{\mathbf{q}_n}$ und der uniformen Magnetisierung. Unter Aufsummierung aller dieser Terme

$$\mathbf{M}(\mathbf{x}) = \sum_{n,m} e^{i(n\mathbf{q}_1+m\mathbf{q}_2)\mathbf{x}} \mathbf{M}_{n\mathbf{q}_1+m\mathbf{q}_2} \quad (3.4)$$

ergibt sich ein oszillierendes effektives Magnetfeld $\mathbf{b}_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}$. Zu beachten ist, dass dabei viele verschiedene Prozesse zur Stärke des Feldes $\mathbf{b}_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}$ beitragen (vgl. Abb. 2.6 (b)):

$$\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 = 2\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_3 = 2\mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_6 = \dots \quad (3.5)$$

Die Summation ergibt schließlich:

$$\frac{\mathbf{b}_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}}{1\phi^6} = 9 + 74 \frac{M_f^2}{\phi^2} - 96\sqrt{2} \frac{M_f}{\phi} \cos \alpha + 54 \cos^2 \alpha \quad (3.6)$$

Die Amplitude einer einzelnen Helix entspricht hier $\sqrt{2}\phi$ und damit ist $|\mathbf{M}_{\mathbf{q}_n}| = \phi$. In Abb. 3.4 (c) ist das oszillierende Feld für verschiedene Phasen α grafisch dargestellt. Da negative Werte für das uniforme Magnetfeld unphysikalisch sind, ist der linke Teil des Graphen nicht relevant. Wie aus dem Graphen ersichtlich wird $\mathbf{b}_{\mathbf{q}_1+\mathbf{q}_2}$ für $\alpha = 0$ bei B_{\min} nahezu vollständig unterdrückt. Dabei ist $M_f/\phi = \sqrt{2}24/37 \approx 0.92$. Dieser Wert kann mit Werten aus den Berechnungen der Molekularfeldtheorie verglichen werden. Dort entsprechen Werte von 0.94 und 0.96 Temperaturen von $t = -1$ und $t = -5$.

Das in diesem Kapitel vorgestellte Experiment weist in der A-Phase von Volumenkristallen der Verbindung MnSi erfolgreich die Existenz der höheren Ordnung nach. Damit bietet das Experiment einen direkten mikroskopischen Beweis für das Skymionengitter in MnSi. Weiterhin stellt sich heraus, dass das Feld B_{\min} , für das die höhere Ordnung fast vollständig unterdrückt ist, einen Interferenzeffekt darstellt. Es ist auf diese Weise möglich, Rückschlüsse auf die Phasenbeziehung $\alpha = 0$ der superponierten Helices zu führen und damit auf die genaue Struktur selbst.

Eine quantitative Auswertung des Modells und ein Vergleich mit den experimentellen Daten ist letztlich nicht vollständig möglich. Dies liegt zum einen an Unsicherheiten des Experiments selbst. Eine quantitative Ermittlung der absoluten Intensitäten ist aufgrund von experimentellen Unbestimmtheiten schwierig. Zum anderen werden in der theoretischen Betrachtung die thermischen Fluktuationen vernachlässigt. Ein weiterer Punkt, der nicht abschließend geklärt werden kann, ist der graduelle Intensitätsverlauf der Streuung erster Ordnung für kleine Magnetfelder (vgl. Abb. 3.4). An dieser Stelle besagen die Vorhersagen der Theorie einen scharfen Übergang erster Ordnung [1]. Eine Erklärung könnten Phasen-Koexistenzen in diesem Bereich sein, wie sie beispielsweise in Präzisionsmessungen der Magnetisierung beobachtet werden [140].

Kapitel 4

Anisotropie des Skymionengitters in MnSi

Das Skymionengitter richtet sich im Wesentlichen nach dem extern angelegten Magnetfeld aus und ist somit in erster Näherung unabhängig von der Kristallorientierung. Erst eine präzise Messung der genauen Orientierung des Skymionengitters als Funktion der Kristallorientierung gibt Aufschluss über die schwachen magnetischen Anisotropieterme. Entsprechende Messungen wurden im Rahmen dieser Arbeit an MnSi durchgeführt, welche in diesem Kapitel beschrieben sind.

Nach einer kurzen Motivation (Abschnitt 4.1) wird der experimentelle Aufbau und die Messmethodik eingehend beschrieben (Abschnitt 4.2). Anschließend werden die Daten vorgestellt, und der genaue Prozess der Auswertung wird erläutert (Abschnitt 4.3). Letztlich ergeben sich aus den Daten drei wesentliche Ergebnisse. (i) Für alle gemessenen Kristallorientierungen konnte ein stabiles Skymionengitter beobachtet werden. (ii) Als Funktion der Kristallorientierung wurde ein Mäandern des Normalenvektors der Skymionengitterebene um die Magnetfeldrichtung festgestellt. (iii) Zusätzlich kam es zu einem breiten Übergang zweier azimuthaler Orientierungen innerhalb der Ebene. In der anschließenden Diskussion der Ergebnisse zeigt sich eine ausgezeichnete Übereinstimmung der Daten mit dem theoretischen Modell (Abschnitt 4.4). Aus den Fits ergeben sich quantitative Werte für die kubischen Anisotropieterme. In der Zusammenfassung der Ergebnisse werden diese in einen allgemeineren Kontext gesetzt (Abschnitt 4.5).

4.1 Motivation

Ausgangspunkt der hier beschriebenen Messung war eine genaue Ermittlung der Anisotropien und deren Auswirkung auf das Skymionengitter. Die Standard-Methode hierfür, die Torque-Magnetometrie, ist für die komplexe Struktur des Skymionengitters nicht anwendbar, da diese keine mikroskopische Information liefern kann. Entsprechende Mes-

sungen an MnSi lieferten Daten, welche nicht abschließend interpretiert werden konnten. Daher wurden SANS-Messungen genutzt, um einen möglichst großen Bereich im reziproken Raum das Skyrmionengitter zu vermessen. Mit geeigneten Rocking-Scans konnte über die exakte Orientierung des Skyrmionengitters auf die Anisotropieterme geschlossen werden.

Die Messung des Skyrmionengitters als Funktion der Kristallorientierung führte zu einer weiteren Fragestellung, die in den vorliegenden Experimenten geklärt werden konnte. Bogdanov et al. postulierte schon im Jahr 1989 das Skyrmionengitter als neuartigen magnetischen Grundzustand und beschrieb dasselbe theoretisch [34,35]. Laut Bogdanov wird das Skyrmionengitter durch uniaxiale Anisotropieterme stabilisiert und kann nur in der Nähe bestimmter Symmetrierichtungen der Kristallstruktur auftreten. Dagegen behauptete Rosch et al. [1], dass thermische Fluktuationen dazu führen, dass die metastabile multi-q-Struktur zu einem globalen Minimum wird (vgl. Abschnitt 1.2.1). Die im Folgenden vorgestellten Messungen konnten zeigen, dass das Skyrmionengitter nicht nur in Richtung der Hauptachsen der kubischen Struktur von MnSi stabil bleibt, sondern auch für beliebige andere Kristallorientierungen. Die Messungen bestätigten damit das theoretische Modell von Rosch et al.

4.2 Experimentelle Methoden

4.2.1 Experimenteller Aufbau

Wie in Kapitel 3 bereits beschrieben wurden die Messungen der Streuung höherer Ordnung in MnSi an dünnen Probenplättchen durchgeführt, um ein möglichst homogenes internes Magnetfeld zu gewährleisten und scharfe Rockingkurven zu erhalten. Für die folgende Messung musste die Probe allerdings durch das externe Magnetfeld gedreht werden. Es war somit von besonderer Wichtigkeit, für alle Kristallorientierungen gleichbleibende Bedingungen zu erreichen und anisotrope Entmagnetisierungseffekte zu vermeiden. Die ideale Probenform, um das zu erreichen, ist kugelförmig. Nur so können belastbare Aussagen über die Anisotropie-Effekte der Probe auf das Skyrmionengitter getroffen werden. Abb. 4.1 zeigt die bei diesem Experiment benutzte, sphärisch geschliffene und in den Probenhalter orientiert eingeklebte MnSi-Probe. Mittels Röntgen-Laue-Verfahren wurde die Probe im Probenhalter mit einer Genauigkeit von etwa $\pm 3^\circ$ orientiert. Die exakte Orientierung ($\pm 0.1^\circ$) im Kryostaten an dem Instrument wurde mit Hilfe der helikalen Peaks in Richtung der $\langle 111 \rangle$ -Achsen eingestellt.

Das SANS-Experiment wurde an dem Instrument MIRA (vgl. Abschnitt 2.2.3) am FRM II bei einer Wellenlänge von $\lambda = 10.4 \text{ \AA} \pm 5\%$ durchgeführt. Für eine optimale Auflösung der Streuwinkel muss der Detektorabstand möglichst groß und die Kollimationsblenden vor der Probe möglichst klein eingestellt werden. Eine hohe Auflösung steht allerdings in Konkurrenz zu dem Neutronenfluss und die Einstellung der Kollimation ist somit ein

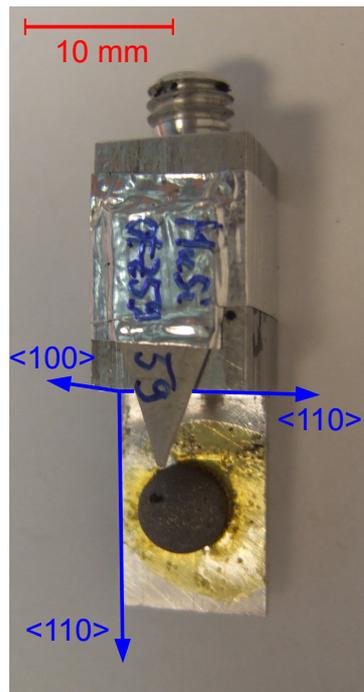


Abbildung 4.1: Kugelförmig geschliffene und orientiert in den Probenhalter eingeklebte MnSi Probe. Die sphärische Form der Probe verhindert anisotrope Entmagnetisierungseffekte und sorgt für gleichbleibende Bedingungen für alle Kristallorientierungen.

Kompromiss zwischen Messzeit und Messgenauigkeit. Bei diesem Experiment wurde der Detektorabstand auf die maximal möglichen 2.1 m eingestellt und die rechteckigen Blenden s1 und s3 vor der Probe mit jeweils 2 mm x 2 mm geöffnet. Der Abstand der Kollimationsblenden s1 und s3 betrug etwa 1.5 m. Somit ergibt sich laut den Gleichungen aus Abschnitt 2.2.1 eine azimutale Winkelauflösung von $\Delta\beta_{\text{az}} = 3.8^\circ$, und eine Auflösung in q von $\Delta q = 0.0024 \text{ \AA}^{-1}$.

Abb. 4.2 zeigt den schematischen Aufbau des Experiments. Um alle sechs Intensitäts-Maxima im Streubild des Skyrmionengitters zu beobachten, ist das Magnetfeld parallel zu dem Neutronenstrahl ausgerichtet. Der Kristall kann im Kryostaten vertikal um eine $\langle 110 \rangle$ -Hauptachse gedreht werden. In Abb. 4.2 (a) sind alle relevanten Winkel schematisch dargestellt. Senkrecht zu der Drehachse bzw. innerhalb der Drehebene befinden sich alle drei Hauptachsen ($\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ und $\langle 111 \rangle$). Der Drehwinkel β definiert die Orientierung der Probe. Die exakte Orientierung des Skyrmionengitters ist durch drei Freiheitsgrade bestimmt. Die Abweichungen, die sich zwischen dem Normalenvektor der durch die q -Vektoren aufgespannten Skyrmionengitterebene und der Magnetfeldrichtung ergeben, werden durch die Winkel δ und ε parametrisiert. Hierbei gibt δ die Abweichung in der zu der Drehachse horizontalen Ebene an. Innerhalb der vertikalen Ebene, die durch die Drehachse $\langle 110 \rangle$ und die Magnetfeldrichtung aufgespannt wird, gibt der Winkel ε kleine Abweichungen an. Der dritte Freiheitsgrad wird durch den Winkel ω festgelegt, der die azimutale Orientierung der sechs Peaks innerhalb der Streubildebene angibt. Kleine Ab-

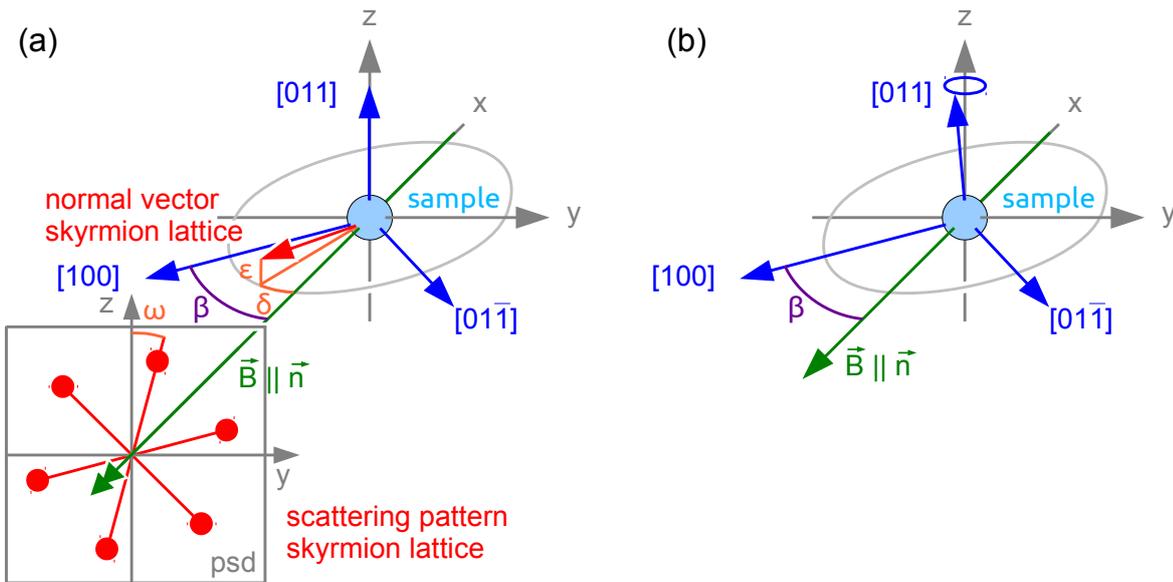


Abbildung 4.2: Schema des experimentellen Aufbaus. (a) Die [011]-Achse der kugelförmigen Probe definiert die Drehachse des Experiments. Das Magnetfeld ist parallel zu der Neutronenstrahlrichtung ausgerichtet, um das volle sechszählige Streubild des Skyrmionengitters aufzeichnen zu können. Das Skyrmionengitter wird für verschiedene Winkel β gemessen. Der Winkel ω definiert dabei die azimutale Drehung des Skyrmionengitters in der Streuebene. Die horizontale bzw. vertikale Abweichung der Richtung der Skyrmionengitterschläuche von der Magnetfeldrichtung ist durch die Winkel δ und ϵ gegeben. (b) Im experimentellen Aufbau kann es zu einer leichten Abweichung der [011]-Richtung von der Rotationsachse kommen. Diese führt zu einer Präzession der [011]-Achse um die Rotationsachse als Funktion von β und muss bei der Interpretation der Daten berücksichtigt werden.

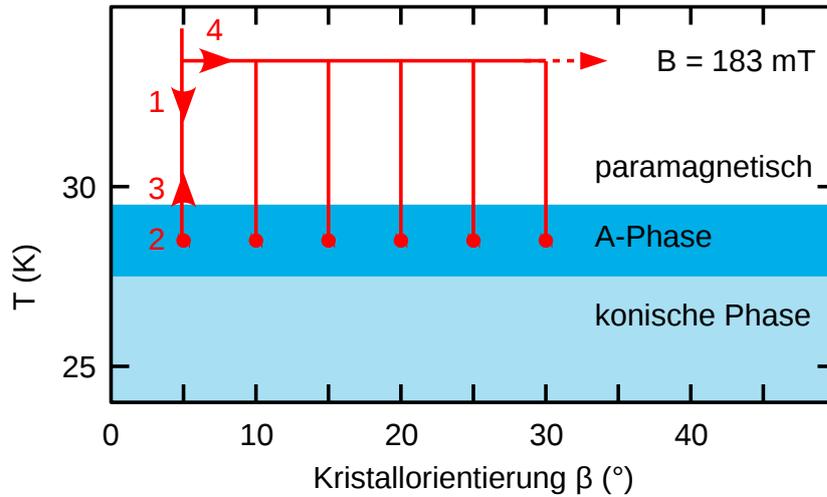


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung der Messprozedur. Rocking-Scans werden Feld gekühlt durchgeführt, um für alle Kristallorientierungen einen definierten Gleichgewichtszustand zu erhalten. Das Magnetfeld bleibt während den Messungen konstant bei $B = 183 \text{ mT}$. Vor jedem Rocking-Scan wird die Probe weit über die Ordnungstemperatur T_c aufgeheizt. (1) Anschließend wird die Probe Feld gekühlt in den Bereich der A-Phase mit maximaler Intensität des Skyrmionengitters bei $T = 28.3 \text{ K}$ übergeführt. (2) In diesem definierten Zustand wird dann der horizontale und vertikale Rocking-Scan durchgeführt. (3) Nach dem erneuten Aufheizen der Probe über T_c und (4) Drehen der Probe um $\Delta\beta = 5^\circ$ beginnt die Messprozedur von vorne. Insgesamt wurden nach diesem Prozedere 38 Kristallorientierungen in dem Winkelbereich zwischen $\beta = -40^\circ$ bis 145° gemessen.

weichungen der $[011]$ -Richtung von der Rotationsachse führen zu einer Präzession, die in der Interpretation der Daten berücksichtigt werden muss, vgl. Abb. 4.2 (b).

4.2.2 Messmethodik

In dem hier beschriebene Experiment wurden Rocking-Scans innerhalb der Skyrmionengitter-Phase für viele unterschiedliche Orientierungen der Probe durchgeführt. Das Phasendiagramm von MnSi ist bereits in der Einleitung diskutiert worden (vgl. Abschnitt 1.3). Für Messungen der A-Phase in MnSi konnten bisher keine nennenswerte Hysterese nachgewiesen werden. Lediglich bei dem Übergang zwischen helikaler und konischer Phase zeigen sich gut verstandene hysteretische Effekte. Dagegen zeigen die Phasendiagramme der dotierten Systeme $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$, $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ [90, 141] oder $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ [86, 87] deutliche Hysterese in der helikalen Phase, die bisher nicht hinreichend interpretiert werden konnte. In letztere Verbindung zeigt sogar die A-Phase starke Hysterese. Um hysteretische Effekte auszuschließen und mit einem definierten Ausgangszustand zu starten, wurde die folgende Messprozedur strikt eingehalten, vgl. Abb. 4.3.

Weit über der Ordnungstemperatur T_c wird ein Magnetfeld von $B = 183 \text{ mT}$ parallel zum Neutronenstrahl angelegt. Anschließend wird die Probe bei konstantem Feld bis auf

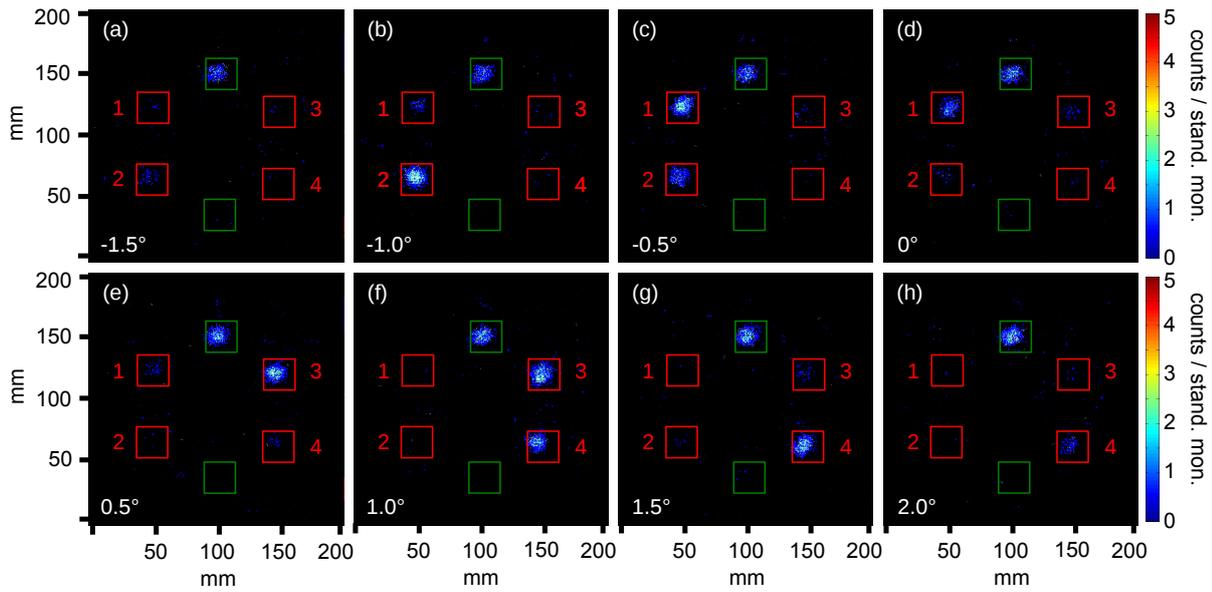


Abbildung 4.4: Typische Streubilder des Skyrmionengitters für einen horizontalen Rocking-Scan in der A-Phase von MnSi. Ein horizontaler Rocking-Scan besteht aus 29 einzelnen Streubildern, die in einem Winkelbereich von -3.5° bis 3.5° in 0.25° Schritten gemessen wurden. Aufgrund der scharfen Rockingbreiten der sechs magnetischen Peaks des Skyrmionengitters treten die einzelnen Reflexe nur für wenige Streubilder bzw. schmale Winkelbereiche auf. Gezeigt sind exemplarisch die Streubilder für $\beta = 90^\circ$ mit den Rockingwinkeln (a) -1.5° , (b) -1.0° , (c) -0.5° , (d) 0° , (e) 0.5° , (f) 1.0° , (g) 1.5° und (h) 2.0° .

$T = 28.3$ K abgekühlt. Die Probe befindet sich damit im Bereich der A-Phase mit maximaler Intensität des sechszähligen Streubildes. Es werden zwei Rocking-Scans durchgeführt, einmal in horizontaler Richtung und einmal in vertikaler Richtung. Bei den jeweiligen Rocking-Scans wird der gesamte Kryostat inklusive Magneten gedreht, um das Skyrmionengitter samt Probe zu drehen. Nach der erfolgreichen Messung der Rocking-Scans wird die Probe um die vertikale $\langle 110 \rangle$ -Hauptachse um $\Delta\beta = 5^\circ$ weiter gedreht. Nach jeder Änderung der Orientierung wird die Probe wieder über T_c geheizt, um anschließend wieder auf 28.3 K abzukühlen.

Diese Prozedur wurde für 38 verschiedenen Kristallorientierungen über einen Winkelbereich von 185° wiederholt. Das Magnetfeld blieb während der gesamten Prozedur konstant bei $B = 183$ mT.

4.3 Experimentelle Ergebnisse

4.3.1 Typische Rohdaten

Typische Streubilder des Skyrmionengitters, wie sie sich bei einem horizontalen Rocking-Scan ergeben, sind in Abb. 4.4 dargestellt. Gezeigt sind Rohdaten bei einer Kristallorientierung von $\beta = 90^\circ$. Von den 29 Streubildern eines horizontalen Rocking-Scans, in dem Winkelbereich von -3.5° bis 3.5° in 0.25° Schritten, sind exemplarisch 8 Bilder gezeigt. Der entsprechende vertikale Rocking-Scan wird über einen Winkelbereich von -2° bis 2° in 0.25° Schritten durchgeführt.

Die Summation von allen 46 Streubildern einer Kristallorientierung β ergibt das typische sechszählige Streubild der A-Phase (vgl. Abb. 4.5 (a)). Für das Streubild eines einzelnen Rockingwinkels treten immer nur wenige Bragg-Reflexe der sechszähligen Symmetrie auf, da sich für das Skyrmionengitters in MnSi sehr schmale Rockingkurven ergeben. Um die Rockingkurven zu ermitteln, werden die in Abb. 4.4 gezeigten roten Boxen definiert. Für die horizontalen Rocking-Scans wird als Funktion des Rockingwinkels über die roten Boxen integriert. Entsprechend sind die grünen Boxen für die vertikalen Rocking-Scans gesetzt.

4.3.2 Methodik der Auswertung

In Abb. 4.5 (b) sind zwei sich aus dieser Integration ergebende horizontale Rockingmesskurven aufgetragen. Die roten Kurven zeigen Daten für $\beta = 90^\circ$, also einer $\langle 110 \rangle$ -Achse parallel zu der Richtung des Neutronenstrahls. Die Datenpunkte können durch Lorentz-Kurven gefittet werden. Die linke rote Lorentz-Kurve entspricht dabei der Summe der integrierten Intensitäten der zwei linken roten Boxen, die rechte rote Lorentz-Kurve entsprechend der integrierten Intensitäten der zwei rechten roten Boxen. Jede der beiden gefitteten Lorentz-Kurven hat eine Mitte, und aus dem Mittelwert dieser beiden ergibt sich die Mitte des horizontalen Rocking-Scans. Analog dazu kann aus den zwei blauen Lorentz-Kurven, die für $\beta = 45^\circ$ gemessen wurden, die Mitte der blauen Rockingkurven ermittelt werden. Ein Vergleich der beiden Rockingkurven für die zwei verschiedenen Kristallorientierungen ergibt eine Differenz der Mitten von $\delta = 1.1^\circ$. Eine systematische Auswertung für alle gemessenen Kristallorientierungen liefert ein Diagramm δ über β für die horizontale Richtung und ein weiteres ε über β für die vertikale Richtung, siehe Abb. 4.7 (a).

Wie oben beschrieben führt die Summation über alle Winkel des horizontalen und des vertikalen Rocking-Scans einer Kristallorientierung zu den in Abb. 4.5 (a) gezeigten Streubildern. Der dritte Freiheitsgrad ω kann über eine Auswertung dieser Summenstreubilder ermittelt werden. Dazu wird die azimutale Ausrichtung der sechs Peaks in den Streubildern ermittelt. Es wird eine zentrisch um den direkten Strahl ausgerichtete Integration über

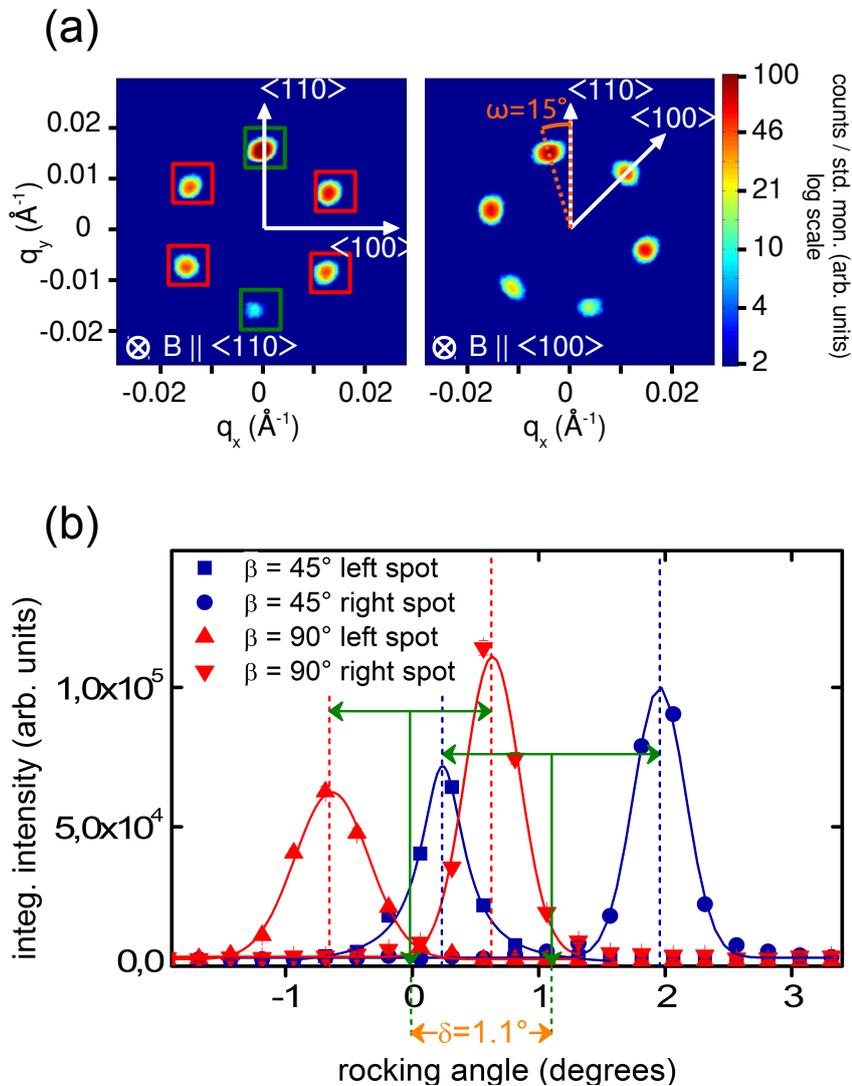


Abbildung 4.5: Schema der Auswertung der Rockingkurven. (a) Die Integration über die roten Boxen in dem Streubild links als Funktion des Rockingwinkels liefert Rockingkurven in horizontaler Richtung (δ). Die vertikalen Rockingkurven ergeben sich aus den grünen Boxen (ε). (b) Gezeigt sind zwei horizontale Rockingkurven für die zwei Kristallorientierungen $\beta = 45^\circ$ (blaue Datenpunkte) und $\beta = 90^\circ$ (rote Datenpunkte). Letztere entspricht einer Orientierung mit $\langle 110 \rangle$ -Hauptachse parallel zu der Magnetfeldrichtung. In der Auswertung der Mitten der Rockingkurven ergibt sich dabei eine Differenz von $\delta = 1.1^\circ$.

