

РОЛЬ КРИТИЧЕСКИХ ФЛУКТУАЦИЙ В ФОРМИРОВАНИИ СКИРМИОННОЙ РЕШЕТКИ В MnSi

Н. М. Чубова^{a*}, Е. В. Москвин^{a,b}, В. А. Дядькин^c,
Ч. Дьюхарст^{d**}, С. В. Малеев^a, С. В. Григорьев^{a,b}

^a Петербургский институт ядерной физики им. Б. П. Константинова НИЦ «Курчатовский институт»
188300, Гатчина, Россия

^b Санкт-Петербургский государственный университет
198504, Санкт-Петербург, Россия

^c Swiss-Norwegian Beamlines at the European Synchrotron Radiation Facility
38000, Grenoble, France

^d Institute Laue-Langevin
F-38042, Grenoble, France

Поступила в редакцию 12 апреля 2017 г.

Методом малоугловой дифракции нейтронов детально изучена область фазовой H - T -диаграммы вблизи критической температуры T_c кубического геликоидального магнетика MnSi. Исследования проводились с приложением магнитного поля \mathbf{H} вдоль кристаллографической оси [111]. Геометрия эксперимента специально выбрана таким образом, чтобы одновременно наблюдать три различных магнитных состояния системы: а) критические флуктуации спиновой спирали со случайной ориентацией волнового вектора \mathbf{k}_f ; б) коническую структуру с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$; в) гексагональную скирмионную решетку с $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$. Показано, что оба состояния (коническая структура и скирмионная решетка) наблюдаются выше критической температуры $T_c = 29$ К на фоне критических флуктуаций спиновой спирали. Коническая решетка может быть прослежена вплоть до температур, где корреляционная длина ξ флуктуаций достигает величины порядка периода d_s спирали. Скирмионная решетка локализована вблизи T_c и связана с флуктуациями спирали с корреляционной длиной $\xi \approx 2d_s$, а вектор распространения перпендикулярен полю, $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$. Высказано предположение, что эти спиральные флуктуации можно рассматривать как дефекты, на основе которых формируется и стабилизируется скирмионная решетка.

DOI: 10.7868/S0044451017110098

1. ВВЕДЕНИЕ

Появление скирмионной решетки в очень малой области фазовых H - T -диаграмм MnSi и подобных ему соединений стало настоящим камнем преткновения для современных исследователей. Существование этой области наблюдается в огромном разнообразии магнитных материалов со структурой типа B20 [1–15]. Его истинная природа проявилась в экспериментах по рассеянию нейтронов как статическая магнитная модуляция, распространяющаяся перпендикулярно приложенному магнитному полю

в MnSi [3, 4] и в $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}\text{Si}$ [1, 2, 5, 6]. Позже было установлено, что эта экзотическая фаза является гексагональной магнитной решеткой с волновым вектором $\mathbf{k}_{sk(1,2,3)} \perp \mathbf{H}$ в MnSi [7] и в различных соединениях переходных металлов моносилицидов Mn/FeSi, Mn/CoSi, Fe/CoSi [10–12], в FeGe [13], в Cu_2OSeO_3 [14, 15], а также в соединениях типа β -Mn и в сплавах Co–Zn–Mn [16]. Гексагональная скирмионная решетка также наблюдалась в тонких пленках практически во всех указанных выше соединениях [17–19] с использованием лоренцевой просвечивающей электронной микроскопии.

Хорошо известно, что магнитная структура MnSi построена на иерархии трех взаимодействий: 1) сильного ферромагнитного обменного взаимодействия; 2) изотропного антисимметричного

* E-mail: chubova@lns.pnpi.spb.ru

** Ch. Dewhurst

взаимодействия Дзялошинского–Мория (взаимодействие ДМ); 3) анизотропного обменного взаимодействия [20, 21]. Магнитная система, основанная на этих взаимодействиях, в нулевом поле формируется в спираль с периодом, определяемым соотношением между ферромагнитным взаимодействием и взаимодействием ДМ. С приложением магнитного поля спираль превращается в коническую однодоменную фазу с $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$. Затем из конической фазы она переходит в коллинеарное поляризованное состояние при критическом поле H_{c2} . В магнитном поле коническая фаза наблюдается во всем диапазоне температур ниже критической температуры T_c . Исключение составляет область вблизи температуры перехода T_c , когда скирмионная решетка стабилизируется в узком диапазоне полей [7–9]. Для описания этой решетки авторы работы [7] предложили модель среднего поля, описывающую однодоменную структуру с тремя \mathbf{k} , названную скирмионной решеткой. В работе [7] утверждалось, что скирмионная решетка хотя и является менее энергетически выгодной по сравнению с простой спиральной структурой в нулевом поле, но гауссовы тепловые флуктуации в окрестности T_c стабилизируют структуру с тремя \mathbf{k} при приложении магнитного поля.

Вопрос об устойчивости скирмионной решетки интенсивно обсуждается в связи с экспериментами, выполненными с тонкими пленками соединений типа B20 [17–19]. Лоренцева микроскопия показывает, что устойчивость скирмионной решетки зависит от критической толщины пленки: чем тоньше пленка, тем выше стабильность и более обширной становится скирмионная фаза на H – T -диаграмме. Последние теоретические работы и эксперименты доказывают, что для того, чтобы обеспечить стабильность скирмионной решетки, система должна иметь либо одноосную анизотропию, либо поверхность/интерфейс. И то, и другое уменьшает симметрию задачи до двух измерений [22–25].

Что касается объемных образцов, используемых в экспериментах по рассеянию нейтронов и в макроскопических магнитных методах, устойчивая скирмионная решетка наблюдается только вблизи T_c . Как отмечалось в работе [7], этот факт может указывать на то, что критические флуктуации спиновой спирали стабилизируют скирмионную решетку. Возникают вопросы: почему критические флуктуации, которые служат, как правило, условием распада упорядоченной структуры, фактически обусловили появление скирмионной решетки? Почему флуктуации делают скирмионную решетку энерге-

тически более выгодной по сравнению с конической структурой? Какова специфика критических флуктуаций спирали, приводящих к этой стабилизации? В этой работе мы покажем, что именно определенная геометрическая конфигурация спиральных флуктуаций (их корреляционная длина и вектор распространения) приводит к стабилизации скирмионной решетки вблизи T_c .

