

**Lorentz-  
Transmissionselektronenmikroskopie und  
Differentielle Phasenkontrastmikroskopie an  
magnetischen Skyrmionen**



**Dissertation**

zur Erlangung des  
Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
der Fakultät für Physik der  
Universität Regensburg

vorgelegt von  
Johannes Wild  
aus Oberviechtach

im Jahr 2017

Promotionsgesuch eingereicht am: 8.5.2017

Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Josef Zweck

Prüfungsausschuss:

Vorsitzender:	Prof. Dr. Vladimir Braun
1. Gutachter:	Prof. Dr. Josef Zweck
2. Gutachter:	PD. Dr. Tobias Korn
Weiterer Gutachter:	Prof. Dr. Christoph Strunk

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Magnetismus</b>	<b>5</b>
2.1	Mikromagnetismus . . . . .	5
2.1.1	Austauschenergie . . . . .	6
2.1.2	Zeemann-Energie . . . . .	7
2.1.3	Anisotropieenergie . . . . .	7
2.1.4	Streifeldenergie . . . . .	8
2.1.5	Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung . . . . .	8
2.2	Spintexturen in nicht-inversionssymmetrischen chiralen Magneten . .	9
2.2.1	Phasendiagramm . . . . .	10
2.2.2	Helikale Phase . . . . .	12
2.2.3	Konische Phase . . . . .	13
2.2.4	Skyrmionen . . . . .	14
<b>3</b>	<b>Magnetische Transmissionselektronenmikroskopie</b>	<b>17</b>
3.1	Transmissionselektronenmikroskop . . . . .	17
3.1.1	Strahlformender Teil . . . . .	18
3.1.2	Abbildender Teil . . . . .	19
3.1.3	Betriebsmodi eines TEM . . . . .	20
3.2	Lorentz-TEM-Modus . . . . .	21
3.3	Intensitätstransportgleichung . . . . .	27
3.4	Differentielle Phasenkontrastmikroskopie . . . . .	29
3.5	Probenpräparation für Bulk-Proben . . . . .	35
3.6	Kontrollierte Magnetfelder im TEM . . . . .	35
3.7	Messaufbau . . . . .	37
<b>4</b>	<b>Helimagnetismus in einer Heuslerschen Legierung</b>	<b>39</b>
4.1	Bulk-Messungen . . . . .	40
4.2	Probe . . . . .	40
4.3	Helikale Phase . . . . .	41
4.4	Punktförmige Kontraste . . . . .	43
4.5	Zusammenfassung . . . . .	46

<b>5</b>	<b>Skymionengitterkorngrenzen in <math>\text{Cu}_2\text{OSeO}_3</math></b>	<b>47</b>
5.1	Probe . . . . .	48
5.2	Thermisch induzierte Skymionenbewegung . . . . .	51
5.3	Datenauswertung . . . . .	52
5.4	5-7 Defekte . . . . .	54
5.5	Korngrenzen in Skymionengittern . . . . .	57
5.6	Zusammenfassung . . . . .	66
<b>6</b>	<b>Zerfall von Skymionen in <math>\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}</math></b>	<b>67</b>
6.1	Theorie . . . . .	68
6.2	Probe . . . . .	72
6.3	Phasendiagramme . . . . .	73
6.4	Zerfall metastabiler Skymionen . . . . .	76
6.5	Zerfallszeiten . . . . .	81
6.6	Arrhenius-Gesetz . . . . .	83
6.7	Zusammenfassung . . . . .	86
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>89</b>
	<b>Anhang</b>	<b>102</b>

## Symbole und Notationen

Notation	Beschreibung
$a_L$	atomare Gitterkonstante
$a_{\text{SkX}}$	Skyrmionengitterabstand
$\beta$	Strahlablenkwinkel DPC-Modus
$B_{\text{ext}}$	externe magnetische Induktion
$\Delta E(B)$	Energiebarriere beim Zerfall eines Skyrmions
$\Delta f$	Defokus der Abbildung
$\Delta I_{3-9}, \Delta I_{12-6}$	Intensitäts-Differenzen von gegenüberliegenden DPC-Detektor-Segmenten
$\Delta S(B)$	Entropiedifferenz
$E_{\text{An}}(\mathbf{M})$	Anisotropieenergie
$E_{\text{D}}(\mathbf{M})$	Streufeldenergie
$E_{\text{DMI}}(\mathbf{M})$	Dzyaloshinskii-Moriya-Energie
$E_{\text{Ex}}(\mathbf{M})$	Austauschenergie
$E_{\text{ges}}(\mathbf{M})$	Gesamtenergie in einem chiralen Ferromagneten
$E_{\text{Z}}(\mathbf{M})$	Zeemann-Energie
$\varphi(x, y)$	Phase der Elektronenwelle am Ort $(x, y)$
$F(T, B)$	freie Energie
$\mathbf{H}_{\text{d}}$	Streufeld
$\mathbf{H}_{\text{ex}}$	externes Magnetfeld
$I_3, I_6, I_9, I_{12}$	registrierte Intensitäten der DPC-Detektorsegmente
$I_{\text{AMP}}$	Amplitude des DPC-Signals
$I_L/I_0$	relative Intensität zur Auswertung der Chiral Bobbers
$I_{\text{SUM}}$	Summe der Intensitäten der vier Segmente des DPC-Detektors
$I(x, y)_{\Delta f}$	Intensität der Elektronenwelle am Ort $x, y$ mit Defokus $\Delta f$
$I(x, y, z)$	Intensität der Elektronenwelle am Ort $x, y, z$
$J_{ij}$	Austauschkonstante zwischen zwei Spins $\mathbf{S}_i$ und $\mathbf{S}_j$
$L$	Dicke der Probe
$L_C$	Kameralänge
$\lambda_e$	Wellenlänge der Elektronen
$\lambda_{\text{Helix}}$	Helixwellenlänge
$\mathbf{M}$	Magnetisierungsvektor
$M_S$	Sättigungsmagnetisierung
$\mathbf{q}$	Ausbreitungsvektor der Spinhelix
$\mathbf{S}_i$	Spinvektor
$T_C$	kritische Temperatur



# 1 Einleitung

In den frühen 1960er Jahren postulierte der britische Nuklearphysiker Tony Skyrme eine Theorie in der Neutronen und Protonen als topologische Solitonen aus Pionenfeldern hervorgehen [1–3]. Diese Theorie wurde später auf viele unterschiedliche physikalische Systeme übertragen und die solitonischen Zustände wurden allgemein *Skyrmionen* genannt. Beispiele sind unter anderem in der Teilchenphysik [4, 5], in Bose-Einstein Kondensaten [6, 7] und in Flüssigkristallen [8] zu finden. Das in letzter Zeit am aktivsten untersuchte Forschungsgebiet ist aber sicherlich der Festkörpermagnetismus, in dem bestimmte Spintexturen magnetische Skyrmionen genannt werden. Diese Skyrmionen besitzen eine wirbelartige Spintextur und können nicht kontinuierlich in eine homogene Spinanordnung transformiert werden [9]. Daher besitzen Skyrmionen eine andere Topologie als beispielsweise eine homogene Magnetisierung oder einfache Domänen und sind durch diese sog. topologische Geschütztheit besonders stabil gegen äußere Störungen.

Ab 1989 wurden Skyrmionen von Bogdanov et al. in Materialien mit Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung (engl. Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, DMI) und uniaxialer Anisotropie vorhergesagt [10, 11]. Der erste experimentelle Nachweis gelang 2009 durch Neutronenbeugung in dem kubisch kristallisiertem Material MnSi durch Mühlbauer et al. [12]. Danach sind stabile Skyrmionenphasen in weiteren Materialien wie  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$  [13, 14], FeGe [15] oder  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  [16] gefunden worden, die wie MnSi alle zur kristallinen Raumgruppe  $P2_13$  gehören. Die Abwesenheit der Inversionssymmetrie führt in solchen Materialien zum Auftreten der DMI, welche Skyrmionen deutlich unterhalb von Raumtemperatur stabilisiert. In Materialien aus anderen kristallinen Raumgruppen wie  $\text{Co}_{10-x}\text{Zn}_{10-y}\text{Mn}_{x+y}$  [17] oder in Vielschichtsystemen [18, 19] existieren Skyrmionen teilweise oberhalb von Raumtemperatur.

Skyrmionen können durch eine Vielzahl an Methoden wie beispielsweise Neutronenbeugung [12, 20], Lorentz-Transmissionselektronenmikroskopie (LTEM) [14, 15], magnetische Rasterkraftmikroskopie [21], resonante Röntgenstreuung [22] oder ferromagnetische Resonanz [23] nachgewiesen werden. LTEM-Messungen werden an dünnen Proben mit einer Dicke in der Größenordnung von 100 nm durchgeführt, während alle anderen Methoden meist auf makroskopische Bulk-Kristalle angewandt werden.

Die Realisierung eines auf Skyrmionen basierenden magnetischen Speichers könnte in Zukunft klassische Magnetspeicher wie Festplatten ersetzen. Heutige Festplatten erzielen eine hohe Speicherdichte, beinhalten aber viele komplexe und empfindliche mechanische Bauteile, die zu Ausfällen und Datenverlust führen können [24]. In Zeiten von immer schneller wachsenden Cloud-Speichern in Verbindung mit mobilen Endgeräten wird das Bedürfnis für eine neue festkörperbasierte Speichertechnologie, ohne bewegliche mechanische Elemente, mit vergleichbaren oder höheren Speicherdichten immer größer [25]. Ein potentieller neuer Kandidat dafür ist der sog. Racetrack-Speicher, wie von Parkin vorgeschlagen [26]. Dabei werden einzelne Bits in einem magnetischen Nanostreifen in Form von Domänen mit unterschiedlicher Orientierung gespeichert. Durch elektrischen Strom können die Domänen zum Lesen oder Schreiben von Informationen verschoben werden, wie bei einem Schieberegister.

Dieses Prinzip kann auf Skyrmionen übertragen werden, da diese sehr effizient an Spinströme koppeln und sich dadurch mit  $10^5$ – $10^6$  geringeren Stromdichten verschieben lassen, verglichen mit magnetischen Domänen [18, 27]. Zudem wurde gezeigt, dass einzelne Skyrmionen erzeugt und vernichtet werden können [28, 29] wodurch die Realisierung eines Racetrack-Speichers mit Skyrmionen denkbar wäre. Digitale Informationen können dann beispielsweise in dem veränderbaren Abstand zwischen einzelnen Skyrmionen gespeichert werden [18]. Eine erfolgreiche Realisierung solcher, auf Skyrmionen basierender, Racetrack-Speicher würde den Energiebedarf im Vergleich zu aktuellen Technologien drastisch senken und wäre damit optimal für mobile Endgeräte oder große Rechenzentren geeignet. In einer dreidimensionalen Anordnung der Nanostreifen wäre zudem die Speicherdichte deutlich höher als bei aktuellen Festplatten.

In dieser Arbeit werden einige Aspekte für eine erfolgreiche technologische Umsetzung eines auf Skyrmionen basierenden Racetrack-Speichers mit dem Transmissionselektronenmikroskop untersucht. Es wurde versucht in der tetragonalen Heusler-Legierung  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  spontane Skyrmionen, d.h. Skyrmionen, die ohne externes Magnetfeld stabilisiert werden, nachzuweisen. Spontane Skyrmionen sind technologisch von Vorteil, da keine Magnetfelder zusätzlich zu den Nanostreifen erzeugt werden müssen und dadurch eine dreidimensionale Anordnung viel einfacher realisiert werden kann. Es wurde zudem der Teilchencharakter von Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  untersucht und die Skyrmionenzahlerhaltung bei Umordnungsprozessen kontrolliert. Die Teilcheneigenschaft ist essentiell, da in einem Skyrmionen-basierten Speicher die Langzeitstabilität von digitalen Informationen direkt in Zusammenhang mit der zeitlichen Stabilität von einzelnen Skyrmionen steht. Zuletzt wurde untersucht, in welchen Bereichen des Phasendiagramms Skyrmionen in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  zu finden sind und wie metastabile Skyrmionen erzeugt werden können. Es wurde systematisch der Zerfall dieser metastabilen Skyrmionen untersucht und dadurch die Langzeitstabi-

---

lität bestimmt. Mit diesen Erkenntnissen kann die zeitliche Stabilität der digitalen Informationen bei der Realisierung eines Racetrack-Speichers basierend auf Skyrmionen mit metastabilen Skyrmionen abgeschätzt werden.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt aufgebaut. In Kapitel 2 und 3 werden zunächst die theoretischen und experimentellen Grundlagen diskutiert.

In Kapitel 4 wird die tetragonale Heusler-Legierung  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  auf Skyrmionen untersucht. In diesem Material sind bisher keine Skyrmionen nachgewiesen worden, Messungen an Bulk-Proben geben aber starke Anzeichen für eine spontane Skyrmionenphase in einem Temperaturbereich zwischen 130 und 160 K.

Durch den topologischen Schutz können Skyrmionen als Quasi-Teilchen interpretiert werden. In Kapitel 5 werden Messungen präsentiert, die den Grad des Teilchencharakters beim dynamischen Umordnen von Skyrmionengittern überprüfen. Dazu wurde die Dynamik von Defekten und Korngrenzen in Skyrmionengittern in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  verfolgt und mit Teilchengittern verglichen. Zudem wurden umfangreiche Simulationen durchgeführt, um Einzelprozesse genauer zu verstehen.

In Kapitel 6 wird die Stabilität der Skyrmionenphase in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  untersucht. Es wurden verschiedene Phasendiagramme aufgenommen, in denen die Skyrmionenphase, helikale Phase und konische Phase zu finden sind. Anschließend wurde untersucht, wie Skyrmionengitter in andere Phasen zerfallen und die Ergebnisse mit Simulationen verglichen. Die Zerfälle wurden systematisch für verschiedene externe Magnetfelder und Temperaturen durchgeführt, Zeitkonstanten bestimmt und mit dem Arrhenius-Gesetz verglichen.



## 2 Magnetismus

Ein ferromagnetisches Material besitzt eine Magnetisierung, die eine hysteretische Abhängigkeit von einem externen Magnetfeld  $\mathbf{H}$  aufweist. Diese Magnetisierung kann, je nach Vorgeschichte, in großen Bereichen konstant sein aber auch komplexe Domänenstrukturen auf unterschiedlichsten Längenskalen beinhalten. In einem chiralen Magneten ohne Inversionssymmetrie ist es möglich, dass bei bestimmten externen Feldern und Temperaturen teilchenartige magnetische Strukturen entstehen, welche Skyrmionen genannt werden.

Im Folgenden wird anhand der Theorie des Mikromagnetismus erklärt, welche Energien für die Entstehung von Skyrmionen entscheidend sind. Anschließend werden die verschiedenen Spintexturen in nicht-inversionssymmetrischen chiralen Magneten erläutert.

### 2.1 Mikromagnetismus

Das Verhalten von (chiralen) Ferromagneten kann im Heisenberg-Modell durch ein Gitter aus lokalisierten, dreidimensionalen Spins  $\mathbf{S}_i$  beschrieben werden. Neben dem Heisenberg-Modell können magnetische Materialien auch durch die Theorie des Mikromagnetismus beschrieben werden.

Mikromagnetismus beschreibt die Eigenschaften eines magnetischen Materials in einer Kontinuumsnäherung durch einen ortsabhängigen Magnetisierungsvektor  $\mathbf{M}$  [30]. Dieser besitzt die Länge der Sättigungsmagnetisierung  $M_S$ , die temperaturabhängig ist, aber für einfachere Rechnungen meist als konstant angenommen wird. Die Magnetisierung wird dabei im Sub-Mikrometer Bereich bestimmt, was groß genug ist um das atomare Gitter zu vernachlässigen und klein genug um Domänenwände zu beschreiben.

Im Heisenberg-Modell und in der Kontinuumsnäherung ergibt sich die magnetische Konfiguration durch die Minimierung einer Gesamtenergie [31]. Für einen chiralen Ferromagneten muss die Energie  $E_{\text{ges}}(\mathbf{M})$  minimiert werden, die aus folgenden Beiträgen besteht:

$$E_{\text{ges}}(\mathbf{M}) = E_{\text{Ex}}(\mathbf{M}) + E_Z(\mathbf{M}) + E_{\text{An}}(\mathbf{M}) + E_D(\mathbf{M}) + E_{\text{DMI}}(\mathbf{M}) \quad (2.1)$$

Dabei ist  $E_{\text{Ex}}(\mathbf{M})$  die Austauschenergie,  $E_Z(\mathbf{M})$  die Zeemann-Energie,  $E_{\text{An}}(\mathbf{M})$  die Streufeldenergie,  $E_D(\mathbf{M})$  die Anisotropieenergie und  $E_{\text{DMI}}(\mathbf{M})$  die Dzyaloshinskii-

Moriya-Energie. Im Folgenden werden die einzelnen Energiebeiträge genauer erläutert.

### 2.1.1 Austauschenergie

Die Austauschwechselwirkung beschreibt die Ausrichtung von benachbarten Spins, die in einem Ferromagneten zu einer parallelen Orientierung der Spins führt. Die Wechselwirkung kann aus den Wellenfunktionen der Elektronen benachbarter Atome und dem Pauli-Prinzip für Fermionen wie in Quelle [32] hergeleitet werden. Die Energie eines Viel-Teilchen-Systems im Heisenberg-Model lautet nach [33]

$$E_{\text{Ex}}(\mathbf{M}) = -\frac{1}{2} \sum_{i \neq j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (2.2)$$

Dabei ist  $J_{ij}$  die Austauschkonstante zwischen den Spins  $\mathbf{S}_i$  und  $\mathbf{S}_j$ . Für einen Ferromagneten gilt  $J_{ij} > 0$  und benachbarte Spins richten sich für eine minimale Austauschenergie parallel zueinander aus, wohingegen im Antiferromagneten  $J_{ij} < 0$  zu einer antiparallelen Ausrichtung führt. Abbildung 2.1 zeigt, wie sich zwei Spins  $\mathbf{S}_1, \mathbf{S}_2$  parallel mit der Austauschwechselwirkung für  $J_{12} > 0$  ausrichten.

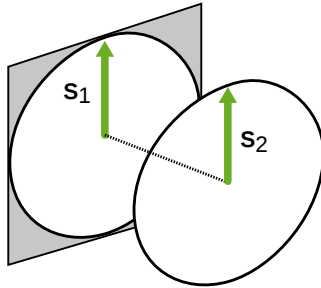


Abbildung 2.1: Parallele Ausrichtung von zwei benachbarten Spins  $\mathbf{S}_1$  und  $\mathbf{S}_2$  durch die Austauschwechselwirkung für eine Austauschkonstante  $J_{12} > 0$ . Nach [34].

In der Kontinuumsnäherung wird aus Gleichung 2.2 nach Landau und Lifschitz [30]

$$E_{\text{Ex}}(\mathbf{M}) = A \int_V (\nabla \cdot \mathbf{M} / M_S)^2 dV \quad (2.3)$$

Dabei ist  $A$  die Austauschsteifigkeit, welche von der Austauschkonstante  $J$ , dem einheitenlosen Betrag der Spins  $L$ , der Anzahl der Atome pro Einheitszelle  $z$  und dem Abstand des nächsten Nachbarn  $a$  auf folgende Weise abhängt [32].

$$A \approx \frac{JS^2 z}{a} \quad (2.4)$$

### 2.1.2 Zeemann-Energie

Die Wechselwirkung zwischen einem externen Feld  $\mathbf{H}_{\text{ex}}$  und dem magnetischen Material wird durch die Zeemann-Energie  $E_Z$  beschrieben [35]. Im Heisenberg-Modell lautet  $E_Z$

$$E_Z = -\mu_0 \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{H}_{\text{ex}} \quad (2.5)$$

Wie in Abbildung 2.2 gezeigt, ergibt sich bei einer Minimierung dieser Energie eine parallele Ausrichtung der Spins  $\mathbf{S}_i$  zum externen Feld.

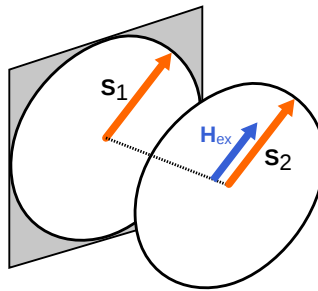


Abbildung 2.2: Einfluss eines externen Magnetfeldes  $\mathbf{H}_{\text{ex}}$  auf zwei Spins  $\mathbf{S}_1$  und  $\mathbf{S}_2$ . Die Minimierung der Zeemann-Energie ergibt eine parallele Ausrichtung der Spins mit dem Vektor des externen Magnetfelds. Nach [34].

In der Kontinuumsnäherung ergibt sich mit der Vakuumpermeabilität  $\mu_0$  für  $E_Z(\mathbf{M})$

$$E_Z(\mathbf{M}) = -\mu_0 \int_V \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}_{\text{ex}} dV \quad (2.6)$$

Diese Energie minimiert sich ebenfalls, wenn die Magnetisierung parallel zum externen Feld steht.

### 2.1.3 Anisotropieenergie

Die Anisotropieenergie beschreibt die bevorzugte Ausrichtung der Magnetisierung  $\mathbf{M}$  entlang von Richtungen oder Ebenen in magnetischen Materialien. Dieses Verhalten kommt hauptsächlich durch die Richtungsabhängigkeit der Spin-Bahn-Wechselwirkung zustande und wird durch die Kristallstruktur, Zwischenschichten, Oberflächen oder durch kristalline Verspannungen beeinflusst.

Im einfachsten uniaxialen Fall bevorzugt die Magnetisierung sich in einem monokristallinen Material entlang einer leichten Achse parallel zu  $\hat{u}$  auszurichten. Die

Anisotropieenergie lautet dann

$$E_{\text{An}}(\mathbf{M}) = K_u \int_V \left( 1 - \left( \frac{\mathbf{M}}{M_S} \cdot \hat{u} \right)^2 \right) dV \quad (2.7)$$

Dabei ist  $K_u$  die uniaxiale Anisotropiekonstante, die sich aus Materialkonstanten ergibt [36]. Für  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  ist beispielsweise die leichte Achse entlang der  $\langle 100 \rangle$ -Richtung orientiert, was zu einer bevorzugten Ausrichtung der helikalen Phase entlang dieser Richtung führt [20].

### 2.1.4 Streufeldenergie

Die Streufeld- oder Dipolenergie hängt von der Form des magnetischen Materials ab und beschreibt, welche Energie im Streufeld steckt, welches durch das Material selbst erzeugt wurde. Das Streufeld wird auch Demagnetisierungsfeld  $\mathbf{H}_d$  genannt weil es der Magnetisierung im Material entgegenwirkt. Ausgehend von der Maxwell-Gleichung  $\nabla \cdot \mathbf{B} = \nabla \cdot (\mu_0 \mathbf{H} + \mathbf{M}) = 0$  wird  $\mathbf{H}_d$  definiert als [35]

$$\nabla \cdot \mathbf{H}_d = -\nabla \cdot \frac{\mathbf{M}}{\mu_0} \quad (2.8)$$

Durch diese Formel kann man ähnlich wie in der Elektrostatik magnetische Ladungen des Streufelds berechnen. Die Energie berechnet sich zu

$$E_D(\mathbf{M}) = \int_V \mathbf{H}_d^2 dV = -\frac{1}{2} \int_{V_{\text{Probe}}} \mathbf{H}_d \cdot \mathbf{M} dV \quad (2.9)$$

Das erste Integral erstreckt sich über den gesamten Raum  $V$  und ist immer positiv, falls ein Streufeld außerhalb der Probe existiert. Beim zweiten Integral muss über das Probenvolumen  $V_{\text{Probe}}$  integriert werden, was die Energieberechnung vereinfacht. Das Streufeld  $\mathbf{H}_d$ , welches man zum Lösen des Integrals benötigt hängt stark von der Probengeometrie ab und wird für komplexere Geometrien oft durch Finite-Elemente-Methoden berechnet.

Die Minimierung der Streufeldenergie bewirkt, dass Streufelder möglichst klein werden, was in bestimmten Probengeometrien interessante magnetische Zustände erzeugt. Ein Beispiel ist der magnetische Vortex, der sich in einer dünnen ferromagnetischen Scheibe ausbildet. Details zum magnetischen Vortex werden in Kapitel 3.2 präsentiert.

### 2.1.5 Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung

Die Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung (engl. Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, DMI) ist die wichtigste Zusatzenergie im Ferromagneten, um Spintexturen wie

Skyrmionen zu beschreiben. Sie ist in Kristallen mit geringer Inversionssymmetrie und starker Spin-Bahn-Wechselwirkung zu finden [37–39]. Die Symmetriebrechung kommt entweder durch Oberflächen und Zwischenschichten (Interfacial-DMI) oder durch den Kristall selbst zustande (Bulk-DMI). Die Energie für den Bulk-DMI ist gegeben durch

$$E_{\text{DMI}}(\mathbf{M}) = -\frac{1}{2} \sum_{i \neq j} \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \quad (2.10)$$

Wie in Abbildung 2.3 gezeigt zwingt die Wechselwirkung benachbarte Spins  $\mathbf{S}_1$ ,  $\mathbf{S}_2$  zu einer rechtwinkligen Anordnung mit einer festen Chiralität. Der DMI-Vektor  $\mathbf{D}_{12}$  steht parallel zur Verbindungslinie der Gitterplätze und führt zu einer Blochwand-artigen Verdrehung der Spins.

Im Kontinuumsmodell ergibt sich für den Bulk-DMI mit der Konstante  $D_{\text{bulk}}$  eine Energie von

$$E_{\text{DMI}}(\mathbf{M}) = D_{\text{bulk}} \int_V (\mathbf{M} \cdot (\nabla \times \mathbf{M})) dV \quad (2.11)$$

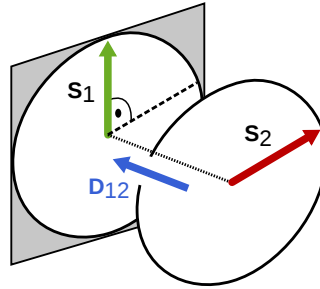


Abbildung 2.3: Einfluss der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung auf zwei benachbarte Spins. Der DMI-Vektor  $\mathbf{D}_{12}$  steht parallel zur Verbindungslinie zwischen den zwei Gitterplätzen und zwingt die beiden Spins  $\mathbf{S}_1$  und  $\mathbf{S}_2$  zu einer rechtwinkligen Anordnung mit einer festen Chiralität. Nach [34].

## 2.2 Spintexturen in nicht-inversionssymmetrischen chiralen Magneten

Die ersten Skyrmionen wurden in chiralen Magneten mit nicht-inversionssymmetrischer Kristallstruktur entdeckt [12]. Solche Materialien wie beispielsweise MnSi,

$\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ,  $\text{FeGe}$  oder  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  werden B20-Verbindungen genannt und gehören zur kristallographischen Raumgruppe  $P2_13$ . In diesen Magneten werden durch den Bulk-DMI drei wesentliche chirale Spintexturen stabilisiert, die Skyrmionenphase, helikale Phase und konische Phase genannt werden. Die Eigenschaften der einzelnen Texturen werden im Folgenden genauer erläutert.

### 2.2.1 Phasendiagramm

Das Zusammenspiel von Austausch-, Zeemann- und Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung führt zu einem Phasendiagramm, welches von Temperatur und externem Magnetfeld abhängt. Es beinhaltet verschiedene Phasen, die durch ihre Spintexturen charakterisiert sind. Im Folgenden werden Phasendiagramme einer Bulk-Probe und einer TEM-Probe erläutert, die in dieser Arbeit Bulk-Phasendiagramme und TEM-Phasendiagramme genannt werden.

Abbildung 2.4A zeigt das Phasendiagramm eines  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  Bulk-Einkristalls, das durch Neutronenbeugung und Messung der AC-Suszeptibilität sowie der spezifischen Wärme bestimmt wurde [40]. Es ist die interne magnetische Induktion  $\mu_0 H_{\text{int}}$  entlang der  $\langle 100 \rangle$ -Richtung gegen die an der Probe angelegte Temperatur angetragen. Die chiralen Spintexturen finden sich alle unterhalb einer kritischen Temperatur  $T_C \approx 45$  K. Für Temperaturen  $> T_C$  existiert für einige Kelvin ein Fluktuationsdominierter Bereich (FD), für höhere Temperaturen ist  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  paramagnetisch (PM). Unterhalb von  $T_C$  findet sich in einer kleinen Fläche bei Magnetfeldern von 2 – 6 mT und Temperaturen von 39 K –  $T_C$  die Skyrmionenphase. Die helikale Phase wurde von  $T_C$  bis zu 2 K nachgewiesen und ist mit sinkender Temperatur bei höheren Feldern bis maximal 10 mK zu beobachten. Die konische Phase befindet sich in großen Bereichen unterhalb von  $T_C$  bis hin zu einer kritischen Feldstärke. Oberhalb dieser kritischen Feldstärke sind alle Spins entlang des Feldvektors ausgerichtet und bildet in diesen Bereichen die ferromagnetische oder Feld-polarisierte Phase (FP).

Jeder Punkt in diesem Phasendiagramm wurde durch Abkühlen der Probe auf eine definierte Temperatur ohne externem Magnetfeld und anschließendem Erhöhen des Magnetfelds angefahren. Diese Methode erzeugt in erster Näherung ein thermodynamisches Phasendiagramm und wird zero-field cooling (ZFC) genannt. Wird die Probe hingegen unter einem angelegten Magnetfeld abgekühlt, ergibt sich ein anderes Phasendiagramm, das nicht mehr den thermodynamischen Gleichgewichtszustand wiedergibt. Die Methode bezeichnet man als field cooling (FC). Die beiden zugehörigen Phasendiagramme werden FC- und ZFC-Phasendiagramm genannt. Die Skyrmionenphase im FC-Fall wird bis zu sehr tiefen Temperaturen gemessen und ist unterhalb der ZFC Skyrmionenphase metastabil. Die metastabilen Skyrmionen entstehen, weil die Topologie der Skyrmionen eine Energiebarriere bildet, die beim Abkühlen mit Magnetfeld nicht überwunden werden kann. Genauere Erklärungen zu

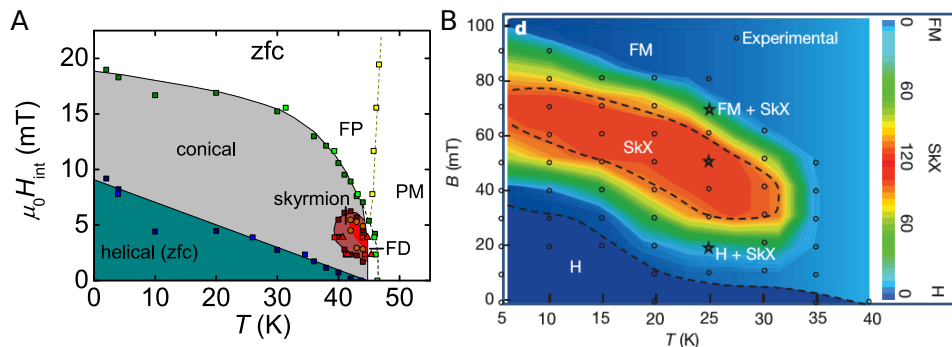


Abbildung 2.4: Phasendiagramme der chiralen Phasen in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ . A zeigt das ZFC Phasendiagramm einer Bulk-Probe das mit Hilfe von Neutronenbeugung und Messung der AC-Suszeptibilität sowie der spezifischen Wärme erstellt wurde. Die Skyrmionenphase ist in einem kleinen Bereich nahe der kritischen Temperatur  $T_C \approx 45$  K zu finden. In B ist ein Phasendiagramm einer TEM-Probe des selben Materials dargestellt. Durch die unterschiedliche Dicke stabilisieren sich Skyrmionen über große Bereiche bis hin zu tiefen Temperaturen und die kritische Temperatur wird auf  $T_C \approx 40$  K verringert. Nach [14, 40].

den Phasendiagrammen und ein erweitertes metastabiles Phasendiagramm werden in Kapitel 6 erläutert.

In Abbildung 2.4B ist das Phasendiagramm einer  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  TEM-Probe dargestellt [14]. Hier ist das externe Magnetfeld entlang der  $\langle 001 \rangle$ -Richtung gegen die Temperatur angetragen, die Feldwerte sind daher nicht mit dem internen Feld der Bulk-Probe in Abbildung 2.4A vergleichbar. Die TEM-Probe ist  $\approx 100$  nm dick und damit mehr als drei Größenordnungen dünner als typische Bulk-Proben. Die kritische Temperatur beträgt  $T_C \approx 40$  K und Skyrmionen sind in einem großen Bereich bis hin zu Temperaturen von 5 K zu finden. Die Skyrmionenphase wird wahrscheinlich zu tiefen Temperaturen hin stabilisiert weil die Probendicke kleiner oder vergleichbar der Helixwellenlänge ist und damit die konische Phase unterdrückt wird [15]. Der Grund für die Diskrepanz von  $T_C$  zwischen der TEM-Probe und dem Bulk-Kristall könnte in einem vergrößerten Fluktuations-dominierten Bereich oberhalb von  $T_C$  für die TEM-Probe liegen. Im TEM können nur Skyrmionenphase und die helikale Phase beobachtet werden, alle anderen Phasen ergeben keinen Kontrast, und können in einem Phasendiagramm nicht exakt angegeben werden.

### 2.2.2 Helikale Phase

Die Spintextur der helikalen Phase ist in Abbildung 2.5 gezeigt. Die Spins drehen sich wellenartig entlang des Ausbreitungsvektors  $\mathbf{q}$  der Spinhelix im oder gegen den Uhrzeigersinn, je nach Chiralität der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung. In einer Ebene senkrecht zu  $\mathbf{q}$  besitzen alle Spins die selbe Ausrichtung. In einer TEM-Probe liegt  $\mathbf{q}$  parallel zur Oberfläche und die Spintextur ändert sich nicht über die Probendicke. Elektronen, die durch die Probe fliegen spüren an einer Probenposition in jeder Atomlage die selbe Lorentz-Kraft. Dadurch wird die magnetische Induktion in TEM über die Probentiefe aufintegriert.

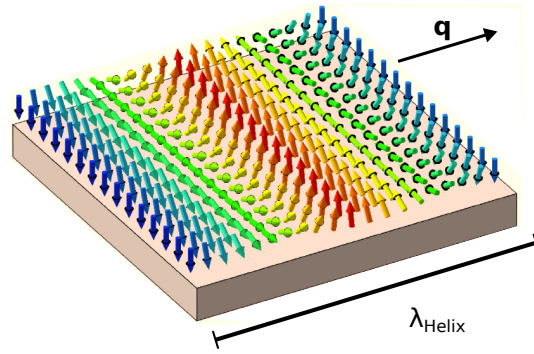


Abbildung 2.5: Die Spintextur der helikalen Phase mit dem Ausbreitungsvektor  $\mathbf{q}$  und der Helixwellenlänge  $\lambda_{\text{Helix}}$ . Über die Probendicke sind alle Spins gleich ausgerichtet. Nach [41].

Da sich die helikale Phase bei kleinen Magnetfeldern bildet, tragen hauptsächlich Austauschenergie und Dzyaloshinskii-Moriya-Energie zur helikalen Phase bei und es gilt vereinfacht  $E_{\text{ges}} = E_{\text{Ex}} + E_{\text{DMI}}$ . Das Zwischenspiel aus Austauschwechselwirkung, die versucht alle Spins parallel auszurichten, und DMI, die eine rechtwinklige Spinanordnung bevorzugt, endet in einem endlichen Drehwinkel  $\alpha$  zwischen benachbarten Spins. Der Drehwinkel  $\alpha$  kann über Energieminimierung in der Kontinuumsnäherung nach [42] berechnet werden zu

$$\alpha = \arctan\left(\frac{D_{\text{bulk}}}{J}\right) \quad (2.12)$$

Die Helixwellenlänge  $\lambda_{\text{Helix}}$  wird mit der Gitterkonstante  $a_L$  berechnet zu

$$\lambda_{\text{Helix}} = \frac{2\pi}{\arctan\left(\frac{D_{\text{bulk}}}{J}\right)} a_L \quad (2.13)$$

Für  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  ergibt sich mit  $D_{\text{bulk}}/J = 0,09$  eine Helixwellenlänge von  $\lambda_{\text{Helix}} \approx 100 \cdot a_L$  was einer Strecke von 50 nm entspricht. Für  $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$  ergibt sich  $\lambda_{\text{Helix}} \approx 90$  nm.

### 2.2.3 Konische Phase

Durch Erhöhung des externen Feldes entlang des Wellenvektors  $\mathbf{q}$  gelangt man für Temperaturen  $T \ll T_C$  von der helikalen in die konische Phase. Die Spinanordnung der konischen Phase ist in Abbildung 2.6 dargestellt und zeigt, dass sich alle Spins entlang von  $\mathbf{q}$  verdrehen und gleichzeitig in Richtung des externen Feldes  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  geneigt sind. Die Helixwellenlänge  $\lambda_{\text{Helix}}$  ist die selbe wie in der helikalen Phase. Erhöht man das Magnetfeld bis zu einer kritischen Feldstärke, richten sich alle Spin parallel zu  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  aus und man befindet sich in der ferromagnetischen Phase.

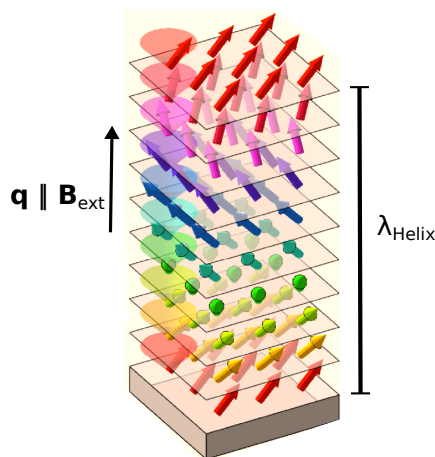


Abbildung 2.6: Die konische Phase mit Ausbreitungsvektor  $\mathbf{q}$ , welcher parallel zum externen Magnetfeld  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  steht. Alle Spins sind in Richtung von  $\mathbf{B}_{\text{ext}}$  geneigt und drehen sich gleichzeitig um  $\mathbf{q}$ . Die Helixwellenlänge  $\lambda_{\text{Helix}}$  ist identisch wie in der helikalen Phase. Nach [41].

Im TEM können die externen Magnetfelder nur parallel zur Probennormalen angelegt werden, so dass  $\mathbf{q}$  senkrecht zur Oberfläche steht. Da sich so über die Probendicke der Winkel der Spins kontinuierlich ändert erfährt der Elektronenstrahl in jeder Ebene eine Lorentzkraft in unterschiedlicher Richtung. Diese Kräfte mitteln sich in der Summe heraus und führen zu keinem magnetischen Kontrast in der helikalen Phase im TEM.

Die relevanten Energien zur Berechnung der konischen Phase sind Austausch-, Zeeman- und Dzyaloshinskii-Moriya-Energie. Durch Energieminimierung erhält man

den Kippwinkel  $\beta$  der Spins in Richtung des externen Feldvektors  $B_{\text{ext}}$  aus [34] durch

$$\cos(\beta) = \left( \frac{2JM_S B_{\text{ext}}}{D_{\text{bulk}}^2} \right) \quad (2.14)$$

Mit höherem externen Feld  $B_{\text{ext}}$  wird die Verkippung in Richtung des Feldes erhöht. Ab einem kritischen Feld richten sich alle Spins entlang des Feldes aus und erzeugen die homogene Magnetisierung der ferromagnetischen Phase.

### 2.2.4 Skyrmionen

Die bekannteste magnetische Phase in einem chiralen Magneten ohne Inversions-symmetrie ist sicherlich die Skyrmionenphase. Die Spinwirbel, die (magnetische) Skyrmionen genannt werden, finden sich in einer kleinen Tasche nahe der kritischen Temperatur  $T_C$  unter Einfluss eines externen Magnetfelds. Dabei sind wie bei der konischen Phase Austausch-, Zeemann- und Dzyaloshinskii-Moriya-Energie beteiligt. Skyrmionen ordnen sich in einem hexagonalen Gitter wie in Abbildung 2.7B gezeigt an. Eine Detailansicht eines einzelnen Skyrmions ist in Abbildung 2.7A dargestellt.