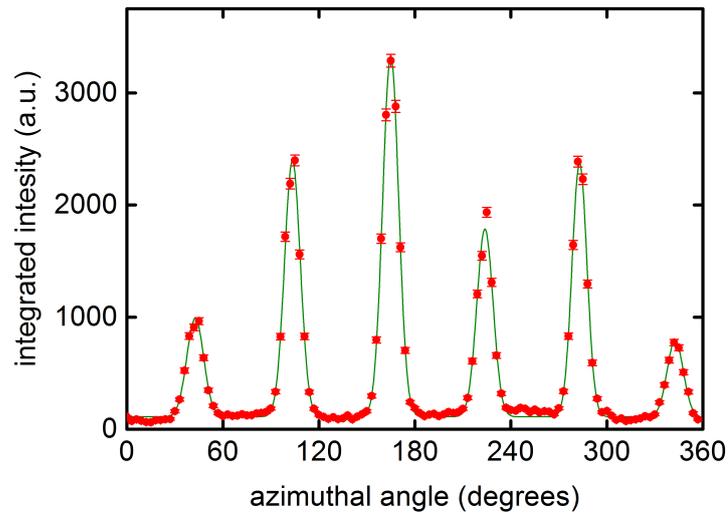


Abbildung 4.6: Integrierte Intensitäten als Funktion des azimutalen Winkels eines sechszähligen Streubildes in der A-Phase. Um den Winkel ω (vgl. Abb. 4.2) zu ermitteln, werden die Streudaten als Funktion des azimutalen Winkels integriert. Es ergeben sich sechs Intensitätsmaxima, die jeweils mit einer Gauß-Funktion gefittet werden können. Aus den Fits ergeben sich die azimutalen Positionen der sechs Maxima, welchen mit Modulo 60° aufsummiert und durch sechs geteilt einen Mittelwert ergeben. Dieser gibt die azimutale Ausrichtung des Skymionengitters in der Streuebene an. Die unterschiedlichen Intensitäten der sechs Peaks resultieren aus der relativ großen Rockingschrittbreite von 0.25° im Verhältnis zu den schmalen Rockingkurven.

die sechs Peaks der A-Phase als Funktion des azimutalen Winkels ω ausgeführt (vgl. Abb. 4.6). Die sechs Peakintensitäten können mit Gauß-Kurven gefittet werden. Die Fitwerte liefern die azimutalen Peak-Positionen, welche mit Modulo 60° aufsummiert und durch sechs geteilt einen Mittelwert ergeben. Dieser ergibt dann die azimutale Ausrichtung des Skymionengitters in der Streuebene.

Bei einer Summation von Streubildern eines idealen Rocking-Scans müssten sich in Abb. 4.6 sechs exakt gleich große Intensitätsmaxima ergeben. Zwei Effekte führten bei den Messungen zu einer azimutalen Ungleichverteilung der Intensitätsmaxima. Aufgrund der Menge der Rohdaten und der begrenzten Messzeit wurde nur eine relativ grobe Schrittweite der Rocking-Scans von 0.25° gewählt. Da die Rockingkurven der Bragg-Reflexe des Skymionengitters in MnSi sehr schmal und von vergleichbarer Größenordnung sind, variieren die Intensitäten in Abb. 4.6 je nach dem, wie der jeweilige Rocking-Scan die Maxima der Rockingkurven exakt oder nicht exakt trifft. Dabei ist anzumerken, dass die Rockingkurven der einzelnen Peaks zusätzlich schmaler sind als in Abb. 4.5 (b) gezeigt, da hier jeweils über zwei leicht gegeneinander verschobene Rockingkurven zweier benachbarter Peaks summiert ist.

Da sich die Ausrichtung des Skymionengitter in horizontaler Richtung als Funktion der Kristallorientierung ändert (vgl. folgender Abschnitt 4.3.3), die vertikalen Rocking-Scans aber immer für gleichbleibende horizontale Orientierung durchgeführt sind, kommt es im Allgemeinen zu einer verminderten Intensität der Bragg-Reflexe oben und unten im

Summen-Streubild. Dieser Effekt macht sich in der deutlich reduzierten Intensität des linken bzw. rechten Maximums in Abb. 4.6 bemerkbar.

4.3.3 Orientierungsabhängigkeit des Skymionengitters

Aus dem Experiment ergeben sich die folgenden drei wesentlichen Ergebnisse, vgl. Abb. 4.7: (i) Zunächst zeigen die Daten, dass die A-Phase über alle untersuchten Kristallorientierungen stabil bleibt. (ii) Zweitens ergibt sich ein Mäandern des Normalenvektors der Skymionengitterebene um die Richtung des Magnetfeldes mit einer maximalen Auslenkung von knapp 3° . (iii) Zuletzt ergibt sich eine azimutale Rotation der sechs Peaks der A-Phase als Funktion der Kristallorientierung.

Das Experiment umfasst in 5° -Schritten einen Winkelbereich von 185° , und für alle 38 gemessenen Kristallorientierungen können die sechs Peaks des Skymionengitters gemessen werden. Die Theorie von Bogdanov et al. [34] geht davon aus, dass das Skymionengitter durch uniaxiale Anisotropieterme stabilisiert wird. Wenn jedoch solche Terme für bestimmte Hochsymmetrierichtungen den Skymionengitter-Zustand energetisch absenken, bedeutet dies zwangsläufig, dass für andere Richtungen ein energetisch ungünstiger Fall auftritt. Es wäre also zu erwarten, dass das Skymionengitter nur in der nahen Umgebung bestimmter Kristallhauptachsen stabil auftreten kann. Die Beobachtungen können diese Schlussfolgerungen nicht bestätigen, sodass ein anderer Mechanismus das Skymionengitter als Grundzustand stabilisieren muss. Eine solche Erklärung bietet die Theorie von Rosch et al. [1], nach der das Skymionengitter durch thermische Fluktuationen entsteht und damit unabhängig von der Kristallorientierung im Bezug auf das externe Magnetfeld stabil bleibt (vgl. Abschnitt 1.2.1). In zweiter Ordnung haben kubische Anisotropien allerdings trotzdem Einfluss auf die Stabilität des Skymionengitters. So ergeben sich je nachdem in welche Hauptachse das Magnetfeld ausgerichtet wird als Funktion der Temperatur unterschiedliche Ausdehnungen der A-Phase [140].

Das Mäandern des Normalenvektors der Skymionengitterebene um die Magnetfeldrichtung als Funktion der Kristallorientierung ist in Abb. 4.7 (a) dargestellt. Dabei geben die blauen Datenpunkte die Abweichung ε des Normalenvektors der Skymionengitterebene in der vertikalen Richtung und die roten Datenpunkte die Abweichung δ in der horizontalen Richtung an (vgl. Abschnitt 4.2.1). Da MnSi ein kubisches System ist, muss aufgrund von Symmetrieüberlegungen die Abweichung ε in vertikaler Richtung verschwinden. Die kleinen Differenzen von ε ergeben sich aus dem oben beschriebenen kleinen Winkel ξ zwischen vertikaler Drehachse und der $\langle 110 \rangle$ -Kristallachse. Für die drei Kristallhauptachsen $\langle 100 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ und $\langle 110 \rangle$ richtet sich der Normalenvektor der Skymionengitterebene exakt parallel zu der Magnetfeldrichtung aus, d.h. $\delta = 0^\circ$, während für alle anderen Richtungen eine endliche Abweichung δ beobachtet werden kann.

Ausgehend von der Kristallorientierung $\beta = 0^\circ$ beträgt die Abweichung des Normalenvektors der Skymionengitterebene $\delta = 0^\circ$, ist also parallel zu der Magnetfeldrichtung eingestellt. Wird der Kristall nun um einige Grad um die Drehachse $\langle 110 \rangle$ rotiert, dreht

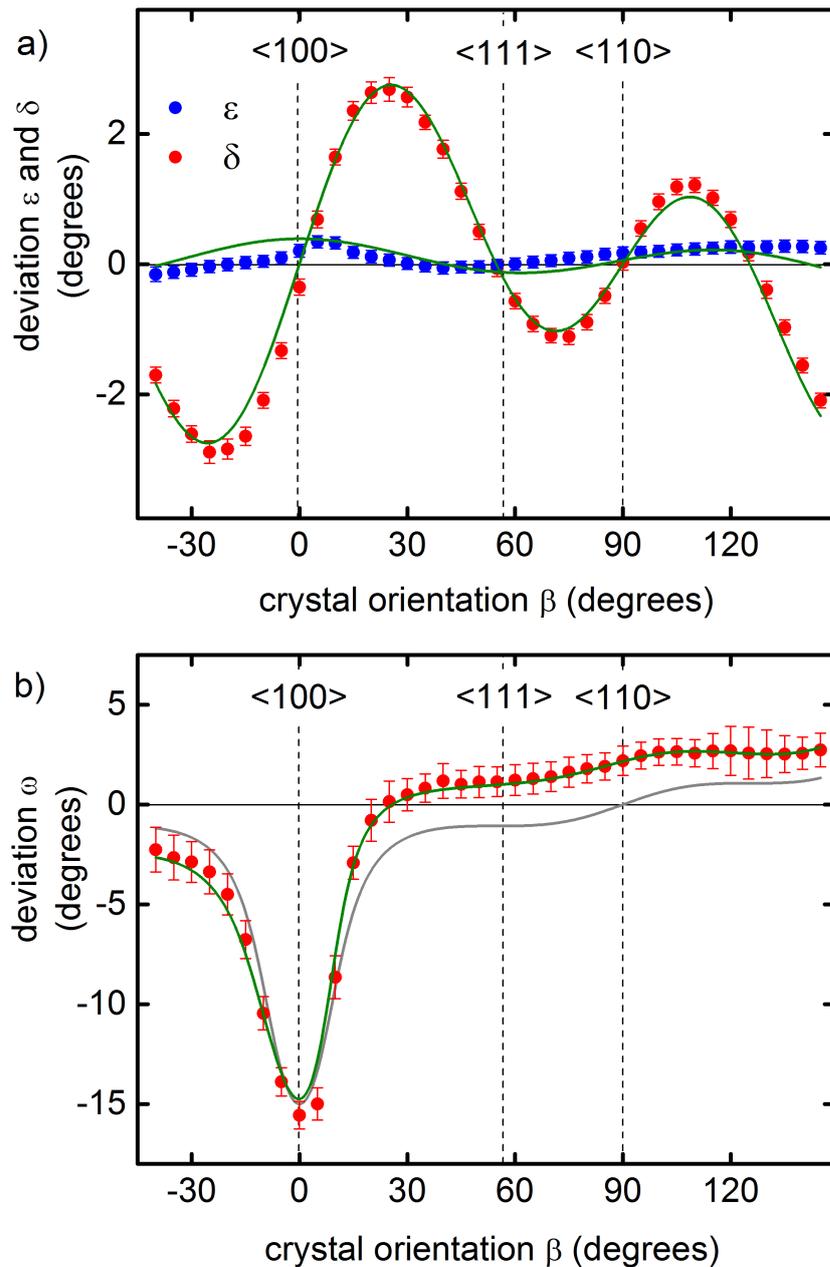


Abbildung 4.7: Verhalten des Skyrmionengitters in MnSi als Funktion der Kristallorientierung β (vgl. Abb. 4.2). (a) Mäandern des Normalenvektors der Skyrmionengitterebene um die Magnetfeldrichtung. Die horizontale Abweichung δ (rot) verschwindet für die Hauptachsen und lässt sich durch ein Modell, das kubische Anisotropieterme höherer Ordnung berücksichtigt, exzellent beschreiben (grüne Linie). Endliche vertikale Abweichungen ε (blau) ergeben sich aus kleinen Orientierungsfehlern der Probe im Kryostaten. Aus Symmetriegründen sollten diese für einen idealen Aufbau verschwinden. (b) Azimutale Ausrichtung ω der sechs Peaks im Streubild des Skyrmionengitters als Funktion der Kristallorientierung β . Die graue Linie zeigt den theoretischen Verlauf der Daten für einen idealen Aufbau ohne Fehlstellung der Probe im Kryostaten. Der Datenfit (grüne Linie) berücksichtigt zusätzlich den Fehler der Probenorientierung.

der Normalenvektor der Skyrmionengitterebene nicht um den gleichen Winkelbetrag mit, sondern folgt der Magnetfeldrichtung leicht verzögert nach. Die $\langle 100 \rangle$ -Hauptachse stellt für den Normalenvektor der Skyrmionengitterebene folglich ein schwaches Potentialminimum dar und führt zu einer Abweichung $\delta > 0^\circ$ von der Magnetfeldrichtung. Wird bis zu der nächsten Hauptachse $\langle 111 \rangle$ weiter gedreht, stellt sich der Normalenvektor der Skyrmionengitterebene wieder exakt parallel zur Magnetfeldrichtung ein. Eine Drehung darüber hinaus zeigt einen schwachen anziehenden Effekt der nächsten Hauptachse $\langle 110 \rangle$ der wiederum zu einer Abweichung $\delta < 0^\circ$ führt. Das Kristallfeld der Probe führt also zu leichten Korrekturen der Ausrichtung des Skyrmionengitters, wobei die $\langle 110 \rangle$ und $\langle 100 \rangle$ Richtungen für den Normalenvektor des Skyrmionengitters als Energiesenken wirken.

Abb. 4.7 (b) zeigt die azimutale Ausrichtung ω der sechs Peaks im Streubild des Skyrmionengitters als Funktion der Kristallorientierung β . Die Ausrichtung der sechs Q-Vektoren des Skyrmionengitters in der Ebene senkrecht zum Magnetfeld ist nach dem Modell aus Abschnitt 1.2 zunächst unbestimmt. Erst die Berücksichtigung der kubischen Anisotropieterme führt zu einer Ausbildung einer leichten Achse und damit zu der azimutalen Ausrichtung der sechs Peaks im Streubild. Das links in Abb. 4.5 (a) gezeigte Streubild, in dem die sechs Peaks in der Art orientiert sind, dass der obere Peak entlang der vertikalen $\langle 110 \rangle$ -Hauptachse ausgerichtet ist, zeigt eine Ausrichtung mit $\omega = 0^\circ$. Entsprechend ist im rechten Streubild eine azimutale Ausrichtung $\omega = 15^\circ$ gegeben, bei der ein Peak entlang einer $\langle 100 \rangle$ -Hauptachse orientiert ist. Insgesamt kann ein breiter Übergang vom ersten zum zweiten Streubild als Funktion der Kristallorientierung beobachtet werden. In Abb. 4.7 (b) sind die azimutalen Daten gezeigt, wobei wiederum der kleine Fehler ξ , der den Winkel zwischen vertikaler Drehachse und der $\langle 100 \rangle$ -Kristallachse definiert, zu Abweichungen von dem idealen Modell führt. Die graue Fitkurve in der Abbildung zeigt den erwarteten Funktionsverlauf für einen idealen Aufbau des Experiments ohne Fehljustierung des Kristalls. Die grüne Fitkurve berücksichtigt im Modell den Fehler ξ und deckt sich sehr gut mit den experimentellen Daten.

4.4 Diskussion der Ergebnisse

Für die folgenden theoretischen Berechnungen danke ich Markus Garst. Die Deutung der experimentellen Ergebnisse basiert auf dem idealen Modell der 3-q-Struktur des Skyrmionengitters aus drei superponierten Helices, wie es in Abschnitt 1.2 beschrieben ist. Die zugrunde liegende Ginzburg-Landau-Theorie und die thermischen Fluktuationen müssen im Folgenden allerdings nicht berücksichtigt werden. Stattdessen wird eine Betrachtung der Symmetriebedingungen der 3-q-Struktur innerhalb der Punktgruppe der B20-Kristallstruktur durchgeführt. In diesem vereinfachten Modell wird die 3-q-Struktur des Skyrmionengitters als starr und frei von Verzerrungen angenommen. Dies führt in dem Experiment zu einer perfekten sechszähligen Symmetrie des Streubildes. Im Folgenden wird die Orientierung der sechs Einheitsvektoren $\hat{\mathbf{Q}}_j$ mit $j = 1, 2, 3, 4, 5, 6$ als Funktion der Richtung des Magnetfeldes beschrieben. Alle sechs Einheitsvektoren sind orthogonal zu dem Normalenvektor der Skyrmionengitterebene, d.h. $\hat{\mathbf{Q}}_j \hat{\mathbf{n}} = 0$ für alle j , und bilden

eine perfekte sechszählige Symmetrie mit jeweils 60° zwischen den Vektoren. Die Orientierung der starren 3-q-Struktur in dem Kristallfeld von MnSi kann damit relativ einfach beschrieben werden.

Verzerrungen der Winkel oder Längen der Q-Vektoren werden somit explizit vernachlässigt. Die experimentellen Daten in Abb. 4.8 zeigen, dass, wie in dem theoretischen Modell angenommen, keine nennenswerten Verzerrungen auftreten. Wie in Teilbild (a) erkennbar ist, bleiben die Längen der q-Vektoren als Funktion der Kristallorientierungen innerhalb der Fehlergrenzen konstant. Auch die Winkel zeigen keine Verzerrungen. In Teilbild (b) sind die Winkel der drei q-Vektoren in Relation zu q_1 Modulo 120° aufgetragen.

Das extern angelegte Magnetfeld versucht, den Normalenvektor $\hat{\mathbf{n}}$ parallel zu sich auszurichten. Zusätzlich wirken die Anisotropieterme des Kristallfelds auf die Orientierung des Normalenvektors. Die Invarianten niedrigster Ordnung der B20-Kristallstruktur ergeben für den Normalenvektor:

$$I_{4,1}(\hat{\mathbf{n}}) = \hat{\mathbf{n}}_x^4 + \hat{\mathbf{n}}_y^4 + \hat{\mathbf{n}}_z^4 \quad (4.1)$$

$$I_{4,2}(\hat{\mathbf{n}}) = \hat{\mathbf{n}}_x^2 \hat{\mathbf{n}}_y^2 + \hat{\mathbf{n}}_y^2 \hat{\mathbf{n}}_z^2 + \hat{\mathbf{n}}_z^2 \hat{\mathbf{n}}_x^2 \quad (4.2)$$

Um die Ausrichtung des Skyrmionengitters im Kristallfeld zu untersuchen, wird nun das effektive Potential betrachtet:

$$V(\hat{\mathbf{n}}) = -(\hat{\mathbf{h}}\hat{\mathbf{n}})^2 + \mu_1 I_{4,1}(\hat{\mathbf{n}}) + \mu_2 I_{4,2}(\hat{\mathbf{n}}) \quad (4.3)$$

Dabei beschreibt der erste Term die Kopplung des Magnetfeldes $\hat{\mathbf{h}}$ an den Normalenvektor $\hat{\mathbf{n}}$. Zusätzlich treten die Kopplungen μ_i an das Kristallfeld auf. Da die Abweichungen der Richtung des Normalenvektors von der Magnetfeldrichtung sehr klein sind, sind auch die Kopplungsterme klein ($\mu_i \ll 1$). Eine störungstheoretische Untersuchung führt nach geeigneter Parametrisierung und einigen geometrischen Rechenschritten zu folgenden Abweichungen:

$$\delta \approx \frac{\mu}{4}(1 + 3 \cos(2\beta)) \sin(2\beta) \quad (4.4)$$

$$\varepsilon \approx \frac{\mu}{4}(3\theta_r \cos \beta + 5\theta_r \cos(3\beta) + 8\phi_r \sin^3 \beta) \quad (4.5)$$

Dabei ist die Kopplung an das Kristallfeld definiert als $\mu = \mu_1 - \mu_2/2$. Die Winkel θ_r und ϕ_r definieren eine Fehlstellung der Kristallachse [011] im Bezug auf die Rotationsachse im Experiment, vgl. Abb. 4.2 (b). Die Herleitung gilt nur für ein schwaches Kristallfeld und eine kleine Fehlstellung, also $\mu, \theta_r, \phi_r \ll 1$. Aus Symmetriegründen verschwindet ε für ein ideales Setup mit $\theta_r = 0$ und $\phi_r = 0$. Die Berechnungen zeigen, dass die Fehlstellung

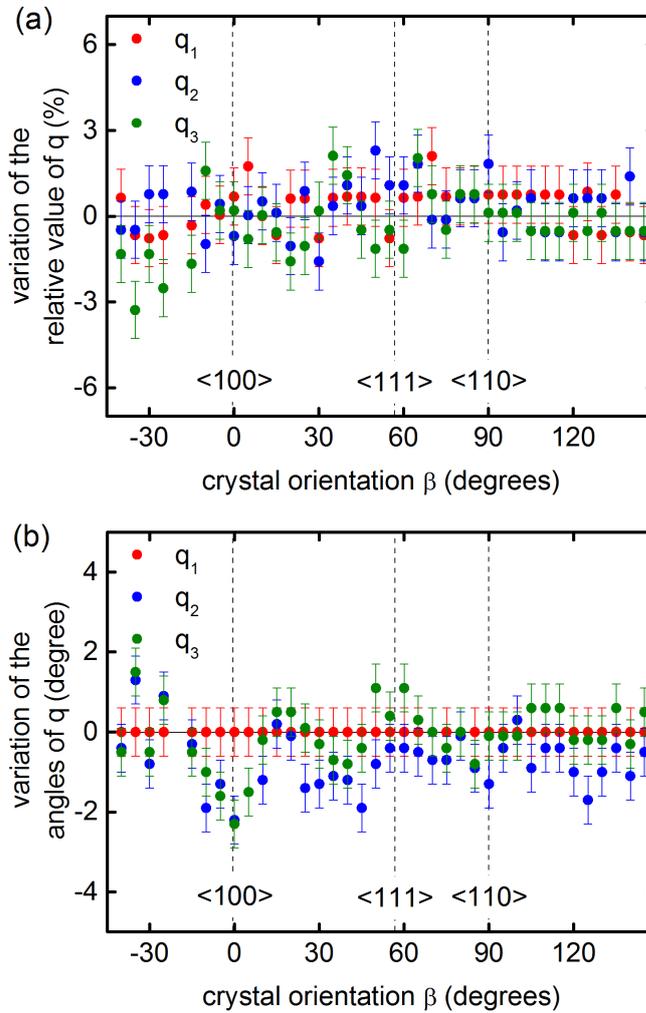


Abbildung 4.8: Längen und Winkel der drei q -Vektoren in den Streubildern. Die sechszählige Symmetrie der Streubilder des Skyrmionengitters zeigt keine nennenswerten Verzerrungen. (a) Relative Änderung der drei q -Vektoren in den Streubildern der A-Phase als Funktion der Kristallorientierung. Innerhalb der Fehlerbalken bleiben die Längen der q -Vektoren konstant. (b) Winkel der drei q -Vektoren in Relation zu q_1 Modulo 120° . Die Winkel der q -Vektoren zeigen ebenfalls keine nennenswerten Verzerrungen. Insgesamt kann damit gezeigt werden, dass das Skyrmionengitter für alle untersuchten Kristallorientierungen frei von Verzerrungen im Bezug auf die Winkel und q -Längen bleibt.

der [011]-Kristallachse θ_r und ϕ_r zu sehr kleinen Korrekturen in δ führt. Der Effekt der Fehlstellung ist so klein, dass dieser vernachlässigt werden kann. Die Fehler θ_r und ϕ_r werden daher in dem Modell für δ nicht berücksichtigt. Wie in Abb. 4.7 (a) zu sehen ist, lassen sich die Daten mit obigen Modell (vgl. Gleichung (4.5)) in sehr guter Übereinstimmung fiten (grüne Linien). Es ergibt sich für die Kristallfeldkopplung der dimensionslose Wert $\mu = 0.085 \pm 0.002$.

Um die Orientierung der sechs Peaks in der Ebene senkrecht zu $\hat{\mathbf{n}}$ zu beschreiben, wird im Folgenden das Mäandern des Skymionengitters vernachlässigt und $\hat{\mathbf{n}} = \hat{\mathbf{h}}$ gesetzt. Die Berechnungen zeigen, dass die sich dadurch ergebenden Abweichungen klein sind und daher vernachlässigt werden können. Die Invarianten sechster Ordnung der B20-Kristallstruktur sind:

$$I_{6,1}(\hat{\mathbf{Q}}) = \hat{Q}_x^6 + \hat{Q}_y^6 + \hat{Q}_z^6 \quad (4.6)$$

$$I_{6,2}(\hat{\mathbf{Q}}) = \hat{Q}_x^2 \hat{Q}_y^2 \hat{Q}_z^2 \quad (4.7)$$

$$I_{6,3}(\hat{\mathbf{Q}}) = \hat{Q}_x^2 \hat{Q}_y^4 + \hat{Q}_y^2 \hat{Q}_z^4 + \hat{Q}_z^2 \hat{Q}_x^4 \quad (4.8)$$

$$I_{6,4}(\hat{\mathbf{Q}}) = \hat{Q}_x^4 \hat{Q}_y^2 + \hat{Q}_y^4 \hat{Q}_z^2 + \hat{Q}_z^4 \hat{Q}_x^2 \quad (4.9)$$

Daraus ergibt sich ein effektives Potential aus nicht wechselwirkenden Vektoren:

$$V(\hat{\mathbf{Q}}) = \sum_{n=1}^6 \sum_{i=1}^4 \lambda_i I_{6,i}(\hat{\mathbf{Q}}_n) \quad (4.10)$$

Nach längerer Rechnung bei gleicher Parametrisierung wie in Gleichung (4.5) ergibt sich für kleine Winkel θ_r und ϕ_r der Winkel ω :

$$\omega = \omega_1 + \frac{\omega_2}{\omega_3} \quad (4.11)$$

mit ω_1 , ω_2 und ω_3 :

$$\omega_1 = -\frac{1}{6} \arctan \left(-g \left(\frac{66 \cos(\beta) - 11 \cos(3\beta) + 9 \cos(5\beta)}{12(3 + \cos(2\beta))^2 \sin(\beta)^2} \right) \right) \quad (4.12)$$

$$\begin{aligned} \omega_2 = & ((2\theta_r(\sin(3\beta) - 11 \sin(\beta)))(4(72 - 95g^2) \cos(2\beta) \\ & + 4(55g^2 + 114) \cos(4\beta) + 12(8 - 11g^2) \cos(6\beta) + 3(9g^2 + 2) \cos(8\beta) \\ & - 759g^2 - 846)) + ((2\phi_r(7 \cos(\beta) - \cos(3\beta)))(-8(85g^2 + 216) \cos(2\beta) \\ & + (628g^2 - 96) \cos(4\beta) + 3(-8(g^2 - 8) \cos(6\beta) + (9g^2 + 8) \cos(8\beta) \\ & + 699g^2 + 536))) \end{aligned} \quad (4.13)$$

$$\begin{aligned} \omega_3 = & (1764 \cos(6\beta) + 1170 \cos(8\beta) + 180 \cos(10\beta) + 9 \cos(12\beta) \\ & + 5236g^2 \cos(6\beta) - 792g^2 \cos(8\beta) + 324g^2 \cos(10\beta) \\ & + 24(451g^2 - 465) \cos(2\beta) - 3(352g^2 + 2355) \cos(4\beta) + 18232g^2 + 15102) \end{aligned} \quad (4.14)$$

Die vier Kopplungsparameter λ_i des effektiven Potentials in Gleichung (4.10) lassen sich dabei wie folgt zusammenfassen:

$$g = g_2/g_1 \quad (4.15)$$

mit g_1 und g_2 :

$$g_1 = \lambda_1 + \frac{\lambda_2}{3} - \frac{\lambda_3 + \lambda_4}{2} \quad (4.16)$$

$$g_2 = \lambda_3 - \lambda_4 \quad (4.17)$$

Der Fit in Abb. 4.7 (b) beschreibt die Daten des Experiments in sehr guter Übereinstimmung. Dabei sind wiederum, wie den Gleichungen (4.11) - (4.17) entnommen werden kann, kleine Fehler θ_r und ϕ_r in der Orientierung der [011]-Achse zur Rotationsachse berücksichtigt. Aus dem Fit ergibt sich für den Kopplungsparameter der dimensionslose Wert $g = -0.1334 \pm 0.0099$. Für die Fehlstellung der [011]-Achse ergeben sich die Werte $\theta_r = 2.17 \pm 0.15^\circ$ und $\phi_r = 0.34 \pm 0.17^\circ$. Dieser Fehler ist mit dem experimentellen Aufbau und den damit verbundenen Unsicherheiten konsistent. In der Abbildung ist zum Vergleich zusätzlich der erwartete Funktionsverlauf für einen idealen Aufbau des Experiments ohne die Fehler θ_r und ϕ_r in grau aufgetragen.