Иерархия энергетических масштабов в соединениях B20 приводит к сложному характеру критических явлений при упорядочении магнитной структуры. Сложный характер фазового перехода даже в нулевом поле является предметом дискуссий [26–32]. В настоящее время фазовый переход в нулевом поле можно считать хорошо изученным и качественно понятным. Так, корреляционная длина и время жизни (или энергия) критических флуктуаций спирали тщательно измерены методом малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН) [26, 31, 32] и нейтронной спин-эхо-спектроскопии [29, 30]. Влияние магнитного поля на флуктуации спирали изучалось в нейтронном эксперименте [4]. Следы конической структуры и скирмионной решетки наблюдаются выше критической температуры T_c на фоне критических флуктуаций. Однако детальное исследование МУРН по изменению спиновой структуры под действием магнитного поля еще не проведено. В этой работе мы приводим результаты эксперимента по малоугловому рассеянию нейтронов на MnSi в магнитном поле в геометрии, которая позволяет одновременно наблюдать как коническую структуру, так и скирмионную решетку.

Работа построена следующим образом. Детали эксперимента представлены в разд. 2. Результаты эксперимента по малоугловому рассеянию нейтронов даны в разд. 3. Анализ данных предложен в разд. 4. В разд. 5 и 6 представлены обсуждение и выводы.

2. ОБРАЗЕЦ И ЭКСПЕРИМЕНТ

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 — гексагональной картины рассеяния нейтронов — обычно используется геометрия эксперимента, когда магнитное поле приложено вдоль падающего пучка нейтронов (рис. 1а) [7, 9, 10]. Такая геометрия позволяет визуализировать модуляции магнитной структуры с $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ (рис. 1а). В частности, гек-

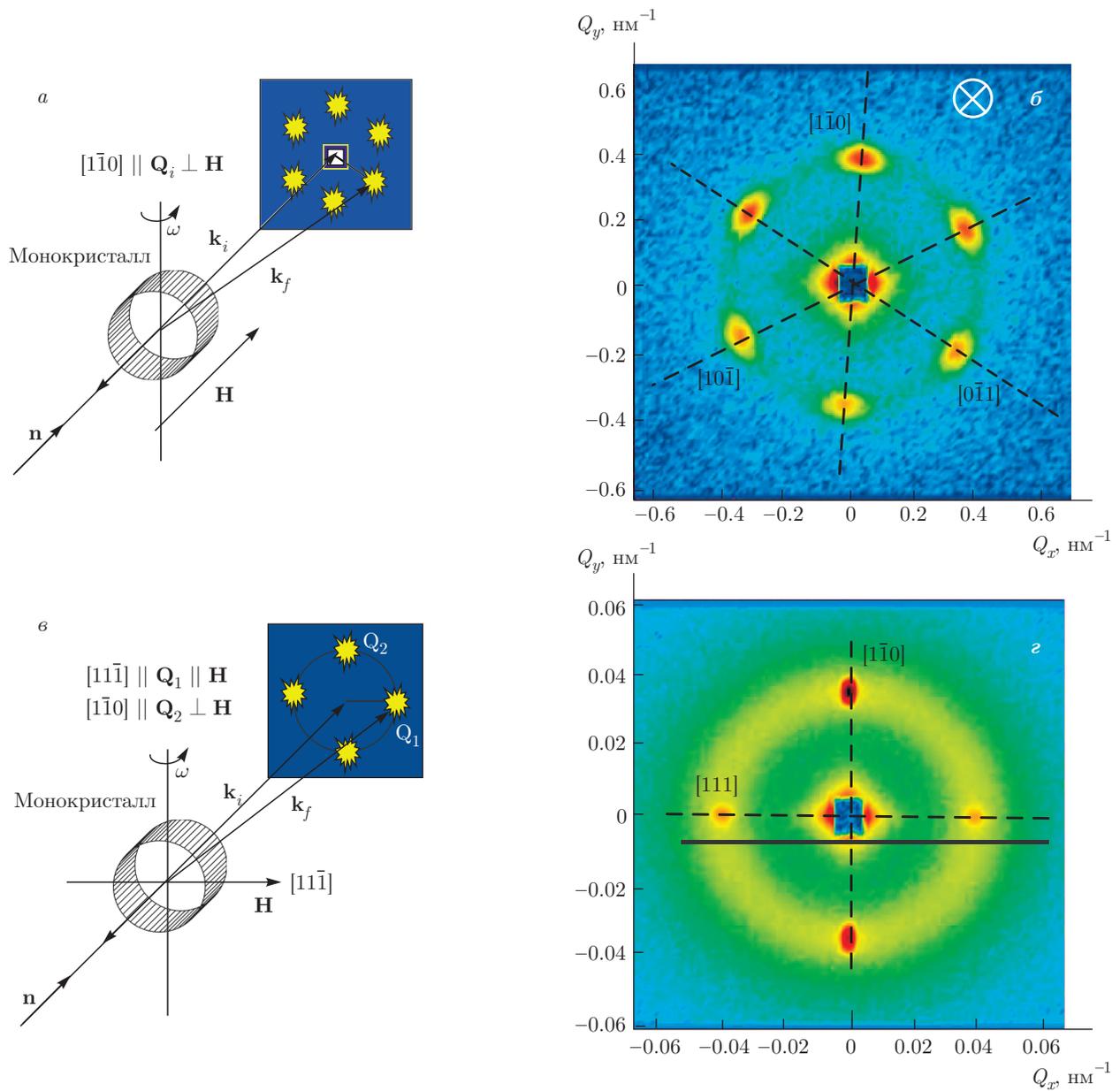


Рис. 1. (В цвете онлайн) Схемы эксперимента с полем \mathbf{H} , приложенным параллельно (а) и перпендикулярно (е) нейтронному пучку \mathbf{n} , а также карты интенсивности малоуглового рассеяния для двух различных ориентаций: б — $\mathbf{H} \parallel \mathbf{n} \parallel [111]$; з — $\mathbf{H} \parallel [111] \perp \mathbf{n}$ при $T = 28.5$ К и $H = 0.16$ Тл

сагональная картина, свойственная скирмионной решетке, хорошо видна в геометрии, когда $\mathbf{H} \parallel \mathbf{n}$ (\mathbf{n} — единичный вектор вдоль оси пучка нейтронов) и $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$. Типичный пример такой картины рассеяния показан на (рис. 1б). В работах [7, 9] 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 обычно прикладывается магнитное поле \mathbf{H} , перпендикулярное нейтронному пучку [3, 4]. Эта геометрия имеет некоторое преимущество, потому что оба пика с векторами рассеяния $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (коническая фаза) и $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ (скирмионная решетка) могут быть одновременно зарегистрированы позиционно-чувствительным детектором (рис. 1е). Пример

картины рассеяния, когда дифракционные пики с $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ и с $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ могут одновременно наблюдаться, показан на рис. 1з.

