

НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ ЦЕНТР
"КУРЧАТОВСКИЙ ИНСТИТУТ"
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ
ПЕТЕРБУРГСКИЙ ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ
ИМ. Б. П. КОНСТАНТИНОВА

УДК 537.632/537.9/538.911

На правах рукописи

Чубова Надежда Михайловна

МАГНИТНАЯ СТРУКТУРА КУБИЧЕСКОГО
МОНОСИЛИЦИДА МАРГАНЦА $MnSi$ И СОЕДИНЕНИЙ НА
ЕГО ОСНОВЕ

01.04.07 — физика конденсированного состояния

Диссертация на соискание учёной степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель
доктор физико-математических наук
Григорьев С. В.

Гатчина 2016

Оглавление

Введение		4
1	Магнитные свойства кубических магнетиков типа B20 без центра инверсии	11
1.1	Магнитная структура MnSi	11
1.2	Квантовый фазовый переход в $Mn_{1-x}Fe_xSi$ по концентрации	20
1.3	Квантовый фазовый переход под давлением	24
1.4	Скирмионная решётка соединений со структурой типа B20. Теория скирмионов в MnSi.	26
1.4.1	Индивидуальный скирмион — общие сведения	27
1.4.2	Скирмионная решётка в MnSi	30
2	Образцы и экспериментальные методы исследования	35
2.1	Объекты исследования	35
2.2	Методы исследований	39
2.2.1	Малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов	39
2.2.2	СКВИД-магнетометрия	44
3	Скирмионная решётка в MnSi	47
3.1	Постановка эксперимента по МУРН	47
3.2	Экспериментальные результаты	48
3.3	$(H - T)$ —фазовая диаграмма	55

3.4	Выводы	57
4	Соотношение между критическими флуктуациями и структурой A-фазы	60
4.1	Постановка эксперимента	60
4.2	Экспериментальные результаты	63
4.3	Обсуждение результатов	77
4.4	Выводы	80
5	Магнитное упорядочение в кристаллах MnSi с химически индуцированным отрицательным давлением	82
5.1	Определение структура исследуемого соединения	83
5.2	Магнитные свойства	85
5.3	Выводы	95
	Основные результаты и выводы	97
	Литература	100

Введение

Актуальность темы. Геликоидальные кубические магнетики без центра инверсии со структурой B20 являются сложными магнитными структурами, изучение которых на сегодняшний день занимает заметное место в физике магнетизма. Магнитные свойства таких соединений построены на иерархии трёх взаимодействий: 1) симметричное изотропное обменное взаимодействие; 2) изотропное антисимметричное взаимодействие Дзялошинского-Мория (ВДМ); 3) анизотропное обменное взаимодействие. Симметричное изотропное обменное взаимодействие отвечает за ферромагнитное упорядочение спинов. ВДМ способствует перпендикулярной ориентации спинов, но значительно слабее симметричного обменного взаимодействия. Оно способно развернуть спины только на малый угол, формируя спиновую спираль с большим периодом (или малым волновым вектором \mathbf{k}). Третье, самое слабое, анизотропное взаимодействие определяет направление волнового вектора спирали \mathbf{k} в пространстве. Равновесие, достигаемое указанными тремя взаимодействиями, может быть легко нарушено внешними воздействиями, такими как давление, магнитное поле или химическое замещение.

Несмотря на многочисленные эксперименты и теоретические расчёты проведённые на сегодняшний день, природа магнитных явлений в геликоидальных кубических магнетиках со структурой типа B20 до конца не раскрыта. Большинство экспериментальных исследований сфокусировано на

небольшой области ($H - T$)-фазовой диаграммы в этих соединениях вблизи T_C , называемой A -фазой. Существование такой области в MnSi впервые было обнаружено ещё в 1976 году [1]. Структура A -фазы продемонстрирована в экспериментах по нейтронному рассеянию как статическая магнитная модуляция, распространяющейся перпендикулярно к приложенному магнитному полю в MnSi [2; 3] и в $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ [4–6]. Позже A -фаза была определена как гексагональная спиновая решетка с $\mathbf{k}_{h(1,2,3)} \perp \mathbf{B}$ в магнитном поле [7] в различных соединениях переходных металлов моносилицидов Mn/FeSi , Mn/CoSi , Fe/CoSi [8–10] и в FeGe [11; 12]. Предложены несколько концепций, объясняющих гексагональную структуру A -фазы и природу её возникновения. В одной из концепций предполагается, что характер A -фазы определён появлением скирмионнов [13; 14], где скирмионы определены как квазичастицы, которые способны построить кластеры гексагональной структуры с периодичностью, не связанной с волновым вектором спирали. В другой концепции утверждается, что A -фаза является скирмионной решеткой, природа которой обусловлена топологически защищенными узлами магнитной структуры [7]. Эти концепции по-разному описывают природу A -фазы. Первая концепция оперирует скирмионами как взаимодействующими, но индивидуальными квазичастицами, в то время как вторая описывает скирмионную решетку, основанную на конкуренции изотропного обменного взаимодействия и взаимодействия ДМ. Скирмионные решетки были обнаружены в реальном пространстве в тонких плёнках с использованием Лоренцевской электронной микроскопии в таких соединениях как Fe/CoSi [15], FeGe [16] и MnSi [17]. Для объёмных кристаллов неоспоримых доказательств существования индивидуальных скирмионов

не установлено.

Целью настоящей диссертационной работы является изучение магнитной структуры кубического нецентросимметричного геликоидального магнетика чистого MnSi и соединения MnSi с примесью Ge порядка 1%.

В соответствии с целью исследования были поставлены следующие основные задачи:

1. Изучить структуру и границы A -фазы (скирмионной решётки) в объёмном образце моносилицида марганца MnSi вблизи T_C .
2. Оценить роль критических флуктуаций геликоидальной структуры в образовании скирмионной решётки.
3. Исследовать структуру и магнитные свойства соединений MnSi с химически индуцированным отрицательным давлением.

Научная новизна. Основные результаты исследования магнитной структуры геликоидальных кубических магнетиков чистого MnSi и MnSi, легированного Ge, получены впервые и заключаются в следующем:

1. Впервые сформулирована дилемма в интерпретации описания структуры A -фазы: концепция скирмиона, как квазичастицы, и концепция "скирмионной" решётки, как типа экзотической спиновой структуры.
2. Впервые показано, что спиновые флуктуации в MnSi выше T_C не связаны со структурой скирмионной решётки. Скирмионная решётка (двумерномодулированная гексагональная спиновая структура) имеет ту же природу, как и одномерно модулированная структура конической фазы.

3. Впервые установлено, что температура упорядочения T_C для соединения MnSi с химически индуцированным отрицательным давлением, приводящим к расширению решётки на 0,04%, увеличивается на 35% и составляет 39 К.

Научная и практическая ценность. Полученные в ходе выполнения работы научные результаты определяют особенности магнитной структуры кубического моносилцида марганца MnSi. Результаты могут быть применены в научных центрах, занимающихся проблемами магнетизма.

Данные по изучению магнитных свойств геликоидальных магнетиков могут быть использованы при разработке новых типов магнитной памяти и спинтронных устройств.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Магнитная структура A -фазы – небольшой области ($H - T$) фазовой диаграммы MnSi вблизи T_C в диапазоне полей между 120 мТл и 200 мТл – представляет собой гексагональную двумерно-модулированную решётку с периодом $d_{sk} \cong 16$ нм, равным периоду спиральной спиновой структуры, реализующейся в нулевом поле ниже T_C .
2. Скирмионная решетка в MnSi переходит в коническую структуру при понижении температуры. При этом наблюдаются отдельные капли скирмионной решётки, количество которых уменьшается с понижением температуры. При этом не наблюдается плавления скирмионной решётки в отдельные скирмионы или кластеры.
3. Существование скирмионной решетки выше T_C коррелирует с наличием киральных флуктуаций спирали с корреляционной длиной ξ

вдвое превышающей один шаг спирали d_s . Флуктуации с ξ превышающей один шаг спирали, коррелируют с появлением конической фазы. Флуктуации с ξ короче, чем d , имеют ферромагнитную природу. Стабилизация конической фазы и скирмионной решетки напрямую связаны с различной геометрией двух структур с одномерной и двумерной модуляцией спинов.

4. Соединение MnSi, допированное Ge, демонстрирует увеличение постоянной решётки, что было интерпретировано, как приложение отрицательного давления. Допирование привело к повышению критической температуры $T_C=39$ К на 35%, увеличению на 10% среднего спина соединения и увеличению на 10% критического поля H_{C2} перехода в ферромагнитную фазу.

Личный вклад автора. Синтез исследуемых образцов и подготовка их к экспериментам проводились лично автором. Все эксперименты были проведены при непосредственном участии диссертанта. Обработка всех полученных экспериментальных данных выполнена лично диссертантом. Автором лично были представлены результаты проведенных исследований в устных и стендовых докладах на общероссийских и международных конференциях. Автор непосредственно участвовал в подготовке публикаций полученных результатов.

Апробация работы. Результаты и положения работы докладывались и обсуждались как на семинарах отдела исследования конденсированного состояния ПИЯФ НИЦ КИ, так и на международных (и общероссийских) конференциях. Автором были лично представлены доклады на сле-

дующих конференциях: Европейские конференции по нейтронному рассеянию ECNS2011 (Прага, Чехия, 17 – 22 июля 2011 г.) и ECNS2015 (Са-рагоса, Испания, 30 августа – 4 сентября 2015 г.); Специализированный курс HERCULES-2012 (Гренобль, Франция, 5 марта – 4 апреля 2012 г.); Симпозиум по рассеянию поляризованных нейтронов в конденсированных веществах PNСMI2012 (Париж, Франция, 2 – 5 июля 2012 г.); Первая Балтийская школа по применению нейтронного и синхротронного излучения в физике твердого тела и материаловедении BSANS 2012 (Рига, Латвия, 1 – 4 октября 2012 г.); Совещания по использованию рассеяния нейтронов в исследованиях конденсированного состояния РНИКС-2012 (Гатчина, 15 – 19 октября 2012 г.) и РНСИКС-2014 (Гатчина, 27 – 31 октября 2014 г.); Международное совещание по монокристаллической дифракции поляризованных нейтронов Flipper-2013 (Гренобль, Франция, 23 – 25 января 2013 г.); 2-ое Международное совещание «Взаимодействие Дзьялошинского-Мория и экзотические спиновые структуры» DMI-2013 (Великий Новгород, Россия, 28 мая – 1 июня 2013 г.); Международная конференция по нейтронному рассеянию ICNS-2013 (Эдинбург, Англия, 8 – 12 июля 2013 г.); Совещание по малоугловому рассеянию и рефлектометрии МУРомец-2013 (Гатчина, Россия, 19 – 20 сентября 2013 г.); Международный симпозиум по исследованию киральных магнетиков IRShM-2014 (Хиросима, Япония, 6 – 8 декабря 2014 г.); Международный симпозиум по исследованию киральных магнетиков ChiMag-2016 (Хиросима, Япония, 21 – 24 февраля 2016 г.).

Публикации. По теме диссертации опубликовано 15 научных работ, из них 6 статей опубликованы в изданиях, рекомендованных ВАК РФ.

Структура и объем работы. Диссертация состоит из введения, 5 глав,

заклучения и списка литературы из 93 наименований. Работа изложена на 106 страницах и содержит 29 рисунков и 1 таблицу.

1. Магнитные свойства кубических магнетиков типа B20 без центра инверсии

Магнитные свойства переходных металлов MnSi и родственных соединений, были предметом интенсивных исследований в последние несколько лет. Внимание исследователей было сосредоточено в основном на следующих четырёх проблемах: (i) квантовый фазовый переход (КФП) наблюдаемый при приложении давления [18–23] (ii) сложный характер температурного фазового перехода [24–29], (iii) появление *A*-фазы (скирмионной решётки) в ($H - T$) - фазовой диаграмме [3; 7; 8], и (iv) связь между кристаллографической киральностью и спиновой киральностью [30–33]. Все эти проблемы взаимосвязаны, хотя они касаются очень разных фундаментальных вопросов в современной физике конденсированного состояния.

1.1. Магнитная структура MnSi

Магнитная структура MnSi на протяжении последних 40 лет исследуется различными методами. С целью изучения магнитных свойств были проведены измерения намагниченности [34;35], магнитосопротивления [36], поглощения ультразвука [1], ядерного магнитного резонанса [37–39], проведены эксперименты с использованием малоуглового рассеяния нейтронов [3; 40–42] во внешнем магнитном поле и прочие.

Первые результаты магнитных исследований соединения MnSi бы-

ли опубликованы ещё в 1966 году Уильямсом [43]. Было определено, что MnSi магнитно упорядочивается при $T=30\text{K}$. При $T=1,4\text{K}$ кривая намагниченности линейно возрастает до $H=6200\text{ Э}$, где она резко насыщается. В момент насыщения атом Mn при $T=1.4\text{ K}$ составляет $0,4\ \mu_B$, который является меньшим, чем значение $1.4\mu_B$ полученное в парамагнитной области. Разбавленные растворы Ru, Rh, Cr, Mn, Fe, Ni и в CoSi становятся парамагнитными подчиняясь закону Кюри-Вейсса.

Выяснилось, что интерметаллическое соединение MnSi обладает сложной магнитной структурой. Однако, магнитное поведение в слабых полях имеет гораздо более сложный характер. Отклик на действие магнитного поля предполагает антиферромагнитное упорядочение в нулевом поле, но никаких дополнительных магнитных рефлексов при исследованиях методом нейтронной дифракции не наблюдалось [44; 45]. Основываясь на результатах спектроскопии ядерного магнитного резонанса Mn^{55} в слабых полях, Яшимори и Ясуока предложили, что MnSi имеет спиральную спиновую структуру с большим периодом [39], которая может затруднить обнаружение магнитных солитонов. Из чего был сделан вывод, что MnSi является простым слабым зонным магнетиком [40].

Из-за нецентросимметричной структуры магнитные свойства соединений оказываются очень непростыми. Магнитную структуру кубических магнетиков без центра инверсии со структурой B20 принято описывать на основе феноменологической модели Бака-Йенсена [46]. Согласно этой модели магнитная структура "спиновая спираль" оказывается устойчивой в этом типе соединений. Известно, что магнитная структура соединений типа MnSi построена на иерархии взаимодействий: изотропного обменного

взаимодействия J , взаимодействия Дзялошинского-Мория D , анизотропного обменного взаимодействия и кристаллографической анизотропии K ($J \gg D \gg K$). Так, например, магнитная подсистема MnSi упорядочивается в спираль с периодом порядка 18 нм, ориентированную вдоль кристаллографических осей типа $\langle 111 \rangle$. За упорядочение в спираль и её одностороннюю закрученность (спиновую киральность) отвечает взаимодействие Дзялошинского-Мория, обусловленное нецентросимметричностью кристаллической системы и волновой вектор спирали равен $\mathbf{k} = D/J$. Именно знак константы Дзялошинского D определяет спиновую киральность системы, которая может быть как левозакрученной (т. е. закручивается против часовой стрелки, при этом $D > 0$), так и правозакрученной (закручивается по часовой стрелке, с $D < 0$). При этом оказывается, что величина константы взаимодействия Дзялошинского D определяется кристаллографической структурой.

Такая иерархия взаимодействий существует во всех исследуемых системах со структурой типа B20. Она приводит к типичной ($H - T$)-фазовой диаграмме, представленной на рисунке 1.1, которая описывает поведение MnSi в магнитном поле следующим образом: при приложении внешнего магнитного поля спиновая структура трансформируется, т.е. волновой вектор спирали \mathbf{k} поворачивается вдоль направления магнитного поля \mathbf{H} , и образец становится монокристаллическим. Наблюдаемый процесс начинается с порогового значения поля H_{C1} , энергия которого преобладает над энергией кубической анизотропии, фиксирующей направление спиралей в пространстве вдоль выделенных кристаллографических направлений. В полях $H > H_{C1}$ спиновая структура переходит в коническую фазу, то есть воз-

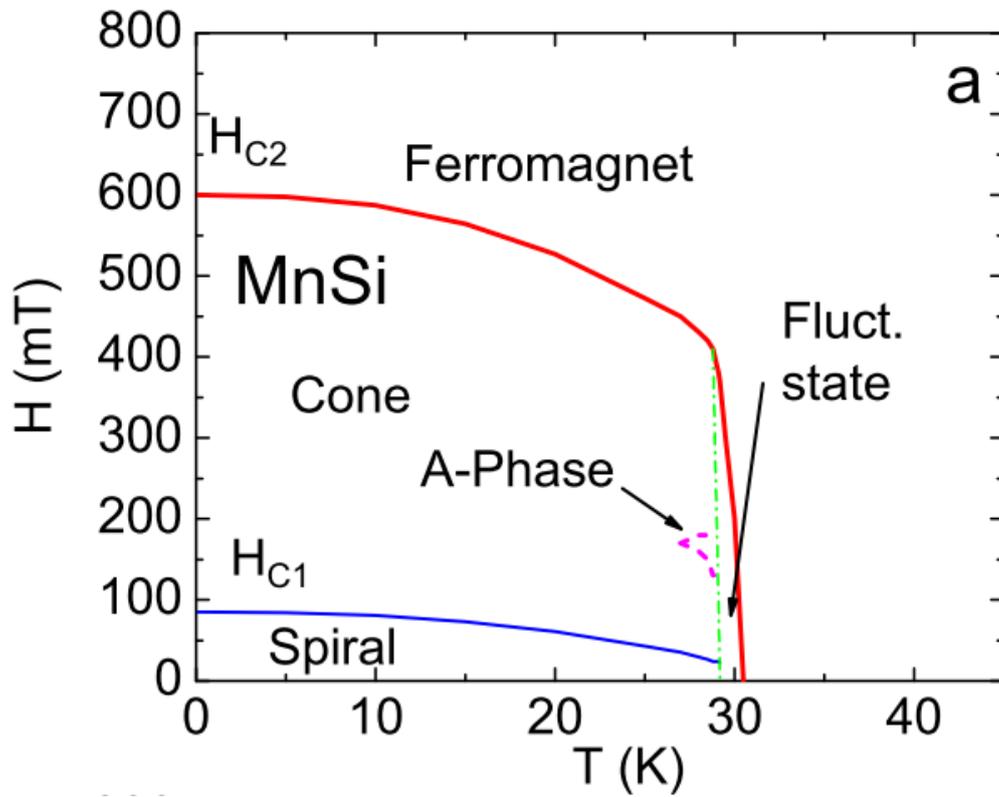


Рисунок 1.1 — $(H - T)$ -фазовая диаграмма, типичная для ферромагнетиков с взаимодействием Дзялошинского-Моррия, на примере соединения MnSi

никает компонента спина, параллельная полю, а каждый единичный спин образует конус с осью, которой является вектор \mathbf{k} . Угол между единичным спином и \mathbf{k} продолжает уменьшаться с увеличением поля вплоть до $H = H_{C2}$, где становится равным нулю, то есть спиральная структура переходит в индуцированную ферромагнитную фазу. $(H-T)$ -фазовая диаграмма позволяет оценить основные энергетические взаимодействия магнитной системы. Так, критическое поле H_{C2} связано с жесткостью спиновых волн A соотношением $g\mu_B H_{C2} = Ak^2$. В то же время волновой вектор спирали определяется отношением $\mathbf{k} = S|D|/A$. Используя экспериментально полученные величины \mathbf{k} , H_{C2} , S , можно получить константы основных взаимодействий для моносилицидов и моногерманидов переходных металлов. Такая оценка, проведенная для родственных соединений типа $Mn_{1-y}Fe_ySi$, $Fe_{1-x}Co_xSi$ и $FeGe$, показала, что константа D не меняется от состава к составу и равна $D\mu_B/a = 1,15$ мэВ. Очевидно, что она определяется кристаллографической структурой (группой $R2_13$) и параметром ячейки $a = 0,45$ нм. При этом изменение концентрации примесных атомов x и y приводит к заметным количественным изменениям как в величине основных взаимодействий в системе, так и в параметрах магнитной структуры.

Интересной особенностью поведения $MnSi$ во внешнем магнитном поле является существование так называемой A -фазы (или \mathbf{k} -флоп перехода) вблизи T_C . Первоначально A -фаза была неправильно интерпретирована как парамагнитная фаза, проникающая в геликоидальное состояние вблизи критической температуры, поскольку данный процесс сопровождался исчезновением брэгговских пиков от спиновой структуры при малоугловом рассеянии нейтронов [41]. Однако, позднее было установлено [3; 47],

что A -фаза — это переворот спиновой спирали из положения параллельного полю в перпендикулярное в интервале полей $H_{A1} < H < H_{A2}$. При дальнейшем увеличении магнитного поля $H > H_{A2}$ A -фаза оказывается нестабильной и спирали с перпендикулярным полю волновым вектором исчезают, а количество спиралей с $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ вновь растёт вплоть до H_{C2} .

При исследовании MnSi другими методиками наблюдаются те же особенности структуры, так рисунок 1.2 иллюстрирует результаты измерений намагниченности MnSi в полях, не превышающих 6 кЭ, так как выше этого значения система не имеет особенностей 1.3. Как видно из рисунка кривая намагниченности показывает особенность магнитной восприимчивости при $T \approx 29\text{К}$, что соответствует температуре фазового перехода и согласуется с данными по нейтронному рассеянию [24], где авторы демонстрируют экспериментальные результаты по малоугловому рассеянию поляризованных нейтронов в MnSi, кубического зонного магнетика, вблизи $T_C = 28,8\text{ К}$. Интенсивность диффузного рассеяния выглядит как полумесяцы, ориентированные вдоль падающего пучка поляризованных нейтронов. Сумма интенсивностей для двух противоположных поляризаций формируют анизотропное кольцо с слабыми пятнами, которые ниже T_C превращаются в брэгговские пики относящиеся к спиральной структуре. Эти результаты полуколичественно согласуются с расчетами среднего поля, основанными на модели Бак-Йенсена, который принимает во внимание иерархию взаимодействий: обменного взаимодействия, изотропной взаимодействия Дзялошинского-Мория (ДМ) и слабого анизотропного обменного взаимодействия. Взаимодействие ДМ отвечает за интенсивность рассеяния сконцентрированного в полумесяце. Анизотропное обменное взаимо-

действие обеспечивает анизотропию, так что корреляционная длина отклоняется по 111. Соответствующим критическим показателем является $\nu = 0,62(1)$. Показатель интенсивности брэгга спиральной структуры в $T < T_C$ $2\beta = 0,44(1)$, где β - это показатель намагниченности спирали.

Измерение теплового расширения и теплоёмкости MnSi [48] продемонстрировали существование ярко выраженных аномалий в области магнитного фазового перехода, хотя и не привели к заключению о его природе. При измерении теплового расширения MnSi была обнаружена большая отрицательная аномалия коэффициента теплового расширения в области фазового перехода. В ходе исследования был сделан вывод, что умеренное магнитное поле до 0,4 Тл по существу не влияет на тепловое расширение геликоидальной фазы, но сильно влияет на поведение парамагнитной фазы. Стоит также отметить, что тепловое расширение быстро уменьшается в магнитном поле между 0,4 и 0,5 Тл, что говорит о формировании индуцированной ферромагнитной спиновой структуры в MnSi.

На рисунке 1.4 представлены кривые характеризующие поведение теплоёмкости, коэффициента теплового расширения, температурного коэффициента электрического сопротивления в области фазового перехода. Все приведённые кривые демонстрируют хорошо определяемые острые пики и слегка размытые скачки, что позволяет интерпретировать фазовый переход в MnSi как слабый фазовый переход первого рода. На кривых также видны пологие экстремумы, которые по температуре близки к 31,2 К, что соответствует на рисунке 1.5 началу падения энтропии. Это говорит о возможной трансформации фазового перехода в киральных магнитных системах на два: магнитный и киральный, разделённый некоторой пере-

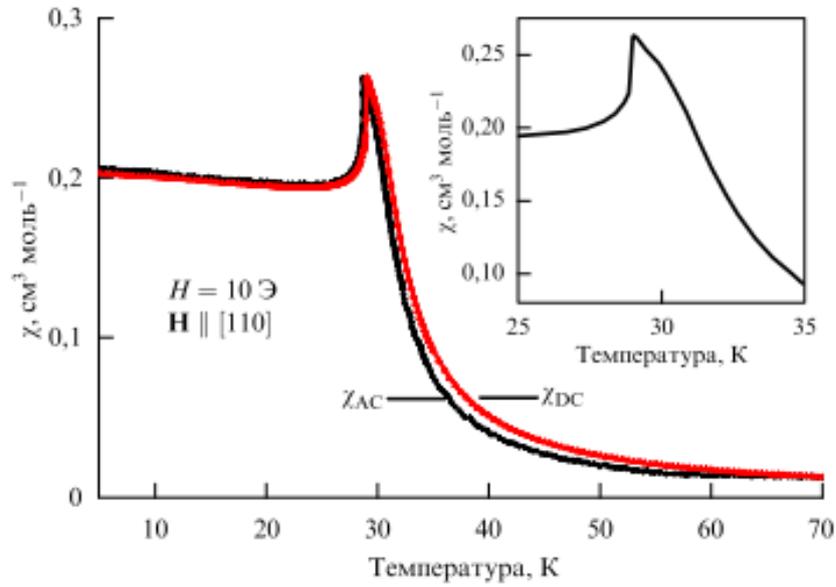


Рисунок 1.2 — Магнитная восприимчивость MnSi в окрестности фазового перехода (χ_{AC} и χ_{DC} — магнитные восприимчивости, измеренные соответственно в переменном и постоянном поле) [22].