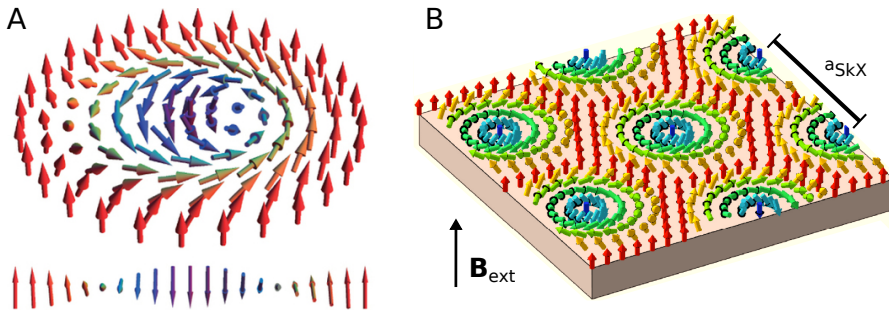


Abbildung 2.7: A zeigt die Spintextur eines einzelnen Skyrmions (oben) mit einem Querschnitt (unten). Am äußeren Rand richten sich die Spins entlang des externen Feldes  $B_{\text{ext}}$  aus. Zum Mittelpunkt hin führen die Spins eine Drehung durch, so dass die mittigen Spins entgegen dem äußeren Feld zeigen. Der Querschnitt hat dabei exakt die Form der helikalen Phase. In B ist gezeigt wie sich Skyrmionen in einem hexagonalen Gitter mit dem Gitterabstand  $a_{\text{SkX}}$  anordnen. Nach [41, 43].

Am Rand eines Skyrmions sind die Spins entlang des angelegten Feldes ausgerichtet und in der Mitte entgegengesetzt. Dazwischen führen sie eine Drehung senkrecht zur Mittelverbindungsline durch und erzeugen eine Vortex-artige Wirbel-Struktur. Der Querschnitt ergibt genau die Spinstruktur der helikalen Phase entlang des Wellenvektors wie in Abbildung 2.5 gezeigt.

Man kann Skyrmionen als Superposition von drei Helices verstehen, die gegeneinander unter einem Winkel von  $120^\circ$  verdreht sind. Neutronenmessungen bestätigen diese Anschauung, da im reziproken Raum eine sechszählige Symmetrie gemessen wird, teilweise in Abwesenheit von höheren Ordnungen [44]. Sind keine höheren Ordnungen vorhanden spricht das für eine glatte, sinusförmige Spinstruktur, ohne Gitterdefekte. Die Abstände im Skyrmionengitter können ebenfalls über die Superposition von drei Helices berechnet werden und ergeben sich zu

$$a_{\text{SkX}} = \frac{2}{\sqrt{3}} \lambda_{\text{Helix}} \quad (2.15)$$

Es existieren auch Indikatoren für den Teilchencharakter von Skyrmionen, was TEM-Messungen von Defekten in Skyrmionengittern oder vereinzelte Skyrmionen in einem konischen Hintergrund stützen [14, 45]. Vereinzelte Skyrmionen können nicht durch Superposition von drei Helices entstehen, was den Teilchencharakter stärkt und die Betrachtung von vereinzelten Skyrmionen als Quasi-Teilchen nahe legt. In dieser Arbeit sind in Kapitel 5 Messungen an Skyrmionengitterkorn Grenzen und -defekten in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  gezeigt, die den Teilchencharakter unterstreichen.

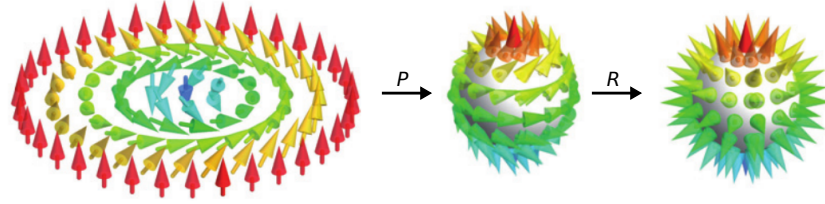


Abbildung 2.8: Projektion der Spins eines Skyrmions auf eine Einheitskugel. Eine anschließende Rotation lässt alle Spins senkrecht zur Kugeloberfläche stehen. Die Spins eines Skyrmions bedecken die Einheitskugel einmal komplett und führen daher zur Windungszahl  $|N| = 1$ . Nach [47].

Der Teilchencharakter wird auch durch die Topologie der Spintextur einzelner Skyrmionen gestärkt, welche sich deutlich von den anderen Phasen in einem chiralen Magneten unterscheidet. Zur Klassifizierung wird die Windungszahl oder Skyrmionenzahl  $N$  verwendet [46], die gegeben ist durch

$$N = \frac{1}{4\pi} \int_A \left( \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial x} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial y} \right) \cdot \mathbf{m} \, dx dy \quad (2.16)$$

$\mathbf{m}$  beschreibt einen Einheitsvektor, der in Richtung der Magnetisierung steht mit  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M_S$ . In der Projektion aller Spins eines Skyrmions auf eine Einheitskugel,

wie in Abbildung 2.8 gezeigt, gibt die Windungszahl  $N$  an, wie oft die Spins diese Kugel umhüllen. Für ein Skyrmion ist der Betrag der Windungszahl  $|N| = 1$ , da alle Spins die Einheitskugel einmal bedecken. Ein magnetischer Vortex bedeckt beispielsweise nur die Hälfte der Einheitskugel und besitzt daher die Windungszahl  $|N| = 1/2$ .

# 3 Magnetische Transmissionselektronenmikroskopie

## 3.1 Transmissionselektronenmikroskop

Das Prinzip des im 17. Jahrhunderts erfundenen Durchlichtmikroskops besteht darin, festzustellen was sich im Inneren einer durchleuchteten Probe befindet indem man sie mit sichtbarem Licht durchleuchtet. Das theoretische Auflösungsvermögen eines solchen Lichtmikroskops wurde durch Ernst Abbe 1873 beschrieben. Er definiert die Auflösungsgrenze durch die Formel

$$d = \frac{\lambda}{2n \sin \alpha} \quad (3.1)$$

Dabei beschreibt  $d$  einen Abstand z.B. zwischen zwei Linien die durch den Betrachter noch unterscheidbar sind,  $\lambda$  die Wellenlänge des Lichts,  $n$  den Brechungsindex des Immersionsmediums und  $\alpha$  den Öffnungswinkel des Objektivs. Das Auflösungsvermögen eines optischen Durchlichtmikroskops kann damit für  $n \sim 1$  bestenfalls die Hälfte der Wellenlänge betragen. Mit sichtbarem Licht können dadurch etwa 200 nm große Strukturen aufgelöst werden, was noch viele Größenordnungen von atomaren Abständen entfernt ist. Da das Abbesche Auflösungslimit auch für Elektronen gilt, kann ein Durchlichtmikroskop, welches hochenergetische Elektronen anstatt Licht zum Durchstrahlen der Probe verwendet, ein deutlich besseres Auflösungsvermögen erreichen. Dieses Mikroskop nennt man Transmissionselektronenmikroskop (TEM) und ist durch die Lorentz-Kraft zudem empfindlich auf magnetische Felder in der Probe.

Das erste TEM wurde in den 1930er Jahren von Ernst Ruska und Max Knoll entwickelt [48]. Der Strahlengang dieses Mikroskops ist sehr ähnlich zum optischen Durchlichtmikroskop. Wesentliche Unterschiede sind, dass sich Strahl und Probe bei einem Elektronenmikroskop immer in Vakuum befinden und anstelle von Glaslinsen elektromagnetische und elektrostatische Linsen verwendet werden. Der Aufbau eines TEMs kann in zwei Bereiche unterteilt werden, einen strahlformenden und einen abbildenden Teil. Diese zwei Bereiche werden im Folgenden genauer erläutert, ein Querschnitt ist dazu in Abbildung 3.1 gezeigt. Dabei wird nur auf die Eigenschaf-

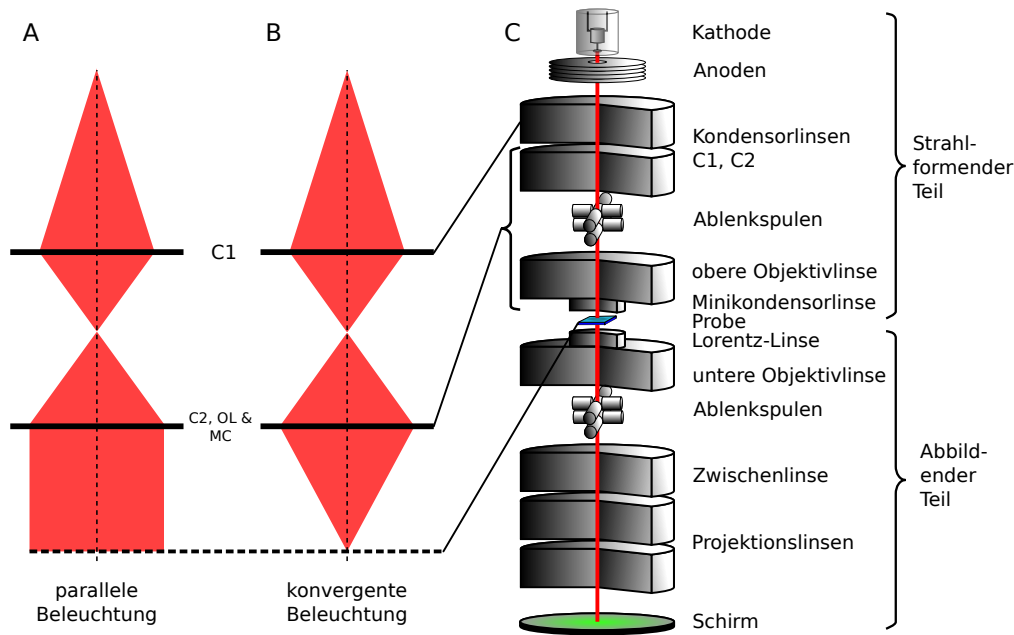


Abbildung 3.1: Vereinfachter Querschnitt durch ein Transmissionselektronenmikroskop. A (B) zeigt die Strahlformung für den TEM(LM-STEM)-Modus mit einer parallelen (konvergenten) Probenbeleuchtung. In C sind die wichtigsten Elemente eines TEMs mit strahlformenden und abbildenden Teil gezeigt.

ten des in in dieser Arbeit verwendeten Mikroskops Tecnai F30 der Firma FEI eingegangen.

### 3.1.1 Strahlformender Teil

Die hochenergetischen Elektronen werden in der Elektronenkanone erzeugt. Elektronen werden dort zuerst aus einer Feldemissionskathode gelöst und anschließend mit Anoden beschleunigt. Feldemissionskathoden legen eine Extraktionsspannung im Bereich von einigen kV an die Kathode an, so dass Elektronen durch Schottky-Emission aus der Kathode tunneln. Nach dem Austritt aus der Kathode werden die Elektronen durch eine elektrostatische Linse zu einem Spot gebündelt, der auch virtuelle Quelle genannt wird. Von diesem Punkt aus werden alle elektronenoptischen Konstruktionen des TEMs gestartet.

Die Linsen mit denen der Elektronenstrahl anschließend gebündelt oder aufgeweitet wird bestehen meist aus rotationssymmetrischen, entlang der optischen Achse in-

homogenen magnetischen Feldern. Diese Felder werden durch Stromspulen erzeugt und mit weichmagnetischen Polschuhen geformt und können über den Strom in ihrer Stärke variiert werden. Damit kann die Brennweite der einzelnen Linsen verändert werden und es ist möglich mit einem räumlich festen Linsensystem unterschiedliche Strahlverläufe zu realisieren. Der große Vorteil ist unter anderem eine große Bandbreite an Vergrößerungen von mehr als fünf Größenordnungen, gegenüber Lichtmikroskopen.

Wie schon 1936 durch Scherzer gezeigt [49] besitzen magnetische Linsen in einem TEM, verglichen mit Glaslinsen, eine sehr schlechte optische Qualität. Schuld daran sind Linsenfehler wie chromatische Aberration, sphärische Aberration oder Astigmatismus. Um das Abbildungsvermögen zu verbessern werden daher Korrektoren integriert, die diesen Linsenfehlern entgegenwirken. In dem in dieser Arbeit verwendeten Mikroskop kann der Astigmatismus für Kondensorlinsen, Objektivlinse und Beugungslinse korrigiert werden. In einem TEM auf dem neuesten Stand der Technik werden zudem sphärische und chromatische Aberration korrigiert. Erst dadurch ist es möglich ein Auflösungsvermögen von unter 50 pm zu erreichen, wie beispielsweise mit dem FEI Titan 50-300 PICO am Forschungszentrum Jülich [50].

Nach der virtuellen Quelle werden die Elektronen durch mehrstufige Anoden auf eine kinetische Energie von 300 keV beschleunigt. Anschließend wird der Elektronenstrahl durch das Kondensorlinsensystem, bestehend aus C1-, C2-, Objektivlinse und der Minikondensorlinse zu einem parallelen oder konvergenten Strahl geformt, je nach gewünschter Betriebsart. Im TEM-Modus beleuchtet man die Probe mit einer kohärenten Elektronenwelle (Abbildung 3.1A), wohingegen im LM-STEM-Modus (engl. low magnification Scanning Transmission Electron Microscope) ein möglichst kleiner Spot über die Probe gerastert wird (Abbildung 3.1B). Die beiden Betriebsarten werden in Kapitel 3.1.3 genauer erläutert.

Im Kondensorlinsensystem ist zur Begrenzung des Elektronenstrahls eine Blende eingesetzt. Da Linsen in der Brennebene eine Fouriertransformation der Bildebene abbilden, erhält man damit auf der Probe typischerweise eine Strahlform, die sich mit der Airy-Funktion beschreiben lässt.

#### 3.1.2 Abbildender Teil

Der abbildende Teil des Transmissionselektronenmikroskops vergrößert, den vom Strahl durchleuchteten Teil der Probe, in die Detektorebene. Dabei sind hauptsächlich Objektivlinsen, Zwischenlinse und Projektionslinsen beteiligt.

Nach den Projektionslinsen kann der Strahl mit verschiedenen Detektoren untersucht werden. Es gibt die Möglichkeit einen Phosphoreszenzschirm mit dem Elektronenstrahl zu beleuchten, der dann sichtbares, grünes Licht ausstrahlt. Dieses sichtbare Bild kann durch eine Bleiglasscheibe betrachtet werden.

Unterhalb des Schirms ist eine CCD-Kamera (engl. charge coupled device) angebracht, die mit einer Belichtungszeit im Sekundenbereich und mit einer Auflösung von 1024x1024 Pixel Bilder des Elektronenstrahls aufnehmen kann.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine alternative Methode entwickelt, mit der eine kurze Belichtungszeit im ms Bereich möglich ist und gleichzeitig die Pixelanzahl vergrößert wird. Details dazu sind in Kapitel 3.7 beschrieben.

Für den STEM-Modus ist unterhalb des Phosphoreszenzschirms ein kreisförmiger Hellfeld-Detektor verbaut, bestehend aus einem Szintillator mit Photomultiplier. Um diesen Detektor herum sind zudem zwei ringförmige Halbleiterdetektoren mit jeweils vier Segmenten für die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie (DPC) integriert.

#### 3.1.3 Betriebsmodi eines TEM

Die zwei wichtigsten Betriebsmodi in einem Transmissionselektronenmikroskop sind der TEM-Modus und der STEM-Modus.

Im TEM-Modus erzeugt das Kondensorlinsensystem einen parallelen Strahl. Dieser Strahl durchläuft die Probe und ein Bild der Probe wird anschließend vergrößert. Die resultierende Vergrößerung ist durch die Ströme der Objektivlinse und der abbildenden Linsen unterhalb bestimmt. Für möglichst hohe Auflösung wird die Objektivlinse stark angeregt, was zu einem Magnetfeld von bis zu 2,1 T senkrecht zur Probe führt. Bei einer magnetischen Probe führt ein so hohes Feld meist zu einer Sättigung und damit zur Zerstörung von magnetischen Strukturen. Daher ist im Rahmen der vorliegenden Arbeit der TEM-Modus lediglich zur Vorcharakterisierung der Proben verwendet worden.

Eine Modifikation des TEM-Modus ist der Lorentz-TEM-Modus (LTEM). Hierbei wird die Probe ebenfalls mit einem parallelen Strahl beleuchtet, allerdings wird eine Zusatzlinse, die Lorentzlinse, zugeschaltet, welche in der unteren Objektivlinse integriert ist. Die Objektivlinse wird dabei nur verwendet um definierte magnetische Felder zu erzeugen und ist meist gering angeregt, im Bereich von 0 – 10% des maximalen Linsenstroms. Mit der Minikondensorlinse, die in der oberen Objektivlinse integriert ist, kann zudem das Magnetfeld sehr präzise definiert werden und es ist möglich, das Magnetfeld in der Probenebene auf Null zu regeln. Dieser Modus wird in Kapitel 3.2 genauer erläutert.

Ein weiterer Modus ist der STEM-Modus. Dabei erzeugt das Kondensorlinsensystem einen stark konvergenten Strahl bei dem der Kreuzungspunkt genau in der Probenebene liegt. Dieser Spot wird über die Probe gerastert und an jedem Rasterpunkt die transmittierte Strahlintensität mit einem Detektor gemessen. Der Strahl

wird mit Ablenkspulen von der optischen Achse gelenkt, die Probe durchstrahlt und danach der Strahl wieder auf die optische Achse positioniert. Das abbildende System des TEMs bildet den Strahl dann in die Detektorebene ab, während des Rasterns über die Probe bleibt dabei die Position in der Detektorebene konstant.

Es gibt einen STEM-Modus speziell für hohe Vergrößerungen, den HM-STEM-Modus (engl. high magnification STEM). Ähnlich dem TEM-Modus ist die Objektivlinse dabei stark angeregt und es herrschen magnetische Felder von  $\approx 2$  T. Im LM-STEM-Modus (engl. low magnification STEM) ist das Mikroskop für kleinere Vergrößerungen optimiert und die Objektivlinse daher schwach angeregt. In diesem Modus ist es zudem möglich den Objektivlinsenstrom manuell zu verändern um gewünschte Feldstärken einzustellen.

Verwendet man im STEM-Modus anstatt dem kreisförmigen einen richtungsempfindlichen Detektor, so nennt man diesen Modus Differentielle Phasenkontrastmikroskopie, kurz DPC (engl. differential phase contrast). Mit dieser Methode ist es möglich elektrische oder magnetische Felder in der Probe zu bestimmen. Details zu dieser Betriebsart werden in Kapitel 3.4 erläutert.

## 3.2 Lorentz-TEM-Modus

Ein kohärenter, paralleler Elektronenstrahl, der eine Probe mit intrinsischen magnetischen Feldern durchläuft erfährt eine ortsabhängige Phasenveränderung. Diese Phasenveränderung wird im Lorentz-TEM-Modus, der auch Fresnel-Modus genannt wird, sichtbar gemacht.

Abbildung 3.2 A zeigt im Teilchenbild, wie ein paralleler Elektronenstrahl durch eine Probe mit magnetischen Domänen abgelenkt wird. Die Strahlintensität in der Probenebene besitzt keinen magnetischen Kontrast, da die Elektronen noch nicht bzw. noch nicht weit genug abgelenkt werden. Erst wenn auf viele  $\mu\text{m}$  unterhalb der Probe fokussiert wird ergibt sich eine Intensitätsveränderung, die proportional zur Änderung der magnetischen Flussdichte in der Probe ist. Bilder die unterhalb der Probe fokussiert sind, besitzen positive Werte für  $\Delta f$  und werden überfokussiert genannt. Für größere Werte von  $\Delta f$  werden die Elektronen noch weiter getrennt und der magnetische Kontrast wird erhöht. Oberhalb der Probe entsteht ein virtuelles Bild mit invertierten Kontrast im Vergleich zum Überfokus, wie in Abbildung 3.2 B gezeigt. Abbildungen in diesen Fokusbereich nennt man unterfokussiert und  $\Delta f$  nimmt negative Werte an.

Eine geschlossene, ringförmige magnetische Flussdichte in der Probenebene wirkt, je nach Rotationssinn, für den Elektronenstrahl wie eine Sammel- oder Streulinse. Abbildung 3.2 C zeigt solch eine Situation wie sie beispielsweise bei magnetischen Spintexturen wie Vortices oder Skyrmionen auftritt. Zum magnetischen Kontrast tragen lediglich die Komponenten der magnetischen Induktion senkrecht zum Elek-

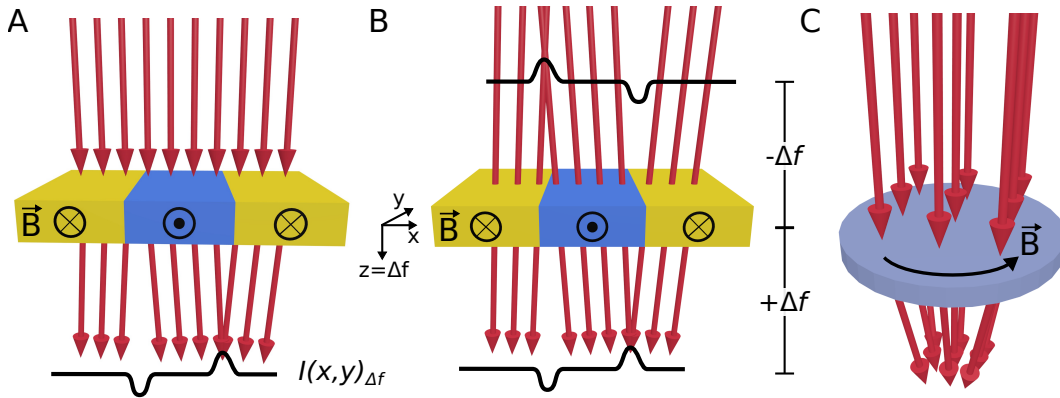


Abbildung 3.2: Ablenkung eines parallelen Elektronenstrahls im Lorentz-TEM-Modus durch magnetische Felder in der Probe im Teilchenbild. A zeigt anhand von Pfeilen, wie Elektronen durch die Lorentz-Kraft abgelenkt werden und wie die Intensitätsverteilung  $I(x, y)_{\Delta f}$  unterhalb einer Probe mit drei magnetischen Domänen entsteht. Der Defokus  $\Delta f$  ist dabei positiv und wird Überfokus genannt. Es treten Intensitätsschwankungen an den Stellen der Domänenwände auf – also immer dann wenn sich die magnetische Induktion in der Probe ändert. In B ist zusätzlich das virtuelle Bild oberhalb der Probe dargestellt. Bildet man diese Position im TEM ab, so ist  $\Delta f$  negativ und wird Unterfokus genannt, der magnetische Kontrast ist im Vergleich zum Überfokus invertiert. In C ist gezeigt, dass eine gegen den Uhrzeigersinn rotierende magnetische Induktion wie eine Sammellinse für Elektronen wirkt.

tronenstrahl bei.

Abbildung 3.3 zeigt eine typische Fokusserserie von Skyrmionen in  $\text{Fe}_{0,5}\text{Co}_{0,5}\text{Si}$ . Einzelne Skyrmionen erzeugen durch ihre Linsenwirkung helle oder dunkle Punkte bei  $\Delta f = \pm 30 \mu\text{m}$ . Im Unter- und Überfokus ist der punktförmige, magnetische Kontrast invertiert während im Fokus bei  $\Delta f = 0 \mu\text{m}$  kein magnetischer Kontrast vorhanden ist.

Mit einigen Vereinfachungen wird in [36, 51–53] folgende Formel für die Intensität  $I(x, y)_{\Delta f}$  am Ort  $(x, y)$  im Wellenbild theoretisch hergeleitet:

$$I(x, y)_{\Delta f} = 1 - \frac{\Delta f \cdot \lambda_e}{2\pi} \nabla_{\perp}^2 \varphi(x, y) \quad (3.2)$$

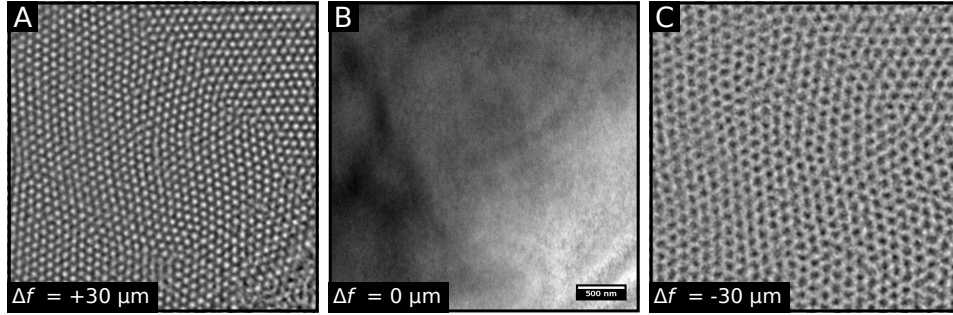


Abbildung 3.3: Fokussiererei von Skyrmionen in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ . A zeigt helle Punkte durch die Linsenwirkung der Skyrmionen im Überfokus für  $\Delta f = 30 \mu\text{m}$ . Im Fokus (B) für  $\Delta f = 0 \mu\text{m}$  ist kein magnetischer Kontrast sichtbar, während im Unterfokus (C) für  $\Delta f = -30 \mu\text{m}$  der magnetische Kontrast invertiert zum Überfokus ist.

Dabei ist  $\Delta f$  der Defokus,  $\lambda_e$  die relativistische Elektronenwellenlänge,  $\nabla_{\perp}$  der zweidimensionale Nabla-Operator in der x-y-Ebene und  $\varphi(x, y)$  die Phase der Elektronenwelle nach der Probe. Der zweite Teil der Formel beschreibt den magnetischen Kontrast, der die Gesamtintensität am Ort  $(x, y)$  vergrößert oder verkleinert. Im eindimensionalen Fall kann die örtliche Ableitung der Phasenverschiebung  $\partial\varphi/\partial x$  entlang der Strecke  $x$  nach [53] ausgedrückt werden als

$$\frac{\partial\varphi}{\partial x} = -2\pi \frac{e}{h} B_y \cdot s \quad (3.3)$$

Dabei beschreibt  $B_y$  die y-Komponente der magnetischen Induktion in der Probe,  $L$  die Dicke der Probe,  $e$  die Elektronenladung und  $h$  das Plancksche Wirkungsquantum. Die beiden Formeln 3.2 und 3.3 zeigen, dass je höher die örtliche Änderung der magnetischen Flussdichte in der Probe ist, desto größer ist  $\nabla_{\perp}^2 \varphi(x, y)$  und desto weiter ist die Intensität  $I(x, y)_{\Delta f}$  von Eins entfernt. Dadurch führt eine stärkere Änderung der magnetischen Flussdichte in der Probe zu einem größeren magnetischen Kontrast.

Anhand der Formel 3.2 sieht man auch sofort, dass sich der magnetische Kontrast direkt mit höherem Defokus  $\Delta f$  erhöht. Dieses Verhalten im Wellenbild ist in Einklang mit dem Teilchenbild, wie es in Abbildung 3.2 gezeigt wird.

Eine Verbesserung der magnetischen Empfindlichkeit durch Erhöhen von  $\Delta f$  geht auch immer einher mit dem Verschlechtern des örtlichen Auflösungsvermögens. McVitie and Cushley diskutieren dieses Verhalten mit der Kontrastübertragungsfunktion unter Vernachlässigung von Linsenfehlern [52]. Sie schätzen dabei die örtliche

Auflösungsgrenze  $d$  mit folgender Formel grob ab.

$$d = \sqrt{\frac{\Delta f \lambda_e}{0,1}} \quad (3.4)$$

$\lambda_e$  ist dabei die relativistische Wellenlänge der Elektronen, die in unserem Fall 1,97 pm beträgt. Die Auflösungsgrenze in der Formel 3.4 und die Intensität aus Gleichung 3.2 sind in Abbildung 3.6 gegen den Defokus  $\Delta f$  für eine konstante Feldänderung zusammen mit experimentellen Messpunkten angetragen. Die Messwerte sind aus einer Fokusserie an einem magnetischen Vortex extrahiert.

### Charakterisierung des LTEM-Modus an einen magnetischen Vortex

Ein magnetischer Vortex bildet sich in dünnen, weichmagnetischen Scheiben mit einem Durchmesser im nm -  $\mu\text{m}$  Bereich aus [54, 55]. Die Spinstruktur ist in Abbildung 3.4 gezeigt. Aufgrund der Streufeldenergie stehen die Spins am äußeren Rand parallel zur Oberfläche und erzeugen eine rotierende Magnetisierung. Zur Mitte hin wird dieser Radius immer enger und Spins mit unterschiedlicher Orientierung kommen sich sehr nahe. Die Austauschenergie zwingt die Spins ab einem Radius von ca. 5 – 15 nm aus der Ebene heraus und formen so den Vortex-Kern [56] wie in Abbildung 3.4B gezeigt.

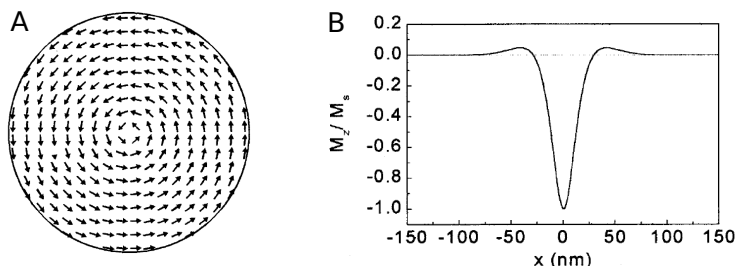


Abbildung 3.4: Magnetischer Vortex in dünnen ferromagnetischen Scheiben. Die Magnetisierung verläuft am Rand parallel zur Oberfläche und wird in der Mitte aus der Ebene gedrückt. Teilbild A zeigt die Magnetisierung in der Ebene, in B ist die z-Komponente der Magnetisierung angetragen. Aus [55].

Um den LTEM-Modus zu charakterisieren wurden sowohl der magnetische Kontrast als auch die örtliche Auflösungsgrenze an einem magnetischen Vortex, der sich in einer  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ -Scheibe ausbildet, in Abhängigkeit des Defokus  $\Delta f$  bestimmt.  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  ist ein ferromagnetisches Material, das Permalloy genannt wird. Die Permalloy-Scheibe besitzt eine Dicke von 50 nm mit einem Durchmesser von 4  $\mu\text{m}$  und wurde

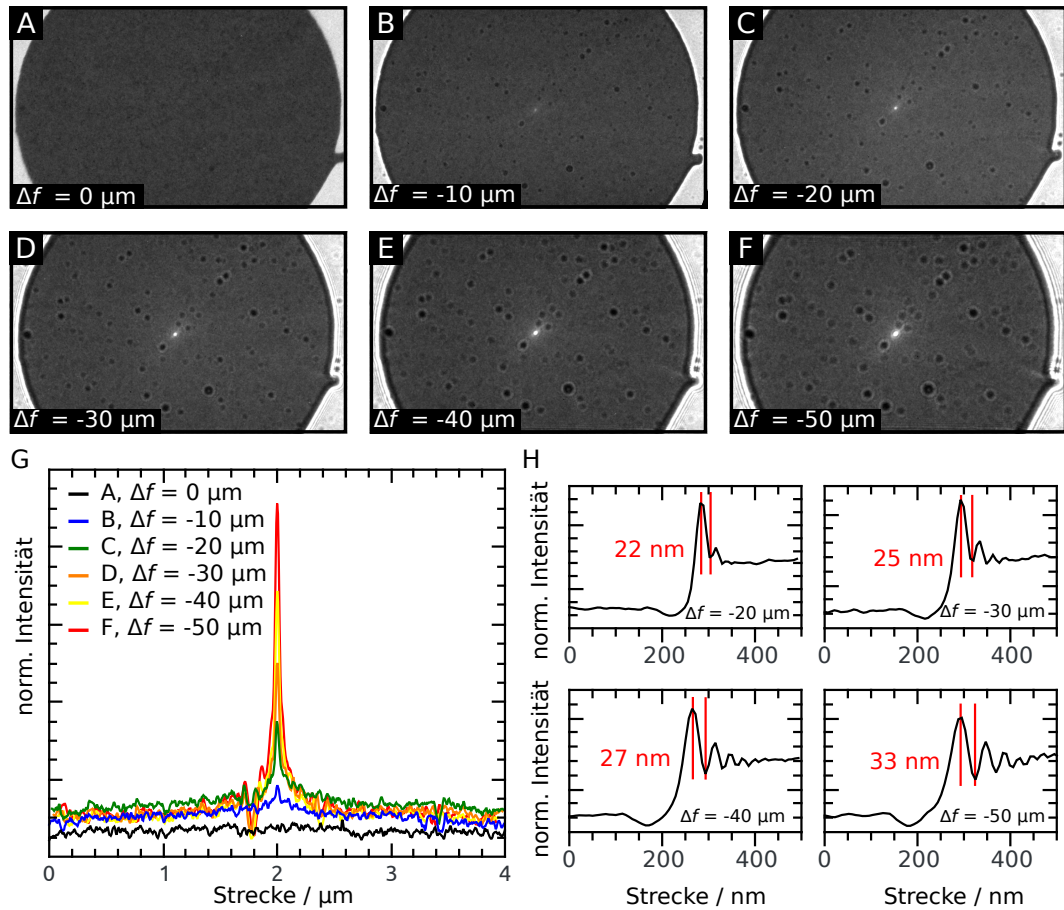


Abbildung 3.5: A-F: Fokussiererei einer 4  $\mu\text{m}$  großen Permalloyscheibe, in der sich ein magnetischer Vortex ausbildet. Mit höherem Defokus  $\Delta f$  nimmt die Intensität des hellen zentralen Punkts zu, der durch die rotierende magnetische Induktion des Vortex entsteht. Gleichzeitig verschlechtert sich dabei das örtliche Auflösungsvermögen. In G sind Intensitätsprofile quer über die Scheibe dargestellt, das Maximum entspricht dem magnetischen Kontrast. In H sind Linescans über die Scheibenkante für verschiedene Defoki aufgetragen. Zum Bestimmen der Auflösungsgrenze  $d$  wurde das Rayleighkriterium angewandt.

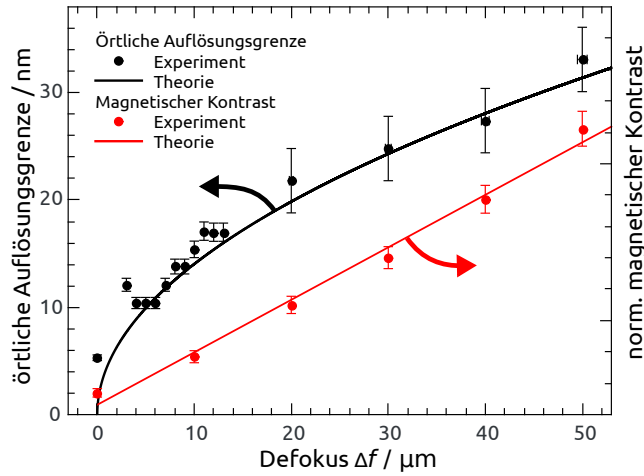


Abbildung 3.6: Örtliche Auflösungsgrenze und magnetischer Kontrast in Abhängigkeit von Defokus  $\Delta f$  für eine konstante Feldänderung. Mit höherem  $\Delta f$  verbessert sich der magnetische Kontrast wohingegen sich das örtliche Auflösungsvermögen verschlechtert.

durch Elektronenstrahlolithographie auf eine  $\text{Si}_3\text{N}_4$ -Membran strukturiert. Abbildung 3.5A-F zeigt die Fokusserserie an der Permalloyscheibe. Bei  $\Delta f = 0 \mu\text{m}$  ist kein magnetischer Kontrast sichtbar. Mit steigendem Defokus  $\Delta f$  taucht zentral ein heller Punkt auf, der durch die Linsenwirkung der rotierenden magnetischen Induktion des Vortex verursacht wird. Dieser helle Kontrast entspricht der Position des Vortex-Kerns. Dass die örtliche Auflösungsgrenze mit steigendem Defokus abnimmt ist deutlich am Rand der Scheibe erkennbar.

In Abbildung 3.5G sind die Intensitätsprofile über das Zentrum des Vortex abgebildet und bestätigen die Zunahme des magnetischen Kontrasts mit größerem  $\Delta f$ . Die Intensität über den Rand der Permalloyscheibe in Abbildung 3.5H verdeutlicht für vier unterschiedliche Werte von  $\Delta f$ , wie stark die örtliche Auflösungsgrenze mit dem Defokus sinkt. Die wellenartigen Schwankungen außerhalb der Scheibe kommen durch Interferenz zustande und werden Fresnelsäume genannt. Sie sind hauptsächlich durch Beugung an der Kante verursacht, eine magnetische Ablenkung durch den Vortex kann vernachlässigt werden. Die örtliche Auflösungsgrenze wurde durch das Rayleighkriterium bestimmt und ergibt sich aus dem Abstand vom ersten Maximum zum ersten Minimum, in den Graphen rot markiert. Für einen Defokus von  $\Delta f = 50 \text{ nm}$  ergibt sich damit beispielsweise eine örtliche Auflösungsgrenze von 33 nm.

Die Maxima des magnetischen Kontrasts und das örtliche Auflösungslimit für ver-

schiedene Defoki sind zusammen mit den theoretisch berechneten Werten aus Gleichung 3.2 und 3.4 in Abbildung 3.6 dargestellt. Das theoretisch berechnete und experimentell bestimmte örtliche Auflösungslimit stimmen vor allem für Defoki  $\Delta f > 10 \mu\text{m}$  im Rahmen des Messfehlers gut überein. Das minimale experimentelle Auflösungslimit bei  $\Delta f = 0 \mu\text{m}$  liegt bei 5 nm was nahe an der Spezifikation von 2 nm der Lorentzlinse liegt [57]. Der magnetische Kontrast zeigt die lineare Abhängigkeit von  $\Delta f$  wie in Formel 3.2 beschrieben.

### 3.3 Intensitätstransportgleichung

Die Intensitätstransportgleichung (engl. Transport of Intensity Equation, TIE) ist eine Gleichung, die den Zusammenhang zwischen Intensitäten bei verschiedenen Defoki  $\Delta f$  und der Phase  $\varphi(x, y)$  der Elektronenwelle beschreibt. Mit dieser Gleichung ist es möglich aus einer LTEM-Fokusserie die durch die Probe verursachte Phasenverschiebung zu berechnen und daraus die magnetische Induktion in der Probe zu rekonstruieren.

Die TIE wurde ursprünglich für Lichtmikroskope durch Teague entwickelt [58] und lautet

$$\frac{2\pi}{\lambda_e} \frac{\partial}{\partial z} I(x, y, z) = -\nabla \cdot I(x, y, z) \nabla \varphi(x, y) \quad (3.5)$$

Dabei beschreibt  $I(x, y, z)$  die Intensität für einen Defokus  $\Delta f = z$ ,  $\varphi(x, y)$  die Phase am Ort  $(x, y)$  und  $\lambda_e$  die Wellenlänge der Elektronenwelle. Mit der Hilfsfunktion  $\psi(x, y)$  die definiert ist als

$$\nabla \psi(x, y) = I(x, y, z) \nabla \varphi(x, y) \quad (3.6)$$

wird Gleichung 3.5 zu

$$\nabla^2 \psi(x, y) = -\frac{2\pi}{\lambda_e} \frac{\partial}{\partial z} I(x, y, z) \quad (3.7)$$

Diese Gleichung beschreibt eine zweidimensionale Poisson-Gleichung. Sobald  $\psi(x, y)$  bestimmt ist kann die Phase  $\varphi(x, y)$  bis auf eine Konstante durch Integration von Gleichung 3.6 berechnet werden. Unter der Annahme, dass jegliche Modulation der Phase durch magnetische Felder in der Probe verursacht wird kann auf diese zurückgerechnet werden. Dazu muss Gleichung 3.3 auf zwei Dimensionen erweitert und integriert werden.

