

磁螺旋的斜方性

R. Tumbleson^{1,2}, S. A. Morley³, E. Hollingworth^{2,4}, A. Singh^{2,5}, T. Bayarara², N. G. Burdet^{6,9}, A. U. Saleheen³, M. R. McCarter³, D. Raftrey^{1,2}, R. J. Pandolfi⁷, V. Esposito^{6,9}, G. L. Dakovski⁶, F.-J. Decker⁶, A. H. Reid⁶, T. A. Assefa⁹, P. Fischer^{1,2}, S. M. Griffin^{2,8}, S. D. Kevan³, F. Hellman^{2,4,10}, J. J. Turner^{6,9}, S. Roy^{1,2,3*}

¹Department of Physics, University of California, Santa Cruz, Santa Cruz, 95064, California, USA.

²Materials Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, 94720, California, USA.

³Advanced Light Source, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, 94720, California, USA.

⁴Department of Physics, University of California, Berkeley, Berkeley, 94720, California, USA.

⁵Materials Science Division, Argonne National Laboratory, Lemont, 60439, Illinois, USA.

⁶Linac Coherent Light Source, SLAC National Accelerator Laboratory, Menlo Park, 94025, California, USA.

⁷Center for Advanced Mathematics for Energy Research Applications, Applied Mathematics and Computational Research Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, 94720, California, USA.

⁸Molecular Foundry, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, 94720, California, USA.

⁹Stanford Institute for Materials and Energy Sciences, SLAC National Accelerator Laboratory and Stanford University, Menlo Park, 94025, California, USA.

¹⁰Department of Materials Science and Engineering, University of California, Berkeley, Berkeley, 94720, California, USA.

摘要

具有平移对称性但打破取向对称性的系统被称为近晶相。尽管在诸如液晶、复杂氧化物和超导体等广泛背景下存在许多近晶相的实例，特别有趣的是磁学模拟，其中电子的自旋、电荷和轨道自由度交织在一起。自旋近晶的主要困难在于无歧义地实现和表征该相。在这里，我们介绍了一种全新的磁性近晶相，它用磁螺旋取代了单个自旋的基础。螺旋基础允许使用软 X 射线散射直接测量序参量，并对近晶相及其热力学转变进行全面表征。我们发现两种具有独特时空相关特征的不同近晶相。利用相干 X 射线方法，我们在两个近晶相之间的相边界附近发现了秒级和亚纳秒级时间尺度上共存的涨落。此外，我们确定了这些涨落同时伴随着磁螺旋的重新定向，表明存在自发对称性破缺并且新的自由度变得可用。我们的结果为表征奇异相提供了一个新颖框架，并且所呈现的现象可以映射到广泛的一类物理系统中。

向列序描述了一个具有取向有序但缺乏平移有序的系统 [1]。尽管其起源在于液晶的研究领域，但与向列相相关的现象已经证明是相当普遍的，并且在广泛的背景下有着广泛的应用，包括细菌悬浮液 [2]、活性物质 [3]、聚合物网络 [4] 和超导性 [5, 6]，仅举几例。向列相是一个分层系统的示例，其中的层相变是由拓扑缺陷对解绑介导的 [7]。具体来说，在量子材料中的电子向列性被认为是一种新的物质状态，并且是由于低维电子关联效应所致 [8]。这些效应表现为超导体 [9] 中的各向异性传输、由电荷密度波驱动的斜方晶相 [10] 或复杂氧化物 [8, 11] 中的磁阻。进一步，由于存在竞争性的交织相且基态几乎是简并的，在观察到斜方晶性相的空间区域中通常还存在其他奇异相，这表明这些相之间并不是相互独立的。因此，理解斜方晶相的相变不仅能够提供对该相本身的见解，还能揭示附近隐藏的相。

相和它们的转变是通过其序参量来描述的。最直接的例子是一个磁性系统，其中全局磁化强度被用作序参量，并且它描述了存在的局部磁矩集合。在磁性系统中观察到的斜方晶系秩序具有很大的科学兴趣，因为电子自由度，即自旋、电荷和轨道是耦合的，并且与其他斜方晶系相相比存在根本性的差异，例如可能存在一个完全替代新边界条件问题的铁磁背景。尽管最近有一些关于自旋尼尔米的实验观察 [12–14]，基本组成成分仅限于在明确定义的晶格位点上的单个自旋。然而，这并不是可以存在的唯一磁序，并且在这篇文章中，我们提出了一种基于与磁螺旋相相关联的涌现秩序的全新斜方晶系相。

磁自旋纹理为研究拓扑相及其转变提供了丰富的实验平台，提供了多种不同的相、可实验测量的长度尺度以及与外部刺激耦合的机会。一个典型的例子是 FeGe 的 B20 晶体多形体，在过去十年中由于发现它可以在接近室温条件下宿主斯格明子晶体 [15]，而备受关注，这种状态由原子单元胞的反演对称性破缺稳定。然而最近的研究表明，拥有明确的晶体结构并不是宿主磁自旋纹理的必要条件 [16]。

这为通过控制原子组成来定制不同的相并减少对底层晶体环境约束下测量相变提供了可能 [17, 18]。

为了彻底理解磁系统中近晶相的热力学转变，我们在非晶态 $\text{Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$ ($a\text{-Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$) 薄膜上进行了静态和动态共振软 X 射线散射 (RSXS) 和 X 射线光子相关光谱 (XPCS) 测量。此外，我们将微磁学模拟和密度泛函理论 (DFT) 计算与我们的实验结果相结合，进一步研究了序参数的自由度。我们发现，在 $a\text{-Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$ 中稳定的螺旋磁性纹理可以被描述为手性向列相 (N^*)，该相具有两种不同的热力学相态，表现出特征的空间-时间相关性。我们通过相关长度来识别这两个相态，在低温相态 $N_{\xi>}^*$ 中，相关长度较大；而在高温相态 $N_{\xi<}^*$ 中，相关长度较短。就在 $N_{\xi<}^*$ 相之前，我们发现系统变得不稳定，并且在秒级和次纳秒级别的时间尺度上共存着波动。最后，我们发现波动的开始与螺旋传播方向从纯粹平面内转向倾斜出平面的方向重合，这导致了新的自由度的出现；即螺旋传播矢量的倾斜角度。这表明系统的自由度维度存在交叉。