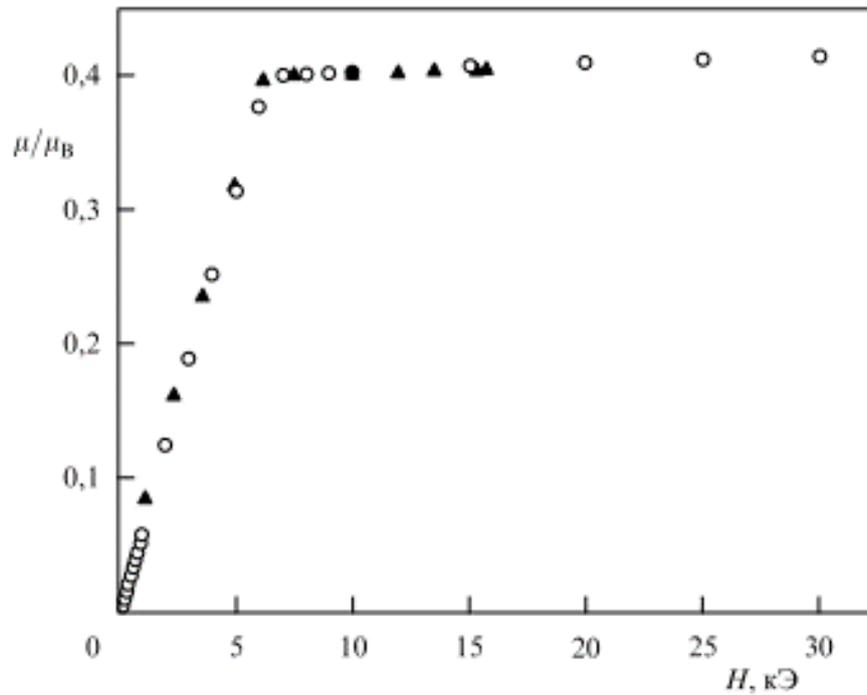


Рисунок 1.3 — Магнитный момент насыщения для MnSi.

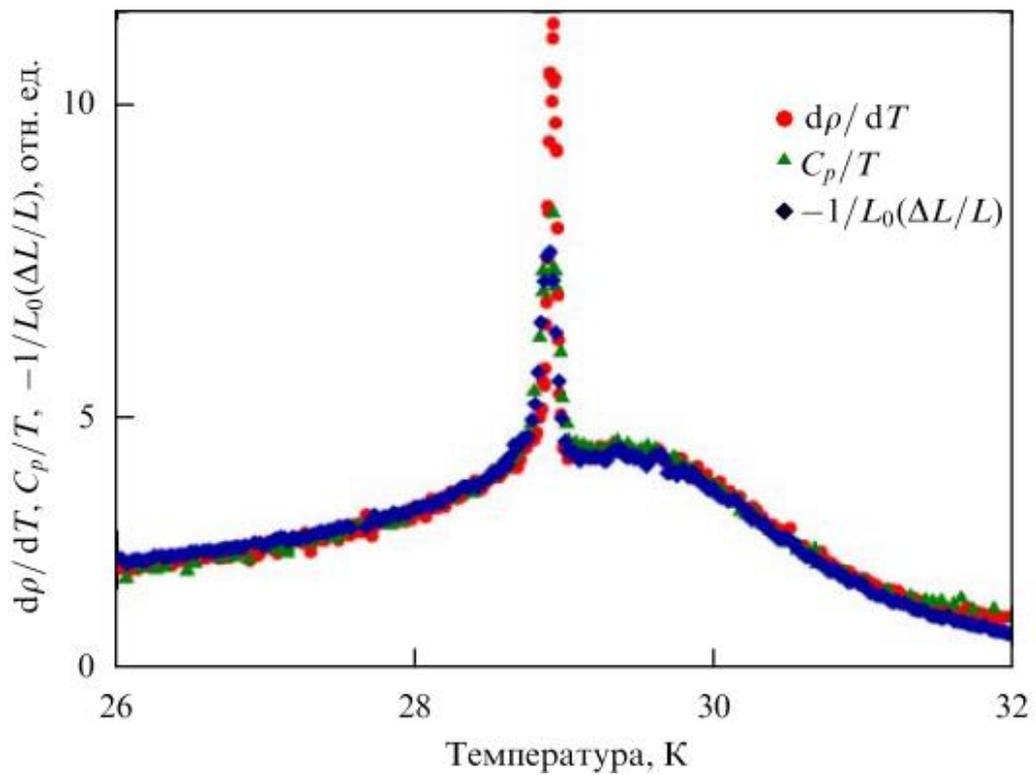


Рисунок 1.4 — Приведённые величины теплоёмкости, коэффициента теплового расширения и температурного коэффициента электрического сопротивления MnSi в области фазового перехода. [19]

ходной температурной областью [49; 50]. Авторы работ [20; 25] связывают наблюдаемые эффекты при $T > T_C$ с формированием скирмионов.

1.2. Квантовый фазовый переход в $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ по концентрации

Известно, что замещение марганца железом $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ в изоструктурных твердых растворах подавляет температуру перехода в спиральное состояние T_C и приводит к исчезновению спонтанного магнитного момента в интервале $0.1 < x < 0.2$ [53]. Недавние исследования показали, что нулевое значение $T_C(x) = 0$ может быть достигнуто при $x^* = 0.12 - 0.15$ [54; 55]. Нейтронные дифракционные эксперименты показывают, что увеличение x уменьшает обменную энергию, тогда как взаимодействие Дзялошинского–Мория (ДМ) слабо зависит от изменения состава образца [54]. Выполнение условия $T_C(x) = 0$ позволяет наблюдать квантовый фазовый переход и появление квантовых критических (КК) явлений в соединении $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$. В работе [55] авторы утверждают, что КК переход в $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ существует, но имеет “базовый” характер. На практике это утверждение означает, что КК точки (любые) находятся внутри какой-то промежуточной фазы и окружают линию $T_C(x)$ на магнитной фазовой диаграмме. Предположительно, промежуточные фазы существуют из-за неустойчивого характера при $T > T_C(x)$ в $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$, что также сообщалось в [28]. Кроме того, последнее теоретическое описание магнитных свойств соединений MnSi в рамках модели Хаббарда [56] показало, что ослабление нецентросимметричного отталкивания приводит к переходу от спиральной фазы с дальним магнитным порядком в частично упорядоченную или флуктуационную спиральную фазу. Рассмотренное поведение очень близко к пове-

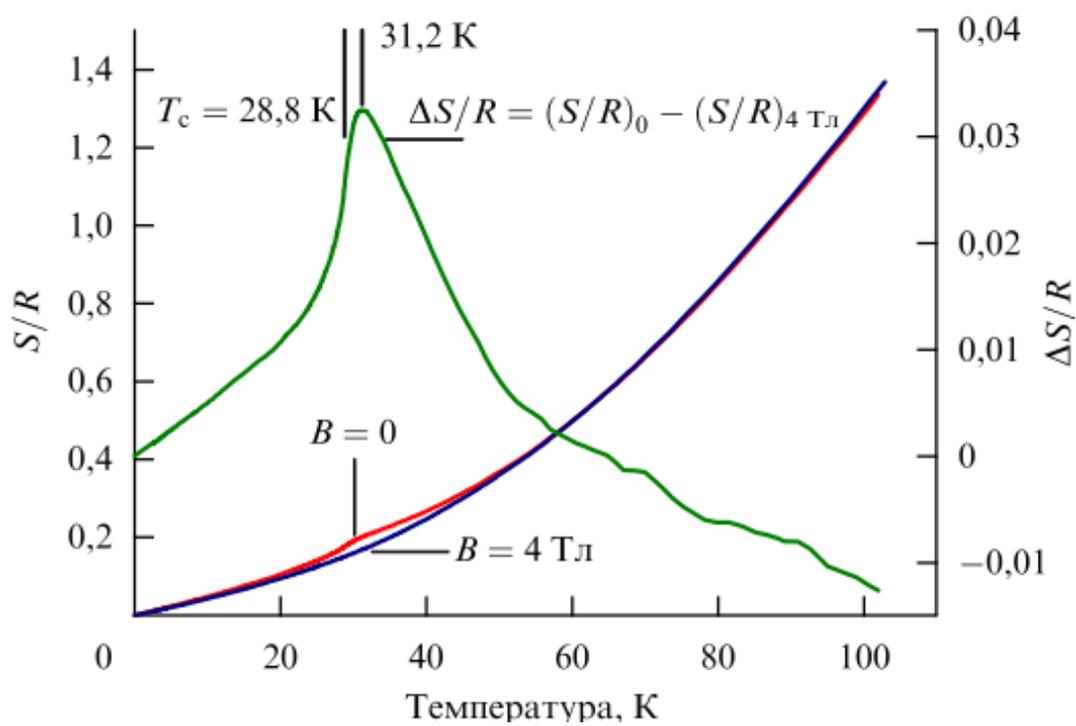


Рисунок 1.5 — Энтропия MnSi, рассчитанная по данным измерения теплоёмкости при $B=0$ и $B=4$ Тл. [51;52]

дению, вызванному эффектами киральной конденсации в квантовых гелимагнетиках [57]. Вышеупомянутые теоретические сценарии [56;57], а также некоторые экспериментальные результаты [55] показывают, что КК явления в соединениях $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ могут быть скрыты вследствие формирования промежуточных магнитных фаз, таким образом, что при конечных температурах в КК точке (как расходящиеся магнитная восприимчивость) не должно существовать вырожденных аномалий. Действительно, никаких конкретных эффектов при $T \neq 0$, которые обозначают однозначно КК область, не были зарегистрированы до сих пор в $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$. С другой стороны, отсутствие экспериментально наблюдаемых КК аномалий ставит под сомнение применимость любой модели КК для такой системы с антисимметричным анизотропным магнитным взаимодействием.

1.3. Квантовый фазовый переход под давлением

Особый интерес исследователей последние несколько лет вызывает наблюдение квантового фазового перехода (КФП) в MnSi достигаемого при приложении гидростатического давления. Как было показано в работах [18; 58; 59] при давлении $p_c = 14,6$ кбар критическая температура, при которой исчезает магнитный порядок, равна 0. Учитывая тот факт, что прикладываемое давление мало меняет величину эффективного магнитного момента [34], можно предположить, что система близка к ферромагнитной неустойчивости. Природа этой неустойчивости остается невыясненной до сих пор. Из рисунок 1.6, при сравнении с 1.1, видно, что приложенное давление не влияет на значения критических полей, а влияет лишь на температуру магнитного упорядочения. В частности, при КФП в области

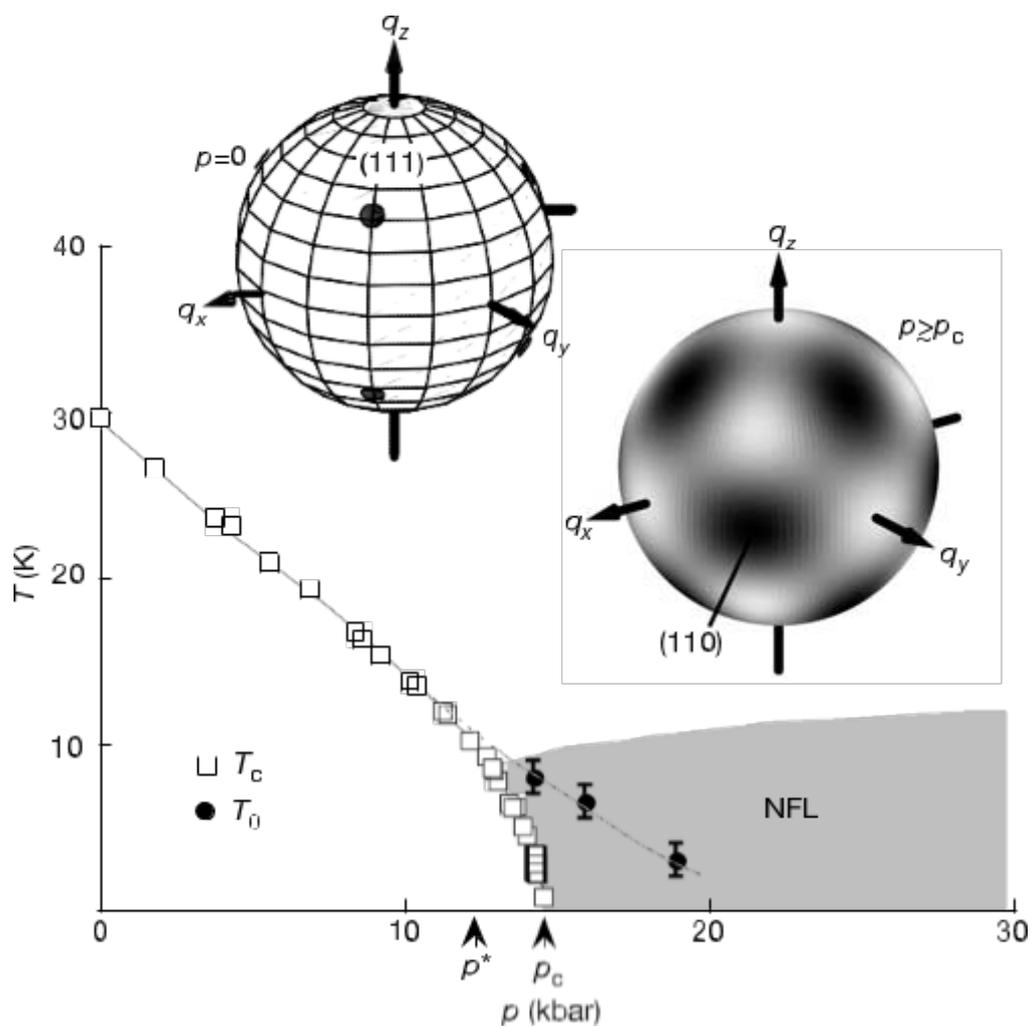


Рисунок 1.6 — Фазовая диаграмма температура – давление ($T - P$) моносилцида марганца MnSi [20].

давлений выше p_c зависимость сопротивления от температуры описывается законом $\rho(T) \propto T^{3/2}$ [19;60]. В тоже время более поздние эксперименты показали, что вблизи p_c никакой квантовой критичности не наблюдается [61].

Другим аспектом проблемы, связанный с MnSi, является возможные применения фундаментальных физических свойств в современных устройствах спинтроники [36;62]. Важным параметром применения этих соединений является температура упорядочения T_C , значение которой должно быть сравнимо или превышать комнатную температуру. Наибольшая температура упорядочения соединений типа B20 наблюдается в чистом соединении FeGe и равна 278,6 К [63]. Попытки изменить температуру упорядочения чистого объемного соединения (MnSi) в результате химической замещения (с Fe или Co) привело лишь к снижению температуры упорядочения [26;28;55].

Не столь давно было сообщено об определенных успехах на пути повышения температуры упорядочения в этих соединениях в синтезе эпитаксиального MnSi (111) тонких пленок [64–66]. Авторы говорят о корреляции между магнитными и структурными свойствами эпитаксиальных тонких пленок MnSi (111), выращенных методом твердофазной эпитаксии на подложках Si (111). Подложка Si (111), с поверхностной элементарной ячейкой на 3,0 % больше, чем у MnSi, вызывает деформацию растяжения в плоскости пленки, которая частично смягчена благодаря наличию дислокаций, расположенных на границе раздела. Тем не менее, вне плоскости деформация имеет немонотонную зависимость от толщины, что объясняется изменениями в упругих постоянных плёнки. Зависимость толщины от температуры Кюри сильно коррелирует с напряжением и достигает мак-

симума $T_C = 43\text{K}$, значение, на 46 % больше, чем у объемного соединения $T_C = 29,5\text{K}$. Как показано в [23] уменьшение параметра решетки на 0,3 % в результате приложенного давления приводит к снижению температуры упорядочения почти на 20 К.

Логично предположить, что увеличение параметра решетки будет сопровождаться увеличением температуры упорядочения. Данный вопрос является предметом обсуждения в главе 5.

1.4. Скирмионная решётка соединений со структурой типа B20. Теория скирмионов в MnSi.

В настоящее время многие экспериментальные исследования сосредоточены в небольшой области ($H - T$) фазовой диаграммы MnSi, вблизи T_C (A -фаза). О существовании такой области в MnSi впервые было сообщено в 1976 году [1], в настоящее время такая область наблюдается в огромном разнообразии магнитных материалов с структурой типа B20 [2–12]. Характер A -фазы показан в экспериментах по нейтронному рассеянию в качестве статической магнитной модуляции, распространяющейся перпендикулярно к приложенному магнитному полю в MnSi [2; 3] и в $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ [4–6]. Позже A -фаза была определена как гексагональная спиновая решетка $k_{h(1,2,3)} \perp B$ в магнитном поле [7] в различных соединениях переходных металлов моносилицидов Mn/FeSi, Mn/CoSi, Fe/CoSi [8–10] и в FeGe [11; 12]. Кроме того, структура A -фазы демонстрирует исключительно чётко выраженный дальний порядок, а рассеяние более высокого порядка на порядок ниже, чем паразитические эффекты двойного рассеяния [67].

На сегодняшний день существует несколько основных концепций, ко-

которые по-разному описывают происхождение A -фазы в $MnSi$ и относительных соединений. Одна концепция настаивает на реальном "скирмионном" характере A -фазы, где скирмионы, как квазичастицы, могут построить кластеры гексагональной структуры с периодичностью, не связанной с волновым вектором спирали [13; 14]. Другая концепция утверждает, что A -фаза в качестве стабильной структуры дальнего порядка является скирмионной решеткой, скирмионная природа, которой определяется как топологически защищенные узлы в магнитной структуре [7]. Существование такого топологического узла доказано измерением эффекта Холла [9]. Можно подумать, что эти понятия описывают одну и ту же решетку скирмионов, но это не так. Первый настаивает на свойствах скирмионов как квазичастиц, в то время как последний описывает скирмионную решетку, основанную на взаимодействии ДМ.

1.4.1. Индивидуальный скирмион — общие сведения

Теоретическое существование скирмионов было предсказано Т. Скирмом в 1961 году. В своей работе [68] впервые вывел уравнения существования магнитного вихря, потому что, в определенной степени, они похожи на 2D топологические дефекты, исследованные в магнетизме и известные как "двумерные топологические солитоны" или "вихри" (например, хорошо известные решения Белавина-Полякова на магнитных вихрях [69]), которые впоследствии станут называть "скирмионами". Сегодня термин "скирмион" несёт довольно широкое понятие и его используют во многих разделах физики для описания различных солитонных структур, которые между собой имеют мало общего и, тем более, имеют мало общего с локализован-

ными решениями уравнений полученных Т. Скирмом [68], которые были впервые введены под именем "магнитных вихрей" [70]. С другой стороны, термин "скирмион" был задуман в области довольно далекой от физики конденсированных сред и первоначально был связан с локализованными решениями, полученных Скирмом в его модели динамики низкоэнергетических мезонов и барионов [68]. На самом деле, модель Скирма [68] включает в себя три пространственных измерения и имя "Новорожденный скирмион" (Baby Skyrmion) было использовано некоторыми теоретиками в данной области, чтобы отличить двумерные локализованные состояния от «зрелых» трехмерных решений в оригинальной модели Скирма [68]. За последние десятилетия "скирмион" постепенно завоёвывал свое место в общей физики, и теперь его используют для обозначения любых невырожденных локализованных и топологически стабильных полевых конфигураций. Соблюдая эту тенденцию, в 2002 году авторы [14] переименовали "киральные магнитные вихри" в "киральные скирмионы" [71]. Оказываются локализованные состояния вблизи области перехода могут распадаться по продольной намагниченности процессов, а также эти "киральные скирмионы" являются топологически не стабильными, при достаточно высокой температуре.

В работе [72] авторы показывают, что скирмионы, для стандартной модели киральных изотропных ферромагнетиков [13; 46; 73], сильно ограничены вблизи температуры упорядочения. В этой части фазовой диаграммы, скирмионы создаются как стабильные единицы и их конденсация в расширенных текстурах происходит одновременно, за редким случаем, неустойчивости при зарождении перехода [74], но ограниченные скирмио-

ны, как различимые единицы, могут образоваться в разных мезофазах и это является следствием связи между величиной и угловой частью параметра порядка. Таким образом, вблизи области перехода, локальная намагниченность не только многократно скручена в продольном направлении, но также модулирована. Кроме того, термодинамическая стабильность скирмионных состояний может быть предпочтительнее по отношению к одномерным модуляциям, дополняя модель с кубической обменной анизотропией модифицированную модель для металлических киральных магнетиков [13].

Сегодня скирмионами называют магнитные вихри, возникающие во многих материалах, включая тонкие плёнки на основе силицида марганца, кобальто-железо-кремниевые материалы и даже двухслойные сэндвичи из палладия и железа [72]. Их можно представить как двумерные узлы, в которых магнитный момент вращается в плоскости на 360° . Часто их рассматривают как потенциальную элементную базу для технологий хранения информации. Сегодня жёсткие диски используют магнитные домены, в которых все спины выровнены в одном направлении, но размеры таких доменов ограничены снизу (без паразитных эффектов — не менее нескольких тысяч атомов), а скирмионы вполне могут быть существенно меньше доменов (до десятков атомов), что теоретически позволяет реализовать на их основе намного более плотное, до 20 раз, хранение информации [75]. Скирмионное состояние обладает определённой киральностью, связанной с направлением вращения магнитных моментов в спиновых вихрях. С другой стороны, магнитные возбуждения такие, как например, спиновые волны в ферромагнетиках также обладают свойством киральности, связанным с

прецессией атомных спинов вокруг направления средней намагниченности. Однако, в этом случае киральность является динамической и исчезает при усреднении по спектру возбуждений и спиновым состояниям нейтронов в неполяризованном пучке.

1.4.2. Скирмионная решётка в MnSi

В работе [7] была предложена модель среднего поля Ландау-Гинзбурга, описывающая отдельную многоузловую область с трёхосевой структурой, обозначенной как "скирмионная решетка". Авторы утверждают, что топологически нетривиальный объект, т.е. скирмион, менее энергетически выгоден по сравнению с простой спиральной структурой в нулевом поле, это показывает, что гауссовские тепловые колебания вблизи T_C стабилизируются в трёхосевую структуру при приложении поля.

Авторы также сообщают о наблюдении образования магнитной структуры с гексагональной симметрией перпендикулярной приложенному магнитному полю в кубическом соединении MnSi с структурой B20. И показывают, что эта структура может быть описана примерно в суперпозиции трех простых спиральных состояний в присутствии единого поля, где наложение состояний с наименьшей энергией можно рассматривать как решетку антискирмионных линий, то есть магнитных вихрей для которых намагниченность в центре антипараллельна приложенному полю. Важную роль в объяснении магнитной структуры играют следующие три аспекта: во-первых, это взаимодействие локализованного отталкивания и притяжения атомов дальнего порядка, ведущее к нестабильности жидкости с корреляциями, которые полностью изотропны и не имеют предпочтительно-

го направления; во-вторых, тройное столкновение частиц снижает энергию и доминирует в формировании кристалла из изотропной плотности флуктуации; в-третьих, атомы квантуются целым числом в элементарной ячейке. Отсутствие пространственной инверсии в атомах кристалла MnSi приводит к слабому спин-орбитальному взаимодействию, который генерирует медленное вращение всех магнитных структур так, что они могут очень эффективно отделяться от основной атомной решетки. Кроме того, в присутствии внешнего магнитного поля, которое нарушает симметрию времени обращения, происходит взаимодействие трех частей магнитных возбуждений. Наконец, для магнитного состояния, которое возникает при этих условиях скирмионных линий, то есть, некоторые топологически защищенные узлы магнитной структуры взяли на себя роль атомов в обычных кристаллах.