4.5 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Experiment konnte die Orientierung des Skymionengitters als Funktion der Kristallorientierung sehr exakt bestimmt werden. Es ergibt sich ein Mäandern des Normalenvektors um die Magnetfeldrichtung und zusätzlich eine Drehung der Struktur innerhalb

der Skyrmionengitterebene. Eine genaue Analyse der Daten zeigt hierbei, dass Verzerrungen der Q -Vektoren in der Länge und in den Winkeln zu vernachlässigen sind. Ausgehend von einem starren Modell frei von Verzerrungen kann das Verhalten des Skyrmionengitters sehr exakt beschrieben werden. Das Modell kann die Daten in hervorragender Weise reproduzieren und liefert eine quantitative Abschätzung für die Kopplungsstärken des Skyrmionengitters an das Kristallfeld von MnSi.

Die sich daraus ergebenden kubischen Anisotropieterme sind relativ klein und bestätigen damit die Vorhersagen von Janoschek et al. [54]. Die Autoren untersuchen in dieser Arbeit mittels SANS-Messungen in MnSi den Übergang von dem paramagnetischen in den helikalen Zustand unter Nullfeld. Von hohen Temperaturen kommend befindet sich das Material zunächst im paramagnetischen Zustand, geht aber dann in einen schmalen Bereich mit ringförmigen Streubildern über. Entsprechende Rocking-Scans in diesem Bereich bestätigen, dass es sich um eine isotrope Kugelverteilung im reziproken Raum handelt. Der ferromagnetische Austausch und die Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung führen zu isotrop verteilten Helices. Ein weiteres Absenken der Temperatur führt nun zu einem Phasenübergang erster Ordnung in den helimagnetischen Zustand, in dem die Helices schlagartig in Richtung der $\langle 111 \rangle$ -Richtungen springen. Insgesamt lässt sich dieser Übergang als ein Brazovskii-Übergang identifizieren. Der schmale Temperaturbereich mit isotrop verteilten Helices kann nur auftreten, wenn die kubischen Anisotropieterme, die letztlich auch zu der Ausrichtung der Helices in die $\langle 111 \rangle$ -Achsen führen, klein sind. Unter anderem konnte Janoschek et al. eine grobe Abschätzung der kubischen Anisotropieterme ermitteln. Das vorliegende Experiment konnte diese bestätigen und damit auch den Brazovskii-Übergang in MnSi selbst.

Die gezeigten Messungen der Anisotropieterme ist auch technisch bemerkenswert. Eine Standardmethode zur Bestimmung von Anisotropien in magnetischen Materialien ist Torque-Magnetometrie. Dabei führt die Wechselwirkung zwischen einem extern angelegtem Magnetfeld und Probenmagnetisierung als Funktion des Magnetfeldwinkels zu einem messbaren Drehmoment. Diese Methode ist jedoch für die komplexe Struktur des Skyrmionengitters ungeeignet, da die Daten keine mikroskopische Informationen liefern. Entsprechende Torque-Magnetometrie-Daten in MnSi können nicht abschließend interpretiert werden und liefern somit keine verwertbaren Informationen über die genaue Lage des Skyrmionengitters in der Probe. Daher ist die genaue Messung der Orientierungsverlagerung des Skyrmionengitters mittels SANS als Funktion der Kristallorientierung eine elegante Methode, Anisotropien sehr genau zu bestimmen.

Die Ergebnisse dieser Arbeit werden ergänzt durch Untersuchungen der Magnetisierung und Suszeptibilität als Funktion der Magnetfeldrichtung [142]. Dabei werden die Grenzübergänge H_{c1} , H_{c2} , T_{A1} und T_{A1} der helikalen Phase für unterschiedliche Kristallorientierungen im externen Magnetfeld beobachtet. Indirekt lässt sich dabei ebenfalls auf die Anisotropien in MnSi schließen. Diese Ergebnisse sind konsistent zu den Daten dieser Doktorarbeit.

Eine weitere wichtige Fragestellung dieser Messung war, durch welchen Mechanismus das Skyrmionengitter stabilisiert wird. Dabei zeigt sich, dass dieses für alle gemessenen Kris-

tallorientierungen stabil bleibt und damit nicht Anisotropieterme, wie von Bogdanov et al. vorgeschlagen [34,35], sondern thermische Fluktuationen ausschlaggebend für die Stabilisierung des Skyrmionengitters sind [1].

Das Skyrmionengitter wurde inzwischen in vielen weiteren Materialien gefunden, sodass sich die Frage stellt, inwieweit sich die oben beschriebene Ergebnisse auf andere Verbindungen übertragen lassen. Die bisherigen Untersuchungen an MnSi dotiert mit Eisen bzw. Kobalt oder an $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ zeigen, dass dies trotz der auftretenden atomaren Unordnung möglich ist. Auch in dem Oxid Cu_2OSeO_3 konnte das Skyrmionengitter nachgewiesen werden. Wie das folgende Kapitel zeigt, lassen sich die Ergebnisse von MnSi, wie in diesem Kapitel beschrieben, nur teilweise auf Cu_2OSeO_3 übertragen. Insbesondere das Anisotropieverhalten zeigt in Cu_2OSeO_3 ein komplexeres Verhalten, das bisher nicht abschließend verstanden werden konnte.

Kapitel 5

Skyrmionengitter in Cu_2OSeO_3

Die in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen an Volumenproben von Cu_2OSeO_3 [9] wurden durch direkte Messung des Skyrmionengitters im Realraum an dünnen Schichten dieses Oxids motiviert [76]. Aus Messungen der Magnetisierung und der spezifischen Wärme wurden dabei zunächst detaillierte Phasendiagramme für die unterschiedlichen Kristallorientierungen ermittelt, die im Abschnitt 5.2 zusammengefasst sind. Es zeigen sich große Ähnlichkeiten zu den Phasendiagrammen von MnSi und anderer B20-Materialien. So konnten unterhalb der Ordnungstemperatur $T_c = 58.8 \text{ K}$ insgesamt vier unterschiedliche Phasen identifiziert werden. Mit Hilfe der Neutronenstreuung wurde im Rahmen dieser Doktorarbeit die mikroskopische Struktur dieser Phasen bestimmt, wie im Abschnitt 5.3 beschrieben. Genau wie in MnSi finden sich mit steigendem Magnetfeld eine helikale Phase, eine konische Phase und ein feldinduzierter ferromagnetischer Bereich. Innerhalb eines kleinen Temperaturbereichs knapp unter T_c konnte eine Skyrmionengitter-Phase nachgewiesen werden. Die Ergebnisse der Neutronenstreuung sind im Abschnitt 5.4 im Kontext weiterer Ergebnisse aus der aktuellen Forschung diskutiert.

5.1 Herstellung der Proben

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Volumenkristalle der Verbindung Cu_2OSeO_3 wurden von Herr Helmuth Berger (ETH Lausanne) zur Verfügung gestellt. Es wurden mehrere große Einkristalle ($\approx 0.2 \text{ g}$) mittels Gasphasentransport gezüchtet [84]. Wie die im Folgenden beschriebenen Tests an dem Neutronen-Diffraktometer RESI am FRM II bestätigen, ist der in diesen Messungen untersuchte Kristall von exzellenter Qualität. Bei einer Wellenlänge von $\lambda_n = 1.0408 \text{ \AA}$ ergab die Analyse von 60 Bragg-Peaks Gitterparameter von $a = b = c = (8.9199 \pm 0.00104) \text{ \AA}$ und Kristallwinkel von $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Diese Werte befinden sich in sehr guter Übereinstimmung mit den Literaturwerten [79, 80]. Bei einer Empfindlichkeit kleiner 1% wurden keine Verunreinigungen durch Fremdphasen festgestellt. Die Mosaizität des Kristalls lag unterhalb der Auflösungsgrenze von 0.02° . Wie Abb. 5.1 verdeutlicht stimmen viele der natürlich gewachsenen Facetten der Probe mit ent-

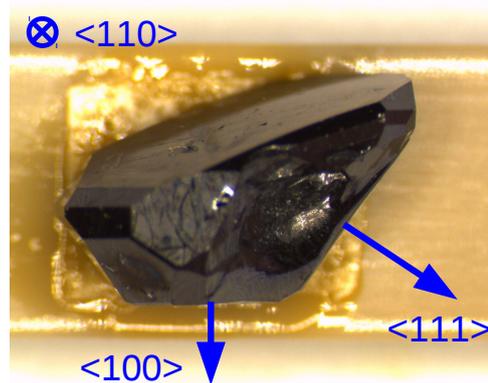


Abbildung 5.1: Cu_2OSeO_3 Probe, wie für Magnetisierungsmessungen auf einem Probenhalter montiert. Der mittels Gasphasentransport gezüchtete Kristall hat eine Masse von $m \approx 0.2$ g und ist von guter Qualität. Die großflächigen Facetten liegen in Richtung von verschiedenen Hauptkristallachsen.

sprechenden Hauptkristallachsen überein. Mit Hilfe eines Laue-Röntgen-Diffraktometers wurde der Kristall orientiert und anschließend auf den Probenhalter aufgeklebt.

5.2 Magnetisierung

Die Magnetisierung der Probe wurde in einem VSM (englisch: vibrating sample magnetometer) bestimmt [143]. Die Messung wurde in Magnetfeldern bis $B = 9$ T bei Temperaturen bis $T = 3$ K durchgeführt, wobei die Frequenz der Probe etwa 70 Hz und die Amplitude einige Zehntel Millimetern betrug. Für die Messungen der Magnetisierung danke ich Michael Wagner, der diese im Rahmen seiner Doktorarbeit durchgeführte [142]. In perfekter Übereinstimmung mit der Literatur zeigt die Magnetisierung oberhalb der Ordnungstemperatur $T_c = 58.8$ K ein Curie-Weiss-Verhalten mit einem fluktuierenden, magnetischen Moment von $\mu_{\text{CW}} \approx 1.5 \frac{\mu_B}{\text{Cu}}$ [79].

In Abb. 5.2 ist die Magnetisierung als Funktion der Temperatur um den Bereich von T_c für $\vec{B} \parallel \langle 111 \rangle$ gezeigt. Die Magnetisierung nimmt mit steigendem externen Magnetfeld zu. Teilbild (b) zeigt die typischen Temperaturabhängigkeiten für drei charakteristische Magnetfeldwerte, wobei jeweils das Verhältnis $\frac{\mu_0 M}{B}$ grafisch dargestellt ist. Für $B = 25$ mT sind klare Phasengrenzen bei T_{A1} und T_{A2} zu erkennen. Dagegen weisen Messungen mit $B = 15$ mT und $B = 40$ mT keine speziellen Merkmale auf, die als Hinweise auf Phasengrenzen gedeutet werden können. Dieses Verhalten ist konsistent mit den Eigenschaften von MnSi, in dem die gleichen qualitativen Charakteristiken der Magnetisierung zu beobachten sind [140].

Die Magnetfeldabhängigkeit (vgl. Abb. 5.3) ist mit den Messungen als Funktion der Temperatur konsistent. Für eine Temperatur $T = 3.3$ K und ein Magnetfeld $B > 120$ mT ergibt sich eine Sättigungsmagnetisierung von $M_s \approx 0.48 \frac{\mu_B}{\text{Cu}}$ (siehe Teilbild (a)). In den

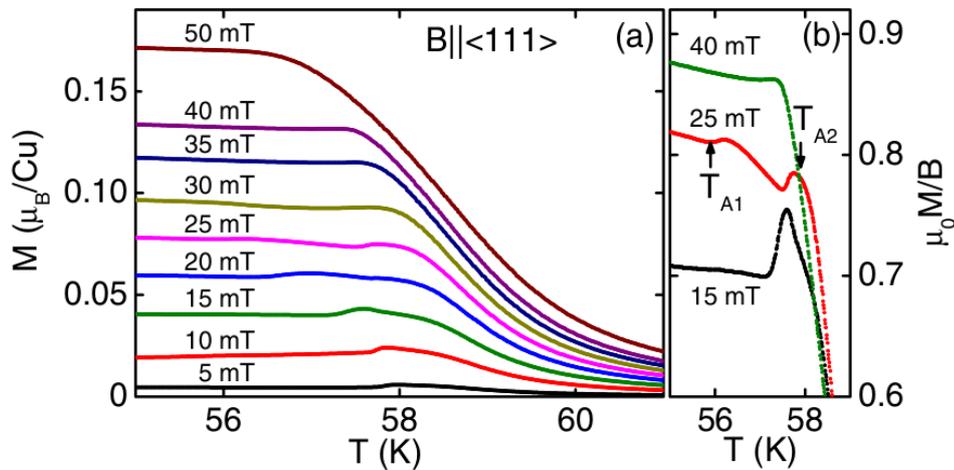


Abbildung 5.2: Magnetisierung als Funktion der Temperatur in dem Bereich um T_c . (a) Für steigende Magnetfelder nimmt die Magnetisierung zu. (b) Das Verhältnis $\frac{\mu_0 M}{B}$ als Funktion der Temperatur zeigt Merkmale, die typisch für einen Übergang der Skyrmionengitter-Phase sind. [9, 142].

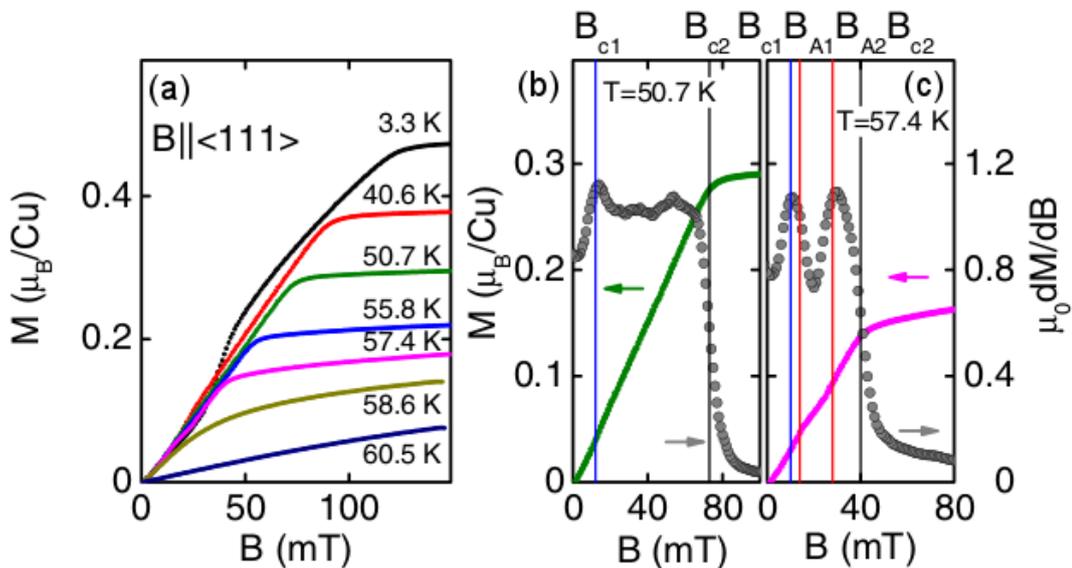


Abbildung 5.3: Magnetisierung als Funktion des Magnetfeldes. (a) Für sinkende Temperatur nimmt die Magnetisierung zu. (b) In der aus der Magnetisierung berechneten Ableitung $\frac{\mu_0 dM}{dB}$ (graue Datenpunkte) zeigen sich für eine Temperatur von $T = 50.7$ K die Phasenübergänge bei B_{c1} und B_{c2} . (c) Bei einer Temperatur von $T = 57.4$ K treten die zwei zusätzliche Übergänge B_{A1} und B_{A2} der Skyrmionengitter-Phase auf. Abb. aus Ref. [9].

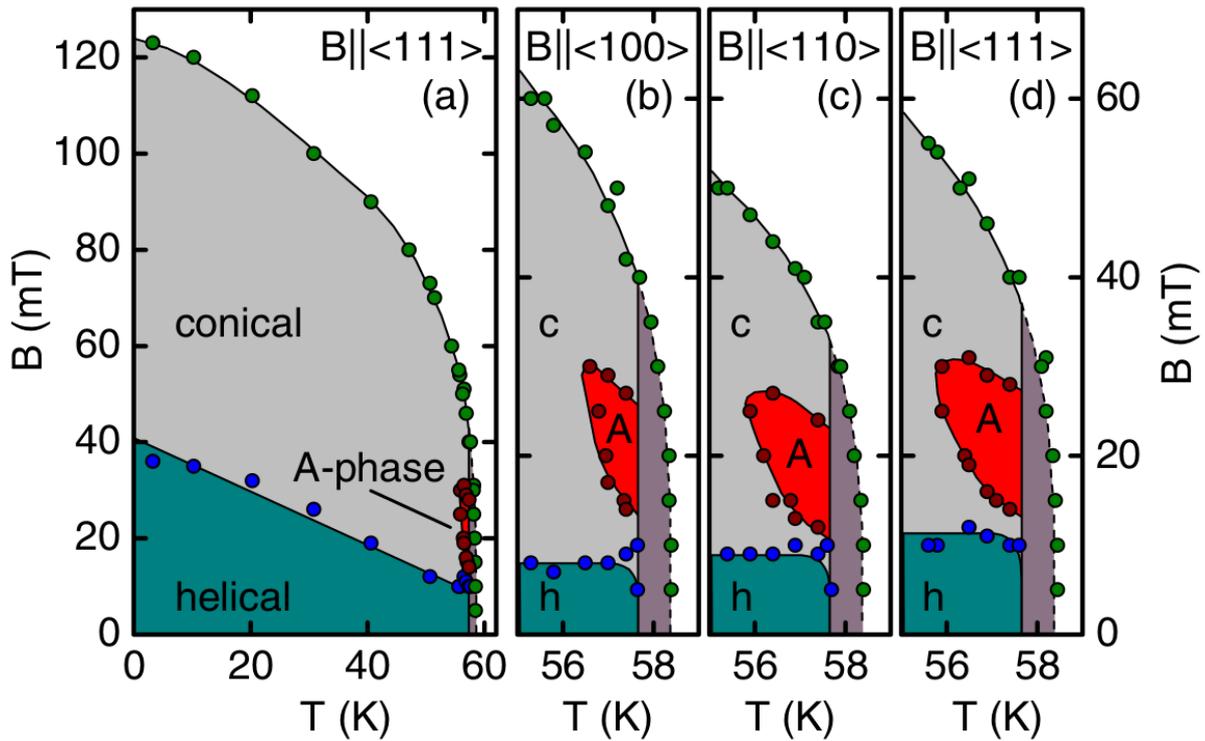


Abbildung 5.4: Magnetische Phasendiagramme von Cu_2OSeO_3 für verschiedene Orientierungen des externen Magnetfelds. (a) Überblick des gesamten Phasendiagramms bis zu tiefsten Temperaturen und einem Feld parallel zu $\langle 111 \rangle$. Die Phasengrenzen sind aus den Magnetisierungsmessungen abgeleitet. (b) bis (d) Phasendiagramme in dem Bereich um T_c für Magnetfelder in Richtung $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ bzw. $\langle 111 \rangle$. Für die $\langle 100 \rangle$ -Richtung ist die Ausdehnung der A-Phase als Funktion der Temperatur am kleinsten und für $\langle 111 \rangle$ am größten. Unterschiede als Funktion des angelegten Magnetfeldes sind überwiegend durch anisotrope Entmagnetisierungseffekte bedingt, welche aufgrund der Probenform nicht korrigiert sind. Abb. aus Ref. [9, 142].

Teilbildern (b) und (c) werden zwei Temperaturabhängigkeiten verglichen, wobei zusätzlich zu der Magnetisierung die daraus berechnete Ableitung $\frac{\mu_0 dM}{dB}$ dargestellt ist (graue Datenpunkte). Sowohl für $T = 50.7 \text{ K}$ (vgl. Teilbild b) als auch für $T = 57.4 \text{ K}$ (vgl. Teilbild c) ergeben sich zwei Phasengrenzen bei B_{c1} und B_{c2} . Zusätzlich werden in letzterem zwei Übergänge bei B_{A1} und B_{A2} beobachtet, die durch ein deutliches Minimum definiert sind. Das qualitative Verhalten der Magnetisierung mit den beschriebenen Merkmalen stimmt mit den Ergebnissen an binären B20-Verbindungen wie MnSi überein [140, 141].

Entsprechend ergeben sich aus den Magnetisierungskurven Phasendiagramme, die mit denen in MnSi vergleichbar sind (vgl. Abb. 5.4). Unterhalb der Ordnungstemperatur lassen sich vier Phasen unterscheiden. Wie in der Neutronenstreuung im Folgenden gezeigt wird, ordnet Cu_2OSeO_3 bis zu dem kritischen Feld B_{c1} helikal. In der konischen Phase für Magnetfelder oberhalb von B_{c1} werden die Helices in Magnetfeldrichtung gedreht. Oberhalb des kritischen Feldes B_{c2} tritt eine feldinduzierte, ferrimagnetische Phase auf.

In einem kleinen Temperaturbereich knapp unter der Ordnungstemperatur zwischen T_{A1} , T_{A2} , B_{A1} und B_{A2} tritt eine vierte Phase auf. Wie im folgenden Abschnitt ausgeführt wird, zeigen sich in der Neutronenstreuung Streubilder mit einer für die Skyrmionengitter-Phase typischen sechszähligen Symmetrie. Die Teilbilder (b), (c) und (d) in Abb. 5.4 zeigen das Phasendiagramm im Bereich der Skyrmionengitter-Phase für die drei Kristallhauptachsen $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ und $\langle 111 \rangle$. Dabei ist zu beachten, dass die Feldwerte der Phasengrenzen nicht direkt verglichen werden können, da sich die Entmagnetisierungsfaktoren der unterschiedlichen Richtungen unterscheiden. Eine Korrektur der Entmagnetisierungsfaktoren ist aufgrund der unregelmäßigen Probenform nicht möglich.

5.3 Kleinwinkel-Neutronenstreuung

Die Neutronenstreuexperimente an Cu_2OSeO_3 wurden an dem Diffraktometer MIRA2 am FRM II durchgeführt. Dabei wurde eine Wellenlänge von $\lambda_n = 5 \text{ \AA} \pm 2\%$ eingesetzt. Der Neutronenstrahl wurde mit Blenden in der Nähe des Monochromators und der Probe kollimatisiert (vgl. Abb. 2.4). Der Abstand der Blenden betrug dabei etwa 1.5 m. Die erste Blende hatte eine Öffnung von $3 \times 3 \text{ mm}^2$ und die zweite $0.6 \times 0.8 \text{ mm}^2$. Der CASCADE Detektor befand sich etwa zwei Meter hinter der Probe. Die mittels Röntgen-Laue-Verfahren (Genauigkeit: $\pm 3^\circ$) vororientierte Probe wurde so eingebaut, dass eine $\langle 110 \rangle$ -Hauptachse senkrecht zu dem Neutronenstrahl stand. Die endgültige Ausrichtung der Probe im Kryostat erfolgte anhand der magnetischen Bragg-Peaks der helikalen Phase (Genauigkeit: $\pm 0.1^\circ$). In der Ebene senkrecht zu der $\langle 110 \rangle$ -Drehachse befanden sich alle Hauptachsen, die damit alle in Richtung des Neutronenstrahls gedreht werden konnten.

Mit den SANS-Experimenten konnte die genaue mikroskopische Spinstruktur der einzelnen oben ermittelten Phasen aufgeklärt werden. Dazu wurden zu allen im Folgenden gezeigten SANS-Daten komplette Rocking-Scans durchgeführt. Für die Streubilder zu den einzelnen Rockingwinkeln wurden entsprechende Messungen des Untergrunds weit über T_c subtrahiert. Typische Summenstreubilder über komplette Rocking-Scans sind in Abb. 5.5 gezeigt. Diese werden in den folgenden Abschnitten präsentiert.