Um die Poisson-Gleichung 3.7 zu lösen wird  $\partial I(x, y, z)/\partial z$  benötigt. Diese wird im einfachsten Fall durch eine lineare Näherung aus über- und unterfokussierten LTEM-Bildern bestimmt. Dabei werden Bilder bei den Defoki  $\Delta f = \pm \varepsilon$  aufgenommen. Es ergibt sich damit für die Änderung der Intensität beim Defokus  $\Delta f = z = 0$  zu

$$\frac{\partial}{\partial z} I(x, y, 0) = \frac{I(x, y, \varepsilon) - I(x, y, -\varepsilon)}{2\varepsilon} \quad (3.8)$$

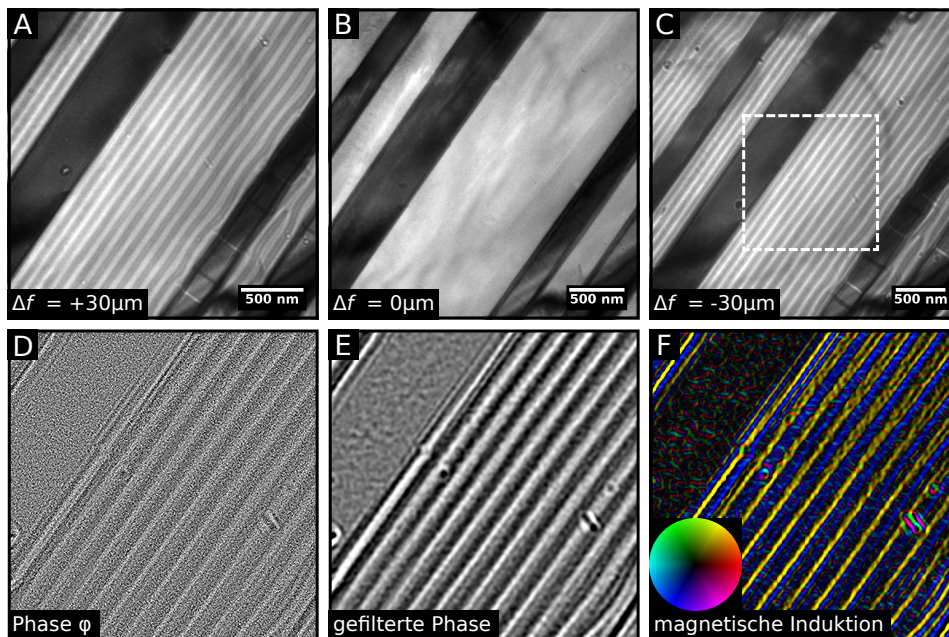


Abbildung 3.7: Beispiel einer TIE Berechnung. Die Bilder A-C zeigen eine Fokussiererei einer helikalen Phase in  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$ . Die daraus berechnete Phase ist in D ungefiltert und in E Bandpass-gefiltert gezeigt. Die berechnete magnetischen Induktion ist in F durch Farben dargestellt. Dabei gibt die Farbe die Richtung und die Helligkeit die Stärke der magnetischen Induktion wieder.

Für eine genauere Bestimmung von  $\partial I(x, y, z)/\partial z$  kann zudem die Intensität im Fokus für  $\Delta f = 0$  in die lineare Näherung mit einbezogen werden. Die Poisson-Gleichung 3.7 kann dann mit Hilfe der Greenschen Funktion [58] oder durch Fast Fourier Transformation Algorithmen [59] gelöst werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei unterschiedliche Algorithmen für die Rekonstruktion der magnetischen Felder durch die TIE verwendet. Zum einen das kommerziell erhältliche Softwarepaket QPt von HREM Research Inc. [60] und ein von Michael Vogel<sup>1</sup> in Matlab [61] entwickelter Code.

Der Grund für die Eigenentwicklung des TIE-Codes war die Kontrolle über Filteralgorithmen bei jedem Berechnungsschritt. In der kommerziellen Variante ist nicht komplett nachvollziehbar wo und wie bestimmte Filter angewendet werden, was zu Verfälschung der Messungen und zu Fehlinterpretationen führen kann.

<sup>1</sup>AG Back, Universität Regensburg

In Abbildung 3.7 ist eine TIE Rekonstruktion der helikalen Phase in  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  durch den Matlab-Code zu sehen. Teilbilder 3.7A-C zeigen eine Lorentz-TEM Fokussiererei mit einem Defokus von 0 und  $\pm 30 \mu\text{m}$ . Es ist deutlich die Invertierung des magnetischen Kontrasts im Unter- und Überfokus zu erkennen. Abbildung 3.7D zeigt die berechnete, ungefilterte Phase aus dem markierten Bereich in Bild C. Da die Phase viel Rauschen beinhaltet wurde, wie in Abbildung 3.7 gezeigt, ein FT-Bandpassfilter mit einem Frequenzband von  $1/100 \text{ nm}^{-1}$  bis  $1/24 \text{ nm}^{-1}$  angewandt. Das daraus rekonstruierte Bild der magnetischen Induktion zeigt Abbildung 3.7E. Die Richtung der magnetischen Induktion ist durch die Farbe und der Betrag durch die Helligkeit dargestellt. Es sind die magnetischen Streifen sichtbar, deren Ausrichtung immer in entgegengesetzter Richtung zu den benachbarten Streifen liegt.

### 3.4 Differentielle Phasenkontrastmikroskopie

Differentielle Phasenkontrastmikroskopie (DPC) ist eine Methode mit der im STEM-Modus die Verkippung des Strahls durch magnetische oder elektrische Felder gemessen wird und daraus Felder in der Probe rekonstruiert werden können. Im Unterschied zum Lorentz-TEM-Modus sind DPC-Aufnahmen nicht defokussiert, sondern werden im Fokus aufgenommen.

Die Methode wurde ursprünglich in den 1970ern vorgeschlagen [62, 63], erstmals durch Chapman et al. 1978 realisiert [64] und später verbessert [65]. Anfangs ist DPC hauptsächlich für magnetische Abbildungen z.B. zur Untersuchung von Domänenstrukturen genutzt worden [66–68]. Ab 2012 wurde der Einsatzbereich auf mesoskopische [69–72] und nanoskopische elektrische Felder [73, 74] erweitert.

Kürzlich ist es gelungen Skymionen mit DPC abzubilden. Matsumoto et al. haben Korngrenzen in Skymionengittern untersucht [75, 76] und McGrouther et al. konnten die hexagonale Struktur einzelner Skymionen nachweisen [77].

In den letzten Jahren wurde festgestellt, dass beim Abbilden von atomaren Feldern das Strahlprofil in der Detektorebene stark verändert wird und mit einem Viersegmentdetektor falsch interpretiert werden kann. Durch Verwendung eines Detektors aus quadratischen Pixelelementen mit denen der Strahlschwerpunkt berechnet wird, werden diese Fehlinterpretationen weitgehend minimiert [74, 78, 79]. Für magnetische Abbildungen im nm -  $\mu\text{m}$  Bereich, wie in dieser Arbeit verwendet, liefert der Viersegmentdetektor gute Ergebnisse.

#### Prinzip

Das Prinzip von DPC ist schematisch in Abbildung 3.8A gezeigt. Ein konvergenter Strahl beleuchtet die Probe und wird unterhalb mit einem Detektor gemessen. Durch vier Ablenkspulen, welche nicht in der Abbildung gezeigt sind, wird der Strahl über

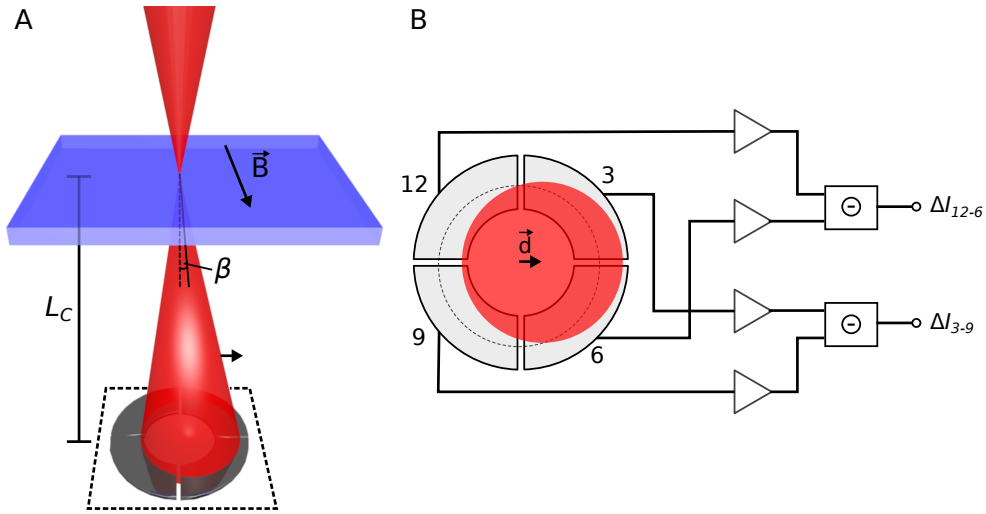


Abbildung 3.8: Differentielle Phasenkontrastmikroskopie. Ein fokussierter Strahl rastert über die Probe und wird punktweise von magnetischen Feldern in der Probe abgelenkt. Durch einen Viersegmentdetektor wird an jedem Rasterpunkt die Verkippung durch Differenzsignale gegenüberliegender Sektoren gemessen und die Felder rekonstruiert.

die Probe gerastert und anschließend wieder auf die optische Achse zurückgelenkt. Dadurch bleibt der Strahl während des Rasterns in der Detektorebene immer an der selben Position.

Befinden sich magnetische oder elektrische Felder in der Probe, wird der Strahl um dem Winkel  $\beta$  abgelenkt. Diese Ablenkung verursacht eine Verschiebung  $\vec{d}$  des Strahlprofils in der Detektorebene, welche durch einen Viersegmentdetektor gemessen wird. Dazu werden, wie in Abbildung 3.8B gezeigt, die Differenzen gegenüberliegender Sektoren gebildet. Die einzelnen Sektoren werden 3, 6, 9 und 12 genannt, die Differenzintensitäten  $\Delta I_{3-9}$  und  $\Delta I_{12-6}$ . Diese Differenzen sind in erster Näherung proportional zur Verschiebung des Strahlprofils. Unter der Annahme, dass die Verschiebung rein durch magnetische Felder verursacht wird, kann auf die magnetische Induktion zurückgerechnet werden.

Der Ablenkwinkel  $\beta$  des Strahls wird laut Zweck et al. in  $x$ -Richtung mit der Kleinwinkelnäherung durch folgende Formel beschrieben [80].

$$\beta \approx \sin(\beta) = \frac{\lambda_e}{2\pi} \frac{\partial \varphi}{\partial x} \quad (3.9)$$

Dabei ist  $\lambda_e$  die Elektronenwellenlänge und  $\partial\varphi/\partial x$  die Ableitung der Phase der Elektronenwelle nach dem Passieren der Probe. Der Name Differentielle Phasenkontrastmikroskopie leitet sich aus dem Zusammenhang her, das die Ableitung der Phase proportional zum Ablenkwinkel ist. Für magnetische Proben kann Formel 3.3 zur Phasenverschiebung im Lorentz-TEM-Modus verwendet werden und es ergibt sich ein linearer Zusammenhang zwischen dem Ablenkwinkel  $\beta$  und der magnetischen Induktion  $B_y$  mal der Probendicke  $L$ .

$$\beta \approx \frac{\lambda_e}{2\pi} \frac{\partial\varphi}{\partial x} = -\lambda_e \frac{e}{h} B_y \cdot L \quad (3.10)$$

Den elektronenoptischen Abstand von der Probe zum Detektor nennt man Kameralänge  $L_C$ . Dieser Abstand kann über das Projektionslinsensystem verändert werden und liegt für LM-STEM im Bereich von  $\approx 10 - 100$  m. Für den Verschiebungsvektor  $\vec{d}$  gilt mit der Kleinwinkelnäherung

$$|\vec{d}| = \tan(\beta) \cdot L_C \approx \beta \cdot L_C \quad (3.11)$$

Ein Viersegmentdetektor wie er in Abbildung 3.8B gezeigt ist, misst die Differenzintensitäten  $\Delta I_{3-9}$  und  $\Delta I_{12-6}$ . Für typische Strahlablenkungen im Bereich von 10 mrad sind diese Intensitäten proportional zu den Komponenten des Strahlverschiebungsvektors  $\vec{d}$  [80]. Damit gilt beispielsweise für die 3-9 Richtung

$$\Delta I_{3-9} \propto L_C \cdot B_{12-6} \cdot L \quad (3.12)$$

$B_{12-6}$  ist dabei die Komponente der magnetischen Induktion in der Probe entlang der 12-6 Richtung. Durch eine Vergrößerung der Kameralänge  $L_C$ , wird bei gleichem Ablenkwinkel  $\beta$  die Verschiebung des Strahls  $\vec{d}$  in der Detektorebene vergrößert und damit die magnetische Empfindlichkeit erhöht. Wenn der Strahldurchmesser größer als der Detektordurchmesser wird muss eine kleinere Kondensorblende eingesetzt werden, was die Beleuchtung des Detektors verändert. Die optimale Detektorbeleuchtung ist erreicht, wenn die maximale Ablenkung den Strahl genau bis zum inneren Detektorrand schiebt, da dann das Signal-Rausch-Verhältnis am besten wird [80]. Geeignete Kombinationen aus Blende und Kameralänge müssen experimentell bestimmt werden. Dies wurde von Felix Schwarzhuber im Rahmen einer Masterarbeit durchgeführt [81].

### Datenaufnahme und Auswertung

Der verwendete Detektor besitzt zwei konzentrische Viersegmentringe mit einem Loch in der Mitte. Es können dabei entweder die inneren oder äußeren Sektoren für DPC-Messungen verwendet werden um mit verschiedenen Strahldurchmessern zu arbeiten. Die Detektion der Elektronen geschieht für jeden Sektor durch einen p-n-Übergang, der über einen Transimpedanzverstärker mit einem Spannungsverstärker

verbunden ist. Der Spannungsverstärker besitzt variable Verstärkung, um diese an verschiedene Strahlintensitäten anzupassen. Dieser Verstärker ist mit einem Analog-Digital-Wandler verbunden, der eine Auflösung von 16 bit besitzt.

Die Datenaufnahme und Steuerung der Ablenkspulen wird durch das Echtzeit-System ADwin der Fa. Jäger gesteuert. Dieses System wurde bereits 2002 durch Thomas Uhlig [82] verwendet und danach von Matthias Lohr weiterentwickelt [83]. Durch Digital-Analog-Wandler wird dabei die Strahlableitfähigkeit des Mikroskops angesteuert und gleichzeitig für jeden Pixel alle acht Eingangs-Kanäle gewandelt und die Werte zwischengespeichert. Über eine Netzwerkschnittstelle werden die Daten zeilenweise an das PC-Programm "DPC-Witch" geschickt. In der Software können dann die Rohdaten der Einzelbilder gespeichert werden. Dieses Programm wurde von Matthias Lohr in C++ mit der Qt-Klassenbibliothek geschrieben und im Rahmen dieser Arbeit weiterentwickelt.

Die Auswertung der Daten erfolgt über zwei verschiedene Programme. Zum Einen über eine von Josef Zweck geschriebene Software in C++ mit Qt-Klassenbibliothek und ein Skript in Matlab [61] von Felix Schwarzhuber.

Eine typische Auswertung am Beispiel eines magnetischen Vortex der sich in einer Permalloyscheibe ausbildet ist in Abbildung 3.9 zu sehen.

Teilbild 3.9A zeigt das Summensignal

$$I_{\text{SUM}}(x, y) = I_3(x, y) + I_6(x, y) + I_9(x, y) + I_{12}(x, y) \quad (3.13)$$

aller vier Sektoren des Detektors für jeden Rasterpunkt  $(x, y)$ . Strahlableitungen führen dabei zu keinem Kontrast, da sich die Intensitätsunterschiede der einzelnen Sektoren gegenseitig aufheben. Dieses Signal entspricht dem Hellfeld-Signal im STEM-Modus ohne die Intensität im Loch des DPC-Detektors.

Die Differenzintensitäten gegenüberliegender Sektoren

$$\Delta I_{3-9}(x, y) = I_3(x, y) - I_9(x, y), \quad (3.14)$$

$$\Delta I_{12-6}(x, y) = I_{12}(x, y) - I_6(x, y) \quad (3.15)$$

sind in Abbildung 3.9B und C gezeigt. Die Richtung der Detektorachse ist mit einem Pfeil dargestellt. Man erkennt gut den hell-dunkel-Verlauf im Vortex entlang der Pfeilrichtungen welcher durch die rotierende magnetische Induktion erzeugt wird. Die Strahlableitung erfolgt immer in Richtung des Vortex-Kerns und ist damit konsistent mit LTEM-Messungen wie sie in Abbildung 3.5 gezeigt sind.

Die Amplitude  $I_{\text{AMP}}$  der Ablenkung des Strahls ist proportional zum Betrag der magnetischen Induktion mal der Probendicke und berechnet sich durch

$$I_{\text{AMP}}(x, y) = \sqrt{\Delta I_{3-9}(x, y)^2 + \Delta I_{12-6}(x, y)^2} \propto |\vec{B}| \cdot L \quad (3.16)$$

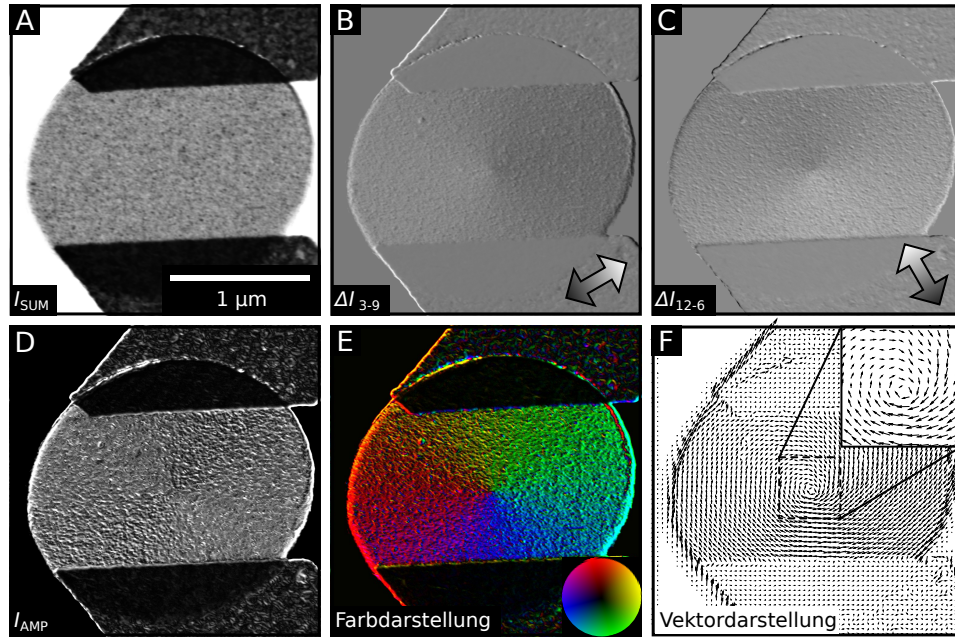


Abbildung 3.9: Eine typische DPC-Messung am Beispiel eines magnetischen Vortex in einer Permalloyscheibe. A zeigt das Summenbild, B und C die Differenzbilder mit magnetischem Kontrast. In D ist die Amplitude der daraus berechneten magnetischen Induktion dargestellt. E zeigt die richtungsabhängige Farbdarstellung und F die Vektordarstellung. In beiden Darstellungen ist die Drehung der magnetischen Induktion im Uhrzeigersinn gut erkennbar.

Abbildung 3.9D zeigt  $I_{AMP}$ . In der Messung sieht man eine nahezu konstante Intensität in der Permalloyscheibe, da hier die magnetische Induktion eine konstante Amplitude aufweist und die Probendicke konstant ist. An den Rändern der Strukturen ist ein hoher Kontrast sichtbar, der durch Beugung zustandekommt. In typischen DPC-Messungen kann meist die Probendicke ebenfalls als konstant angenommen werden, wodurch  $I_{AMP}$  nur von der magnetischen Induktion abhängt.

Die Bilder 3.9E und 3.9F zeigen zweidimensionale Darstellungen von  $\vec{B}$  durch Farben und Pfeile. In der Farbdarstellung steht die Farbe für die Richtung der Vektoren  $\vec{v}$  und die Helligkeit für den Betrag. In der vektoriellen Darstellung ist jeder Vektor proportional zu  $\vec{B}$  und berechnet sich in Polarkoordinaten zu

$$\vec{B}(x, y) \propto \vec{v}(x, y) = \begin{pmatrix} r \\ \theta \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{AMP}(x, y) \\ \sphericalangle(\Delta I_{3-9}(x, y), \Delta I_{12-6}(x, y)) - 90^\circ \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

Dabei muss vom Winkel des Ablenkvektors  $90^\circ$  abgezogen werden um Strahlablenkung in magnetische Induktion umzurechnen, die durch die Lorentzkraft verdreht ist.

#### Charakterisierung von DPC an einem magnetischen Vortex

Um das laterale und magnetische Auflösungsvermögen des DPC-Systems zu charakterisieren wurde der Kern eines magnetischen Vortex in einer Permalloyscheibe abgebildet. Die Auswertung der Bilder ist in Abbildung 3.10 gezeigt. Teilbilder A und B zeigen die Rekonstruktion der magnetischen Induktion in der Farb- und Vektordarstellung. Im Zentrum ist ein kleiner, punktförmiger Bereich sichtbar, der eine verminderte Feldstärke aufweist und den Vortex-Kern darstellt. In diesem Bereich biegen sich die Spins aus der Ebene heraus, werden parallel mit dem Elektronenstrahl und erzeugen damit einen verminderten magnetischen Kontrast.

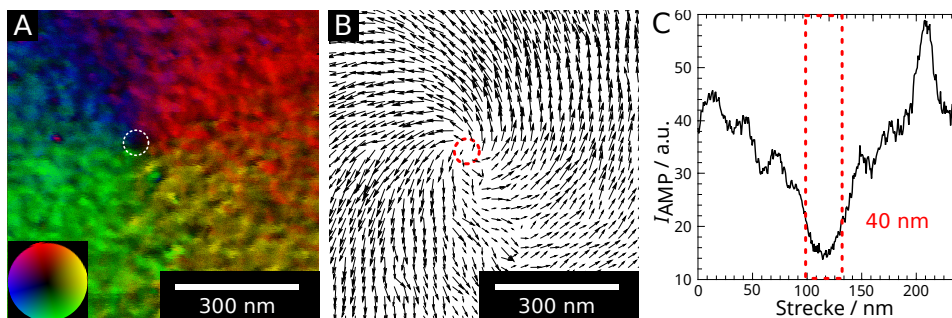


Abbildung 3.10: DPC-Aufnahme des Zentrums eines magnetischen Vortex in Permalloy. In A ist die Farb- und in B die Vektordarstellung gezeigt. Zentral befindet sich ein Punkt mit geringerer Intensität der den Vortex-Kern abbildet. Der Durchmesser dieses Kerns ist mit DPC auf einen Wert von  $\approx 40$  nm bestimmt worden, wie im Intensitätsprofil in C gezeigt, und befindet sich damit nahe an den Literaturwerten von 10 – 30 nm [54–56].

Die Ausdehnung des Vortex-Kerns beträgt in bereits publizierten Messungen und Simulationen 10 – 30 nm [54–56]. In Abbildung 3.10C ist das Intensitätsprofil der Amplitude der Strahlablenkung  $I_{AMP}$  der DPC-Messung gezeigt. Darin lässt sich der Durchmesser des Vortex-Kerns auf  $\approx 40$  nm bestimmen. Dieser Wert ist relativ nahe an dem zu erwarteten Durchmesser und zeigt, dass DPC eine leistungsfähige Messmethode ist um im Fokus die magnetische Induktion von Spintexturen im Nanometerbereich abzubilden.

### 3.5 Probenpräparation für Bulk-Proben

Die TEM-Proben aus Bulk-Kristallen sind mit der Plan-View-Technik präpariert worden. Dabei wird ein Kristallstück mit einer Diamantsäge in eine runde Form geschnitten und auf einem Edeltahlring aufgeklebt. Der Kristall wird durch mechanisches Schleifen auf eine gleichmäßige Dicke von 100  $\mu\text{m}$  gebracht. Anschließend wird mit einem Gatan Muldenschleifer eine definierte Vertiefung in die Mitte der Probe gebracht, mit einer minimalen Restdicke von 30  $\mu\text{m}$ . Im letzten Schritt wird die Probe in einem Gatan PIPS (engl. precision ion polishing system) unter einem Winkel von 3 – 5 Grad mit Argonionen beschossen bis ein Loch in der Probe entsteht. Die Beschleunigungsspannung beträgt dabei 3 – 4 kV. Um die Ränder des Lochs zu glätten wird die Probe schließlich bei einer kleinen Beschleunigungsspannung von 1 kV poliert.

Durch diese Präparation erhält man eine Probe, die in großen Bereichen elektronentransparent ist und damit eine Dicke von  $\approx 100$  nm aufweist.

### 3.6 Kontrollierte Magnetfelder im TEM

Für die beiden Betriebsmodi Lorentz-TEM und Differenzielle Phasenkontrastmikroskopie können die Linsenströme der Objektivlinse und der Minikondensorlinse variiert werden. Dadurch ist es möglich das Magnetfeld senkrecht zur Probe auf einen endlichen, festen Wert oder auf Null einzustellen.

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde die magnetische Induktion  $B_L$  in der Probenkammer in Abhängigkeit der Linsenanregungen untersucht. Dazu wurde ein Probenhalter mit einer ungeeichten Hall-Sonde vom Typ KSY44 in einem definierten Feld eines PMOKE-Aufbaus (engl. polar magneto-optic Kerr effect) kalibriert. Im TEM wurde dann anschließend für die wichtigsten Linsensituationen das Feld bestimmt.

Abbildung 3.11 zeigt Feldmessungen im LTEM-Modus für verschiedene Anregungen  $A_{\text{Obj}}$  der Objektivlinse und  $A_{\text{MC}}$  der Minikondensorlinse. Die Anregungen  $A_{\text{Obj}}$  und  $A_{\text{MC}}$  geben an wie viel Strom durch die Linsen fließt und sind in Prozent des Maximalstroms angegeben. In Abbildung 3.11A ist das Magnetfeld  $B_L$  in Abhängigkeit von  $A_{\text{Obj}}$  dargestellt. Das Magnetfeld steigt bis 50 % linear mit dem Linsenstrom, dann setzt die Sättigung der Polschuhe ein. Bei voller Anregung ergibt sich ein Feld von 2,1 T. Der Ausschnitt zeigt, dass die Remanenz nach Sättigung der Polschuhe weniger als 2 mT beträgt.

Abbildung 3.11B zeigt die Feldkurve der Minikondensorlinse bei ausgeschaltetem Objektivnetzteil. Das maximal erreichbare Feld beträgt 15 mT, Nullfeld ist ca. bei -35 % gegeben. Die Remanenz der Minikondensorlinse ist dabei kleiner als 0,1 mT, unabhängig von der Vorgeschichte von  $A_{\text{MC}}$ . Der Offset bei  $A_{\text{MC}} = 0$  % im Feld ist

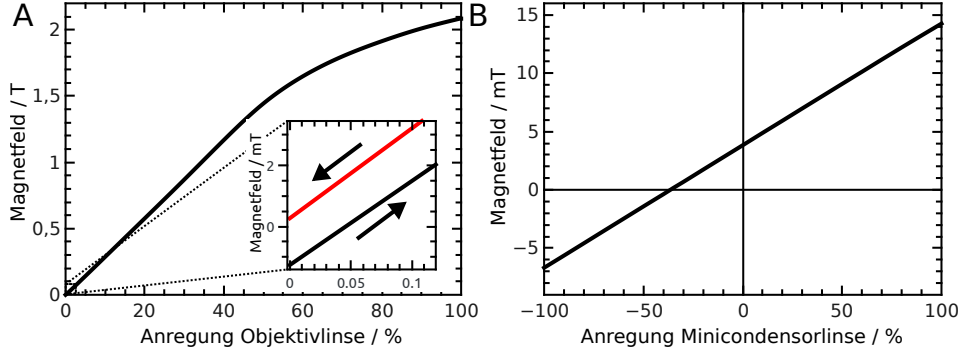


Abbildung 3.11: Gemessene Magnetfelder im LTEM-Modus. Teilbild A zeigt die Felder senkrecht zur Probe in Abhängigkeit von der Anregung der Objektivlinse. Bis 50% ergibt sich ein lineares Verhalten, danach setzt die Sättigung der Polschuhe ein. Das Maximalfeld beträgt 2,1 T und die Hysterese erzeugt eine Remanenz von weniger als 2 mT. In B ist die Feldabhängigkeit von der Anregung der Minikondensorlinse mit deaktiviertem Objektivlinsennetzteil gezeigt. Hier beträgt die Hysterese weniger als 0,1 mT.

durch Restfelder unter anderem von der Lorentzlinse verursacht.

Für den LTEM-Modus wurde folgende Formel zur Berechnung der Feldstärke gefunden

$$B_L = (3,744 \pm 0,002) \text{ mT} + (0,10500 \pm 0,0004) \frac{\text{mT}}{\%} A_{MC} + \left( (4,1 \pm 0,2) \text{ mT} + (29,10 \pm 0,05) \frac{\text{mT}}{\%} A_{Obj} \right) \cdot N \quad (3.18)$$

$N$  ist eine boolesche Variable und gibt an, ob das Objektivnetzteil ein- ( $N = 1$ ) oder ausgeschaltet ( $N = 0$ ) ist. Für den LM-STEM-Modus wurde folgender Zusammenhang gefunden

$$B_L = (4,77 \pm 0,01) \text{ mT} + (0,159 \pm 0,002) \frac{\text{mT}}{\%} A_{MC} + \left( (1,1 \pm 0,2) \text{ mT} + (29,10 \pm 0,08) \frac{\text{mT}}{\%} A_{Obj} \right) \cdot N \quad (3.19)$$

Die Formeln geben das Magnetfeld  $B_L$  für ein Anstieg der Linsenströme an, dabei ist höchste Reproduzierbarkeit gegeben.

### 3.7 Messaufbau

In Kapitel 5 und 6 werden Messungen präsentiert, die eine hohe zeitliche Auflösung von 10 ms bei einer Probentemperatur von 12 – 50 K benötigen. Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit ein neuartiger Messaufbau entwickelt.

Um die erforderliche Zeitauflösung zu erreichen wurde ein Phosphoreszenzschirm verkippt in den Strahl gehalten und mit einer Hochgeschwindigkeitskamera durch die Bleiglasscheibe abgefilmt, wie in Abbildung 3.12 gezeigt. Dieser Schirm wird üblicherweise durch den Benutzer über ein Okular betrachtet und ist bereits im Mikroskop integriert. Die Hochgeschwindigkeitskamera Edge 5.5 der Firma PCO ist an einen Spezialrechner angeschlossen und schafft bei voller Auflösung von 5,7 Megapixel und 16 bit Tiefe eine Bildrate von 100 Bilder pro Sekunde [84]. Abbildung 3.13 zeigt, wie die Hochgeschwindigkeitskamera in den Messaufbau integriert ist.

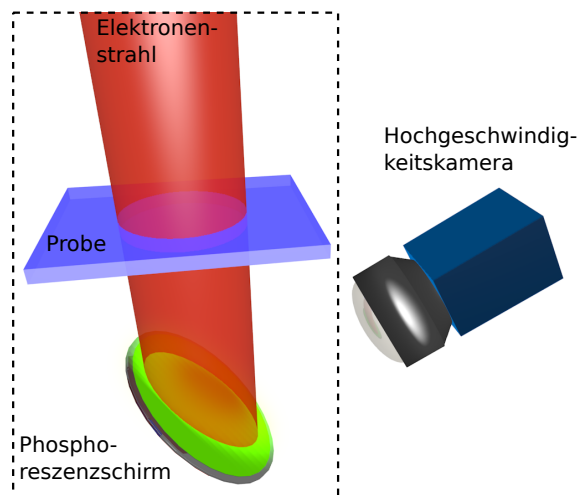


Abbildung 3.12: Messaufbau für Hochgeschwindigkeits-Lorentz-TEM Messungen. Der Elektronenstrahl beleuchtet einen Phosphoreszenzschirm, der von einer Hochgeschwindigkeitskamera abgefilmt wird. Der eingerahmte Bereich befindet sich im Vakuum.

Die Kühlung der Probe ist durch einen modifizierten Heliumhalter der Firma Gatan realisiert. Die Probe wird gekühlt, indem Helium aus einem Reservoir mit einer Kapillare durch einen Wärmetauscher fließt, in den die Probe verschraubt ist. Der Heliumfluss durch die Kapillare ist variabel und bestimmt die Kühlleistung und damit die Temperatur der Probe. Über einen Temperaturfühler im Wärmetauscher wird die Temperatur gemessen. Ursprünglich wurde der Halter so konzipiert, dass beim Befüllen des Heliumvorrats ca. 50 L flüssiges Helium an die Umgebungsluft

abgegeben wird [85].

Der modifizierte Messaufbau beim Überheben von Helium in den Probenhalter ist in Abbildung 3.13 in grün (B) dargestellt. Eine Flüssigheliumkanne wird mit Druckhelium auf 200 mbar Überdruck gebracht, so dass Helium über den Überheber in den Vorrat des Halter gedrückt wird. Der Abgasanschluss des Halter ist über eine 5 m lange Gummileitung und mäanderartig angeordneten Kupferrohren zum Aufwärmen an die Heliumrückgewinnungsanlage der Fakultät angeschlossen. Der Überhebevorgang dauert bei konstantem Druck in der Kanne typischerweise 45 min, das Heliumreservoir ist üblicherweise voll, wenn über einen Zeitraum von 5 min die Minimaltemperatur von 12 K gemessen wird. Der Flüssigheliumverbrauch kann auf diese Art und Weise auf 10 L pro Abkühlvorgang gesenkt werden, die Kosten sind dabei durch den gesenkten Heliumverbrauch und den Anschluss an die Heliumrückgewinnungsanlage um einen Faktor 50 reduziert.

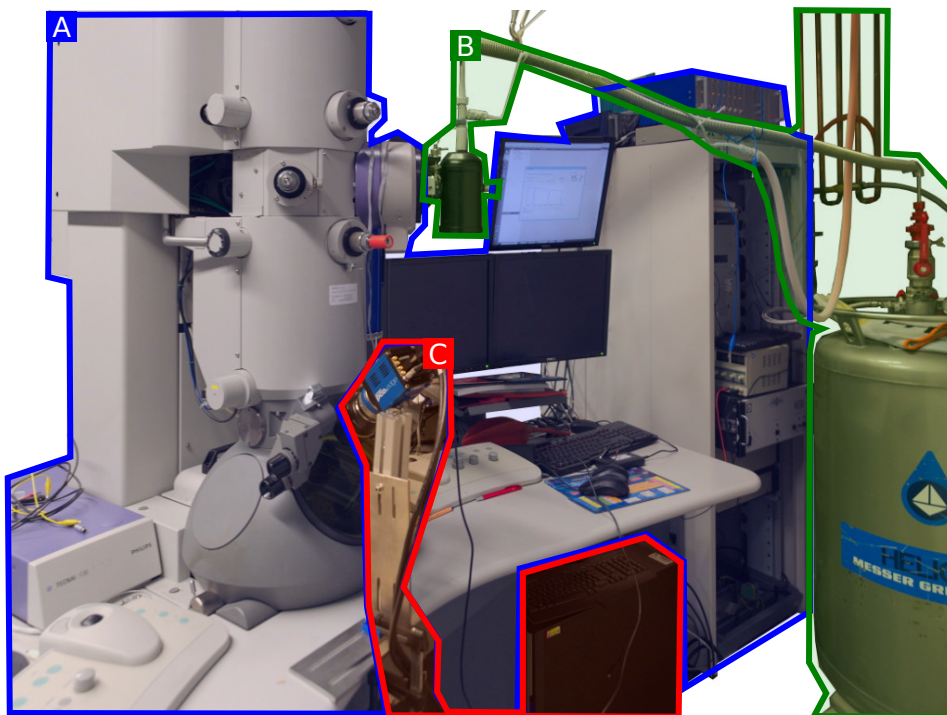


Abbildung 3.13: Messaufbau für zeitaufgelöste Messungen bei tiefen Temperaturen. A zeigt das Transmissionselektronenmikroskop. Die Hochgeschwindigkeitskamera (C) ist an einen Spezialrechner angeschlossen und filmt durch die Bleiglasscheibe einen Phosphoreszenzschirm. B zeigt den Heliumhalter mit der modifizierten Überhebevorrichtung.

## 4 Helimagnetismus in einer Heuslerschen Legierung

Heuslersche Legierungen sind eine große Familie verschiedener Verbindungen, die interessante fundamentale und technologische Eigenschaften besitzen. Ein großer Vorteil der Heuslerschen Legierungen ist die Durchstimmbbarkeit der Eigenschaften durch das chemische Ersetzen von einzelnen Elementen.

Die magnetischen Heusler bieten eine Plattform zum Design von anisotropen und acentrischen Raumtemperatur-Magneten mit einer flexiblen magnetischen Konfiguration [86]. Insbesondere die sog. halben Heusler Legierungen wie  $\text{Mn}_2\text{YZ}$  mit verschiedenen magnetischen Untergittern sind potentielle Kandidaten für die Erzeugung von Skyrmionen. Allerdings weisen diese Systeme ein hochsymmetrisches, kubisches Kristallgitter auf und besitzen daher keine Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung. In einigen dieser Materialien ist es aber möglich die DMI durch einen Übergang von kubischen zu tetragonalen Kristallgittern zu erzeugen [87, 88]. Theoretische Berechnungen zeigen, dass dadurch magnetische Skyrmionen spontan, d.h. ohne externes Feld, oder durch Feldanregung entstehen können [89].

Spontane Skyrmionen wurden schon vor dem experimentellen Nachweis der Skyrmionen vorhergesagt [90] und sind besonders für technologische Anwendungen interessant. Nachgewiesen sind atomare, spontane Skyrmionengitter beispielsweise in Eisen-Monolagen durch Spin-aufgelöste Rastertunnelmikroskopie [91].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die tetragonale Heusler-Legierung  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  untersucht. Magnetisierungs- und Suszeptibilitätsmessungen zeigen starke Indizien für einen magnetischen Phasenübergang bei 160 K und deuten auf die Existenz von spontanen Skyrmionen hin. Im TEM wurde die helikale Phase über große Temperaturbereiche nachgewiesen, jedoch konnten Skyrmionen nicht eindeutig nachgewiesen werden. Bei 160 K tauchen in einem engen Temperaturbereich punktförmige Merkmale auf, die sich teilweise auf Kontaminationen zurückführen lassen.

Das Wachsen der  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  Bulk-Probe und die magnetischen Bulk-Messungen an diesen Proben wurden von Ajaya Nayak<sup>1</sup>, die TEM-Messungen vom Autor der Dissertation durchgeführt. Die Auswertung der TEM-Messungen erfolgte durch Ajaya Nayak und dem Autor.

---

<sup>1</sup>Max-Planck-Institut für chemische Physik fester Stoffe in Dresden und Max-Planck-Institut für Mikrostrukturen in Halle

## 4.1 Bulk-Messungen

Die  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  Bulk-Probe wurde in einem Lichtbogen-Schmelzofen unter hochreiner Argon-Atmosphäre bei 1073 K eine Woche lang durchgeglüht und anschließend in Eiswasser abgeschreckt. XRD-Messungen (engl. x-ray powder diffraction) zeigen, dass  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  eine tetragonale Kristallstruktur aufweist und zur Raumgruppe  $I\bar{4}2m$  gehört.

Die in Abbildung 4.1 gezeigten Magnetisierungs- und AC-Suszeptibilitätsmessungen wurden in einem SQUID VSM (engl. super conducting quantum interference device vibrating sample magnetometer) durchgeführt. Die Magnetisierungskurve zeigt, dass die Curie-Temperatur bei 400 K liegt und gibt Hinweise auf eine Spinreorientierung bei 160 K. In der AC-Suszeptibilität ist zwischen 130 K und 160 K ein Minimum sichtbar, welches typisch für die Skyrmionenphase ist [92]. Das Minimum ist zudem ohne externes Magnetfeld messbar, was auf eine spontane Skyrmionenphase deutet.

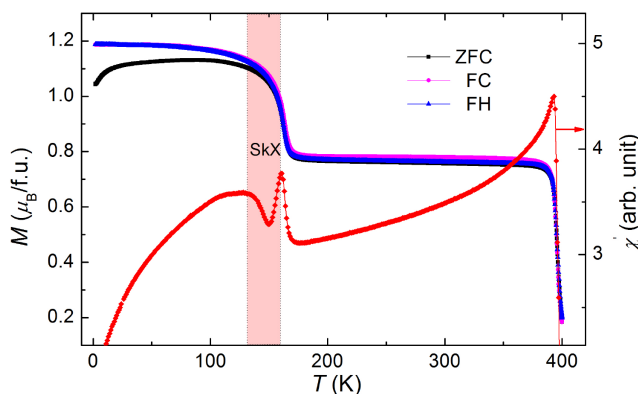


Abbildung 4.1: Magnetisierung und AC-Suszeptibilität in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Magnetisierungskurve zeigt, dass eine Spinreorientierung bei 160 K stattfindet und die Curie-Temperatur bei 400 K liegt. In der AC-Suszeptibilität ist ein Ausschlag zwischen 130 K und 160 K sichtbar, was auf eine spontane Skyrmionenphase hindeutet.