Позже гексагональная скирмионная решетка наблюдалась в реальном пространстве в тонких пленках Fe / CoSi [15], FeGe [16] и MnSi [17] с помощью Лоренцевского просвечивающего (трансмиссионного) электронного микроскопа. Авторами было показано, что двумерная модулированная решетка является достаточно стабильной при больших температурах в большом диапазоне магнитных полей в пленках толщиной меньше шага спирали d_s . Хотя естественная анизотропия плёнок изменяет симметрию задачи и добавляет дипольное взаимодействие (размагничивающие поля) во взаимодействие энергетических шкал, авторы смогли показать экспериментально, что d_s равна постоянной решетки кристалла скирмион $d_{sk} = d_s$

Теоретическая концепция скирмионов в MnSi, которые появляются выше T_C и в A-фазе было введено Росслером и др [13]. Скирмионная ре-

решетка является двумерной модулированной текстурой, которая конкурирует с общими одномерными модуляциями (спиновая спираль). Отличием от спиновой спирали является то, что скирмионная решетка характеризуется сильным изменением размера ячеек и изменением структуры скирмиона вблизи границы ячейки. Согласно [14] скирмион-скирмион взаимодействия зависят от плотности скирмионов и температуры: они отталкиваются в широком диапазоне температур, в то время как при высокой температуре (вблизи T_C) они осциллируют. Рядом с T_C скирмионы энергетически ограничены, так как, пара или кластер скирмионов может достичь более низких энергий, чем такое же количество свободных скирмионов. Таким образом, скирмионы образуют гексагональную решетку с периодом решетки равным $1,27$ шага спирали d_s [14]. Из этой концепции очевидно, что периодичность скирмионной решетки зависит от температуры и магнитного поля, поскольку она закреплена межскирмионной связью, но не коррелирует взаимодействием ДМ.

Появление скирмионной решетки в очень маленькой области ($H - T$) фазовой диаграммы MnSi и в относительных соединениях на сегодняшний день становится камнем преткновения для многих учёных. Такая область встречается в огромном разнообразии магнитных материалов со структурой типа $B20$ [2–10; 12; 67; 76–79], природа которой была определена в экспериментах по рассеянию нейтронов как статическая магнитная модуляция, распространяющаяся перпендикулярно приложенному магнитному полю в MnSi [2; 3] и в $Fe_xCo_{1-x}Si$ [4–6; 76]. Позже эта экзотическая фаза была определена как гексагональная магнитная решетка с $\mathbf{k}_{h(1,2,3)} \perp \mathbf{H}$ в MnSi [7] и в различных соединениях переходного металла моносилицидов Mn/FeSi,

Mn/CoSi, Fe/CoSi [8–10], FeGe [12] и в Cu_2OSeO_3 [78; 79]. Гексогональная скирмионная решётка также наблюдалась в реальном пространстве в тонких плёнках Fe/CoSi [15], FeGe [16] и MnSi [17] с использованием Лоренцевского электронного микроскопа.

Как уже было сказано ранее, магнитная структура MnSi построена на иерархии взаимодействий: сильное ферромагнитное обменное взаимодействие, антисимметричное взаимодействие Дзялошинского-Мория (ДМ) и слабое кубическая анизотропия [46; 80]. Магнитная система на основе этих взаимодействий в нулевом поле упорядочивается в спираль с периодом, определяемым отношением между ферромагнитным взаимодействием и взаимодействия ДМ. При приложении магнитного поля спираль, во-первых, превращается в монодоменное коническое состояние с $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$. Затем, коническое состояние переходит в коллинеарное ферромагнитное состояние в критическом поле H_{c2} . Коническое состояние наблюдается во всем диапазоне температур ниже критической температуры T_C . Вблизи T_C , однако, скирмионная решетка стабилизируется в узком диапазоне магнитного поля [7; 67; 77]. Авторы [7] предложили модель теории среднего поля Ландау-Гинзбурга, описывающую однодоменную многовекторную структуру, названную скирмионной решёткой. Они утверждают, что скирмионная решетка менее энергетически выгодна по сравнению с простой спиральной структурой в нулевом поле, но гауссовские тепловые флуктуации в непосредственной близости T_C стабилизируются в трёхосевую структуру в приложенном поле. Возникает вопрос: почему критические флуктуации, которые, как правило, дестабилизируют упорядоченную фазу, не стабилизируют её при наличии скирмионной решетки? Критические флуктуации

спиральной структуры типа B20 настолько специфичны, что приводит к их стабилизации? Еще один важный вопрос: почему флуктуации стабилизируют только скирмионную решетку, в то время как коническая фаза дестабилизируется?

Как отмечено в [3], следы конической фазы и скирмионной решетки могут быть подняты выше критической температуры T_c на фоне критических флуктуаций. Находясь в критическом диапазоне, можно обсудить условия устойчивости двух фаз с точки зрения длины и масштабами энергий, присущих критическим флуктуациям. Конкуренция между конической фазой и скирмионной решеткой в MnSi выше T_C является предметом исследования в главе 4.

Вопрос о сложной природе магнитной структуры даже в нулевом поле был предметом дискуссий в [13; 24–28; 81]. Сегодня фазовый переход в нулевом поле можно рассматривать, как хорошо изученный и качественно понятный. С другой стороны, преобразование спиновой структуры под действием магнитного поля не изучалось с помощью малоуглового рассеяния нейтронов. Данная диссертационная работа заполнит пробел, в работе будет показано, что критические флуктуации коррелируют с их длиной и с появлением конической структуры и скирмионной решетки, в приложенном магнитном поле.

2. Образцы и экспериментальные методы исследования

2.1. Объекты исследования

В качестве объектов исследования в настоящей работе были выбраны кубические геликоидальные магнетики без центра инверсии MnSi и MnSi допированный Ge. Детальное исследование представленных соединений позволит получить более глубокие знания о их магнитных свойствах, а следовательно, и о всём классе геликоидальных магнетиков. Выбранные соединения имеют одну и ту же пространственную группу $R2_13$ с одинаковым типом магнитного упорядочения.

Монокристаллические соединения MnSi допированные Ge были выращены методом Чохральского из расплава исходных компонентов высокой чистоты в Техническом университете г. Брауншвейга (Германия). Метод вытягивания монокристаллов (метод Чохральского) - это метод выращивания кристаллов путём вытягивания их вверх от свободной поверхности большого объёма расплава с инициацией начала кристаллизации путём приведения затравочного кристалла заданной структуры и кристаллографической ориентации в контакт со свободной поверхностью расплава. Данный метод может использоваться для выращивания кристаллов элементов и устойчивых при температурах плавления-кристаллизации химических соединений. Кристаллы, выращенные этим методом, обычно не содержат

краевых дислокаций, но могут включать небольшие дислокационные петли, образующиеся при конденсации избыточных точечных дефектов. Кристаллический рост заключается в фазовом переходе из жидкого состояния в твердую фазу на границе раздела. Скорость роста определяется числом мест на поверхности растущего кристалла для присоединения атомов, поступающих из жидкой фазы, и особенностями теплопереноса на границе раздела фаз. Скорость вытягивания оказывает влияние на форму границы раздела фаз между растущим кристаллом и расплавом, которая является функцией радиального градиента температуры и условий охлаждения боковой поверхности растущего кристалла.

Для экспериментов были синтезированы образцы чистый MnSi и MnSi легированный Ge около 1% . Чистый MnSi представлял собой диск толщиной 1,5 мм и диаметром 15 мм имеющий структуру B20. Мозаичность кристалла не превышает $0,25^\circ$.

Легированные образцы были выращены, как побочный продукт в процессе роста кристалла псевдобинарного соединения $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$. Компоненты высокой чистоты Mn:Si:Ge были смешаны в пропорции 5:4:1, 5:3:2 и 2:1:1, смесь расплавлялась в водоохлаждаемом медном тигле в атмосфере аргона при давлении 2,5 бар, в то время как нагревание обеспечивалось тремя электрическими дугами. Затравка кристалла вращающаяся по часовой стрелке погружалась в расплав, вращающейся в противоположную сторону. После чего кристалл медленно вытягивался из расплава со скоростью 12 мм/час. Готовые образцы имели форму цилиндра с диаметром 4-6 мм и высотой 3-4 мм (рис. ??).

Для определения абсолютной структуры образцов использовался ме-

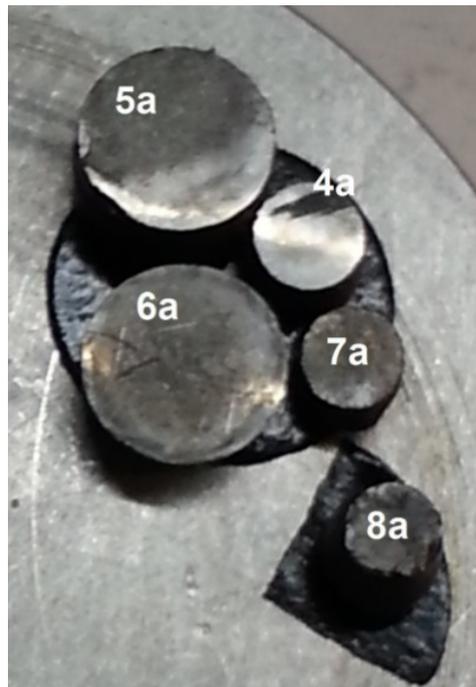


Рисунок 2.1 — Образцы $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ различной концентрации ($x= 0,05$ (5a), 0,15 (4a), 0,2 (6a), 0,5 (7a), 0,8 (8a)), подготовленные к эксперименту с использованием СЭМ.

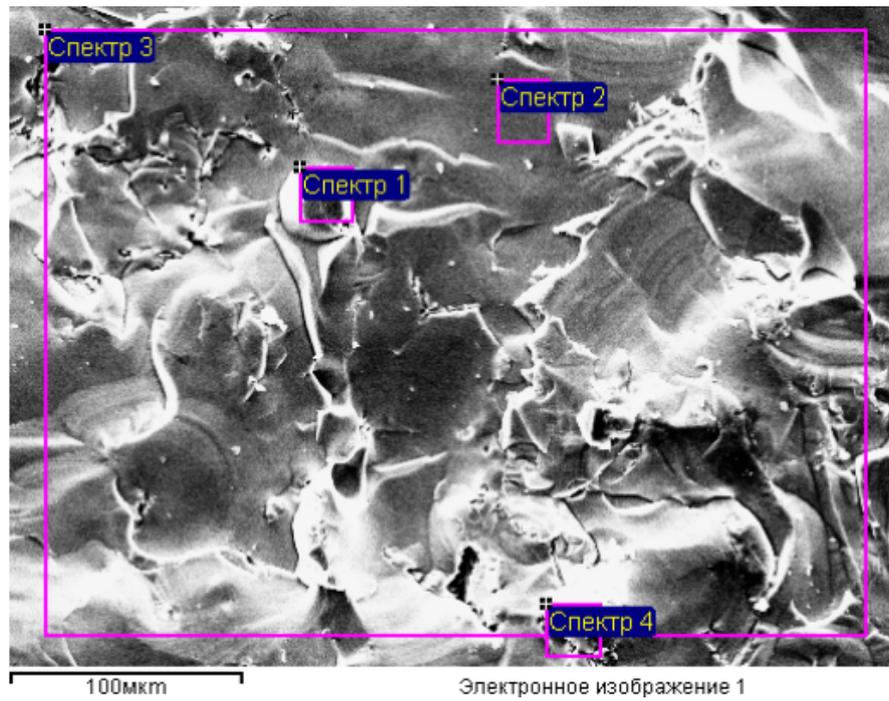


Рисунок 2.2 — СЭМ изображение поверхности образца $\text{MnSi}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$ снятое при комнатной температуре $T = 293 \text{ K}$ с отмеченными участками детектирования рентгенофлуоресцентного излучения.

тод широкоугольной дифракции синхротронного излучения на монокристаллах. Высокая интенсивность синхротронного излучения позволяет различать структурные особенности соединений, затрачивая малое время на эксперимент.

Характеризация образцов твердых растворов замещения $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$ проводилась с помощью сканирующего электронного микроскопа с функцией рентгено-флуоресцентного спектрального анализа. Для этого был использован электронный микроскоп JPRS40-51 расположенный в Институте общей и неорганической химии российской академии наук (ИОНХ РАН, Москва).

На рисунке 2.2 представлен снимок поверхности образца $\text{MnSi}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$ полученный при помощи сканирующего электронного микроскопа. Из рисунка видно, что поверхность выглядит однородной без каких-то дополнительных включений, но на некоторых участках наблюдаются "горки" (2.2 спектр 4), которые определены как скопление Ge. Наблюдаемая картина говорит о том, что в образцах химические элементы Mn и Si распространены равномерно по всему кристаллу. В ходе анализа концентрационных спектров полученных с СЭМ установлено, что дефицит Si или Mn как элементов в образце не превышает 10 %, а Ge практически не присутствует в составе и его следы в этих кристаллах не превышают значения в 1% 2.1. Из данных таблицы видно, что соотношение концентраций кремния и переходных металлов не соответствует концентрациям заложенным при росте образцов, поэтому образец может рассматриваться как нестехиометрический MnSi_{1-x} , где x изменялось в пределах $\pm 0,10$.

Таблица 2.1: Концентрационные параметры соединения $\text{MnSi}_{0,5}\text{Ge}_{0,5}$.

Спектр	Si	Mn	Ge
Спектр 1	44,73	54,89	0,74
Спектр 2	44,68	54,71	0,60
Спектр 3	43,71	55,51	0,78
Спектр 4	47,77	50,75	1,48
Среднее	45,13	53,97	0,90

2.2. Методы исследований

2.2.1. Малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов

Основным методом исследования магнитных свойств было выбрано малоугловое рассеяние поляризованных нейтронов (МУРПН), так как данный метод является наиболее информативным при исследовании сложных магнитных структур. Ключевым моментом при исследовании методом нейтронного рассеяния является тот факт, что измерения можно проводить практически не возбуждая магнитную систему образца. Особенно хорошо применима при исследовании систем непосредственно в фазовых переходах.

Дифракция нейтронов на геликоидальных спиновых структурах наблюдается при значении переданных импульсов $q = k$, когда брэгговское условие выполняется

$$2d \sin(\Theta_B/2) = \lambda, \quad (2.1)$$

где $d = 2\pi/k$ — период спиновой спирали, Θ_B — угол Брэгга. Если $d \sim 100 - 1000 \text{ \AA}$, а длина волны падающих нейтронов $\lambda = 5,8 \text{ \AA}$, то все дифракционные пики наблюдаются только в диапазоне малых углов.

Известно [82; 83], что простая геликоидальная структура ниже T_c в

магнитном поле H_{\parallel} , приложенном вдоль геликоидального вектора \mathbf{k} , описывается выражением

$$\mathbf{S}_R = \hat{\mathbf{c}} \sin \alpha + [\mathbf{A}e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}} + \mathbf{A}^*e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}}] \cos \alpha, \quad (2.2)$$

где \mathbf{S}_R — спин элементарной ячейки; $\mathbf{A} = (\hat{\mathbf{a}} - i\hat{\mathbf{b}})/2$; $\hat{\mathbf{a}}$, $\hat{\mathbf{b}}$ и $\hat{\mathbf{c}}$ — взаимно ортогональные векторы, так что $\hat{\mathbf{c}} = [\hat{\mathbf{a}} \times \hat{\mathbf{b}}]$. При этом

$$\sin \alpha = -H_{\parallel}/H_{C2}, \quad (2.3)$$

так что α — это угол между единичным спином и плоскостью, перпендикулярной вектору \mathbf{k} .

Выражение (2.2) описывает геликоидальную структуру, в случае когда векторы $\hat{\mathbf{c}}$ и \mathbf{k} антипараллельны, что соответствует левовращающейся спиновой спирали [46].

Сечение нейтронного рассеяния от магнитной спирали ниже T_c (нормированное на объём элементарной ячейки V_0) имеет следующий вид [84; 85]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{rS}{2}\right)^2 \frac{(2\pi)^3}{V_0} [1 + (\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})^2 - 2(\pm\mathbf{P}_0\hat{\mathbf{q}})(\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})] \delta(\mathbf{q} \mp \mathbf{k}) \sin^2 \alpha, \quad (2.4)$$

где $r = 0,54 \cdot 10^{-12}$ см, $\hat{\mathbf{q}} = \mathbf{q}/|\mathbf{q}|$ — единичный вектор переданного импульса, \mathbf{P}_0 — вектор поляризации падающего нейтронного пучка, при этом поляризация положительна $+P_0$, если её направление параллельно направлению ведущего магнитного поля \mathbf{h} ($\mathbf{P}_0 \uparrow\uparrow \mathbf{h}$), и отрицательна $-P_0$, если антипараллельно \mathbf{h} ($\mathbf{P}_0 \uparrow\downarrow \mathbf{h}$). Выполнение брэгговского условия (2.1) обеспечивается множителем $\delta(\mathbf{q} \mp \mathbf{k})$, при этом сечение рассеяния зависит от исходной поляризации \mathbf{P}_0 : если \mathbf{P}_0 приложена вдоль $\hat{\mathbf{c}}$, то при $P_0 = 1$ рассеяние запрещено для $\mathbf{q} = \mathbf{k}$ и максимально для $\mathbf{q} = -\mathbf{k}$. При $\mathbf{P}_0 \perp \hat{\mathbf{c}}$ сечение рассеяния (2.4) не зависит от поляризации.

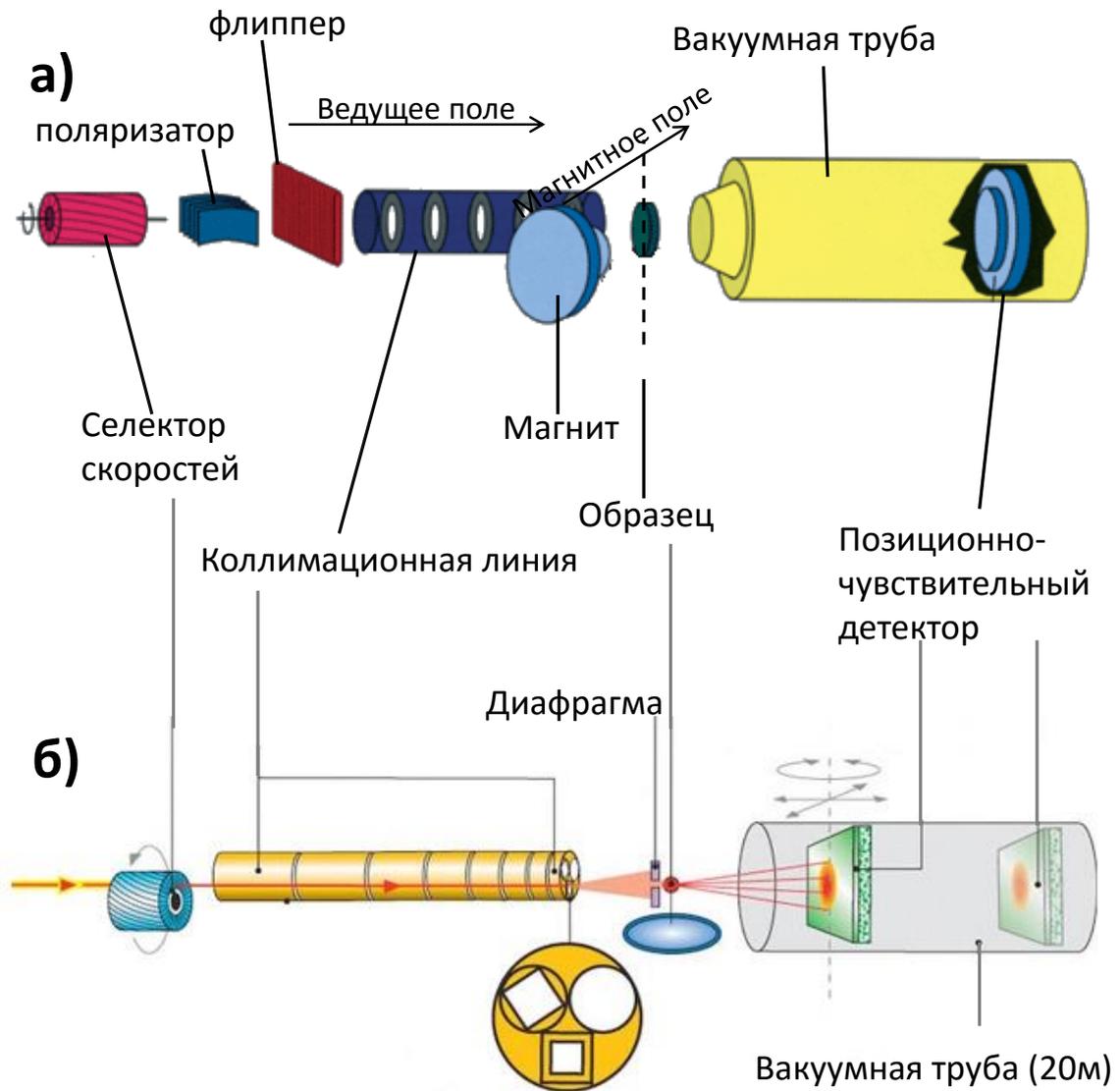


Рисунок 2.3 — Принципиальная схема установки для малоуглового рассеяния нейтронов: а) SANS-2 в научно-исследовательском центре GKSS (Геестахт, Германия); б) D22 в научно-исследовательском центре ИЛЛ (Гренобль, Франция).

Для критических флуктуаций (на примере MnSi) в парамагнитной области ($T > T_c$) теоретически полученные в рамках теории среднего поля сечение рассеяния и поляризация образца имеют вид [24]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r^2 \frac{T[k^2 + \kappa^2 + q^2 + 2\frac{D}{|D|}k\mathbf{q} \cdot \mathbf{P}_0]}{A[(q+k)^2 + \kappa^2][(q-k)^2 + \kappa^2]}, \quad (2.5)$$

$$P_s(\mathbf{q}) = -\frac{2kqP_0 \cos \psi}{q^2 + k^2 + \kappa^2}, \quad (2.6)$$

где κ — обратная корреляционная длина, а D — константа Дзялошинского. Легко видеть, что сечение рассеяния (2.5) (а значит и интенсивность рассеянных нейтронов) максимально при $|\mathbf{q}| = k = |D|/A$, то есть является результатом взаимодействия Дзялошинского-Мория. Для неполяризованных нейтронов интенсивность должна распределяться по кольцу вокруг падающего пучка, при этом радиус кольца k , а его ширина порядка κ .

Для полностью поляризованного пучка ($|\mathbf{P}_0| = 1$), как и для случая ниже T_c , интенсивность должна зависеть от взаимной ориентации векторов \mathbf{q} и \mathbf{P}_0 . Скалярное произведение $\mathbf{q} \cdot \mathbf{P}_0$ предполагает появление асимметричного рассеяния (полумесяцев) в эксперименте с поляризованными нейтронами, так как поляризация зависит от азимутального угла ψ .

В случае продольного сканирования в q -пространстве сечение рассеяния (2.5) может быть приблизительно сведено к функции Лоренца [24]:

$$I(\mathbf{q}) = I(\mathbf{q}, \mathbf{P}_0) + I(\mathbf{q}, -\mathbf{P}_0) = \frac{C}{(q-k)^2 + \kappa^2}, \quad (2.7)$$

с центром $q = k$ и шириной κ , которая в данном случае является обратной корреляционной длиной. Ниже критической температуры $I(q)$ трансформируется в функцию Гаусса с постоянной FWHM, соответствующей инструментальному разрешению прибора. Таким образом, оценивая форму

пика $I(q)$ легко отличить критические флуктуации от спиновых спиралей, тем самым точно установив T_c .