Эксперименты по малоугловой нейтронной дифракции были проведены в геометрии, показанной на рис. 1в,з, на установке по малоугловому рассеянию нейтронов D22 (ИЛЛ, Гренобль, Франция). Длина волны падающего пучка нейтронов $\lambda = 0.6$ нм ($\Delta\lambda/\lambda = 10\%$). Для исследования был выбран монокристалл MnSi, использовавшийся ранее [4]. Образец имеет форму диска толщиной 1.0 мм и диаметром 15 мм. Ось $[11\bar{1}]$ структуры типа B20 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 при значении магнитного поля 0.16 Тл, приложенного вдоль оси $[11\bar{1}]$.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

На рис. 2 представлены карты рассеяния, демонстрирующие температурную эволюцию магнитной структуры MnSi в области фазового перехода. В парамагнитной области ($T > 32$ К) наблюдается только след прямого пучка нейтронов (рис. 2а) в центре детектора. При понижении температуры появляется кольцо интенсивности рассеяния, что характерно для критических флуктуаций спиральной структуры со случайно ориентированным волновым вектором \mathbf{k}_f . При температуре $T \approx 31.0$ К возникают два пятна на левой и правой сторонах кольца (рис. 2б). Волновой вектор $\pm\mathbf{k}_c$ возникающей структуры параллелен приложенному магнитному полю, что говорит о том, что она должна быть идентифицирована как коническая спиновая структура. Эти два пика становятся интенсивнее при дальнейшем понижении температуры. Кроме того, еще два брэгговских пика формируются на верхней и нижней сторонах кольца при $T \approx 28.8$ К (рис. 2в). Появившиеся пятна приписываются скирмионной решетке как два пика из шести, которые могут быть видны в этой экспериментальной геометрии. Интенсивность пиков с $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$ резко растет при $T = T_c = 29.0$ К, будучи гораздо больше, чем у двух других пятен с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$ (рис. 2г). Из этого делается вывод, что объем фазы скирмионной решетки значительно превосходит объем конической фазы в диапазоне температур от T_c до $T = 28$ К (рис. 2д,е). При температурах ниже $T \approx 28$ К объем конической фазы становится гораздо значительней и фаза скирмионной решетки

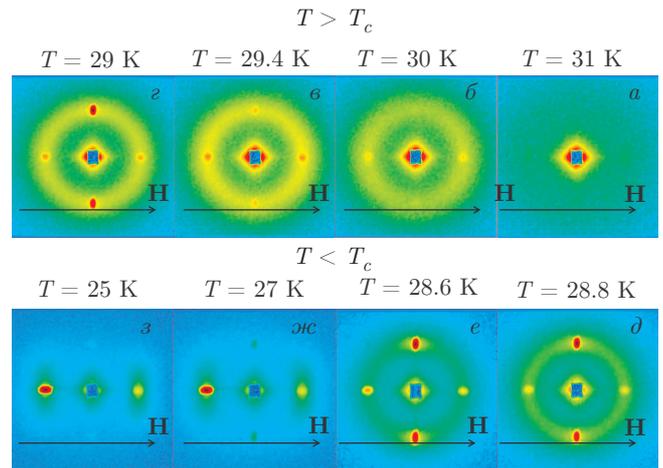


Рис. 2. (В цвете онлайн) Карты интенсивности рассеяния, показывающие температурную эволюцию магнитной системы MnSi при ориентации поля $\mathbf{H} \parallel [11\bar{1}] \perp \mathbf{n}$ величиной 0.16 Тл

почти исчезает. Тем не менее два пика с $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$ еще видны при $T = 27$ К и $T = 25$ К (рис. 2жс,з).

4. АНАЛИЗ ДАННЫХ

Для анализа наблюдаемых картин рассеяния построим радиальные профили интенсивности рассеяния $I(Q)$ в направлениях $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (рис. 3), $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ (рис. 4) и при векторе \mathbf{Q} , направленном под углом 45° по отношению к \mathbf{H} (рис. 5). Для большей наглядности изменений, происходящих в исследуемой системе при изменении температуры в случае $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, профиль $I(Q)$ был построен для $T < T_c$ (рис. 3а) и $T_c < T$ (рис. 3б). Форма кривой зависимости $I(Q)$ может быть описана с помощью суммы двух функций: Лоренца и Гаусса. Экспериментальные данные лучше описываются, если допустить, что центры пиков не совпадают. Описывая профиль $I(Q)$ двухмодовой моделью, мы предполагаем, что с конической структурой (узкий гауссов пик) сосуществуют флуктуации спирали (широкий лоренцев пик). Ниже T_c вклад конической структуры явно доминирует над вкладом флуктуаций спирали (рис. 3а), в то время как выше T_c они сопоставимы (рис. 3б).