## 4.2 Probe

Für das TEM wurde die Bulk-Probenpräparation angewandt, wie in Kapitel 3.5 beschrieben. Eine typische Probenstelle bei Raumtemperatur ohne externes Magnetfeld ist in Abbildung 4.2 gezeigt. Teilbild 4.2A wurde im Fokus aufgenommen und enthält keinen magnetischen Kontrast. Elektronenbeugungsmessungen ergaben, dass

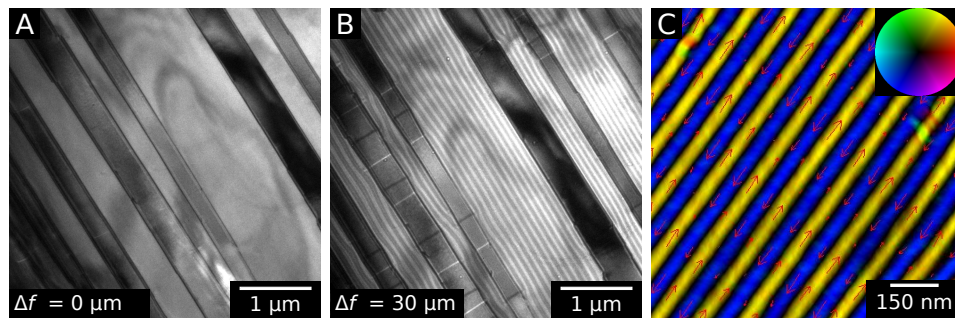


Abbildung 4.2: Typische Probenstelle bei Raumtemperatur ohne externes Magnetfeld. A ist eine LTEM-Aufnahme im Fokus ohne magnetischen Kontrast. Zwischen den hellen und dunklen Streifen befindet sich jeweils eine Zwillingsversetzung. Die überfokussierte LTEM-Messung in B zeigt die helikale Phase in den hellen Bereichen mit einer Periodizität von 110 nm. In C ist die rekonstruierte magnetische Induktion durch die TIE dargestellt, mit der entgegengesetzten Ausrichtung von benachbarten Streifen.

sich an den Rändern der hellen und dunklen Streifen jeweils  $180^\circ$  Zwillingsversetzungen befinden. Damit weisen die einzelnen Streifen eine gespiegelte Kristallstruktur zueinander auf und haben die typischen hell-dunkel Kontraste  $180^\circ$  gedrehter Kristallstrukturen [93, 94]. Abbildung 4.2B zeigt eine um  $\Delta f = 30 \mu\text{m}$  überfokussierte LTEM-Aufnahme mit magnetischen Streifen in den hellen Bereichen und größeren Domänen in den dunklen Flächen. Die rekonstruierte magnetische Induktion durch die TIE der magnetischen Streifen ist in Abbildung 4.2C dargestellt. Benachbarte Streifen sind jeweils in entgegengesetzter Richtung magnetisiert mit einer Modulationswellenlänge von 110 nm. Durch das sinusartige Kontrastprofil der Streifen und die große Ähnlichkeit zu anderen LTEM-Messungen [14–16] ist diese Spintextur der helikalen Phase zuzuordnen. Die Magnetfeld- und Temperaturabhängigkeit der helikalen Phase wird im Folgenden genauer erläutert.

### 4.3 Helikale Phase

Die Magnetfeldabhängigkeit der helikalen Phase ist in Abbildung 4.3A-E gezeigt. Mit zunehmendem Feld vergrößern sich die Abstände zwischen den einzelnen Streifen. Ab einem Feld von über 250 mT verschwinden die Streifen komplett und es ist kein magnetischer Kontrast mehr detektierbar. Abbildung 4.3F zeigt eine DPC-Aufnahme der Streifen ohne externes Magnetfeld und bestätigt damit die Rekonstruktionen der magnetischen Induktion durch die TIE.

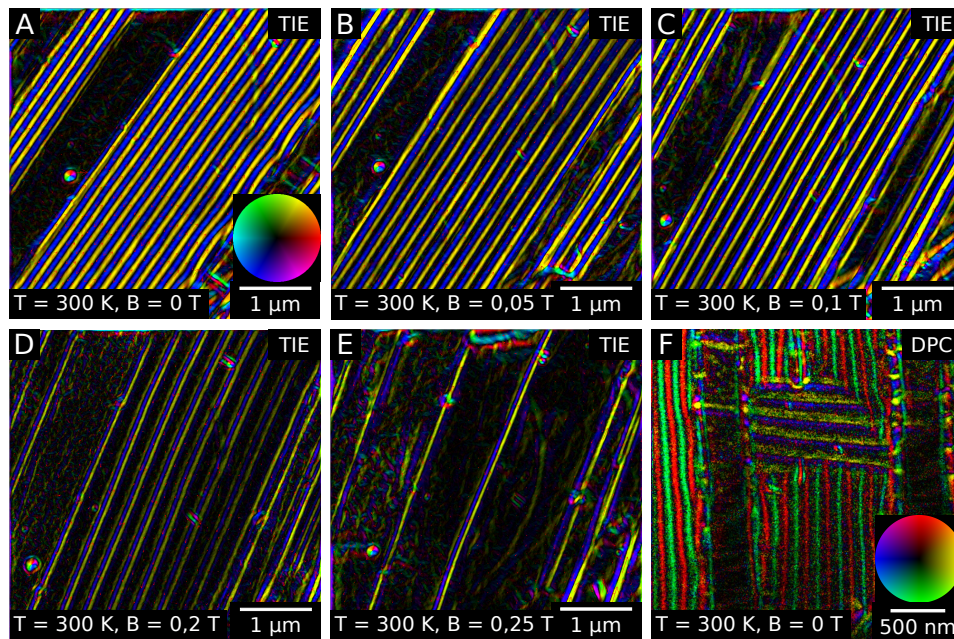


Abbildung 4.3: Einfluss eines externen Magnetfelds auf die helikale Phase. A-F zeigt in rekonstruierten TIE-Bildern wie sich der Abstand der Streifen mit zunehmendem Feld vergrößert. Bei einer Feldstärke von über 250 mT verschwinden die Streifen. Die DPC-Aufnahme in F bestätigt die Rekonstruktion durch die TIE und zeigt einen Defekt.

Die DPC-Aufnahme zeigt eine Stelle an der sich ein Defekt gebildet hat. Diese Defekte haben, sofern sie bei Raumtemperatur vorhanden sind, die Tendenz sich bei höheren Temperaturen aufzulösen. In einem Heizexperiment wurde die Probe über die Curie-Temperatur  $T_C = 400$  K aufgeheizt. Über  $T_C$  verschwindet jeglicher magnetischer Kontrast und nach langsamen Abkühlen auf Raumtemperatur ist die Anzahl der Defekte sehr gering. Kühlt man die Probe auf tiefe Temperaturen bis zu 12 K ab, wie in Abbildung 4.4 gezeigt, bilden sich vermehrt Defekte. Die beiden Teilbilder in Abbildung 4.4 zeigen die helikale Phase mit Defekten bei 22 K und 20 K. Durch Aufwärmen auf Zimmertemperatur lösen sich diese Defekte teilweise wieder auf. Im abgekühlten Zustand ergibt sich ein ähnliche Magnetfeldabhängigkeit wie bei Raumtemperatur und ab einer Feldstärke von 250 mT verschwindet die helikale Phase.

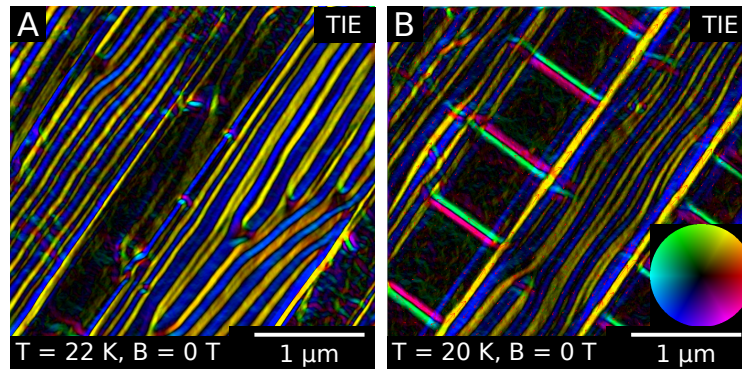


Abbildung 4.4: Beim Abkühlen der Probe auf bis zu 12 K entstehen Defekte in der helikalen Phase. Diese Defekte lösen sich teilweise bei Zimmertemperatur wieder auf. In Teilbild A beträgt die Temperatur 22 K und in B 20 K, bei einem Magnetfeld von 0 T.

#### 4.4 Punktförmige Kontraste

Die magnetischen Messungen an der Bulk-Probe zeigen Indizien für eine Skyrmionenphase ohne externem Magnetfeld im Bereich zwischen 130 K und 160 K. Beim Abkühlen der Probe von Zimmertemperatur in diesen Temperaturbereich sind keine Kontraständerungen sichtbar, doch tauchen Kontraste auf, wenn man weit unter 130 K abkühlt und sich von unten dem interessanten Bereich annähert. Die Kontraste haben eine endliche, rotationssymmetrische Ausdehnung und werden im Folgenden als punktförmig bezeichnet. Eine Rekonstruktion der magnetischen Indukti-

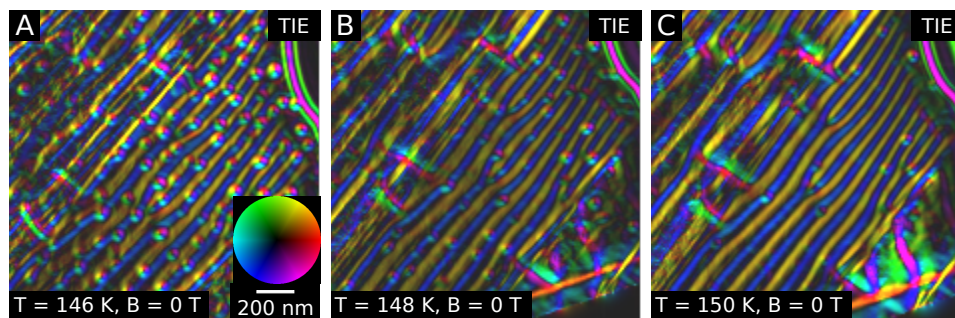


Abbildung 4.5: Runde Merkmale tauchen beim Aufwärmen der Probe ab 146 K in einem engen Temperaturbereich auf. Die Teilbilder A, B und C zeigen Rekonstruktionen durch die TIE für Temperaturen von 146 K, 148 K und 150 K bei Nullfeld.

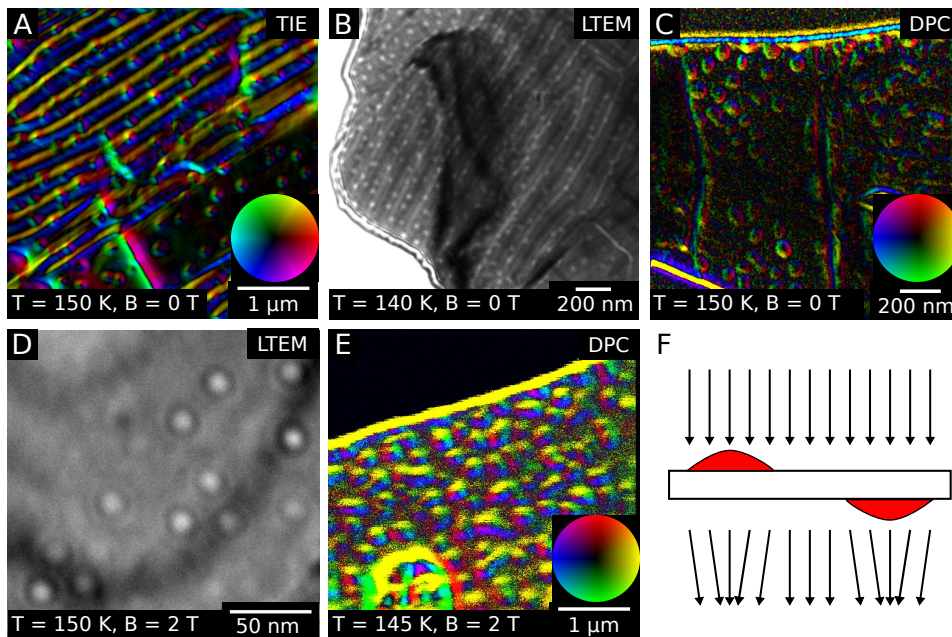


Abbildung 4.6: Messungen der punktförmigen Kontraste durch verschiedene Methoden und mit unterschiedlichen angelegten Magnetfeldern. A und B zeigen wie sich die Punkte scheinbar willkürlich auf der Probe anordnen. Vergleicht man die beiden Messungen mit der DPC-Aufnahme in C, fällt die unterschiedliche Größe der Punkte auf. In D und E ist gezeigt, dass die punktförmigen Merkmale auch bei hohen Magnetfeldern von 2 T existieren. Teilbild F zeigt, dass Tropfen auf der Oberfläche einen ähnlichen Kontrast erzeugen können.

on durch die TIE für verschiedene Temperaturen ist in Abbildung 4.5 gezeigt. Bei 146 K tauchen in Teilbild 4.5A über die komplette Probe verteilt runde Punkte mit scheinbar rotierender magnetischer Induktion auf, die bei 148 K deutlich weniger werden und schließlich bei 150 K fast komplett verschwinden. Wie in Abbildung 4.5 zu sehen, ändert sich die helikale Phase dabei nicht.

In typischen TEM-Messungen an Bulk-Skymionenmaterialien wie  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$  entstehen Skymionen aus der helikalen Phase heraus. Dabei teilen sich die Streifen und bilden runde Skymionen [14]. In den TEM-Messungen an  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  lässt sich jedoch ein komplett unterschiedliches Verhalten beobachten. Weitere Aufnahmen bei verschiedenen Temperaturen und Magnetfeldern sind in Abbildung 4.6A-E dargestellt. Teilbilder 4.6A-C zeigen durch die TIE-Rekonstruktion, LTEM und DPC, dass

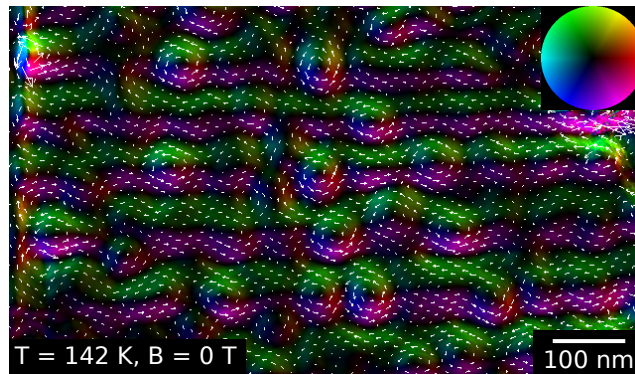


Abbildung 4.7: TIE-Rekonstruktion in der sich Punkte scheinbar an der helikalen Phase anordnen und diese aufbrechen. Diese Art von Messungen sprechen eher dafür, dass zusätzlich zu Kontaminationen auch magnetische Strukturen im interessanten Temperaturbereich entstehen.

sich die Punkte in Bereichen mit helikaler Phase, aber auch an den Stellen mit größeren Domänen scheinbar gleichmäßig verteilen. Die punktförmigen Merkmale sind damit unabhängig von Kristalldrehungen um  $180^\circ$  durch die Zwillingsversetzungen. Die Teilbilder 4.6D und E zeigen Aufnahmen mit hochangeregter Objektivlinse bei einem externen Magnetfeld von 2 T. Die Messungen zeigen, dass sich die Punkte durch die externen Felder nicht verändern. Die Bilder zeigen auch, dass die Größe der Punkte stark variiert mit einem Durchmesser von 10 nm bis 100 nm.

Die Unabhängigkeit von der helikalen Phase, der Kristallrichtung und dem externen Magnetfeld sprechen dafür, dass die punktförmigen Merkmale in den Messungen keine magnetischen Strukturen sind. Eine mögliche Erklärung für die Erscheinung der Punkte wäre, dass es sich um Kontamination in der Probenkammer handelt, die bei 140 K Tröpfchen auf der Probe bildet. In Abbildung 4.6F ist skizziert, wie Tröpfchen auf der Probe die einfallenden Elektronen ablenken. Der dabei entstehende Kontrast erzeugt bei überfokussierten LTEM-Aufnahmen helle Punkte wie bei magnetischen Skyrmionen. In den TIE-Rekonstruktionen und DPC-Aufnahmen wird jeglicher Kontrast als magnetisch interpretiert und solche Punkte fälschlicherweise als rotierende magnetische Induktion dargestellt.

Um die Kontaminationen eindeutig nachzuweisen wurden verschiedene andere Probenmaterialien abgekühlt und im Bereich zwischen 140 – 150 K untersucht. Dabei konnte festgestellt werden, dass bei GaN-Querpräparaten und Co-Filmen keine Punkte entstehen. Jedoch wurden in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  diese Punkte ab 140 K nachgewiesen. In diesem Temperaturbereich ist  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  paramagnetisch und eine Skyr-

mionenphase entsteht erst bei Temperaturen unterhalb von 36 K. Damit ist es sehr wahrscheinlich, dass die gemessenen Merkmale auf Kontaminationen zurückzuführen sind. Dennoch geben die Magnetisierungs- und AC-Suszeptibilitätsmessungen Indizien für eine spontane Skyrmionenphase. Auch anhand von vereinzelt aufgenommenen wie in Abbildung 4.7 gezeigt können spontane Skyrmionen nicht komplett ausgeschlossen werden. In der TIE-Rekonstruktion ist zu erkennen, dass die punktförmigen Merkmale immer über zwei Streifen liegen und diese scheinbar aufbrechen. Die Anordnung der Punkte kann auch zufällig auf die Streifen fallen, dennoch sprechen diese Messungen eher für magnetische Strukturen als für Kontaminationen, da sie dem Übergang von Skyrmionen zu helikaler Phase in anderen TEM-Messungen stark ähneln [14, 15].

### 4.5 Zusammenfassung

Es wurde die tetragonale Heusler-Legierung  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  auf Helimagnetismus hin untersucht. Ab der Curie-Temperatur von 400 K bis zu einer Temperatur von 12 K wurde die helikale Phase nachgewiesen. Sie bildet zu tiefen Temperaturen hin vermehrt Defekte und kann durch ein externes Magnetfeld beeinflusst werden. Die Abstände der Streifen vergrößern sich mit zunehmendem Feld und die Streifen verschwinden für Felder größer als 250 mT.

Magnetisierungs- und Suszeptibilitätsmessungen am Bulk-Kristall geben deutliche Hinweise auf eine spontane Skyrmionenphase zwischen 130 K und 160 K. In diesem Temperaturbereich wurden punktförmige Merkmale beobachtet. Die Punkte scheinen in den meisten Fällen unabhängig von der Kristallrichtung, der helikalen Phase und von externen Magnetfeldern und sind daher höchstwahrscheinlich auf Kontaminationen zurückzuführen, die Tröpfchen auf der Probenoberfläche ausbilden. Dafür spricht, dass ähnliche punktförmige Merkmale bei identischen Temperaturen auch in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  nachgewiesen wurden. Nur vereinzelte Messungen in  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  zeigen, wie sich Punkte entlang von Streifen der helikalen Phase anordnen und diese aufbrechen. Es kann daher nicht vollständig ausgeschlossen werden, dass zusätzlich zu den Kontaminationen auch magnetische Strukturen entstehen.

## 5 Skyrmionengitterkorngrenzen in $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$

Skyrmionengitter können durch zwei unterschiedliche Ansätze beschrieben werden. Zum einem durch das Wellenbild. Dabei entsteht das Skyrmionengitter durch die Überlagerung von drei Spinhelices deren Ausbreitungsvektoren um  $120^\circ$  verkippt sind. Aus dieser Sicht kann man nicht von einem individuellen, teilchenartigen Charakter einzelner Skyrmionen ausgehen. Interessant ist, dass beispielsweise bei Neutronenbeugungsexperimenten an Skyrmionengittern in MnSi die höheren Ordnungen im reziproken Gitter quasi nicht vorhanden sind [44], was für eine sehr glatte Spinstruktur spricht. Im Gegensatz dazu steht das Teilchenbild von Skyrmionen, dabei wird ein einzelnes Skyrmion als eine topologisch stabile Spinstruktur angesehen. Tatsächlich wurden vereinzelte Skyrmionen schon beobachtet [14, 16, 28], allerdings ist der Grad des Teilchencharakters noch unklar. In diesem Kapitel wird die zeitliche Entwicklung von Störungen in hexagonalen Skyrmionengittern untersucht, die den Teilchencharakter der Skyrmionen stärken.

Das Skyrmionengitter in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  kann sich in Domänen mit unterschiedlicher Gitterausrichtung unterteilen [95]. Die Grenzen solcher Domänen wurden im Realraum bereits abgebildet [75, 76, 96, 97], allerdings ohne Untersuchung der dynamischen Eigenschaften. Im Folgenden werden Skyrmionengitter in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  auf ihre Defekte und deren Dynamik hin mit Hochgeschwindigkeitsvideos untersucht. Es konnten Gitterkorngrenzen bei verschiedenen Kippwinkeln abgebildet und analysiert werden, da die inhomogene Wärmeverteilung durch den Elektronenstrahl im TEM ein Drehmoment auf das Skyrmionengitter ausübt.

Die Messungen ergaben, dass 5-7 Defekte die wichtigste Rolle bei Umordnungsprozessen im Gitter bilden. In anderen hexagonalen Teilchengittern aus Atomen oder Kolloiden existieren ebenfalls hauptsächlich 5-7 Defekte, die ein sehr ähnliches dynamisches Verhalten wie im Skyrmionengitter aufweisen. Treten Gitterkorngrenzen auf, so bestehen diese aus einer Hintereinanderreihung von 5-7 Defekten, abhängig vom Kippwinkel zwischen den Domänen. Es wurden systematisch die Defektdichten entlang der Korngrenzen vermessen und durch klassische Monte-Carlo-Simulationen gestützt. Die Ergebnisse können mit der Frankschen Formel für Kleinwinkelgitterkorngrenzen für alle Kippwinkel beschrieben werden. Um das qualitative Verhalten

der Skyrmionen unter dem Einfluss des thermischen Gradienten des Elektronenstrahls zu verifizieren wurden viele Skyrmionen in einem Teilchenmodell simuliert. Die Simulationen passen dabei sehr gut zu den Messungen und bestätigen den starken Teilchencharakter der Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ .

Die Bulk-Probe wurde von Helmut Berger<sup>1</sup> gewachsen, alle TEM-Messungen wurden von Simon Pöllath<sup>2</sup> und dem Autor durchgeführt. Die Auswertung der CCD-Bilder und der Hochgeschwindigkeitsvideos erfolgte hauptsächlich durch den Autor. Simon Pöllath führte in den Hochgeschwindigkeitsvideos die Auswertung der Einzeldefekte und Gittergrenzen durch und berechnete klassische Monte-Carlo-Simulationen zur Defektdichte. Lukas Heinen<sup>3</sup> berechnete die teilchenartigen Simulationen. Die Ergebnisse sind in Quelle [98] publiziert.

### 5.1 Probe

Die  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  Bulk-Probe wurde durch chemische Gasphasenabscheidung gewachsen, anschließend wurde ein Scheibchen herausgeschnitten, so dass die Flächennor-

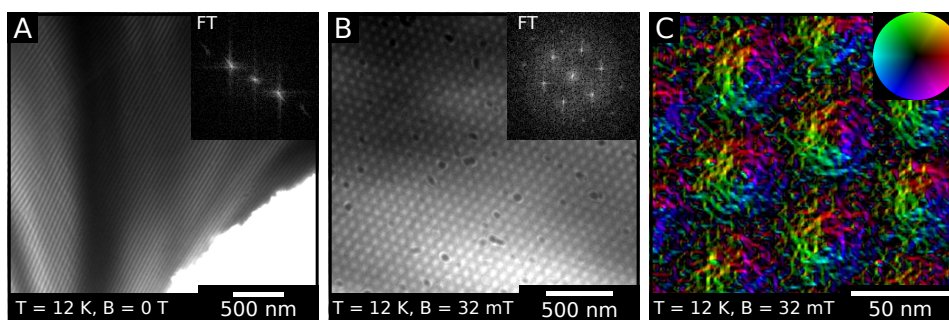


Abbildung 5.1: A zeigt die helikale Phase bei 12 K ohne externes Magnetfeld, unten rechts ist der Probenrand zu erkennen, dessen starke Aufladung zu einer Ablenkung des Strahls führt. Teilbild B zeigt eine Aufnahme der Skyrmionenphase nach dem Aufdampfen von Kohlenstoff bei einer Temperatur von 12 K unter einem Magnetfeld von 32 mT. Die dunklen punktförmigen Kontraste sind auf Verunreinigungen durch das Kohlenstoffbedampfen zurückzuführen. C zeigt die für Skyrmionen typische Rekonstruktion der magnetischen Flussdichte durch die TIE.

<sup>1</sup>Crystal Growth Facility, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL)

<sup>2</sup>AG Back, Universität Regensburg

<sup>3</sup>AG Rosch, Universität zu Köln

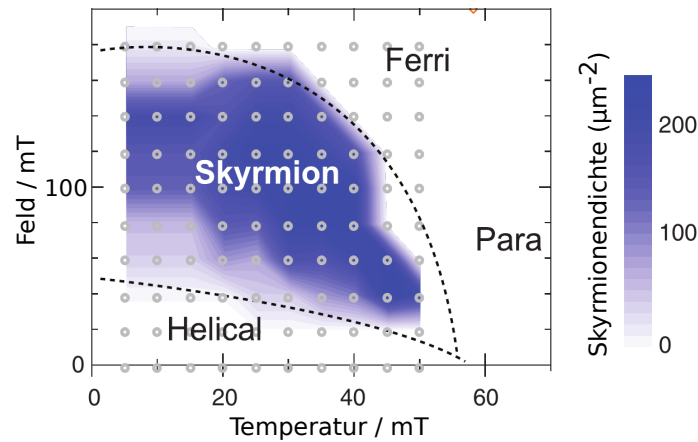


Abbildung 5.2: Durch Seki et al. bestimmtes Phasendiagramm einer TEM-Probe [16]. Die kritische Temperatur beträgt  $T_C \approx 50$  K. Die Skyrmionenphase ist ab dieser Temperatur über einen großen Magnetfeldbereich bis hin zu tiefen Temperaturen messbar. Für kleine Felder bildet sich die helikale Phase aus. Nach [16].

male eine  $\langle 110 \rangle$ -Orientierung aufweist. Dieses Plättchen wurde klassisch präpariert wie in Kapitel 3.5 beschrieben. Ein Bild der helikalen Phase nach der Präparation bei 12 K ohne externes Magnetfeld ist in Abbildung 5.1A gezeigt. Unten rechts im Bild ist der Rand der Probe zu sehen, der aufgrund der schlechten Leitfähigkeit von  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  starke Aufladungen zeigt was zu Strahlablennungen führt. Die Aufladungen führen zudem zu einem Drift der Probe und teilweise zu Verzerrungen. Die helikale Phase ist über große Teile der Probe verteilt und die Fouriertransformation oben rechts spiegelt die unidirektionale Ausbreitungsrichtung der helikalen Phase in ihrer zweizähligen Symmetrie wieder.

Um den Aufladungen entgegenzuwirken wurde die komplette Probe von zwei Seiten mit ein paar Nanometer Kohlenstoff bedampft. Eine Aufnahme bei 12 K unter einem externen Magnetfeld von 32 mT der Skyrmionenphase nach dem Bedampfen ist in Abbildung 5.1B gezeigt. Die schwarzen punktförmigen Kontraste sind auf Verunreinigungen durch das Kohlenstoffaufdampfen zurückzuführen. In der Fouriertransformierten (FT) oben rechts ist die hexagonale Struktur des Skyrmionengitters mit höheren Ordnungen abgebildet. Die höheren Ordnungen geben Informationen zur Feinstruktur der Spintextur einzelner Skyrmionen und sprechen für einen relativ abrupten Anstieg des Kontrasts. Im Gegensatz dazu sind bei Neutronenmessungen an  $\text{MnSi}$  höhere Ordnungen mit einem Faktor  $10^{-4}$  extrem unterdrückt was für eine sehr glatte, sinusförmige Spinstruktur spricht [44]. Die Rekonstruktion durch

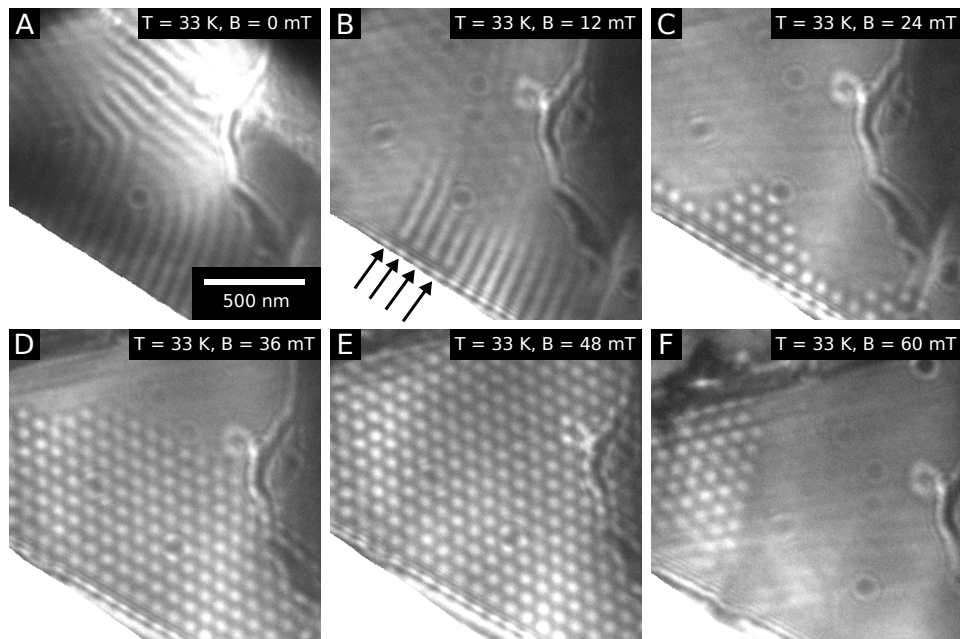


Abbildung 5.3: Magnetfeldabhängigkeit der Probe bei 33 K. Teilbilder A-C zeigen den Übergang von der helikalen Phase in die Skyrmionenphase. Dabei entstehen bei einem Feld von 12 mT einzelne Skyrmionen am Rand der Probe (mit Pfeilen markiert), die sich von dort über die Probe ausbreiten. B zeigt ein geschlossenes Skyrmionengitter bei einem Magnetfeld von 48 mT über die komplette Probe, das bei einem Feld von 60 mT in Teilbild F teilweise verschwindet und in die konische Phase übergeht.

die TIE in Abbildung 5.1C zeigt die für Skyrmionen typische Rotation der magn. Flussdichte mit gleichem Rotationssinn für alle Skyrmionen. Der Abstand zwischen den Skyrmionen beträgt  $\sim 50 \text{ nm}$ .

Die Skyrmionenphase findet sich in TEM-Proben typischerweise in einem großen Bereich des Phasendiagramms, verglichen mit Bulk-Proben. Ein durch LTEM aufgenommenes Phasendiagramm für  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  aus Quelle [16] ist in Abbildung 5.2 gezeigt. Die Skyrmionenphase ist ab  $\approx 50 \text{ K}$  bis hin zu tiefen Temperaturen in großen Bereichen beobachtbar.

Für die Messungen in diesem Kapitel ist es wichtig ein möglichst geschlossenes Skyrmionengitter über die komplette Probe zu stabilisieren. Dazu wurde die Magnetfeldabhängigkeit der Skyrmionenphase nach Abkühlen unter Nullfeld auf 33 K untersucht, die in Abbildung 5.3 dargestellt ist. Die helikale Phase geht in den Teil-

bildern 5.3A-C in die Skyrmionenphase über. Dabei entstehen bei einem Magnetfeld von 12 mT erst einzelne Skyrmionen am Probenrand, die sich von dort mit zunehmenden Feldern über die Probe ausbreiten. Für ein Feld von 48 mT ist auf der kompletten Probe ein Skyrmionengitter messbar, wie in Teilbild E gezeigt, und geht für höhere Magnetfelder in die konische Phase über.

Die Messungen in Abbildung 5.3 zeigen, dass ein Skyrmionengitter bei 33 K unter einem Feld von 48 mT stabilisiert wird. Alle folgende Messungen in diesem Kapitel wurden ebenfalls mit einem Feld von 48 mT bei einer Temperatur von 18 K durchgeführt. Dabei wurde erst ohne Magnetfeld abgekühlt und anschließend das Feld erhöht.

## 5.2 Thermisch induzierte Skyrmionenbewegung

Beim Betrachten der Skyrmionenphase im TEM mit hoher Strahlintensität wird das Skyrmionengitter unter günstigen Randbedingungen in Rotation versetzt. Abbildung 5.4A-E zeigt die Fouriertransformierte der LTEM Aufnahmen des Skyrmionengitters

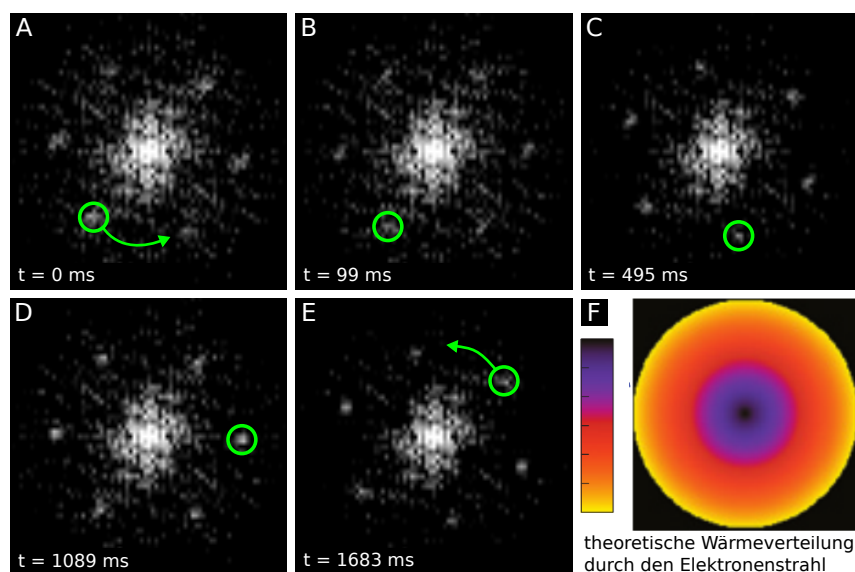


Abbildung 5.4: A-E zeigt die Rotation des Skyrmionengitters anhand der Fouriertransformierten. Die Winkelgeschwindigkeit beträgt in diesem Fall  $0,1^\circ/\text{s}$ . Erklären lässt sich dieses Phänomen durch einen gaußförmigen Temperaturgradienten wie in F gezeigt, der durch den Elektronenstrahl beim Betrachten im TEM entsteht. F nach [99].

während der Drehung. Die Rotation erfolgt gegen den Uhrzeigersinn und besitzt in diesem Fall eine Winkelgeschwindigkeit von  $0,1^\circ/\text{s}$ . Das Drehmoment auf das Skymionengitter entsteht durch den Temperaturgradient, den der Elektronenstrahl in der Probe erzeugt.

Mochizuki et al. zeigten in Simulationen, dass eine gaußförmige Wärmeverteilung, wie in Abbildung 5.4F gezeigt, ein Drehmoment auf das Skymionengitter ausübt [99]. Dieser Temperaturgradient erzeugt einen Magnonenstrom, der mit den Skymionen durch den intrinsischen Hall-Effekt wechselwirkt und eine Kraft ausübt [27, 99, 100]. Neutronenbeugungsmessungen zeigen zudem, dass Skymionengitter ebenfalls durch die Kombination aus elektrischen Strömen und Temperaturgradienten in Rotation versetzt werden können [27, 100, 101].

Die mechanische Präparation der Probe führt zu einer inhomogenen Dickenverteilung, die wiederum zu einer inhomogenen Absorption des Elektronenstrahls führt. Dadurch entstehen komplizierte Temperaturgradienten, die ortsabhängige Drehmomente auf das Skymionengitter ausüben. Diese Drehmomente führen je nach Randbedingung außerhalb des Temperaturgradienten dazu, dass sich Defekte im Gitter bilden, Gitterkorngrenzen entstehen oder das Gitter in Rotation versetzt wird.

### 5.3 Datenauswertung

Um das Verhalten von Defekten in Skymionengittern zu verfolgen ist eine umfangreiche Auswerteprozedur nötig. Die einzelnen Schritte sind in Abbildung 5.5 dargestellt. Teilbild A zeigt ein Einzelbild eines Hochgeschwindigkeitsvideos mit einer Skymionengitterkorngrenze. Die Einzelbilder wurden zuerst am ersten Teilbild ausgerichtet um jegliche Probendrifts zu kompensieren. Danach folgt die Subtraktion des nichtmagnetischen Hintergrunds welcher durch die Mittlung von fünf Einzelbildern erzeugt wird. Der Umstand der vollkommen freien Bewegung des Gitters in der Probe macht diese Vorgehensweise möglich. Das Ergebnis nach der Subtraktion des unmagnetischen Hintergrunds ist in Abbildung 5.5B gezeigt. Die schiefe Beleuchtung und das Abfilmen des Phosphoreszenzschirms führt zu einer Verzerrung der Aufnahme, was in der Elliptizität der FT oben rechts zu sehen ist. Durch Strecken und Drehen wird die Verzerrung kompensiert, wie in Teilbild C gezeigt.

Das Signal-Rausch-Verhältnis wird durch die Anwendung eines FT-Bandpassfilters erhöht, wie in Teilbild D abgebildet. Die Skymionenpositionen wurden anschließend durch eine lokale Maximadetektion bestimmt. Die gefunden Positionen sind in Teilbild E als rote Punkte eingezeichnet.

Schließlich wurde die Delaunay-Triangulation auf die Skymionenpositionen angewandt, welche ein Dreiecksnetz generiert [102]. Dabei werden die einzelnen Skymionenpositionen so verbunden, dass Dreiecke entstehen die maximale Innenwinkel aufweisen. In einem hexagonalen Gitter ergeben sich dadurch gleichseitige Dreiecke,

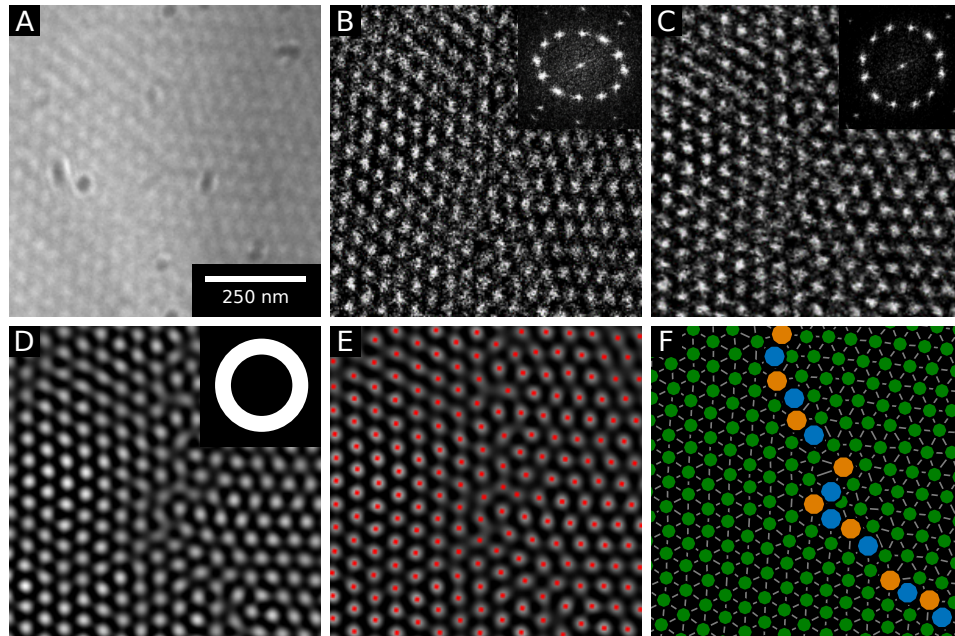


Abbildung 5.5: Prozessierung der Einzelbilder aus den Hochgeschwindigkeitsvideos am Beispiel einer Skyrmionengitterkorngrenze. A zeigt das unbearbeitete Rohbild in dem sich zwei Skyrmionengitterdomänen mit unterschiedlicher Orientierung befinden. In B ist der nicht-magnetische Hintergrund abgezogen. Die Fouriertransformierte oben rechts zeigt zwei verzerrte hexagonale Gitter mit unterschiedlichen Orientierungen. Die Verzerrung kann durch Streckung des Bildes behoben werden wie in Teilbild C gezeigt. Anschließend wurde ein FT-Bandpassfilter angewandt, wie in D dargestellt. Der Filter im reziproken Raum ist oben rechts abgebildet. Die Skyrmionenpositionen wurden mit einem Algorithmus bestimmt, der lokale Maxima findet, die in Teilbild E mit roten Punkten markiert sind. Schließlich wurde die Delaunay-Triangulation auf die Skyrmionenpositionen angewandt und die Anzahl der nächsten Nachbarn durch Farben dargestellt. Skyrmionen mit sechs Nachbarn sind grün, mit fünf Nachbarn blau und solche mit sieben Nachbarn orange markiert. Man sieht, dass die Defekte hauptsächlich entlang der Gitterkorngrenze auftreten. Nach [34].

die sich besonders eignen um die Anzahl der nächsten Nachbarn an jedem Gitterpunkt zu bestimmen. Diese lassen sich aus der Anzahl der Dreiecke, die mit einem Gitterpunkt verbunden sind, direkt angeben.