Эксперименты по малоугловому рассеянию нейтронов проводились на установках D22 в научно-исследовательском центре Института Лау-Ланжевена (Гренобль, Франция) и GKSS (Геестхахт, Германия). Принципиальные схемы установок представлены на рисунке 2.3. В работе представлено общее описание для двух экспериментальных установок с идентичным принципом действия. Нейтронный пучок вылетев из реактора попадает на механический селектор скоростей, который выделяет из пучка нейтроны определённой энергии по методу времени пролёта. Затем нейтроны одной энергии попадают на поляризатор (если это требует эксперимент), в результате чего нейтроны с проекцией спина параллельной полю отражаются от зеркала (в качестве поляризатора используется намагниченное зеркало с напылённым слоем изотопа ^{57}Ni), а нейтроны с антипараллельной проекцией проходят сквозь него. Отражённый поляризованный нейтронный пучок, двигаясь в некотором ведущем поле, проходит через адиабатический радиочастотный спин-флиппер. Флиппер переворачивает спин нейтронов во взаимно перпендикулярных полях — постоянном поле с градиентом вдоль оси пучка $H(z)$ и переменном магнитном поле с частотой ω_0 [86; 87]. После флиппера поляризованные нейтроны попадают в коллиматор, который делает так, чтобы траектория движения нейтронов в пучке была параллельна оси пучка, для этого коллиматор заключает в себе набор коллимационных диафрагм разного размера расположенных на определённом расстоянии друг от друга. Размер диафрагм влияет на степень коллимации пучка, чем меньше диафрагма тем меньше оказывается

направленный пучок, а следовательно и его интенсивность. Далее сколимированный нейтронный пучок попадает непосредственно на образец, который находится в закрытом криостате, который в свою очередь находится в магнитном поле H . Нейтроны на образце рассеиваются и детектируются позиционно-чувствительным двухкоординатным детектором на основе ${}^3\text{He}$. Детектор представляет собой подвижный блок состоящий из 256×256 активных ячеек размером 2×2 мм, который может перемещаться в вакуумной трубе на расстояние до 20 метров. Расстояние образец-детектор выбиралась таким образом, чтобы интервал переданных импульсов q был от $0,01 \text{ нм}^{-1}$ до 1 нм^{-1} .

2.2.2. СКВИД-магнетометрия

Аттестация магнитных свойств всех образцов предварительно проводилась путём измерения намагниченности с помощью установок типа СКВИД в диапазоне температур от 300 К до 2 К. С помощью этого метода были сделаны первые оценки температур фазовых переходов и критических магнитных полей.

Эксперименты по СКВИД-магнетометрии проводились в Техническом университете г. Брауншвайга (Германия) на магнитометре Quantum Design MPMS – 5S. Вид установки и схема эксперимента приведены на рисунке 2.4. Образцы, заранее выточенные площадью $5 \times 5 \text{ мм}^2$ (1), крепились на специальных держателях (2), которые меняют угол наклона образца θ относительно направления вектора напряжённости магнитного поля. Угол θ изменялся от 0° (направление вектора поля совпадает с нормалью к плоскости образца) до 90° (магнитное поле лежит в плоскости образца). При

этом образцы ориентировались на держателе так, чтобы ось вращения образца совпадала с кристаллографической осью [111]. Затем держатель образца устанавливался в магнетометр (4) — сверхпроводящий квантовый интерферометр, охлаждаемый жидким гелием. Величина магнитного поля (5) менялась от -5 Тл до 5 Тл и по создаваемому напряжению в приёмных катушках (6) определялась величина намагниченности образца [88]. Таким образом были получены кривые перемагничивания для исследуемых систем MnSi и соединений на его основе.

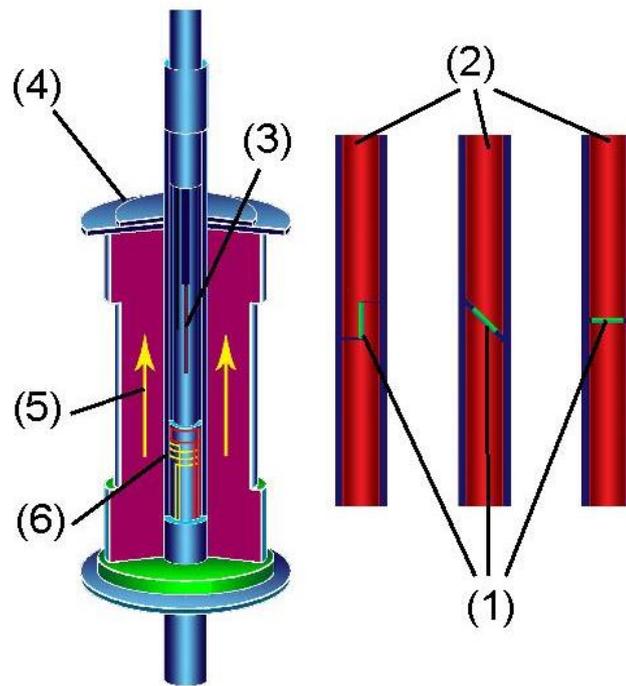


Рисунок 2.4 — Схема СКВИД-магнитометра. Здесь 1 - позиция образца, 2 - держатели образца, 3 - канал держателя, 4 - сверхпроводящий квантовый интерферометр (охлаждаемый жидким гелием), 5 - магнитное поле, 6 - приёмные катушки.

3. Скирмионная решётка в MnSi

Для решения вопроса происхождения A -фазы кубического геликоидального магнетика MnSi были проведены исследования представленные в данной главе. Поиск индивидуальных скирмионов или их скоплений в границах A -фазы и далеко за её пределами требует использования мощного (в смысле его интенсивности) МУРН прибора.

3.1. Постановка эксперимента по МУРН

Для исследования был выбран монокристалл MnSi, описанный в Гл.2.1. Мозаичность кристалла не превышает $0,25^\circ$. В поиске отдельных скирмионов были проведены подробные сканирования по полю от 0 до 0,8 Тл в широком диапазоне температур от 2 до 31 К в режиме охлаждения в нулевом поле. Измерения были сделаны при температурном ходе от области высоких температур ($T = 31$ К) к области низких ($T = 2$ К) с шагом 5 К в полевом диапазоне от 0 Тл до 0,8 Тл с шагом 0,01 Тл. Вблизи температуры перехода T_C температурный шаг составлял 1 К.

Эксперименты с использованием малоугловой дифракции нейтронов проводились на МУРН установке D22 в ИЛЛ (Гренобль, Франция)(Гл.2.2.1 рис. 2.3 б). Установка снабжена двухкоординатным позиционно - чувствительным детектором (256×256 ячеек с размерами 2×2 мм²), который был размещен на расстоянии 4 метра от образца, что позволило проводить

измерения в диапазоне переданных импульсов от $6 \times 10^{-2} \text{ нм}^{-1}$ до $6 \times 10^{-1} \text{ нм}^{-1}$ с шагом $0,01 \text{ нм}^{-1}$. Средняя по спектру длина волны $\lambda = 0,58 \text{ нм}$ ($\delta\lambda/\lambda = 0,1$). Аппаратурное разрешение установки составляет величину $0,01 \text{ нм}^{-1}$. Поляризация падающего пучка нейтронов равна $P_0 = 0,95$. Интенсивность нейтронного рассеяния измерялась в температурном диапазоне от $T = 10 \text{ К}$ до $T = 50 \text{ К}$ с точностью лучше, чем $0,02 \text{ К}$. Магнитное поле варьировалось в диапазоне от 0 до 500 мТл и было направлено вдоль оси исследуемого образца $[111]$ с точностью лучше, чем 1° . Пучок нейтронов попадая на образец анализировался вдоль этой оси. Геометрия эксперимента была выбрана таким образом, чтобы магнитное поле \mathbf{B} было направлено вдоль падающего пучка нейтронов \mathbf{n} (3.1(a)) [7].

3.2. Экспериментальные результаты

Измерения были сделаны при температурном ходе от области высоких температур ($T = 31 \text{ К}$) к области низких ($T = 10 \text{ К}$) в постоянном поле $H = 0,17 \text{ Т}$. В случае когда температура $T > T_C \simeq 30$.

Типичный пример карты интенсивности рассеяния показан на Рис. 3.1 (b). Гексагональная структура брэгговских пиков наблюдаются при $T = 27,5 \text{ К}$ и $B_{int} = 0,17 \text{ Тл}$, где в B_{int} учтено размагничивание образца дискообразной формы [89]. Отражения лежат на трёх осях $\langle 1\bar{1}0 \rangle$ в плоскости $[111]$. Ориентация гексагональной структуры в A -фазе является стабильной и не изменяется с температурой или магнитным полем. Был сделан вывод, что наблюдаемая структура является двумерной модулированной спиновой сверхструктурой (скирмионная решетка) с $k_h = 0,38 \text{ нм}^{-1}$, что совпадает с волновым вектором спирали в нулевом поле. Еще

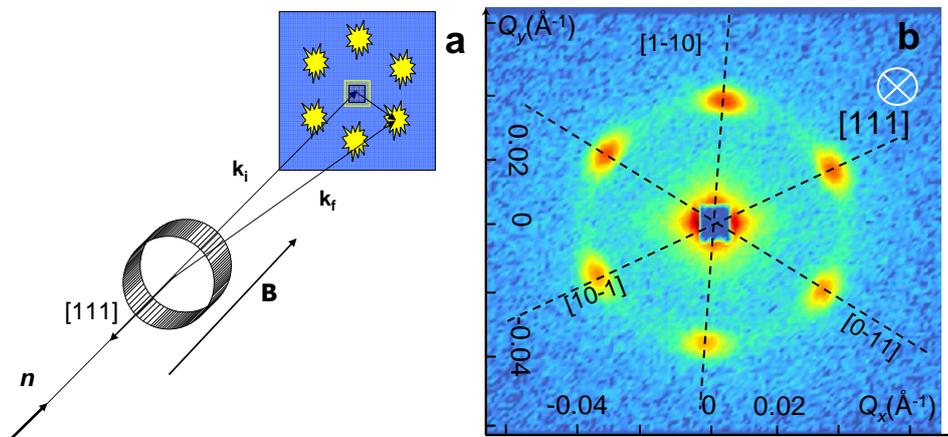


Рисунок 3.1 — (а) Схема эксперимента с полем \mathbf{H} приложенном параллельно нейтронному пучку. (б) Карта интенсивности малоуглового рассеяния для ориентации поля параллельно кристаллографической оси $[111]$ ($\mathbf{B} \parallel [111]$) при $T = 27,5$ К и $B_{int} = 0,17$ Тл.

одной особенностью является то, что отражения более высокого порядка структуры сильно подавлены. Все видимые пятна, появляющиеся с $Q > k_h$ появляются из процесса двойного рассеяния. Это подавление гармоник высшего порядка должно быть связано с экзотической формой этих двумерных модуляций, близких к гармоническому закону. Сильное подавление отражений высших порядков были недавно описаны в [67].

Эволюцию гексагональной структуры с температурой и магнитным полем можно проследить на рис.3.2. Изменения температуры приведены вдоль горизонтальной линии, в то время как сканирование по магнитному полю показано по вертикали на рис.3.2. Гексагон хорошего разрешения на картинах рассеяния с $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ наблюдался при T вблизи T_C (справа на рис.3.2, то есть выше 27 К) в промежуточном диапазоне полей $0.12 < B_{int} < 0.21$ Тл. Его интенсивность меняется с полем на 2-3 порядка. Гексагон превращается в кольцо на левой стороне рис. 3.2, т.е. при $T = 25$ К. Длина волнового вектора k_h соответствующего кольца хорошо определена, в то время как ориентационный порядок (предположительно гексагональный) полностью теряется. Это кольцо обусловлено с случайной ориентацией капель гексагональной структуры при низких температурах.

Для количественного анализа интенсивность рассеяния была усреднена по азимуту и радиальные профили (Q - зависимость интенсивности рассеяния) показаны на рис.3.3. Два вклада, от гексагональной фазы и критические флуктуации, могут быть четко разделены в Q -зависимости интенсивности рассеяния. Кривая рассеяния $I(Q)$ может быть хорошо описана суммой функции Гаусса (для гексагональной структуры) и функции Лоренца (для критических флуктуаций) при $T = 28,5$ К и $T = 27,5$ К. Ло-

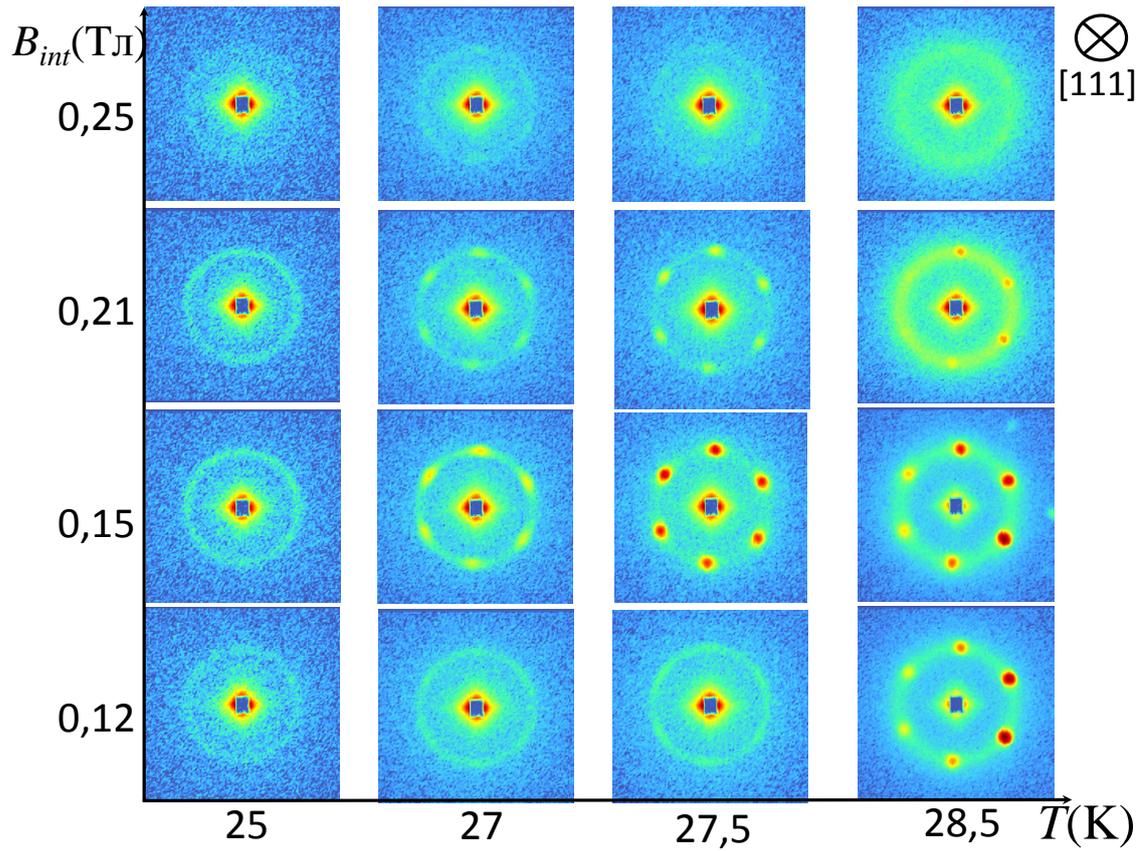


Рисунок 3.2 — Карты интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов в MnSi: фазовая диаграмма магнитное поле-температура ($B - T$) для случая $\mathbf{B} \parallel [111]$.

ренцевский вклад (критические флуктуации) уменьшается с понижением температуры при $T = 27$ К и 25 К.

A -фаза характеризуется гауссовой кривой с центром $k_h \approx 0,038 \text{ \AA}^{-1}$. Ширина пика ограничена разрешением установки ($0,004 \text{ \AA}^{-1}$) для всех температур и магнитных полей. Можно оценить из ширины пика, что данная структура является когерентной на расстоянии более чем 10 периодов решетки, даже для капель для капель гексагональной структуры за пределами A -фазы. Следует подчеркнуть, что не наблюдалось плавление гексагональной структуры на отдельные скирмионы или кластеры. Можно предположить, что капли гексагональной структуры с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$ окружены конусной фазой с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$.

Интегральная интенсивность Гаусса представлена на рис.3.4 в зависимости от внутреннего поля B_{int} при различных температурах. Экспериментальные кривые демонстрируют хорошо определяемые максимумы в промежуточном диапазоне полей и исчезающую интенсивность в высоких/низких полях. Границы отдельного гексагональной структуры—границы A -фазы, обозначены как $[B_{A1}, B_{A2}]$. С обеих сторон этой области мы наблюдаем плавное увеличение/уменьшение интенсивности приписываемое каплям A -фазы. Эти капли появляются/исчезают при более низких/высоких критических полях B_{T1}, B_{T2} , соответственно. Значения $B_{T1}, B_{T2}, B_{A1}, B_{A2}$ обозначены стрелками на рис.3.4, где в качестве примера взята кривая при $T = 28,5$ К.

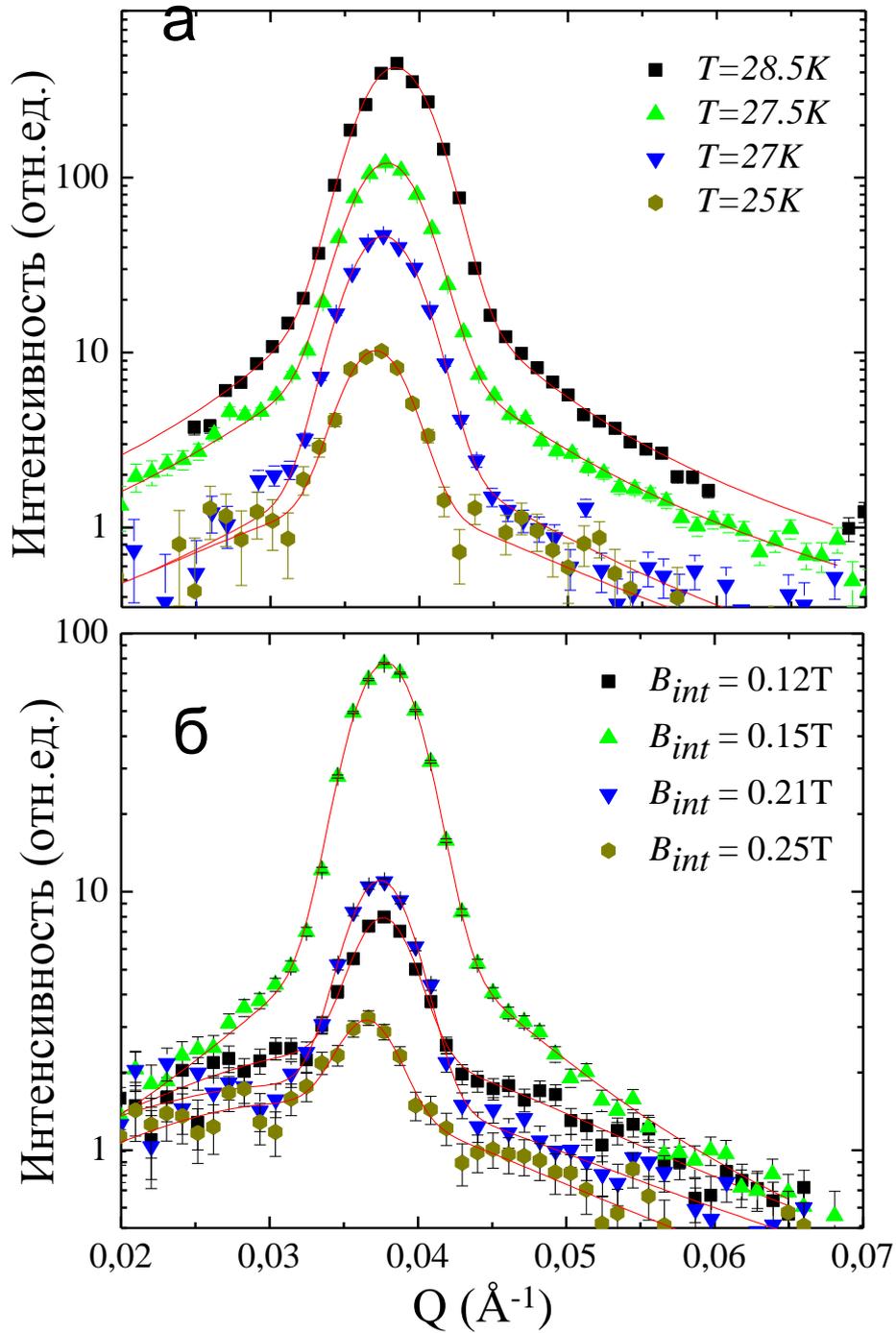


Рисунок 3.3 — Q -зависимость интенсивности рассеяния для ориентации

($\mathbf{H} \parallel [111]$): (a) $B_{int} = 0, 17$ Тл и $T = 28,5$ К, $27,5$ К, $27,0$ К, 25 К; (b)

$T = 27,5$ К и $B_{int} = 0, 12$ Тл, $0,15$ Тл, $0,21$ Тл, $0,25$ Тл.

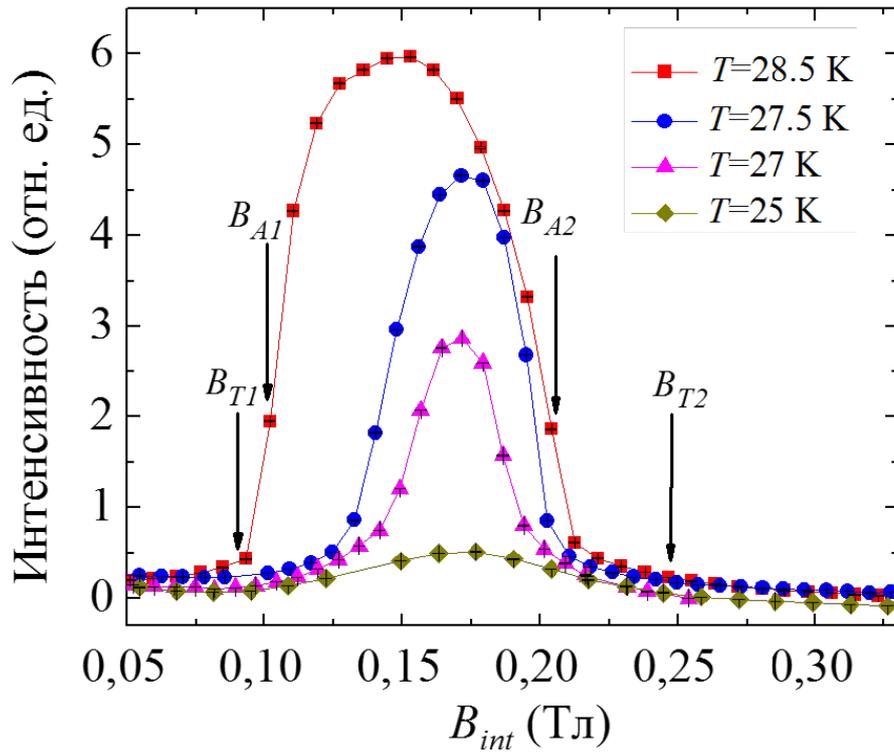


Рисунок 3.4 — Полевая зависимость интегральной интенсивности брэгговского пика с $\mathbf{k} \perp \mathbf{B}_{int}$ при различных температурах после охлаждения в нулевом поле. B_{T1} и B_{T2} —критические поля, где капли гексагональной фазы появляются/исчезают, соответственно, B_{A1} и B_{A2} —границы А-фазы

3.3. $(H - T)$ —фазовая диаграмма

Все полученные данные сведены в $(B - T)$ фазовую диаграмму, основываясь исключительно на эксперименте по нейтронной дифракции (Рис. 3.5). Было обнаружено, что двумерная гексагональная спиновая структура ("скирмионная решётка") с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$ и существует в узком диапазоне полей вблизи T_C . Эта область ограничена снизу границей B_{A1} с монотонным увеличением по температуре, тогда как верхняя граница, B_{A2} не зависит от температуры. "Скирмионная решётка" с ориентационным порядком (\mathbf{k}_h) хорошо сохраняется во всём кристалле и доминирует в этой области над конической фазой.

Структура A -фазы существует также в узком полевым коридоре $[B_1, B_2]$ и вплоть до низких температур, в виде маленьких капелек, растворённых в конической фазе. Хотя количество этих капелек уменьшается с понижением температуры, не наблюдалось никаких признаков плавления этих капелек в отдельные случайно расположенные скирмионы. Это наблюдение не зависит от температуры полевого коридора $[B_{T1}, B_{T2}]$, так как значения B_{T1} и B_{T2} не зависят от температуры. В частности, капельки A -фазы наблюдаются при низкой температуре в полевым коридоре после процедуры охлаждения в нулевом поле. Стоит отметить, что эти капли не обнаружены при температурах ниже $T=5$ К.

Хорошо известно, в соответствии с более ранними наблюдениями [2;3], что волновой вектор гексагональной структуры k_h (A -фаза) равен волновому вектору k_s спиральной структуры с точностью 2%. Это наблюдение согласуется также с тем, что наблюдаться в тонких пленках [15–17].

Данный экспериментальный факт, взятый вместе с отсутствием рассеяния от отдельных скирмионов исключает теорию, которая настаивает на реальном скирмионном характере A -фазы, где скирмионные квазичастицы могут построить кластеры гексагональной структуры A -фазы [13; 14]. Наблюдаемая структура является двумерной модулированной гексагональной спиновой сверхрешёткой, которая построена на той же конкуренции взаимодействий как в одномерная сверхрешётка (простая спиновая спираль) с $k_h = k_s \approx D/J$, где D —это постоянная Дзялошинского, J —это константа обменного взаимодействия.