5.3.1 Helikale Phase

Die Streubilder der helikalen Phase bei einer Temperatur von $T = 5 \text{ K}$ und $B = 0$ und dem Neutronenstrahl parallel zu $\langle 100 \rangle$ bzw. $\langle 110 \rangle$ sind in Abb. 5.5 (a) und (b) gezeigt. Es ergibt sich eine Streuintensität mit scharfen Peaks in Richtung der drei $\langle 100 \rangle$ -Kristallachsen. Im Gegensatz zu MnSi liegt die magnetische leichte Richtung somit parallel zu $\langle 100 \rangle$. Der Streuvektor der helikalen Phase im Nullfeld beträgt $k \approx (0.0102 \pm 0.0008) \text{ \AA}^{-1}$, woraus auf eine Propagationslänge der Spinmodulation von $\lambda \approx (616 \pm 45) \text{ \AA}$ geschlossen werden kann. Die schwachen zusätzlichen Peaks entlang der $\langle 110 \rangle$ -Achsen in Teilbild (a) sind charakteristisch für Doppelstreuung an den Helices. Streuung höherer Ordnung, wie diese

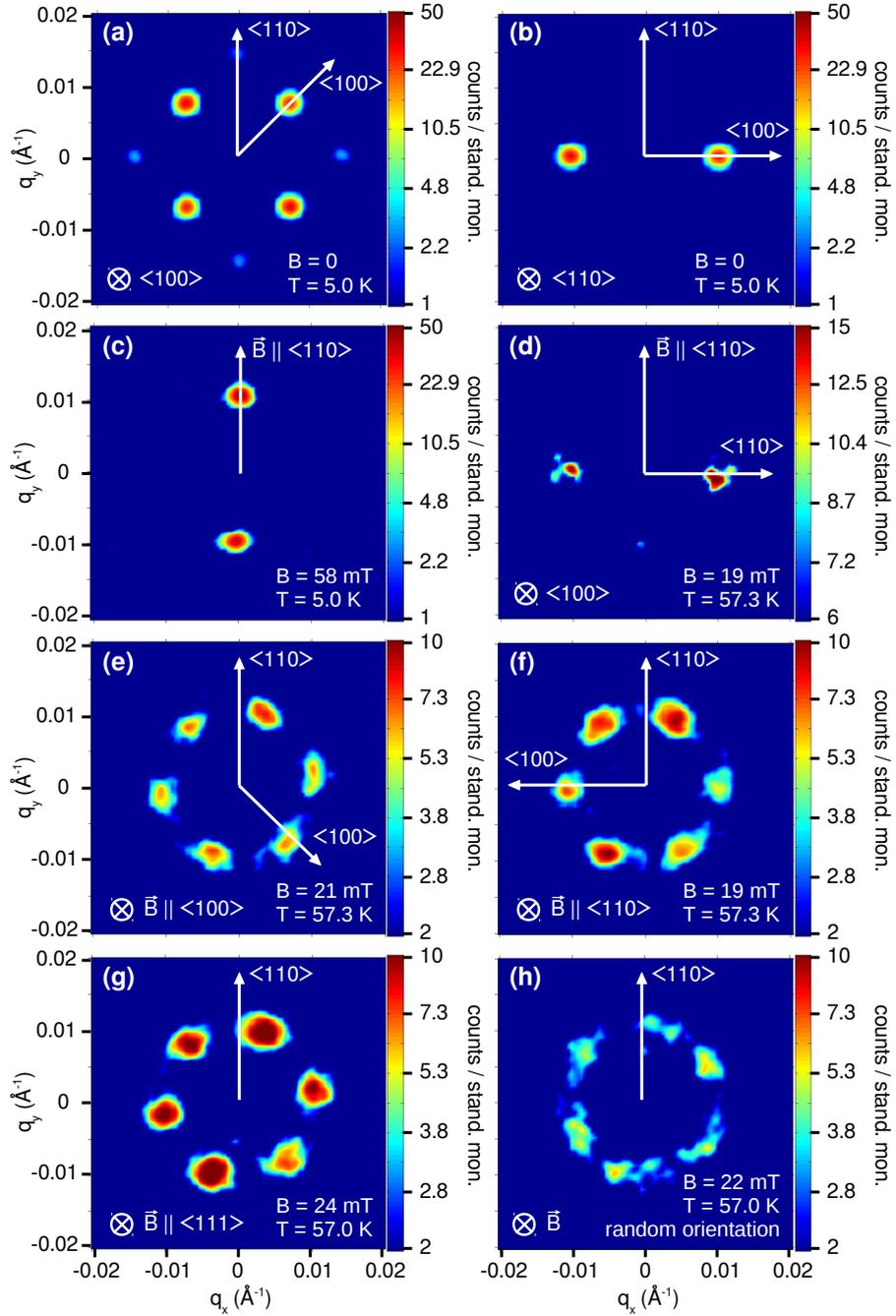


Abbildung 5.5: Integrierte Streuintensität in Rocking-Scans bei der Kleinwinkel-Neutronenstreuung in Cu_2OSeO_3 . (a) Streubild der helikalen Phase im Nullfeld für Neutronenstrahl parallel zu der $\langle 100 \rangle$ -Richtungen. Die Helices der helikalen Phase liegen entlang der $\langle 100 \rangle$ Richtungen. (b) Helikale Phase im Nullfeld für Neutronenstrahl parallel zu der $\langle 110 \rangle$ -Richtungen. (c) Typisches Streubild für die konische Phase mit Peaks entlang der äußeren Magnetfeldrichtung. (d) Streubild der A-Phase für Magnetfeld senkrecht zu dem Neutronenstrahl. (e)-(h) Die typische Sechszählige Symmetrie der A-Phase für verschiedene Orientierungen der Probe mit Magnetfeld parallel zu dem Neutronenstrahl. Abb. aus Ref. [9].

für das Skyrmionengitter in MnSi auftritt (vgl. Kapitel 3), wird in der helikalen Phase nicht erwartet.

Erste Tests mit polarisierten Neutronen deuten darauf hin, dass es sich um eine chirale Modulation der Spins handelt und damit um eine helikale Phase, wie sie in MnSi beobachtet wird. Der helikale Zustand ist somit ein einfach modulierter Zustand (single-k), wobei drei verschiedene Domänen mit Helices in den $\langle 100 \rangle$ -Richtungen auftreten. Dieser Befund ist konsistent zu den Phasengrenzen des Skyrmionengitters, die sich aus den Magnetisierungsmessungen ergeben (vgl. Abb. 5.4). Konsistent mit der magnetisch leichten Richtung entlang $\langle 100 \rangle$ ist die Ausdehnung der Skyrmionengitter-Phase als Funktion der Temperatur für ein Setup mit Magnetfeld in Richtung der $\langle 100 \rangle$ -Richtung am kleinsten. Dies lässt sich einfach verstehen, da in diesem Setup die konische Phase durch die Orientierung der Helices in Richtung $\langle 100 \rangle$ besonders stabil ist und dadurch das Skyrmionengitter energetisch benachteiligt ist.

Die helikale Ordnung lässt sich, wie in der Einleitung ausführlich diskutiert wird 1.3, durch eine Hierarchie von drei Energieskalen erklären. Die schwächste dieser drei Energieskalen, die magnetische Anisotropie, ist für die Ausrichtung der helikalen Domänen im Kristall ausschlaggebend. Im Unterschied zu den SANS-Ergebnissen in Cu_2OSeO_3 sind die Helices der helikalen Ordnung in MnSi in Richtung der $\langle 111 \rangle$ -Hauptachsen [1, 50, 86] orientiert. Es genügt dabei, das Vorzeichen des führenden magnetischen Anisotropieterms in Cu_2OSeO_3 im Vergleich zu MnSi zu wechseln.

Die hier berichtete $\langle 100 \rangle$ Orientierung der helikalen Ordnung widerspricht weiterhin den Beobachtungen von Seki et al. in dünnen Schichten von Cu_2OSeO_3 , bei denen eine $\langle 110 \rangle$ -Propagationsrichtung der helikalen Phase beobachtet wird [76]. Messungen an dünnen Schichten können jedoch wegen der zusätzlich zu berücksichtigenden Formanisotropie nicht mit denen an Volumenproben verglichen werden.

5.3.2 Konische Phase

In dem Magnetfeldbereich $B_{c1} < B < B_{c2}$ ergibt sich, bei einem experimentellen Aufbau mit Magnetfeld senkrecht zu dem Neutronenstrahl, das in Abb. 5.5 (c) gezeigte Streubild. Zu sehen sind zwei Intensitätspeaks parallel zu der Magnetfeldrichtung bei einer Temperatur von $T = 5.0 \text{ K}$ und einem Feld von $B = 58 \text{ mT}$. Da das kritische Feld B_{c1} überschritten ist, bricht die helikale Ordnung zusammen und die Helices klappen parallel in Richtung des Magnetfelds. Wie in MnSi entspricht dies dem Verhalten einer Spin-Flop-Phase konventioneller Antiferromagneten und kann als konische Phase identifiziert werden.

Eine Betrachtung der Intensität der Peaks als Funktion des Rockingwinkels ergibt scharfe Lorentz-Kurven. In Abb. 5.6 ist eine Rockingkurve der konischen Phase exemplarisch gezeigt. Der Datenfit ergibt eine Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum) von $\text{FWHM} = 1.8^\circ$ und zeigt, dass die magnetische Mosaizität der konischen Phase klein

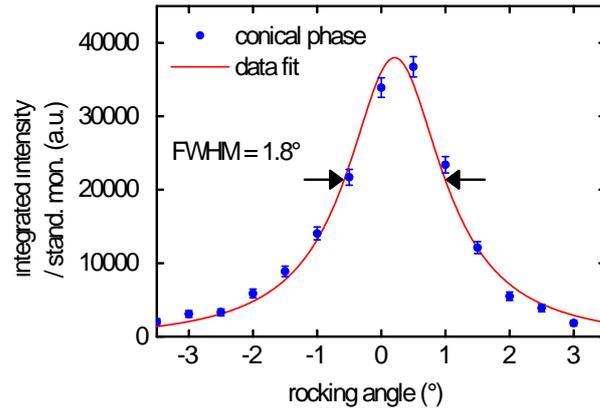


Abbildung 5.6: Integrierte Intensität eines Bragg-Peaks der konischen Phase als Funktion des Rockingwinkels. Der Fit der Daten mittels einer Lorentz-Kurve führt zu einer Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 1.8^\circ$.

ist. Dies deutet auf einen hohen Ordnungsgrad der Struktur hin. Rocking-Scans in der helikalen Phase liefern vergleichbare Daten.

5.3.3 Skymionengitter

Knapp unter T_c im Bereich der A-Phase bildet sich ein Ring von sechs Spots senkrecht zu dem angelegten Magnetfeld unabhängig von der Orientierung der Probe relativ zu der Magnetfeldrichtung. In Teilbild (d) ist ein Streubild der A-Phase mit einem Magnetfeld senkrecht zu der Neutronenstrahlrichtung gezeigt. Es sind zwei Intensitätspeaks senkrecht zu dem angelegten Feld zu sehen. Die volle sechszählige Symmetrie des Streubildes der A-Phase zeigt sich in den Teilbildern (e)-(h) mit einem Magnetfeld parallel zu dem Neutronenstrahl.

Das sechszählige Streubild wird weiterhin für verschiedene Orientierungen der Probe relativ zu der Magnetfeldrichtung beobachtet (vgl. Teilbild (e) für $\langle 100 \rangle \parallel \vec{n}$ bei $T = 57.3 \text{ K}$ und $B = 21 \text{ mT}$, (f) für $\langle 110 \rangle \parallel \vec{n}$ bei $T = 57.3 \text{ K}$ und $B = 19 \text{ mT}$ und (g) für $\langle 111 \rangle \parallel \vec{n}$ bei $T = 57.0 \text{ K}$ und $B = 24 \text{ mT}$). In azimuthaler Richtung treten die sechs Spots dabei bevorzugt so auf, dass einer der Peaks in Richtung einer $\langle 100 \rangle$ -Hauptachse ausgerichtet ist. Dies ist mit der magnetisch leichten $\langle 100 \rangle$ Orientierung in der helikalen Phase konsistent. Selbst für Kristallorientierungen fern der Kristallhauptachsen kann eine schwache sechszählige Symmetrie nachgewiesen werden (vgl. Teilbild (e)).

Im Gegensatz zu der helikalen und konischen Phase sind die magnetischen Rockingbreiten der Skymionengitter-Phase sehr breit. Für eine Kristallorientierung mit $\langle 111 \rangle \parallel \vec{B}$ ergibt der Rocking-Scan eine Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 2.6^\circ$ (vgl. Abb. 5.7 (a)). Für andere Orientierungen werden die Rockingkurven deutlich breiter. Die Halbwertsbreite für $\langle 110 \rangle \parallel \vec{B}$ ergibt $\text{FWHM} = 16.5^\circ$ (vgl. Teilbild (b)). Dies stellt einen deutlichen Unterschied im Vergleich zu den Eigenschaften des Skymionengitters in MnSi dar (vgl. Abschnitt 3.1).

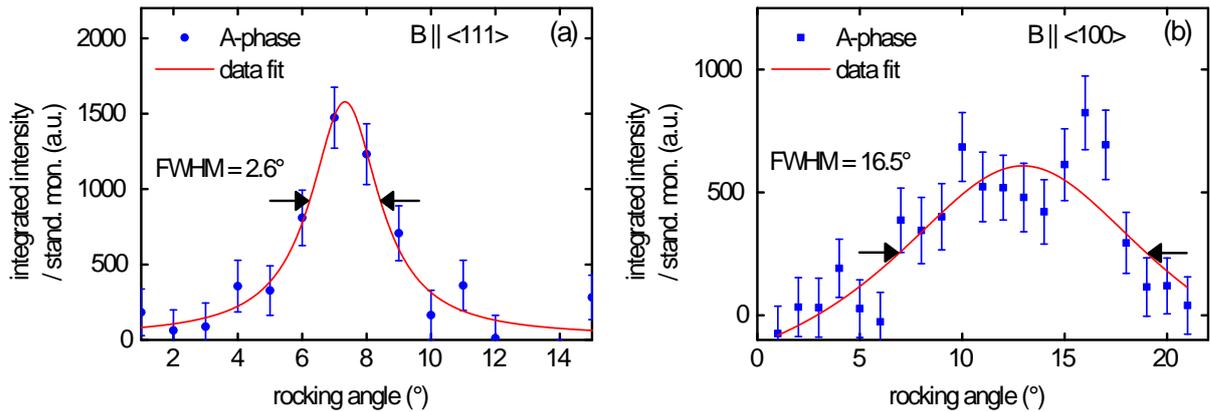


Abbildung 5.7: Integrierte Intensität eines Bragg-Peaks der Skyrmionengitter-Phase als Funktion des Rockingwinkels. (a) Für $\langle 111 \rangle \parallel \vec{B}$ ergeben die Daten eine Halbwertsbreite von $\text{FWHM} = 2.6^\circ$. Für andere Kristallorientierungen ergeben sich deutlich breitere Rockingkurven. (b) Die Halbwertsbreite für $\langle 110 \rangle \parallel \vec{B}$ ergibt $\text{FWHM} = 16.5^\circ$. Außerdem zeigen die Daten hysteretisches Verhalten (näheres siehe Text).

Wie weiterführende Messungen an kugelförmigen Proben zeigen, die nach Abschluss der Messungen im Rahmen dieser Doktorarbeit durchgeführt wurden, läuft die Größe der Rockingbreite mit multi-Domänenzuständen und dem Wechselspiel mit den ferroischen Eigenschaften zusammen.

5.3.4 Phasengrenzen

Die Temperatur- und Feldbereiche der unterschiedlichen Phasen in der Neutronenstreuung stimmen gut mit den Phasengrenzen des aus der Magnetisierung bestimmten Phasendiagramms überein. Typische integrierte Intensitätsverläufe der Peaks in den Streubildern als Funktion von Temperatur und Magnetfeld sind in Abb. 5.8 dargestellt. Der Intensitätsverlauf der SANS-Daten der helikalen Phase bei T_c im Nullfeld in Teilbild (a) weist auf einen Übergang zweiter Ordnung hin. Allerdings zeigen Messungen der spezifischen Wärme einen scharfen Peak bei T_c , wie er bei latenter Wärme bei Übergängen erster Ordnung auftritt (vgl. Abb. 5.10). Damit verbunden ist der Phasenübergang vermutlich sehr schwacher erster Ordnung bei $B = 0$ konsistent mit einem von Fluktuationen getriebenem Phasenübergang erster Ordnung. Die Intensitäten der Temperatur- und Magnetfeldmessreihen der A-Phase für $\vec{B} \parallel \langle 111 \rangle$ in Teilbild (b) und (c) bestätigen die Phasengrenzen der in Abb. 5.4 gezeigten Phasendiagramme.

Der Übergang von der helikalen zu der konischen Phase bei B_{c1} und das Verschwinden der Intensität der konischen Phase bei B_{c2} können in Abb. 5.9 (a) nachvollzogen werden. Die Label (1), (2) und (3) geben dabei die Reihenfolge und die Pfeile die Richtung der Messsequenzen an. In Teilbild (b) sind die Peakintensitäten der helikalen (h), konischen (c) und A-Phase (A) im Temperaturbereich der A-Phase als Funktion des Magnetfeldes grafisch dargestellt. Wie erwartet verschwindet die konische Phase im Bereich der A-

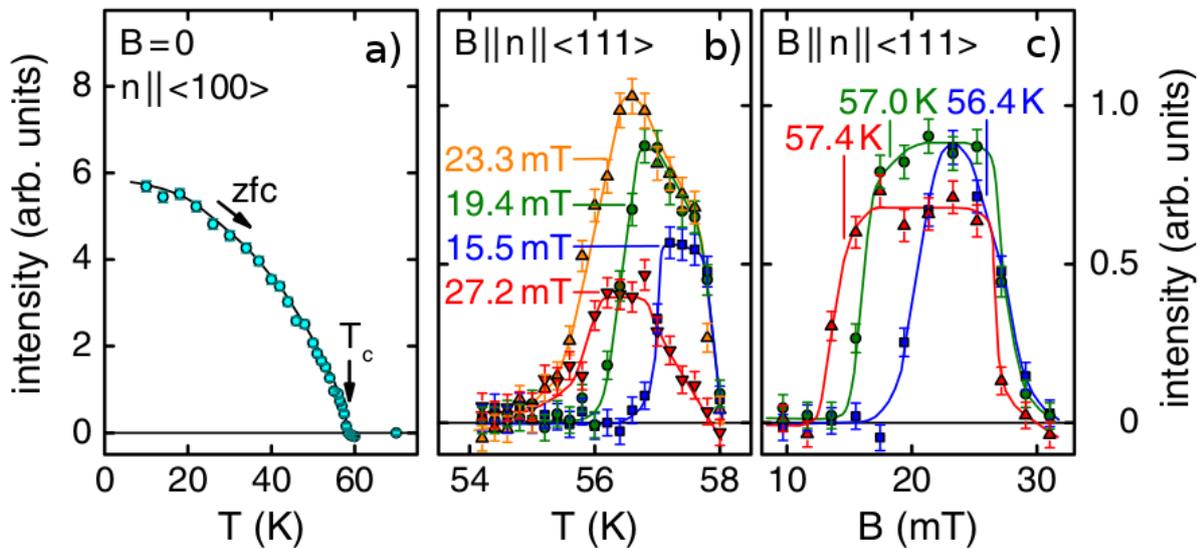


Abbildung 5.8: Typische Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeiten der Peakintensitäten in der Kleinwinkel-Neutronenstreuung. (a) Temperaturabhängigkeit der integrierten Intensität der helikalen Ordnung im Nullfeld. Diese ist charakteristisch für einen Phasenübergang zweiter Ordnung. (b) Intensität der Peaks in der A-Phase als Funktion der Temperatur für unterschiedliche Feldwerte. (c) Intensität der Peaks in der A-Phase als Funktion des Magnetfeldes für unterschiedliche Temperaturen. Abb. aus Ref. [9].

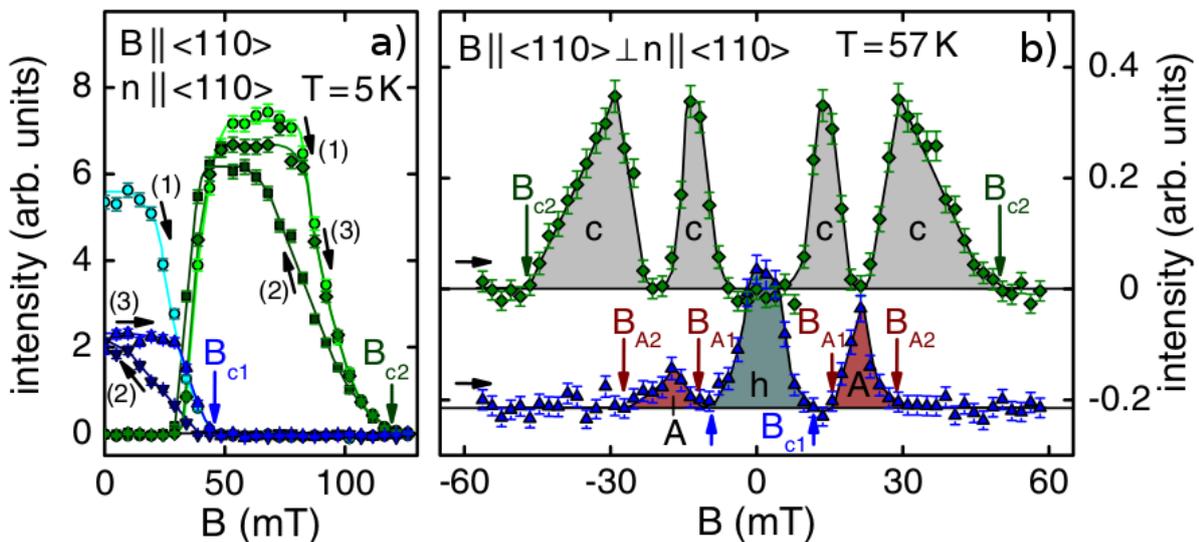


Abbildung 5.9: Magnetfeldabhängigkeiten der Peakintensitäten in der Kleinwinkel-Neutronenstreuung. (a) Feldabhängigkeit der Intensität der Phasen für $T = 5.0$ K, wobei die Dreiecke die Intensität der helikalen Phase und die Vierecke die der konischen Phase angeben. Die Label (1), (2) und (3) geben die Reihenfolge und die Pfeile die Richtung der Messreihen an. (b) Feldabhängigkeit im Temperaturbereich der A-Phase für die Intensitäten der helikalen Phase (Dreiecke markiert mit h), konischen Phase (Vierecke markiert mit c) und der A-Phase (Dreiecke markiert mit A). Abb. aus Ref. [9].

Phase völlig. An der Grenze zwischen beiden Phasen besteht ein Koexistenzbereich, der auf anisotrope Entmagnetisierungseffekte zurückzuführen sein könnte. Genau wie bereits bei den Magnetisierungsmessungen sind bei den Feldwerten der Neutronendaten Entmagnetisierungseffekte der Probe nicht korrigiert. Die Bestimmung der absoluten Feldwerte der Phasengrenzen und insbesondere der Vergleich zwischen den unterschiedlichen Kristallorientierungen ist daher nicht möglich.

5.4 Diskussion

Die magnetischen Phasendiagramme von Cu_2OSeO_3 sind denen von MnSi bemerkenswert ähnlich, obwohl sich beide Materialien bis auf die kubische $P2_13$ Raumgruppe in vielen Eigenschaften unterscheiden. Während MnSi aus einer relativ einfachen Einheitszelle mit nur acht Atomen aufgebaut ist, besteht die komplexe Einheitszelle von Cu_2OSeO_3 aus 56 Atomen. Im Gegensatz zu MnSi ist das Oxid Cu_2OSeO_3 eine tertiäre Verbindung und ein Isolator. Die führende magnetische Wechselwirkung ist nicht ferromagnetisch, sondern ferrimagnetisch. Trotzdem liegen die einzelnen Phasen beider Materialien in ähnlichen Temperatur- und Feldbereichen, was auf ähnliche hierarchische Verhältnisse der Energieskalen hinweist.

Die sechszähligen Streubilder innerhalb der A-Phase werden konsistent mit der Arbeit von Seki et al. [76] und analog zu den Ergebnissen in MnSi [1] als Skymionengitter interpretiert. Die vorliegenden Messungen können allerdings keinen Nachweis einer nicht verschwindenden Windungszahl geben, wie sie für das Skymionengitter erwartet und für MnSi im Abschnitt 1.2.2 beschrieben wird. Hierzu sind weitere Untersuchungen an Cu_2OSeO_3 nötig [8, 15]. Die direkte Messung des Skymionengitters im Realraum von Seki et al. [76] wurden an dünnen Cu_2OSeO_3 Proben durchgeführt und haben daher nur begrenzt Aussagekraft über entsprechende Volumenkristalle.

Die für das Skymionengitter typische sechszählige Symmetrie in den Streubildern wird weiterhin nicht nur für die Hauptkristallachsen, sondern auch für beliebige Kristallorientierungen dazwischen beobachtet. Dies deutet entsprechend den Ergebnissen für MnSi aus Kapitel 4 darauf hin, dass thermische Fluktuationen das Skymionengitter stabilisieren [1]. Eine Stabilisierung durch kubische Anisotropieterme widerspricht dagegen den Beobachtungen an Cu_2OSeO_3 [34, 35]. Allerdings muss berücksichtigt werden, dass das Streubild der Skymionengitter-Phase für die zufällige Kristallorientierung nur noch sehr schwach ausgeprägt ist. In diesem Fall scheint die magnetische Ordnung der Struktur weniger langreichweitig zu sein.

Die Phase des Skymionengitters erstreckt sich für Metalle [91, 99, 102, 103, 144], wie für Halbleiter [86, 87], als auch für den Isolator Cu_2OSeO_3 über einen ähnlichen Temperaturbereich. Die Hierarchie der Energieskalen scheint somit in allen System vergleichbar, und eine Stabilisierung durch uniaxiale Anisotropien [36, 95] scheint eine untergeordnete

Rolle zu spielen. Dies deutet wiederum darauf hin, dass thermische Fluktuationen für die Stabilisierung des Skyrmionengitters verantwortlich sind (vgl. Abschnitt 1.2.1).

Wie im Ergebnisteil bereits erläutert (vgl. Abschnitt 5.3.3) sind die Rockingkurven des Skyrmionengitters relativ breit, insbesondere deutlich breiter als die der helikalen und konischen Phase. Lediglich für die Kristallorientierung $\langle 111 \rangle \parallel \vec{B}$ ergeben sich relativ schmale Rockingkurven, ansonsten zeigen die Kurven eine Breite bis zu $\text{FWHM} = 16.5^\circ$. Dies lässt darauf schließen, dass die magnetische Mosaizität sehr hoch und der Ordnungsgrad der Phase nicht sehr langreichweitig ist. Außerdem sind diesbezüglich auch die auftretenden Wechselwirkungen zwischen den ferroischen Ordnungen zu berücksichtigen. So zeigt sich eine starke Kopplung zwischen der helimagnetischen Ordnung und der ferroelektrischen Polarisierung [145].

Weiterhin können die vorliegenden Messungen die Arbeit von Seki et al. nicht bestätigen, welche die A-Phase von Cu_2OSeO_3 in zwei Bereiche mit unterschiedlicher azimuthaler Orientierung der sechs Bragg-Peaks unterteilt [77]. Wie bereits erwähnt zeigt sich in den Daten dieser Arbeit in der Regel eine azimuthale Orientierung mit Bragg-Peaks in Richtung der $\langle 110 \rangle$ -Achse. Genauere Untersuchungen ergeben allerdings Abweichungen und starke hysteretische Effekte. Auch die Rockingkurven verändern Form und Position je nach Vorgeschichte und auch in Abhängigkeit von Magnetfeld und Proben temperatur. Insgesamt deuten diese Beobachtungen darauf hin, dass die Struktur weniger geordnet ist und die kubischen Anisotropieterme komplizierter sind, als dies in MnSi der Fall ist. Während die Untersuchungen an MnSi in Kapitel 4 zu einem sehr präzisen Verständnis der Anisotropie des Skyrmionengitters führen, kann dies auf Cu_2OSeO_3 somit nicht einfach übertragen werden.

Weiterführende Messungen an der Kleinwinkel-Anlage SANS-1 am FRM II mit deutlich höherer Auflösung und größerem Neutronenfluss, die erst in jüngerer Zeit durchgeführt wurden, bestätigten die Messungen an dem Instrument MIRA. Dort zeigte sich, dass je nach Temperatur- und Magnetfeldbereich im Phasendiagramm zwei, drei oder sogar noch mehr Domänen des Skyrmionengitters mit unterschiedlicher azimuthaler Orientierung auftreten. Insgesamt ergibt sich somit, dass das Verständnis des Skyrmionengitters in Cu_2OSeO_3 weit komplizierter zu sein scheint, als dies in MnSi der Fall ist. Ein möglicher Grund dafür könnte die in diesem Oxid auftretende magnetoelektrische Kopplung sein. Vergleichbare Untersuchungen der kubischen Anisotropieterme, wie sie im Rahmen dieser Arbeit bereits an MnSi erfolgreich durchgeführt wurden, sind für die Zukunft geplant (vgl. Kapitel 4).