In Abbildung 5.5F ist die Delaunay-Triangulation gezeigt und die Anzahl der nächsten Nachbarn mit verschiedenen Farben markiert. Skyrmionen mit sechs Nachbarn sind grün, mit fünf blau und solche mit sieben orange gekennzeichnet. In der Abbildung sieht man entlang der Gitterkorngrenze eine Anhäufung von Skyrmionen mit Nachbarn ungleich sechs. Dabei treten immer paarweise Skyrmionen mit fünf und sieben Nachbarn auf. Eigenschaften dieser Defekte werden im Folgenden genauer diskutiert.

### 5.4 5-7 Defekte

In den Auswertungen der Hochgeschwindigkeitsvideos von Skyrmionengittern in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  durch die Delaunay-Triangulation treten ausschließlich zwei unterschiedliche Gitterdefekte auf. Diese Defekte bestehen aus einem Skyrmion mit fünf Nachbarn, neben einem mit sieben nächsten Nachbarn, immer als Pärchen nebeneinander. Durch das paarweise Auftreten werden die beiden Defekte in dieser Arbeit als eine Einheit betrachtet und (wie von Rajeswari in [97]) 5-7 Defekt genannt.

In Abbildung 5.6A ist solch ein einzelner 5-7 Defekt in der Delaunay-Triangulation gezeigt. Links oben sind die entzerrten LTEM-Rohdaten eingeblendet. Bei genauere Betrachtung liegt der Ursprung des Defekts in zwei Disklinationslinien die aus zwei Richtungen in das Gitter eingeschoben sind und im Skyrmion mit fünf nächsten Nachbarn enden. In Abbildung 5.6A sind diese durch die gelb gepunktete V-förmige Linie gekennzeichnet. Durch Filterung im reziproken Raum können die Disklinationslinien direkt sichtbar gemacht werden. Die Fouriertransformierte des Defekts aus Teilbild 5.6A ist in Abbildung 5.6B gezeigt. Es sind die sechs Punkte der hexagonalen Gitterstruktur und auch höhere Ordnungen sichtbar. Die Rücktransformation der eingezeichneten farbigen Masken ergeben Abbildungen 5.6C-E. In Teilbild D und E ist jeweils der Einschub einer Disklinationslinie ersichtlich, die beide an der Position des Skyrmions mit fünf nächsten Nachbarn enden. In Teilbild C weisen die Linien keine Störungen auf, was zeigt, dass das Skyrmionengitter in dieser Kristallrichtung nicht verzerrt ist. Jedoch sind die Gitterlinien vor und nach dem Defekt um  $3^\circ$  verkippt. Die Disklinationslinien in Abbildung 5.6D und E führen beide zu einer leichten Verbiegung der Gitterlinien, wie in der Abbildung mit rot markiert. Die dynamische Betrachtung zeigt eine starke Fluktuation der 5-7 Defekte. Einzelne Defekte bewegen sich innerhalb von 11 ms um sieben Gitterabstände, was einer minimalen Geschwindigkeit von  $31 \mu\text{m/s}$  entspricht. Die bevorzugte Fluktuationsrichtung ist mit Pfeilen in Abbildung 5.6A gezeigt.

Interessanterweise kommen 5-7 Defekte auch in vielen anderen Teilchengittern vor.

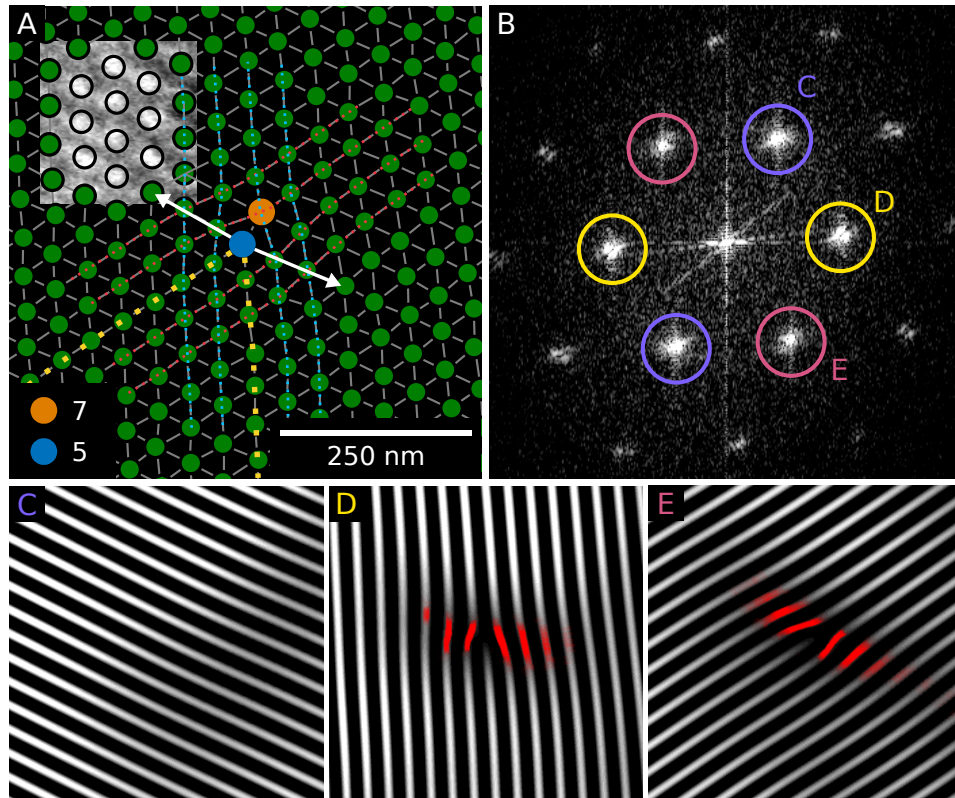


Abbildung 5.6: 5-7 Defekt im Skyrmionengitter von  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ . A zeigt die Delaunay-Triangulation mit eingefügten LTEM-Rohdaten links oben. Der Defekt entsteht durch zwei Disklinationslinien (mit gelb gekennzeichnet), die in zwei Richtungen in das Skyrmionengitter eingefügt sind. Die beiden Pfeile zeigen die bevorzugte Fluktuationsrichtung. Die Fouriertransformierte in B zeigt die hexagonale Gitterstruktur mit höheren Ordnungen. Die eingezeichneten Masken sind auf die Rücktransformierten C-E angewandt worden. In D und E ist jeweils eine Disklinationslinie sichtbar, die zu einer mit rot markierten Verbiegung des Gitters führt. C zeigt, dass in dieser Richtung das Skyrmionengitter nicht verzerrt wird, aber durch den Defekt um einen Winkel von  $3^\circ$  verkippt. Nach [34].

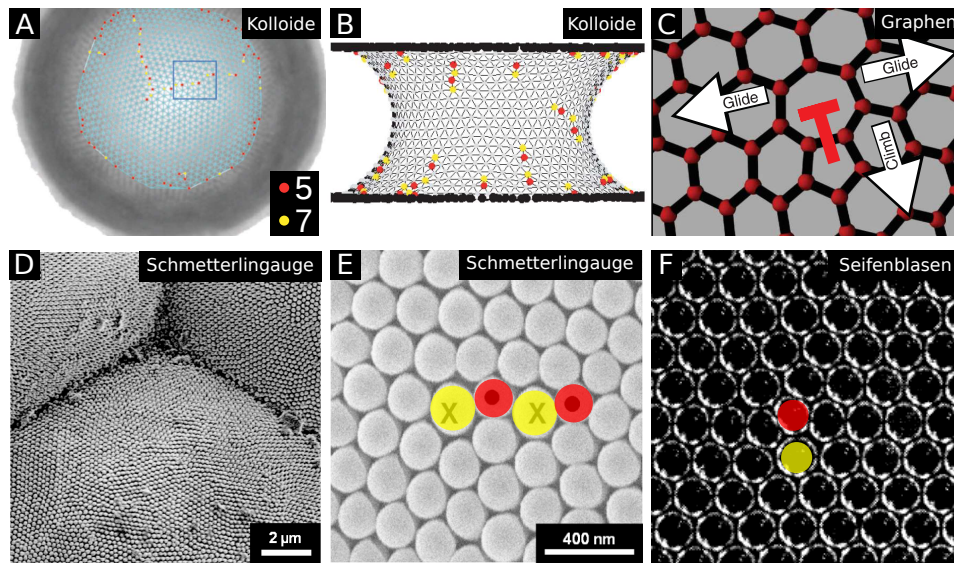


Abbildung 5.7: 5-7 Defekte in anderen Teilchengittern. A und B zeigt die Defekte in Kolloiden auf gekrümmten Oberflächen. In C ist ein Defekt in Graphen gezeigt, der aus einem Ring aus fünf Kohlenstoffatomen und einem aus sieben besteht. Betrachtet man jeden Ring als Teilchen erhält man einen 5-7 Defekt der die selbe bevorzugte Fluktuationsrichtung wie in Skyrmionengittern besitzt. Die Facetten eines Schmetterlingauges verhält sich ebenfalls wie ein Teilchengitter in dem sich ebenfalls 5-7 Defekte ausbilden wie in Teilbild D und E gezeigt. F zeigt einen 5-7 Defekt in einem Gitter aus Seifenblasen. Nach [103–107].

So finden sich diese Defekte beispielsweise in Kolloiden auf gekrümmten Oberflächen wie in Abbildung 5.7A und B gezeigt [103, 104]. Betrachtet man die Kristallstruktur von Graphen, so kann jeder Kohlenstoffring als Teilchen interpretiert werden. In Graphengittern treten Defekte auf, die aus einem Ring mit fünf und mit sieben Kohlenstoffatomen bestehen und damit wieder sehr ähnlich dem 5-7 Defekt in Skyrmionengittern sind. Die bevorzugte Fluktuationsrichtung der Defekte in Graphen ist dabei ähnlich wie in Skyrmionengittern [105], wie Abbildung 5.7C zeigt. Teilbilder D und E zeigen, dass auch Schmetterlingaugen sich innerhalb einzelner Facetten wie Teilchengitter verhalten und 5-7 Defekte ausbilden [106]. Ein weiteres Beispiel sind Seifenblasen in einer Wasser-Lauge-Lösung wie von Bragg publiziert [107] und in Abbildung 5.7F gezeigt.

## 5.5 Korngrenzen in Skyrmionengittern

Um den Teilchencharakter der Skyrmionen genauer zu untersuchen wird im Folgenden die Dynamik von Korngrenzen in Skyrmionengittern untersucht. Dazu wurden zunächst die Defekte an den Grenzen einzelner Domänen in Abhängigkeit des Kippwinkels  $\Delta\Theta$  quantifiziert und mit klassischen Monte-Carlo-Simulationen verglichen. Der Winkel  $\Delta\Theta$  kann dabei aus Symmetriegründen Werte im Bereich von  $0 - 30^\circ$  annehmen.

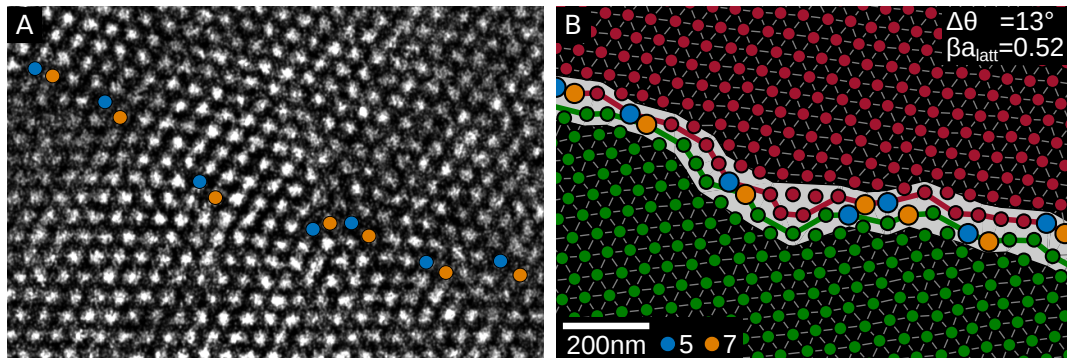


Abbildung 5.8: Exemplarische Auswertung einer Skyrmionengitterkorngrenze. Teilbild A zeigt prozessierte LTEM-Rohdaten mit markierten 5-7 Defekten. In B wurde die Delaunay-Triangulation angewandt und die beiden unterschiedlich orientierten Gitter sind mit rot und grün markiert. Der Kippwinkel zwischen den beiden Gittern liegt bei  $\Delta\Theta = 13^\circ$ . Die Korngrenze ist mit weiß gekennzeichnet und die Defektdichte  $\beta$  entlang dieses Bereichs detektiert. Diese liegt bei  $\beta a_{\text{latt}} = 0,52$ . Nach [98].

Die Auswertung einer Korngrenze ist beispielhaft in Abbildung 5.8 gezeigt. Teilbild A zeigt eine prozessierte LTEM-Aufnahme einer Gitterkorngrenze und in B die dazugehörige Auswertung bei einem Kippwinkel von  $\Delta\Theta = 13^\circ$ . In der Delaunay-Triangulation wurden die beiden unterschiedlich orientierten Gitterdomänen erkannt und farblich grün und rot markiert. Die Grenze zwischen den Gitterdomänen ist weiß hinterlegt und die 5-7 Defekte sind wieder in blau und orange markiert. Entlang des weißen Bereichs wurde anschließend die Defektdichte  $\beta$  berechnet und mit der Gitterkonstante  $a_{\text{latt}}$  multipliziert. Für die abgebildete Korngrenze ergibt sich damit eine normierte Defektdichte von  $\beta a_{\text{latt}} = 0,52$ .

Mit steigendem Kippwinkel zwischen den Gitterdomänen nimmt die Anzahl der 5-7 Defekte entlang der Gitterkorngrenze zu. In Abbildung 5.9 ist eine Auswertung der

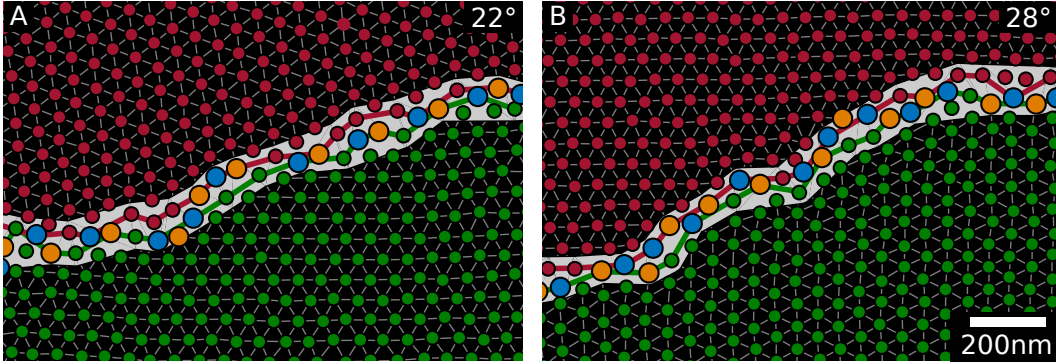


Abbildung 5.9: Auswertung zweier Gitterkorngrenzen mit verschiedenen Kippwinkeln  $\Delta\Theta$  und unterschiedlichen Defektdichten  $\beta$ . In A besteht die Korngrenze aus 5-7 Defekten mit kleinen Lücken für  $\Delta\Theta = 22^\circ$ . In B beträgt  $\Delta\Theta = 28^\circ$  und die Korngrenze besteht fast ausschließlich aus einer Hintereinanderreihung von 5-7 Defekten. Nach [98].

Defektdichte  $\beta$  für größere Winkel  $\Delta\Theta = 22^\circ$  und  $\Delta\Theta = 28^\circ$  gezeigt. Während in Teilbild A noch Lücken zwischen den Defekten liegen besteht die Domänengrenze in B fast ausschließlich aus einer Verkettung von 5-7 Defekten.

Die Auswertung zur Defektdichte  $\beta$  wurde auf Hochgeschwindigkeitsvideos von rotierenden Gitterdomänen angewandt.  $\beta$  wurde durch die Drehung der Domänen bei vielen unterschiedlichen Kippwinkeln  $\Delta\Theta$  gemessen. In Abbildung 5.10 ist die Dynamik und Auswertung eines Hochgeschwindigkeitsvideos gezeigt. Die Einzelbilder des Videos zeigen wie eine Gitterkorngrenze entsteht und wieder verschwindet. Links sind korrigierte LTEM-Rohdaten mit zugehöriger Fouriertransformierter und rechts ist die Auswertung mit der Delaunay-Triangulation abgebildet. In Teilbild A bei  $t = 20,4$  s existieren keine Gitterdomänen, es ist ein nahezu perfekt hexagonales Gitter sichtbar, dessen hexagonale Ordnung nur durch vereinzelte 5-7 Defekte gestört wird. Bei  $t = 23,1$  s haben sich zwei Gitterdomänen gebildet mit einem Kippwinkel von  $\Delta\Theta = 13,9^\circ$ . In der FT sind 12 Punkte sichtbar, zwei Punkte von unterschiedlichen Gittern sind mit Pfeilen markiert. In C ist die Situation bei  $t = 25,9$  s gezeigt mit  $\Delta\Theta = 29,2^\circ$ . In der FT ist die maximale Spotseparation ersichtlich. Danach nimmt der Kippwinkel  $\Delta\Theta$  wieder ab und bei  $t = 28,5$  s in Teilbild E ist die Gitterkorngrenze wieder verschwunden.

Um die gemessenen Werte umfassend beschreiben zu können wurden klassische 2D-Monte-Carlo-Simulationen nach dem Modell von Yu et al. durchgeführt [14]. Die Simulationen wurden im 3D Heisenberg Modell mit Austausch-, Zeemann- und

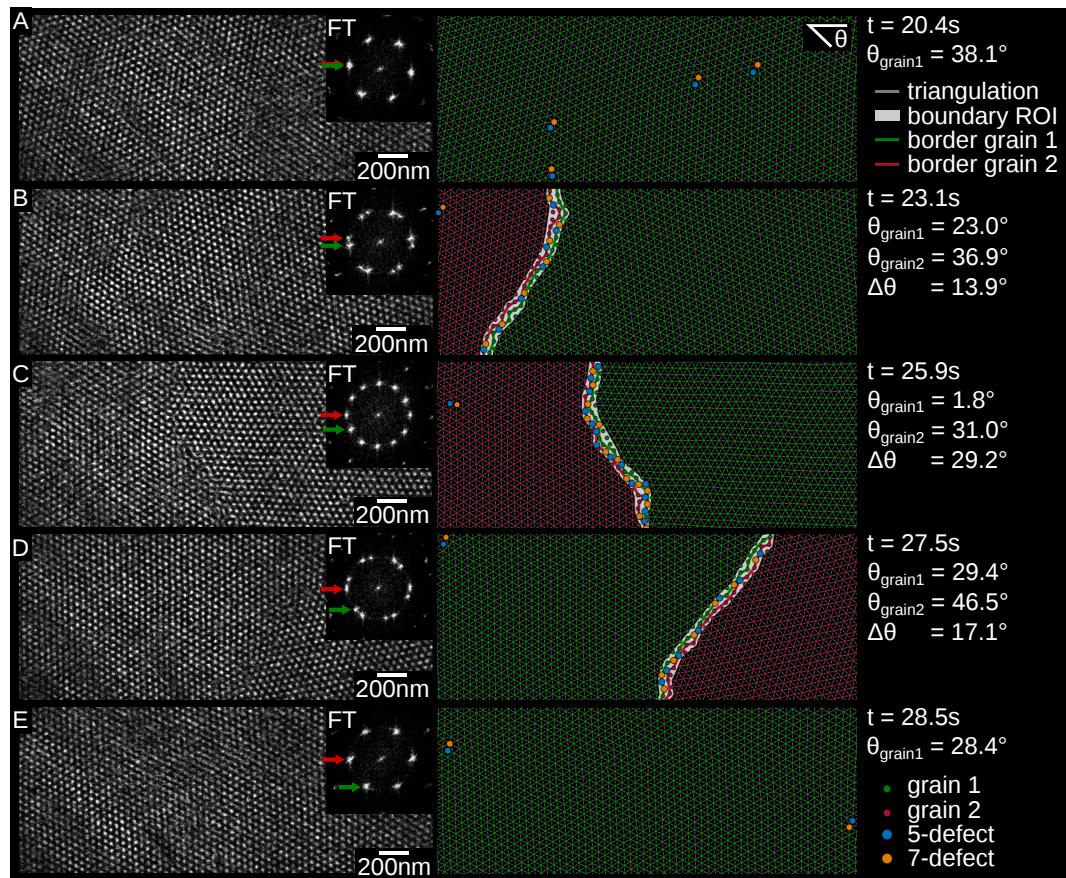


Abbildung 5.10: Auswertung eines Hochgeschwindigkeitsvideos in dem eine Gitterkorngrenze entsteht und wieder vernichtet wird. Links sind jeweils die prozessierten LTEM-Bilder mit der FT oben rechts gezeigt. In der FT sind jeweils zwei Punkte markiert die zu unterschiedlichen Gitterdomänen gehören. Im rechten Teil der Abbildung ist die Auswertung durch die Delaunay-Triangulation gezeigt, mit farblicher Markierung der Gitterdomänen und der Korngrenzen. In A existiert eine einheitliche Gitterdomäne mit einzelnen 5-7 Defekten. Bei 23,7 s bricht das Gitter auf und es entsteht eine Gitterkorngrenze mit  $\Delta\theta = 13,9^\circ$ . Der Kippwinkel  $\Delta\theta$  wird größer und erreicht den maximalen Kippwinkel in C bei  $t = 25,9$  s. Anschließend verkleinert sich  $\Delta\theta$  wieder und die Gitterkorngrenze verschwindet in E bei  $t = 28,5$  s. Nach [98].

Dzyaloshinskii-Moriya-Energie bei offenen Randbedingungen durchgeführt. In den Simulationen wurden Skyrmionengitterkorngrenzen wie in Abbildung 5.11 erzeugt und die Defektdichte  $\beta$  vermessen. Am Rand wurden einzelne, in der Abbildung lila markierte, Spins entgegen dem angelegten Magnetfeld fixiert, so dass an dieser Stelle meist ein Skyrmion nukleiert. Führt man von diesen Skyrmionen das hexagonale Gitter fort, so treffen mittig zwei Gitter unter einem Kippwinkel  $\Delta\Theta_{\text{set}}$  aufeinander und es muss sich eine Korngrenze ausbilden. Abbildungen 5.11B und C zeigen das relaxierte Skyrmionengitter auf das die Triangulation und Auswertung der Gitterkorngrenzen angewandt wurde. Die Defekte am Rand entstehen, da dort die Simulation und damit das Skyrmionengitter endet, und können vernachlässigt werden. Mittig ist eine Gitterkorngrenze entstanden, mit einem Kippwinkel  $\Delta\Theta_{\text{meas}}$  der vor allem für kleine Winkel mit dem vorgegebenen Wert  $\Delta\Theta_{\text{set}}$  gut übereinstimmt. Es wurden insgesamt fünf verschiedene Kippwinkel simuliert und für diese Situationen die Defektdichte  $\beta$  ausgemessen.

Die Ergebnisse der Defektdichten  $\beta$  für verschiedene Kippwinkel  $\Delta\Theta$  aus den Hochgeschwindigkeitsvideos und Simulationen sind in Abbildung 5.12 gezeigt. Die Auswertung der Messungen wurden mit einem automatisierten Algorithmus für Kippwinkel  $\Delta\Theta > 10^\circ$  durchgeführt. Kleinere Winkel aus den Messungen und die Simulationen wurden händisch ausgewertet. Die Ergebnisse können mit dem Franckschen Formel verglichen werden, welche den Abstand  $d$  zwischen Defekten entlang einer symmetrischen Kleinwinkelkorngrenze in Teilchengittern, in Abhängigkeit vom Kippwinkel  $\Delta\Theta$ , beschreibt.

Unter der Annahme, dass die Länge des Burgersvektors eines 5-7 Defekts eine Gitterkonstante  $a_{\text{latt}}$  beträgt, erhält man mit der Franckschen Formel für die Defektdichte

$$\beta = \frac{2}{d} = \frac{4 \sin(\Delta\Theta/2)}{a_{\text{latt}}} \quad (5.1)$$

Ein Fit der Formel zu den gemessenen Daten ist in Abbildung 5.12 für Kippwinkel  $\Delta\Theta < 20^\circ$  gezeigt und passt sehr gut zu den Ergebnissen. Dieser Fit ist für größere Winkel mit einer gestrichelten Linie erweitert und stimmt dort ebenfalls gut mit den Messungen und Simulationen überein. In diesem Bereich kann streng genommen nicht mehr von einer Kleinwinkelkorngrenze gesprochen werden, die Daten können aber dennoch mit der Franckschen Formel genügend gut beschrieben werden.

Die Dynamik von Gitterkorngrenzen zeigt, dass sich bei der Rotation von Gitterdomänen Skyrmionen wellenartig umordnen und dadurch ihre Zuordnung zu einzelnen Domänen ändern. Dabei verschieben sich teilweise ganze Reihen oder es drehen sich kleine Gruppen von Skyrmionen. Die Anzahl der Skyrmionen ist bei diesen Umordnungsprozessen mit einer Genauigkeit von  $\pm 1$  im auswertbaren Bereich erhalten. Diese Erkenntnis spricht stark für den teilchenartigen Charakter der Skyrmionen und deutet auf eine Erhaltung der topologischen Ladung während der Umordnung

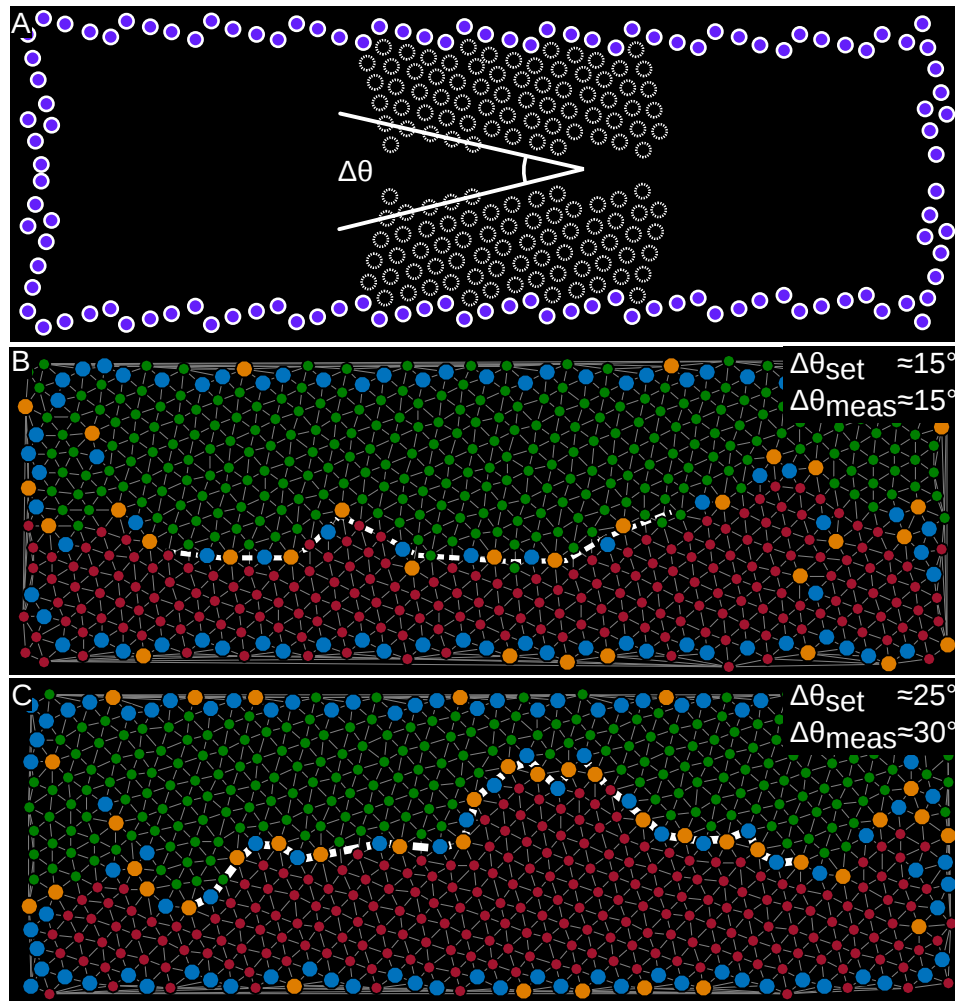


Abbildung 5.11: Klassische Monte-Carlo-Simulationen zum Erzeugen von Gitterkorngrenzen. In A sind mit lila einzelne Spins markiert, die entgegen dem externen Magnetfeld fixiert sind. Nach dem Simulated Annealing entstehen an diesen lila Punkten meist Skyrmionen. Führt man das Gitter von diesen Positionen weiter, muss in der Mitte eine Gitterkorngrenze mit dem Kippwinkel  $\Delta\Theta_{\text{set}}$  entstehen. B zeigt eine simulierte Korngrenze mit  $\Delta\Theta_{\text{set}} = 15^\circ$ . Für höhere Kippwinkel wie in C gezeigt weicht der vorgegebene Kippwinkel vom gemessenen leicht ab und es entstehen in diesem Fall Gitterdomänen unter einem Winkel von  $\Delta\Theta_{\text{meas}} = 25^\circ$ . Nach [98].

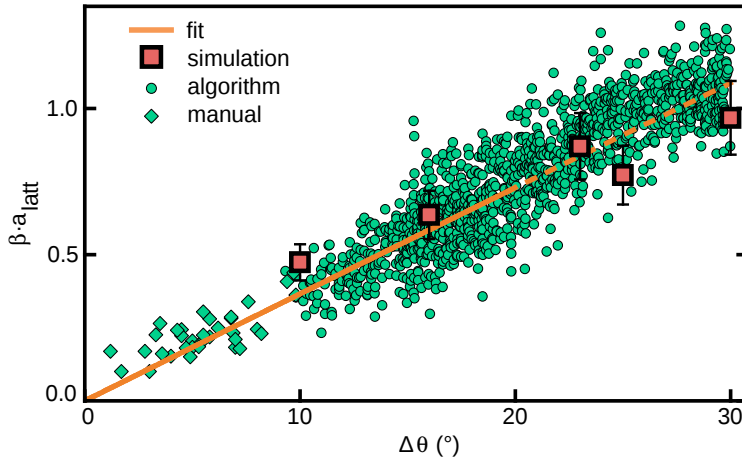


Abbildung 5.12: Auswertung der Defektdichte  $\beta$  für verschiedene Kippwinkel  $\Delta\Theta$ . Die automatisierte Auswertung der Hochgeschwindigkeitsvideos funktioniert für  $\Delta\Theta > 10^\circ$  und wurde für kleinere Winkel händisch bestimmt. Die roten Punkte stammen von den Monte-Carlo-Simulationen wie in Abbildung 5.11 gezeigt. Es wurde in orange die Franksche Formel für Kleinwinkelkorngrenzen im Bereich von  $\Delta\Theta = 0 - 20^\circ$  mit einer Linie und für größere Winkel gestrichelt eingezeichnet. Die Franksche Formel stimmt sehr gut mit den Messungen und Simulationen überein und gilt auch für größere Winkel, die streng genommen keine Kleinwinkelkorngrenzen mehr beschreiben. Nach [98].

hin. Die zeitliche Entwicklung einer Gitterkorngrenze in Abbildung 5.13 zeigt den Einfluss des Elektronenstrahls auf zwei Gitterdomänen. In Teilbild A ist beispielhaft gezeigt, wie die beiden Winkel  $\Theta_1$  und  $\Theta_2$  für zwei Domänen definiert sind. Die Fouriertransformierte in Abbildung 5.13B zeigt die sechs Punkte der beiden Domänen und zusätzlich  $\Theta_1$ ,  $\Theta_2$  und den Differenzwinkel  $\Delta\Theta$ . Die zeitliche Entwicklung dieser drei Winkel ist exemplarisch für Ausschnitte aus einem 170 s langen Videos mit 30 fps in Teilbild C dargestellt.

Die erste Sequenz zeigt eine schnelle Rotation des roten Gitters mit einer langsameren Drehung des grünen Gitters. Es wurden vier volle Durchgänge durch alle möglichen Kippwinkel  $\Delta\Theta$  gemessen. Für gleiche Kippwinkel  $\Theta_1 = \Theta_2$  verschwindet die Gitterkorngrenze und es ist ein einheitliches Gitter beobachtbar. Diese Situation tritt in den Bereichen i, iii und v auf. Die zweite Sequenz zeigt ein unterschiedliches Verhalten. Zuerst rotieren beide Gitterdomänen fast mit der selben Geschwindigkeit und sorgen für ein relativ konstanten Winkel  $\Delta\Theta$  (vi). Danach stoppt das grüne

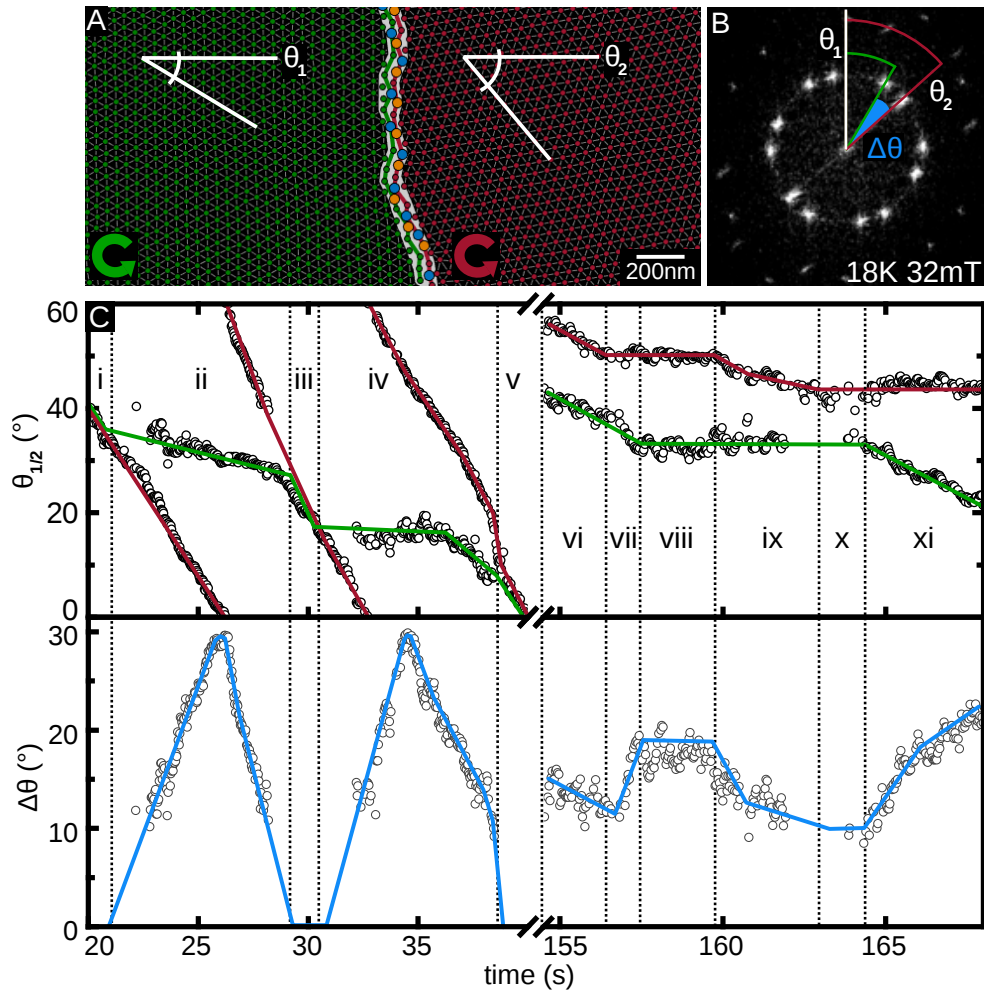


Abbildung 5.13: Dynamisches Verhalten von zwei Gitterdomänen. A zeigt die mit rot und grün markierten Domänen und mit den Kippwinkeln  $\theta_1$  und  $\theta_2$ . B zeigt im reziproken Raum welche Punkte zu den beiden Gitterdomänen gehören und den Differenzwinkel  $\Delta\theta$ . In C ist die zeitliche Entwicklung der drei Winkel dargestellt. Der erste Teil (i-v) zeigt eine schnelle Rotation des roten Gitters mit einer gleichzeitig langsamen Drehung des grünen Gitters.  $\Delta\theta$  nimmt dabei zweimal alle möglichen Winkel an. Im zweiten Teil (vi-xi) ändern sich die Rotationsgeschwindigkeiten beider Gitterdomänen was zu einer Veränderung von  $\Delta\theta$  führt. Nach [34].

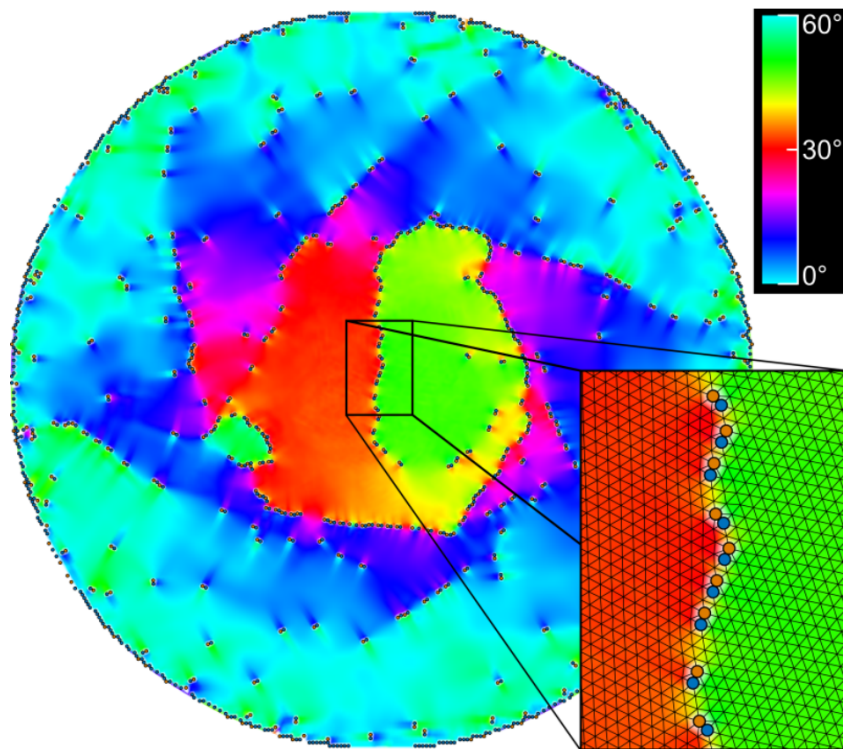


Abbildung 5.14: Übersicht über die Simulation von  $\sim 35000$  Skyrmionen im Teilchenmodell. Die Orientierung der Gitterdomänen ist farblich gekennzeichnet. In der Vergrößerung sind Gitterstruktur und 5-7 Defekte dargestellt. Die rote und grüne Domäne drehen sich im Vergleich zur Simulationsgrenze. Aus [98].