В случае $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ профиль $I(Q)$ хорошо описывается двухпиковой моделью при $T < 30.0$ К и однопиковой лоренцевой моделью выше этой температуры (рис. 4). Пик, описываемый функцией Гаусса, говорит о наличии скирмионной решетки, а пик, описываемый функцией Лоренца, обусловлен рассе-

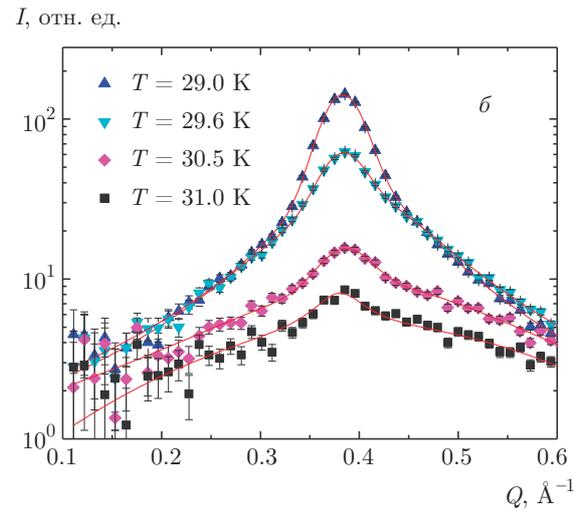
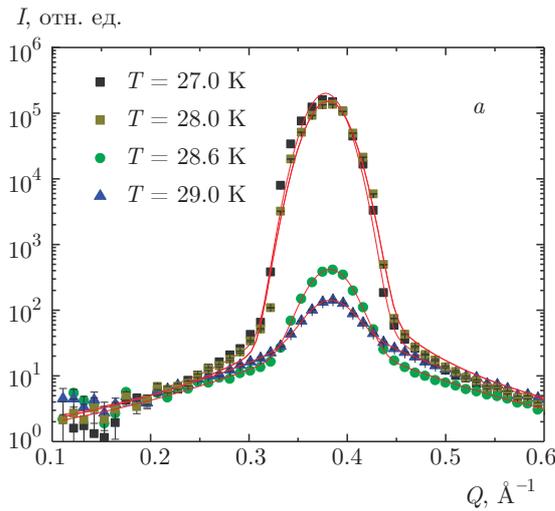


Рис. 3. (В цвете онлайн) Зависимости интенсивности рассеяния от Q для ориентации $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ при $T < T_c$ (a) и $T_c < T$ (б) и $H = 0.16$ Тл

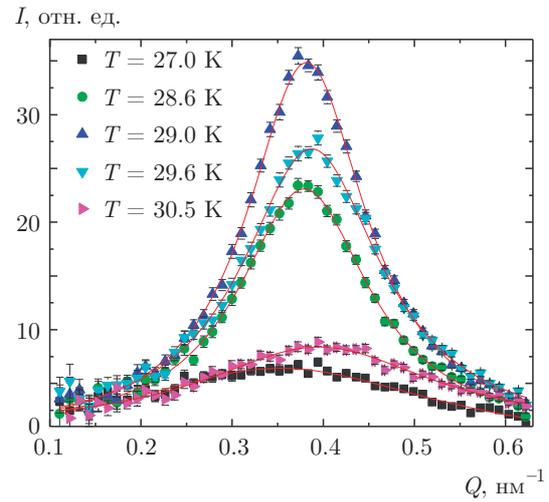
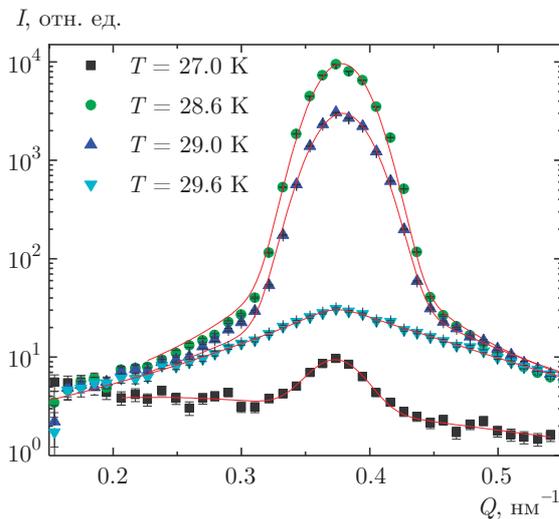


Рис. 4. (В цвете онлайн) Зависимости интенсивности рассеяния от Q для ориентации $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ при $H = 0.16$ Тл

Рис. 5. (В цвете онлайн) Зависимости интенсивности рассеяния от Q для случая, когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к полю, при $H = 0.16$ Тл

янием на флуктуациях спирали. Только критические флуктуации спирали дают вклад в рассеяние при $T > 30.0$ К. Интересно отметить, что гауссов вклад, приписываемый скирмионной решетке, может наблюдаться до температуры 25 К, хотя его интенсивность мала при $T < 28$ К.

Зависимость интенсивности рассеяния от Q в случае, когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к полю, хорошо описывается одной функцией Лоренца во всем диапазоне температур как выше, так и ниже T_c (рис. 5).

Из анализа профиля $I(Q)$ с случае $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ получены интенсивность I_0 , ширина κ_c и положение k_c пика, относящиеся к конической структуре, и те же величины (κ_f, k_f), относящиеся к флуктуациям спирали. Аналогичные шесть параметров были извлечены из зависимости $I(Q)$ для $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$. Еще три параметра определены из описания пика интенсивности $I(Q)$ при направлении \mathbf{Q} под углом 45° к полю. Рисунок 6 демонстрирует температурные зависимости положений k пика: для конической структуры, $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$, для скирмионной решетки, $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$, и для критических флуктуаций с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$, $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$