Wie oben bereits beschrieben zeigen die Daten der Neutronenstreuung im Nullfeld einen Übergang zweiter Ordnung bei T_c (vgl. Abb. 5.8). Dagegen weisen Messungen der spezifischen Wärme eindeutig auf einen Übergang erster Ordnung hin. Abb. 5.10 (a) zeigt entsprechende Daten mit breitem Maximum bei T_c . Auf dem breiten Maximum sitzt ein scharfer Peak, der charakteristisch für latente Wärme ist, die bei Übergängen erster Ordnung auftritt. Mit zunehmendem Magnetfeld wird das breite Maximum zusammen mit dem scharfen Peak unterdrückt. Gleichzeitig bleibt der Wendepunkt, der den Übergang

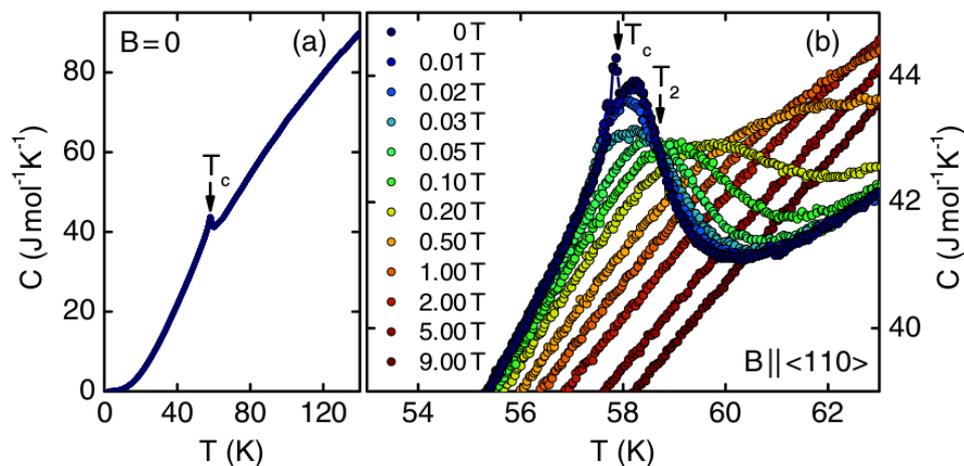


Abbildung 5.10: Spezifische Wärme von Cu_2OSeO_3 zeigt eindeutig einen Übergang erster Ordnung. Auf einem breiten Maximum bei T_c sitzt ein scharfer Peak, der charakteristisch für latente Wärme ist. Die Position des Wendepunkts, welche den Übergang T_2 markiert, bleibt für Magnetfelder $B < B_{c2}$ unverändert, wie es für eine Vollhardt-Invarianz zu erwarten ist [55, 146].

T_2 markiert, für $B < B_{c2}$ unverändert, wie es für eine Vollhardt-Invarianz zu erwarten ist [55, 146].

In MnSi zeigt sich ein ähnliches Verhalten, welches auf einen fluktuations-induzierten Übergang erster Ordnung zurückzuführen ist. Dort wird der helimagnetische Charakter der Fluktuationen für $T < T_2$ dominant [54, 141, 147, 148]. Daraus lässt sich schließen, dass die verstärkte magnetoelektrische Kopplung durch Spinströme verursacht wird, welche dem helimagnetischen Charakter der Spin-Fluktuationen zugrunde liegen. Da die magnetoelektrische Kopplung relativ schwach ist, stellt ein umfassendes Verständnis dieser eine große Herausforderung für die Zukunft dar. Die magnetoelektrische Kopplung in Cu_2OSeO_3 ermöglicht eine direkte Manipulation von Skyrmionen mittels elektrischen Feldes und führte zuletzt zu Untersuchungen der technischen Anwendungsmöglichkeit von Skyrmionen [149, 150].

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Doktorarbeit konnte die Streuung höherer Ordnung des Skyrmionengitters in MnSi erfolgreich nachgewiesen werden [8]. Dies stellt einen wichtigen mikroskopischen Nachweis für das Skyrmionengitter und die nicht-triviale Topologie desselben in Volumenproben von MnSi dar. Da das Verhältnis der Intensität von Streuung höherer Ordnung zu Streuung erster Ordnung nur sehr klein ist, sind Deformationen von der perfekten Sinusmodulation der 3-q-Struktur nur sehr klein. Die experimentellen Daten werden somit von dem idealen theoretischen Modell des Skyrmionengitters hervorragend beschrieben [1].

Aus der Magnetfeld- und Temperaturabhängigkeit der Streuung höherer Ordnung lässt sich indirekt auf die Phasenlage der drei superponierten Helices schließen. Entsprechend den theoretischen Vorhersagen ergibt sich, dass alle drei Helices die gleiche Phase $\alpha = 0$ haben müssen. Entsprechende Simulationen der Windungszahl pro Einheitszelle ergeben für die Phase $\alpha = 0$ und die uniforme Magnetisierung $M_f = 0.78$ ein Antiskyrmionengitter mit Windungszahl $W = -1$. Die sich daraus ergebende Spinstruktur weist betragsmäßig nur minimale Variationen der lokalen Magnetisierung auf und ist damit energetisch besonders stabil.

Weiterhin wird in dieser Arbeit das Verhalten des Skyrmionengitters in Abhängigkeit von der Kristallorientierung detailliert untersucht. Die entsprechenden experimentellen SANS-Daten in MnSi zeigen zunächst, dass das Skyrmionengitter für alle untersuchten Kristallorientierungen stabil bleibt. Dies stützt das theoretische Modell nach Rosch et al. [1] wonach thermische Fluktuationen zu der Stabilisierung des Skyrmionengitters führen. Im Gegensatz hierzu würden Anisotropieterme, wie sie von Bogdanov et al. [34] vorgeschlagen wurden, dazu führen, dass das Skyrmionengitter nur für bestimmte Kristallorientierung stabil wird.

Außerdem zeigt sich als Funktion der Kristallorientierung ein Mäandern des Normalenvektors der Skyrmionengitterebene um die Magnetfeldrichtung und ein breiter Übergang zwischen zweier azimuthaler Orientierungen in der Ebene. Dieses Anisotropieverhalten kann mit einem geeigneten theoretischen Modell sehr detailliert verstanden werden. Daraus

können die Anisotropieterme für das Skyrmionengitter in MnSi halbquantitativ ermittelt werden. Somit stellt diese Methode im Vergleich zu der Torque-Magnetometrie eine sehr gut geeignete technische Methode zur Ermittlung von Anisotropietermen dar.

Eine genaue Auswertung der Winkel und Längen der 3-q-Struktur des Skyrmionengitters für alle untersuchten Kristallorientierungen ergibt, dass die Struktur in allen Fällen nahezu eine perfekte Superposition von drei Helices im Winkel von 120° zueinander darstellt. Es können keine nennenswerten Verzerrungen in Winkel oder Länge der Gitterkonstanten festgestellt werden. Zusammengefasst lässt sich das Skyrmionengitter in Volumenproben von MnSi, wie in dieser Doktorarbeit untersucht, ausgezeichnet durch das theoretische Modell aus Ref. [1] beschreiben. Alle experimentell untersuchten Verhaltensweisen können sehr detailliert verstanden und theoretisch modelliert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte mittels SANS auch in Volumenkristallen des Isolators Cu_2OSeO_3 das Skyrmionengitter nachgewiesen werden [9]. Es zeigen sich trotz der vielen Unterschiede der Verbindungen MnSi und Cu_2OSeO_3 große Parallelen. So ergeben sich sehr ähnliche Phasendiagramme mit ähnlichen Phasengrenzen und, wie die SANS-Daten zeigen, gleicher mikroskopischer Spinstruktur. Allerdings können nicht alle Erkenntnisse in MnSi auf Cu_2OSeO_3 übertragen werden. So zeigt das Oxid im Gegensatz zu MnSi hysteretisches Verhalten und insbesondere die Anisotropien zeigen komplexes Verhalten und müssen weiter untersucht werden.

Skyrmionen in chiralen Magneten sind als möglicher Informationsträger in der Datenspeichertechnologie von großem Interesse, da die klassischen ferromagnetischen Domänen in Festplatten zunehmend an ihre physikalischen Grenzen der Miniaturisierung geraten. Durch Abstimmen des Verhältnisses der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung zu dem ferroelektrischen Austausch, können sehr kompakte topologisch stabile Skyrmionen modelliert werden. Aktuelle theoretische und experimentelle Untersuchungen zeigen erfolgreich die gezielte Erzeugung und Löschung einzelner Skyrmionen [3, 151–153]. Das aktuelle Konzept der Racetrack-Speicher [154], in denen ferroelektrische Domänenwände verschoben werden, lässt sich ebenfalls auf Skyrmionen übertragen [7]. Dabei kann die Speicherdichte erheblich erhöht werden. Außerdem sind die nötigen Stromdichten zur Manipulation von Skyrmionen um viele Größenordnungen kleiner als die entsprechenden Stromdichten zur Manipulation von Domänenwände [16, 155, 156]. Die dazu nötigen Nanodrähte aus B20-Metallverbindungen können bereits hergestellt werden [157] und erste LTEM-Messungen zeigen stabile Skyrmionen in Nanodrähte aus MnSi [158]. Das Multiferroikum Cu_2OSeO_3 ist in diesem Zusammenhang von besonderem Interesse, da sich die elektrische Polarisierung und die Magnetisierung wechselseitig beeinflussen lässt [159]. Entsprechende Untersuchungen zeigen, dass sich auf diese Weise das Skyrmionengitter durch elektrische Felder beeinflussen lässt [149, 160, 161].

Teil II

Weiterführende Methoden

Kapitel 7

Modul für elliptische Neutronenleiter

Viele interessante Fragestellungen der Festkörperphysik lassen sich am besten mit Hilfe von Neutronenstreuung klären. In bestimmten Fällen können nur sehr kleine Probenvolumina untersucht werden. So können die Kristalle mancher Verbindungen nur in sehr kleinen Größen in ausreichender Qualität hergestellt werden. Weiterhin erfordern viele wichtige Fragen Untersuchungen unter extremen Bedingungen wie hohe Magnetfelder, tiefe Temperaturen oder hohe Drücke, die jeweils nur für kleine Volumen erreicht werden können. Insbesondere Untersuchungen an Quantenphasenübergängen spielen dabei eine große Rolle. Im Gegensatz zu z.B. Synchrotron-Experimenten sind in der Neutronenstreuung je nach Material kleine Proben ($< 10 \text{ mm}^3$) untypisch und aufgrund der viel geringeren Flussdichte sehr anspruchsvoll. Insbesondere bei inelastischer Neutronenstreuung kommen nach Möglichkeit relativ große Probenvolumina (einige cm^3) zum Einsatz, um ein brauchbares Signal mit vertretbaren Messzeiten zu erhalten. Um trotzdem mit möglichst kleinen Probenvolumina erfolgreich Neutronenstreuung zu betreiben, muss das Signal verstärkt und der Untergrund reduziert werden. Eine elegante Methode, beides zu erreichen, sind fokussierende Neutronenleiter.

Im Folgenden wird ein kurzer Überblick zu dem aktuellen Stand der Forschung zu fokussierenden Neutronenleitern gegeben. Anschließend werden die Entwicklungen des elliptischen Leiter-Moduls vorgestellt. Abschließend folgt eine Testmessung der Domänen-Population in dem transversalen Spindichtewellen-Zustand von Chrom unter uniaxialen Druck, welche die praktische Einsetzbarkeit des Leiter-Moduls zeigen wird [10]. Das neue elliptische Leiter-Modul zeichnet sich durch den modularen Aufbau aus und kann innerhalb weniger Stunden installiert werden.

7.1 Stand der Forschung

Der Einfluss von hydrostatischem Druck auf die magnetischen Eigenschaften von Festkörpern war in den letzten Jahrzehnten von großem Interesse [162]. Technisch kommen dabei

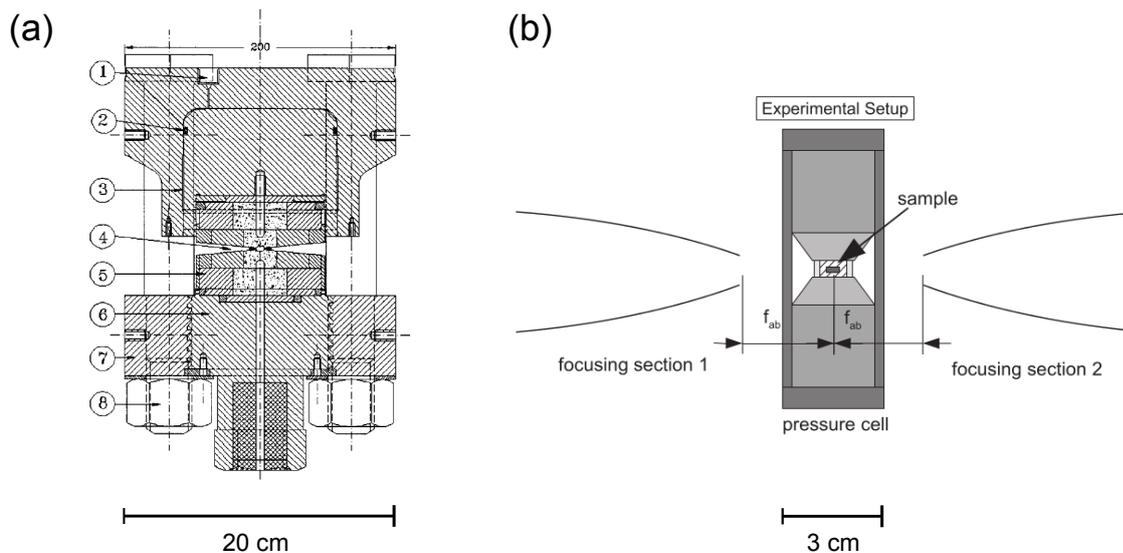


Abbildung 7.1: Druckzellentypen in der Neutronenstreuung. (a) Die Paris-Edinburgh-Zelle wird vor allem in der inelastischen Neutronenstreuung für extreme Drücke eingesetzt. Sie ist allerdings sehr massiv und damit bei tiefen Temperaturen träge. Bild entnommen aus [164]. (b) Die Bridgman-Zelle ist deutlich kleiner und erreicht ebenfalls sehr hohe Drücke (bis zu 200 kbar). Wegen des sehr kleinen Probenvolumens der Zelle ist das Ziel, fokussierende Neutronenleiter einzusetzen. Abb. aus Ref. [165].

verschiedene Typen von Druckzellen zum Einsatz. Für verhältnismäßig kleine Drücke (< 30 kbar) können Zylinder-Stempel-Zellen sehr zuverlässig eingesetzt werden. Das Probenvolumen ist in diesem Fall verhältnismäßig groß, gleichzeitig müssen die Neutronen aber die relativ dicke Zylinderwand der Zelle durchdringen. Dabei kommt es zu einem Verlust von bis zu 80% des Neutronenflusses und zu einer erheblichen Erhöhung des inkohärenten Untergrundes.

Technisch deutlich aufwendiger, aber eine deutliche Weiterentwicklung stellt die sogenannte Paris-Edinburgh-Zelle dar [163,164] (vgl. Abb. 7.1 (a)). Diese ist speziell für inelastische Neutronenstreuung entwickelt worden. Damit sind Drücke von bis zu 100 kbar erreichbar trotz verhältnismäßig großem Probenvolumen. Um das zu erreichen, sind Paris-Edinburgh-Zellen groß konstruiert mit einigen Dezimetern Durchmesser und einem Gewicht von bis zu 60 kg. Daher sind Messungen bei tieferen Temperaturen extrem aufwendig. Es wird eine spezielle Kryogen-Technik benötigt, und die Kühlung auf die Basistemperatur kann sehr lange dauern. Nach jeder Temperaturänderung dauert es weiterhin lange, bis sich die Proben temperatur wieder im neuen Gleichgewicht befindet. Ein Vorteil zu den Zylinder-Stempel-Zellen besteht darin, dass keine dicke Zylinderwand den Neutronenstrahl behindert. Die Druckzelle ist so konzipiert, dass die Neutronen fast unmittelbar auf die Probe treffen und nur eine Metaldichtung durchdringen müssen.

Alternativ können die wesentlich kleineren Bridgman-Zellen eingesetzt werden (vgl. Abb. 7.1 (b)). Diese erreichen Drücke bis zu 200 kbar und bringen alle Vorteile der Paris-Edinburgh-Zellen mit sich. Der entscheidende Unterschied besteht in der sehr viel kleineren

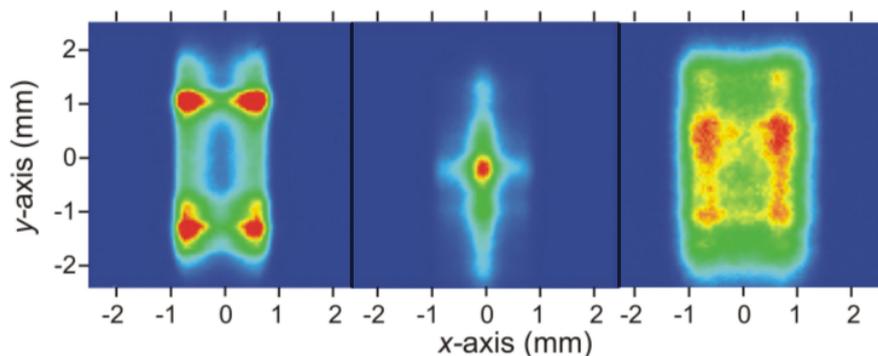


Abbildung 7.2: Detektorbilder des mittels elliptischen Leiters fokussierten Neutronenstrahls kurz nach dem Leiterausgang, an dem Fokuspunkt ($d = 80$ mm) und 200 mm nach dem Leiterausgang. Abb. aus Ref. [167].

ren Bauweise und dem daraus resultierenden kleineren Probenvolumen. Somit spielen die oben beschriebenen Probleme bei tiefen Temperaturen keine Rolle. Um trotz des kleinen Probenvolumens ein messbares Verhältnis von Signal zu Untergrund zu erreichen, werden fokussierende Neutronenleiter eingesetzt [166].

Im Bereich der Neutronenoptik wurden in den letzten Jahrzehnten deutliche Fortschritte erzielt [168]. Die ersten fokussierenden Neutronenoptiken bestanden aus geraden, sich schräg zuspitzenden Leitern. Typischerweise wurden dabei Verstärkungsfaktoren am Fokuspunkt von 3-4 erreicht [166, 169]. Eine technische Weiterentwicklung sind gebogene Neutronenleiter, die es ermöglichen, parabolisch [170–172] oder elliptisch [165, 173–175] geformte Leiter einzusetzen und so optische Artefakte zu reduzieren.

In Abb. 7.2 wird die fokussierende Wirkung eines elliptischen Leiters gezeigt [167]. Im Fokuspunkt ($d = 80$ mm) hinter dem Leiter werden die Neutronen auf einen Querschnitt von 1 mm gebündelt. Werden zwei elliptische Leiter in der in Abb. 7.3 gezeigten Weise kombiniert, kann der Neutronenstrahl zuerst auf die Probe fokussiert werden, um dann nach der Streuung an der Probe wieder in einen parallelen Neutronenstrahl umgewandelt zu werden. Zu beachten ist, dass dadurch am Probenort die Divergenz des Neutronenstrahls künstlich erhöht wird. Hierdurch nimmt die Intensität zu. Aktuelle Monte-Carlo-Simulationen zeigen die Vor- und Nachteile von fokussierenden elliptischen gegenüber parabolischen Neutronenleitersystemen [176]. Zusätzlich hat sich die Qualität der Beschichtung der Superspiegel deutlich verbessert. Aktuelle Superspiegel erreichen eine Reflektivität bis zu $m = 7$ [177].

Zur technischen Umsetzbarkeit von Hochdruckmessungen mit Bridgman-Zellen ist es erforderlich, mit fokussierenden Leitern sehr kleine Proben messen zu können. Dies wurde in unserer Arbeitsgruppe bereits erfolgreich an dem antiferromagnetischen Signal einer kleinen (0.1 mm^3) Probe des Isolators NiS_2 demonstriert [165, 178]. Die Messungen zeigten aber auch, dass die Justierung der fokussierenden Leiter und der Probe sehr aufwändig war. Zudem musste bei jedem neuen Experiment die Justierung erneut durchgeführt werden. Ein wichtiges Ziel war somit die Möglichkeit, die Leiter möglichst schnell und repro-

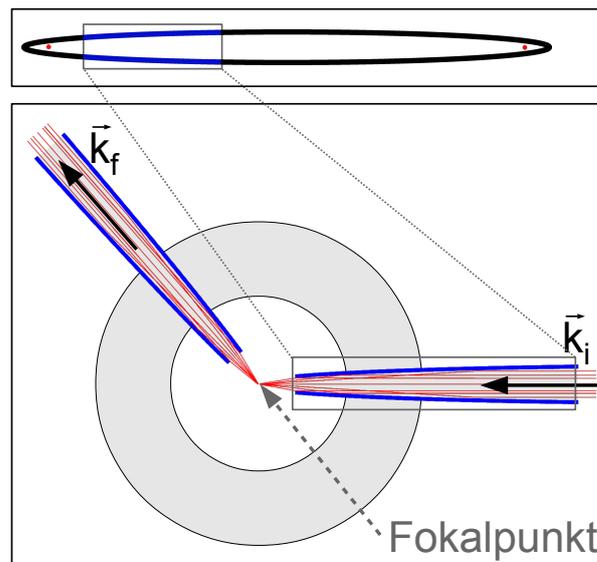


Abbildung 7.3: Grundprinzip fokussierender elliptischer Leiter. Eine Ellipse ist durch zwei Brennpunkte definiert. Werden nun zwei Teilstücke einer Ellipse, wie in der Abbildung gezeigt, genutzt, kann ein paralleler Neutronenstrahl zunächst auf einen Probenort fokussiert werden und durch ein komplementäres Ellipsenstück wieder in einen parallelen Neutronenstrahl geformt werden. Zu beachten ist, dass sich dadurch die Divergenz am Probenort zwangsläufig erhöht.

duzierbar zu installieren. Zu diesem Zweck wurde ein elliptisches Leitermodul konzipiert, mit dessen Hilfe die Leiter, einmal justiert, sehr leicht und schnell ausgetauscht oder bei einem neuen Experiment neu aufgesetzt werden können. Teil dieser Doktorarbeit war es das Leitermodul zu testen und zu optimieren. Es wurde eine Methodik zur exakten und effizienten Justierung der Leiter erarbeitet und darauf aufbauend eine Schritt-für-Schritt-Anleitung formuliert. Abschließend wurden Messungen der Spindichtewellen in Chrom mit dem Leitermodul durchgeführt, um die Funktion des Aufbaus zu demonstrieren.

7.2 Entwicklung des elliptischen Leitermoduls

Abb. 7.4 zeigt ein Schema des Probenstisches (grau) mit aufgesetztem elliptischen Leitermodul (grün) und dem Goniometer mit Kryostat (blau). Das Leitermodul besteht aus einer Basisplatte (P), zwei um das Zentrum rotierbare Schlitten (B) mit den beiden darauf aufsetzbaren Neutronenleiterhaltern (H). In diese Halter (H) können die elliptischen Leiter (G) mit Hilfe von Stellschrauben eingespannt und justiert werden. Eine genauere Darstellung liefert das Foto in Abb. 7.5 (a). Prinzipiell ist das Modul universal an verschiedenen Instrumenten einsetzbar. In dieser Arbeit wurde das Modul auf den Probenstisch des Instruments MIRA am FRM II montiert und getestet.

Eine solide Justierung mit einem klar definierten horizontalen Strahlenverlauf und einem zentrierten Probenstisch ist für ein Neutronenstreuungsinstrument selbstverständlich. Für den

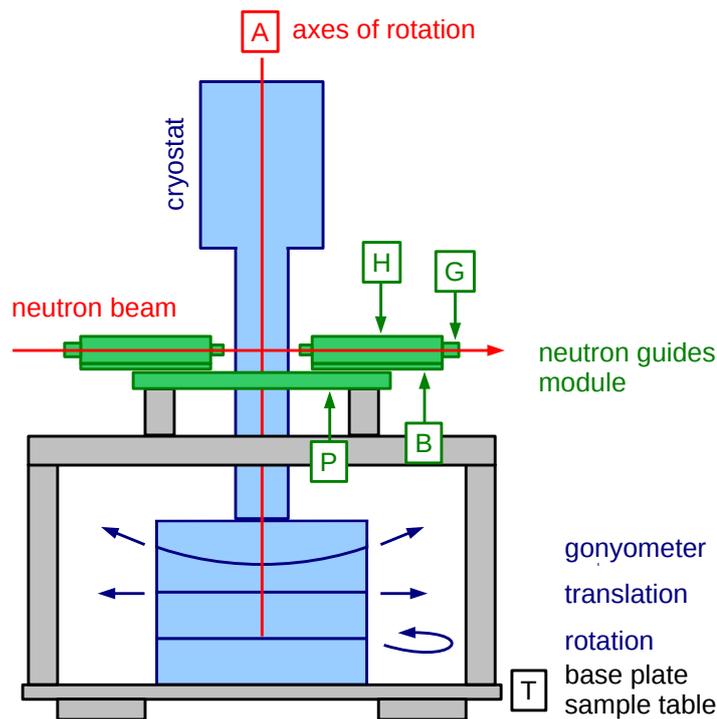


Abbildung 7.4: Probestisch (grau) mit aufgesetztem elliptischen Leitermodul (grün) und Kryostat auf Goniometer (blau). Die Achse des Neutronenstrahls und die Rotationsachse des Goniometers (A) bilden ein Bezugssystem an dem sich die gesamte Justierung des Moduls ausrichtet.

Einsatz des elliptischen Leitermoduls ist die Grundjustierung des Instruments aber von zusätzlicher Bedeutung, da es durch die Fokussierung auf kleinste Feinjustierungen ankommt. Bei einer Fokussierung von 1 mm müssen die Neutronenleiter beispielsweise auf 0.1 mm bzw. 0.1° genau ausgerichtet werden. Bevor also das eigentliche Modul justiert werden kann, muss die Justierung des Probestisch überprüft werden und gegebenenfalls korrigiert werden (vgl. im Folgenden Abb. 7.4). Die Rotationsachse (A) des Goniometers auf dem Probestisch definiert dabei eine Koordinatenachse, die Mitte des Neutronenstrahles definiert eine zweite Koordinatenachse, an denen sich alles andere auszurichten hat. Ziel ist es, dass die Rotationsachse (A) senkrecht steht, der Neutronenstrahl waagrecht und sich folglich beide Achsen exakt senkrecht schneiden. An dem Schnittpunkt dieser beiden Achsen befindet sich der Probenort. Dieser definiert den Ursprung des Koordinatensystems zur Justierung.

Im nächsten Schritt kann das Leitermodul auf den Probestisch (T) gesetzt werden. Dabei ist wichtig, dass das Zentrum der runden Basisplatte (P) mit der Drehachse des Goniometers übereinstimmt. Dies kann mit Hilfe einer im Zentrum des Probestisches installierten Stahlspitze und einer daran angelegten, an einer Leiter-Halter-Platte (B) befestigten Messuhr erreicht werden. Die Positionierung ist exakt, wenn die Messuhr während der Rotation der Leiter-Halter-Platten (B) um die Stahlspitze keinen Ausschlag mehr anzeigt. Außerdem muss das Modul in der richtigen Höhe positioniert sein, damit sich die Neutronenleiter auf Höhe des Neutronenstrahls befinden. Wenn sich die Basisplatte (P)

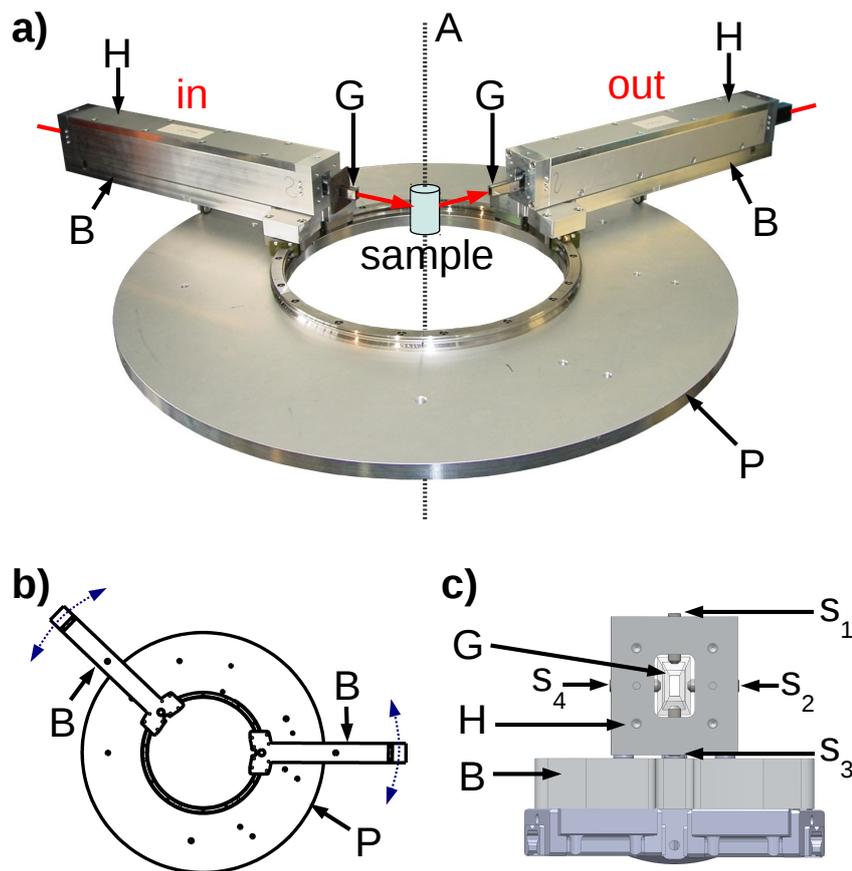


Abbildung 7.5: Elliptisches Leitermodul. (a) Foto von dem Aufbau bestehend aus: (P) Runde Basisplatte mit Schienensystem. (B) Zwei Leiter-Halter-Platten, die durch ein Schienensystem präzise um die Probenachse (A) in der Mitte drehbar sind. (H) Beide Leiter-Halter liegen in einer Dreipunktlagerung auf den Leiter-Halter-Platten auf. (G) Elliptische Neutronenleiter. (b) Schematische Aufsicht ohne die Leiter-Halter (H). (c) Ein elliptischer Leiter inkl. Halterung aus der Sicht der Probenposition. Der Neutronenleiter kann mit Hilfe von Stellschrauben S_i exakt in der Position justiert werden. Abb. aus Ref. [10].