在这篇文章中，我们使用描述液晶的标准命名法来指代各个相，并且这种命名法已经广泛扩展到其他物理系统。然而，需要指出的是，磁螺旋并不保留反演对称性，这与棒状导向体的情况不同。尽管存在这一区别，所有弹性性质均与更传统的向列型 [19] 相同。此外，使用 * 来强调磁螺旋是一个手性实体。 $a\text{-Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$ 的磁化率随温度的变化如图 1(a) 所示，其中突出显示的区域对应本研究中通过 RSXS 测量的温度范围， T^* 标记了 $N_{\xi>}^* - N_{\xi<}^*$ 转变温度，而 T_C 是居里温度。在图 1(b) 和 (c) 中，我们展示了记录的散射图案（插图）的径向和方位平均值与 Lorentzian 和 pseudo-Voigt 函数拟合的结果（实线为拟合结果）。系统的平均螺旋周期性显示出有趣的温度依赖性，如图 1(d) 所示。在较低温度下，周期性是稳定的，其值约为 135 纳米。当温度升高到超过 ~ 144 K 时，存在一个转折点，周期性下降得更快。这种周期性的下降随着温度的增加而呈线性变化，直到在 $T \sim 163$ K 处信号不再被观测到。值得注意的是，X 射线散射消失的位置比 T_C 低 ~ 100 K，在那里存在显著的面内净磁化强度，如图 1(a) 所示。这一结果表明，对于 $T^* \leq T \leq T_C$ 的情况，磁螺旋结构要么以一种方式定向，使得周期性结构在透射散射中不可见，或者磁螺旋之间的区域呈弱铁磁性。

为了量化系统的空间序，从半高全宽 (FWHM) 的径向平均值中提取了逆相关长度 κ (图 1(e))。在周期性转折点以下， κ 随初始关联长度 ~ 500 nm 呈代数增长。在转折点处，存在从代数标度到指数的过渡。不同温度窗口内相关长度随温度的不同功能标度表明了多步有序-无序转变。通过对方位平均值 (图 1(c)) 进行分析，我们通过确定角扩散 $\delta\phi$ 或分布的半高全宽 FWHM (如图 1(f) 所示) 来获

得取向有序。与平移顺序相反， $\delta\phi$ 在 ~ 150 K 之前缓慢增加。此时， $\delta\phi$ 急剧上升然后在大约 155 K 处趋于平稳。1(f) 中的实线拟合以下表达式

$$\delta\phi \propto e^{-T_R^{-1/2}} \quad (1)$$

在宽方位 X 射线散射峰展宽的功能缩放中， $T_R \propto T - T^*$ 近似于近晶相边界处预测的 [19]，表明 $N_{\xi_{\leftarrow}}^*$ 相保持了近晶特性。拟合到 1 将我们的转变温度固定在 T^* 至 $T^* = 151.5$ K。我们再次强调，这里的重要区别在于我们将磁自旋螺旋的分布与传统近晶相中的导线分布相关联。方位数据的变化显著而平移关联非常短，这确认系统已进入新相， $N_{\xi_{\leftarrow}}^*$ ，其中定向秩序稍有破坏，如峰展宽所示，但仍然保留了两倍对称散射图案。

除了这些相变的静态散射特征，当接近 $N_{\xi_{\leftarrow}}^*$ 相时，还存在独特的时序相关性，如目前讨论的时间动力学研究所证明的。使用 X 射线光子关联光谱 (XPCS) [20, 21] 技术，我们观察到从低温下的小空间体积波动变化为接近 $N_{\xi_{\leftarrow}}^*$ 相时总体更慢时间尺度上的更大波动体积。图 2(a) 的插图中展示了一个典型的由斑点组成的散射模式，实线显示了实验的 g_2 自相关值。请注意，所有 g_2 数据都经过预处理，具体方法是减去一并除以第一个 g_2 值。在我们的 g_2 自相关计算中，选择了一个包含磁峰整个斑点图案的区域，因此所测量的动力学是螺旋周期性长度尺度上波动的统计集合。从我们的 g_2 数据可以看出，系统没有一个单一的代表性特征时间尺度。每个温度都显示出在秒级范围内去相关的较快时间尺度上的动力学，随后是在较慢时间尺度上的动力学。

这些多时间尺度的动力学排除了通过拟合单一的 Kohlrausch-Williams-Watts (KWW) 形式的拉伸指数函数 [21, 22] 进行常规分析的可能性。除了这种复杂的时序结构，较慢动力学的时间尺度过长，无法在实验中充分采样并将其数据拟合为多个指数函数的和。相反，我们使用一个带有线性偏移修正的单一拉伸指数函数来拟合我们的数据，该方程由：

$$g_2 \propto e^{-(t/\tau)^\gamma} + mt + g_2(\infty) \quad (2)$$

这里， τ 是松弛时间， γ 是伸长指数，而 $g_2(\infty)$ 是一个常数。这种修改后的指数函数仅包含一个额外的变量 m ，它具有线性时间依赖性，提供了一个简单的拟合方法，以允许长时间尺度波动，并使提取快速时间尺度动力学成为可能。图 2(a) 中用虚线显示了对公式 2 的拟合结果。提取的拟合参数在图 2(b)-(d) 中给出。松弛时间 τ 描述了快速波动的特征时间尺度，伸展指数代表存在的动态类型，而 $g_2(\infty)$ 是测量时间内波动空间体积的度量。

我们的分析表明，对于 $T \sim 144$ K 的所有提取参数都显示出斜率的变化，这表明该温度是基态变得不稳定的地方。在低温区域 ($T < 144$ K)，特征弛豫时间表现出相对较快的弛豫速率，其量级为秒。这与约 1.5 的伸展指数一致，这是具有被卡住的动力学系统 [22, 23] 的典型值，以及接近于一的 $g_2(\infty)$ 值。这表明系统主要是静态的，只有样品的一小部分在波动，与报道的结晶 B20 FeGe 在螺旋相中的熵驱动拓扑缺陷的小运动及其远低于螺旋有序温度 [24] 的动力学一致。