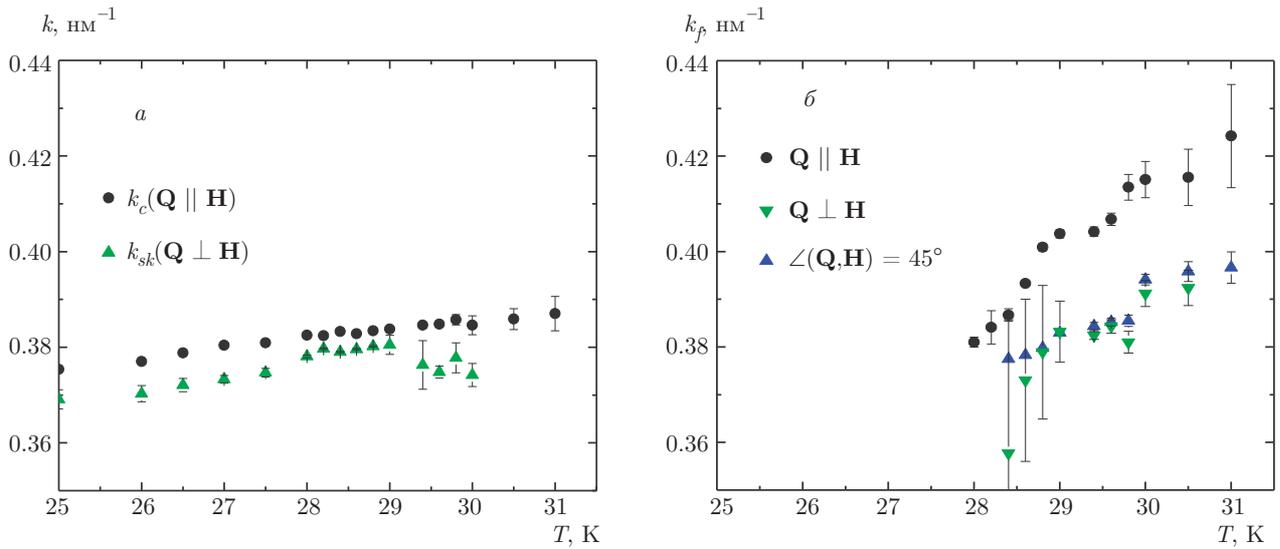


Рис. 6. Температурные зависимости позиций пика: *a* — k_c для конической структуры ($\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$) и k_{sk} для скирмионной решетки ($\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$); *b* — k_f для критических флуктуаций при $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к \mathbf{H} . Две линии на рисунке (*b*) дублируют данные для k_c и k_{sk} с верхней части рис. (*a*)

при направлении вектора \mathbf{Q} под углом 45° к полю. Рисунок 7 показывает ширины всех упомянутых выше пиков для двух структур и для критических флуктуаций в трех разных направлениях. Рассеяние на критических флуктуациях не обнаружено при $T < 28$ К, что совпадает с результатами работы [4].

На рис. 6*a* видно, что позиции структурных пиков слабо меняются с температурой (на 1–2 %) выше и ниже T_c , а величина волнового вектора k_{sk} скирмионной решетки немного меньше (на 1.5 %), чем величина k_c для конической фазы. Тот факт, что волновой вектор скирмионной решетки практически совпадает с волновым вектором конической структуры, $|k_{sk}| \simeq |k_c|$, был приведен в более ранних работах [3, 4]. Это наблюдение согласуется также с тем, что обнаружено в тонких пленках [17–19]. Поскольку волновой вектор k является простым соотношением взаимодействия ДМ и ферромагнитного обменного взаимодействия [20, 21], можно предположить, опираясь на полученные данные, что волновой вектор скирмионной решетки определяется тем же соотношением между двумя взаимодействиями. Другими словами, скирмионная решетка имеет ту же природу и обусловлена той же иерархией взаимодействий, что и простая спираль при низких температурах или слабых полях (см. работу [9] для подробностей).

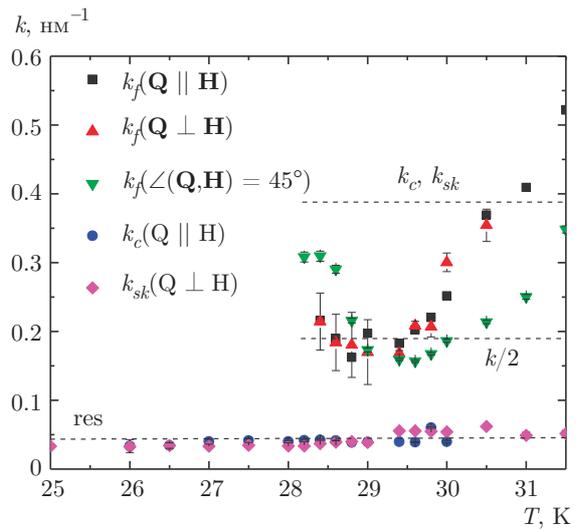


Рис. 7. (В цвете онлайн) Температурные зависимости ширины κ_f пика для критических флуктуаций при $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и в случае, когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к \mathbf{H} . То же для пиков конической структуры, κ_c ($\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$), и скирмионной решетки, κ_{sk} , ($\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$)

Ширина κ_c пика конической структуры и ширина κ_{sk} пика скирмионной решетки не меняются в зависимости от температуры. Их величины определяются функцией разрешения установки ($\kappa_{sk} = \kappa_c = 0.04 \text{ nm}^{-1}$) как выше, так и ниже T_c (см. рис. 7). Учитывая разрешение установки, можно дать нижнюю оценку длины когерентности наблю-

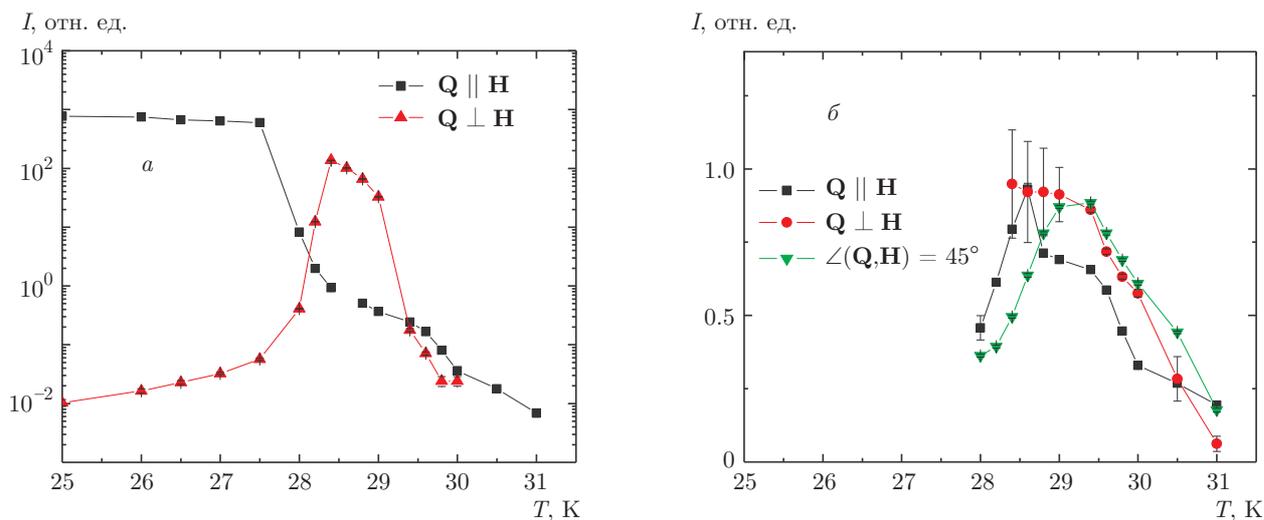


Рис. 8. Температурные зависимости интенсивности пика: *a* — для конической структуры ($\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$) и скирмионной решетки ($\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$); *б* — для критических флуктуаций при $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$, $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и в случае, когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к \mathbf{H}