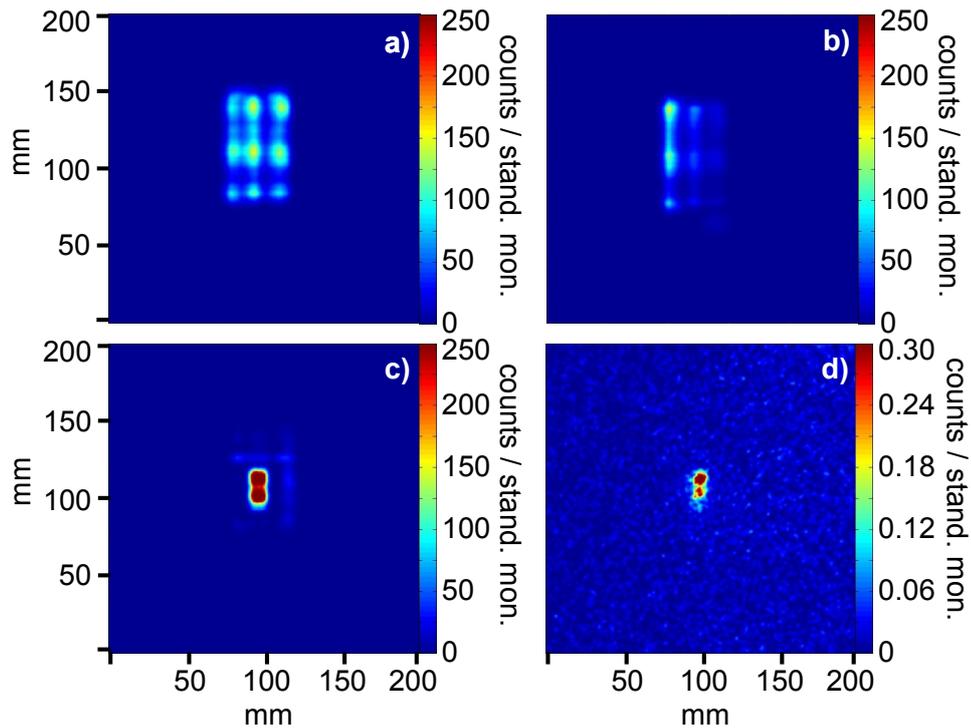


Abbildung 7.6: Streubilder am Flächendetektor für verschiedene Konfigurationen des elliptischen Leitermoduls. (a) Detektorbild des direkten Strahls mit einem elliptischen Leiter deutlich hinter dem Fokuspunkt für eine exakte Justierung. Es ergibt sich ein symmetrisches Bild mit neun Maxima und maximaler Intensität. (b) Detektorbild mit einem nicht optimal justierten, elliptischen Leiter. Die Fehljustierung führt zu einer Asymmetrie des Streumusters in vertikaler und horizontaler Richtung. (c) Nach Aufsetzen des zweiten Leiters und dessen Justierung zeigt sich ein symmetrisches Abbild des $18 \times 9 \text{ mm}^2$ Ausgangs von Leiter 2. Der Neutronenstrahl verläuft damit wieder parallel. (d) Streubild eines Bragg-Reflexes einer Chrom-Probe mit zwei justierten Leitern. Abb. aus Ref. [10].

waagrecht im Wasser befindet, sollte das Modul entsprechend parallel zu dem einfallenden Neutronenstrahl verlaufen. Die Anpassung an die Höhe und Richtung des Neutronenstrahls kann später noch einmal mit den Neutronenleitern nachjustiert werden. Dagegen muss das Zentrum der Basisplatte (P) exakt in der Drehachse (A) des Goniometers liegen, da dies nachher nicht mehr nachjustiert werden kann.

Beide Schlitten (B) laufen auf einem exakt gefrästen Schienensystem um das Zentrum der Basisplatte (vgl. Abb. 7.5 (b)). Die beiden Leiterhalter (H) sind abnehmbar und liegen mittels einer Dreipunktlagerung in einer exakt definierten Position auf dem Schlitten. Der Auflage ist dabei auf 0.01 mm und 0.01° genau. Sind die Neutronenleiter (G) in den Haltern einmal exakt justiert, können diese damit zusammen mit den Leiterhaltern (H) abgenommen und später absolut reproduzierbar wieder aufgesetzt werden. Somit ist es ebenfalls möglich, dass verschiedene Leitersysteme mit verschiedenen Eigenschaften wie Beschichtung, oder Fokallänge eingesetzt und gegeneinander ausgetauscht werden, ohne zwischendurch aufwändig neu justiert werden zu müssen.

Die Leiter innerhalb der Leiterhalter werden optisch mit Hilfe eines Lasers justiert. Das Lasersystem bestehend aus einem Laser und einem Linsensystem wird auf der dem Monochromator zugewandten Seite des Leitersystems montiert. Damit wird ein paralleler Neutronenstrahl simuliert. Da Neutronen auf der Oberfläche der Neutronenleiter dem gleichen Reflexionsgesetz folgen wie Licht, verhält sich der Laserstrahl sehr ähnlich zu den Neutronen.

Die Qualität der Justierung und die Intensität des ausfallenden Strahls korreliert direkt mit der Symmetrie des Musters des austretenden Strahls. Somit gilt die Faustregel: Je höher die Symmetrie des Querschnittsmusters des ausfallenden Strahls, desto besser die Justierung und damit die erzielte Intensitätsausbeute. Zur Optimierung der Justierung wird daher in einem Abstand etwas größer als die Fokuslänge ein Blatt Papier auf der Ausgangsseite des Neutronenleiter montiert. Unter Beobachtung des Lasermusters auf dem Papier wird der Leiter in dem Halter mittels der Stellschrauben S_i justiert (vgl. Abb. 7.5 (c)). Für die eingesetzten elliptischen Leiter ergibt sich ein Muster aus neun Maxima in regelmäßiger rechteckiger drei-mal-drei Anordnung. Die neun Maxima bestehen aus dem direkten Strahl in der Mitte, den Reflexionen in den vier Ecken und den Reflexionen an den Seitenwänden oben, unten, rechts und links. Wenn der Leiter in dem Halter nicht exakt orientiert ist, kommt es zur Abschwächung einiger Maxima und zusätzlich zu einer asymmetrischen Verzerrung des Gesamtmusters. Volle Symmetrie bedeutet, dass der Leiter sowohl in der Horizontalen als auch in der Vertikalen exakt parallel zum Strahl verläuft.

Zusätzlich muss der Fokuspunkt genau mit der Probenposition übereinstimmen. Dazu kann eine Stahlspitze an die Probenposition angebracht werden um zu überprüfen, ob der Fokuspunkt sich mit der Stahlspitze deckt. Ist das nicht der Fall, liegt das daran, dass der Leiter in dem Halter nicht exakt mittig sitzt.

Die Justierung des Leitermoduls mittels der Laserapparatur kann natürlich auch vorbereitet werden, ohne Strahlzeit am Neutroneninstrument zu benötigen. Um die Justierung

durch das Lasersystem zu überprüfen, kann dies mit Hilfe des direkten Neutronenstrahls und einem Flächendetektor überprüft werden. In Abb. 7.6 sind entsprechende Messungen an dem Instrument MIRA II am FRM II dargestellt. Neutronen der Wellenlänge $\lambda = 4.5 \text{ \AA} \pm 2\%$ wurden mit einem ortsauflösenden Flächendetektor gemessen. Die eingesetzten Neutronenleiterelemente waren Teil eines zwei Meter langen elliptischen Leiters mit einer kritischen Reflektivität, $m = 3$ mal dem kritischen Winkel von Ni. Jeder der beiden Leiterelemente war 500 mm lang, hatte eine Fokuslänge von 80 mm und einen Fokuspunkt mit der Größe von etwa 1 mm^2 . Der Querschnitt auf der Eingangsseite betrug $18 \times 9 \text{ mm}^2$ und auf der Seite des Fokus $8 \times 4 \text{ mm}^2$ [173].

Abb. 7.6 (a) zeigt das Streumuster des direkten Neutronenstrahls mit einem justierten Leiter etwa einen Meter hinter dem Fokuspunkt am Probeort. Wie bei dem Lasersystem korrelieren die neun Maxima mit dem direkten Strahl in der Mitte und den jeweiligen Reflexen aus den Seiten und Ecken außen [167, 179]. Für einen nicht optimal justierten Leiter entstehen unerwünschte Asymmetrien der neun Maxima wie in Teilbild (b) dargestellt. Der zweite Leiter hinter der Probenposition führt den Strahlengang der Neutronen in umgekehrter Weise zurück in einen parallelen Neutronenstrahl. Teilbild (c) zeigt das resultierende Detektorbild mit beiden aufgesetzten Leitern. Es zeigt sich ein Abbild des zweiten Leiterausgangs. Nach Positionierung einer kleinen, einkristallinen Chrom-Probe am Probenort konnte mit den zwei aufgesetzten Leitern ein nuklearer [100] Bragg-Reflex gemessen werden (vgl. Teilbild d)).

Damit ist das Leitermodul vollständig justiert und getestet. Mit Hilfe des Flächendetektors ist es möglich, ein Verständnis für das Verhalten und die auftretenden optischen Artefakte der elliptischen Leiter zu gewinnen. Im Folgenden wurde der Flächendetektor durch ein Zählrohr ausgewechselt, da dies die übliche Detektorvariante für Diffraktion oder Dreiachsenspektrometrie darstellt.

7.3 Testmessungen mit elliptischen Leitern

7.3.1 Effekt von uniaxialem Druck auf Chrom

Um zu demonstrieren, dass das Leitermodul auch sinnvoll eingesetzt werden kann, und um die Vorteile und Eigenheiten kennen zu lernen, wurde in dieser Doktorarbeit der Effekt von uniaxialem Druck auf die Domänen-Population in dem transversalen Spindichtewellen-Zustand (TSDW: transverse spin density wave) in Chrom untersucht [10]. Chrom durchläuft bei der Néel-Temperatur von $T_N = 311 \text{ K}$ einen Übergang erster Ordnung vom paramagnetischen Zustand in den TSDW-Zustand [180]. Die inkommensurablen Wellenvektoren sind dabei gegeben durch $Q^\pm = (0, 0, 1 \pm \xi)$ mit $\xi \approx 0.046$ [181]. Unter hohem Druck $p = 10 \text{ GPa}$ wird die antiferromagnetische Ordnung von Chrom unterdrückt [182]. Lange wurde vermutet, dass der Übergang bei T_N unter uniaxialem Druck von erster Ordnung zu zweiter Ordnung wechselt [183]. Diesbezügliche Untersuchungen der Domä-

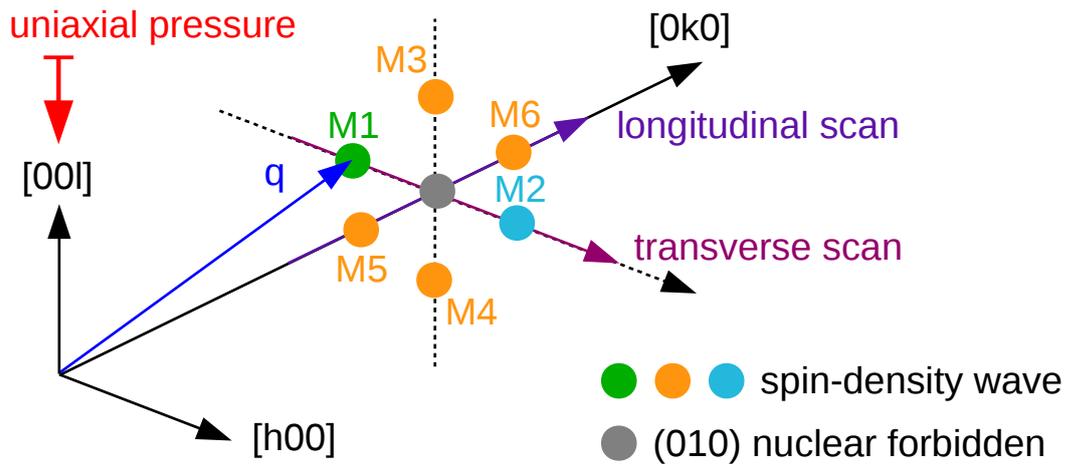


Abbildung 7.7: Schema mit den Bragg-Reflexen der Spindichtewellen um den verbotenen nuklearen Bragg-Peak (010) in Chrom. Bei einem transversalen Scan, wie in der Abbildung eingezeichnet, wird der Peak bei M1 und M2 durchlaufen bei einem longitudinalen entsprechend M5 und M6. Der nukleare Peak bei (010) ist per Auswahlregel verboten, und Streuungen höherer Ordnung wurden mittels Beryllium-Filter unterdrückt. Abb. aus Ref. [10].

nenbesetzung in Chrom unter uniaxialem Druck konnten die Frage nicht abschließend klären [184].

Für die folgenden Untersuchungen wurde ein kleiner Würfel ($2 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$) aus einkristallinem Chrom genutzt. Die Würfelflächen der Probe sind durch die drei Hauptachsen (100), (010) und (001) gegeben. Um den uniaxialen Druck an der Probe anzulegen, wurde ein aktives uniaxiales Druckzellensystem eingesetzt [185–187]. Sämtliche Messungen wurden mit dem oben beschriebenen Aufbau an dem Instrument MIRA II mit dem zuvor justierten elliptischen Leitermodul durchgeführt. Wie oben bereits erwähnt, wurde der Flächendetektor für diese Messung gegen einen Zählrohr-Detektor ausgetauscht. Alle Messungen wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Die Probe war in der Art eingebaut, dass die [001]-Achse der Probe in Richtung des uniaxialen Drucks senkrecht zu der Neutronenstrahlrichtung ausgerichtet war.

Eine schematische Darstellung des untersuchten reziproken Raums ist in Abb. 7.7 gezeigt. Alle Messungen wurden in der nahen Umgebung der verbotenen, nuklearen (010) bzw. (100)-Reflexe durchgeführt. Um parasitäre Streuung höherer Ordnung der verbotenen nuklearen Reflexe auszuschließen, wurde ein Beryllium-Filter eingesetzt. Es wurden zwei unterschiedliche Scan-Richtungen um den nuklearen, verbotenen Bragg-Peak angewendet. Zum einen transversale q -Scans, also senkrecht zu dem Streuvektor \mathbf{q} , was im Wesentlichen einem Rocking-Scan entspricht. Zum anderen longitudinal, also parallel zu \mathbf{q} , was einem ϑ - 2ϑ -Scan entspricht. Die magnetischen Reflexe der TSDW sind in der Schemazeichnung 7.7 mit M1 - M6 durchnummeriert.

Ein typischer transversaler q -Scan ohne elliptische Leiter ist in Abb. 7.8 (a) dargestellt. Es treten in Übereinstimmung mit der Literatur die zwei Maxima M1 und M2 bei $\xi \approx \pm 0.046$

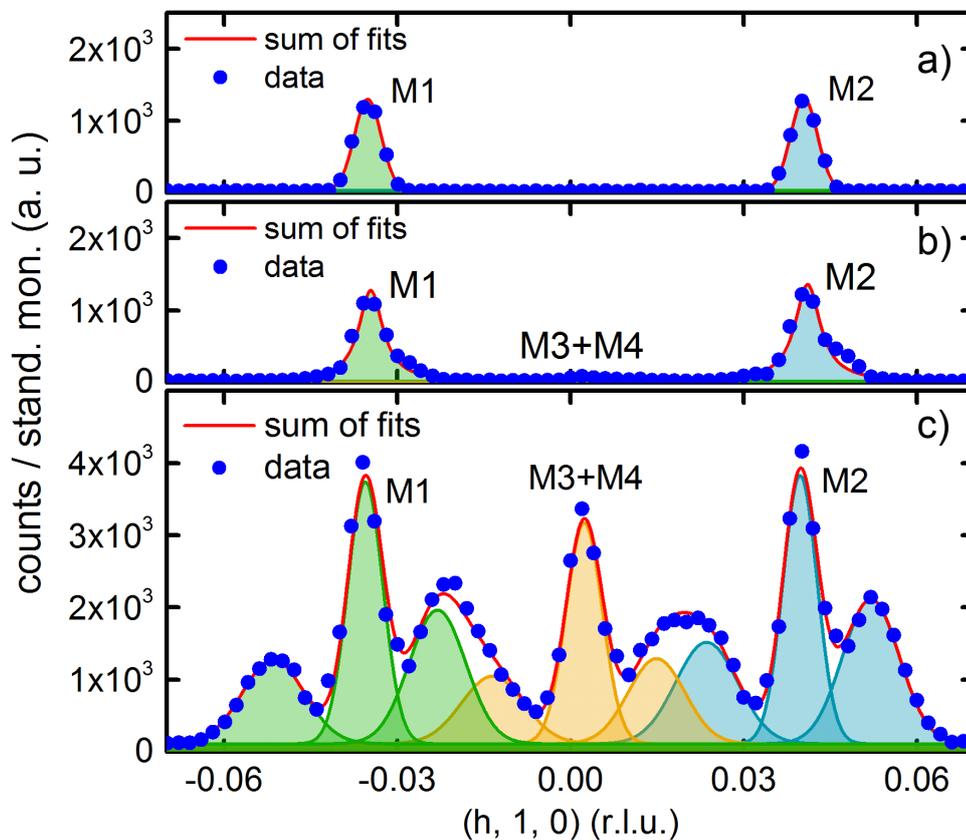


Abbildung 7.8: Messung der Bragg-Peaks M1 und M2 (vgl. Abb. 7.7) um den verbotenen nuklearen Reflex (010) in Chrom mittels Zählrohr für verschiedene Konstellationen des Leitermoduls. (a) Messung der Spindichtewellen bei M1 und M2 ohne elliptische Leiter mittels transversalen q Scan. Die zwei Intensitätsmaxima sind mittels zweier Gauß-Kurven gefittet (vgl. rote Linie). (b) Nach Aufsetzen des ersten Leiters verändert sich der Intensitätsverlauf nur leicht. (c) Mit beiden elliptischen Leitern ergibt sich eine Verdreifachung der Intensität der Peaks. Außerdem wandeln sich aufgrund der fokussierenden Eigenschaften der elliptischen Leiter die einfachen Intensitätsmaxima zu einer neuen Struktur bestehend aus jeweils drei Peaks mit einem Hauptmaximum und zwei Nebenmaxima. Zusätzlich tritt aufgrund der Divergenzeigenschaften des zweiten Leiters an der Stelle des verbotenen nuklearen Peaks eine Intensität auf, die als eine Überlagerung der Maxima bei M3 und M4 interpretiert werden kann. Der Fit berücksichtigt alle drei Intensitäten jeweils mit den beiden Nebenmaxima und liegt in guter Übereinstimmung mit den Datenpunkten. Abb. aus Ref. [10].

auf. Die Daten können mit zwei Gauß-Kurven gefittet werden (vgl. rote Linie). Nach Aufsetzen des ersten elliptischen Leiters auf das Leitermodul verändert sich zunächst nicht viel an den Intensitäten (vgl. Teilbild (b)). Der Verlauf der Maxima bleibt bis auf schwache Schultern gleich, und insbesondere verändert sich die maximale Intensität nicht. Dies lässt sich dadurch erklären, dass durch die inhomogene Phasenraum-Verteilung der Neutronen am Probenort (vgl. Abb. 7.6 (a)) und des kleinen Messbereichs des Zählrohr-Detektors nur ein Teil der gestreuten Neutronen gemessen werden kann. Bei (010) entsteht eine sehr kleine Intensität, die durch die benachbarten Reflexe M3 und M4 auftritt.

Wird nun der zweite Leiter aufgesetzt, so werden alle Neutronen nach dem Streuprozess auf den Zählrohr-Detektor gerichtet und erhöhen damit die Intensität der Maxima deutlich (vgl. Abb. 7.8 (c)). Zusätzlich erzeugt das Leitersystem zu allen Bragg-Peaks jeweils zwei Nebenmaxima. Die rote Kurve stellt wieder die Summe aus mehreren gefitteten Gauß-Kurven dar. Wie der Gauß-Fit der Daten zeigt, ergibt sich eine Überlagerung von drei magnetischen Signalen M1, M3+M4 und M2. Jedes dieser Signale setzt sich aus einem Hauptmaximum und zwei schwächeren Nebenmaxima zusammen. Eine genaue geometrische Analyse zeigt, dass die Intensität des Hauptmaximums um einen Faktor drei zunehmen sollte, während die Nebenmaxima in etwa die Intensität des ursprünglichen Maximums ohne Leiter haben sollten. Dies entspricht auch dem experimentellen Ergebnis. Die leichten Abweichungen, insbesondere die leichte Asymmetrie zwischen dem linken und rechten Nebenmaximum, kann durch das nicht ganz optimal justierte Leitermodul erklärt werden. Das Auftreten der Intensität M3+M4 kann durch die vertikale Instrumentenauflösung und die Divergenzeigenschaften der elliptischen Leiterelemente verstanden werden. Der zweite Leiter fängt in vertikaler Richtung Neutronen ein, die den Detektor ohne diesen nicht treffen würden.

Um nun die Abhängigkeit der Domänenbesetzung als Funktion des uniaxialen Drucks zu untersuchen, wurden sowohl transversale als auch longitudinale q-Scans durchgeführt. In einigen Fällen wurden als Gegencheck auch Scans mit dem um 90° gedrehten Chrom-Würfel um (100) gemessen. In Abb. 7.9 sind einige typische q-Scans für verschiedene uniaxiale Drücke dargestellt. Ohne Druck ergibt sich eine gleichmäßige Besetzung der drei Domänen. In dem longitudinalen q-Scan in Teilbild (a) kann neben den Intensitäten bei M5 und M6, wie schon in Abb. 7.9 (c), auch die Intensität der Domäne M3+M4 gemessen werden. Somit sind ohne angelegten Druck alle drei Domänen M1+M2, M3+M4 und M5+M6 etwa gleich besetzt.

Die Besetzung der Domäne M3+M4 wird, wie in Teilbild (b) gezeigt, durch den uniaxiale Druck $p = 0.5$ kbar auf die [001]-Richtung deutlich unterdrückt. Gleichzeitig nimmt die Intensität der Maxima M5 und M6 entsprechend zu. Bei weiterer Erhöhung des Drucks für $p = 1.0$ kbar verschwindet die Domäne M3+M4 in Richtung des Drucks komplett (vgl. Teilbild (c)). Der Intensitätsverlauf für den maximal untersuchten Druck von $p = 1.5$ kbar ist in Teilbild (d) und (e) gezeigt. Für den longitudinalen q-Scan treten die Maxima M5 und M6 und für den transversalen q-Scan die Maxima M1 und M2 auf. In beiden Fällen bleibt die Intensität M3+M4 weiter unterdrückt, während die Domänen senkrecht zu der Druckrichtung besetzt bleiben. Die Unterdrückung der Domänenbesetzung M3+M4 bleibt

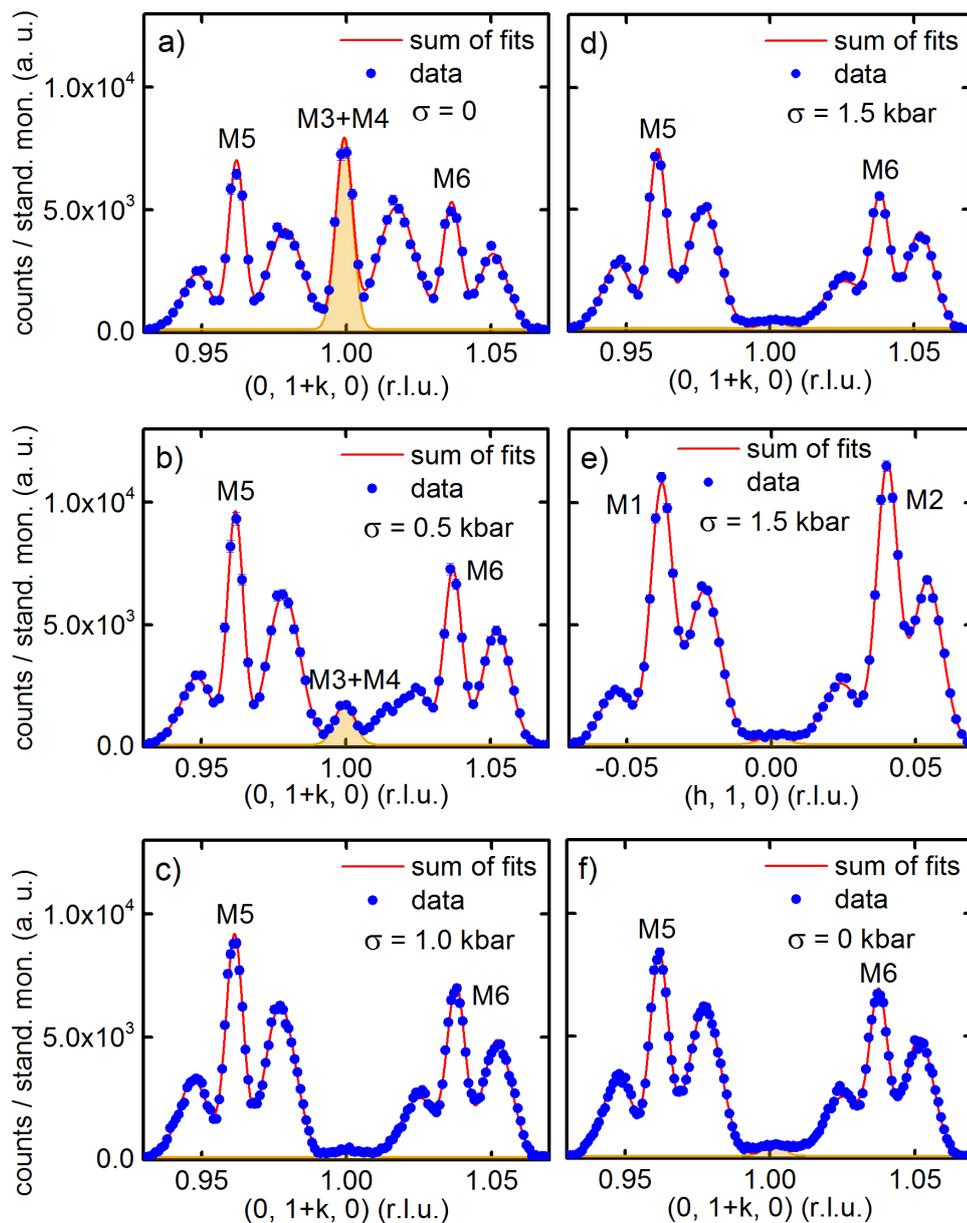


Abbildung 7.9: Untersuchung der Domänenbesetzung der transversalen Spindichtewellen von Chrom unter uniaxialem Druck mittels verschiedener q Scans. Mit steigendem uniaxialem Druck (vgl. z -Achse in Abb. 7.7) nimmt die Population in Richtung des uniaxialen Drucks (M3 und M4) ab und verschwindet spätestens bei $p = 1$ kbar. (a) Ohne Druck kann eine deutliche Intensität bei M3 bzw. M4 identifiziert werden. (b) Nach Anlegen des uniaxialen Drucks von $p = 0.5$ kbar nimmt diese Intensität und damit die Domänen-Population in Druckrichtung deutlich ab. (c) Für $p = 1$ kbar kann für M3 und M4 keine Intensität mehr beobachtet werden. (d) Intensitätsverlauf für $p = 1.5$ kbar. (e) Auch in einem transversalen q Scan bleibt die Intensität bei M3 und M4 unterdrückt. Die Population der Domänen bei M1 und M2 wie auch in den longitudinalen Scans bei M5 und M6, bleibt bestehen. (f) Auch nachdem der uniaxiale Druck abgelassen wird, bleibt die Population bei M3 und M4 unterdrückt. Abb. aus Ref. [10].