当温度升高超过 144 K，这是不稳定区域的开始时，特征性的快速波动迅速减慢。伸展指数从大于指数 ($\gamma > 1$) 变为小于指数 ($\gamma < 1$)，并且观察到 $g_2(\infty)$ 有显著下降。这一结果虽然不直观，但意味着平均而言存在一个更慢的时间尺度。随着温度的升高，我们的信号越来越被集体性的较慢运动所主导，这种运动会覆盖更大的样品体积。因此，尽管由于拓扑缺陷引起的快速波动仍然存在，但测量到的大部分波动是较慢的，并且在 g_2 计算中掩盖了快速波动。这一点进一步得到了我们下面将讨论的纳秒级波动测量的支持。

为了进一步了解不稳定区域纳秒时间尺度上的波动，进行了一项基于双脉冲的 X 射线关联实验 [25–27]，其中计算了两个积分图像在单个光子水平上的散斑可见度（参见补充材料以获取更多详细信息）[28]。从双脉冲测量中提取的散斑对比度通过单脉冲测量进行归一化，使得接近于一的对比值是一个静态测量。因此，低于一的对比偏差代表了较低的可见度，并衡量了由两个脉冲探测的时间尺度上的波动。

在慢时间尺度波动开始出现的温度上下，对比度在 700 ps 和 28 ns 之间进行了测量（图 3(a)）。显然存在具有明显去相关特征的纳秒级波动，即：特征时间和去相关的程度。更有趣的是，在不稳定性区域通过增加温度（图 3(b)）对单一时标 700 ps 进行测量显示，在到达 $N_{\xi_c}^*$ 相之前波动显著增强。进一步提高温度通过 T^* 将对对比度带回接近一的值，这是由于噪声占主导地位的结果，因为随着秩序强度下降和接近 T^* 时更快的波动存在导致峰值强度也在减小。

为了补充我们的实验观察，我们按照方法中描述的计算了三个非晶 FeGe 结构的磁结构各向异性能量 (MSAE) 表面，并在图 4(a)-(c) 中报告了它们。该计算是非晶态系统中的磁晶体各向异性能量的类似物，在确定磁螺旋 [29] 的方向方面至关重要。发现 MSAE 可高达 9.42 毫电子伏特，这三个结构的平均最高 MSAE 为 6.92 毫电子伏特，相当于 80 开尔文的温度。这表明磁化轴可能在超过 80 开尔文时发生热致切换，与我们在 144 开尔文处观察到的实验结果一致，在该温度下周期性出现拐点且波动开始显现。这种螺旋传播方向的热重定向现象已知存在于 B20 结晶态 FeGe 中，其中螺旋在 279 开尔文时从 (111) 方向切换至 (100) 方向 [30]。相

比之下，我们认为我们的系统中的重定向发生在较宽的温度范围内，并且螺旋传播方向（Q 向量）并非一致性的重新定向，正如我们在下面讨论的磁畴动力学模拟 4(d)-(e) 中所显示的。

为了模拟温度对磁结构的影响，我们使用微磁学仿真调整了交换刚性 with Dzyloshinskii-Moriya 相互作用 (DMI) 的比例，并将松弛态的周期性与实验散射图谱相匹配（参见补充材料）。需要注意的是，在仿真实验中仅仅提高温度不足以重现我们在实验数据中观察到的周期性变化。在仿真过程中，当降低交换刚性而保持 DMI 不变（相当于提升温度时），我们会看到具有平面内（图 4(e) 中的实线框）和其他倾斜出平面（图 4(e) 中的虚线框）Q 矢量的区域，这表明了 Q 矢量的非均匀旋转。这种不均匀性是系统拓扑约束的表现，并导致在 80 纳米厚度（垂直于薄膜方向）样品中缺陷的形成。图 4(e) 中两个突出显示的不同 Q 矢量区域之间的示例展示了这样一个缺陷。这种重新定向会降低沿膜厚平均后的出平面磁对比度，尽管仍保持螺旋自旋结构，正如散射数据所观察到的那样。

我们的研究识别出一个具有手性向列 (N^*) 特征的磁性系统，其中指向矢的角色被磁自旋螺旋所取代。 N^* 的热力学有序-无序相变可以分为两个不同的阶段，在低温 $N_{\xi>}^*$ 阶段连续转变为高温 $N_{\xi<}^*$ 阶段，并且具有显著的空间-时间相关性。 $N_{\xi>}^*$ 阶段特征是螺旋取向和螺距的良好有序，其动力学仅由样品的小空间体积组成。尽管存在良好的 Q-矢量有序，这一阶段应与层状相区分开来，在层状相中存在着长程一维有序。散射峰的径向宽度远超测量的分辨率极限，意味着即使在最低测量温度下也存在一定数量的缺陷。

当温度升高到略低于转变温度 T^* 时，螺旋周期性出现转折点，相关长度的反函数标度出现交叉现象，并且动力学性质发生显著变化。这标志着两个相之间不稳定区域的存在（如图 1-3 中的斜线区域所示）。微磁模拟和 DFT 计算表明，系统维度出现了交叉。在低温下，热能仅足以在平面内改变 Q 矢量的方向，这从径向散射峰的相对尖锐洛伦兹轮廓中可以得到证明。然而，在较高温度下，由于径向散射峰变宽且平均螺旋周期性变化，因此有更多自由度来改变螺旋螺距。此外，Q 矢量失去了平面定向约束，因为方位角散射峰随着温度升高迅速变宽，并且计算表明螺旋可以在三维空间中定向。这些变化显示出自发对称性破缺和自由度交叉的现象，允许测量到丰富的动力学特性。

在 $N_{\xi>}^*$ 相的深处，拓扑缺陷在能量景观中引入了几个局部最小值。只有少数配置可以通过实验可行时间尺度上的热激发访问。我们测量的动力学很可能是单个拓扑缺陷的运动，例如具有高能量密度的位错或非平衡区域壁的局部区域，即使在最低温度 [24, 31] 下也不处于平衡状态；这种运动受到严重限制。叠加在这种