3.4. Выводы

Исследованная структура моносилицида MnSi должна рассматриваться не как совокупность квазичастиц, но в виде суперпозиции волн, а именно трех спиралей, чьи волновые векторы образуют равносторонний треугольник. Интересно также отметить, что учет модели тройной симметрии шестиугольника A -фазы расстояние между соседними узлами в реальном пространстве сверхрешетки должна быть равна $(2/\sqrt{3})d_s$, где d_s -это период одномерной спиральной структуры. Этот факт означает, что не топологически защищенные узлы определяют A -фазу решетки, а энергетический ландшафт кристаллов B20 (D и J) вместе с магнитным полем \mathbf{B} диктуют появление этих узлов. D и J определяют расстояние между узлами и поле \mathbf{B} ориентирует плоскость двумерных модуляций. И, наконец, A -фаза имитирует скирмионную решетку будучи в действительности еще одним любопытным примером сложной магнитной структуры. Сложность структуры подчеркивается двумерным характером её модуляций, которые

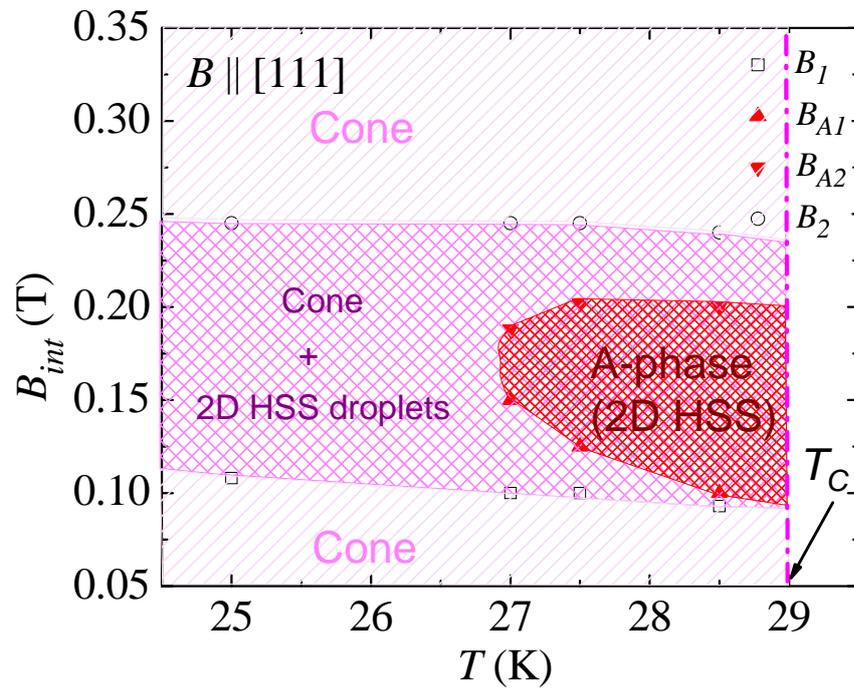


Рисунок 3.5 — (B, T) фазовая диаграмма для образца MnSi вблизи A -фазы, для случая когда магнитное поле приложено вдоль оси $[111]$.

отличаются от одномерных модуляций простой спирали или конического состояния.

Основные результаты, изложенные в данном разделе, опубликованы в работе [77].

4. Соотношение между критическими флуктуациями и структурой A -фазы

4.1. Постановка эксперимента

Одновременное наблюдение различных фаз (критических флуктуаций, конической фазы и скирмионной решетки) в одной и *той же* геометрии эксперимента является сложной экспериментальной задачей. Для наблюдения скирмионной решетки — полной гексагональной картины рассеяния нейтронов — обычно использовалась геометрия эксперимента когда магнитное поле приложено вдоль падающего пучка нейтронов (Рис.4.1 а) [7; 8; 77]. Такая геометрия позволяет выявить модуляции магнитной структуры с $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ (Рис.4.1 а). В частности, гексагональная картина приписываемая скирмионной решётке, хорошо видна в геометрии, когда $\mathbf{H} \parallel \mathbf{n}$ (\mathbf{n} - ось пучка нейтронов) и $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$. Типичный пример картины рассеяния показан на (Рис.4.1 б). В работах [7; 77] и в предыдущей главе подробно описаны особенности эксперимента в такой геометрии.

С другой стороны, в экспериментах с использованием МУРН для наблюдения конической фазы с волновым вектором \mathbf{k}_c мы прикладываем магнитное поле \mathbf{H} перпендикулярно нейтронному пучку [2; 3]. Эта геометрия имеет то преимущество, что оба пика $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (коническая фаза) и $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ (скирмионная решётка) могут быть обнаружены позиционно-чувствительным детектором. Пример картины рассеяния, когда дифрак-

ционные пики с $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ и с $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ могут одновременно наблюдаться показан на Рис.4.1 (d).

Эксперименты по малоугловой нейтронной дифракции были проведены в геометрии показанной на Рис.4.1 (c,d) на установке по малоугловому рассеянию нейтронов D22 (ИЛЛ, Гренобль, Франция), описание которой сделано во второй главе 2.2. Для исследования был выбран монокристалл MnSi (использованный в предыдущем разделе 3.3). Напомним, что ось структуры типа B20 $[11\bar{1}]$ была ориентирована горизонтально и перпендикулярно падающему пучку нейтронов. Ось кристалла $[1\bar{1}0]$ направлена вертикально, т.е. перпендикулярно нейтронному пучку. Измерения интенсивности МУРН были выполнены со сканированием по температуре с шагом 0,2 К в диапазоне температур от 3,5 К до 25 К при значении магнитного поля 0,16 Тл приложенного вдоль оси $[11\bar{1}]$.

4.2. Экспериментальные результаты

На рис. 4.2 (a-h) представлены картины рассеяния демонстрирующие температурную эволюцию магнитной структуры MnSi в области фазового перехода. В парамагнитной области ($T > 32$ К) рассеяния не наблюдается, за исключением прямого пучка в центре детектора (Рис. 4.2 а). При понижении температуры, появляется кольцо интенсивности рассеяния, что характерно для критических флуктуаций спиральной структуры со случайно ориентированным волновым вектором \mathbf{k}_f . При температуре $T \approx 31,5$ К появляются два пятна на левой и правой сторонах кольца (Рис. 4.2 б). Волновой вектор $\pm\mathbf{k}_c$ возникающей структуры параллелен приложенному магнитному полю что говорит о том, что она должна быть идентифициро-

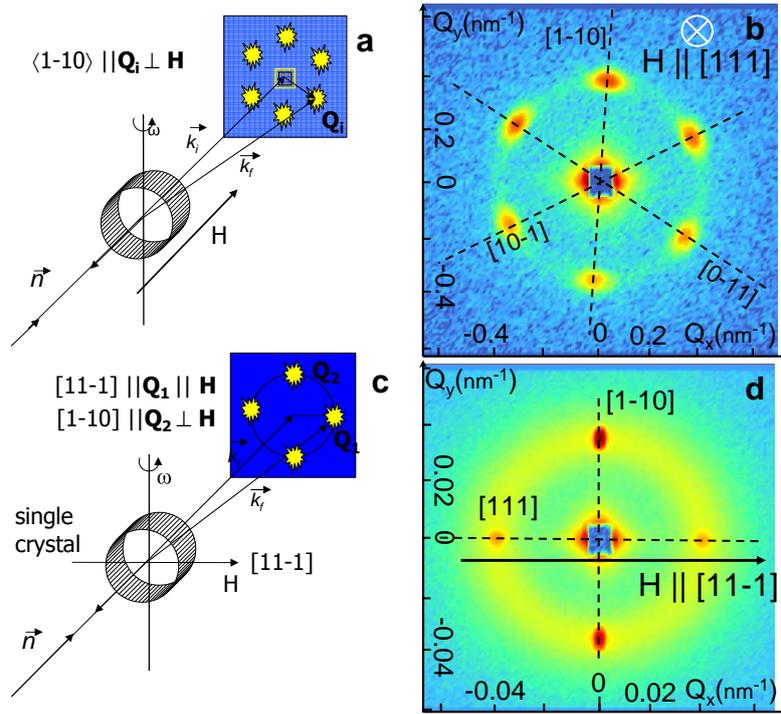


Рисунок 4.1 — (а) Схема эксперимента с полем \mathbf{H} , приложенным параллельно (а) и перпендикулярно (с) нейтронному пучку \mathbf{n} . Карты интенсивности малоуглового рассеяния для различных ориентаций магнитного поля (b) ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{n} \parallel [111]$), (d) ($\mathbf{H} \parallel [11\bar{1}] \perp \mathbf{n}$) при $T = 28,5$ К и $B = 0,16$ Т.

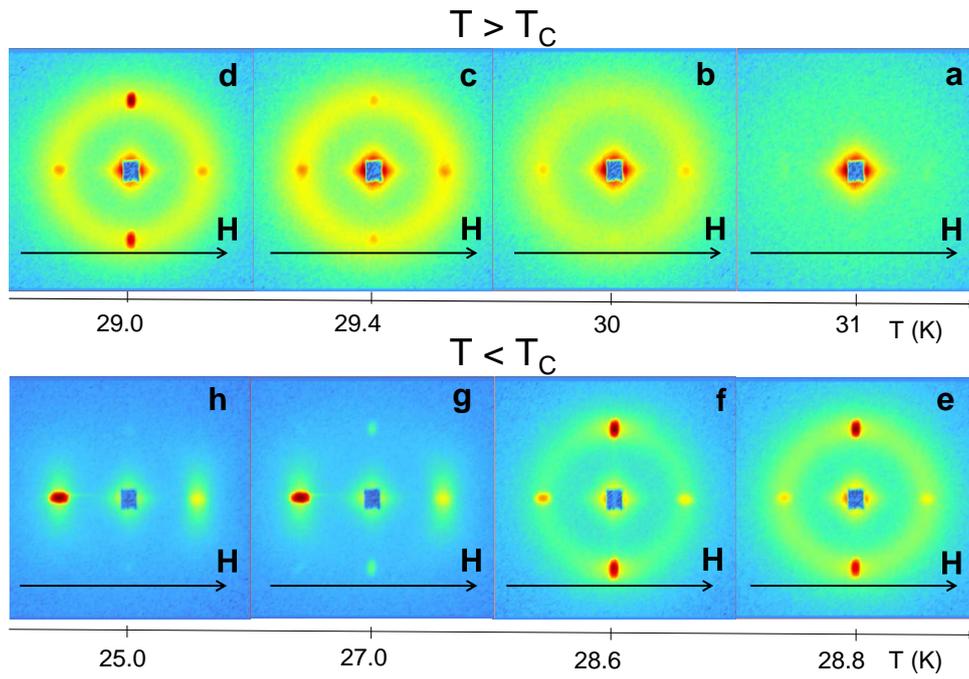


Рисунок 4.2 — Карты интенсивности рассеяния, показывающие температурную эволюцию магнитной системы MnSi при ориентации поля

$$\mathbf{H} \parallel [11\bar{1}] \perp \mathbf{n} \text{ в } B = 0,16 \text{ Тл.}$$

вана как коническая спиновая структура. Эти два пика становится интенсивнее при дальнейшем понижении температуры. Кроме того, еще два Брэгговских пика появляются на верхней и нижней стороне кольца при $T = 30$ К (Рис. 4.2 с). Они приписываются скирмионной решетке как два пика из шести, которые могут быть видны в этой экспериментальной геометрии. Интенсивность пиков с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$ резко растёт при $T = T_C = 29,0$ К, будучи гораздо больше, чем у двух других пятен с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$ (Рис. 4.2 d). В результате был сделан вывод, что скирмионная фаза доминирует над конической фазой в диапазоне от T_C до $T = 28$ К (Рис. 4.2 (e,f)). При температурах ниже $T = 28$ К, коническая фаза становится более выгодной и A -фаза значительно ослабевает. Тем не менее, два пика с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$ ещё видны при $T = 27$ К и $T = 25$ К (Рис. 4.2 (g,h)).

Для анализа наблюдаемых картин рассеяния построим радиальные профили интенсивности рассеяния $I(Q)$ в направлениях $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (Рис. 4.3), $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ (Рис. 4.4) и при \mathbf{Q} наклонённый на 45° по отношению к \mathbf{H} , в так называемом "случайном" направлении (Рис. 4.5). Для большей наглядности изменений происходящих в исследуемой системе по температуре в случае $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ был построен профиль $I(Q)$ для $T < T_C$ (Рис. 4.3 а) и для $T_C < T$ (Рис.4.3 b). Профиль зависимости $I(Q)$ может быть описан с помощью суммы двух модельных функций: Лоренцевой и Гауссовой. Экспериментальные данные могут быть лучше определены, если допустить, что центры пиков отличаются друг от друга. Описывая $I(Q)$ —профиль двухпиковой моделью мы предполагаем, что с конической структурой (узкий гауссовый пик) сосуществуют флуктуации спирали (широкий лоренцевский пик). Ниже T_C вклад конической структуры явно доминирует над

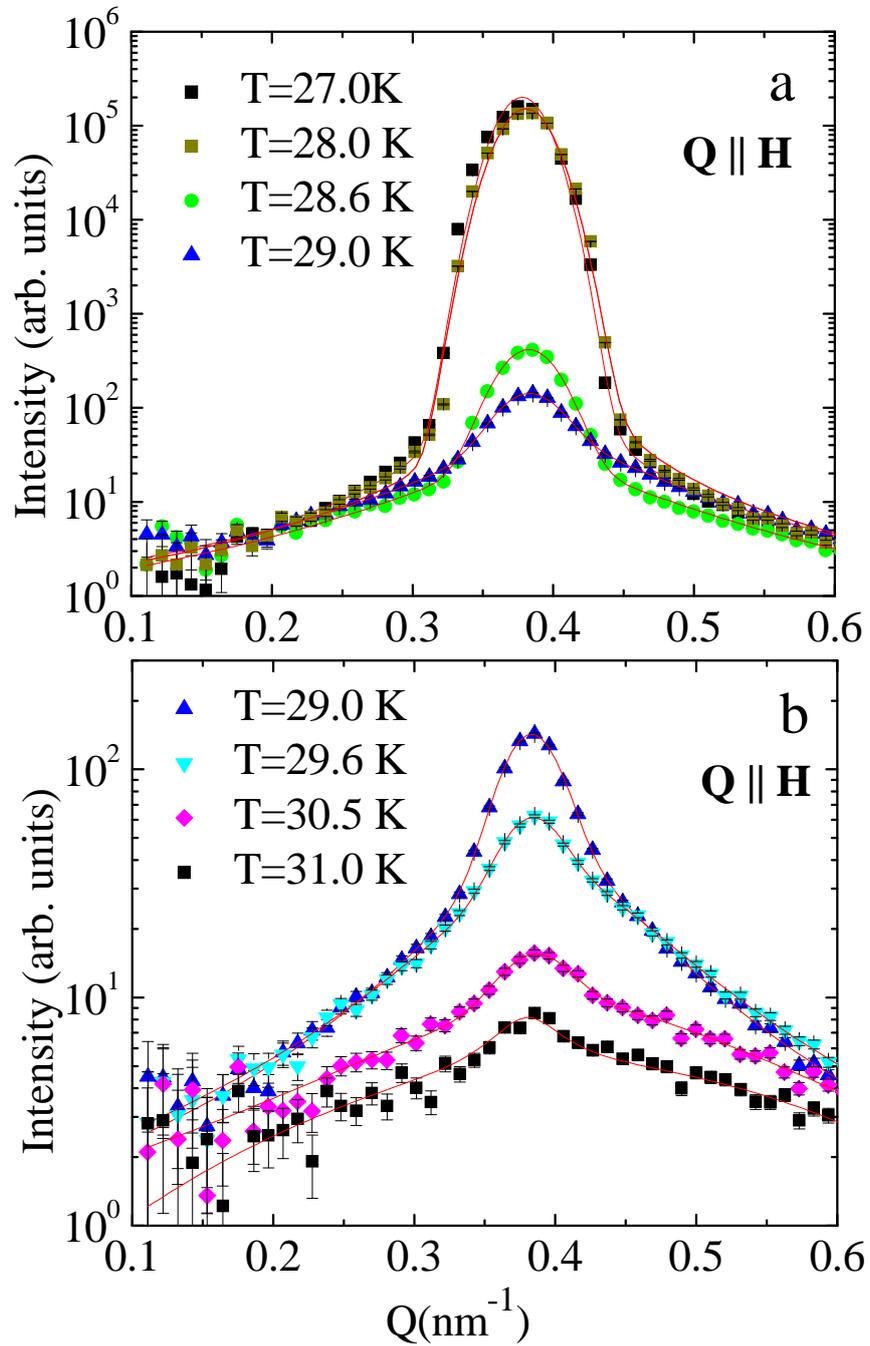


Рисунок 4.3 — Q -зависимость интенсивности рассеяния для ориентации

$Q \parallel H$ (a) при $T < T_c$ и (b) $T_c < T$ в $B = 0.16$ Т.

вкладом флуктуаций спирали (Рис.4.3 а), в то время как выше T_C они сопоставимы (Рис.4.3 б).

В случае $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$, профиль $I(Q)$ хорошо описывается двухпиковой моделью ниже 30,0 К и однопиковой лоренцевой моделью выше этой температуры (Рис.4.4). Пик, описываемый функцией Гаусса, говорит о наличии скирмионной решетки, а пик описываемый функцией Лоренца отражает присутствие флуктуаций спирали. Только критические флуктуации спирали дают вклад в рассеяние выше 30,0 К. Интересно отметить, что гауссов пик может наблюдаться до температуры 25 К, хотя его интенсивность мала для $T < 28$ К. Q -зависимость интенсивности рассеяния в "случайном" направлении хорошо описывается одной функцией Лоренца во всем диапазоне температур, как выше, так и ниже T_C (Рис.4.5). Его интенсивность максимальна при $T = 29,4$ К, т.е. чуть выше T_C .

Из анализа данных, полученных вдоль вектора рассеяния $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, мы получили интенсивность, ширину и положение пика относящиеся к конической структуре и те же величины, относящиеся к флуктуации спирали. Аналогичные шесть параметров были получены из $I(Q)$ для $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$. Еще три параметра получены для описания пика интенсивности $I(Q)$ в "случайном" направлении \mathbf{Q} . Рис.4.6 демонстрирует температурную зависимость положения пика k : (а) для конической структуры ($\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$) и для скирмионной решётки $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$; и (б) для критических флуктуаций с $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и для случайного направления \mathbf{Q} . Рис.4.7 показывает ширины всех вышеупомянутых пиков (а) для двух структур и (б) для критических флуктуаций в трех разных направлениях. Рассеяние от критических флуктуаций не было обнаружено ниже 28 К.

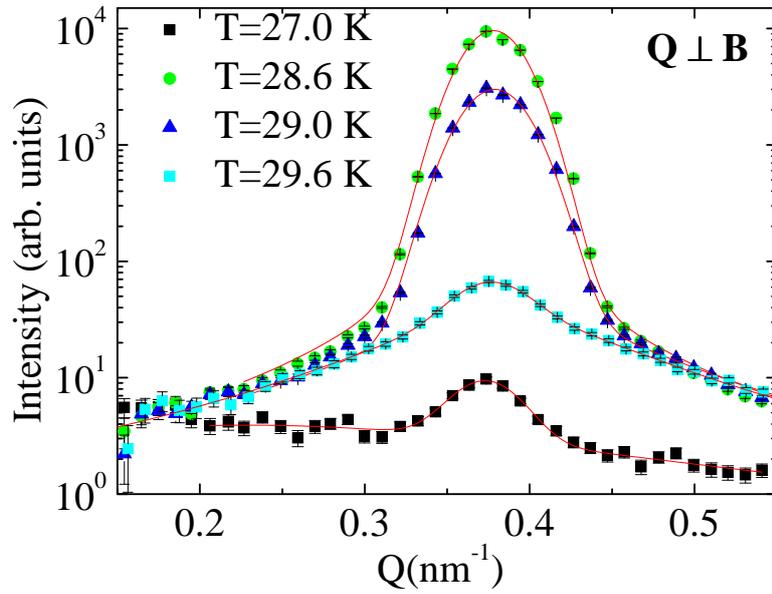


Рисунок 4.4 — Q -зависимость интенсивности рассеяния для ориентации $Q \perp \mathbf{H}$ при $B = 0, 16\text{T}$.

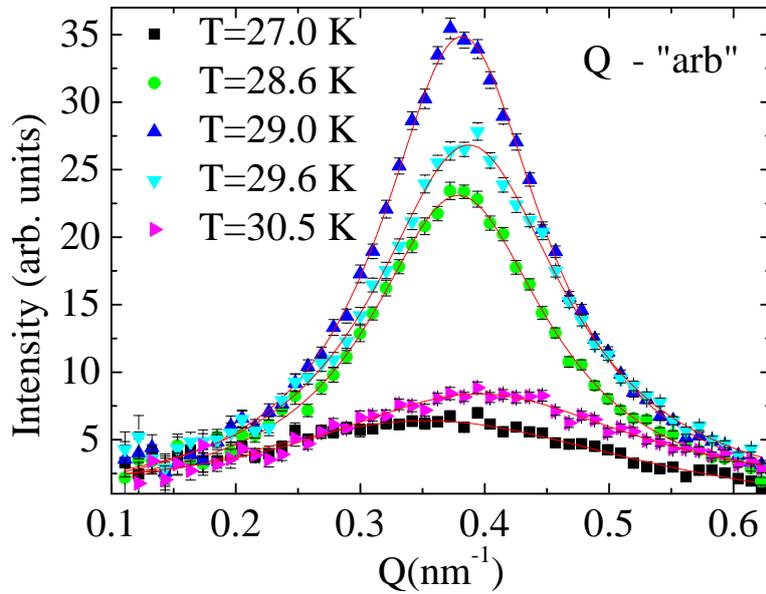


Рисунок 4.5 — Q -зависимость интенсивности рассеяния для случайной ориентации Q (45° -наклон к направлению поля) при $B_{int} = 0, 16\text{T}$.

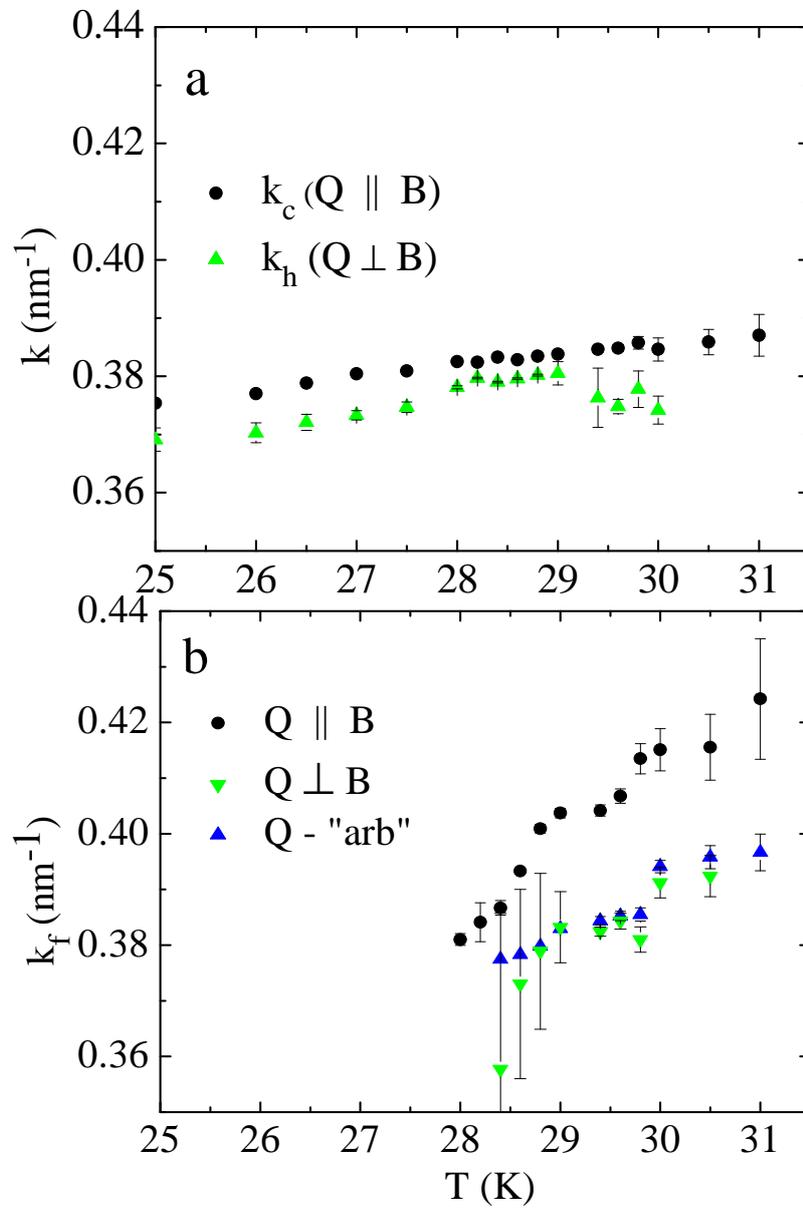


Рисунок 4.6 — Температурная зависимость положения центра пика (а) для конической структуры ($\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$) и скирмионная решётка ($\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$) и (б) для критических флуктуаций при $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, при $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$, и при \mathbf{Q} наклон в 45° к полю \mathbf{H} .