даемой структуры. Скирмионная решетка и коническая структура когерентны на величину более, чем в n периодов даже при $T > T_c$, где $n = k_{sk}/\kappa_{sk} \geq 10$. Этот вывод еще раз подчеркивает, что мы не наблюдаем распада скирмионной решетки и конической структуры на отдельные квазичастицы.

В отличие от температурного поведения структурных пиков, положение пиков критических флуктуаций значительно меняется с температурой (5–10%) (см. рис. 6б). Волновой вектор k_f действительно может отличаться от волновых векторов упорядоченных в поле фаз, k_{sk} и k_c , в силу самой природы флуктуаций, которая представляет собой динамический объект. Как следует из сопоставления рис. 6 и 7, период модуляции внутри флуктуации растет с ростом ее корреляционной длины.

Положение k_f пика критических флуктуаций заметно отличается от положения k_c пика конической структуры при $T > T_c$, из чего следует, что эти два пика имеют различное происхождение. Стоит отметить, что положения k_f флуктуационных пиков совпадают для случаев $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и когда вектор \mathbf{Q} направлен под углом 45° к полю и различаются для $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ (см. рис. 6б). Кроме того, пики k_f для $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и для случая, когда $\angle(\mathbf{Q}, \mathbf{H}) = 45^\circ$, располагаются очень близко к значениям k_c и k_{sk} в интервале температур $T = 28\text{--}30$ К, т. е. в диапазоне существования скирмионной решетки. Это можно рассматривать как указание на тесную связь между критическими флуктуациями при $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ и скирмионной решеткой.

Как показано на рис. 7, ширины κ_c пиков конической фазы и κ_{sk} скирмионной решетки определяются разрешением установки, а следовательно, не зависят от температуры. Ширина пика критических флуктуаций заметно меняется с температурой. Важно отметить, что ширины κ_f для $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ и $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ совпадают, в то время как они отличаются от κ_f для $\angle(\mathbf{Q}, \mathbf{H}) = 45^\circ$ (см. рис. 7). Все три зависимости дают минимальное значение, которое равно 0.15 nm^{-1} при температуре $T_{min} = 29.0 \pm 0.3$ К. Температурная зависимость для $\mathbf{Q} \parallel \mathbf{H}$ и $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ пересекает линию $\kappa_f = k$ при температуре $T \approx 31$ К, т. е. при температуре, при которой появляется коническая фаза. Кроме того, она пересекает линию $\kappa_f = k/2$ при температуре $T \approx 30$ К, т. е. при температуре, при которой появляется скирмионная решетка. Ширина κ_f пика критических флуктуаций для $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$ близка к половине значения k_{sk} в интервале температур $T = 28\text{--}30$ К, т. е. в диапазоне существования скирмионной решетки. Это можно рассматривать как еще одно доказательство тесной связи между критическими флуктуациями и конической структурой или скирмионной решеткой. Флуктуации полностью исчезают ниже $T = 28$ К вместе с доминирующей скирмионной решеткой.

Интенсивности для пиков конической структуры, скирмионной решетки и критических флуктуаций приведены на рис. 8. Представленные интенсивности не являются «истинными» интегральными интенсивностями магнитных пиков (рис. 8а), так как условия Брэгга выполнены лишь примерно. Протокол измерений не предполагал измерения

кривых качания для каждого пика при всех температурах. Тем не менее хорошо видно на рис. 2 и 8, что пик интенсивности для конической структуры появляется при $T = 31.0$ К, в то время как пик скирмионной решетки не виден до температурной точки $T = 30.0$ К. Затем интенсивность пика скирмионной решетки растет и значительно превышает интенсивность пика конической структуры в диапазоне от 29.0 до 28.2 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. 8б). Интенсивность пика скирмионной решетки резко убывает при $T = 28$ К, а коническая фаза возникает скачком, в то время как критические флуктуации исчезают во всех направлениях.

Таким образом, можно заключить, что критические флуктуации сосуществуют со скирмионной решеткой в интервале температур $T = 28\text{--}30$ К и, вероятно, обеспечивают их стабильность. Важной особенностью этих флуктуаций является их длина когерентности $\xi = 2\pi/\kappa \approx 35$ нм, которая достигает двух периодов спиральной структуры. При температуре выше 30 К длина когерентности ξ становится меньше и скирмионная решетка исчезает. Стоит отметить, что возможные эффекты размагничивания не могут влиять на сделанные выводы, так как они основаны не на относительном количестве различных фаз, которые отражены в температурной зависимости интенсивности, а на соотношении значительного числа параметров (волновой вектор, ширина пика), которые не зависят от количества фазы при определенной температуре.

При убывании температуры ниже $T = 28$ К наблюдается сильный пик конической структуры и очень слабый, но хорошо заметный пик скирмионной решетки. Как было показано в работе [9], пик скирмионной решетки, продемонстрированный выше на рис. 2, является проекцией однородного кольца интенсивности в Q -пространстве в плоскости детектора. Это кольцо интенсивности мы приписываем «каплям» скирмионной решетки, в которых трансляционный порядок фиксирован, но ориентационный порядок полностью потерян. Мы определяем эти капли микронного размера как не стабильные, а флуктуирующие области скирмионной решетки. Можно проследить температурную эволюцию интенсивности этого кольца от низкой температуры до 28 К, где скирмионная решетка преобладает над другими фазами. Следует подчеркнуть, что никакого распада скирмионной решетки на отдель-

ные скирмионы или на кластеры не наблюдалось, а интенсивность пика уменьшалась с понижением температуры, показывая, что число капель уменьшается. Можно предположить, что эти капли скирмионной решетки стабилизируются на поверхности образца [25].

5. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Описанный выше эксперимент должен быть рассмотрен в контексте предыдущих исследований фазового перехода в MnSi, выполненных в нулевом магнитном поле. Можно сформулировать два разных подхода к проблеме. Один из подходов предполагает, что три различные магнитные фазы сменяют друг друга при изменении температуры в нулевом поле [27–29]. Так, авторы работ [28, 29] предположили, что парамагнитная высокотемпературная фаза превращается в скирмионную флуктуирующую фазу, сменяющуюся простой спиралью в области температуры упорядочения. Второй подход основан на переходе от однородных температурных флуктуаций спирали в спиральную структуру [26, 30–32]. Взаимосвязь двух характерных масштабов длины — периода d_s спирали и корреляционной длины ξ критических флуктуаций — приводит к разнообразию магнитных свойств в системе при понижении температуры. Концепция, предложенная в работе [26] и развитая в работах [30–32], рассматривает короткие корреляции при высокой температуре ($\xi \ll d_s$). Этот диапазон высоких температур может быть хорошо описан флуктуациями ферромагнитного типа, когда взаимодействием ДМ можно пренебречь. Когда длина корреляции ξ приближается к значению d_s , ферромагнитное описание флуктуаций спирали более не применимо. Взаимодействие ДМ становится существенным, и полноценные флуктуации спирали могут быть реализованы, когда ξ становится больше, чем d_s . Переход от ферромагнитного типа к спиральному типу флуктуаций происходит при $T_{DM} = 31.0$ К, когда $\xi \approx d_s$. Магнитная система претерпевает переход в устойчивую спираль при $T_c = 29$ К. Переход должен быть второго рода, если учесть анизотропию флуктуаций [30].

Этот подход был развит в работе [32] с предположением о том, что сильное взаимодействие между флуктуациями меняет тип перехода на переход первого рода. Режим взаимодействующих флуктуаций определяется в интервале от T_c до $T^* = 30.0$ К, что не допускает расходимости корреляционной длины при T_c . Два температурных кроссовера, при T_{DM} и T^* , и сам переход при T_c хорошо видны на температурной зависимости восприимчивости χ при ма-

лых полях порядка 10 мТл [31, 32]. В эксперименте по рассеянию поляризованных нейтронов температура T^* определяется как температура, при которой спиральные флуктуации становятся киральными на 100 %. В последнее время эта температура также трактуется как точка перехода в фазу спиновой жидкости [33].

С приложением магнитного поля в MnSi наблюдаются три магнитных состояния: 1) критические спиновые флуктуации со случайным ориентированием вектора \mathbf{Q} с максимумом в интенсивности рассеяния при $Q = k_f$; 2) коническая фаза с $\mathbf{k}_c \parallel \mathbf{H}$; 3) гексагональная структура скирмионной решетки с $\mathbf{k}_{sk} \perp \mathbf{H}$. Скирмионная решетка и коническая фаза сосуществуют и конкурируют друг с другом. Они сменяют друг друга при понижении температуры: в диапазоне от $T_{DM} = 31.0$ К до $T^* = 30.0$ К наблюдается только коническая фаза на фоне критических флуктуаций; в диапазоне от T^* до T_c на фоне критических флуктуаций обнаружены как скирмионная решетка, так и коническая фаза; в интервале от T_c до $T_A = 28.2$ К скирмионная решетка доминирует над конической фазой, в то время как критические флуктуации остаются еще видимыми; ниже T_A устанавливается коническая фаза, хотя капли скирмионной решетки видны без каких-либо критических флуктуаций. Вероятно, скирмионная решетка локализована на поверхности образца.

Две структуры, коническая структура и скирмионная решетка, не связаны друг с другом в том смысле, что рассеяние происходит от двух разных объектов: один из них (коническая структура) появляется при T_{DM} , а другой (скирмионная решетка) становится видимым при T^* . Кроме того, температурные зависимости интенсивности нейтронного рассеяния от этих двух объектов не скоррелированы.

Следовательно, можно сделать вывод о том, что критические флуктуации непосредственно не коррелируют ни с одной из упорядоченных фаз, поскольку $k_c \cong k_{sk} \neq k_f$, за исключением направления $\mathbf{Q} \perp \mathbf{H}$, где волновой вектор скирмионной решетки и флуктуации равны в пределах ошибки. Очевидно, что корреляционная длина флуктуаций, $\xi = \kappa^{-1}$, определяет свойства магнитной системы в окрестности T_c . Таким образом, мы установили, что коническая фаза появляется при T_{DM} , где корреляционная длина флуктуаций сравнима с периодом структуры, $\xi \approx d_s$. Также установлено, что скирмионная решетка формируется при T^* , где корреляционная длина равна двум периодам структуры, $\xi \approx 2d_s$.

Эти две температурные точки, T_{DM} и T^* , хорошо различимы на температурной зависимости восприимчивости. Температура T_{DM} определяется как точка, при которой размер флуктуации равен одному периоду спирали. Нетрудно показать, что характер взаимодействия флуктуаций с магнитным полем в этой точке резко меняется. Если корреляционная длина меньше периода спирали ($T > T_{DM}$), то такие флуктуации имеют нескомпенсированный магнитный момент, который взаимодействует с полем, направляющим этот момент вдоль магнитного поля. Этот «ферромагнитный» тип взаимодействия не может привести к появлению конической фазы. Напротив, если корреляционная длина больше периода спирали ($T < T_{DM}$), то поле деформирует плоскую спираль в коническую, направляя ось конуса вдоль поля. Это взаимодействие типично для спиральной структуры, и энергия для образования конуса берется из взаимодействия спиновой компоненты, параллельной оси конуса и магнитному полю. Именно это и наблюдается в описанном выше эксперименте.