局部动力学上的是螺旋的整体平衡运动。这些多时间和空间尺度事件持续进行并合并为一个连贯事件，当接近 $N_{\xi_c}^*$ 相时。

有关形状各向异性在斜方晶性中的作用，有一些有趣的问题出现。我们观察到，在散射丢失之前的最后一个测量的螺旋周期与相关长度和薄膜厚度（80 nm）一致。通过改变薄膜厚度进行的额外实验可能会揭示一些新的临界标度，并有可能实现不同奇异相的稳定。这可以与调整不同的相互作用强度相结合，因为随着 Fe 浓度的增加，系统的顺序 [18] 也增加了。这可能使测量能够耦合到外部刺激，如在施加磁场中出现的量子振荡，在费米子液晶类型系统中的层状相、斜方晶相和各向同性相边界附近的临界点。

与其他向列相联系，本文提出的结果可以与许多其他系统相关。例如，长期以来一直预测手性向列相可以通过分裂成由位错缺陷密度决定大小的手性域而无序 [7]。在超导体中，可以在正常态和超导态中观察到向列相，关于超导阶参量如何耦合或竞争的问题仍然存在 [10, 32]。可以设想，我们发现的具有磁螺旋基底的奇异向列相可能具有有趣的光学和输运性质，并在微电子学和自旋电子学中具有潜在应用。

量子材料中拓扑序的识别和调查具有挑战性。特别是，表征波动的动力学测量对于理解相变 [33] 至关重要。在超导性的情况下，拓扑相的识别依赖于电子传输。虽然传输测量非常灵敏，但有序参数的空间时间分布是无法访问的。这需要可以使用相干 X 射线散射进行测量的拓扑系统，因为这些分布变得可用，并且可以与其他光谱学测量结合以提供多模式表征。除了这种新敏感性之外，随着即将到来的衍射极限光源中相干通量的增加，这些测量变得更加精确。这使得进一步探测拓扑相和访问更快的时间尺度成为可能，这将为波动与相之间的相互作用提供深刻的见解。

方法

α -Fe₅₁Ge₄₉ 薄膜通过直流磁控共溅射法生长在 Si₃N₄ 膜上，如前所述 [18]。静态和动态 RSXS 测量在高级光源的宇宙散射光束线 7.0.1.1 进行。采用透射散射几何结构，其中线性水平偏振的 X 射线束调谐到 Fe L₃ 边缘并入射到样品上。该测量严格敏感于磁化强度的面外分量。散射信号由一个位于样品下游 284 毫米处的 LBNL 快速电荷耦合器件 (CCD) 相机收集 [34]。对于静态测量，首先将样品冷却至 100 K，远低于螺旋排序温度，随后加热直至散射信号消失。对于动态测量，我们使用了 X 射线光子相关光谱 (XPCS) 技术。所有测量的曝光时间固定为 200 毫秒，CCD 读出时间为 53 毫秒。使用了一个 7 μ 毫米的小孔来定义相干入射束，并

将其放置在样品上游。为了探测更快的时间尺度波动，我们在斯坦福线性加速器中心 (SLAC) 的线性相干光源 (LCLS) 处的 ChemRIXS 终端 [35] 进行了双脉冲 X 射线相关 [26] 实验。能量再次设置为透射几何下的 Fe L_3 边，脉冲间隔在 700 皮秒到 28 纳秒之间变化。从一组稀疏 CCD 图像的统计集合中提取了斑点对比度，并固定了脉冲间隔。初步的数据过滤确保两个脉冲之间的差异在 20% 容差范围内，并且所有对比度测量均通过单个脉冲照射样品进行归一化，以消除测量非固有于样本的动力学的可能性。然后通过跟踪过渡过程中不同温度下的斑点对比度变化来提取样本动力学。

微磁模拟使用 MuMax3 版本 [36] 进行，体积为 $512 \times 512 \times 20$ 个单元格，每个单元格大小为 4 纳米，并采用面内周期性边界条件。为了在不同温度下模拟磁结构，通过初始化随机磁化状态并随后最小化全局能量来获得初始状态。然后将该状态与降低的交换刚度一起松弛处理，因为在接近过渡温度时，交换刚度会减弱 [37]，并且是稳定磁螺旋的主要能量项。

为了获得代表性的非晶结构，我们使用了从头算分子动力学 (AIMD) 模拟，并采用 Vienna 从头算软件包 (VASP) [38] 中的 NVT 系综以及投影增强波函数 [39]。我们使用了“熔化-淬火”方法来生成非晶快照，该方法之前已在多个系统 [17] 上得到验证，并发现与结构和局部电子性质的实验测量结果 [40–45] 一致。我们构建了一个由 96 个原子 ($\text{Fe}_{0.5}\text{Ge}_{0.5}$) 组成的晶胞，这些原子最初使用 Packmol [46] 随机分布在立方模拟晶胞中。我们在 3000K 通过一系列 AIMD 模拟平衡压力，同时在每次 AIMD 模拟之间重新缩放单位晶胞，直到其内部压力达到 0 巴时获得了稳定的液相。随后，在执行了 10 皮秒的生产运行后，我们以固定的时间间隔收集了三个快照。我们按照逐步冷却方案对这三个快照进行了淬火处理，包括 400 飞秒的冷却和 1 皮秒的等温步骤。最终结构使用 VASP 进行优化，能量截止为 860 电子伏特，并仅采用 Γ 点采样布里渊区。所有结构弛豫都持续到每个原子上的 Hellmann-Feynman 力小于 $0.002 \text{ eV}/\text{\AA}$ ，并且包括在 VASP 中实现的自洽自旋轨道耦合 (SOC)。我们使用了局部密度近似 (LDA) [47] 进行最终的松弛，因为这与实验报告的磁矩 $0.75\mu_B$ [16, 40] 更一致。通过改变自旋量化轴在 50 个点上，并考虑自旋轨道耦合 (SOC)，我们计算了磁结构各向异性能量 (MSAE) 表面，并将其总能量与最低总能量进行了比较。