Gitter, was zu einer Vergrößerung von  $\Delta\Theta$  führt (vii). Im Bereich viii stoppen dann beide Gitterdomänen und sorgen wieder für einen konstanten Kippwinkel. Danach rotiert abwechselnd die rote (ix) und die grüne Gitterdomäne (xi). In einem kleinen Bereich führt weder die eine noch die andere Domäne eine Drehung durch (x).

Die Rotation der beiden Gitter geschieht im Wesentlichen gegen den Uhrzeigersinn, was in Übereinstimmung mit den Beobachtungen von Mochizuki ist [99]. Dennoch konnten kleine Abweichungen der Rotationsrichtung in Bereichen wie xi festgestellt werden. Die leichte Drehung im Uhrzeigersinn wurde in den Rohdaten bestätigt und kann mit der Bewegung von zwei verbundenen Zahnrädern verglichen werden. Die Drehgeschwindigkeit variiert von 0 bis  $15^\circ/\text{s}$  und ist in der ersten Sequenz deutlich größer als in der zweiten. Der Grund dafür liegt wahrscheinlich nicht im Temperaturgradienten durch den Elektronenstrahl, da in diesem statischen Experiment die

Probentemperatur nur um ein Kelvin schwankt. Wahrscheinlicher sind Änderungen der Größen einzelner Gitterdomänen wodurch unterschiedliche Drehmomente auf diese Domänen wirken. Die Größe der Gitterdomänen hat sich tatsächlich von der ersten zur zweiten Sequenz verändert, was durch unterschiedliche absolute Kippwinkel angedeutet wird.

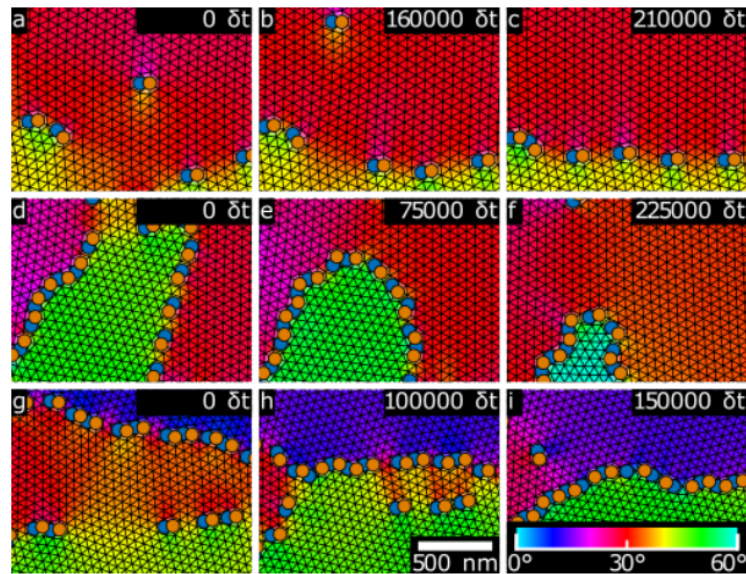


Abbildung 5.15: Momentaufnahmen der Simulation zur Dynamik von rotierenden Gitterdomänen. a-c zeigt wie 5-7 Defekte zwischen die Domänen wandern und so die Korngrenze ausbilden. In d-f sieht man wie sich zwei Domänen umorientieren. In g-h ist die Vereinigung von zwei Domänen dargestellt. Aus [98].

Der topologische Schutz von Skyrmionen, die ungefähre Erhaltung der Teilchenzahl und die Dominanz der 5-7 Defekte in unseren Messungen sprechen für den Teilchencharakter von Skyrmionen, auch in Gitterstrukturen. Um dieses Bild zu unterstützen wurden große rotierende Skyrmionengitter mit einem Teilchenmodell [108] simuliert und die Bewegung von  $\sim 35000$  Skyrmionen auf einer Scheibe verfolgt. Dabei werden Skyrmionen als eine feste Anzahl von Teilchen mit einem rein repulsiven Potential simuliert, welches aus 2D mikromagnetischen Simulationen bestimmt wurde [108]. In diesem vereinfachten Ansatz ist es nicht möglich die experimentell gemessenen Zeitskalen im Sekundenbereich zu reproduzieren. Die Zeiten liegen in den Messungen teilweise einen Faktor  $10^{10}$  höher als bei Feldanregungen in einem Skyrmionengitter [23]. Dennoch ist es möglich das qualitative Verhalten der Messungen in den Simulationen wiederzugeben.

In Abbildung 5.14 ist ein Überblick über die komplette Simulation gezeigt. Die Farben repräsentieren die Orientierung der Gitterdomänen mit Werten von  $0 - 60^\circ$ . In der Mitte bildet sich eine längere Gitterkorngrenze aus, die vergrößert mit der Delaunay-Triangulation dargestellt ist. Entlang der Korngrenze treten wie in den Messungen 5-7 Defekte auf, die mit orange und blau gekennzeichnet sind. Im Randbereich tauchen vereinzelt 5-7 Defekte auf, deren bevorzugte Bewegungsrichtung mit den gemessenen in Kapitel 5.4 übereinstimmt.

Einige Einzelprozesse der Simulation sind in Abbildung 5.15 gezeigt. Im Zeitverlauf der Simulation bilden und zerstören sich permanent Domänen und weisen dadurch eine hohe Dynamik auf. Die Simulation zeigt zudem, dass die schnelle Bewegung von 5-7 Defekten der dominante Mechanismus zur Veränderung der Defektdichte  $\beta$  ist, wie in Abbildung 5.15a-c gezeigt. Die Drehung von Domänen läuft wie in den Messungen wellenartig ab, während sich permanent die Größe der Domänen verändert. Ein Umorientieren zweier Domänen ist in Teilbild d-f gezeigt. Wie in Abbildung 5.15g-i gezeigt, konnte auch das Vereinen von zwei Domänen simuliert werden.

### 5.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden dynamische Eigenschaften von rotierenden Skyrmionengitterdomänen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  untersucht, die einem Temperaturgradienten ausgesetzt sind und dadurch ein Drehmoment erfahren. Die Dynamik ist hauptsächlich durch die Bewegung und Umordnung von 5-7 Defekten dominiert. An den Domänengrenzen treten starke Fluktuationen auf, die eine Änderung des Kippwinkels zwischen den Domänen erlauben. Die Skyrmionenanzahl ist dabei während der Umordnungsprozesse mit einer Genauigkeit von  $\pm 1$  konstant. An Korngrenzen ist die Dichte der 5-7 Defekte in Abhängigkeit des Kippwinkels untersucht und quantifiziert worden. Mit zunehmendem Winkel nimmt die Anzahl der Defekte entlang der Korngrenze zu und kann mit der Frankschen Formel beschrieben werden. Mit klassischen Monte-Carlo-Simulationen wurden Gitterkorngrenzen erzeugt, die ähnliche Defektdichten wie in den Messungen aufweisen. Um die genauen Einzelprozesse beim dynamischen Umordnen zu verstehen wurden Skyrmionen in einem Teilchenmodell simuliert und ausgewertet.

Insgesamt sprechen die Messungen und Simulationen für einen starken Teilchencharakter von Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ . Der Teilchencharakter wird durch das Auftreten von 5-7 Defekten gestärkt, die auch in vielen anderen Teilchengittern zu finden sind. Die Simulationen im Teilchenmodell geben das dynamische Verhalten der Skyrmionen sehr gut wieder und stärken damit auch den Teilchencharakter von Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ .

## 6 Zerfall von Skyrmionen in $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$

In der B20-Verbindung  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$  wurde schon bei der Entdeckung der Skyrmionenphase 2010 durch Münzer et al. [13] festgestellt, dass das Bulk-Phasendiagramm stark von der Vorgeschichte abhängt. Wie in Abbildung 6.1A und B gezeigt ergibt sich ein großer Unterschied ob bei Nullfeld oder mit angelegtem Magnetfeld abgekühlt wird. Durch Abkühlen mit externen Feld werden metastabile Skyrmionen bis zu sehr tiefen Temperaturen erzeugt. Hiroshi et al. und Karube et al. zeigten vor kurzem, dass diese metastabilen Skyrmionen auch in einem erweiterten Phasendiagramm existieren können [109, 110]. Für dünne Filme, wie sie für TEM-Untersuchungen benötigt werden, verbreitert sich die Skyrmionentasche zu tiefen Temperaturen hin [14–16, 111]. Eine Historienabhängigkeit wurde für TEM-Proben bisher nicht publiziert.

Das Phasendiagramm gibt an in welchen Bereichen die verschiedenen Spintexturen zu finden sind. Eine interessante Frage ist, was an den Rändern der Phasen passiert und wie die unterschiedlichen Phasen ineinander übergehen. Insbesondere wie die topologisch geschützten Skyrmionen in andere Phasen übergehen und welche Defekte dabei involviert sind. Dabei müssen Defekte entstehen, da Skyrmionen nicht kontinuierlich in die anderen Phasen umgewandelt werden können.

Zu den Phasenübergängen von Skyrmionen in die helikale und konische Phase wurden schon umfassende Rechnungen publiziert [21, 112–114]. Diese ergeben, dass sich Skyrmionen beim Übergang in die helikale Phase miteinander vereinigen und Streifen bilden. Beim Zerfall in die konische Phase lösen sich laut der Theorie einzelne Skyrmionenschläuche auf und verschwinden. Bei beiden Übergängen sind Monopole und Antimonopole beteiligt damit sich die Topologie der Spintexturen ändern kann. Um diese Phasenübergänge zu untersuchen ist eine Messmethode im Realraum essentiell, da sie, im Gegensatz zu Verfahren die auf örtlicher Mittlung basieren, die Auswertung von Einzelprozessen ermöglicht. Der Zerfall von Skyrmionen in die helikale Phase wurde bereits mit magnetischer Rasterkraftmikroskopie (engl. magnetic force microscopy, MFM) untersucht und es konnte die Vereinigen von Skyrmionen beobachtet werden [21]. Allerdings erschwert die geringe Zeitauflösung der MFM Messungen ( $> 10$  Minuten) die Auswertung der Zerfallszeiten. Der Übergang in die konische Phase wurde bisher im Realraum nicht gemessen.

In diesem Kapitel werden TEM-Messungen an einer  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ -Probe präsentiert, die eine starke Historienabhängigkeit in den Phasendiagrammen aufweist. Die Probe verhält sich damit eher wie eine Bulk-Probe, kann aber mit LTEM orts aufgelöst gemessen werden. Mit Hilfe einer Hochgeschwindigkeitskamera wurde der Zerfall von metastabilen Skyrmionen zur konischen und helikalen Phase aufgenommen. Das qualitative Verhalten der Skyrmionen entspricht dabei den theoretischen Vorhersagen und es wurde zum ersten Mal der Zerfall in die konische Phase im Realraum gemessen. Aus den Hochgeschwindigkeitsvideos wurde die Skyrmionenanzahl extrahiert und mit einer exponentiellen Zeitabhängigkeit gefittet. Bei konstanten Magnetfeldsprüngen ändert sich die Zerfallszeit bei verschiedenen Temperaturen ebenfalls exponentiell, wie beim Überwinden einer einfachen Energiebarriere. Die Zeiten wurden mit dem Arrhenius-Gesetz verglichen. Überraschenderweise werden sie durch einen Vorfaktor dominiert, der sich bei kleinen Feldvariationen um mehr als 30 Größenordnungen ändert. Diese starke Änderung des Vorfaktors kann nicht durch eine einfache Energiebarriere erklärt werden, sondern ergibt sich aus Entropieeffekten. Beim Zerfall von metastabilen Skyrmionen zur helikalen Phase ergaben die Messungen zudem einen metastabilen Zwischenzustand, der dem theoretisch vorhergesagten Chiral Bobber ähnelt, aber eher auf Pinning an Kristalldefekten zurückzuführen ist.

Die Bulk-Probe wurde von Andreas Bauer<sup>1</sup> gewachsen und von Marco Schowalter<sup>2</sup> für das TEM präpariert und die Dicke bestimmt. Simon Pöllath<sup>3</sup> und dem Autor haben alle TEM-Messungen durchgeführt und die CCD-Bilder und Hochgeschwindigkeitsvideos ausgewertet. Simon Pöllath hat die Zwischenzustände beim Zerfall von Skyrmionen in die konische Phase untersucht. Die Skyrmionenanzahl in den Hochgeschwindigkeitsvideos hat Thomas Meier<sup>3</sup> ausgewertet. Die Ergebnisse sind teilweise in Quelle [115] publiziert.

### 6.1 Theorie

Die zwei B-T-Phasendiagramme in Abbildung 6.1A und B sind an einer  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  Bulk-Probe durch Neutronenbeugung und Messung der AC-Suszeptibilität sowie der spezifischen Wärme mit unterschiedlichen Messprotokollen aufgenommen [40]. Die Messung des Phasendiagramms in Teilbild A erfolgte durch Abkühlen ohne externem Magnetfeld und anschließender Erhöhung des externen Feldes (zero-field cooling, ZFC). Die Skyrmionenphase ist rot markiert und befindet sich nahe der kritischen Temperatur  $T_C$  in einem kleinen Magnetfeldbereich bei 2 – 6 mT. Die helikale Phase ist bei geringen Feldern, bis maximal 10 mT zu finden. In Abbildung 6.1B ist

---

<sup>1</sup>AG Pfeleiderer, Technische Universität München

<sup>2</sup>AG Rosenauer, Universität Bremen

<sup>3</sup>AG Back, Universität Regensburg

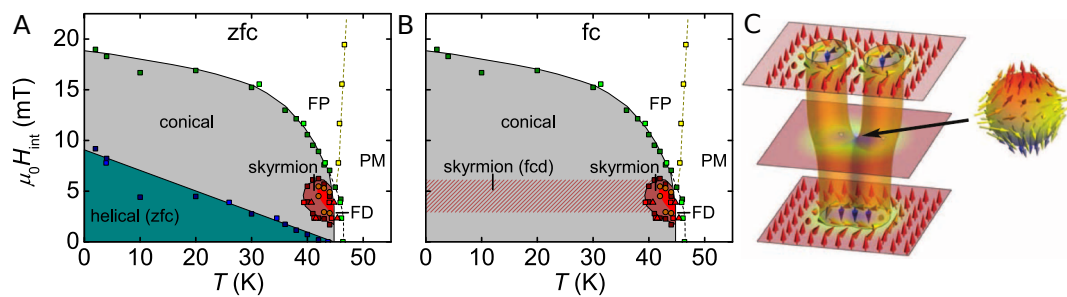


Abbildung 6.1: Phasendiagramm einer  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  Bulk-Probe für den zero-field cooling (A) und field cooling Fall (B) aus Neutronenbeugungsexperimenten und Messung der AC-Suszeptibilität sowie der spezifischen Wärme. Die Skyrmionenphase ist in Teilbild A in einem kleinen Bereich nahe der kritischen Temperatur  $T_C$  zu finden und wird für FC in Teilbild B zu tiefen Temperaturen erweitert. Skyrmionen unterhalb der ZFC Skyrmionenphase sind im FC Phasendiagramm metastabil. C zeigt wie sich ein magnetischer Antimonopol von unten nach oben durch die Probe bewegt und dabei zwei Skyrmionen wie durch einen Reißverschluss vereinigt. Nach [21, 40].

ein Phasendiagramm zeigt bei dem jeder Punkt durch Kühlen unter einem angelegtem Magnetfeld angefahren wurde (field cooling, FC). Die Skyrmionenphase erweitert sich in diesem Fall zu tiefen Temperaturen hin und Skyrmionen unterhalb der ZFC Skyrmionenphase sind metastabil. Die unterschiedliche Topologie der Skyrmionenphase verglichen mit helikaler oder konischer Phase stellt eine Energiebarriere dar, die bei einem Phasenübergang überwunden werden muss. Diese Energiebarriere wird beim Kühlen aus der Skyrmionentasche heraus nicht überwunden und führt so zu metastabilen Skyrmionen bis hin zu tiefen Temperaturen. Die helikale Phase ist im FC Phasendiagramm für endliche Magnetfelder komplett unterdrückt. Die Historienabhängigkeit der Phasendiagramme ist bisher nur bei Bulk-Proben [21, 40] beobachtet worden. Bei TEM-Proben erweitert sich die Skyrmionenphase zu tiefen Temperaturen hin und hängt nicht von der Vorgeschichte ab [14–16]. Beim Übergang zwischen den verschiedenen Phasen muss sich die Topologie der Spintexturen verändern, was durch topologische Defekte geschehen kann. Um zu verstehen welche Defekte beim Übergang von Skyrmionen zur helikalen Phase beteiligt sind wurden von der Gruppe um Achim Rosch klassische 3D-Monte-Carlo-Simulationen durchgeführt [21, 112, 116]. Die Simulationen wurden im 3D Heisenberg Modell mit Austausch-, Zeemann- und Dzyaloshinskii-Moriya-Energie bei offenen Randbedin-

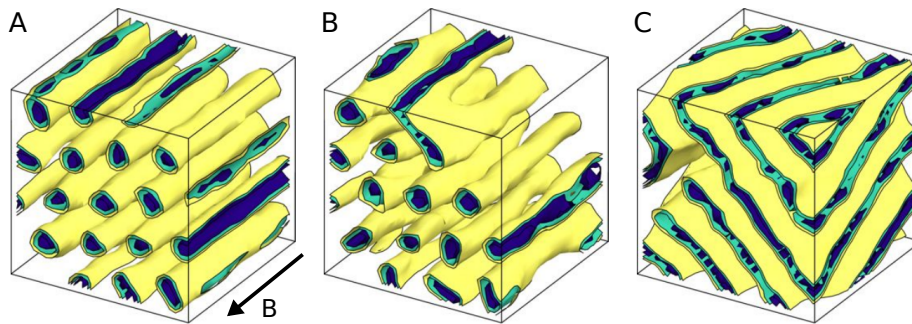


Abbildung 6.2: Simulation des Zerfalls von Skyrmionen in die helikale Phase. Es sind Konturen konstanter Magnetisierung entlang der  $\langle 001 \rangle$ -Richtung für drei verschiedene Zeiten dargestellt. Aus [116].

gungen an den zwei Seiten mit Flächennormalen parallel zum Magnetfeld und periodischen Randbedingungen in allen anderen Richtungen durchgeführt. Sie fanden heraus, dass bei diesem Phasenübergang magnetische Monopole und Antimonopole, die auch Blochpunkte genannt werden, in Richtung der Skyrmionenschläuche durch die Probe fahren und sie dabei wie durch einem Reißverschluss verbinden. Magnetische Monopole und Antimonopole besitzen keine Magnetisierung im Ursprung und wurden von Dirac als hypothetisches Teilchen vorgeschlagen [117]. Das Gaußsche Gesetz auf die Blochpunkte angewandt ergibt, dass Monopole Quellen und Antimonopole Senken von magnetischen Fluss sind. Die Spinstruktur eines magnetischen Antimonopols aus den Simulationen ist in Abbildung 6.1C rechts gezeigt und hat im Vergleich zum Monopol alle Spins invertiert. Die Abbildung zeigt die Vereinigung von zwei Skyrmionen durch einen Antimonopol, der sich von unten nach oben durch die Probe bewegt. In Abbildung 6.2 ist die Monte-Carlo-Simulation für verschiedene Zeitpunkte gezeigt. Teilbild 6.2A zeigt ein hexagonales Skyrmionengitter, welches in B einen ersten Defekt mit Antimonopol aufweist und in C zu einer helikalen Phase mit letzten Defekten übergegangen ist.

Beim Übergang von Skyrmionen zur konischen Phase zeigten Rybakov et al. [113, 114], dass die Skyrmionen durch ein Monopol-Antimonopol-Paar aufgetrennt werden. Dabei entsteht so ein Paar in einem Skyrmion und öffnet den Skyrmionenschlauch, anschließend wandern Monopol und Antimonopol in jeweils entgegengesetzte Richtung bis zur Oberfläche. Die Simulationen zeigten, dass sich ab einer kritischen Dicke der Probe von  $0,6 \cdot \lambda_{\text{Helix}}$ , zudem metastabile Zustände an der Oberfläche ausbilden. Diese in Abbildung 6.3B dargestellten, metastabilen Spintexturen werden Chiral Bobber (engl. bobber = Schwimmer) genannt, da Flächen konstanter in-plane Magnetisierung einem Schwimmer an einer Angel ähneln. Ein Chiral Bob-

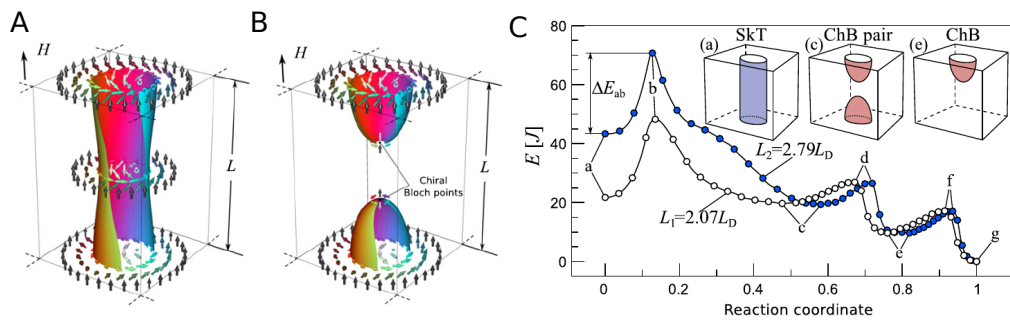


Abbildung 6.3: Übergang von Skyrmionen zur konischen Phase. A zeigt die schematische Darstellung eines Skyrmions und B eines Chiral Bobber Pärchens in einer dünnen Probe mit der Dicke  $L$ . Die Isoflächen stellen Bereiche konstanter in-plane Magnetisierung dar. C zeigt den minimalen Energiepfad in Abhängigkeit der Reaktionskoordinate, die den Übergang eines Skyrmions in die konische Phase darstellt. Der blaue und weiße Pfad beschreibt den Zerfall für zwei unterschiedliche Dicken. Anfangs muss eine Energiebarriere  $\Delta E_{ab}$  überwunden werden um den Skyrmionenschlauch (a) aufzutrennen, dann folgt ein lokales Minimum mit einem Chiral Bobber Pärchen (c) und ein weiteres mit einem einzelnen Chiral Bobber (e). Aus [113, 114].

ber besitzt an der Probenoberfläche eine ähnliche Struktur wie ein Skyrmion und ist im Probeninnern an einem Blochpunkt aufgehängt.

Abbildung 6.3 zeigt den simulierten Ablauf des Zerfalls eines Skyrmions in die konische Phase. Dabei ist der minimale Energiepfad in Abhängigkeit von der Reaktionskoordinate angetragen. Die Reaktionskoordinate ist eine abstrakte eindimensionale Koordinate, die den Zerfallsprozess widerspiegelt. Anfangs muss eine Barriere  $\Delta E_{ab}$  zum Auftrennen des Skyrmionenschlauchs überwunden werden, dann ergibt sich in c ein Minimum, das einem Chiral Bobber Pärchen entspricht. Es folgt ein weiteres Energieminimum für einen einzelnen Chiral Bobber und anschließend die rein konische Phase. Die blaue Kurve ist für ein Verhältnis aus Probedicke  $L$  und Helixwellenlänge  $\lambda_{\text{Helix}}$  von 2,79 berechnet und liegt damit nahe der im nächsten Kapitel gezeigten  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  TEM-Probe mit  $L/\lambda_{\text{Helix}} \approx 240 \text{ nm}/90 \text{ nm} \approx 2,7$ . Die Simulationen würden damit eine Beobachtung von Chiral Bobber in dieser Probe vorhersagen.

Der Phasenübergang von Skyrmionen zur helikalen Phase wurde bereits mit MFM untersucht [21]. Die Abbildung der  $z$ -Komponente der Oberflächenmagnetisierung erfolgte durch Rastern einer out-of-plane magnetisierten Spitze über die Probe.

Die Messungen zeigen deutliche Anzeichen für ein Verschmelzen von Skyrmionen zu Streifen. Die Streifen verbinden sich dann mit immer weiteren Schläuchen und es bildet sich eine helikale Phase mit vielen Defekten aus. Da eine MFM-Messung mehr als zehn Minuten benötigt konnten keine Zeitkonstanten bestimmt werden und es wurde ausschließlich bei einer Temperatur von 10 K gemessen.

Diese MFM-Messungen lieferten erste Hinweise auf die Zerstörung von Skyrmionen. Ungeklärt blieb jedoch der Einfluss von thermische Fluktuationen auf den Zerfall und die quantitative Bestimmung von Zerfallsdauern in Abhängigkeit der thermischen Energie. Weiterhin experimentell ungeklärt sind die Zerfallsmechanismen von der Skyrmionenphase in die konischen Phase. Diese Fragen werden im Rahmen dieser Arbeit in den nächsten Kapiteln diskutiert.

## 6.2 Probe

Die Probe für die TEM-Untersuchungen wurde mit der optischen Floating-Zone-Technik unter Ultra-Hoch-Vakuum gewachsen [118, 119]. Anschließend erfolgte das Herausschneiden eines  $200\ \mu\text{m} \times 2\ \text{mm}^2$  großen Plättchens mit der Bandsäge. Das Plättchen wurde poliert, so dass die Flächennormale parallel zur  $\langle 110 \rangle$ -Richtung

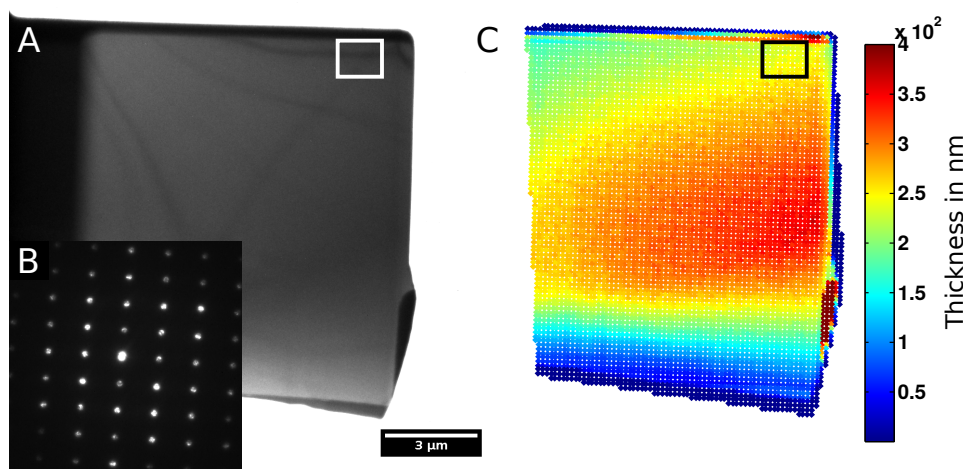


Abbildung 6.4: FIB-präparierte  $Fe_{0.5}Co_{0.5}Si$  Probe. A zeigt ein Übersichts-TEM-Bild mit der Markierung der Messposition. Das Beugungsbild in B bestätigt die Ausdünnung der Probe in  $\langle 110 \rangle$ -Richtung. Ein Dickenprofil ist in C dargestellt, die gemittelte Dicke des Messbereichs liegt bei  $241 \pm 8\ \text{nm}$ .

liegt. Diese Bulk-Probe ist mit der FIB (engl. focused ion beam) für das TEM mit der Plan-View-Technik präpariert worden. Dabei wurde eine ca.  $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$  große Lamelle aus der Oberseite herausgeschnitten, an einen speziellen FIB-Probenhalter geschweißt und gedünnt. Eine TEM-Aufnahme der fertigen FIB-Probe ist in Abbildung 6.4A gezeigt und ist wie die Bulk-Probe in  $\langle 110 \rangle$ -Richtung gedünnt.

Um die Kristallorientierung zu verifizieren wurde ein TEM-Beugungsbild aufgenommen, das in Abbildung 6.4B dargestellt ist. Für ein primitiv kubisches Gitter würde man in  $\langle 110 \rangle$ -Richtung ein rechtwinkliges reziprokes Gitter erwarten mit einem Verhältnis der Seitenlängen von  $1/\sqrt{2}$  [120]. Die Messung stimmt gut mit dem zu erwartenden reziproken Gitter überein.

Die Dicke der Probe wurde durch high angle annular dark field scanning TEM (HAADF-STEM) bestimmt [121]. Es wird im STEM-Modus ein ringförmiger Detektor benutzt, der geometrisch so angeordnet ist, dass nur stark gestreute Elektronen diesen erreichen. Mit diesem Detektor wird erst ein STEM-Bild der gesamten Probe aufgenommen und anschließend mit einer Simulation verglichen. Die Simulationen bestimmen das Strahlprofil nach dem Durchgang einer vorgegebenen Anzahl an Atomlagen. Eine Atomlage wird durch die Wechselwirkung mit einem projiziertem Potential und einer anschließenden freien Propagation bis zur nächsten Lage simuliert. Die gemessenen Intensitäten werden dann mit den berechneten Intensitäten nach jeder Atomlage verglichen und dadurch die Dicke der Probe bestimmt. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.4C dargestellt. Die Messposition der TEM-Messungen ist oben rechts markiert, in diesem Bereich beträgt die Dicke  $241 \pm 8\ \text{nm}$ .

### 6.3 Phasendiagramme

Bisher gibt es wenig Publikationen zu Phasendiagrammen an TEM-Proben. Yu et al. haben an einer keilförmigen FeGe-Probe Phasendiagramme für verschiedene Dicken aufgenommen [15]. Dabei konnten sie zeigen, dass sich die Skyrmionentasche in dünnen Bereichen der Probe zu tiefen Temperaturen hin erweitert. Es wurde aber bisher keine Historienabhängigkeit eines Phasendiagramms einer TEM-Probe wie bei Neutronenbeugungsexperimenten gezeigt [13, 40]. Eine mögliche Erklärung dafür ist, dass die Probendicke einer TEM-Probe meist dünner oder vergleichbar mit der Helixwellenlänge ist und damit eine konische Phase unterdrückt und die Skyrmionenphase bevorzugt wird, unabhängig davon, wie ein bestimmter Punkt im Phasendiagramm angefahren wird. Mit einer Probendicke von  $\approx 240\ \text{nm}$  liegt die gemessene Probe deutlich über der Helixwellenlänge von  $90\ \text{nm}$  in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ . Die Phasendiagramme an dieser Probe zeigen in der Tat eine starke Abhängigkeit von der Vorgeschichte. Überfokussierte LTEM Bilder für verschiedene Temperaturen und Magnetfelder sind exemplarisch in Abbildung 6.5 gezeigt. Jedes der Bilder ist durch ZFC entstanden, d.h. es wurde ohne externem Feld auf eine definierte Temperatur abgekühlt und

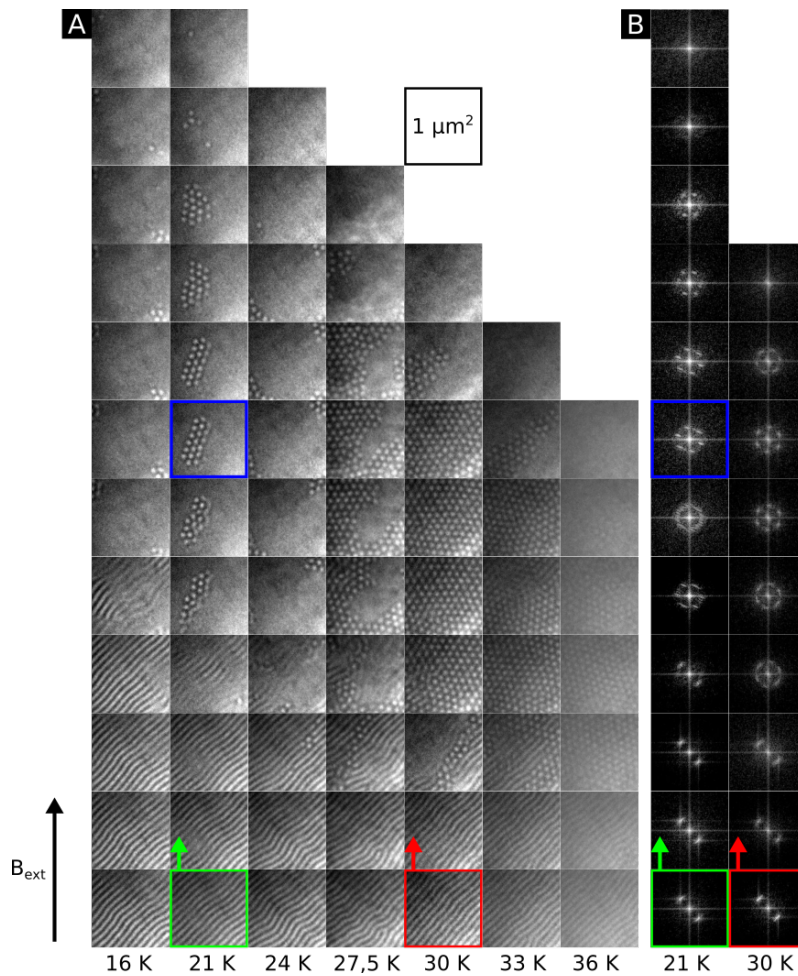


Abbildung 6.5: Exemplarisches ZFC Phasendiagramm der  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  Probe in A. Es ist deutlich die Skyrmionentasche und die helikale Phase zu erkennen. Die Spintextur der konischen Phase führt zu keinem Kontrast. In großen Teilen sind Mischphasen vorhanden, wie mit blau umrandet, Skyrmionen mit konischer Phase. In B sind fouriertransformierte Bilder dargestellt. Bei 30 K ist der Übergang von der helikalen Phase mit zwei Beugungsspots hin zu einer sechszähligen Symmetrie der Skyrmionenphase zu erkennen. Für höhere Magnetfelder schwindet die Ordnung, da die konische Phase keinen magnetischen Kontrast liefert. Das blau umrahmte Bild bei 21 K zeigt, dass auch in den Mischphasen Skyrmionen eine hexagonale Anordnung bevorzugen.

dann das Magnetfeld schrittweise erhöht. Bei jedem Feldwert wurde 5 s gewartet und ein Bild aufgenommen. Nach dem Erreichen des maximalen Feldwertes ist die Probe auf über 40 K erwärmt und wieder ohne Feld auf eine neue Temperatur abgekühlt worden.

Es sind klar die Skyrmionentasche und die helikale Phase sichtbar. Das Fehlen von magnetischem Kontrast kann konische oder ferromagnetische Phase bedeuten und zudem existieren auch Mischphasen in großen Teilen des Phasendiagramms. Der magnetische Kontrast nimmt zu tiefen Temperaturen hin zu, was auf die Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung zurückzuführen ist. Im rechten Teil der Abbildung sind fouriertransformierte Bilder zu sehen. Die Spalte bei 30 K zeigt den Übergang von helikaler Phase zu Skyrmionen und zur konischen Phase. In den Mischphasen aus konischer Phase und Skyrmionenphase bei 21 K ist deutlich eine hexagonale Struktur sichtbar (blau markiert).

Eine systematische Untersuchung an der in Abbildung 6.4 gezeigten Probenstelle ergibt ein ZFC und FC Phasendiagramm wie in Abbildung 6.6A und B gezeigt. Die einzelnen Phasen und Mischphasen sind in Farben, die Messungen durch Punkte dargestellt. Bereiche ohne magnetischen Kontrast wurden der konischen Phase zugeordnet. Es ist die an die Probe angelegte magnetische Induktion gegen die am Probenhalter gemessene Temperatur angetragen.

Das in Abbildung 6.6A dargestellte ZFC Phasendiagramm wurde aufgenommen, indem unter einem kleinen Magnetfeld von 1,5 mT bis zu einer bestimmten Temperatur abgekühlt und dann das Feld bei konstanter Temperatur erhöht wurde. Anschließend wurde die Probe auf über 40 K erwärmt und eine neue Messreihe aufgenommen. Die kritische Temperatur  $T_C$  beträgt dabei 36 K und ist im Vergleich zum Bulkwert von  $T_C = 47$  K dieses Kristalls zu tieferen Temperaturen hin verschoben. Der Grund für die Diskrepanz von  $T_C$  zwischen der TEM-Probe und dem Bulk-Kristall könnte in einem vergrößerten Fluktuations-dominierten Bereich oberhalb von  $T_C$  für die TEM-Probe liegen. Die Skyrmionentasche liegt im Bereich von 29 – 36 K bei Feldern von 10 – 25 mT. Im Bulk-Kristall ist die Skyrmionenphase bei höheren Temperaturen und ähnlichen Magnetfeldwerten zu finden.

Beim Aufnehmen eines FC Phasendiagramms wurde die Probe bei konstantem Feld schrittweise von 40 K auf tiefere Temperaturen gekühlt. Bei jedem Temperaturschritt wurde 5 s gewartet und ein Bild aufgenommen. Nach Erreichen der tiefsten Temperatur wurde wieder aufgeheizt und bei einem anderen Magnetfeld abgekühlt. Das in Abbildung 6.6B dargestellte FC Phasendiagramm weist eine deutlich andere Form als im ZFC Fall auf. Skyrmionen sind ab  $T_C$  bis hin zu tiefen Temperaturen zu beobachten und bei diesen tiefen Temperaturen metastabil. Die Mischphasen sind deutlich kleiner, insbesondere die Phase die Skyrmionen mit konischer Phase (s+c) enthält. Vergleicht man die Form dieser beiden Phasendiagramme mit denen im Bulk-Kristall in Abbildung 6.1, so ist eine starke Ähnlichkeit gegeben. Qualitativ

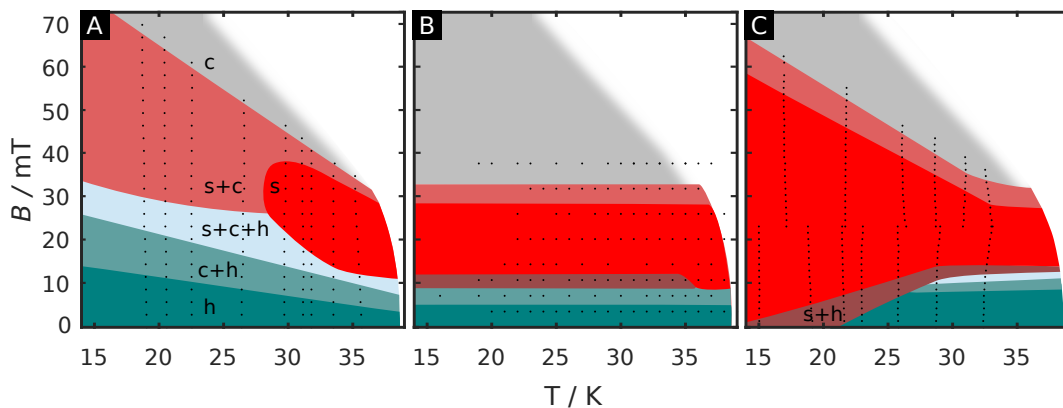


Abbildung 6.6: A zeigt das zero-field cooled (ZFC), B das field cooled (FC) und C das metastabile Phasendiagramm. Teilbilder A und B haben qualitativ eine starke Ähnlichkeit mit dem Phasendiagramm einer Bulk-Probe. Für C wurde erst bei einem Magnetfeld von 23 mT auf eine definierte Temperatur abgekühlt und anschließend das externe Feld entweder vergrößert oder verringert. Die metastabilen Skyrmionen existieren dadurch in einem erweiterten Phasenraum mit einem angelegten Feld von bis zu 60 mT.

ist das Verhalten der TEM-Probe damit dem einer Bulk-Probe sehr ähnlich. In Abbildung 6.6C ist ein erweitertes metastabiles Phasendiagramm dargestellt. Dabei wurde die Probe mit einem angelegtem Magnetfeld von 23 mT auf eine definierte Temperatur abgekühlt und anschließend das externe Feld schrittweise entweder erhöht oder verringert. Bei jedem Schritt wurde wieder 5 s gewartet und ein Bild aufgenommen. Danach wurde die Probe wieder auf über 40 K aufgewärmt und erneut abgekühlt. Man sieht, dass die metastabilen Skyrmionen auf einen großen Bereich erweitert werden, insbesondere zu hohen Magnetfeldwerten bis 60 mT und zu sehr kleinen Feldern. An den Phasengrenzen zeigten die Messungen, dass Skyrmionen mit endlichen Zeitkonstanten in die verschiedenen Phasen zerfallen. Die Zerfallszeiten werden im Folgenden systematisch ausgewertet.