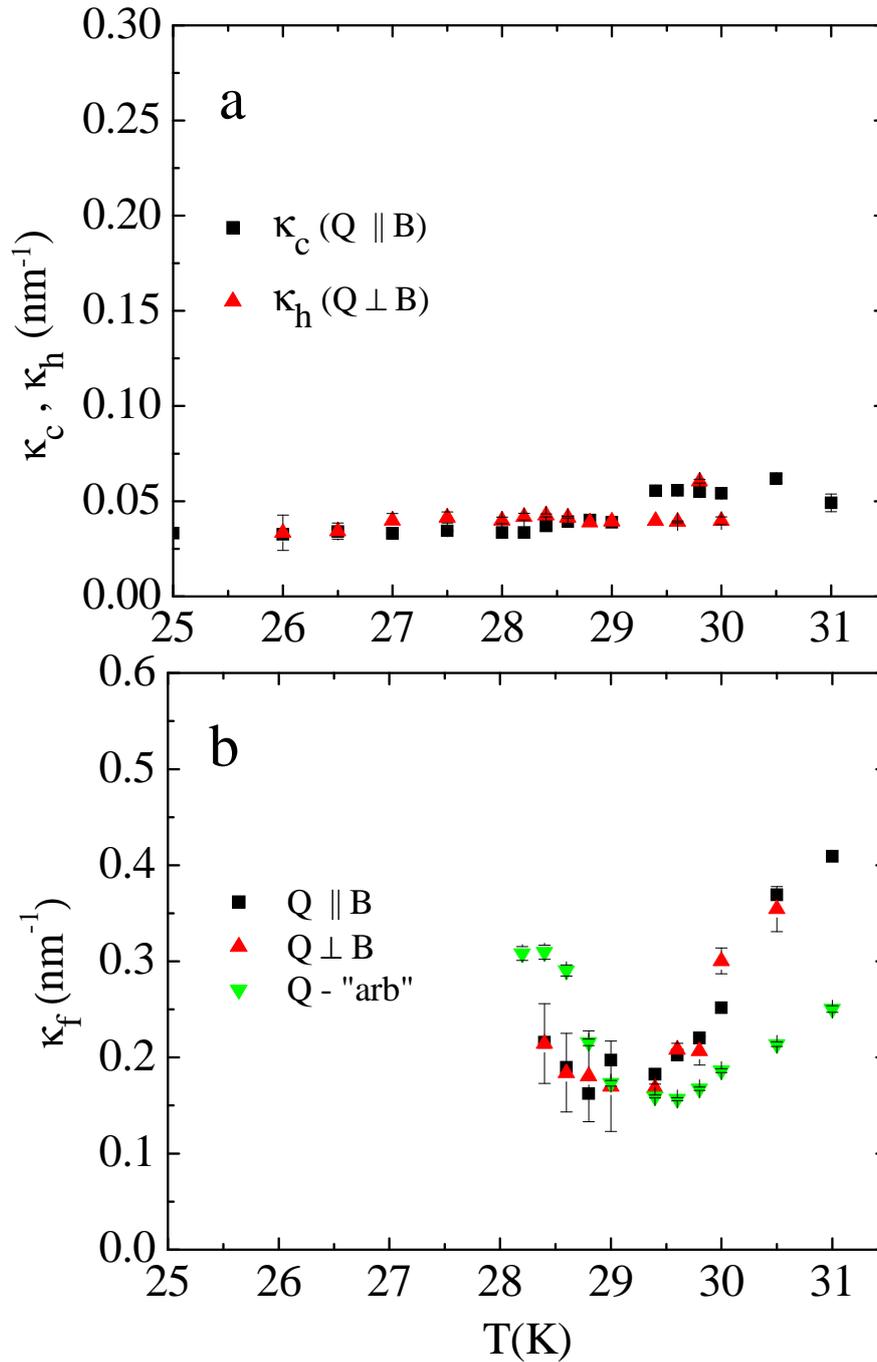


Рисунок 4.7 — Температурная зависимость ширины пика (а) для конической структуры ($\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$) и скирмионной решётки ($\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$) и (b) для критических флуктуаций при $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, при $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$, и при \mathbf{Q} наклонённом на 45° к полю \mathbf{H} .

Из рисунка 4.6 а видно, что позиции структурных пиков меняются слабо с температурой (на 1-2 %) выше и ниже T_C , а значение волнового вектора скирмионной решётки k_h немного меньше (на 1,5 %), чем для конической фазы k_c . Интересно отметить, что ширина пика конической фазы k_c (Рис.4.7 а) и ширина пика скирмионной решетки не имеют каких-либо изменений в зависимости от температуры и ограничена функцией разрешения установки ($0,004 \text{ \AA}^{-1}$) как выше, так и ниже T_C (Рис. 4.7 а). Учитывая разрешение установки можно дать нижнюю оценку когерентности наблюдаемой структуры. Скирмионная решетка когерентна на более, чем 10 периодов даже выше T_C ($k_h/\kappa_h > 10$). Этот вывод ещё раз подчеркивает, что не наблюдается плавления этой решётки на отдельные квазичастицы.

Сам факт, что волновой вектор гексагональной структуры (скирмионной решетки) практически равен волновому вектору конической структуры $k_h \simeq k_c$, был показан и в более ранних работах [2; 3]. Это наблюдение согласуется также с тем, что показано для тонких пленок [15–17]. Поскольку спираль волнового вектора k является простым соотношением взаимодействия Дзялошинского-Мория и ферромагнитного обменного взаимодействия [46; 80], то полученные данные показывают, что волновой вектор скирмионной решетки определяется тем же соотношением между двумя взаимодействиями. Другими словами, скирмионная решетка имеет тут же природу, что и простая спираль при низких температурах или слабых полях.

В отличие от температурного поведения структурных пиков, положение пиков критических флуктуаций меняется значительно (5-10 %). Важно отметить, что положение пика критических флуктуаций k_f (Рис.4.6 б) за-

метно отличаются от конической структуры k_c выше T_C (Рис.4.6 а) подчеркивая, что два пика имеют различное происхождение. Ширина пика критических флуктуаций также заметно меняется с температурой от $\kappa \approx 0,04 \text{ \AA}^{-1}$ при $T = 31,5 \text{ К}$ до $\kappa \approx 0,015 \text{ \AA}^{-1}$ при $T = T_C = 29,0 \text{ К}$. Стоит отметить, что положение флуктуационных пиков совпадают для $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и для "случайного" \mathbf{Q} , и отличаются для $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (Рис.4.7 б). Флуктуации полностью исчезают ниже 28 К —рассеяния на флуктуациях наблюдается только при $T > 28 \text{ К}$, т.е. и выше T_C и в температурном диапазоне в области А-фазы.

Интенсивности всех пиков приведены на Рис.4.8: (а) пики конической структуры и скирмионной решетки, (б) пики критических флуктуаций. Представленные интенсивности не являются "истинной" интегральной интенсивностью структурных пиков (Рис.4.8 а), так как условия Брэгга выполнены лишь примерно. Как хорошо видно из Рис.4.2 и Рис.4.8, пик интенсивности для конической структуры появляется при $T = 31,5 \text{ К}$, в то время как интенсивность пика скирмионной решётки не видна до температурной точки в $T = 30,0 \text{ К}$. Затем интенсивность пика скирмионной решетки растёт и значительно превышает интенсивность пика конической структуры в диапазоне от $29,0 \text{ К}$ до $28,2 \text{ К}$. Высокая интенсивность пика скирмионной решетки сопровождается увеличением интенсивности критических флуктуаций в направлении $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$. Интенсивность флуктуаций в других направлениях снижается с уменьшением температуры (Рис.4.8 б). Интенсивность скирмионной решетки резко падает при $T = 28 \text{ К}$, коническая фаза увеличивается скачком, в то время как критические флуктуации исчезают во всех направлениях.

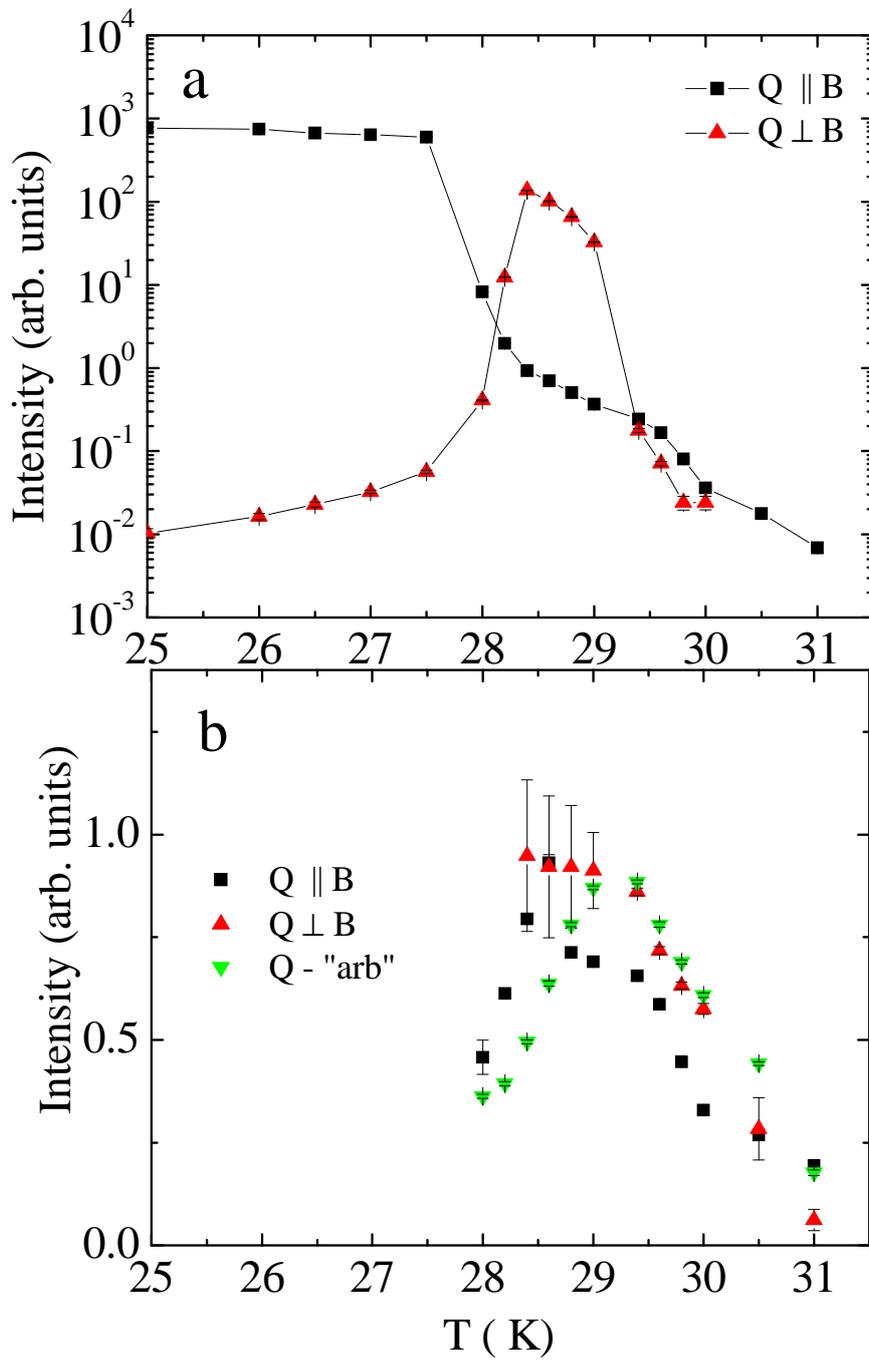


Рисунок 4.8 — Температурная зависимость интенсивности пика (а) для конической структуры ($Q \parallel H$) и скирмионной решётки ($Q \perp H$) и (b) для критических флуктуаций при $Q \parallel H$, при $Q \perp H$, и при Q наклонённой на 45° к полю H .

При дальнейшем понижении температуры ниже $T = 28$ К наблюдается сильный пик конической структуры и очень слабый, но хорошо заметный пик скирмионной решетки. Как было показано в [77], пик скирмионной решётки продемонстрированный на рис. 4.2 является проекцией однородного кольца интенсивности в Q -пространстве в плоскости детектора. Мы приписываем это кольцо интенсивности к каплям скирмионной решётки, где трансляционный порядок фиксирован, но ориентационный порядок полностью теряется. Можно проследить температурную эволюцию интенсивности этого кольца от низкой температуры до 28 К, где скирмионная решетка преобладает над другими фазами. Следует подчеркнуть, что никакого плавления скирмионной решётки на отдельные скирмионы или на кластеры не наблюдалось, а интенсивность пика уменьшается с понижением температуры, тем самым показывая, что число капель уменьшается.

4.3. Обсуждение результатов

В MnSi при приложении магнитного поля наблюдается три магнитные состояния: (i) критические спиновые флуктуации спирали со случайно ориентированным \mathbf{Q} с максимумом при $Q = k_f$ (ii) коническая фаза с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$ и (iii) гексагональная скирмионная решётка с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$. Скирмионная решетка и конической фаза не коррелируют, но конкурируют друг с другом и сменяют друг друга при понижении температуры: (i) Коническая фаза наблюдается только на фоне критических флуктуаций в диапазоне от $T_{DM} = 31,5$ К до $T^* = 30,0$ К, (ii) скирмионная решетка вместе с конической фазой наблюдаются на фоне критических флуктуаций в диапазоне от $T^* = 30,0$ К до $T_C = 29,0$ К, (iii) скирмионная решетка доминирует над

конической фазой, в то время как критические флуктуации остаются видимыми в диапазоне от $T_C = 29,0$ К до $T_A = 28,2$ К, (iv) коническая фаза ниже $T_A = 28,0$ К устанавливается, хотя капельки скирмионной решетки видны без критических флуктуаций.

Две структуры (коническая фаза и скирмионная решётка) явно независимы в том смысле, что рассеяние происходит от двух независимых объектов: один из них (конус) появляется в $T_{DM} = 31,5$ К в то время как другой (А-фаза) становится видимой в $T^* = 30,0$ К. Кроме того, интенсивность рассеяния от двух объектов показывают различные температурные зависимости. Обе структуры появляются в поле и не коррелирует с случайно ориентированными критическими флуктуациями плоской спирали, поскольку $(k_c \cong k_h \neq k_f)$ и $(\kappa_c \cong \kappa_h \neq \kappa_f)$. Нами был сделан вывод, что скирмионная решетка—есть двумерно модулированная гексагональная спиновая структура с $\mathbf{k}_h \perp \mathbf{H}$, которая появляется в узком диапазоне полей и в диапазоне температур, начиная с 1 К выше T_C и до низких температур, в виде маленьких капель, растворенные в конической фазе [77].

Хотя критические флуктуации и не коррелирует со спиновой структурой, параметры этих флуктуаций помогают оценить характерные масштабы длины магнитной системы в непосредственной близости к T_C . Таким образом, было обнаружено, что коническая фаза появляется при $T_{DM} = 31,5$ К, где корреляционная длина флуктуаций $\kappa \approx k$. Структура скирмионной решетки возникает при $T^* = 30,0$ К, где корреляционная длина $\kappa \approx k/2$. Одна предполагает, что один период спирали устанавливается внутри флуктуаций. Можно легко показать, что характер взаимодействия флуктуаций с магнитным полем резко меняется в этой точке. Если корре-

ляционная длина флуктуаций меньше, чем период спирали, то такие флуктуации имеют не компенсированный магнитный момент, который взаимодействует с полем, выравнивая этот момент вдоль направления магнитного поля. Этот тип взаимодействия является ферромагнитным, что не может привести к появлению конической решетки. С другой стороны, когда длина корреляции больше, чем период спирали, поле преобразует спиральную структуру в коническую структуру, направляя оси конуса вдоль магнитного поля. Это взаимодействие характерно для спиральной структуры и энергия для формирования конуса берется из взаимодействия спиновой составляющей, параллельной оси конуса с магнитным полем.

Вторая точка определяется как температура, при которой два периода спирали размещены внутри флуктуаций. С другой стороны, скирмионная решетка существует при температуре ниже T^* в диапазоне выше и ниже T_C , где флуктуации достигают и превышают длину в два периода. Следовательно, две чисто геометрические особенности флуктуаций необходимо учитывать для того, чтобы создать условия для образования скирмионной решетки вместо конической структуры. Первая функция является длиной корреляции, которая должна быть в два раза больше, чем период модуляций. Это необходимо для формирования элементарной ячейки скирмионной решетки. Второй особенностью является волновой вектор флуктуаций, который имеет изотропное (произвольное) направление. Среди всех возможных направлений волнового вектора являются выровнены перпендикулярно к оси поля, что помогает формированию скирмионной решетки. Таким образом, сочетание этих геометрических особенностей, присущих спиральной флуктуациями приводит к образованию скирмионной решетки.

Можно отметить, что роль флуктуаций аналогична поверхностей и интерфейсов, которые рассматриваются в качестве дефекта стабилизирующего скирмионную решетку [90–92]. Замечательным почтительность из флуктуациями является их распределение по объему образца, что приводит к образованию объемной скирмионной решетки. Этот вывод раскрывает роль критических флуктуаций как дефектов, которые делают энергию скирмионной решетки ниже, чем у конической решетки.

4.4. Выводы

1. Данные показанные в 4 помогли ответить на несколько вопросов. Во-первых, эти данные ясно показывают, что спиновые флуктуации, дающие кольцо интенсивности рассеяния в Q -пространстве выше T_C не связаны со структурой скирмионной решетки, в противоположность к утверждениям работ [25; 27], в которой авторы настаивают на рассмотрении спиновых флуктуаций, как флуктуаций скирмионов. Во-вторых, было показано, что скирмионная решетка—это двумерно модулированная гексагональная спиновая структура, которая похожа на одномерно модулированную структуру спинового конуса. Выше T_C наблюдается коническая структура и структура скирмионной решетки, где они не конкурируют, но сосуществуют и ограничены только корреляционными длинами флуктуаций. Продемонстрировано, что существование скирмионной решетки коррелирует с наличием киральных флуктуаций спирали с корреляционной длиной $\xi \geq 2d$, что в два раза больше, чем период спирали (т.е. в диапазоне $T_C < T < 30$ K). Коническая решетка прослеживается до более высо-

ких температур, и видна, если корреляционная длина ξ , больше чем d . Таким образом, сделан вывод, что стабильность двух структур ограничена разными пространственными корреляционными длинами.

2. Наконец, скирмионная решетка имеет более низкую энергию, чем коническая структура при температурах чуть ниже T_C . Тем не менее, показано, что коническая фаза является более стабильной в отношении критических флуктуаций, чем скирмионная решетка, что напрямую связано с различной геометрией двух структур. Геометрия конической структуры требует корреляционную длину флуктуаций $\xi > d$. Существование скирмионной решетки коррелирует с наличием киральных флуктуаций спирали с корреляционной длиной ξ превышающих два шаг спирали d . Флуктуации короче чем d имеют ферромагнитную природу. Это наблюдение может пролить новый свет на неустойчивость скирмионной решетки в упорядоченной фазе при низких температурах.

5. Магнитное упорядочение в кристаллах MnSi с химически индуцированным отрицательным давлением

Как показано в [23] уменьшение параметра решетки на 0,3 % в результате приложенного давления приводит к снижению температуры упорядочения почти на 20 К. Логично предположить, что увеличением параметра решетки будет сопровождаться увеличение температуры упорядочения. В данной главе будет показано, что соединение MnSi с химически индуцированным отрицательным давлением действительно демонстрирует увеличение температуры упорядочения T_C . В ходе работ также были обнаружены изменения в критического поля H_{C2} и волнового вектора k магнитной системы.

В данной главе представлены исследования образцов $\text{MnSi}_{1-x}\text{Ge}_x$, синтез которых показан в главе 2.1.

Для того чтобы установить идентичность состава и кристаллической структуры этих образцов, была проведена тщательная характеристика с помощью сканирующего электронного микроскопа с функцией рентгенофлуоресцентного спектрального анализа. Для этого был использован электронный микроскоп JPRS40-51 расположенный в Институте общей и неорганической химии российской академии наук (ИОНХ РАН, Москва). В ходе исследования было установлено, что поверхность образца MnSi выглядит

однородной и не содержит никаких дополнительных включений. Так как элементный анализ проводился на различных участках образца и никаких дополнительных включений не было обнаружено ни на одном из участков (рис. 2.2), то можно утверждать, что химические элементы (Mn и Si) были распределены равномерно по всему кристаллу. Установлено, что дефицит Si или Mn как элементов в образце не превышает 10 %, а Ge практически не присутствует в составе и его следы в этих кристаллах не превышают значения в 1%, поэтому образец может рассматриваться как нестехиометрический MnSi_{1-x} , где x изменялось в пределах $\pm 0,10$.

Поскольку структура и магнитные свойства всех синтезированных образцов очень похожи друг на друга, далее будут описаны свойства одного образца выбранного в качестве примера.

5.1. Определение структура исследуемого соединения

Эксперименты по рентгеновской порошковой дифракции проводились на дифрактометре STOE Stadi MP в ИЯИ РАН г. Троицк. Анализ дифрактограмм был проведён с помощью программы Fullprof. Результаты обработки данных свидетельствуют о том, что все образцы, имеют кубическую структуру B20, характерную для чистого соединения MnSi, без каких-либо дополнительных фаз. На рисунке 5.1 представлена типичная дифрактограмма полученная при комнатной температуре.

Постоянная решетки a для этих образцов при комнатной температуре имеет значение равное $4,575(1) \text{ \AA}$, что немного больше, чем параметр решетки идеального кристалла MnSi $a = 4,558(1) \text{ \AA}$. Отсюда можно сделать вывод, что полученные кристаллы — это образцы поликристаллического

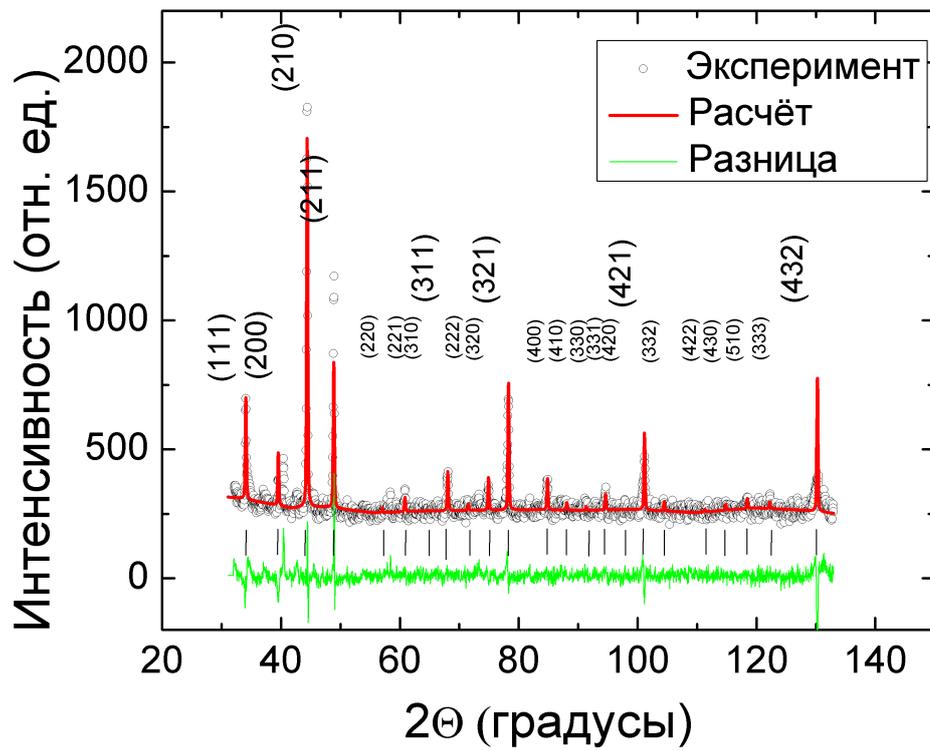


Рисунок 5.1 — Дифрактограмма образца $\text{MnSi}_{0.94}$ при температуре $T = 293$ К сопоставлена с теоретической кривой. Основные дифракционные максимумы проиндексированы в соответствии со структурой B20.