Acknowledgments. 本工作得到了美国能源部科学办公室基础能源科学研究所材料科学与工程部门的支持 (合同编号 DE-AC02-05-CH11231, NEMM 计划 MSMAG)。AUS 感谢 SUFD、DOE 通过 RoyTimepixDetector 奖项提供的支持。MM 感谢 LDRD 项目的资助。ALS, LBNL 的工作得到了美国能源部科学办公室基

基础能源科学研究司主任的支持(合同编号 DE-AC02-05CH11231)。计算资源由国家能源研究科学计算中心和分子铸造厂提供, 这些设施是 DOE 科学用户设施办公室支持的项目, 资金来自美国能源部科学办公室 (合同编号 DEAC02-05CH11231)。在分子铸造厂进行的工作得到了美国能源部基础能源科学研究司的支持, 并且是在同一合同下进行的。数据采集和可视化在光束线 7.0.1.1 上使用 Xi-CAM 项目完成, 该项目由 CAMERA 资助, 资金来自 DOE 科学办公室内的先进科学技术研究办公室 (ASCR) 和基础能源科学办公室 (BES) 联合提供。本工作的部分内容以及直线加速器相干光源的使用得到了美国能源部科学办公室基础能源科学研究司的支持, 合同编号 DE-AC02-76SF00515。J.J.T. 感谢美国能源部科学办公室基础能源科学研究司通过早期职业研究计划提供的支持。

声明

利益冲突

作者声明没有竞争利益。

数据和材料的可用性

所有呈现的数据均可应要求提供。

图形

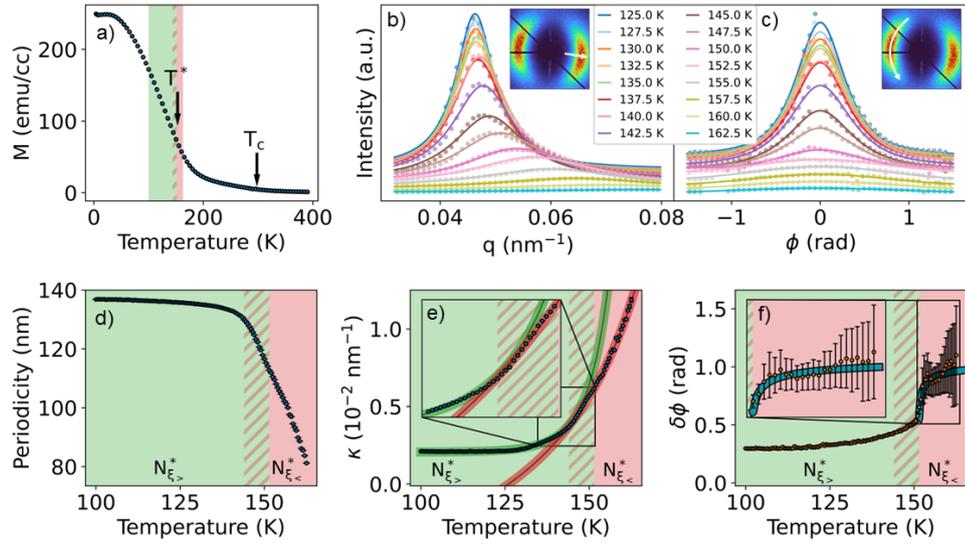


图 1 静态散射的 $a\text{-Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$ 。(a) 在面内磁场为 1000 奥斯特时，磁化强度与温度的关系。居里温度 (T_C) 通过对 $M(H, T)$ 和 $\chi(T)$ 在 400K 以下的分析发现为 298K。从 $N_{\xi>}^*$ 到 $N_{\xi<}^*$ 的转变温度 (T^*) 是 ~ 151.5 K，由 (f) 中的拟合确定。(b)-(c) 静态散射图案的定量分析。示例平均值在 125 K (顶部) 和 162.5 K (底部) 之间的温度范围内。插图中的白色箭头显示了平均方向。实线分别对应于 (b) 洛伦兹拟合和 (c) 假沃伊特拟合，用于径向- q 和方位角- ϕ 平均值的数据。(d) 从 (b) 中的峰值位置提取的平均螺旋周期性。(e) 逆相关长度 κ ，从 (b) 的半高全宽 (FWHM) 中提取，显示了平移序参量和从幂律 (绿线) 到指数 (红线) 函数形式的过渡。(f) (c) 中方位分布的 FWHM, $\delta\phi$ ，显示了取向序参量。(f) 中的实线表示与方程 1 的拟合。