## 6.4 Zerfall metastabiler Skyrmionen

### Vorgehensweise

Die prinzipielle Vorgehensweise für die Zerfallsmessungen von Skyrmionen in die helikale Phase ist in Abbildung 6.7 gezeigt. Es wurde zuerst wie bei dem metastabilen

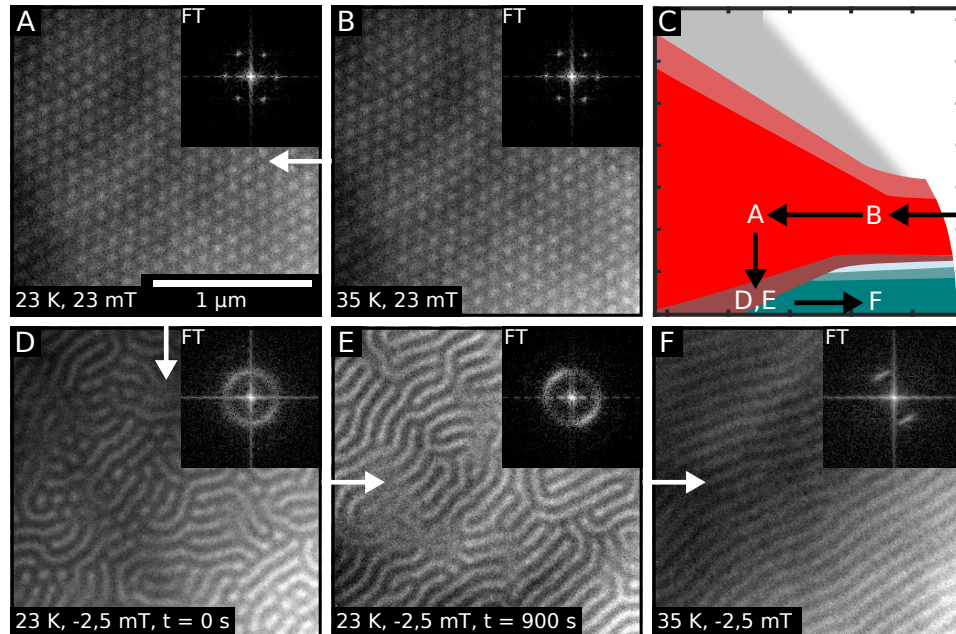


Abbildung 6.7: Vorgehensweise für die Zerfallsmessungen der metastabilen Skyrmionen. Wie im Phasendiagramm in Teilbild C dargestellt werden Skyrmionen unter einem externen Magnetfeld von 23 K aus der Skyrmionentasche (B) auf eine tiefe Temperatur gekühlt (A). Von dort wird das externe Feld entweder erhöht oder verringert und der Zerfall aufgenommen. Die Abbildung zeigt den Übergang zur helikalen Phase bei 23 K mit einem Feldsprung auf  $-2,5$  mT. Teilbilder D und E sind bei verschiedenen Zeitpunkten aufgenommen und zeigen den Übergang von metastabilen Skyrmionen zur helikalen Phase. In E sind alle Skyrmionen zerfallen, jedoch existieren noch viele Defekte in der helikalen Phase, die relaxieren, sobald die Temperatur wieder auf 35 K erhöht wird (F).

Phasendiagramm bei einem Magnetfeld von 23 mT auf eine definierte Temperatur abgekühlt und die Feldstärke anschließend sprunghaft auf einen niedrigeren Wert, nahe der metastabilen Phasengrenze, geändert. Gleichzeitig erfolgte die Aufzeichnung der Dynamik der Zerfallsprozesse mit der Hochgeschwindigkeitskamera.

Teilbilder 6.7A und B zeigen, dass sich das Skyrmionengitter beim Abkühlen von der Skyrmionentasche zu einer Temperatur von 23 K nicht verändert. Beim Ändern des externen Magnetfeldes auf  $-2,5$  mT löst sich das Skyrmionengitter schnell auf und geht in die helikale Phase über. Nach einer Zeit von 900 s gibt es noch viele Defekte in der helikalen Phase, da diese noch nicht ganz relaxiert ist. Wärmt man die Probe wieder auf 35 K auf, so verschwinden diese Defekte. In der Fouriertransformierten (FT) oben rechts in Teilbildern 6.7D-F lässt sich der Übergang zur zweizähligen Symmetrie der helikalen Phase beobachten, da durch das Verschwinden der Defekte die Ordnung steigt.

Bei Zerfallsmessungen von metastabilen Skyrmionen zur konischen Phase wurde die Probe bei 23 mT gekühlt und anschließend das Magnetfeld sprunghaft auf einen höheren Wert geändert.

### Zerfall in die helikale Phase

Das Verhalten von einzelnen Skyrmionen beim Zerfall in die helikale Phase ist in Abbildung 6.8 anhand einer typischen Messung dargestellt. Analog zu den MFM Aufnahmen zeigen Teilbilder 6.8A-D dass sich einzelne Skyrmionen verbinden und zu Streifen verschmelzen. In 6.8E ist der zeitliche Verlauf des Verschmelzens von drei

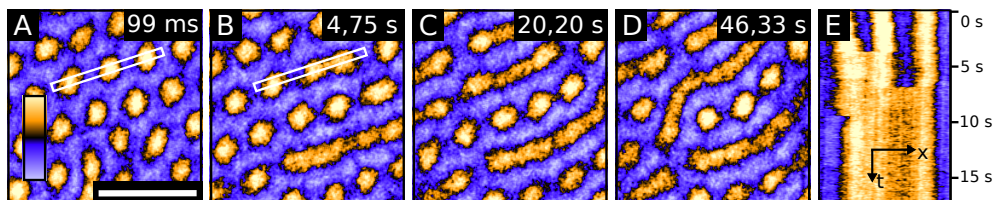


Abbildung 6.8: Eine typische Messung des Zerfalls von metastabilen Skyrmionen in die helikale Phase. Der Balken in Teilbild A besitzt eine Länge von 150 nm. Die Messtemperatur beträgt 16,7 K bei einer vorangegangenen Magnetfeldänderung von 23 mT auf  $-2,6$  mT. Teilbilder A-D zeigen, wie einzelne Skyrmionen verschmelzen und sich dabei Streifen bilden. In E ist der zeitliche Verlauf der Vereinigung von drei Skyrmionen, entlang des in Teilbild A und B gezeigten Streifens, auf der vertikalen Achse dargestellt. Die einzelnen Verschmelzprozesse laufen schneller als 10 ms ab und sind damit nicht beobachtbar. Nach [115].

Skyrmionen auf der vertikalen Achse dargestellt. Die Zeitauflösung reicht nicht aus, um den Verschmelzprozess an sich zu beobachten, in dem der Blochpunkt durch die Probe fährt, da dieser in weniger als der Belichtungszeit von 10 ms abläuft.

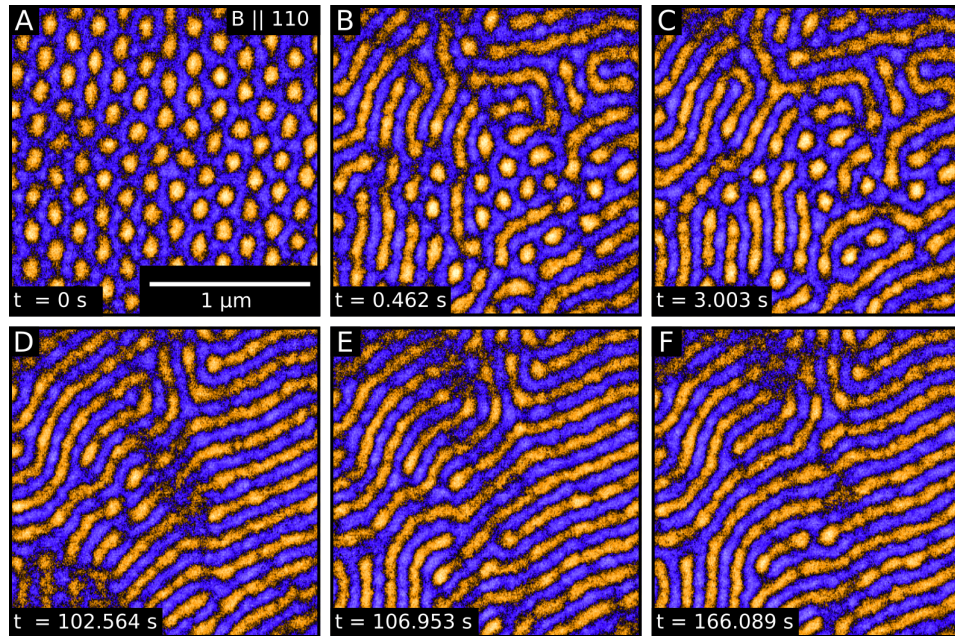


Abbildung 6.9: Übergang vom Skyrmionengitter zur helikalen Phase. Teilbild B zeigt, dass nach einer Zeit von 0,462 s nur noch wenige Skyrmionen vorhanden sind und es sich viele Defekte in der helikalen Phase ausbilden. Diese Defekte minimieren sich, einige stabile Defekte überleben allerdings Zeiten über 166 s wie in Teilbild F gezeigt.

In Abbildung 6.9 ist gezeigt wie der Zerfall auf einer größeren Zeitskala mit einem erweiterten Sichtfeld erfolgt. Nach der Magnetfeldänderung verschmelzen die Skyrmionen wieder und es bilden sich Streifen der helikalen Phase. Nach einer Zeit von 0,462 s sind noch Skyrmionen-Verbände vorhanden und die Streifen beinhalten viele verschiedene Defekte. Im Laufe der Zeit werden die Skyrmionen immer weniger und es lösen sich mehr Defekte in der helikalen Phase auf. Einzelne Defekte bleiben verhältnismäßig lange Zeit erhalten wie Teilbild 6.9F nach einer Zeit von 166 s zeigt. Die stabilsten Defekte können als magnetische Stufenversetzung interpretiert werden, die Dynamik dieser Defekte wurde durch MFM bereits untersucht [122].

### Zerfall in die konische Phase

Ein typischer Zerfall von metastabilen Skyrmionen durch Magnetfelderhöhung in die konische Phase ist in Abbildung 6.10 gezeigt. Einzelne Skyrmionen verschwinden ohne dass sich die verbleibenden Skyrmionen stark umordnen. Die Abbildung zeigt Messungen bei einer Temperatur von 18,5 K mit einer Magnetfeldänderung von 23 mT auf 57 mT. Dieses qualitative Verhalten stimmt exakt mit den theoretischen Vorhersagen überein. Teilbild 6.10E zeigt den zeitlichen Verlauf von drei Skyrmionen, auf einer vertikalen Zeitachse. Der Zerfall von metastabilen Skyrmionen in die konische Phase wurde durch diese Messungen zum ersten Mal überhaupt im Realraum nachgewiesen.

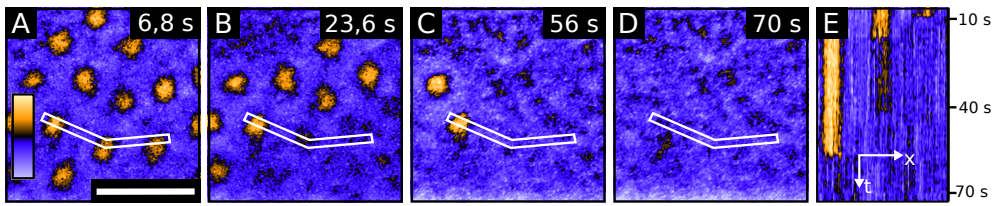


Abbildung 6.10: Ein typischer Zerfall von metastabilen Skyrmionen in die konische Phase. Bei einer Temperatur von 18,5 K verschwinden Skyrmionen nach einer Magnetfeldänderung von 23 mT auf 57 mT ohne Umordnung der Verbleibenden (A-D). In E ist der zeitliche Verlauf des Intensitätsprofils beim Zerfall von drei Skyrmionen dargestellt, dessen Position mit dem weiß umrandeten Balken gekennzeichnet ist. Das mittlere Skyrmion nimmt beim Übergang zur konischen Phase einen Zwischenzustand ein, dessen Lebensdauer im gezeigten Fall etwa 20 s beträgt und sich in vermindertem Kontrast äußert. Nach [115].

Bei einer kleinen Anzahl von Skyrmionen verschwindet der Kontrast nicht sofort beim Zerfall in die konische Phase. Ein Beispiel ist das mittlere der drei markierten Skyrmionen in Abbildung 6.10. In Abbildung 6.11A ist der zeitliche Verlauf der relativen Intensität  $I_L/I_0$  über dem Skyrmion angetragen, die sich ergibt als

$$\frac{I_L}{I_0} = \frac{I_i - I_C}{I_{Sk} - I_C} \quad (6.1)$$

$I_{Sk}$  und  $I_C$  sind die Intensitäten des Skyrmionszustands und des konischen Hintergrunds. Mit der gemessenen Intensität  $I_i$  ergibt sich  $I_L/I_0 = 1$  für den Skyrmionszustand und  $I_L/I_0 = 0$  für die konische Phase. Der Zwischenzustand hat in Abbildung 6.11A eine relative Intensität von  $I_L/I_0 \approx 0,5$  für mehr als 20 s. In den Daten wurden 18 solcher Zwischenzustände aus 360 genauer untersuchten Zerfällen gefunden. Ein Histogramm der Auswertung ist in Abbildung 6.11B dargestellt.

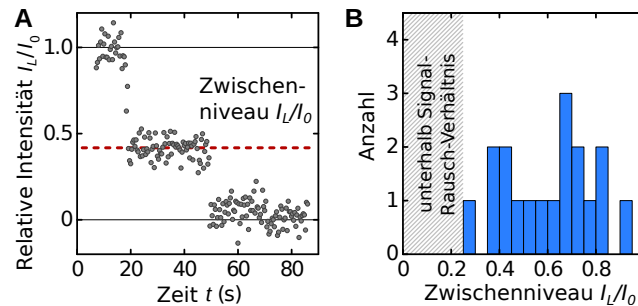


Abbildung 6.11: A zeigt den Verlauf der relativen Intensität  $I_L/I_0$  beim Zerfall des mittleren Skyrmions aus Abbildung 6.10 über einen Zwischenzustand. Der Zwischenzustand bleibt bei einem Niveau von  $I_L/I_0 \approx 0,5$  für mehr als 20 s bestehen und zerfällt anschließend in die konische Phase. In B ist ein Histogramm aller ausgewerteter Zwischenzustände dargestellt. Dabei sind die Niveaus der Zwischenzustände relativ breit verteilt und auch bei hohen Werten zu finden, was gegen das Auftreten von Chiral Bobbers spricht. Nach [115].

Es treten sehr unterschiedliche Zwischenniveaus  $I_L/I_0$  ohne signifikante Häufigkeiten auf. Eine Identifikation der Zwischenzustände mit den theoretisch vorhergesagten Chiral Bobber Zuständen liegt nahe. Dieser Annahme widerspricht jedoch die Gleichverteilung der Kontrastwerte im Histogramm, wohingegen man ein oder zwei Maxima im Histogramm, für ein oder zwei Chiral Bobber, erwarten würden. Ein wahrscheinlicheres Szenario stellt Pinning der Blochpunkte an Kristalldefekten dar, die ein lokales Energieminimum für die Blochpunkte bilden.

## 6.5 Zerfallszeiten

Die Zerfälle der metastabilen Skyrmionen wurden systematisch für verschiedene Magnetfeldsprünge bei unterschiedlichen Temperaturen mit der Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommen. Anschließend wurde bei den Videos die Zerfallszeit  $\tau$  für jeden Skyrmionenzerfall bestimmt. Für die Zerfälle in die helikale und konische Phase wurden jeweils unterschiedliche Auswerteprozeduren verwendet.

Eine typische Auswertung für den Zerfall in die konische Phase ist in Abbildung 6.12B dargestellt. Von jedem Einzelbild der Hochgeschwindigkeitsfilme wurden der unmagnetische Hintergrund abgezogen, ein FT-Bandpass-Filter angewandt und anschließend die lokalen Maxima gesucht. Beträgt die Intensität im Maximum mehr als eine vorgegebene Schwelle im Vergleich zur Umgebungsintensität wird das Maximum als Skyrmion gezählt. Abbildung 6.12B zeigt drei Einzelbilder zu unterschiedlichen

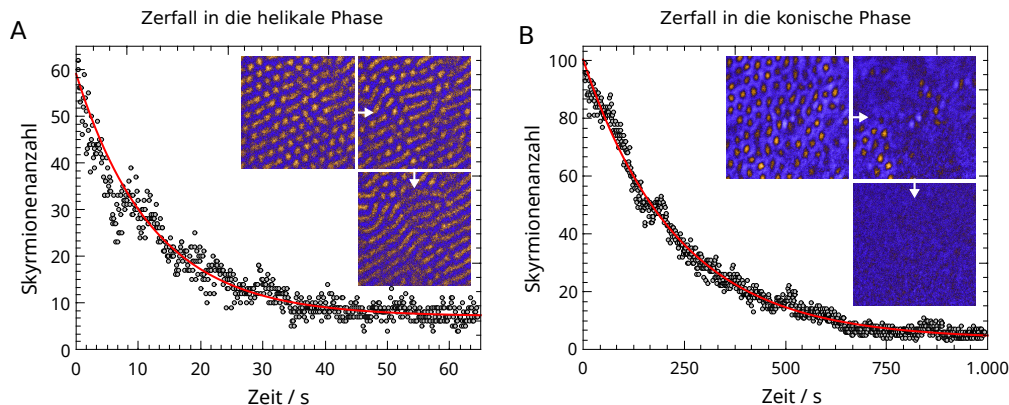


Abbildung 6.12: Typische Auswertung der Skyrmionenanzahl beim Zerfall in die helikale und konische Phase. Beide Zerfälle können durch eine abfallende Exponentialfunktion beschrieben werden, wobei die Zerfallszeit  $\tau$  stark von Temperatur und Magnetfeldsprung abhängt. Die Bilder in den Graphen zeigen den Zerfall zu jeweils drei verschiedenen Zeitpunkten.

Zeiten und die zugehörige Auswertung der Skyrmionenanzahl in Abhängigkeit der Zeit. Der Zerfall wurde bei einer Temperatur von 20,4 K mit einem Magnetfeldsprung von 23 mT auf 57 mT aufgenommen. Die rote Kurve stellt einen Exponentialfit mit Offset dar, der das Verhalten des Zerfalls genügend gut beschreibt. Der Offset ist nötig, weil die Skyrmionenanzahl nicht komplett auf Null zurück geht, da der Algorithmus Fehldetektionen von  $\approx 10$  Skyrmionen verursacht.

Für den Zerfall in die helikale Phase wurden zwei Algorithmen angewandt um die Zerfallszeit zu detektieren. Zum einen über das Zählen von Skyrmionen und über eine Intensitätsauswertung im reziproken Raum.

Für den ersten Fall wurde bei den Einzelbildern der Hintergrund abgezogen und das Bild mit einem FT-Bandpass gefiltert. Anschließend wurden Kanten durch einen Laplacian of Gaussian Algorithmus erkannt und Linien mit konstanter Intensität detektiert. Anschließend wurden kreisförmige Konturen, die eine bestimmte Fläche einschließen, als Skyrmionen interpretiert und gezählt. Das Ergebnis einer typischen Auswertung ist in Abbildung 6.12A gezeigt. Die Einzelbilder zeigen verschiedene Stadien des Zerfalls zu unterschiedlichen Zeitpunkten. Die Skyrmionenanzahl kann wieder durch eine Exponentialfunktion mit Offset beschrieben werden, der Fit ist rot eingezeichnet. Der Offset ist auch mit dieser Methode durch den Fehler des Auswertalgorithmus gegeben und beträgt weniger als 10 Skyrmionen.

Die Zerfallszeiten in die helikale Phase sind auch über Intensitäten im reziproken

Raum bestimmt worden. Die Fouriertransformierte geht beim Zerfall von einer sechszähligen in eine zweizählige Symmetrie über. Die Intensitäten ordnen sich dabei von den sechs Punkten der Skymionenphase in die zwei Punkte der helikalen Phase um. Da die Punkte der helikalen Phase an der selben Position wie zwei Punkte der Skymionenphase sind kann die Zerfallszeit über eine Intensitätsmaske bestimmt werden. Es wurden die Intensitäten der helikalen Spots gegen die Intensität außerhalb dieser Spots gemessen. Daraus ergibt sich ein Ordnungsparameter dessen Anstieg ebenfalls durch eine Exponentialfunktion beschrieben werden kann. Die Zeitkonstanten des Ordnungsparameters stimmten gut mit denen des Kantenerkennungsalgorithmus überein, sind jedoch leicht erniedrigt.

## 6.6 Arrhenius-Gesetz

Die Zerfallsmessungen wurden in großen Bereichen des metastabilen Phasendiagramms aufgenommen. Eine Übersicht mit den ausgewerteten Zerfallszeiten ist in Abbildung 6.13 durch farbige Punkte im Phasendiagramm dargestellt. Zerfälle mit gleichem Magnetfeldsprung weisen mit steigender Temperatur eine geringere Zerfallszeit  $\tau$  auf, die Werte von 1 – 1000 s annimmt. Diese Temperaturabhängigkeit kann als Überwinden einer einfachen Energiebarriere  $\Delta E(B)$  interpretiert und  $\tau$  durch das Arrhenius-Gesetz beschrieben werden. Für  $\tau$  ergibt sich dann

$$\tau \approx \tau_0(B) e^{\frac{\Delta E(B)}{k_B T}} \quad (6.2)$$

Dabei ist  $\tau_0(B)$  eine charakteristische Zerfallszeit die vom externen Magnetfeld  $B$  abhängt und  $k_B T$  die thermische Energie.

In Abbildung 6.14A und B sind die verschiedenen Zerfallszeiten für unterschiedliche Magnetfelder und Temperaturen, in Form von thermischer Energie  $k_B T$ , angetragen. Da die Zerfallszeiten logarithmisch dargestellt sind kann die Energiebarriere  $\Delta E(B)$  aus der Steigung bestimmt werden.

Die Energiebarrieren ändern sich stark für verschiedene Magnetfeldänderungen und sind am größten für kleine Feldänderungen. Beim Zerfall in die helikale Phase ändert sich die Energiedifferenz von  $\Delta E \approx 32 \pm 3$  meV für eine Feldänderung auf  $B = 7,3$  mT hin zu  $\Delta E \approx 15 \pm 1$  meV für eine Änderung auf  $B = -2,6$  mT. Beim Erhöhen des externen Feldes ändert sich die Barriere von  $\Delta E \approx 199 \pm 4$  meV für  $B = 42,2$  mT hin zu  $13 \pm 1$  meV für  $B = 56,8$  mT.

Das qualitative Verhalten der Messungen ist in Übereinstimmung mit theoretischen Vorhersagen. Schütte et al. berechneten durch stochastische mikromagnetische Simulationen bei endlichen Temperaturen Aktivierungsenergien und die Magnetfeldabhängigkeit des Übergangs eines einzelnen Skymions in die helikale Phase [112]. Ähnlich wie in den Messungen wurde eine starke Abhängigkeit der Zerfallsraten

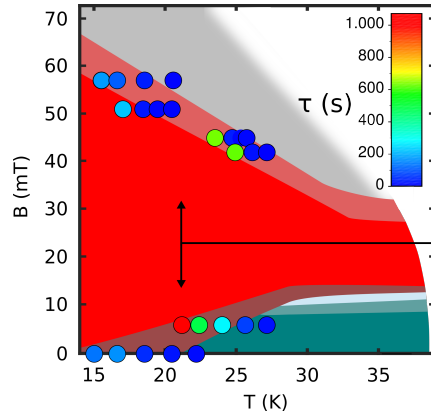


Abbildung 6.13: Übersicht der Zerfallszeiten  $\tau$  für verschiedene Magnetfeldsprünge bei unterschiedlichen Temperaturen im metastabilen Phasendiagramm. Die Position der einzelnen Punkte gibt an bei welcher Temperatur ein bestimmtes Feld angefahren wurde. Die Farbe repräsentiert die Zerfallszeit  $\tau$ , die sich im Bereich von 1 – 1000 s verändert.

vom externen Magnetfeld gefunden und die Zerfallszeit nimmt mit sinkendem Feld deutlich zu. Rybakov et al. berechneten mit mikromagnetischen Simulationen für  $T = 0$  K Aktivierungsbarrieren für den Übergang in die konische Phase [113]. Wie in den Experimenten sind die berechneten Aktivierungsenergien höher als für den Zerfall in die helikale Phase, allerdings eine Größenordnung größer als die gemessenen. Ein Grund für diese Diskrepanz könnte in Entropieeffekten liegen, die vor allem für hohe Energiebarrieren ausgeprägt sind und im Folgenden diskutiert werden.

Überraschenderweise kann nicht allein über die Aktivierungsenergien die Lebensdauer der metastabilen Skyrmionen vorhergesagt werden. Stattdessen nimmt der Parameter  $\tau_0(B)$  teilweise sehr kleine Werte an und hängt ungewöhnlich stark vom externen Magnetfeld  $B$  ab. Die charakteristische Zeit  $\tau_0$  ist in Abbildung 6.14C gegen die Energiebarriere  $\Delta E$  angetragen. Dabei verändert sich  $\tau_0(B)$  von extrem kleinen Werten, kleiner als  $10^{-37}$  s für einen Magnetfeldsprung auf  $B = 42,2$  mT bis hin zu Zeiten von  $\sim 10^{-2}$  s für  $B = 57$  mT. Diese Werte stehen in Kontrast zu typischen Zeitkonstanten im Bereich von  $10^{-9}$  s für magnetische Systeme mit einer einfachen Energiebarriere [123, 124].

Um so ein Verhalten zu erklären muss das Arrhenius-Gesetz genauer betrachtet und erweitert werden. Die Physik in einem ferromagnetischen System wird ganz allgemein durch die freie Energie  $F(T, B) = E(T, B) - T \cdot S(T, B)$  beschrieben. Dabei ist  $S(T, B)$  die temperatur- und feldabhängige Entropie. Das Arrhenius-Gesetz für eine

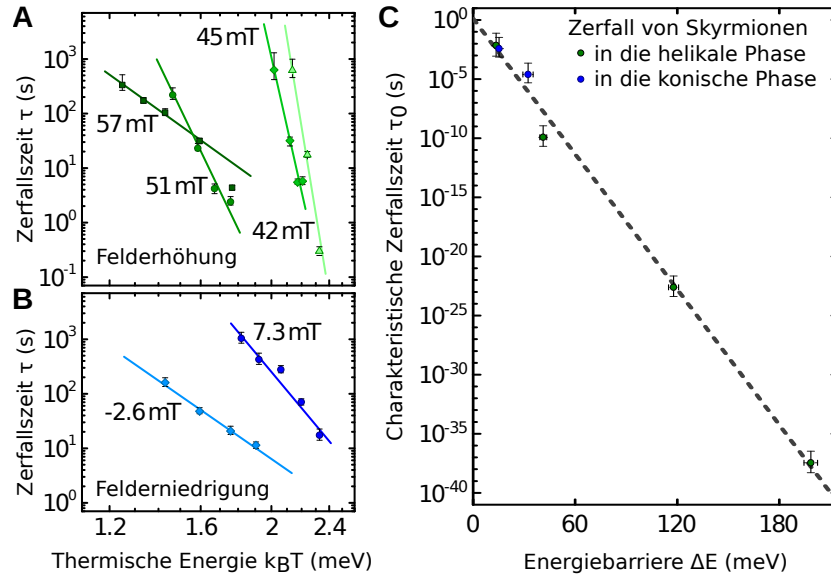


Abbildung 6.14: A und B zeigen Zerfallszeiten  $\tau(B)$  in Abhängigkeit von der thermischen Energie  $k_B T$ . Durch die logarithmische Antragung von  $\tau$  ergibt sich für die Steigung der einzelnen Kurven die Energiebarriere  $\Delta E$ . In C ist die charakteristische Zerfallszeit  $\tau_0$  gegen  $\Delta E$  angetragen. Die Änderung von  $\tau_0$  beträgt dabei mehr als 30 Größenordnungen und ist durch Entropieeffekte zu erklären. Nach [115].

einzelne Energiebarriere lautet dann

$$\tau(B) = \tau_{00} e^{\frac{\Delta F(T,B)}{k_B T}} \quad (6.3)$$

$$= \tau_{00} e^{-\frac{T \cdot \Delta S(B)}{k_B T}} e^{\frac{\Delta E(B)}{k_B T}} \quad (6.4)$$

$$= \tau_{00} e^{-\frac{\Delta S(B)}{k_B}} e^{\frac{\Delta E(B)}{k_B T}} \quad (6.5)$$

Damit hängt die Zerfallszeit  $\tau(B)$  exponentiell von der Entropiedifferenz  $\Delta S(B)$  zwischen dem Skyrmionenzustand und dem Endzustand des Zerfalls ab. Ein hoher positiver Wert von  $\Delta S$  führt zu einer Erniedrigung der Zeitkonstante  $\tau_0$  und zu einer starken Verminderung der Zerfallszeit  $\tau$ . Physikalisch kann das wie von Yelon et al. durch eine exponentiell hohe Anzahl  $N_p$  an mikroskopischen Pfaden durch die Energiebarriere erklärt werden, wodurch sich eine Entropieänderung  $\Delta S = k_B \ln(N_p)$  ergibt und sich dadurch die Zerfallszeit um den Faktor  $N_p$  verringert [125]. Gleichermaßen ergibt sich bei einem negativen Wert von  $\Delta S$  eine Erhöhung der Zerfallszeit. Da die Zerfallszeiten in den Messungen so viele unterschiedliche Werte einnehmen,

mit größeren und kleineren Werten als typische Zeitkonstanten im ns Bereich, muss die Entropiedifferenz  $\Delta S$  für hohe Zerfallszeiten negativ und für kleine positiv sein. Solche Entropieeffekte zeigen sich in vielen verschiedenen Systemen in der Biologie, Chemie und Physik. Sie sind beispielsweise in katalytischen Reaktionen [126], Transportmessungen in Halbleitern [127, 128], biologischen Prozessen [129] und anderen Gebieten [125, 130] beobachtet worden. Dadurch, dass hochenergetische Zustände typischerweise auch immer eine höhere Entropie besitzen, tendieren die Entropieeffekte dazu den Energieeffekten entgegenzuwirken. Dieses Verhalten wird daher auch als *Kompensationseffekt* bezeichnet. Phänomenologisch wird der lineare Zusammenhang zwischen Aktivierungsenergie und Entropie in der Festkörperphysik Meyer-Neldel-Regel genannt [125, 127, 130]. Ein Fit zur Auswertung des Skyrmionenzerfalls in Abbildung 6.14C zeigt, dass die charakteristische Zerfallszeit  $\tau_0$  exponentiell von der Energiebarriere  $\Delta E$  abhängt und sich damit durch die Meyer-Neldel-Regel beschreiben lässt.

Beim Bestimmen der Langzeitstabilität von magnetischen Systemen mit Aktivierungsenergie werden bisher Werte im Bereich von  $\tau_0 \sim \text{ns}$  allgemein akzeptiert [123, 124]. Das Ergebnis aus den Messungen zum Zerfall von metastabilen Skyrmionen zeigt, dass die thermische Stabilität in bestimmten magnetischen Systemen durch Entropieeffekte um mehr als 20 Größenordnungen überschätzt werden kann.

## 6.7 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Messungen präsentiert, die viele grundlegende Aspekte von Skyrmionen in  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$  beleuchten. Es wurden Übergänge zwischen metastabilen Skyrmionen und der helikalen und konischen Phase bei unterschiedlichen Magnetfeld- und Temperaturwerten untersucht. Dabei konnte die Stabilität von Skyrmionen weit außerhalb des Gleichgewichtszustands quantifiziert werden.

Es wurde systematisch untersucht für welche Magnetfelder und Temperaturen die unterschiedlichen chiralen Spintexturen in einer  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$ -Probe zu finden sind. Dazu wurden drei unterschiedliche Phasendiagramme mit verschiedenen Kühlmethoden aufgenommen, die zero-field cooling (ZFC), field cooling (FC) und metastabiles Phasendiagramm genannt werden. Die verschiedenen Phasendiagramme zeigen, dass das Verhalten der TEM-Probe stark von der Historie des Magnetfelds und der Temperatur abhängt. Die ZFC und FC Phasendiagramme weisen eine starke Ähnlichkeit mit Bulk-Phasendiagrammen auf und sprechen dafür, dass sich diese TEM-Probe eher wie eine Bulk- als eine Dünnschichtprobe verhält. Der Grund dafür liegt wahrscheinlich an der ungewöhnlich hohen Dicke von  $\approx 240 \text{ nm}$  im Vergleich zu typischen TEM-Probindicken von  $\approx 100 \text{ nm}$ .

Es wurde untersucht wie metastabile Skyrmionen in die helikale und konische Phase zerfallen. Die Zerfallszeit variiert von 1 – 1000 s, je nach Magnetfeldsprung und

Temperatur. Die Skyrmionenanzahl kann bei jedem Zerfall mit einer abfallenden Exponentialfunktion beschrieben werden. Es wurde verifiziert, dass sich beim Übergang in die helikale Phase Skyrmionen vereinigen. Simulationen zeigen, dass dabei ein Monopol oder Antimonopol wie ein Reißverschluss durch die Probe fährt. Zum ersten Mal überhaupt wurde der Zerfall in die konische Phase im Realraum beobachtet. Simulationen zeigen, dass dabei der Skyrmionenschlauch in der Mitte aufgetrennt wird und ein Monopol-Antimonopol-Pärchen jeweils an die Oberfläche der Probe wandert. Laut der Theorie ist es dann möglich, dass sich ein metastabiler Zustand an der Oberfläche ausbildet, der sog. Chiral Bobber. In unseren Messungen sind beim Zerfall Zwischenzustände sichtbar, die aber wegen ihren Intensitäten eher auf Pinning des Skyrmionenschlauchs an einem Kristalldefekt zurückzuführen sind.

Die Zerfälle in die helikale und konische Phase wurden systematisch durch eine Hochgeschwindigkeitskamera aufgenommen und die Zerfallszeiten mit Hilfe von Skyrmionenerkennungsalgorithmen bestimmt. Es konnte das Arrhenius-Gesetz angewandt werden um Energiebarrieren aus den Zerfallszeiten auszumessen. Dabei wurde festgestellt, dass sich der Vorfaktor des Arrhenius-Gesetzes, die charakteristische Zerfallszeit  $\tau_0$ , bei kleinen Magnetfeldänderungen um mehr als 30 Größenordnungen ändert. Solch eine Beobachtung ist neu, da typische Zeitkonstanten von magnetischen Systemen mit Aktivierungsenergie im ns Bereich liegen. Bei genauerer Betrachtung ist dieser Vorfaktor von der Entropieänderung zwischen dem Anfangs- und Endzustand des Zerfalls abhängig. Diese starke Änderung des Vorfaktors führt dazu, dass die Zerfallszeit durch die Energiebarriere von der Entropieänderung kompensiert wird. Diese Erkenntnis ist wichtig beim Design von Skyrmionen-basierenden Speichern und zeigt, dass die thermische Stabilität von Skyrmionen bisher deutlich überschätzt worden ist.



## 7 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden magnetische Skyrmionen mit einem Transmissionselektronenmikroskop (TEM) untersucht. Es wurde der Lorentz-TEM-Modus und die Differentielle Phasenkontrastmikroskopie verwendet.

Der erste experimentellen Teil untersuchte die tetragonale Heusler-Legierung  $\text{Mn}_{1.4}\text{PtSn}$  auf Skyrmionen. In diesem Material wurden bisher keine Skyrmionen nachgewiesen, Messungen an Bulk-Proben lassen aber eine spontane Skyrmionenphase in einem Temperaturbereich zwischen 130 und 160 K vermuten. Die helikale Phase konnte von 12 K bis zur Curie Temperatur von 400 K nachgewiesen werden und ist auf den Einfluss von externen Magnetfeldern hin charakterisiert worden. Skyrmionen konnten nicht eindeutig identifiziert werden, da im interessanten Temperaturbereich Kontaminationen auf der Probenoberfläche Tröpfchen ausbilden, die ähnliche Kontraste wie Skyrmionen erzeugen.

Im nächsten Abschnitt wurden Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  gemessen und ihre Teilcheneigenschaften überprüft. Dazu wurde die Dynamik von Skyrmionengittern aufgenommen, die durch den Temperaturgradienten des Elektronenstrahls in Rotation versetzt werden. Dabei bilden sich vereinzelte Gitterdefekte und Gitterdomänen aus, die von Korngrenzen getrennt sind. Es wurde festgestellt, dass ausschließlich 5-7 Defekte im Gitter auftreten und sich entlang von Korngrenzen anordnen. Die Defektdichte entlang der Korngrenzen wurde für verschiedene Kippwinkel ausgemessen und eine Übereinstimmung mit der Frankschen Formel für Kleinwinkelgitterkorngrenzen gefunden. Bei den Umordnungsprozessen ist die Skyrmionenzahl mit einer Genauigkeit von  $\pm 1$  konstant. Um die Dynamik dieser Umordnung besser zu verstehen wurden Simulationen durchgeführt, die qualitativ ebenfalls gut mit den Messungen übereinstimmen. Skyrmionengitter teilen sich dabei viele wichtige Eigenschaften mit Teilchengittern was den solitonischen, teilchenartigen Charakter von Skyrmionen in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  stärkt.

Im letzten experimentellen Teil wurde der Zerfall von Skyrmionen in  $\text{Fe}_{0.5}\text{Co}_{0.5}\text{Si}$  untersucht. Dazu wurden zunächst verschiedene Phasendiagramme für die chiralen Phasen entwickelt. Es konnte im TEM erstmals eine Historienabhängigkeit der Phasendiagramme nachgewiesen werden, was sonst bisher nur bei Bulk-Proben mit anderen Methoden möglich war. Anschließend wurde gemessen wie Skyrmionen in die helikale und konische Phase zerfallen und die Ergebnisse wurden mit Simulationen verglichen. Dabei konnte beim Zerfall in die helikale Phase ein Verschmelzen von

Skyrmionen bestätigt werden und ein Verschwinden von Skyrmionen beim Übergang in die konische Phase. Der Übergang in die konische Phase ist damit zum ersten Mal im Realraum abgebildet worden und gibt in den Messungen zusätzlich noch Hinweise auf einen metastabilen Zwischenzustand, den sog. Chiral Bobber. Die Zerfallszeiten können durch einen exponentiellen Abfall beschrieben und mit dem Arrhenius-Gesetz verglichen werden. Überraschenderweise werden die Zerfallszeiten durch einen Vorfaktor bestimmt, der sich bei kleinen Magnetfeldvariationen um mehr als 30 Größenordnungen ändert. Diese Änderung des Vorfaktors kann durch die Entropiedifferenz zwischen der Skyrmionenphase und dem Endzustand erklärt werden. Man spricht dabei auch von Entropiekompensation, weil die Zerfallszeiten, hervorgerufen durch Energiebarrieren durch die Entropieänderung kompensiert werden. Diese Erkenntnis ist wichtig für technologische Anwendungen, da die thermische Stabilität von Skyrmionen bisher deutlich überschätzt worden ist.

## Literatur

- [1] T. H. R. Skyrme. “A Non-Linear Field Theory”. In: 260.1300 (1961), S. 127–138.
- [2] T. H. R. Skyrme. “Particle States of a Quantized Meson Field”. In: *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 262.1309 (1961), S. 237–245. DOI: 10.1098/rspa.1961.0115.
- [3] T. H. R. Skyrme. “A Unified Field Theory of Mesons and Baryons”. In: *Nucl. Phys.* 31 (1962), S. 556. DOI: 10.1016/0029-5582(62)90775-7.
- [4] G. S. Adkins, C. R. Nappi und E. Witten. “Static properties of nucleons in the Skyrme model”. In: *Nuclear Physics B* 228.3 (1983), S. 552–566. DOI: 10.1016/0550-3213(83)90559-X.
- [5] I. Zahed und G. Brown. “The Skyrme model”. In: *Physics Reports* 142.1 (1986), S. 1–102. DOI: 10.1016/0370-1573(86)90142-0.
- [6] T.-L. Ho. “Spinor Bose Condensates in Optical Traps”. In: *Phys. Rev. Lett.* 81 (1998), S. 742–745. DOI: 10.1103/PhysRevLett.81.742.
- [7] U. Al Khawaja und H. Stoof. “Skyrmions in a ferromagnetic Bose-Einstein condensate”. In: *Nature* 411.6840 (2001), S. 918–920. DOI: 10.1038/35082010.
- [8] J.-I. Fukuda und S. Žumer. “Quasi-two-dimensional Skyrmion lattices in a chiral nematic liquid crystal”. In: *Nature Communications* 2 (2011), S. 246. DOI: 10.1038/ncomms1250.
- [9] A. Bauer und C. Pfeleiderer. “Generic Aspects of Skyrmion Lattices in Chiral Magnets”. In: *Topological Structures in Ferroic Materials: Domain Walls, Vortices and Skyrmions*. Hrsg. von J. Seidel. Cham: Springer International Publishing, 2016, S. 1–28. DOI: 10.1007/978-3-319-25301-5\_1.
- [10] A. Bogdanov und D. Yabolskii. “Thermodynamically stable vortices in magnetically ordered crystals. The mixed state of magnets”. In: *JETP* 68.1 (1989), S. 101.
- [11] A. Bogdanov und A. Hubert. “Thermodynamically stable magnetic vortex states in magnetic crystals”. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 138 (1994), S. 255–269.