MnSi с небольшой, порядка 1 % примесью Ge, который замещает Si. Замещение привело к расширению решетки, что можно интерпретировать как отрицательное давление внутри образца.

5.2. Магнитные свойства

Магнитные свойства образцов были исследованы при помощи СКВИД магнитометрии. На рисунке 5.2 показана температурная зависимость намагниченности M и обратной восприимчивости $1/\chi$. На графике также показана первая производная восприимчивости по температуре $d\chi/dT$, чтобы выделить особые точки, соответствующие точкам перегиба зависимости $M(T)$ при $T_C = 39$ К и $T^* = 43$ К. Эти точки перегиба делят рассматриваемую температурную зависимость на три области: (i) область упорядоченной фазы при низких температурах, эта область отмечена максимумом на $d\chi/dT$; (ii) критический диапазон между максимумом и минимумом $d\chi/dT$ и (iii) парамагнитная область, находящаяся в диапазоне от минимума первой производной $d\chi/dT$ к более высоким температурам. Температурная зависимость обратной восприимчивости $1/\chi$ демонстрирует закон Кюри-Вейсса в парамагнитной области при $T > T^*$.

Для определения магнитной структуры образца были проведены исследования с использованием метода малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов. Эксперимент проводился на дифрактометре SANS—2 исследовательского реактора FRG—1 (Геестхафт, Германия). Общий вид установки и схема эксперимента представлены на рисунке 2.3 (а). Типичная картина магнитного рассеяния при $T = 30$ К (т. е. ниже T_C) представляет собой наличие кольца интенсивности, что указывает на сосущество-

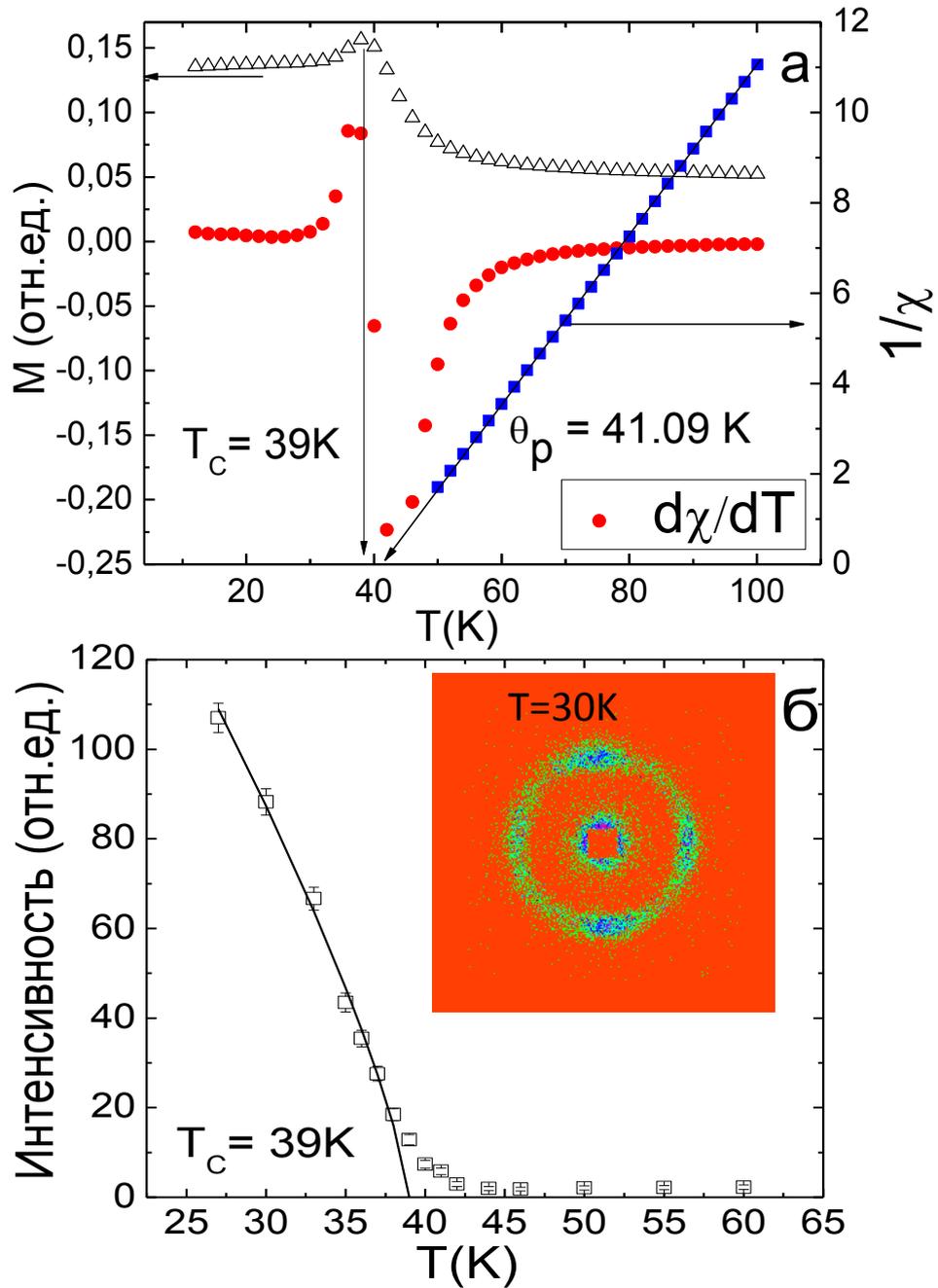


Рисунок 5.2 — (а) Температурная зависимость восприимчивости χ и первой производной по температуре $d\chi/dT$ при приложенном магнитном поле $H = 5$ мТл. Кроме того, построена температурная зависимость обратной восприимчивости $1/\chi$ в парамагнитной области при $T > T^*$. (б) Температурная зависимость интегральной интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов для легированных соединений MnSi при $H = 1$ мТл при $T = 30$ К.

вание нескольких различных областей спиралей с различной ориентацией волнового вектора спирали \mathbf{k} . Значение волнового вектора k равно $0,0385 \text{ \AA}^{-1}$ при низких температурах и увеличивается до $0,0400 \text{ \AA}^{-1}$ вблизи T_C . Температурная зависимость интегральной интенсивности кольца показана на рисунке 5.2(б). Интенсивность отражения возрастает при уменьшении температуры. Аппроксимация T –зависимости интенсивности степенным законом

$$I = I_0 \left(\frac{T - T_C}{T_C} \right)^\alpha$$

даёт критическую температуру $T_C = 39 \pm 0.5 \text{ К}$. Таким образом, присутствие в низкотемпературной области брэгговских пиков говорит о наличии спиральной магнитной структуры, которая исчезает при $T_C = 39 \text{ К}$, что совпадает с температурой максимума $d\chi/dT$ (рис. 5.2 (а)).

Как известно, магнитное поле сильно влияет на спиральную структуру чистой системы MnSi [3; 42]. Трансформации магнитной структуры с приложенным магнитным полем одинаковы для всех изучаемых соединений, а также для идеального MnSi. Для изучения влияния поля на рассматриваемые системы были измерены кривые перемангничивания при различных температурах ниже $T_C = 39 \text{ К}$ (рис. 5.3). Из кривых насыщения было определено критическое поле H_{C2} , соответствующее переходу из конечного состояния системы в ферромагнитное.

В экспериментах по малоугловому рассеянию нейтронов магнитное поле было ориентировано перпендикулярно к падающему пучку и измерения происходили в диапазоне от 0 до 300 мТл. Схема эксперимента изображена на рисунке 2.3(б). На картине рассеяния можно наблюдать трансформацию магнитной системы, выражающаяся в росте интенсивности двух

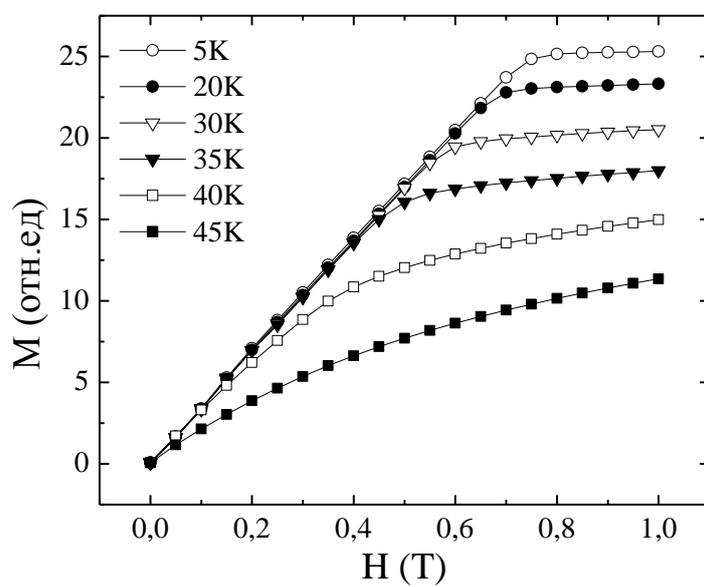


Рисунок 5.3 — Зависимость намагниченности M от магнитного поля H (Тл) взятая при $T = 5, 20, 30, 35, 40$ и 45 К для образца легированного Ge.

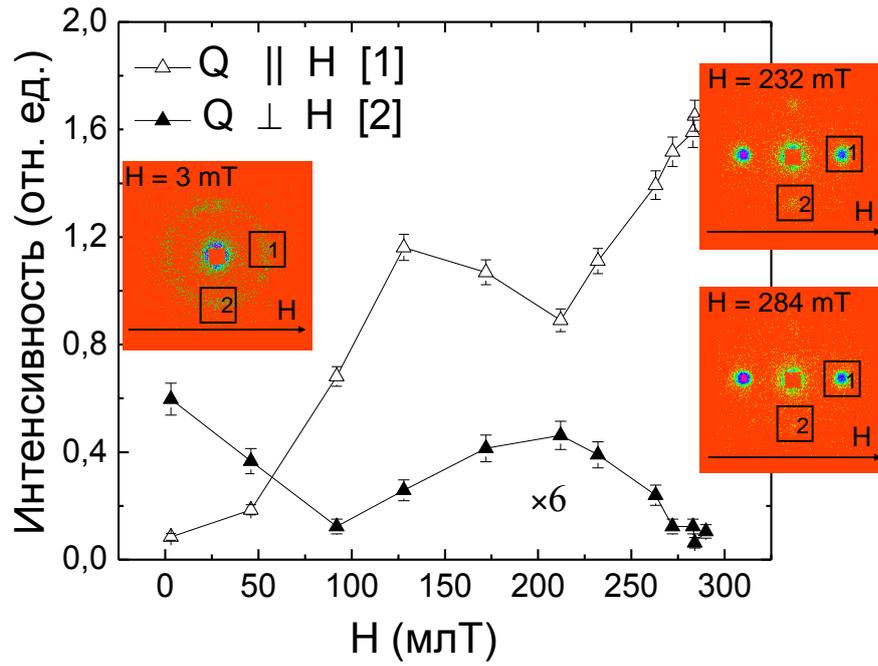


Рисунок 5.4 — (а) Полевая зависимость интегральной интенсивности брэгговского пика при $k \parallel H$ и $k \perp H$ для допированных соединений MnSi взятые при $T = 30$ К (а) и $T = 37$ К (б). Вставки: карты интенсивности рассеяния поляризованных нейтронов в магнитном поле $H = 3, 232, 284$ мТл.

пиков, соответствующих векторам рассеяния $\pm\mathbf{k}$, выстроенных по линии действия поля, с одновременным ослаблением интенсивности других частей дифракционного кольца. Пороговое поле первого перехода H_{C1} может быть определено как поле, которое подавляет анизотропию и образует один домен конической спирали. При дальнейшем увеличении магнитного поля до H_{C2} , система переходит из конического состояния в ферромагнитное состояние и брэгговские отражения исчезают.

Интересная особенность поведения в магнитном поле наблюдается, вблизи T_C , где спиновые спирали с $k \parallel H$ превращаются в скирмионную решётку с $k \perp H$. В эксперименте по нейтронной дифракции это выглядит как уменьшение интенсивности брэгговского отражения при $Q = k \parallel H$, в то время как новый брэгговский пик появляется с $k \perp H$. На рисунке 5.4 показаны типичные картины малоуглового рассеяния для переворота волнового вектора k в A -фазе. Интегральная интенсивность брэгговского отражения (при $k \parallel H$) показывает минимум при $H_A = 220$ мТл (рис. 5.4). Максимум интенсивности рассеяния при $Q = k \perp H$ появляется в том же поле $H_A = 220$ мТл. Для измерений, выполненных в режиме охлаждения в нулевом поле, A -фаза наблюдается в сканируемой области до температуры $T = 27$ К. На рис.5.5 показана температурная зависимость интенсивности рассеяния, взятая в режиме охлаждения в поле при $H = 232$ мТл. Карты интенсивности рассеяния при $T = 12, 16, 20$ и 36 К (рис. 5.5) показывают, что A -фаза существует до самой низкой измеренной температуры, $T = 12$ К.

Эволюция магнитной структуры исследуемого образца приведена на $(H - T)$ фазовой диаграмме (рис. 5.6). Схематический план $(H - T)$ фа-

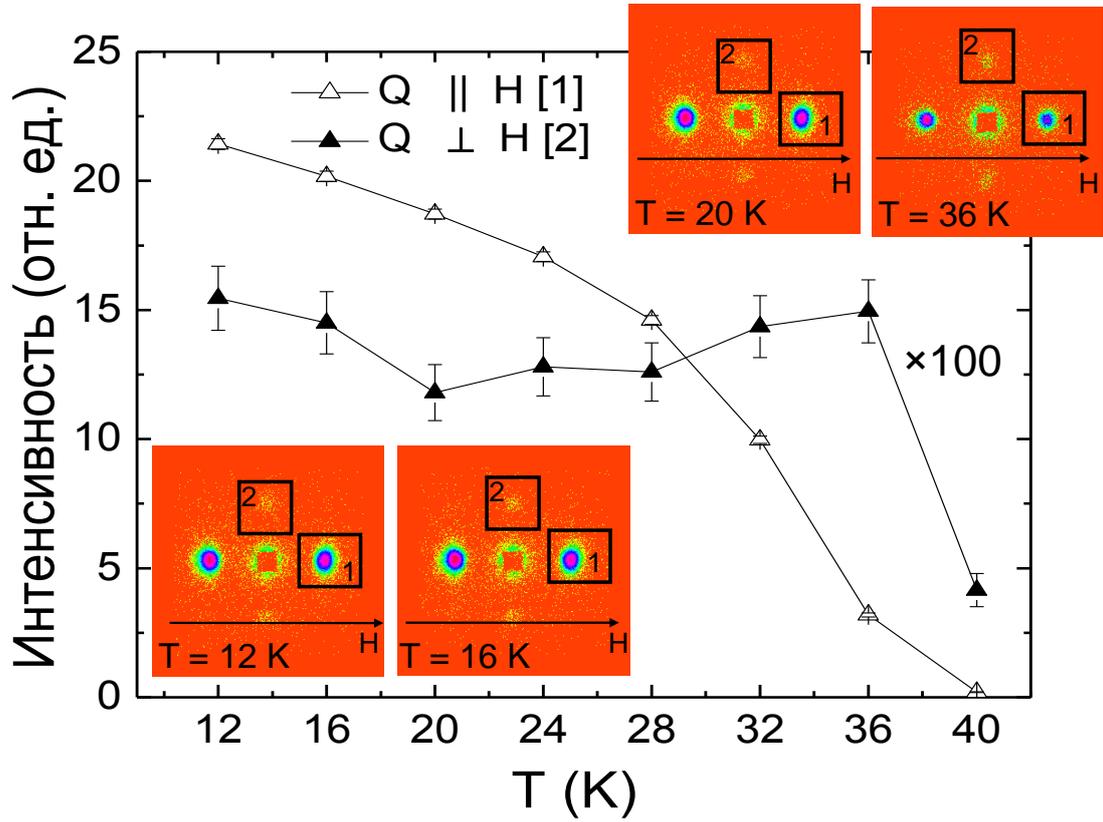


Рисунок 5.5 — (а) Температурная зависимость интегральной интенсивности рассеяния при $k \parallel H$ и $k \perp H$ в допированных соединениях MnSi в поле $H = 232$ мТл при охлаждении в поле. Вставки: карты интенсивности рассеяния поляризованных нейтронов при $T = 12$, 16, 20 и 36 К.

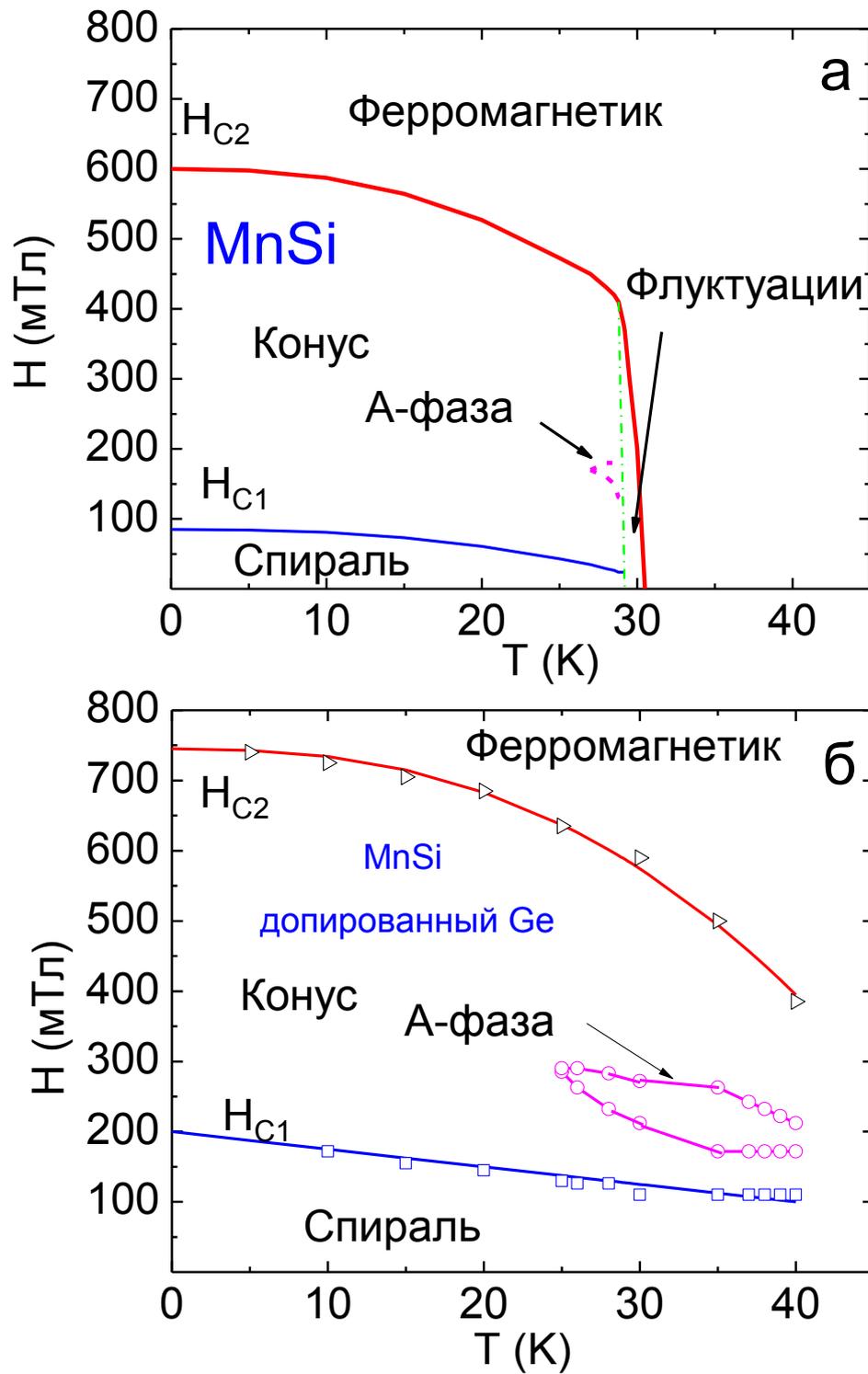


Рисунок 5.6 — $(H - T)$ фазовая диаграмма для идеального образца MnSi (а) и допированного Ge соединения MnSi (б).

зовой диаграммы чистого MnSi приведён на рис. 5.6 (а) для сравнения. Первое критическое поле H_{C1} , получено из данных по малоугловому рассеянию поляризованных нейтронов, а второе критическое поле H_{C2} взято из данных полученных методом СКВИД-магнитометрии. Оба поля приведены на рис. 5.6 (б) в зависимости от температуры. Критическое поле H_{C1} в два раза больше для легированного германием MnSi чем для чистого MnSi во всем диапазоне температур ниже T_C . Величина поля H_{C2} на 25-30 % больше, чем значение H_{C2} для чистого MnSi. Как уже было замечено критическая температура для легированного MnSi на 30 % выше, чем для чистого MnSi.

Более серьезные изменения обнаруживаются в области существования A -фазы. Хотя A -фаза наблюдается для обоих образцов, диапазон температур её существования шире для образца MnSi легированного Ge (от 27 К до $T_C = 39$ К), чем для чистого MnSi (с 27 К до $T_C = 29$ К). Интересно отметить, что нижняя граница A -фазы оказывается одинаковой для обоих сравниваемых соединений. Процедура охлаждения в поле приводит к ситуации, в которой структура A -фазы (при $k \perp H$) существует вплоть до низких температур, как это наблюдалось для смешанной системы $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ [8].

5.3. Выводы

Исследования образцов MnSi с химически индуцированных отрицательным давлением показали, что:

- Температура упорядочения T_C увеличилась на 35% за счёт допиро-

вания Ge в 1%, что сопоставимо со значениями температуры T_C в тонких пленках MnSi.

- Как известно, значения H_{C2} и k связаны с основными преобладающими взаимодействиями магнитной системы, такими как жесткость спиновых волн $A = g\mu_B H_{C2}/k^2$ и постоянная Дзялошинского $SD = Ak$ [5; 6]. Рассчитанные энергии основного взаимодействия A/a^2 равны 50 meV Å² для легированных и идеального образцов, в то время как SD/a на 10% больше для легированного соединения.
- Параметр решетки меняется не значительно, а константа Дзялошинского-Мория (DM) зависит только от структуры B20 [54], поэтому можно сделать вывод, что изменения связаны с средним значением спина.
- Отрицательное давление приводит к увеличению среднего спина образца, который непосредственно влияет на критическую температуру и критическое поле H_{C2} . Эти данные хорошо согласуются с наблюдаемым в тонких пленках MnSi на подложке Si.

Основные результаты, изложенные в данном разделе, опубликованы в работе [93].

Основные результаты и выводы

1. Структура A -фазы в монокристалле MnSi представляет собой не совокупность квазичастиц, но суперпозиции волн, а именно трех спиновых спиралей, чьи волновые векторы образуют равносторонний треугольник. Симметрия структуры A -фазы подразумевает, что расстояние между соседними узлами в реальном пространстве сверхрешетки равно $(2/\sqrt{3})d_s$, где d_s -это период одномерной спиральной структуры. Этот факт означает, что не топологически защищенные узлы определяют A -фазу решетки, а энергетический ландшафт кристаллов B20 (D и J) вместе с магнитным полем \mathbf{B} диктуют появление этих узлов. D и J определяют расстояние между узлами и поле \mathbf{B} ориентирует плоскость двумерных модуляций.
2. A -фаза имитирует скирмионную решетку. Сложность структуры подчеркивается двумерным характером его модуляций, которые отличаются от одномерных модуляций простой спирали или конического состояния.
3. Спиновые флуктуации в MnSi не связаны со структурой скирмионной решетки. Коническая структура и структура скирмионной решетки может наблюдаться выше T_C .
4. Существование скирмионной решетки коррелирует с наличием высоковозбужденных киральных флуктуаций спирали с корреляционной

длиной $\xi \geq 2d$, что в два раза больше, чем период спирали (т.е. в диапазоне $T_C < T < 30$ K). Коническая решетка прослеживается до высоких температур, и видна, если корреляционная длина ξ больше чем d .