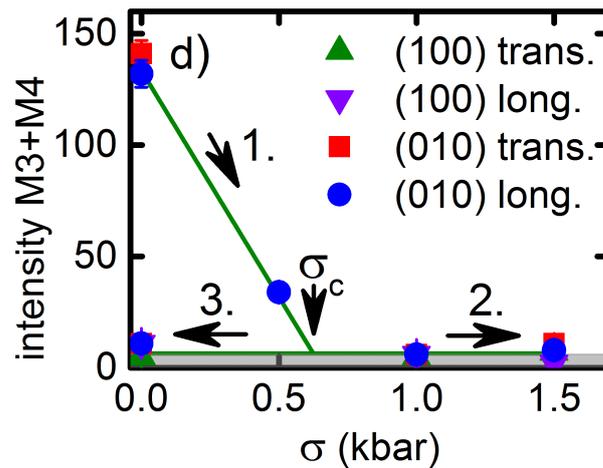


Abbildung 7.10: Die integrierte Intensität an der Stelle M3 und M4 als Funktion des uniaxialen Drucks für verschiedene q Scans. Die Pfeile 1., 2. und 3. geben die chronologische Reihenfolge der Messungen wieder. Die Datenpunkte umfassen unterschiedliche Messungen mit sowohl transversalen als auch longitudinalen q Scans an der Stelle (010) und mit einem um 90° gedrehten Kristall an der Stelle (100). Es zeigt sich eine Unterdrückung der Domänen-Population (M3 und M4) in Richtung des uniaxialen Drucks (vgl. Abb. 7.7). Für einen kritischen Druck σ_c verschwindet diese Domäne und bleibt auch nach ablassen des Druck unterdrückt. Abb. aus Ref. [10].

auch nach Ablassen des uniaxialen Drucks bestehen (vgl. Abb. 7.9 (f)). Erst ein Aufheizen der Probe über $T_N = 311$ K führt zu einer Umbesetzung und wieder zu gleichmäßiger Domänenbesetzung.

Eine zusammenfassende Auswertung dieser und weiterer Messungen ist im Grafen in Abb. 7.10 dargestellt. Die integrierte Intensität M3+M4 ist als Funktion des angelegten uniaxialen Drucks aufgetragen. Die Datenpunkte beziehen sich auf verschiedene Messungen, dabei geben die blauen Datenpunkte longitudinale q -Scans um (010), rote transversale um (010), lila longitudinale um (100) und grüne transversale um (100) an. Da viele Datenpunkte genau aufeinander liegen, können nicht alle Messpunkte dargestellt werden. Die Pfeile 1., 2. und 3. geben die chronologische Reihenfolge der Messungen an. So nimmt die integrierte Intensität der Domäne parallel zu der Druckrichtung ab, um bei dem kritischen Druck von $\sigma_c \approx 0.6$ kbar zu verschwinden. Nach Ablassen des Drucks bleibt die Domäne, wie oben beschrieben, weiter unterdrückt. Die beobachtete Unterdrückung der zu dem Druck parallelen Domäne ist konsistent mit der Theorie [183]. Eine detaillierte Suche nach durch uniaxialen Druck induzierter Kritikalität und dem vorhergesagten trikritischen Punkt erfordert Untersuchungen, die für die Zukunft geplant sind.

Die elastischen Messungen an Chrom demonstrieren die Einsatzfähigkeit des elliptischen Leitermoduls. Der Intensitätsgewinn (Faktor 3) ist allerdings Prinzip bedingt nicht besonders groß. Dies liegt an der künstlich erzeugten Divergenz am Probenort und der Auswahl durch die Bragg-Bedingung. Dabei spielen unter anderem die Fokallänge und die Reflexivität der Leiter, aber auch z.B. die Mosaizität der Probe eine Rolle. Eine besondere Eigenheit der elliptischen Leiter sind die beiden Nebenmaxima zu jedem Bragg-Reflex.

Dieses Artefakt führt zu einer verminderten Auflösung in q und erschwert die Interpretation der Daten. Das elliptische Leitermodul zeigt seine volle Wirkung erst bei inelastischen Messungen, wie in dem folgenden Abschnitt gezeigt wird.

7.3.2 Inelastische Messungen an Chrom

Nach den erfolgreichen Messungen der elastischen Signale der TSDW in Chrom wurde mit dem Analysator die dritte Achse installiert. Das Instrument MIRA II wurde damit von einem einfachen Zweiachsen-Diffraktometer zu einem Dreiachsenspektrometer für inelastische Messungen umgerüstet. Damit war es möglich, die magnetischen Anregungen der TSDW in Chrom für verschiedene Temperaturen zu messen. Diese steigen in ihrer Intensität als Funktion der Temperatur [188]. Abb. 7.11 zeigt zwei q -Scans für eine Anregungsenergie von $E = -4$ eV und die Temperaturen $T = 295$ K bzw. $T = 314$ K.

Die Daten sind konsistent mit denen früherer Publikationen, insbesondere die Zunahme der Intensität der Magnonen als Funktion der Temperatur [189]. Allerdings ist wegen des Leitersystems, wie oben bereits beschrieben, die Auflösung in q stark reduziert, was zu einer Verwaschung der Maxima führt. Entscheidend ist dabei, dass überhaupt ein inelastisches Signal gemessen werden kann. Die gezeigten Daten wurden mit Hilfe des Leitersystems bei einer Messzeit von 600 Sekunden gemessen. Die gleichen Messungen wurden auch ohne elliptische Leiter durchgeführt, es konnte selbst nach einer Messzeit von 1800 Sekunden kein signifikantes Signal über Untergrund beobachtet werden. Damit lässt sich nicht abschätzen, welchen genauen Verstärkungsfaktor das Leitermodul für inelastische Messungen bewirkt, es zeigt sich aber, dass der Intensitätsgewinn für inelastische Messungen deutlich höher ist, als das für elastischen Messungen der Fall ist. So ergaben weiterführende inelastische Messungen an Blei eine Verstärkung des gemessenen Phononensignals um den Faktor 30 - 40 [190].

7.4 Zusammenfassung

Zusammenfassend wurde gezeigt, dass das neue elliptische Leitermodul uneingeschränkt einsetzbar ist. Neu an dem System sind vor allem der modulare Aufbau und die Möglichkeit, das elliptische Leitersystem in wenigen Stunden zu installieren. Dies ist bei Neutronenstreuexperimenten besonders wichtig, da die Betriebskosten mit bis zu 10000 Euro pro Instrument und Tag einen wichtigen Aspekt bei der Durchführung von Messungen im Userbetrieb darstellen. Die Justierung des Moduls kann dabei im Wesentlichen abseits des Instruments mittels Lasersystem erfolgen. Während der Strahlzeit können die Leiter dank der Dreipunktlagerung nach Belieben abgenommen und schnell und präzise wieder aufgesetzt bzw. gewechselt werden. Dies ermöglicht unter anderem auch den Einsatz verschiedener Leiter mit unterschiedlichen optischen Eigenschaften und Fokallängen.

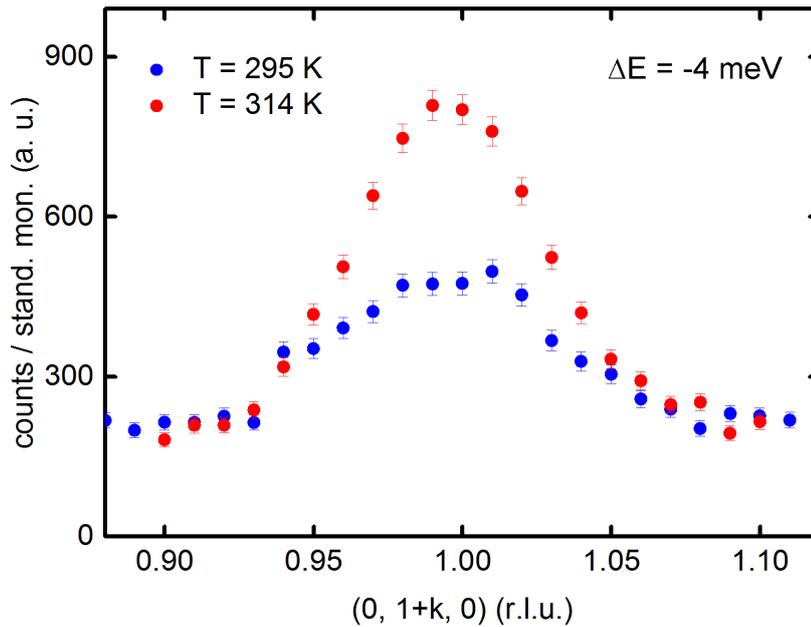


Abbildung 7.11: Inelastisches magnetisches Signal von Chrom mit Hilfe des elliptischen Leitermoduls nach 10 Minuten Messzeit. Eine Messreihe bei Raumtemperatur (blaue Datenpunkte) und eine bei $T = 295$ K. Vergleichsmessungen ohne elliptische Leiter zeigen auch nach über 30 Minuten kein messbares inelastisches Signal.

Als ein weiterer wichtiger Aspekt wurden bei den Messungen auch die Vor- und Nachteile fokussierender Leitersysteme, insbesondere elliptischer Leiter, verdeutlicht. So kann durch die Fokussierung ein deutlicher Intensitätsgewinn erzielt werden. Dieser liegt bei elastischen Messungen bei etwa einem Faktor drei bis fünf. Bei inelastischen Messungen kann mit Hilfe des Leitermoduls das Verhältnis von Intensität zu Untergrund um mehrere Größenordnungen erhöht werden [190]. Die durch die Fokussierung erhöhte Divergenz am Probeort führt dagegen zu einer Verschlechterung der Auflösung in q . Dies muss bei der Planung von Experimenten berücksichtigt werden, wobei in vielen Fällen dieser Umstand nicht entscheidend sein dürfte. Die elliptischen Leiter sollten sinnvollerweise vor allem bei sehr kleinen Proben eingesetzt werden, denn nur dann hat die fokussierende Wirkung einen entscheidenden Vorteil. Kleine Proben werden vor allem unter extremen Bedingungen eingesetzt, wie z.B. bei hohen Drücken. Bei Druckexperimenten spielt nicht nur die Erhöhung der Signalintensität, sondern auch die Unterdrückung des Untergrunds eine entscheidende Rolle. Durch die möglichst kleine Fokussierung auf den Probenort wird unerwünschte inkohärente Streuung an der Druckzellenwand und Probenumgebung drastisch reduziert. Damit steigt bei sehr kleinen Proben in Druckzellen das Verhältnis von Signal zu Untergrund im Vergleich zu Messungen ohne Leitermodul drastisch an.

Publikationen

1. **Skyrmion lattice domains in $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$.** T. Adams, S. Mühlbauer, A. Neubauer, W. Münzer, F. Jonietz, R. Georgii, B. Pedersen, P. Böni, A. Rosch, and C. Pfleiderer. *J. Phys. Conf. Ser.*, **200**(3):032001, (2010)
2. **Spin transfer torques in mnsi at ultralow current densities.** F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, A. Neubauer, W. Münzer, A. Bauer, T. Adams, R. Georgii, P. Böni, R. A. Duine, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch. *Science*, **330**(6011):1648–1651, (2010)
3. **Skyrmion lattice in the doped semiconductor $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$.** W. Münzer, A. Neubauer, T. Adams, S. Mühlbauer, C. Franz, F. Jonietz, R. Georgii, P. Böni, B. Pedersen, M. Schmidt, A. Rosch, and C. Pfleiderer. *Phys. Rev. B*, **81**:041203, (2010)
4. **Skyrmion lattices in metallic and semiconducting B20 transition metal compounds.** C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer, W. Biberacher, B. Binz, F. Birkelbach, P. Böni, C. Franz, R. Georgii, M. Janoschek, F. Jonietz, T. Keller, R. Ritz, S. Mühlbauer, W. Münzer, A. Neubauer, B. Pedersen, and A. Rosch. *J. Phys.: Condens. Matter*, **22**(16):164207, (2010)
5. **Long-Range Crystalline Nature of the Skyrmion Lattice in MnSi.** T. Adams, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, F. Jonietz, A. Bauer, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni, U. Keiderling, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch. *Phys. Rev. Lett.*, **107**:217206, (2011)
6. **Long-wavelength helimagnetic order and skyrmion lattice phase in Cu_2OSeO_3 .** T. Adams, A. Chacon, M. Wagner, A. Bauer, G. Brandl, B. Pedersen, H. Berger, P. Lemmens, and C. Pfleiderer. *Phys. Rev. Lett.*, **108**:237204, (2012)
7. **Real-Space and Reciprocal-Space Berry Phases in the Hall Effect of $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$** C. Franz, F. Freimuth, A. Bauer, R. Ritz, C. Schnarr, C. Duvinaige, T. Adams, S. Blugel, A. Rosch, Y. Mokrousov, and C. Pfleiderer *Phys. Rev. Lett.*, **112**:186601, (2014)
8. **Versatile module for experiments with focussing neutron guides** T. Adams, G. Brandl, A. Chacon, J. N. Wagner, M. Rahn, S. Mühlbauer, R. Georgii, C. Pfleiderer and P. Böni *Appl. Phys. Lett.*, **105**:12, (2014)

9. **Effect of magnetic anisotropies on the skyrmion lattice in MnSi.** T. Adams, M. Garst, A. Bauer, R. Georgii, and C. Pfleiderer *in preparation*, (2015)
10. **Fe- and Co-doped MnSi.** T. Adams, J. Kindervater, etc. *in preparation*, (2015)
11. **Uniaxial stress studies of the Skyrmion lattice in MnSi.** A. Chacon, T. Adams, G. Brandl, A. Bauer, R. Georgii, P. Böni, and C. Pfleiderer. *in preparation*, (2015)

Danksagung

Ich möchte mich an dieser Stelle von ganzem Herzen bei allen bedanken, die mich bei meiner Doktorarbeit unterstützt haben. Ein besonderer Dank gilt:

- **Prof. Dr. Christian Pfeiderer**

Vielen Dank, dass Du mir es ermöglicht hast, in einer so hervorragenden Arbeitsgruppe promovieren zu können. Bei meiner Betreuung standest Du immer hinter mir und hast mich in allen meinen Zielen unterstützt. Nicht zuletzt ist es Dir zu verdanken, dass unsere Arbeitsgruppe nicht nur eine der besten auf ihrem Arbeitsgebiet ist, sondern auch eine hervorragende Arbeitsatmosphäre in unserem Team herrscht. Es hat mir große Freude bereitet, Teil dieses Teams zu sein und meinen Beitrag zum Erfolg der Gruppe zu leisten. Auf diesem Wege wünsche ich Dir alles Gute für die Zukunft.

- **Prof. Dr. Peter Böni**

Vielen Dank für die interessanten Gespräche, verrückten Ideen und Deine Expertise. Du warst jederzeit offen für Fragen und Anliegen.

- **Team aus Köln, insbesondere Markus Garst**

Vielen Dank für viele interessante Diskussionen und die theoretische Interpretation meiner experimentellen Daten.

- **Sebastian Mühlbauer, Andreas Bauer, Michael Wagner, Wolfgang Simeth, Alfonso Chacon, Christian Franz, Jonas Kindervater, Marco Halder, Alexander Regnat, Felix Rucker**

Ich danke Euch für unsere hervorragende Zusammenarbeit am Lehrstuhl und unzählige anregende Gespräche. Es herrschte immer eine angenehme Arbeitsatmosphäre und wir erlebten zusammen viele heitere Momente.

- **Robert Georgii, Georg Brandl und Reinhard Schwikowski**

Bei meinen zahlreichen Messungen an dem Instrument MIRA seid Ihr mir immer beratend zur Seite gestanden. Ich danke Euch für die erfolgreiche Zusammenarbeit.

- **den Kollegen am Lehrstuhl E21**

Ich danke Euch für das angenehme Umfeld und für die vielen gesellschaftlichen Höhepunkte, an die ich mich immer wieder gerne zurück erinnere.

- **den Kollegen im Kristalllabor**

Vielen Dank für euren unermüdlichen Einsatz und die vielen wichtigen Laue-Bilder, ohne die unsere Experimente kaum planbar wären.

- **der Zentralwerkstatt**

Danke für die stets kompetente und schnelle Umsetzung meiner Pläne. Bei euch war ich immer gut beraten.

- **Andreas Mantwill**

Vielen Dank für die Anfertigung von diversen Bauteilen in letzter Minute. Du warst manchmal meine letzte Rettung.

- **meiner Familie**

Ich danke Euch dafür, dass Ihr immer hinter mir steht und mich in allen Lebenslagen unterstützt. Danke, dass es Euch gibt.

Literaturverzeichnis

- [1] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Böni. Skyrmion lattice in a chiral magnet. *Science*, 323(5916):915–919, 2009.
- [2] N. Nagaosa and Y. Tokura. Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions. *Nature Nano*, 8:899, 2013.
- [3] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. Bergmann, A. Kubetzka, and R. Wiesendanger. Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions. *Science*, 341(6146):636–639, August 2013.
- [4] Y.-H. Liu and Y.-Q. Li. A mechanism to pin skyrmions in chiral magnets. *J. Phys. Cond. Mat.*, 25(7):076005, 2013.
- [5] A. Rosch. Skyrmions: Moving with the current. *Nature Nanotech.*, 8:160–161, February 2013.
- [6] C. Felser. Skyrmions. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 52(6):1631–1634, 2013.
- [7] A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio. Skyrmions on the track. *Nature Nanotech.*, 8:152–156, March 2013.
- [8] T. Adams, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, F. Jonietz, A. Bauer, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni, U. Keiderling, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch. Long-range crystalline nature of the skyrmion lattice in MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 107:217206, Nov 2011.
- [9] T. Adams, A. Chacon, M. Wagner, A. Bauer, G. Brandl, B. Pedersen, H. Berger, P. Lemmens, and C. Pfleiderer. Long-wavelength helimagnetic order and skyrmion lattice phase in Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. Lett.*, 108:237204, Jun 2012.
- [10] T. Adams, G. Brandl, A. Chacon, J. N. Wagner, M. Rahm, S. Mühlbauer, R. Georgii, C. Pfleiderer, and P. Böni. Versatile module for experiments with focussing neutron guides. *Appl. Phys. Lett.*, 105(12):–, 2014.
- [11] M. Hazewinkel. *Encyclopaedia of mathematics (set)*. Encyclopaedia of Mathematics. Springer Netherlands, 1994.

-
- [12] H. Poincaré. Mémoire sur les courbes définies par les équations différentielles. *J. Math. Pures Appl.*, 4:167–244, 1885.
- [13] Heinz Hopf. Abbildungsklassen n -dimensionaler Mannigfaltigkeiten. *Mathematische Annalen*, 96(1):209–224, 1927.
- [14] R. Engelking. *General topology*. Monografie matematyczne. PWN, 1977.
- [15] A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P. G. Niklowitz, and P. Böni. Topological hall effect in the A-phase of MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 102(18):186602, 2009.
- [16] F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, A. Neubauer, W. Münzer, A. Bauer, T. Adams, R. Georgii, P. Böni, R. A. Duine, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch. Spin transfer torques in MnSi at ultralow current densities. *Science*, 330(6011):1648–1651, 2010.
- [17] K. Everschor, M. Garst, B. Binz, F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, and A. Rosch. Rotating skyrmion lattices by spin torques and field or temperature gradients. *Phys. Rev. B*, 86(5), 2012.
- [18] K. Everschor, M. Garst, R. A. Duine, and A. Rosch. Current-induced rotational torques in the skyrmion lattice phase of chiral magnets. *Phys. Rev. B*, 84:064401, Aug 2011.
- [19] C. Pfleiderer and A. Rosch. Condensed-matter physics - Single skyrmions spotted. *Nature*, 465:880–881, 2010.
- [20] A. Hatcher. *Algebraic topology*. Cambridge University Press, 2002.
- [21] T. H. R. Skyrme. A unified field theory of mesons and baryons. *Nuclear Physics*, 31:556–569, 1962.
- [22] T. H. R. Skyrme. Particle states of a quantized meson field. *Proc. Royal Soc. Lond. A*, 262(1309):237, 1961.
- [23] T. H. R. Skyrme. A non-linear field theory. *Proc. Royal Soc. Lond. A*, 260(1300):127, 1961.
- [24] Edward Witten. Current algebra, baryons, and quark confinement. *Nuc. Phys. B*, 223(2):433 – 444, 1983.
- [25] T. Sakai and S. Sugimoto. Low energy hadron physics in holographic qcd. *Prog. Theo. Phys.*, 113(4):843–882, 2005.
- [26] K. Benson and M. Bucher. Skyrmions and semilocal strings in cosmology. *Nuc. Phys. B*, 406(1–2):355 – 376, 1993.
- [27] E. J. Yarmchuk, M. J. V. Gordon, and R. E. Packard. Observation of stationary vortex arrays in rotating superfluid helium. *Phys. Rev. Lett.*, 43:214–217, Jul 1979.

- [28] T. L. Ho. Spinor bose condensates in optical traps. *Phys. Rev. Lett.*, 81:742–745, Jul 1998.
- [29] S. L. Sondhi, A. Karlhede, S. A. Kivelson, and E. H. Rezayi. Skyrmions and the crossover from the integer to fractional quantum hall effect at small zeeman energies. *Phys. Rev. B*, 47:16419–16426, Jun 1993.
- [30] D. C. Wright and D. N. Mermin. Crystalline liquids: the blue phases. *Rev. Mod. Phys.*, 61:385–432, Apr 1989.
- [31] I. Fischer, N. Shah, and A. Rosch. Crystalline phases in chiral ferromagnets: Destabilization of helical order. *Phys. Rev. B*, 77:024415, Jan 2008.
- [32] D. Hsieh, Y. Xia, L. Wray, D. Qian, A. Pal, J. H. Dil, J. Osterwalder, F. Meier, G. Bihlmayer, C. L. Kane, Y. S. Hor, R. J. Cava, and M. Z. Hasan. Observation of unconventional quantum spin textures in topological insulators. *Science*, 323(5916):919–922, 2009.
- [33] J. Zaanen. Fast electrons tie quantum knots. *Science*, 323(5916):888–890, 2009.
- [34] A. N. Bogdanov and D. A. Yablonskii. Thermodynamically stable vortices in magnetically ordered crystals. the mixed state of magnets. *J. Exp. Theo. Phys.*, 68(1):101, 1989.
- [35] A. N. Bogdanov and A. Hubert. Thermodynamically stable magnetic vortex states in magnetic crystals. *J. Magn. Magn. Mat.*, 138(3):255 – 269, 1994.
- [36] U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, and C. Pfleiderer. Spontaneous skyrmion ground states in magnetic metals. *Nature*, 442(05056):797–800, August 2006.
- [37] B. Binz, A. Vishwanath, and V. Aji. Theory of the helical spin crystal: a candidate for the partially ordered state of MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 96(207202), September 2006.
- [38] S. Tewari, D. Belitz, and T. R. Kirkpatrick. Blue quantum fog: Chiral condensation in quantum helimagnets. *Phys. Rev. Lett.*, 96:047207, Feb 2006.
- [39] X. W. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagao-sa, and Y. Tokura. Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal. *Nature*, 465:901, June 2010.
- [40] A. Tonomura, X. W. Yu, Keiichi Yanagisawa, Tsuyoshi Matsuda, Y. Onose, N. Kanazawa, Hyun Soon Park, and Y. Tokura. Real-space observation of skyrmion lattice in helimagnet MnSi thin samples. *Nano Letters*, 12(3):1673–1677, 2012.
- [41] S. Heinze, K. v. Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer, and S. Blugel. Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions. *Nature Phys.*, 7(9):713–718, Sep. 2011.

- [42] A.A. Abrikosov. The magnetic properties of superconducting alloys. *J. Phys. Chem. Sol.*, 2(3):199 – 208, 1957.
- [43] P.M. Chaikin and T.C. Lubensky. *Principles of Condensed Matter Physics*. Cambridge University Press, 2000.
- [44] H. B. Braun. Topological effects in nanomagnetism: from superparamagnetism to chiral quantum solitons. *Adv. Phys.*, 61(1):1–116, 2012.
- [45] K. Everschor. Current-induced dynamics of chiral magnetic structures. *PhD Thesis*, 2012.
- [46] C. Pfleiderer. Magnetic Order Surfaces get hairy. *Nat. Phys.*, 7(9):673–674, 2011.
- [47] B. M. Tanygin. Symmetry theory of the flexomagnetoelectric interaction in the magnetic vortices and skyrmions. *Physica B: Condensed Matter*, 407(5):868 – 872, 2012.
- [48] A. N. Bogdanov. New localized solutions of the nonlinear field equations. *JETP Lett.*, 62(3):247, 1995.
- [49] O. Nakanishi, A. Yanase, A. Hasegawa, and M. Kataoka. The origin of the helical spin density wave in MnSi. *Solid State Commun.*, 35(12):995 – 998, 1980.
- [50] P. Bak and M. H. Jensen. Theory of helical magnetic structures and phase transitions in MnSi and FeGe. *J. Phys. C*, 13(31):L881, 1980.
- [51] B. Binz and A. Vishwanath. Theory of helical spin crystals: Phases, textures, and properties. *Phys. Rev. B*, 74:214408, Dec 2006.
- [52] B. Binz and A. Vishwanath. Chirality induced anomalous-hall effect in helical spin crystals. *Physica B*, 403(5-9):1336–1340, 2008.
- [53] S. A. Brazovskii. Phase transition of an isotropic system to a nonuniform state. *Soviet Physics JETP*, 41(85), 1975.
- [54] M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, and C. Pfleiderer. Fluctuation-induced first-order phase transition in Dzyaloshinskii-Moriya helimagnets. *Phys. Rev. B*, 87:134407, Apr 2013.
- [55] A. Bauer, M. Garst, and C. Pfleiderer. Specific heat of the skyrmion lattice phase and field-induced tricritical point in MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 110:177207, Apr 2013.
- [56] M. Lee, W. Kang, Y. Onose, Y. Tokura, and N. P. Ong. Unusual hall effect anomaly in MnSi under pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 102(18):186601, 2009.
- [57] Y. Li, N. Kanazawa, X. Z. Yu, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Ichikawa, X. F. Jin, F. Kagawa, and Y. Tokura. Robust formation of skyrmions and topological hall effect anomaly in epitaxial thin films of MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 110:117202, Mar 2013.