- [12] S. Mühlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii und P. Böni. “Skyrmion lattice in a chiral magnet.” In: *Science* 323.5916 (2009), S. 915–9. DOI: 10.1126/science.1166767.
- [13] W. Münzer, A. Neubauer, T. Adams, S. Mühlbauer, C. Franz, F. Jonietz, R. Georgii, P. Böni, B. Pedersen, M. Schmidt, A. Rosch und C. Pfleiderer. “Skyrmion lattice in the doped semiconductor  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ”. In: *Phys. Rev. B* 81.041203 (2010). DOI: 10.1103/PhysRevB.81.041203.
- [14] X. Z. Yu, Y. Onose, N. Kanazawa, J. H. Park, J. H. Han, Y. Matsui, N. Nagao-sa und Y. Tokura. “Real-space observation of a two-dimensional skyrmion crystal”. In: *Nature* 465.7300 (2010), S. 901–904. DOI: 10.1038/nature09124.
- [15] X. Z. Yu, N. Kanazawa, Y. Onose, K. Kimoto, W. Z. Zhang, S. Ishiwata, Y. Matsui und Y. Tokura. “Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe”. In: *Nat Mater* 10.2 (2011), S. 106–109. DOI: 10.1038/nmat2916.
- [16] S. Seki, X. Z. Yu, S. Ishiwata und Y. Tokura. “Observation of Skyrmions in a Multiferroic Material”. In: *Science* 336.6078 (2012), S. 198–201. DOI: 10.1126/science.1214143.
- [17] Y. Tokunaga, X. Z. Yu, J. S. White, H. M. Rønnow, D. Morikawa, Y. Taguchi und Y. Tokura. “A new class of chiral materials hosting magnetic skyrmions beyond room temperature”. In: *Nature Communications* 6.7638 (2015).
- [18] A. Fert, V. Cros und J. Sampaio. “Skyrmions on the track”. In: *Nat Nano* 8.3 (2013), S. 152–156. DOI: 10.1038/nnano.2013.29.
- [19] A. Soumyanarayanan, N. Reyren, A. Fert und C. Panagopoulos. “Emergent phenomena induced by spin–orbit coupling at surfaces and interfaces”. In: *Nature* 539.7630 (2016), S. 509–517. DOI: 10.1038/nature19820.
- [20] T. Adams, A. Chacon, M. Wagner, A. Bauer, G. Brandl, B. Pedersen, H. Berger, P. Lemmens und C. Pfleiderer. “Long-Wavelength Helimagnetic Order and Skyrmion Lattice Phase in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ ”. In: *Phys. Rev. Lett.* 108.237204 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.237204.
- [21] P. Milde, D. Köhler, J. Seidel, L. M. Eng, A. Bauer, A. Chacon, J. Kindervater, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, S. Bührandt, C. Schütte und A. Rosch. “Unwinding of a Skyrmion Lattice by Magnetic Monopoles”. In: *Science* 340.6136 (2013), S. 1076–1080. DOI: 10.1126/science.1234657.
- [22] S. L. Zhang, A. Bauer, H. Berger, C. Pfleiderer, G. van der Laan und T. Hesjedal. “Resonant elastic x-ray scattering from the skyrmion lattice in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ ”. In: *Phys. Rev. B* 93.214420 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.93.214420.

- 
- [23] T. Schwarze, J. Waizner, M. Garst, A. Bauer, I. Stasinopoulos, H. Berger, C. Pfeiderer und D. Grundler. “Universal helimagnon and skyrmion excitations in metallic, semiconducting and insulating chiral magnets”. In: *Nat Mater* 14.5 (2015), S. 478–483. DOI: 10.1038/nmat4223.
- [24] M. Futamoto, Y. Hirayama, Y. Honda und A. Kikukawa. “Perpendicular Recording Media for Ultra-High-Density Magnetic Recording”. In: *Magnetic Storage Systems Beyond 2000*. Hrsg. von G. C. Hadjipanayis. Dordrecht: Springer Netherlands, 2001, S. 103–116. DOI: 10.1007/978-94-010-0624-8\_5.
- [25] E. Brewer, L. Ying, L. Greenfield, R. Cypher und T. T’so. *Disks for Data Centers*. Techn. Ber. Google, 2016.
- [26] S. Parkin und S.-H. Yang. “Memory on the racetrack”. In: *Nat Nano* 10.3 (2015), S. 195–198. DOI: 10.1038/nnano.2015.41.
- [27] F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfeiderer, A. Neubauer, W. Münzer, A. Bauer, T. Adams, R. Georgii, P. Böni, R. A. Duine, K. Everschor, M. Garst und A. Rosch. “Spin Transfer Torques in MnSi at Ultralow Current Densities”. In: *Science* 330.6011 (2010), S. 1648–1651. DOI: 10.1126/science.1195709.
- [28] N. Romming, C. Hanneken, M. Menzel, J. E. Bickel, B. Wolter, K. von Bergmann, A. Kubetzka und R. Wiesendanger. “Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions”. In: *Science* 341.6146 (2013), S. 636–639. DOI: 10.1126/science.1240573.
- [29] P.-J. Hsu, A. Kubetzka, A. Finco, N. Romming, K. von Bergmann und R. Wiesendanger. “Electric-field-driven switching of individual magnetic skyrmions”. In: *Nat Nano* 12.2 (2017), S. 123–126. DOI: 10.1038/nnano.2016.234.
- [30] L. Landau und E. Lifshitz. “On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies”. In: *Phys. Z. Sowjetunion* 8.153 (1935), S. 101–114.
- [31] W. Brown. *Magnetostatic Principles in Ferromagnetism*. Selected topics in solid state physics. North-Holland Publishing Company, 1962.
- [32] S. Blundell. *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford Master Series in Condensed Matter Physics 4. OUP Oxford, 2001.
- [33] W. Heisenberg. “Zur Theorie des Ferromagnetismus”. In: *Zeitschrift für Physik* 49.9 (1928), S. 619–636. DOI: 10.1007/BF01328601.
- [34] S. Pöllath. “Dynamical defects and grain boundaries in the skyrmion lattice of  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ ”. Masterarbeit. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2016.

- [35] A. Hubert und R. Schäfer. *Magnetic Domains*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1998.
- [36] J. M. Cowley. *Diffraction Physics 3rd edition*. North-Holland Personal Library, 1995.
- [37] I. Dzyaloshinsky. “A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics”. In: *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 4.4 (1958), S. 241–255. DOI: 10.1016/0022-3697(58)90076-3.
- [38] T. Moriya. “Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism”. In: *Phys. Rev.* 120 (1960), S. 91–98. DOI: 10.1103/PhysRev.120.91.
- [39] T. Moriya. “New Mechanism of Anisotropic Superexchange Interaction”. In: *Phys. Rev. Lett.* 4 (1960), S. 228–230. DOI: 10.1103/PhysRevLett.4.228.
- [40] A. Bauer, M. Garst und C. Pfleiderer. “History dependence of the magnetic properties of single-crystal  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ ”. In: *Phys. Rev. B* 93.235144 (2016). DOI: 10.1103/PhysRevB.93.235144.
- [41] S. A. Meynell, M. N. Wilson, J. C. Loudon, A. Spitzig, F. N. Rybakov, M. B. Johnson und T. L. Monchesky. “Hall effect and transmission electron microscopy of epitaxial MnSi thin films”. In: *Phys. Rev. B* 90.224419 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevB.90.224419.
- [42] S. Seki und M. Mochizuki. *Skyrmions in Magnetic Materials*. Springer Berlin Heidelberg, 2016.
- [43] I. Kezsmarki, S. Bordacs, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Ronnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan und A. Loidl. “Neel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV4S8”. In: *Nat Mater* 14.11 (2015), S. 1116–1122. DOI: 10.1038/nmat4402.
- [44] T. Adams, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer, F. Jonietz, A. Bauer, A. Neubauer, R. Georgii, P. Böni, U. Keiderling, K. Everschor, M. Garst und A. Rosch. “Long-Range Crystalline Nature of the Skyrmion Lattice in MnSi”. In: *Phys. Rev. Lett.* 107.217206 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.217206.
- [45] A. Rosch. “Magnetic skyrmions: Particles or waves”. In: *Nat Mater* 15.12 (2016), S. 1231–1232. DOI: 10.1038/nmat4774.
- [47] C. Pfleiderer. “Magnetic order: Surfaces get hairy”. In: *Nat Phys* 7.9 (2011), S. 673–674. DOI: 10.1038/nphys2081.

- 
- [46] N. Nagaosa und Y. Tokura. “Topological properties and dynamics of magnetic skyrmions”. In: *Nat Nano* 8.12 (2013), S. 899–911. DOI: 10.1038/nnano.2013.243.
- [48] M. Knoll und E. Ruska. “Das Elektronenmikroskop”. In: *Zeitschrift für Physik* 78.5 (1932), S. 318–339.
- [49] O. Scherzer. “Über einige Fehler von Elektronenlinsen”. In: *Zeitschrift für Physik* 101.9 (1936), S. 593–603. DOI: 10.1007/BF01349606.
- [50] J. Barthel, L. Houben und K. Tillmann. “FEI Titan G3 50-300 PICO”. In: *Journal of large-scale research facilities* 1.A34 (2015).
- [51] M. De Graef und Y. Zhu. “Quantitative noninterferometric Lorentz microscopy”. In: *Journal of Applied Physics* 89.11 (2001), S. 7177–7179. DOI: 10.1063/1.1355337.
- [52] S. McVitie und M. Cushley. “Quantitative Fresnel Lorentz microscopy and the transport of intensity equation”. In: *Ultramicroscopy* 106.4–5 (2006), S. 423–431. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2005.12.001.
- [53] J. Zweck. “Imaging of magnetic and electric fields by electron microscopy”. In: *Journal of Physics: Condensed Matter* 28, 40.403001 (2016).
- [54] T. Shinjo, T. Okuno, R. Hassdorf, K. Shigeto und T. Ono. “Magnetic Vortex Core Observation in Circular Dots of Permalloy”. In: *Science* 289.5481 (2000), S. 930–932. DOI: 10.1126/science.289.5481.930.
- [55] J. Raabe, R. Pulwey, R. Sattler, T. Schweinböck, J. Zweck und D. Weiss. “Magnetization pattern of ferromagnetic nanodisks”. In: *Journal of Applied Physics* 88.7 (2000), S. 4437–4439. DOI: 10.1063/1.1289216.
- [56] A. Wachowiak, J. Wiebe, M. Bode, O. Pietzsch, M. Morgenstern und R. Wiesendanger. “Direct Observation of Internal Spin Structure of Magnetic Vortex Cores”. In: *Science* 298.5593 (2002), S. 577–580. DOI: 10.1126/science.1075302.
- [57] J. Zweck und B. Bormans. “The CM30 Lorentz lens”. In: *Philips Electron Opt. Bull.* 132 (1992), S. 1–8.
- [58] M. R. Teague. “Deterministic phase retrieval: a Green’s function solution”. In: *J. Opt. Soc. Am.* 73.11 (1983), S. 1434–1441. DOI: 10.1364/JOSA.73.001434.
- [59] T. Gureyev und K. Nugent. “Rapid quantitative phase imaging using the transport of intensity equation”. In: *Optics Communications* 133.1 (1997), S. 339–346. DOI: 10.1016/S0030-4018(96)00454-3.

- [60] K. Ishizuka und B. Allman. “Phase measurement in electron microscopy using the transport of intensity equation”. In: *Microscopy Today* 5.3 (2005), S. 22–24.
- [61] *MATLAB version 8.5.0.197613 (R2015a)*. The Mathworks, Inc. Natick, Massachusetts, 2015.
- [62] N. Dekkers. “Differential phase contrast in a STEM”. In: *Optik* 41.4 (1974), S. 452–456.
- [63] H. Rose. “Phase Contrast in Scanning Transmission Electron Microscopy”. In: *Optik* 39.4 (1974), S. 416–436.
- [64] J. Chapman, P. Batson, E. Waddell und R. Ferrier. “The direct determination of magnetic domain wall profiles by differential phase contrast electron microscopy”. In: *Ultramicroscopy* 3 (1978), S. 203–214. DOI: 10.1016/S0304-3991(78)80027-8.
- [65] J. N. Chapman, I. R. McFadyen und S. McVitie. “Modified differential phase contrast Lorentz microscopy for improved imaging of magnetic structures”. In: *IEEE Transactions on Magnetics* 26.5 (1990), S. 1506–1511. DOI: 10.1109/20.104427.
- [66] J. N. Chapman, G. R. Morrison, D. Fort und D. W. Jones. “An electron microscope investigation of domain structures in thin terbium foils”. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 22 (1981), S. 212–219. DOI: 10.1016/0304-8853(81)90025-1.
- [67] J. Chapman, G. Morrison, J. Jakubovics und R. Taylor. “Determination of domain wall structures in thin foils of soft magnetic alloy”. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 49.3 (1985), S. 277–285. DOI: 10.1016/0304-8853(85)90159-3.
- [68] T. Sannomiya, Y. Haga, Y. Nakamura, O. Nittono und Y. Takahashi. “Observation of magnetic structures in Fe granular films by differential phase contrast scanning transmission electron microscopy”. In: *Journal of Applied Physics* 95.1 (2004), S. 214–218. DOI: 10.1063/1.1630356.
- [69] M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Wächter, T. Wunderer, F. Scholz und J. Zweck. “Differential phase contrast 2.0 — Opening new “fields” for an established technique”. In: *Ultramicroscopy* 114 (2012), S. 7–14. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2012.03.020.
- [70] B. Bauer, J. Hubmann, M. Lohr, E. Reiger, D. Bougeard und J. Zweck. “Direct detection of spontaneous polarization in wurtzite GaAs nanowires”. In: *Applied Physics Letters* 104.21, 211902 (2014). DOI: 10.1063/1.4880209.

- 
- [71] N. Shibata, S.D. Findlay, H. Sasaki, T. Matsumoto, H. Sawada, Y. Kohno, S. Otomo, R. Minato und Y. Ikuhara. “Imaging of built-in electric field at a p-n junction by scanning transmission electron microscopy”. In: *Scientific Reports* 5.10040 (2015). DOI: 10.1038/srep10040.
- [72] M. Lohr, R. Schregle, M. Jetter, C. Wächter, K. Müller-Caspary, T. Mehrtens, A. Rosenauer, I. Pietzonka, M. Strassburg und J. Zweck. “Quantitative measurements of internal electric fields with differential phase contrast microscopy on InGaN/GaN quantum well structures”. In: *physica status solidi (b)* 253.1 (2016), S. 140–144. DOI: 10.1002/pssb.201552288.
- [73] N. Shibata, S. D. Findlay, K. Yuji, S. Hidetaka, K. Yukihiro und I. Yuichi. “Differential phase-contrast microscopy at atomic resolution”. In: *Nat Phys* 8.8 (2012), S. 611–615. DOI: 10.1038/nphys2337.
- [74] K. Müller, F. K. Florian, A. Béché, M. Schowalter, V. Galioit, S. Löffler, J. Verbeeck, J. Zweck, P. Schattschneider und A. Rosenauer. “Atomic electric fields revealed by a quantum mechanical approach to electron picodiffraction”. In: *Nature Communications* 5.5653 (2014). DOI: 10.1038/ncomms6653.
- [75] T. Matsumoto, Y.-G. So, Y. Kohno, H. Sawada, R. Ishikawa, Y. Ikuhara und N. Shibata. “Jointed magnetic skyrmion lattices at a small-angle grain boundary directly visualized by advanced electron microscopy”. In: *Scientific Reports* 6.35880 (2016). DOI: 10.1038/srep35880.
- [76] T. Matsumoto, Y.-G. So, Y. Kohno, H. Sawada, Y. Ikuhara und N. Shibata. “Direct observation of  $\Sigma 7$  domain boundary core structure in magnetic skyrmion lattice”. In: *Science Advances* 2.2 (2016). DOI: 10.1126/sciadv.1501280.
- [77] D. McGrouther, R. J. Lamb, M. Krajnak, S. McFadzean, S. McVitie, R. L. Stamps, A. O. Leonov, A. N. Bogdanov und Y. Togawa. “Internal structure of hexagonal skyrmion lattices in cubic helimagnets”. In: *New Journal of Physics* 18, 9.095004 (2016).
- [78] H. Yang, T. J. Pennycook und P. D. Nellist. “Efficient phase contrast imaging in STEM using a pixelated detector. Part II: Optimisation of imaging conditions”. In: *Ultramicroscopy* 151 (2015), S. 232–239. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2014.10.013.
- [79] M. Krajnak, D. McGrouther, D. Maneuski, V. O. Shea und S. McVitie. “Pixelated detectors and improved efficiency for magnetic imaging in STEM differential phase contrast”. In: *Ultramicroscopy* 165 (2016), S. 42–50. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2016.03.006.

- [80] J. Zweck, F. Schwarzhuber, J. Wild und V. Galioit. “On detector linearity and precision of beam shift detection for quantitative differential phase contrast applications”. In: *Ultramicroscopy* 168 (2016), S. 53–64. DOI: 10.1016/j.ultramicro.2016.05.007.
- [81] F. Schwarzhuber. “Charakterisierung und Kalibrierung des DPC-Modus im Rastertransmissionselektronenmikroskop”. Masterarbeit. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2015.
- [82] T. Uhlig. “Differentielle Phasenkontrastmikroskopie an magnetischen Ringstrukturen”. Dissertation. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2004.
- [83] M. Lohr. “Quantitative Bestimmung innerer elektrischer Felder mit Hilfe von Differentieller Phasenkontrastmikroskopie”. Diss. Fakultät für Physik, Universität Regensburg, 2013.
- [84] PCO AG. *PCO Edge 5.5 Datenblatt*. v1.15. 2016.
- [85] Gatan UK. *Helium Single Tilt TEM Holder Operators Handbook*. 11. 2006.
- [86] A. K. Nayak, M. Nicklas, S. Chadov, P. Khuntia, C. Shekhar, A. Kalache, M. Baenitz, Y. Skourski, K. G. Veerendra, A. Puri, U. Zeitler, D. J. M. Coey und C. Felser. “Design of compensated ferrimagnetic Heusler alloys for giant tunable exchange bias”. In: *Nat Mater* 14.7 (2015), S. 679–684. DOI: 10.1038/nmat4248.
- [87] A. K. Nayak, M. Nicklas, S. Chadov, C. Shekhar, Y. Skourski, J. Winterlik und C. Felser. “Large Zero-Field Cooled Exchange-Bias in Bulk  $\text{Mn}_2\text{PtGa}$ ”. In: *Phys. Rev. Lett.* 110.127204 (2013). DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.127204.
- [88] J. Winterlik, G. H. Fecher, B. Balke, T. Graf, V. Alijani, V. Ksenofontov, C. A. Jenkins, O. Meshcheriakova, C. Felser, G. Liu, S. Ueda, K. Kobayashi, T. Nakamura und M. Wójcik. “Electronic, magnetic, and structural properties of the ferrimagnet  $\text{Mn}_2\text{CoSn}$ ”. In: *Phys. Rev. B* 83.174448 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.83.174448.
- [89] O. Meshcheriakova, S. Chadov, A. K. Nayak, U. K. Rößler, J. Kübler, G. André, A. A. Tsirlin, J. Kiss, S. Hausdorf, A. Kalache, W. Schnelle, M. Nicklas und C. Felser. “Large Noncollinearity and Spin Reorientation in the Novel  $\text{Mn}_2\text{RhSn}$  Heusler Magnet”. In: *Phys. Rev. Lett.* 113.087203 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.087203.
- [90] U. K. Rößler, A. N. Bogdanov und C. Pfleiderer. “Spontaneous skyrmion ground states in magnetic metals”. In: *Nature* 442.7104 (2006), S. 797–801. DOI: 10.1038/nature05056.

- 
- [91] S. Heinze, K. von Bergmann, M. Menzel, J. Brede, A. Kubetzka, R. Wiesendanger, G. Bihlmayer und S. Blügel. “Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions”. In: *Nat Phys* 7.9 (2011), S. 713–718. DOI: 10.1038/nphys2045.
- [92] A. Bauer und C. Pfleiderer. “Magnetic phase diagram of MnSi inferred from magnetization and ac susceptibility”. In: *Phys. Rev. B* 85.214418 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.85.214418.
- [93] P. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D. Pashley, M. Whelan und L. Marton. *Electron microscopy of thin crystals*. 1966.
- [94] M. U. Rothmann, W. Li, Y. Zhu, U. Bach, L. Spiccia, J. Etheridge, Y.-B. Cheng. “Direct observation of intrinsic twin domains in tetragonal  $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ”. In: *Nature Communications* 8 (2017), S. 14547.
- [95] S. L. Zhang, A. Bauer, D. M. Burn, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, H. Berger, C. Pfleiderer, G. van der Laan und T. Hesjedal. “Multidomain Skyrmion Lattice State in  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$ ”. In: *Nano Letters* 16.5 (2016), S. 3285–3291. DOI: 10.1021/acs.nanolett.6b00845.
- [96] M. Nagao, Y.-G. So, H. Yoshida, T. Nagai, K. Edagawa, K. Saito, T. Hara, A. Yamazaki und K. Kimoto. “Real space observation of skyrmion polycrystallization and its domain boundary behavior in  $\text{FeGe}_{1-x}\text{Si}_x$ ”. In: *Applied Physics Express* 8, 3.033001 (2015).
- [97] J. Rajeswari, P. Huang, G. F. Mancini, Y. Murooka, T. Latychevskaia, D. McGrouther, M. Cantoni, E. Baldini, J. S. White, A. Magrez, T. Giamarchi, H. M. Rønnow und F. Carbone. “Filming the formation and fluctuation of skyrmion domains by cryo-Lorentz transmission electron microscopy”. In: *PNAS* 46.112 (2015), S. 14212–14217. DOI: 10.1073/pnas.1513343112.
- [98] S. Pöllath, J. Wild, L. Heinen, T. N. G. Meier, M. Kronseder, L. Tutsch, A. Bauer, H. Berger, C. Pfleiderer, J. Zweck, A. Rosch und C. H. Back. “Dynamical Defects in Rotating Magnetic Skyrmion Lattices”. In: *Phys. Rev. Lett.* 118.207205 (2017). DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.207205.
- [99] M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura und N. Nagaosa. “Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect”. In: *Nat Mater* 13.3 (2014), S. 241–246. DOI: 10.1038/nmat3862.
- [100] K. Everschor, M. Garst, B. Binz, F. Jonietz, S. Mühlbauer, C. Pfleiderer und A. Rosch. “Rotating skyrmion lattices by spin torques and field or temperature gradients”. In: *Phys. Rev. B* 86.054432 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.86.054432.

- [101] K. Everschor, M. Garst, R. A. Duine und A. Rosch. “Current-induced rotational torques in the skyrmion lattice phase of chiral magnets”. In: *Phys. Rev. B* 84.064401 (2011). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.064401.
- [102] B. N. Delaunay. “Sur la sphère vide”. In: *Bulletin of Academy of Sciences of the USSR* 6 (1934), S. 793–800.
- [103] P. Lipowsky, M. J. Bowick, J. H. Meinke, D. R. Nelson und A. R. Bausch. “Direct visualization of dislocation dynamics in grain-boundary scars”. In: *Nat Mater* 4.5 (2005), S. 407–411. DOI: 10.1038/nmat1376.
- [104] T. M. William, J. B. Mark und P. M. Chaikin. “Fractionalization of interstitials in curved colloidal crystals”. In: *Nat Mater* 11.11 (2012), S. 948–951. DOI: 10.1038/nmat3429.
- [105] O. Lehtinen, S. Kurasch, A. Krashennnikov und U. Kaiser. “Atomic scale study of the life cycle of a dislocation in graphene from birth to annihilation”. In: *Nature Communications* 4.2098 (2013). DOI: 10.1038/ncomms3098.
- [106] K. C. Lee und U. Erb. “Grain boundaries and coincidence site lattices in the corneal nanonipple structure of the Mourning Cloak butterfly”. In: *Beilstein Journal of Nanotechnology* 4 (2013). Hrsg. von Gleiter Herbert D und Schimmel Thomas, S. 292–299.
- [107] L. Bragg und J. F. Nye. “A Dynamical Model of a Crystal Structure”. In: *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 190.1023 (1947), S. 474–481. DOI: 10.1098/rspa.1947.0089.
- [108] S.-Z. Lin, C. Reichhardt, C. D. Batista und A. Saxena. “Particle model for skyrmions in metallic chiral magnets: Dynamics, pinning, and creep”. In: *Phys. Rev. B* 87.214419 (21 2013). DOI: 10.1103/PhysRevB.87.214419.
- [109] O. Hiroshi, K. Akiko, K. Naoya, T. Yasujiro, K. Masashi, T. Yoshinori und K. Fumitaka. “Interplay between topological and thermodynamic stability in a metastable magnetic skyrmion lattice”. In: *Nat Phys* 12.1 (2016), S. 62–66. DOI: 10.1038/nphys3506.
- [110] K. Karube, J. S. White, N. Reynolds, J. L. Gavilano, H. Oike, A. Kikkawa, F. Kagawa, Y. Tokunaga, H. M. Ronnow, Y. Tokura und Y. Taguchi. “Robust metastable skyrmions and their triangular-square lattice structural transition in a high-temperature chiral magnet”. In: *Nat Mater* 15.12 (2016), S. 1237–1242. DOI: 10.1038/nmat4752.

- 
- [111] A. Tonomura, X. Yu., K. Yanagisawa, T. Matsuda, Y. Onose, N. Kanazawa, H. S. Park und Y. Tokura. “Real-Space Observation of Skyrmion Lattice in Helimagnet MnSi Thin Samples”. In: *Nano Letters* 12.3 (2012), S. 1673–1677. DOI: 10.1021/nl300073m.
- [112] C. Schütte und A. Rosch. “Dynamics and energetics of emergent magnetic monopoles in chiral magnets”. In: *Phys. Rev. B* 90.174432 (2014). DOI: 10.1103/PhysRevB.90.174432.
- [113] F. N. Rybakov, A. B. Borisov, S. Blügel und N. S. Kiselev. “New Type of Stable Particlelike States in Chiral Magnets”. In: *Phys. Rev. Lett.* 115.117201 (2015). DOI: 10.1103/PhysRevLett.115.117201.
- [114] F. N. Rybakov, A. B. Borisov, S. Blügel und N. S. Kiselev. “New spiral state and skyrmion lattice in 3D model of chiral magnets”. In: *New Journal of Physics* 18, 4.045002 (2016).
- [115] J. Wild, T. N. G. Meier, S. Pöllath, M. Kronseder, A. Bauer, A. Chacon, M. Halder, M. Schowalter, A. Rosenauer, J. Zweck, J. Müller, A. Rosch, C. Pfeiderer und C. H. Back. “Entropy-limited topological protection of skyrmions”. In: *Submitted to Science Advances. Preprint: ArXiv* 1705.01719 (2017).
- [116] C. Schütte. “Skyrmions and Monopoles in Chiral Magnets & Correlated Heterostructures”. Diss. Universität zu Köln, 2014.
- [117] P. A. M. Dirac. “Quantised Singularities in the Electromagnetic Field”. In: *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 133.821 (1931), S. 60–72. DOI: 10.1098/rspa.1931.0130.
- [118] A. Neubauer, J. Bœuf, A. Bauer, B. Russ, H. v. Löhneysen und C. Pfeiderer. “Ultra-high vacuum compatible image furnace”. In: *Review of Scientific Instruments* 82.1, 013902 (2011). DOI: 10.1063/1.3523056.
- [119] A. Bauer, G. Benka, A. Regnat, C. Franz und C. Pfeiderer. “Ultra-high vacuum compatible preparation chain for intermetallic compounds”. In: *Rev. Sci. Instrum.* 87.113902 (2016). DOI: 10.1063/1.4967011.
- [120] B. Fultz und J. Howe. *Transmission Electron Microscopy and Diffractometry of Materials*. Springer Berlin Heidelberg, 2013.
- [121] A. Rosenauer, K. Gries, K. Müller, A. Pretorius, M. Schowalter, A. Avramescu, K. Engl und S. Lutgen. “Measurement of specimen thickness and composition in using high-angle annular dark field images”. In: *Ultramicroscopy* 109.9 (2009), S. 1171–1182. DOI: 10.1016/j.ultramic.2009.05.003.

- [122] A. Dussaux, P. Schoenherr, K. Koumpouras, J. Chico, K. Chang, L. Lorenzelli, N. Kanazawa, Y. Tokura, M. Garst, A. Bergman, C. L. Degen und D. Meier. “Local dynamics of topological magnetic defects in the itinerant helimagnet FeGe”. In: *Nature Communications* 7.12430 (2016).
- [123] D. Weller und A. Moser. “Thermal effect limits in ultrahigh-density magnetic recording”. In: *IEEE Transactions on Magnetism* 35.6 (1999), S. 4423–4439. DOI: 10.1109/20.809134.
- [124] E. Chen, D. Apalkov, Z. Diao, A. Driskill-Smith, D. Druist, D. Lottis, V. Nikitin, X. Tang, S. Watts, S. Wang, S. A. Wolf, A. W. Ghosh, J. W. Lu, S. J. Poon, M. Stan, W. H. Butler, S. Gupta, C. K. A. Mewes, T. Mewes und P. B. Visscher. “Advances and Future Prospects of Spin-Transfer Torque Random Access Memory”. In: *IEEE Transactions on Magnetism* 46.6 (2010), S. 1873–1878. DOI: 10.1109/TMAG.2010.2042041.
- [125] A. Yelon, B. Movaghar und H. M. Branz. “Origin and consequences of the compensation (Meyer-Neldel) law”. In: *Phys. Rev. B* 46 (1992), S. 12244–12250. DOI: 10.1103/PhysRevB.46.12244.
- [126] F. H. Constable. “The Mechanism of Catalytic Decomposition”. In: *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 108.746 (1925), S. 355–378. DOI: 10.1098/rspa.1925.0081.
- [127] W. Meyer und H. Neldel. “Concerning the relationship between the energy constant epsilon and the quantum constant alpha in the conduction-temperature formula in oxydising semi-conductors”. In: *Physikalische Zeitschrift* 38.10141019 (1937).
- [128] T. Kamiya, K. Nomura und H. Hosono. “Present status of amorphous In–Ga–Zn–O thin-film transistors”. In: *Science and Technology of Advanced Materials* 11, 4.044305 (2010). DOI: 10.1088/1468-6996/11/4/044305.
- [129] A. Cooper, C. M. Johnson, J. H. Lakey und M. Nöllmann. “Heat does not come in different colours: entropy–enthalpy compensation, free energy windows, quantum confinement, pressure perturbation calorimetry, solvation and the multiple causes of heat capacity effects in biomolecular interactions”. In: *Biophysical Chemistry* 93.2–3 (2001), S. 215–230. DOI: 10.1016/S0301-4622(01)00222-8.
- [130] E. Peacock-López und H. Suhl. “Compensation effect in thermally activated processes”. In: *Phys. Rev. B* 26 (1982), S. 3774–3782. DOI: 10.1103/PhysRevB.26.3774.

# Publikationsliste

## Publikationen in Journalen

- J. Wild, T. N. G. Meier, S. Pöllath, M. Kronseder, A. Bauer, A. Chacon, M. Halder, M. Schowalter, A. Rosenauer, J. Zweck, J. Müller, A. Rosch, C. Pfeiderer und C. H. Back. “Entropy-limited topological protection of skyrmions”. In: *Submitted to Science Advances. Preprint: ArXiv* 1705.01719 (2017).
- S. Pöllath, J. Wild, L. Heinen, T. N. G. Meier, M. Kronseder, L. Tutsch, A. Bauer, H. Berger, C. Pfeiderer, J. Zweck, A. Rosch und C. H. Back. “Dynamical Defects in Rotating Magnetic Skyrmion Lattices”. In: *Phys. Rev. Lett.* 118.207205 (2017). DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.207205.
- J. Zweck, F. Schwarzhuber, J. Wild und V. Galioit. “On detector linearity and precision of beam shift detection for quantitative differential phase contrast applications”. In: *Ultramicroscopy* 168 (2016), S. 53–64. DOI: 10.1016/j.ultramic.2016.05.007.
- J. Wagner, C. Wächter, J. Wild, M. Müller, S. Metzner, P. Veit, G. Schmidt, M. Jetter, F. Bertram, J. Zweck, J. Christen und P. Michler. “Defect reduced selectively grown GaN pyramids as template for green InGaN quantum wells”. In: *physica status solidi (b)* 253.1 (2016), S. 67–72. DOI: 10.1002/pssb.201552427.
- M. Rychetsky, I. Koslow, B. Avinc, J. Rass, T. Wernicke, K. Bellmann, L. Sulmoni, V. Hoffmann, M. Weyers, J. Wild, J. Zweck, B. Witzigmann und M. Kneisl. “Determination of polarization fields in group III-nitride heterostructures by capacitance-voltage-measurements”. In: *Journal of Applied Physics* 119.9, 095713 (2016). DOI: 10.1063/1.4943185.

## Vorträge auf Konferenzen

- J. Wild, M. Vogel, F. Schwarzhuber, B. Zimmermann, C. Back und J. Zweck. “Study of Thermally Tunable Coupled Magnetic Vortex Oscillators with Lorentz Transmission Electron Microscopy and Differential Phase Contrast Microscopy”. In: *DPG-Frühjahrstagung. Verhandlungen MA 48.7. Dresden, 2017.*

- J. Wild, M. Vogel, M. Müller, C. Back und J. Zweck. “Study of Magnetic Vortex Oscillations in Permalloy Disks by Lorentz TEM and Differential Phase Contrast Microscopy”. In: *DPG-Frühjahrstagung*. Verhandlungen MA 46.4. Regensburg, 2016.
- J. Wild, A. K. Najak, S. S. P. Parkin, C. Felser und J. Zweck. “Study of spontaneous skyrmion and room temperature helimagnetic phase in Mn-Pt-Sn Heusler material by Lorentz TEM and differential phase contrast (DPC) microscopy **INVITED TALK**”. In: *Microscopy Conference MC*. Proceedings. Göttingen, 2015.

## Poster auf Konferenzen

- J. Wild, M. Vogel, M. Müller, F. Schwarzhuber, C. Back und J. Zweck. “Study of Thermally Tunable Coupled Magnetic Vortex Oscillators with Lorentz Transmission Electron Microscopy and Differential Phase Contrast Microscopy”. In: *16th European Microscopy Congress EMC*. Proceedings MS02-647. Lyon, 2016.
- J. Wild, M. Vogel, F. Schwarzhuber, C. Back und J. Zweck. “Transport of Intensity Equation (TIE) without filtering and TIE videos”. In: *16th European Microscopy Congress EMC*. Proceedings IM07-387. Lyon, 2016.
- B. Bauer, J. Hubmann, J. Wild, E. Reiger, D. Bougeard und J. Zweck. “Direct Detection of Spontaneous Polarization in Wurtzite GaAs Nanowires via Differential Phase Contrast Microscopy”. In: *18th International Microscopy Congress*. Prague, 2014.

## Danksagung

Die letzten vier Jahre konnte ich in einer sehr wissenschaftlichen, aber auch menschlichen Umgebung meine Dissertation anfertigen. Dabei habe ich viel Hilfe und Unterstützung von unterschiedlichen Personen erhalten, denen ich zu großem Dank verpflichtet bin. Insbesondere möchte ich mich bedanken bei...

*Joe Zweck.* Vielen Dank für deine große Unterstützung beim Bewältigen aller wissenschaftlicher und technischer Probleme. Aber auch Danke für die vielen Freiheiten während der Dissertation und das damit verbundene Vertrauen. Danke für deinen sehr freundschaftlichen und menschlichen Umgang auch auf den legendären TEM-Wochenenden und den vielen Tagungen. Es war eine tolle Zeit in deiner Gruppe!

*Christian Back.* Vielen Dank Christian für die sehr wertvollen Ratschläge und Diskussionen beim Betrachten von Gehirnsuppe und flackernden Punkten. Durch deine Einberufung des „geheimen Skyrmionenrats“ und die Auswerteunterstützung ist richtig was vorwärtsgegangen. Auch danke für die tolle Stimmung am Lehrstuhl.

*Christian Pfeiderer* und *Andreas Bauer.* Vielen Dank für eure Unterstützung und die exzellenten Proben auf denen große Teile meiner Arbeit aufbauen. Sehr geschätzt habe ich ebenfalls die sehr ehrlichen Treffen in Regensburg und die große Hilfe bei den Veröffentlichungen.

*Andreas Rosenauer* und *Marco Schowalter.* Danke euch beiden für die Hilfe bei der Probenpräparation und der Dickenbestimmung. Es war auch immer eine super Zeit mit euch auf den Tagungen.

*Achim Rosch, Lukas Heinen* und *Jan Müller.* Vielen Dank für die theoretische Unterstützung und die tollen Simulationen. Auch Danke für euren Input bei den Veröffentlichungen.

*Simon Pöllath.* Vielen Dank Simon für deine sehr umfangreichen, gründlichen Auswertungen und deine große Hilfe bei den TEM-Messungen. Ich habe die Zeit mit dir nicht nur beim Messen sehr geschätzt.

*Michael Vogel.* Ein großer Dank für die vielen, zeitraubenden Probenpräparationen und die tollen Ideen bei den Vortex-Messungen. Auch wenn es 99% der Messungen nicht in diese Arbeit geschafft haben.

*Thomas N. G. Meier.* Bei „The Next Generation Meier“ muss ich mich für die tolle Auswertung der Skyrmionenanzahl bedanken.

*Felix Schwarzhuber, Benedikt Bauer und Matthias Lohr.* Großer Dank am Teilhaben eurer DPC-Expertise und die super Zeit mit euch im Büro und auch außerhalb davon.

*Olga Ganicheva.* Vielen Dank für die vielen, teilweise sehr anspruchsvollen Probenpräparationen.

*Dieter Riedl und Max Simmel* von der Elektronik-Werkstatt. Ein großer Dank an euch für eure immer sehr kompetene Hilfe bei Elektronik-Problemen und dem Bau des tollen „8K-Verstärkers“.

der *AG-Zweck.* Vielen Dank an alle ehemaligen/aktiven Gruppenmitglieder für die freundschaftliche und kollegiale Atmosphäre.

dem gesamten *Lehrstuhl Back* mit *Sekretariat* und *Markus Hollnberger.* Vielen Dank für die tolle Zeit am Lehrstuhl, die lustigen Diskussionen in den Kaffee-Pausen und die vielen Lehrstuhlpartys.

*Fritz Wünsch.* Großer Dank für deine Unterstützung und dein Vertrauen beim Halten der unzähligen Elektronik-Kurse.

meinen *Studienkollegen.* Danke *Bernhard, Christoph, Christian, Flo R., Flo S., Markus, Martin* und *Tobi* für eure Unterstützung und die tolle Zeit.

den Korrekturlesern *Joe, Simon, Felix, Petra, Matthias, Elli* und *meiner Familie.*

*Waltraud* und *Wack.* Vielen Dank dafür, dass ihr uns immer so stark den Rücken freigehalten habt.

meinen *Eltern, Schwestern* und *Großeltern.* Vielen Dank für eure permanente Unterstützung während des Studiums und der Promotion.

meiner lieben *Petra*. Vielen Dank für deine Unterstützung, Geduld und Liebe! Jetzt ist es endlich geschafft! Und natürlich vielen Dank an meine Tochter *Laura*, die jeden Tag so viel Freude in unser Leben bringt.