5. Увеличение параметр решетки для легированных Ge соединений указывает на действие отрицательного давления, что приводит к увеличению среднего спина образца MnSi, который непосредственно влияет на критическую температуру и критическое поле H_{C2} .
6. Установлено, что температура упорядочения T_C увеличилась на 35% в соединении MnSi за счёт допирования Ge в 1%, что сопоставимо со значениями в тонких пленках MnSi. Как известно, значения H_{C2} и k связаны с основными преобладающими взаимодействиями магнитной системы, такими как жесткость спиновых волн $A = g\mu_B H_{C2}/k^2$ и постоянная Дзялошинского $SD = Ak$ [5; 6]. Рассчитанные энергии основного взаимодействия A/a^2 равны 50 meV Å² для легированных Ge и идеального образцов MnSi, в то время как SD/a на 10% больше для легированного соединения.

Благодарности

Автор диссертации благодарит своего научного руководителя, доктора физико-математических наук Григорьева Сергея Валентиновича за неоценимую помощь в ходе выполнения настоящей работы, начальника лаборатории физики неупорядоченного состояния, кандидата физико-математических наук, Рунова Владимира Владимировича, весь коллектив лаборатории ЛФНС, ведущего сотрудника теоретического отдела, доктора физико-математических наук, профессора Малеева Сергея Владимировича за полезные научные дискуссии.

Автор выражает признательность научно-исследовательскому центру GKSS, институту Лау-Ланжевена (особенно Чарльзу Дьюхерсту), Швейцарско-норвежским линиям SNBL ESRF (особенно кандидату физико-математических наук Чернышову Дмитрию Юрьевичу и кандидату физико-математических наук Дядькину Вадиму Александровичу), Институту Ядерных исследований г. Троицк (особенно кандидату физико-математических наук Евгению Станиславовичу Клементьеву) за предоставленную возможность проведения экспериментальных работ, а также Техническому университету г. Брауншвейга (доктору Дирку Менцелю и Тилу Отто) за возможность непосредственного участия в получении образцов, исследованных в данной диссертационной работе.

Литература

- 1 Kusaka, S. Ultrasonic study of magnetic phase diagram of MnSi / S. Kusaka, K. Yamamoto, T. Komatsubara, Y. Ishikawa // *Solid State Communications*. — 1976. — Vol. 20, no. 9. — Pp. 925–927.
- 2 Magnetic phase diagram of MnSi / B. Lebech, P. Harris, J. Skov Pedersen, K. Mortensen, C. I. Gregory, N. R. Bernhoeft, M. Jermy, S. A. Brown // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. — 1995. — Vol. 140-144. — Pp. 119–120.
- 3 Field-induced reorientation of the spin helix in MnSi near T_c / S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al. // *Physical Review B*. — 2006. — Vol. 73, no. 22. — P. 224440.
- 4 Small-angle neutron diffraction from the helical magnet $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}\text{Si}$ / K. Ishimoto, Y. Yamaguchi, J. Suzuki et al. // *Physica B*. — 1995. — Vol. 213-214. — Pp. 381–383.
- 5 Principal interactions in the magnetic system $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$: Magnetic structure and critical temperature by neutron diffraction and SQUID measurements / S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, V. A. Dyadkin et al. // *Physical Review B*. — 2007. — Vol. 76, no. 9. — P. 092407.
- 6 Magnetic structure of $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ in a magnetic field studied via small-

- angle polarized neutron diffraction / S. V. Grigoriev, V. A. Dyadkin, D. Menzel et al. // *Physical Review B*. — 2007. — Vol. 76. — P. 224424.
- 7 Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet / S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni // *Science*. — 2009. — Vol. 323, no. 5916. — Pp. 915–919.
- 8 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, A. Rosch // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2010. — Vol. 22, no. 16. — P. 164207.
- 9 Topological Hall Effect in the A Phase of MnSi / A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz, A. Rosch, R. Ritz, P. G. Niklowitz, P. Böni // *Physical Review Letters*. — 2009. — Vol. 102, no. 18. — P. 186602.
- 10 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, C. Pfleiderer // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 81, no. 15. — P. 041203.
- 11 Precursor Phenomena at the Magnetic Ordering of the Cubic Helimagnet FeGe / H. Wilhelm, M. Baenitz, M. Schmidt, U. K. Rössler, A. A. Leonov, and A. N. Bogdanov // *Physical Review Letters*. — 2011. — Vol. 107, no. 12. — P. 127203.
- 12 Precursor Phenomena at the Magnetic Ordering of the Cubic Helimagnet

- FeGe / E. Moskvin, S. Grigoriev, V. Dyadkin, H. Eckerlebe, M. Baenitz, M. Schmidt, and H. Wilhelm // *Physical Review Letters*. — 2013. — Vol. 110, no. 7. — P. 077207.
- 13 *Rössler, U. K.* Spontaneous skyrmion ground states in magnetic metals / U. K. Rössler, A. N. Bogdanov, C. Pfleiderer // *Nature*. — 2006. — Vol. 442. — P. 797.
- 14 *Rössler, U. K.* Chiral Skyrmionic matter in non-centrosymmetric magnets / U. K. Rössler, A.A. Leonov, A. N. Bogdanov // *Journal of Physics: Conference Series*. — 2011. — Vol. 303, no. 1. — P. 012105.
- 15 Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal / X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagaosa, Y. Tokura // *Nature*. — 2010. — Vol. 465, no. 7300. — P. 901.
- 16 Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe / X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui, Y. Tokura // *Nature Materials*. — 2011. — Vol. 10, no. 2. — P. 106.
- 17 Real-Space Observation of Skyrmion Lattice in Helimagnet MnSi Thin Samples / A. Tonomura, X. Yu, K. Yanagisawa, T. Matsuda, Y. Onose, N. Kanazawa, H. S. Park, Y. Tokura // *Nano Letters*. — 2012. — Vol. 12, no. 3. — P. 1673.
- 18 *Pfleiderer C.* Magnetic quantum phase transition in MnSi under hydrostatic pressure / C. Pfleiderer, G. J. McMullan, S. R. Julian, G. G. Lonzarich // *Physical Review B*. — 1997. — Vol. 55. — P. 8330–8338.

- 19 *Pfleiderer, C.* Non-Fermi-liquid nature of the normal state of itinerant-electron ferromagnets / C. Pfleiderer, S. R. Julian, G. G. Lonzarich // *Nature*. — 2001. — Vol. 414, no. 6862. — Pp. 427–430.
- 20 Partial order in the non-Fermi-liquid phase of MnSi / C. Pfleiderer, D. Reznik, L. Pintschovius et al. // *Nature*. — 2004. — Vol. 427, no. 6971. — Pp. 227–231.
- 21 *Pfleiderer, C.* Field dependence of the magnetic quantum phase transition in MnSi / C. Thessieu, C. Pfleiderer, A. N. Stepanov, J. Flouquet // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 1997. — Vol. 9, no. 31. — Pp. 6677–6687.
- 22 Magnetic phase transition in the itinerant helimagnet MnSi: Thermodynamic and transport properties / S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov et al. // *Physical Review B*. — 2007. — Vol. 76, no. 5. — P. 052405.
- 23 *Fak, B.* Pressure dependence of the magnetic structure of the itinerant electron magnet MnSi / B. Fak, R. A. Sadykov, J. Flouquet and G. Lapertot // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2005. — Vol. 17, — P. 1635.
- 24 Critical fluctuations in MnSi near T_c : A polarized neutron scattering study / S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al. // *Physical Review B*. — 2005. — Vol. 72, no. 13. — P. 134420.
- 25 Chiral Paramagnetic Skyrmion-like Phase in MnSi / C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Falus, P. M. Bentley, E. Moskvin, S. Grigoriev, P. Fouquet and B. Farago // *Physical Review Letters*. — 2009. — Vol. 102, no. 19. — P. 197202.

- 26 Crossover behavior of critical helix fluctuations in MnSi / S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, E. V. Moskvin, V. A. Dyadkin, P. Fouquet, H. Eckerlebe // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 81, no. 14. — P. 144413.
- 27 Magnetic fluctuations and correlations in MnSi: Evidence for a chiral skyrmion spin liquid phase / C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Bentley, P. Fouquet and B. Farago // *Physical Review B*. — 2011. — Vol. 83, no. 22. — P. 224405.
- 28 Chiral criticality in the doped helimagnets $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ / S. V. Grigoriev, E. V. Moskvin, V. A. Dyadkin et al. // *Physical Review B*. — 2011. — Vol. 83. — P. 224411.
- 29 Magnetic Blue Phase in the Chiral Itinerant Magnet MnSi / A. Hamann, D. Lamago, Th. Wolf, H. v. Löhneysen, and D. Reznik // *Physical Review Letters*. — 2011. — Vol. 107, no. 3. — P. 037207.
- 30 Crystal handedness and spin helix chirality in $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ / S. V. Grigoriev, D. Chernyshov, V. A. Dyadkin et al. // *Physical Review Letters*. — 2009. — Vol. 102, no. 3. — P. 037204.
- 31 Interplay between crystalline chirality and magnetic structure in $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ / S. V. Grigoriev, D. Chernyshov, V. A. Dyadkin et al. // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 81, no. 1. — P. 012408.
- 32 Spin chirality of polycrystalline MnSi, or, difficult way from rumours to the solid ground / V. A. Dyadkin, S. V. Grigoriev, D. Menzel, E. V. Moskvin, S. V. Maleyev, H. Eckerlebe // *Physica B*. — 2011. — Vol. 406, no. 12. — P. 2385-2388.

- 33 Control of chirality of transition-metal monosilicides by the Czochochalski method / V. A. Dyadkin, S. V. Grigoriev, D. Menzel, D. Chernyshov, V. Dmitriev, E. V. Moskvina, J. Schoenes, S. V. Maleyev and H. Eckerlebe // *Physical Review B*. — 2011. — Vol. 84, no. 1. — P. 014435.
- 34 *Koyama, K.* Observation of an itinerant metamagnetic transition in MnSi under high pressure / K. Koyama, T. Goto, T. Kanomata, R. Note // *Physical Review B*. — 2000. — Vol. 32, no. 2. — Pp. 986–991.
- 35 *Gregory, C.* Observation of an itinerant metamagnetic transition in MnSi under high pressure / C. Gregory, D. Lambrick, N. Bernhoeft // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. — 1992. — Vol. 104–107, no. Part 1. — Pp. 689–690.
- 36 Magnetoresistance from quantum interference effects in ferromagnets / N. Manyala, Y. Sidis, J. F. DiTusa et al. // *Nature*. — 2000. — Vol. 404, no. 6778. — Pp. 581–584.
- 37 *Kawakami, M.* Nuclear Magnetic Resonance Study of MnSi / M. Kawakami and T. Hihara // *Journal of the Physical Society of Japan*. — 1968. — Vol. 25, no. 6 — Pp. 1733.
- 38 ^{55}Mn and ^{29}Si NMR in the Helically Ordered State of MnSi / K. Motoya, H. Yasuoka, Y. Nakamura, V. Jaccarino, J. H. Wernick // *Journal of the Physical Society of Japan*. — 1978. — Vol. 44, no. 3 — Pp. 833–841.
- 39 *Yasuoka, H.* NMR and susceptibility studies of MnSi above T_c / H. Yasuoka, V. Jaccarino, R. C. Sherwood, J. H. Wernick // *Journal of the Physical Society of Japan*. — 1978. — Vol. 44, no. 3. — Pp. 842–849.

- 40 *Ishikawa, Y.* Helical spin structure in manganese silicide MnSi /
Y. Ishikawa, K. Tajima, D. Bloch, M. Roth // *Solid State Communica-*
tions. — 1976. — Vol. 19, no. 6. — Pp. 525–528.
- 41 *Ishikawa, Y.* Magnetic phase diagram of MnSi near critical temperature
studied by neutron small angle scattering / Y. Ishikawa, M. Arai // *Journal*
of the Physical Society of Japan. — 1984. — Vol. 53, no. 8. — Pp. 2726–2733.
- 42 Magnetic structure of MnSi under an applied field probed by polarized
small-angle neutron scattering / S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Oko-
rokov et al. // *Physical Review B.* — 2006. — Vol. 74, no. 21. — P. 214414.
- 43 *Williams, H. J.* Magnetic Properties of the Monosilicides of Some 3d Tran-
sition Elements / H. J. Williams, J. H. Wernick, R. C. Sherwood, and
G. K. Wertheim // *J Appl. Phys.* — 1966. — Vol. 37, no. 3. — Pp. 1256.
- 44 *Bloch, D.* The high field-high pressure magnetic properties of MnSi /
D. Bloch, J. Voiron, V. Jaccarino, J. H. Wernick // *Physics Letters A.* —
1975. — Vol. 51, no. 5. — Pp. 259–261.
- 45 *Brown, P. J.* Spatial distribution of the magnetic moment in MnSi /
P. J. Brown, J. B. Forsyth, G. H. Lander // *Journal of Applied Physics.* —
1968. — Vol. 39, no. 2. — P. 1331.
- 46 *Båk, P.* Theory of helical magnetic structures and phase transitions in
MnSi and FeGe / P. Båk, M. H. Jensen // *Journal of Physics C: Solid*
State Physics. — 1980. — Vol. 13, no. 31. — P. L881.
- 47 *Lebech, B.* Magnetic Ordering in Nearly Ferromagnetic Antiferromagnetic

- Helices / B. Lebech // *Proceedings of Recent Advances in Magnetism of Transition Metal Compounds*. — 1993. — Vol. 73, no. 22. — P. 224440.
- 48 *Fawcett, E.* Magnetoelastic and thermal properties of MnSi / E. Fawcett, J. P. Maita, J. H. Wernick // *Int. J. Magnetism*.. — 1970. — Vol. 1. — P. 29.
- 49 *Diep, H. T.* Magnetic transitions in helimagnets / H. T. Diep // *Physical Review B*. — 1989. — Vol. 39, no. 1. — P. 397.
- 50 *Plumer, M. L.* Tricritical behavior of the frustrated XY antiferromagnet / M. L. Plumer, A. Mailhot // *Physical Review B*. — 1989. — Vol. 50, no. 21. — P. 16113.
- 51 Heat capacity and thermal expansion of the itinerant helimagnet MnSi / S. M. Stishov, A. E. Petrova, S. Khasanov et al. // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2008. — Vol. 20, no. 23. — P. 235222.
- 52 Lost Heat Capacity and Entropy in the Helical Magnet MnSi / S. M. Stishov, A. E. Petrova, A. Shikov et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Vol. 105. no. 23.— P. 236403.
- 53 *Nishihara, Y.* Mössbauer study of $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ in external magnetic fields / Y. Nishihara, S. Waki, S. Ogawa // *Physical Review B*. — 1984. — Vol. 30, no. 1. — Pp. 32–35.
- 54 Helical spin structure of $\text{Mn}_{1-y}\text{Fe}_y\text{Si}$ under a magnetic field: Small angle neutron diffraction study / S. V. Grigoriev, V. A. Dyadkin, E. V. Moskvina et al. // *Physical Review B*. — 2009. — Vol. 79, no. 14. — P. 144417.
- 55 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 /A. Bauer, A. Neubauer, C. Franz, W. Münzer, M. Garst, C. Pfleiderer // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 82, no. 4. — P. 064404.
- 56 *Krüger, F.* Quantum Order-by-Disorder Near Criticality and the Secret of Partial Order in MnSi / F. Krüger, U. Karahasanovic, and A. G. Green // *Physical Review Letters*. — 2012. — Vol. 108, no. 6. — P. 067003.
- 57 *Tewari, S.* Blue Quantum Fog: Chiral Condensation in Quantum Helimagnets / S. Tewari, D. Belitz and T. R. Kirkpatrick // *Physical Review Letters*. — 2012. — Vol. 96, no. 4. — P. 047207.
- 58 *Pfleiderer C.* Critical behaviour at the transition from a magnetic to a nonmagnetic metallic state in MnSi as a function of hydrostatic pressure /C. Pfleiderer, G. J. McMullan, G. G. Lonzarich // *Physica B: Condensed Matter*. — 1994. — Vol. 199–200. — P. 634–636.
- 59 *Pfleiderer C.* Pressure induced crossover of the magnetic transition from second to first order near the quantum critical point in MnSi /C. Pfleiderer, G. J. McMullan, G. G. Lonzarich // *Physica B: Condensed Matter*. — 1995. — Vol. 206–207. — P. 847–849.
- 60 *Pfleiderer, C.* Non-Fermi liquid puzzle of MnSi at high pressure / C. Pfleiderer // *Physica B: Condensed Matter*. — 2003. — Vol. 328, no. 1–2. — Pp. 100–104.
- 61 *Pfleiderer, C.* Non-Fermi liquid puzzle of MnSi at high pressure / C. Pfleiderer, P. Böni, T. Keller, U. K. Rössler, A. Rosch // *Science*. — 2007. — Vol. 316, no. 5833. — Pp. 1871–1874.

- 62 Large anomalous Hall effect in a silicon-based magnetic semiconductor / N. Manyala, Y. Sidis, J. F. DiTusa et al. // *Nature Materials*. — 2004. — Vol. 3, no. 4. — Pp. 255–262.
- 63 *Lebech, B.* Magnetic structures of cubic FeGe studied by small-angle neutron scattering / B. Lebech, J. Bernhard, T. Freltoft // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 1989. — Vol. 1, no. 35. — Pp. 6105–6122.
- 64 Structure and magnetic properties of MnSi epitaxial thin films / E. Karhu, S. Kahwaji, T. L. Monchesky, C. Parsons, M. D. Robertson, C. Maunders // *Physical Review B*. — 2010. — Vol. 82, no. 18. — P. 184417.
- 65 Helical magnetic order in MnSi thin films / E. A. Karhu, S. Kahwaji, M. D. Robertson, H. Fritzsche, B. J. Kirby, C. F. Majkrzak, T. L. Monchesky // *Physical Review B*. — 2011. — Vol. 84, no. 6. — P. 060404(R).
- 66 Chiral modulations and reorientation effects in MnSi thin films / 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 // *Physical Review B*. — 2012. — Vol. 85, no. 9. — P. 094429.
- 67 Precursor Phenomena at the Magnetic Ordering of the Cubic Helimagnet FeGe / 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 // *Physical Review Letters*. — 2011. — Vol. 107, no. 21. — P. 217206.

- 68 *Skyrme, T. H. R.* A Non-Linear Field Theory / T. H. R. Skyrme // *Proc. R. Soc. Lond. A.* — 1961. — Vol. 260. — Pp. 127–138.
- 69 *Belavin, V. A.* Monopole creation operator in presence of matter / V. A. Belavin, M. N. Chernodub, M. I. Polikarpov // *JETP* . — 2002. — Vol. 75, no. 5. — Pp. 263.
- 70 *Bogdanov, A. N.* Thermodynamically stable "vortices" in magnetically ordered crystals. The mixed state of magnets / A. N. Bogdanov and D. A. Yablonskii // *JETP* . — 1989. — Vol. 95, no. 1. — Pp. 101–103.
- 71 *Bogdanov, A. N.* Magnetic structures and reorientation transitions in noncentrosymmetric uniaxial antiferromagnets / A. N. Bogdanov, U. K. Rößler, M. Wolf, and K.-H. Müller // *Physical Review B.* — 2002. — Vol. 66, no. 21. — Pp. 214410.
- 72 *Leonov, A. A.* Confinement of Skyrmion states in noncentrosymmetric magnets / A. A. Leonov, A. N. Bogdanov, U. K. Rössler // *arXiv:1001.1292v2* . — 2010. —
- 73 *Dzyaloshinskii, I. E.* Magnetic Properties of the Monosilicides of Some 3d Transition Elements / I. E. Dzyaloshinskii // *Sov. Phys. JETP.* — 1964. — Vol. 19, — Pp. 960.
- 74 Chiral Paramagnetic Skyrmion-like Phase in MnSi / J. W. Felix et al., // *Physical Review Letters.* — 1986. — Vol. 57, no. 19. — P. 2180.
- 75 <http://compulenta.computerra.ru/veshestvo/fizika/10008451/>
- 76 Anomalous region in the magnetic phase diagram of (Fe, Co) Si / K. Ishimoto, H. Yamaguchi, Y. Yamaguchi, J. Suzuki, M. Arai, M. Furusaka,

- Y. Endoh // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. — 1990. — Vol. 90-91. — Pp. 163–165.
- 77 Hexagonal spin structure of *A*-phase in MnSi: densely packed skyrmion quasiparticles or two-dimensionally modulated spin superlattice? / S. V. Grigoriev, N. M. Potapova, E. V. Moskvin, V. A. Dyadkin, Ch. Dewhurst S. V. Maleyev // *JETP Letters*. — 2014. — Vol. 100, no. 3. — P. 216.
- 78 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, C. Pfleiderer // *Phys. Rev. Lett.* — 2012. — Vol. 108, no. 23. — P. 237204.
- 79 Electric field control of the skyrmion lattice in Cu_2OSeO_3 / J. S. White, I. Levatic, A. A. Omrani, N. Egetenmeyer, K. Prsa, I. Zivkovic, J. L. Gavilano, J. Kohlbrecher, M. Bartkowiak, H. Berger and H. M. Ronnow // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 2012. — Vol. 24, no. 43. — P. 432201.
- 80 The origin of the helical spin density wave in MnSi / O. Nakanishi, A. Yanase, A. Hasegawa, M. Kataoka // *Journal of Physics: Condensed Matter*. — 1980. — Vol. 35, no. 12. — P. 995–998.
- 81 Fluctuation-induced first-order phase transition in Dzyaloshinskii-Moriya helimagnets / M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer, P. Krautscheid, R. Georgii, P. Böni, and C. Pfleiderer // *Physical Review B*. — 2013. — Vol. 87, no. 13. — P. 134407.
- 82 Koehler, W. C. Neutron diffraction by helical spin structures /

- W. C. Koehler // *Acta Crystallographica*. — 1961. — Vol. 14, no. 5. — Pp. 535–536.
- 83 *Maleyev, S. V.* Cubic magnets with Dzyaloshinskii-Moriya interaction at low temperature / S. V. Maleyev // *Physical Review B*. — 2006. — Vol. 73, no. 17. — P. 174402.
- 84 *Малеев, С. В.* Магнитное рассеяние поляризованных нейтронов / С. В. Малеев, В. Г. Барьяхтар, Р. А. Сурис // *Физика Твёрдого Тела*. — 1962. — Т. 4. — С. 3461.
- 85 *Blume, M.* Polarization effects in the magnetic elastic scattering of slow neutrons / M. Blume // *Physical Review*. — 1963. — Vol. 130, no. 5. — Pp. 1670–1676.
- 86 *Ежов, В. Ф.* Адиабатический метод отдельных осциллирующих полей / В. Ф. Ежов, С. Н. Иванов, В. М. Лобашов и др. // *Письма в ЖЭТФ*. — 1976. — Т. 24, № 1. — С. 39–43.
- 87 *Bazenov, A. N.* An adiabatical resonance spin-flipper for thermal and cold neutrons / A. N. Bazenov, V. M. Lobashev, A. N. Pirozhkov, V. N. Slusar // *Nuclear Instruments and Methods A*. — 1993. — Vol. 332. — Pp. 534–536.
- 88 *Ford, P. J.* Spin glasses / P. J. Ford // *Contemporary Physics*. — 1982. — Vol. 23, no. 2. — Pp. 141–168.
- 89 The internal magnetic field was calculated using the expression $\mathbf{B}_{int} = \mathbf{B}_{ext} - 4\pi\mathbf{M}\hat{N}$, where N was taken equal to 1 if \mathbf{H} is parallel to the normal of the sample plate. The magnetization was considered to be linear versus an

external field $M = \chi H$ with $\chi = \text{const}$ depending on the temperature and extracted from the magnetization measurements. Thus corrected magnetic field may have a systematic error of order of 5 %.

- 90 Rybakov, F. N. Three-dimensional skyrmion states in thin films of cubic helimagnets / F. N. Rybakov, A. B. Borisov, A. N. Bogdanov // *Physical Review B*. — 2013. — Vol. 87, no. 9. — P. 94424.
- 91 Chiral skyrmions in cubic helimagnet films: The role of uniaxial anisotropy / M. N. Wilson, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov, T. L. Monch-
esky // *Physical Review B*. — 2014. — Vol. 89, no. 9. — P. 224419.
- 92 Hall effect and transmission electron microscopy of epitaxial MnSi thin films / S. A. Meynell, M. N. Wilson, J. C. Loudon, et al. // *Physical Review B*. — 2014. — Vol. 90, no. 22. — P. 224419.
- 93 Magnetic ordering in bulk MnSi crystals with chemically induced negative pressure / N. Potapova, V. A. Dyadkin, E. V. Moskvina, H. Eckerlebe, D. Menzel, S. Grigoriev // *Physical Review B*. — 2012. — Vol. 86, no. 6. — P. 060406(R).