- [58] R. Ritz, M. Halder, M. Wagner, C. Franz, A. Bauer, and C. Pfleiderer. Formation of a topological non-Fermi liquid in MnSi. *Nature*, 497(7448):231–234, 2013.
- [59] R. Ritz, M. Halder, C. Franz, A. Bauer, M. Wagner, R. Bamler, A. Rosch, and C. Pfleiderer. Giant generic topological hall resistivity of MnSi under pressure. *Phys. Rev. B*, 87:134424, Apr 2013.
- [60] J. Grollier, P. Boulenc, V. Cros, A. Hamzić, A. Vaurès, A. Fert, and G. Faini. Switching a spin valve back and forth by current-induced domain wall motion. *Appl. Phys. Lett.*, 83(3), 2003.
- [61] M. Tsoi, R. E. Fontana, and S. S. P. Parkin. Magnetic domain wall motion triggered by an electric current. *Appl. Phys. Lett.*, 83(13), 2003.
- [62] T. Schulz, R. Ritz, A. Bauer, M. Halder, M. Wagner, C. Franz, C. Pfleiderer, K. Everschor, M. Garst, and A. Rosch. Emergent electrodynamics of skyrmions in a chiral magnet. *Nat. Phys.*, 8(4):301–304, 2012.
- [63] M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, and N. Nagaosa. Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon hall effect. *Nature Materials*, 13(3):241–246, March 2014.
- [64] T. Jeong and W. E. Pickett. Implications of the b20 crystal structure for the magnetoelectronic structure of MnSi . *Phys. Rev. B*, 70(7):075114, August 2004.
- [65] S. V. Grigoriev, D. Chernyshov, V. A. Dyadkin, V. Dmitriev, E. V. Moskvina, D. Lomag, Th. Wolf, D. Menzel, J. Schoenes, S. V. Maleyev, and H. Eckerlebe. Interplay between crystalline chirality and magnetic structure in $\mathrm{Mn}_{1-x}\mathrm{Fe}_x\mathrm{Si}$. *Phys. Rev. B*, 81:012408, 2010.
- [66] I. Dzyaloshinsky. A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics. *J. Phys. Chem. Solids*, 4(4):241 – 255, 1958.
- [67] T. Moriya. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism. *Phys. Rev.*, 120:91–98, Oct 1960.
- [68] Y. Ishikawa, G. Shirane, J. A. Tarvin, and M. Kohgi. Magnetic excitations in the weak itinerant ferromagnet MnSi. *Phys. Rev. B*, 16:4956–4970, Dec 1977.
- [69] Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch, and M. Roth. Helical spin structure in manganese silicide MnSi. *Solid State Communications*, 19(6):525 – 528, 1976.
- [70] Y. Ishikawa and M. Arai. Magnetic phase diagram of MnSi near critical temperature studied by neutron small angle scattering. *J. Phys. Soc. Jap.*, 53(8):2726–2733, 1984.
- [71] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Course of theoretical physics, vol. 8*. Pergamon Press, 1980.

- [72] S. Blundell. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford University Press Inc., New York, 2001.
- [73] A. Bauer. *Investigation of itinerant antiferromagnets and cubic chiral helimagnets*. PhD thesis, Technische Universität München, 2014.
- [74] K. Kadowaki, K. Okuda, and M. Date. Magnetization and magnetoresistance of MnSi.–I. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 51(8):2433–2438, 1982.
- [75] B. Lebech, P. Harris, J. Skov Pedersen, K. Mortensen, C. I. Gregory, N. R. Bernhoeft, M. Jermy, and S. A. Brown. Magnetic phase diagram of MnSi. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 140–144, Part 1(0):119 – 120, 1995.
- [76] S. Seki, X. W. Yu, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Observation of skyrmions in a multiferroic material. *Science*, 336(6078):198–201, 2012.
- [77] S. Seki, J. H. Kim, D. S. Inosov, R. Georgii, B. Keimer, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Formation and rotation of skyrmion crystal in the chiral-lattice insulator Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. B*, 85:220406, Jun 2012.
- [78] H. Effenberger and F. Pertlik. Die Kristallstrukturen der Kupfer(II)-oxo-selenite $\text{Cu}_2\text{O}(\text{SeO}_3)$ (kubisch und monoklin) und $\text{Cu}_4\text{O}(\text{SeO}_3)_3$ (monoklin und triklin). *Monatsh. Chemie*, 117(8-9):887–896, 1986.
- [79] J. W. G. Bos, C. V. Colin, and T. T. M. Palstra. Magnetoelectric coupling in the cubic ferrimagnet Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. B*, 78:094416, Sep 2008.
- [80] G. Meunier and M. Bertaud. Constantes cristallographiques de CuSe_2O_5 , CuSeO_3 et Cu_2OSeO_4 . *J. Appl. Cryst.*, 9(4):364–366, Aug 1976.
- [81] M. Belesi, I. Rousochatzakis, H. C. Wu, H. Berger, I. V. Shvets, F. Mila, and J. P. Ansermet. Ferrimagnetism of the magnetoelectric compound Cu_2OSeO_3 probed by ^{77}Se NMR. *Phys. Rev. B*, 82:094422, Sep 2010.
- [82] J. H. Yang, Z. L. Li, X. Z. Lu, M. H. Whangbo, Su-Huai Wei, X. G. Gong, and H. J. Xiang. Strong Dzyaloshinskii-Moriya interaction and origin of ferroelectricity in Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. Lett.*, 109:107203, Sep 2012.
- [83] M. Belesi, I. Rousochatzakis, M. Abid, U. K. Rößler, H. Berger, and J. Ph. Ansermet. Magnetoelectric effects in single crystals of the cubic ferrimagnetic helimagnet Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. B*, 85:224413, Jun 2012.
- [84] V. P. Gnezdilov, K. V. Lamonova, Yu. G. Pashkevich, P. Lemmens, H. Berger, F. Bussy, and S. L. Gnatchenko. Magnetoelectricity in the ferrimagnetic Cu_2OSeO_3 : symmetry analysis and raman scattering study. *Low Temp. Phys.*, 36(6):550–557, 2010.

- [85] Y. Okamura, F. Kagawa, M. Mochizuki, M. Kubota, S. Seki, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Onose, and Y. Tokura. Microwave magnetoelectric effect via skyrmion resonance modes in a helimagnetic multiferroic. *Nature Communications*, 4, August 2013.
- [86] W. Münzer, A. Neubauer, T. Adams, S. Mühlbauer, C. Franz, F. Jonietz, R. Georgii, P. Böni, B. Pedersen, M. Schmidt, A. Rosch, and C. Pfleiderer. Skyrmion lattice in the doped semiconductor $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$. *Phys. Rev. B*, 81:041203, Jan 2010.
- [87] T. Adams, S. Mühlbauer, A. Neubauer, W. Münzer, F. Jonietz, R. Georgii, B. Pedersen, P. Böni, A. Rosch, and C. Pfleiderer. Skyrmion lattice domains in $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$. *J. Phys. Conf. Ser.*, 200(3):032001, 2010.
- [88] P. Milde, D. Köhler, J. Seidel, L. M. Eng, A. Bauer, A. Chacon, J. Kindervater, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, S. Buhandt, C. Schütte, and A. Rosch. Unwinding of a skyrmion lattice by magnetic monopoles. *Science*, 340(6136):1076–1080, 2013.
- [89] C. Franz, F. Freimuth, A. Bauer, R. Ritz, C. Schnarr, C. Duvinage, T. Adams, S. Blugel, A. Rosch, Y. Mokrousov, and C. Pfleiderer. Real-space and reciprocal-space Berry phases in the hall effect of $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$. *Phys. Rev. Lett.*, 112:186601, May 2014.
- [90] T. Adams. Skyrmionengitter und partielle Ordnung in B20 Übergangsmetallverbindungen. 2009. Diploma Thesis, TU München Physik Department E21.
- [91] C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer, W. Biberacher, B. Binz, F. Birkelbach, P. Böni, C. Franz, R. Georgii, M. Janoschek, F. Jonietz, T. Keller, R. Ritz, S. Mühlbauer, W. Münzer, A. Neubauer, B. Pedersen, and A. Rosch. Skyrmion lattices in metallic and semiconducting B20 transition metal compounds. *J. Phys.: Condens. Matter*, 22(16):164207, 2010.
- [92] X. W. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura. Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe. *Nature Mater.*, 10(2):106–109, 2010.
- [93] H. Wilhelm, M. Baenitz, M. Schmidt, U. K. Rößler, A. A. Leonov, and A. N. Bogdanov. Precursor phenomena at the magnetic ordering of the cubic helimagnet FeGe. *Phys. Rev. Lett.*, 107:127203, Sep 2011.
- [94] N. S. Kiselev, A. N. Bogdanov, R. Schäfer, and U. K. Rößler. Chiral skyrmions in thin magnetic films: new objects for magnetic storage technologies? *J. Phys. D*, 44(39):392001, 2011.
- [95] A. B. Butenko, A. A. Leonov, U. K. Rößler, and A. N. Bogdanov. Stabilization of skyrmion textures by uniaxial distortions in noncentrosymmetric cubic helimagnets. *Phys. Rev. B*, 82:052403, Aug 2010.

- [96] M. N. Wilson, E. A. Karhu, A. S. Quigley, U. K. Rößler, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov, M. D. Robertson, and T. L. Monchesky. Extended elliptic skyrmion gratings in epitaxial MnSi thin films. *Phys. Rev. B*, 86:144420, Oct 2012.
- [97] E. A. Karhu, U. K. Rößler, A. N. Bogdanov, S. Kahwaji, B. J. Kirby, H. Fritzsche, M. D. Robertson, C. F. Majkrzak, and T. L. Monchesky. Chiral modulations and reorientation effects in MnSi thin films. *Phys. Rev. B*, 85:094429, Mar 2012.
- [98] X. W. Yu, N. Kanazawa, W. Z. Zhang, T. Nagai, T. Hara, K. Kimoto, Y. Matsui, Y. Onose, and Y. Tokura. Skyrmion flow near room temperature in an ultralow current density. *Nature Com.*, 3(988), 2012.
- [99] S. X. Huang and C. L. Chien. Extended skyrmion phase in epitaxial FeGe(111) thin films. *Phys. Rev. Lett.*, 108:267201, Jun 2012.
- [100] N. Kanazawa, J.-H. Kim, D. S. Inosov, J. S. White, N. Egetenmeyer, J. L. Gavilano, S. Ishiwata, Y. Onose, T. Arima, B. Keimer, and Y. Tokura. Possible skyrmion-lattice ground state in the B20 chiral-lattice magnet MnGe as seen via small-angle neutron scattering. *Physical Review B*, 86(13):134425, October 2012.
- [101] N. Kanazawa, Y. Onose, T. Arima, D. Okuyama, K. Ohoyama, S. Wakimoto, K. Kakurai, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Large topological hall effect in a short-period helimagnet MnGe. *Phys. Rev. Lett.*, 106(15):156603, 2011.
- [102] K. Shibata, X. W. Yu, T. Hara, D. Morikawa, N. Kanazawa, K. Kimoto, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura. Towards control of the size and helicity of skyrmions in helimagnetic alloys by spin-orbit coupling. *Nature Nanotech.*, 8:723, 2013.
- [103] N. Kanazawa, J. H. Kim, D. S. Inosov, J. S. White, N. Egetenmeyer, J. L. Gavilano, S. Ishiwata, Y. Onose, T. Arima, B. Keimer, and Y. Tokura. Possible skyrmion-lattice ground state in the B20 chiral-lattice magnet MnGe as seen via small-angle neutron scattering. *Phys. Rev. B*, 86:134425, Oct 2012.
- [104] S. D. Yi, S. Onoda, N. Nagaosa, and J. H. Han. Skyrmions and anomalous hall effect in a Dzyaloshinskii-Moriya spiral magnet. *Phys. Rev. B*, 80:054416, Aug 2009.
- [105] A. A. Leonov, A. N. Bogdanov, and U. K. Rößler. Confinement of skyrmion states in noncentrosymmetric magnets. *arXiv:1001.1292v3*, 2010.
- [106] J. H. Park and J. H. Han. Zero-temperature phases for chiral magnets in three dimensions. *Phys. Rev. B*, 83:184406, May 2011.
- [107] S. Ishiwata, M. Tokunaga, Y. Kaneko, D. Okuyama, Y. Tokunaga, S. Wakimoto, K. Kakurai, T. Arima, Y. Taguchi, and Y. Tokura. Versatile helimagnetic phases under magnetic fields in cubic perovskite SrFeO₃. *Phys. Rev. B*, 84:054427, Aug 2011.
- [108] Y. W. Long, Y. Kaneko, S. Ishiwata, Y. Tokunaga, T. Matsuda, H. Wadati, Y. Tanaka, S. Shin, Y. Tokura, and Y. Taguchi. Evolution of magnetic phases in single crystals of SrFe_{1-x}Co_xO₃ solid solution. *Phys. Rev. B*, 86:064436, Aug 2012.

- [109] C. Pfleiderer, G. J. McMullan, and G. G. Lonzarich. Critical behaviour at the transition from a magnetic to a nonmagnetic metallic state in MnSi as a function of hydrostatic pressure. *Physica B: Condensed Matter*, 199–200(0):634 – 636, 1994.
- [110] C. Pfleiderer, G. J. McMullan, S. R. Julian, and G. G. Lonzarich. Magnetic quantum phase transition in MnSi under hydrostatic pressure. *Physical Review B*, 55(13):8330–8338, 1997.
- [111] C. Pfleiderer. Non-Fermi liquid puzzle of MnSi at high pressure. *Physica B*, 328:100–104, 2003.
- [112] C. Pfleiderer and M. Uhlarz. Quantum criticality and partial order in itinerant magnets. *Physica C*, 408-410:376–379, 2004.
- [113] C. Pfleiderer, D. Reznik, L. Pintschovius, and J. Haug. Magnetic field and pressure dependence of small angle neutron scattering in MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 99(156406):156406, October 2007.
- [114] C. Pfleiderer, P. Böni, T. Keller, U. K. Rößler, and A. Rosch. Non Fermi liquid metal without quantum criticality. *Science*, 316:1871–1874, June 2007.
- [115] C. Pfleiderer, S. R. Julian, and G. G. Lonzarich. Non-Fermi-liquid nature of the normal state of itinerant-electron ferromagnets. *Nature*, 414:427–430, November 2001.
- [116] C. Pfleiderer, D. Reznik, L. Pintschovius, H. v. Löhneysen, M. Garst, and A. Rosch. Partial order in the non-Fermi-liquid phase of MnSi. *Nature*, 427:227–231, January 2004.
- [117] Y. Tokunaga, X. Z. Yu, J. S. White, H. M. Rønnow, D. Morikawa, Y. Taguchi, and Y. Tokura. A new class of chiral materials hosting magnetic skyrmions beyond room temperature. *arXiv:1503.05651 [cond-mat]*, March 2015.
- [118] Igor A. Zaliznyak and J. M. Tranquada. Neutron scattering and its application to strongly correlated systems. *arXiv*, arXiv:1304.4214, 2013.
- [119] S. W. Lovesey. *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter*. Number Bd. 2 in International series of monographs on physics. 1986.
- [120] G. E. Bacon. *Neutron diffraction, (third edition)*, volume 33. 1976.
- [121] G. L. Squires. *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering*. Dover books on physics. New York, 1978.
- [122] G. Shirane, S. M. Shapiro, and J. M. Tranquada. *Neutron Scattering with a Triple-Axis Spectrometer: Basic Techniques*. Cambridge University Press, 2002.
- [123] O. Halpern and M. H. Johnson. On the magnetic scattering of neutrons. *Phys. Rev.*, 55:898–923, May 1939.

- [124] P. G. De Gennes. *Magnetism, Ed. G. T. Rado and H. Suhl*, volume Vol. III, p.115. Academic Press, New York, 1963.
- [125] R. M. Moon, T. Riste, and W. C. Koehler. Polarization analysis of thermal-neutron scattering. *Phys. Rev.*, 181:920–931, May 1969.
- [126] T. Chatterji. *Neutron Scattering from Magnetic Materials*. Elsevier Science, 2005.
- [127] A. I. Okorokov, S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, S. V. Chetverikov, R. Georgii, P. Böni, D. Lamago, K. Pranzas, and B. Roessli. The spin chirality in MnSi single crystal probed by small angle scattering with polarized neutrons. *Physica B*, 350:E323–E325, 2004.
- [128] <http://www.mlz-garching.de/instrumente/nanostrukturen/sans-1.html>.
- [129] J. S. Pedersen, D. Posselt, and K. Mortensen. Analytical treatment of the resolution function for small-angle scattering. *J. Appl. Phys.*, 23(4):321–333, Aug 1990.
- [130] http://www.helmholtz-berlin.de/pubbin/igama_output?modus=einzel&gid=1706.
- [131] http://www.helmholtz-berlin.de/user/experimental-infrastructure/sample-environment/equipment/specifications_en.html.
- [132] <http://www.mlz-garching.de/mira>.
- [133] R. Georgii, P. Böni, M. Janoschek, C. Schanzer, and S. Valloppilly. MIRA - a flexible instrument for VCN. *Physica B*, 397(1–2):150 – 152, 2007.
- [134] T. Keller, R. Golub, and R. Gähler. Neutron Spin Echo - a Technique for high Resolution Neutron Scattering. *Scattering and Inverse Scattering in Pure and Applied Science, Academic Press, San Diego, CA*, 1264:2002, 2002.
- [135] M. Janoschek. *Investigation of the Chiral Magnets $NdFe_3(^{11}BO_3)_4$ and MnSi by means of Neutron Scattering*. PhD in Physics, Technische Universität München, 2008.
- [136] <http://www.mlz-garching.de/instrumente/probenumgebung/tiefe-temperaturen.html>.
- [137] S. Mühlbauer. Das Flussgitter in Niob. Untersuchungen mit polarisierten und unpolarisierten Neutronen. 2005.
- [138] S. Mühlbauer. Vortex lattices in superconducting niobium and skyrmion lattices in the chiral magnet MnSi investigated by neutron scattering. *PhD Thesis*, 2009. PhD Thesis, TU München Physik Department E21.
- [139] K. Everschor. *Current-Induced Dynamics of Chiral Magnetic Structures: Skyrmions, Emergent Electrodynamics and Spin-Transfer Torques*. PhD thesis, Institute for Theoretical Physics, University of Cologne, 2012.

- [140] A. Bauer and C. Pfleiderer. Magnetic phase diagram of MnSi inferred from magnetization and ac susceptibility. *Phys. Rev. B*, 85:214418, Jun 2012.
- [141] A. Bauer, A. Neubauer, C. Franz, W. Münzer, M. Garst, and C. Pfleiderer. Quantum phase transitions in single-crystal $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ and $\text{Mn}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$: Crystal growth, magnetization, ac susceptibility and specific heat. *Phys. Rev. B*, 82(6):064404, 2010.
- [142] M. Wagner. *Suche nach topologisch nichttrivialen Eigenschaften stark korrelierter Materialien*. PhD thesis, TU München Physik Department E21, 2014.
- [143] Simon Foner. Versatile and sensitive vibrating-sample magnetometer. *Review of Scientific Instruments*, 30(7):548–557, July 1959.
- [144] E. Moskvin, S. Grigoriev, V. Dyadkin, H. Eckerlebe, M. Baenitz, M. Schmidt, and H. Wilhelm. Complex chiral modulations in FeGe close to magnetic ordering. *Phys. Rev. Lett.*, 110:077207, Feb 2013.
- [145] S. Seki, S. Ishiwata, and Y. Tokura. Magnetoelectric nature of skyrmions in a chiral magnetic insulator Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. B*, 86:060403, Aug 2012.
- [146] D. Vollhardt. Characteristic crossing points in specific heat curves of correlated systems. *Phys. Rev. Lett.*, 78:1307–1310, Feb 1997.
- [147] S. Grigoriev, S. Maleyev, E. Moskvin, V. Dyadkin, P. Fouquet, and H. Eckerlebe. Crossover behavior of critical helix fluctuations in MnSi. *Phys. Rev. B*, 81:144413, Apr 2010.
- [148] A. Hamann, D. Lamago, Th. Wolf, H. v. Löhneysen, and D. Reznik. Magnetic blue phase in the chiral itinerant magnet MnSi. *Phys. Rev. Lett.*, 107:037207, Jul 2011.
- [149] J. S. White, I Levatić, A A Omrani, N. Egetenmeyer, K Prša, I Živković, J. L. Gavilano, J Kohlbrecher, M Bartkowiak, H. Berger, and H M Rønnow. Electric field control of the skyrmion lattice in Cu_2OSeO_3 . *J. Phys.: Condens. Matter*, 24(43):432201, 2012.
- [150] Y. Okamura, F. Kagawa, M. Mochizuki, Kubota M., S. Seki, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Onose, and Y. Tokura. Microwave magnetoelectric effect via skyrmion resonance modes in a helimagnetic multiferroic. *Nature Com.*, 4(2391), 2013.
- [151] M. Finazzi, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. Tsukamoto, A. Itoh, L. Duò, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and M. Ezawa. Laser-induced magnetic nanostructures with tunable topological properties. *Phys. Rev. Lett.*, 110:177205, Apr 2013.
- [152] L. Sun, R. X. Cao, B. F. Miao, Z. Feng, B. You, D. Wu, W. Zhang, An Hu, and H. F. Ding. Creating an artificial two-dimensional skyrmion crystal by nanopatterning. *Phys. Rev. Lett.*, 110:167201, Apr 2013.
- [153] Y. Tchoe and J. H. Han. Skyrmion generation by current. *Phys. Rev. B*, 85:174416, May 2012.

- [154] S.S.P. Parkin, M. Hayashi, and L. Thomas. Magnetic domain-wall racetrack memory. *Science*, 320(5873):190–194, 2008.
- [155] J. Iwasaki, M. Mochizuki, and N. Nagaosa. Universal current-velocity relation of skyrmion motion in chiral magnets. *Nature Comm.*, 4(1463), January 2013.
- [156] J. Iwasaki, M. Mochizuki, and N. Nagaosa. Current-induced skyrmion dynamics in constricted geometries. *Nature Nanotech.*, 8:742–747, September 2013.
- [157] A. L. Schmitt, J. M. Higgins, J. R. Szczech, and S. Jin. Synthesis and applications of metal silicide nanowires. *J. Mater. Chem.*, 20:223–235, 2010.
- [158] X. Yu, J. P. DeGrave, Y. Hara, T. Hara, S. Jin, and Y. Tokura. Observation of the magnetic skyrmion lattice in a MnSi nanowire by Lorentz TEM. *Nano Lett.*, 13(8):3755–3759, 2013.
- [159] O. Wessely, B. Skubic, and L. Nordström. Current driven magnetization dynamics in helical spin density waves. *Phys. Rev. Lett.*, 96:256601, Jun 2006.
- [160] J. S. White, K. Prša, P. Huang, A. A. Omrani, I. Živković, M. Bartkowiak, H. Berger, A. Magrez, J. L. Gavilano, G. Nagy, J. Zang, and H. M. Rønnow. Electric-field-induced skyrmion distortion and giant lattice rotation in the magnetoelectric insulator Cu_2OSeO_3 . *Phys. Rev. Lett.*, 113:107203, Sep 2014.
- [161] Y.-H. Liu, Y.-Q. Li, and J. H. Han. Skyrmion dynamics in multiferroic insulators. *Phys. Rev. B*, 87:100402, Mar 2013.
- [162] I. Eremets. *High Pressure Experimental Methods*. Oxford science publications. Oxford University Press, 1996.
- [163] J. M. Besson, R. J. Nelmes, G. Hamel, J. S. Loveday, G. Weill, and S. Hull. Neutron powder diffraction above 10 {GPa}. *Physica B: Condensed Matter*, 180–181, Part 2(0):907 – 910, 1992.
- [164] S. Klotz, M. Braden, and J. M. Besson. Inelastic neutron scattering to very high pressures. *Hyperfine Interactions*, 128(1-3):245–254, 2000.
- [165] S. Mühlbauer, P. G. Niklowitz, M. Stadlbauer, R. Georgii, P. Link, J. Stahn, and P. Böni. Elliptic neutron guides—focusing on tiny samples. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 586(1):77 – 80, 2008.
- [166] I. N. Goncharenko, I. Mirebeau, P. Molina, and P. Böni. Focusing neutrons to study small samples. *Physica B: Condensed Matter*, 234–236(0):1047 – 1049, 1997.
- [167] P. Böni. High intensity neutron beams for small samples. *J. Phys. Conf. Ser.*, 502(1):012047, 2014.
- [168] P. Böni. New concepts for neutron instrumentation. *Nucl. Instr. and Meth. A*, 586:1–8, 2008.

- [169] M. Rossbach, O. Schärpf, W. Kaiser, W. Graf, A. Schirmer, W. Faber, J. Duppich, and R. Zeisler. The use of focusing supermirror neutron guides to enhance cold neutron fluence rates. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 35(2):181 – 190, 1988.
- [170] T. Hils, P. Böni, and J. Stahn. Focusing parabolic guide for very small samples. *Physica B: Condensed Matter*, 350(1–3):166 – 168, 2004.
- [171] A. Stunault, A. R. Wildes, H M Rønnow, S Roux, and I Anderson. Performances of a new focusing supermirror guide on {IN14}. *Physica B: Condensed Matter*, 350(1–3, Supplement):E683 – E686, 2004.
- [172] N. Kardjilov, P. Böni, A. Hilger, M. Strobl, and W. Treimer. Characterization of a focusing parabolic guide using neutron radiography method. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 542(1–3):248 – 252, 2005.
- [173] S. Mühlbauer, P. Böni, U. Filges, C. Schanzer, M. Stadlbauer, and J. Stahn. Performance of an elliptically tapered neutron guide. *Physica B*, 385–386:1247, 2006.
- [174] M. Janoschek, P. Böni, and M. Braden. Optimisation of elliptic neutron guides for triple-axis spectroscopy. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 613:119, 2010.
- [175] N. Kardjilov, A. Hilger, M. Dawson, I. Manke, J. Banhart, M. Strobl, and P. Böni. Neutron tomography using an elliptic focusing guide. *J. Appl. Phys.*, 108:034905, 2010.
- [176] A. Komarek, P. Böni, and M. Braden. Parabolic versus elliptic focusing - Optimization of the focusing design of a cold triple-axis neutron spectrometer by Monte-Carlo simulations. *Nucl. Inst. Meth. A*, 647:63–72, 2011.
- [177] <http://www.swissneutronics.ch/>.
- [178] P. G. Niklowitz, C. Pfeleiderer, S. Mühlbauer, P. Böni, T. Keller, P. Link, J. A. Wilson, M. Vojta, and J. A. Mydosh. New angles on the border of antiferromagnetism in NiS₂ and URu₂Si₂. *Physica B: Condensed Matter*, 404:2955, 2009.
- [179] P. Böni. *NEUTRON BEAM OPTICS: Complementarity Between Neutron and Synchrotron X-Ray Scattering*, chapter 18, pages 305–327. World Scientific, 1998.
- [180] E. Fawcett. Spin-density-wave antiferromagnetism in chromium. *Rev. Mod. Phys.*, 60(1):209–283, January 1988.
- [181] B. H. Grier, G. Shirane, and S. A. Werner. Magnetic excitations in chromium. ii. *Phys. Rev. B*, 31:2892–2901, Mar 1985.
- [182] R. Jaramillo, Y. Feng, J. C. Lang, Z. Islam, G. Srajer, P. B. Littlewood, D. B. McWhan, and T. F. Rosenbaum. Breakdown of the Bardeen-Cooper-Schrieffer ground state at a quantum phase transition. *Nature*, 459(7245):405–409, 2009.
- [183] Z. Barak and M. B. Walker. Effect of uniaxial stress on the first-order neel transition in chromium. *J. Phys. F*, 12(3):483, 1982.

-
- [184] E. Fawcett, D. Feder, W. C. Muir, and C. Vettier. The effect of uniaxial compressive stress on the neel transition in chromium. *J. Phys. F*, 14(5):1261, 1984.
- [185] C. Pfeleiderer, E. Bedin, and B. Salce. He activated loading device for low temperature uniaxial and anvil cell pressure experiments. *Rev. Sci. Instrum.*, 68(8):3120–3124, August 1997.
- [186] S. Waffenschmidt, C. Pfeleiderer, and H. v. Löhneysen. Critical behavior of the conductivity of si:p at the metal-insulator transition under uniaxial stress. *Phys. Rev. Lett.*, 83:3005–3008, Oct 1999.
- [187] A. Chacon. Neutron scattering and susceptibility studies of skyrmion lattices under uniaxial pressure. Master’s thesis, Technical University Munich (TUM), 2011.
- [188] P. Böni, B. Roessli, and K. Hradil. Inelastic neutron and x-ray scattering from incommensurate magnetic systems. *J. Phys.: Condens. Matter*, 23(25):254209, 2011.
- [189] C. R. Fincher, G. Shirane, and S. A. Werner. Magnetic excitations in chromium. *Phys. Rev. B*, 24:1312–1322, Aug 1981.
- [190] G. Brandl. *unpublished*. PhD thesis, TU München Physik Department E21.