Температура T^* определяется как точка, при которой размер флуктуации равен двум периодам спирали. Отметим, что скирмионная решетка формируется в температурном диапазоне как выше, так и ниже T_c , где размер флуктуации достигает или превышает два ее периода. Поэтому чтобы объяснить образование скирмионной решетки вместо конической структуры, необходимо учесть две чисто геометрические особенности или два условия, налагающиеся на спиральные флуктуации. Первое условие — их корреляционная длина должна быть в два раза больше периода спиновой модуляции. Это совершенно необходимо для формирования элементарной единицы скирмионной решетки. Второе условие — волновой вектор флуктуаций должен быть изотропно (произвольно) направлен. Среди всех возможных направлений волнового вектора всегда найдутся и те, которые перпендикулярны полю. Именно они способствуют формированию скирмионной решетки. Таким образом, сочетание двух геометрических особенностей, присущих спиральным флуктуациям, приводит к формированию скирмионной решетки. Следует заметить, что флуктуация играет роль дефекта и аналогична роли поверхности, стабилизирующей скирмионную решетку, как было показано в работах [22–25]. Замечательной особенностью флуктуаций, в отличие от поверхности, является их распределение по всему объему образца, что, видимо, и приводит к объемному образованию скирмионной решетки.

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Нами проведен эксперимент по малоугловому рассеянию нейтронов в геометрии, позволяющей одновременно наблюдать три разных объекта — критические флуктуации спирали, коническую структуру и скирмионную решетку — и их эволюцию с изменением температуры. Эксперимент показал, что коническая структура и скирмионная решетка появляются при $T > T_c$. Их существование обусловлено только характерным размером ξ флуктуаций спирали. Формирование скирмионной решетки в диапазоне $28 \text{ K} < T < 30 \text{ K}$, вероятно, определяется наличием флуктуаций спирали размером, в два раза большим периода спирали, $\xi \geq 2d_s$. Другая важная геометрическая особенность этих флуктуаций — их изотропный характер, который позволяет волновому вектору быть направленным перпендикулярно оси поля, что вызывает формирование скирмионной решетки. Эти геометрические особенности указывают на флуктуации спирали как на дефекты, нарушающие коническую структуру и стабилизирующие скирмионную решетку. Эти результаты могут пролить свет на сходство геометрического фактора стабилизации для скирмионной решетки в объемных материалах при температурах, близких к T_c , а также в тонких пленках при низких температурах. Это обсуждение показывает роль критических флуктуаций как дефектов, которые приводят к тому, что энергия скирмионной фазы ниже, чем энергия конической решетки.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта № 17-52-50013.

ЛИТЕРАТУРА

1. K. Ishimoto, H. Yamaguchi, Y. Yamaguchi et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **90–91**, 163 (1990).
2. K. Ishimoto, Y. Yamaguchi, J. Suzuki et al., *Physica B* **213–214**, 381 (1995).
3. B. Lebech, P. Harris, J. Skov Pedersen et al., *J. Magn. Magn. Mater.* **140**, 119 (1995).
4. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al., *Phys. Rev. B* **73**, 224440 (2006).
5. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, V. A. Dyadkin et al., *Phys. Rev. B* **76**, 092407 (2007).
6. S. V. Grigoriev, V. A. Dyadkin, Yu. O. Chetverikov et al., *Phys. Rev. B* **76**, 224424 (2007).
7. S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz et al., *Science* **323**, 915 (2009).
8. T. Adams, S. Muhlbauer, C. Pfleiderer et al., *Phys. Rev. Lett.* **107**, 217206 (2011).
9. S. V. Grigoriev, N. Potapova, V. A. Dyadkin et al., *Письма в ЖЭТФ* **100**, 238 (2014).
10. C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 164207 (2010).
11. A. Neubauer, C. Pfleiderer, B. Binz et al., *Phys. Rev. Lett.* **102**, 186602 (2009).
12. W. Muenzer, A. Neubauer, T. Adams et al., *Phys. Rev. B* **81**, 041203 (2010).
13. E. Moskvin, S. Grigoriev, V. Dyadkin et al., *Phys. Rev. Lett.* **110**, 077207 (2013).
14. T. Adams, A. Chacon, M. Wagner et al., *Phys. Rev. Lett.* **108**, 237204 (2012).
15. J. S. White, I. Levatic, A. A. Omrani et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **24**, 432201 (2012).
16. Y. Tokunaga, X. Z. Yu, J. S. White, H. M. Rinnow et al., *Nature Comm.* **6**, 7638 (2015).
17. X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa et al., *Nature* **465**, 901 (2010).
18. X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose et al., *Nature Mater.* **10**, 106 (2011).
19. A. Tonomura, X. Yu, K. Yanagisawa, T. Matsuda et al., *Nano Lett.* **12**, 1673 (2012).
20. P. Bak and M. H. Jensen, *J. Phys. C* **13**, L881 (1980).
21. O. Nakanishi, A. Yanase, A. Hasegawa, and M. Kataoka, *Sol. St. Comm.* **35**, 995 (1980).
22. F. N. Rybakov, A. B. Borisov, and A. N. Bogdanov, *Phys. Rev. B* **87**, 94424 (2013).
23. M. N. Wilson, A. B. Butenko, A. N. Bogdanov, and T. L. Monchesky, *Phys. Rev. B* **89**, 094411 (2014).
24. S. A. Meynell, M. N. Wilson, J. C. Loudon et al., *Phys. Rev. B* **90**, 224419 (2014).
25. F. N. Rybakov, A. B. Borisov, S. Blugel, and N. S. Kiselev, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 11720 (2015).
26. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, A. I. Okorokov et al., *Phys. Rev. B* **72**, 134420 (2005).
27. U. K. Rössler, A. N. Bogdanov, and C. Pfleiderer, *Nature* **442**, 797 (2006).

28. C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Falus et al., Phys. Rev. Lett. **102**, 197202 (2009).
29. C. Pappas, E. Lelièvre-Berna, P. Bentley et al., Phys. Rev. B **83**, 224405 (2011).
30. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, E. V. Moskvin et al., Phys. Rev. B **81**, 144413 (2010).
31. S. V. Grigoriev, E. V. Moskvin, V. A. Dyadkin et al., Phys. Rev. B **83**, 224411 (2011).
32. M. Janoschek, M. Garst, A. Bauer et al., Phys. Rev. B **87**, 134407 (2013).
33. S. V. Demishev, I. I. Lobanova, A. V. Bogach et al., Письма в ЖЭТФ **103**, 365 (2016).