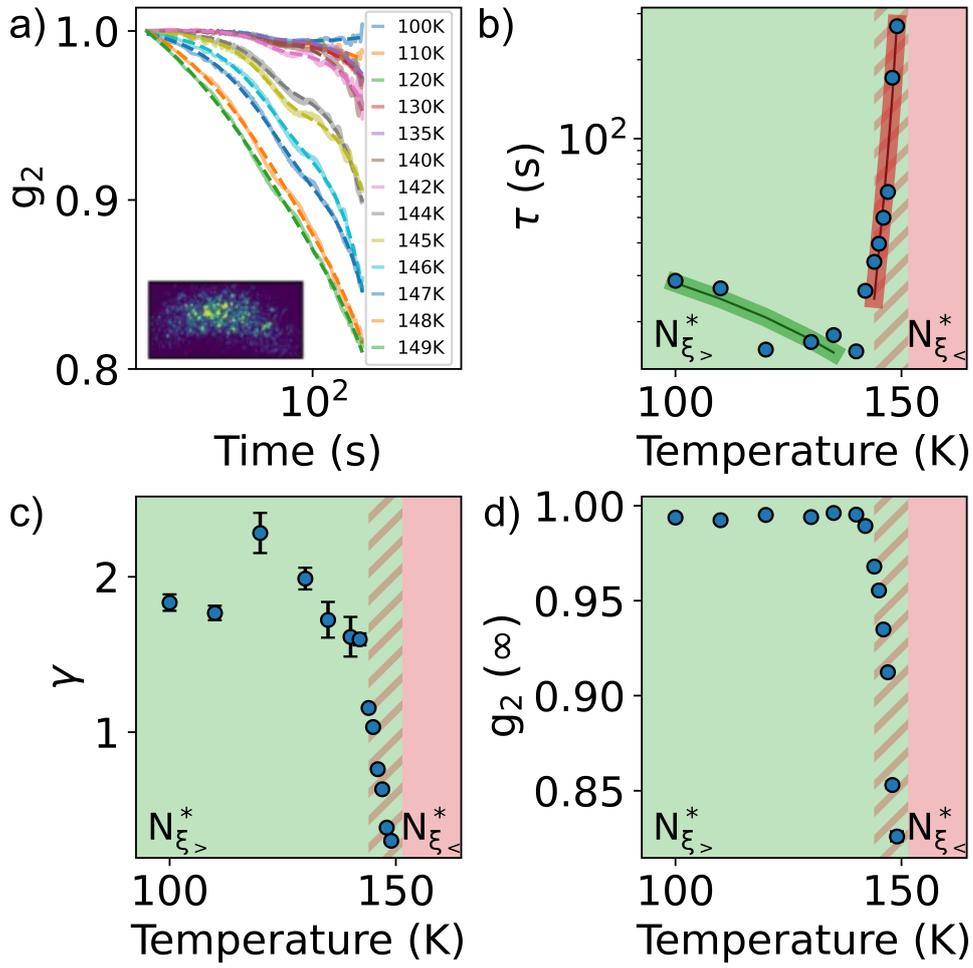


图 2 $\alpha\text{-Fe}_{51}\text{Ge}_{49}$ 的动态关联。(a) 同步散射图案的 X 射线光子相关光谱学 (XPCS)(插图), 显示具有多个相关时间尺度的复杂动力学。实线是计算得出的自相关值, 虚线是对公式 2 的拟合。从 (a) 中提取的指数项特征弛豫时间 (b)、伸展指数 (c) 以及常数偏移 (d), 作为温度从 100 K 到 149 K 加热时的函数, 在零场冷却后测量得到。(b) 中的绿色和红线分别对应线性和指数趋势, 仅作参考。

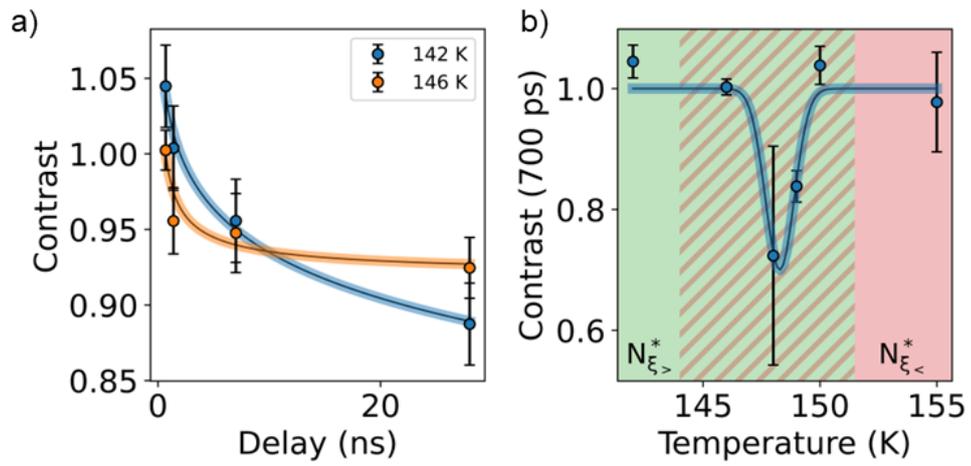


图 3 亚纳秒波动在相变点附近出现，当 $T^* = 151.5$ K。对比度值是从特定双脉冲延迟时间下的光子到达事件的概率分布中提取出来的。(a) 在不稳定区域的开始点之下（蓝色）和之上（橙色），存在明显不同的纳秒动态衰减。(b) 而在固定 700 皮秒延迟时间进行测量时，观测到磁波动增强现象就在接近 T^* 之前出现。实线是为了便于观察。

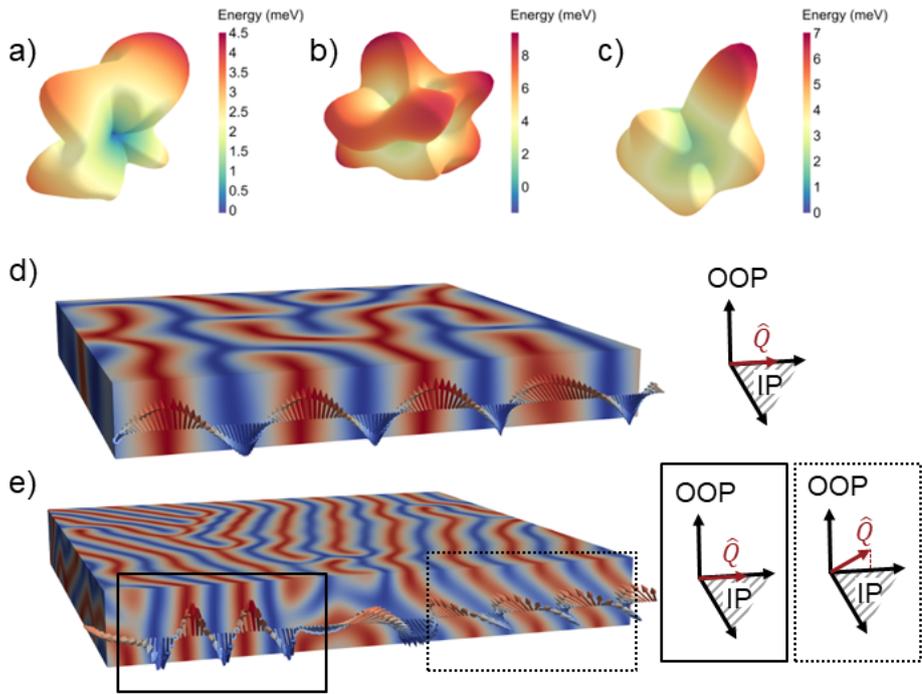


图 4 计算支持的螺旋重新定向。(a)-(c) 绘制了三种按方法部分所述准备的非晶结构的磁-结构各向异性能量表面。(d) 微磁模拟显示低温相中，螺旋传播方向 (\hat{Q} 矢量) 完全在平面内。(e) 在开始重新定向后的相同区域进行模拟，显示出周期性减小和 \hat{Q} 矢量不均匀旋转到既在平面内 (实线框) 又倾斜出平面 (虚线框) 的情况。(d) 和 (e) 中渲染的区域表示体积为 $\sim 500 \text{ nm} \times 1 \text{ } \mu\text{m} \times 80 \text{ nm}$ 。

References

- [1] Dierking, I. Textures of Liquid Crystals. *Textures of Liquid Crystals* (2003). URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/book/10.1002/3527602054>.
- [2] Doostmohammadi, A., Ignés-Mullol, J., Yeomans, J. M. & Sagués, F. Active nematics. *Nature Communications* 2018 9:1 **9**, 1–13 (2018). URL <https://www.nature.com/articles/s41467-018-05666-8>.
- [3] Mur, M., Kos, Ž., Ravnik, M. & Muševič, I. Continuous generation of topological defects in a passively driven nematic liquid crystal. *Nature Communications* **13**, 1–14 (2022). URL <https://www.nature.com/articles/s41467-022-34384-5>.
- [4] Ozenda, O., Sonnet, A. M. & Virga, E. G. A blend of stretching and bending in nematic polymer networks. *Soft Matter* **16**, 8877–8892 (2020). URL <https://pubs.rsc.org/en/content/articlehtml/2020/sm/d0sm00642dhttps://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2020/sm/d0sm00642d>.
- [5] Nie, L. *et al.* Charge-density-wave-driven electronic nematicity in a kagome superconductor. *Nature* **604**, 59–64 (2022). URL <https://www.nature.com/articles/s41586-022-04493-8>.
- [6] Rößler, S. *et al.* Nematic state of the FeSe superconductor. *Phys. Rev. B* **105**, 64505 (2022).
- [7] Toner, J. & Nelson, D. R. Smectic, cholesteric, and Rayleigh-Benard order in two dimensions. *Phys. Rev. B* **23** (1981).
- [8] Borzi, R. A. *et al.* Formation of a nematic fluid at high fields in $\text{Sr}_3\text{Ru}_2\text{O}_7$. *Science* **315**, 214–217 (2007). URL <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.1134796>.
- [9] Fradkin, E., Kivelson, S. A. & Oganesyan, V. Electron nematic phase in a transition metal oxide. *Science* **315**, 196–197 (2007). URL <https://www.science.org/doi/10.1126/science.1137172>.

- [10] Nie, L. *et al.* Charge-density-wave-driven electronic nematicity in a kagome superconductor. *Nature* **604**, 59–64 (2022). URL <https://doi.org/10.1038/s41586-022-04493-8>.
- [11] Cooper, K. B., Lilly, M. P., Eisenstein, J. P., Pfeiffer, L. N. & West, K. W. Onset of anisotropic transport of two-dimensional electrons in high Landau levels: Possible isotropic-to-nematic liquid-crystal phase transition. *Phys. Rev. B* **65**, 241313 (2002). URL <https://journals.aps.org/prb/abstract/10.1103/PhysRevB.65.241313>.
- [12] Kim, H. *et al.* Quantum spin nematic phase in a square-lattice iridate. *Nature* **625**, 264–269 (2024). URL <https://doi.org/10.1038/s41586-023-06829-4>.
- [13] Kohama, Y. *et al.* Possible observation of quantum spin-nematic phase in a frustrated magnet. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **166**, 10686–10690 (2019).
- [14] Moon, J. *et al.* Magnetic Field-Induced Spin Nematic Phase Up to Room Temperature in Epitaxial Antiferromagnetic FeTe Thin Films Grown by Molecular Beam Epitaxy. *ACS Nano* **17**, 16886–16894 (2023). URL <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/acsnano.3c03880>.
- [15] Yu, X. Z. *et al.* Near room-temperature formation of a skyrmion crystal in thin-films of the helimagnet FeGe. *Nature Materials* *2010 10:2* **10**, 106–109 (2010). URL <https://www.nature.com/articles/nmat2916>.
- [16] Streubel, R. *et al.* Chiral Spin Textures in Amorphous Iron – Germanium Thick Films. *Advanced Materials* **33**, 2004830 (2021). URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/adma.202004830>.
- [17] Bouma, D. S. *et al.* Itinerant ferromagnetism and intrinsic anomalous Hall effect in amorphous iron-germanium. *Phys. Rev. B* **101**, 1–10 (2020).
- [18] Singh, A. *et al.* Characterizing Temporal Heterogeneity by Quantifying Nanoscale Fluctuations in Amorphous Fe-Ge Magnetic Films. *Advanced Functional Materials* **33**, 2300224 (2023). URL

<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/adfm.202300224>
<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/adfm.202300224>
<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/adfm.202300224>.

- [19] Ostlund, S. & Halperin, B. I. Dislocation-mediated melting of anisotropic layers. *Phys. Rev. B* **23** (1981).
- [20] Sinha, S. K., Jiang, Z. & Lurio, L. B. X-ray photon correlation spectroscopy studies of surfaces and thin films. *Advanced Materials* **26**, 7764–7785 (2014).
- [21] Lehmkuhler, F., Roseker, W. & Grübel, G. From Femtoseconds to Hours—Measuring Dynamics over 18 Orders of Magnitude with Coherent X-rays. *Applied Sciences* 2021, Vol. 11, Page 6179 **11**, 6179 (2021). URL <https://www.mdpi.com/2076-3417/11/13/6179/html>
<https://www.mdpi.com/2076-3417/11/13/6179>.
- [22] Chen, S.-W. *et al.* Jamming behavior of domains in a spiral antiferromagnetic system. *Phys. Rev. Lett.* **110**, 217201 (2013). URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.110.217201>.
- [23] Cipelletti, L. *et al.* Universal non-diffusive slow dynamics in aging soft matter. *Faraday Discussions* **123**, 237–251 (2003). URL <https://pubs.rsc.org/en/content/articlehtml/2003/fd/b204495a>
<https://pubs.rsc.org/en/content/articlelanding/2003/fd/b204495a>.
- [24] Dussaux, A. *et al.* Local dynamics of topological magnetic defects in the itinerant helimagnet FeGe. *Nature Communications* **7**, 12430 (2016). URL <https://doi.org/10.1038/ncomms12430>.
- [25] Seaberg, M. H. *et al.* Nanosecond x-ray photon correlation spectroscopy on magnetic skyrmions. *Phys. Rev. Lett.* **119**, 067403 (2017). URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.119.067403>.
- [26] Shen, L., Seaberg, M., Blackburn, E. & Turner, J. J. A snapshot review—Fluctuations in quantum materials: from skyrmions to superconductivity. *MRS Advances* **6**, 221–233 (2021). URL <https://link.springer.com/article/>

- [10.1557/s43580-021-00051-y](https://doi.org/10.1557/s43580-021-00051-y).
- [27] Seaberg, M. H. *et al.* Spontaneous fluctuations in a magnetic Fe/Gd skyrmion lattice. *Physical Review Research* **3**, 33249 (2021).
- [28] Goodman, J. W. *Speckle Phenomena in Optics: Theory and Applications* (SPIE Press, 2015).
- [29] Preißinger, M. *et al.* Vital role of magnetocrystalline anisotropy in cubic chiral skyrmion hosts. *npj Quantum Materials* 2021 6:1 **6**, 1–9 (2021). URL <https://www.nature.com/articles/s41535-021-00365-y>.
- [30] Lebech, B., Bernhards, J. & Freltoft, T. Magnetic structures of cubic FeGe studied by small-angle neutron scattering. *J. Phys.: Condens. Matter* **1** 6105–6122 (1989).
- [31] Schoenherr, P. *et al.* Dislocation-Driven Relaxation Processes at the Conical to Helical Phase Transition in FeGe. *ACS Nano* **15**, 17508–17514 (2021). URL <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/acsnano.1c04302>.
- [32] Li, J. *et al.* Nematic superconducting state in iron pnictide superconductors. *Nature Communications* **8**, 1–8 (2017). URL <https://www.nature.com/articles/s41467-017-02016-y>.
- [33] Janoschek, M. *et al.* Fluctuation-induced first-order phase transition in dzyaloshinskii-moriya helimagnets. *Phys. Rev. B* **87**, 134407 (2013). URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.87.134407>.
- [34] Pandolfi, R. J. *et al.* Xi-cam: a versatile interface for data visualization and analysis. *Journal of synchrotron radiation* **25**, 1261–1270 (2018).
- [35] Plumley, R. *et al.* On Ultrafast X-ray Methods for Magnetism (2023). URL <https://arxiv.org/abs/2305.07787v1>.
- [36] Vansteenkiste, A. *et al.* The design and verification of MuMax3. *AIP Advances* **4**, 107133 (2014). URL <http://dx.doi.org/10.1063/1.4899186>.

- [37] Strelkov, N., Timopheev, A. & Cuchet, L. Temperature dependence of the magnetic exchange stiffness in iron and nickel. *J. Phys. D: Appl. Phys* **53**, 39–40 (2020). URL <https://doi.org/10.1088/1361-6463/ab9672>.
- [38] Kresse, G. & Joubert, D. From ultrasoft pseudopotentials to the projector augmented-wave method. *Phys. Rev. B* **59**, 1758–1775 (1999). URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.59.1758>.
- [39] Bloch, D., Chaissé, F. & Pauthenet, R. Effects of Hydrostatic Pressure on the Compensation Temperatures of Iron Garnets. *Journal of Applied Physics* **38**, 1029–1030 (1967). URL <http://aip.scitation.org/doi/10.1063/1.1709474>.
- [40] Bayaraa, T. & Griffin, S. M. Ab initio amorphous spin Hamiltonian for the description of topological spin textures in FeGe (2023). [2311.07725](https://doi.org/10.26434/chemrxiv-2023-2311).
- [41] Corbae, P. *et al.* Observation of spin-momentum locked surface states in amorphous Bi_2Se_3 . *Nature Materials* **22**, 200–206 (2023). URL <https://doi.org/10.1038/s41563-022-01458-0>.
- [42] Harrelson, T. F. *et al.* Elucidating the local atomic and electronic structure of amorphous oxidized superconducting niobium films. *Applied Physics Letters* **119**, 50 (2021). URL [/aip/apl/article/119/24/244004/1063145/Elucidating-the-local-atomic-and-electronic](https://aip/apl/article/119/24/244004/1063145/Elucidating-the-local-atomic-and-electronic)
<https://pubs.aip.org/apl/article/119/24/244004/1063145/Elucidating-the-local-atomic-and-electronic>.
- [43] Cheng, J., Sivonxay, E. & Persson, K. A. Evaluation of Amorphous Oxide Coatings for High-Voltage Li-Ion Battery Applications Using a First-Principles Framework. *ACS Applied Materials & Interfaces* **12**, 35748–35756 (2020). URL <https://pubs.acs.org/doi/full/10.1021/acsami.0c10000>
<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acsami.0c10000>.
- [44] Sivonxay, E., Aykol, M. & Persson, K. A. The lithiation process and Li diffusion in amorphous SiO_2 and Si from first-principles. *Electrochimica Acta* **331**, 135344 (2020). URL <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0013468619322169>.

- [45] Sivonxay, E. & Persson, K. A. Density functional theory assessment of the lithiation thermodynamics and phase evolution in si-based amorphous binary alloys. *Energy Storage Materials* **53**, 42–50 (2022). URL <https://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S2405829722004445>.
- [46] Martínez, L., Andrade, R., Birgin, E. G. & Martínez, J. M. Packmol: A package for building initial configurations for molecular dynamics simulations. *Journal of Computational Chemistry* **30**, 2157–2164 (2009). URL <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1002/jcc.21224><https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/jcc.21224><https://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/jcc.21224>.
- [47] Perdew, J. P. & Zunger, A. Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems. *Phys. Rev. B* **23**, 5048–5079 (1981). URL <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.23.5048>.