

УДК 538.9

МЕТОД ОПОРНОГО СЛОЯ Gd В РЕФЛЕКТОМЕТРИИ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ НЕЙТРОНОВ

© 2022 г. Е. С. Никова^{a, b, *}, Ю. А. Саламатов^a, Е. А. Кравцов^{a, b},
В. В. Проглядо^a, В. Д. Жакетов^c, М. А. Миляев^a

^aИнститут физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, 620108 Россия

^bУральский Федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

^cЛаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка ОИЯИ, Дубна, 141980 Россия

*e-mail: e.nikova@mail.ru

Поступила в редакцию 28.01.2022 г.

После доработки 15.03.2022 г.

Принята к публикации 15.03.2022 г.

Рассмотрена возможность использования резонансного рассеяния нейтронов на атомах гадолиния в рефлектометрии поляризованных нейтронов для определения потенциала взаимодействия и расчета структурных и магнитных характеристик многослойных металлических пленок. Приведены экспериментальные данные рефлектометрии поляризованных нейтронов для пленок Fe/Cr/Fe с ферромагнитным и антиферромагнитным упорядочением слоев Fe. При использовании модуля и фазы коэффициента отражения, восстановленных для исследуемой части образца, были определены структурные характеристики и типы магнитного упорядочения слоев. Обработку проводили совместно для двух каналов рассеяния. Для каждого канала одновременно анализировали модуль и фазу.

Ключевые слова: нейтронная рефлектометрия, многослойные наноструктуры, поляризованные нейтроны, нейтронные резонансы, опорный слой.

DOI: 10.31857/S1028096022110176

ВВЕДЕНИЕ

Метод опорного слоя применяется для решения фазовой проблемы, в частности, в рефлектометрических исследованиях многослойных наногетероструктур [1, 2]. Он заключается в нанесении на исследуемую систему слоя с известными характеристиками, которые можно контролируемо изменять. Данный метод успешно применен в нейтронной рефлектометрии при изучении немагнитных систем [3–6]. В качестве опорного слоя применяли ферромагнитный металл и при помощи внешнего магнитного поля изменяли величину и направление его намагниченности.

Для изучения магнитных систем метод был модифицирован. В качестве опорного слоя было предложено использовать гадолиний, ядра изотопов которого взаимодействуют с нейтронами резонансным образом [7]. Хотя длины рассеяния тепловых нейтронов для большинства элементов не зависят от их энергии, известны изотопы (¹¹³Cd, ¹⁵⁷Gd, ¹⁴⁹Sm и другие), для которых наблюдаются резонансные эффекты рассеяния и поглощения тепловых нейтронов. Это свойство использовано в некоторых исследованиях [8–10].

В нейтронной рефлектометрии, в том числе рефлектометрии поляризованных нейтронов, использование гадолиния в качестве опорного слоя позволяет определить модуль и фазу коэффициента отражения многослойных наноструктур [11].

В настоящей работе экспериментально определены структурные и магнитные характеристики металлических многослойных пленок.

МЕТОДИКА

Для определения комплексного коэффициента отражения с использованием опорного слоя Gd необходимо провести три рефлектометрических эксперимента. При использовании времени пролетного рефлектометра необходимо изменять угол падения, в случае использования монохроматического излучения – длину волны падающего пучка. Благодаря энергетической зависимости плотности длины рассеяния Gd будут получены три различные кривые $I(q)$.

При анализе образец независимо от числа фактических слоев условно рассматривают как двухслойный. Характеристики одного слоя (опорного, содержащего Gd) известны и изменяются

в каждом эксперименте. Характеристики второго слоя — исследуемой части — неизвестны, но постоянны. В этом случае коэффициент отражения r_g неизвестной части образца представляет собой точку на окружности радиуса ρ с центром γ , которая лежит в комплексной плоскости [2]:

$$\gamma = \frac{Rh_{22}h_{12}^* - h_{21}h_{11}^*}{Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*}, \quad (1)$$

$$\rho = \sqrt{R} \frac{|h_{11}h_{22} - h_{12}h_{21}|}{Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*}, \quad (2)$$

где h_{ij} — элементы оптической матрицы, описывающей опорный слой, а R — амплитуда коэффициента отражения полной системы.

Чтобы однозначно определить точку окружности, которая соответствует коэффициенту отражения, имеющему физический смысл, необходимо провести три эксперимента. Точка пересечения трех окружностей и будет соответствовать искомому коэффициенту отражения, а ее положение рассчитывается по формуле:

$$r_g = \frac{A_1(\gamma_2 - \gamma_3) + A_2(\gamma_3 - \gamma_1) + A_3(\gamma_1 - \gamma_2)}{\gamma_1^*(\gamma_2 - \gamma_3) + \gamma_2^*(\gamma_3 - \gamma_1) + \gamma_3^*(\gamma_1 - \gamma_2)}. \quad (3)$$

Коэффициенты A_i связаны с центром γ и радиусом ρ соотношением $A_i = \gamma_i \gamma_i^* - \rho_i^2$. Такая математическая обработка позволяет восстановить комплексный коэффициент отражения во всех известных точках q . Более подробно она описана в [12].

Можно провести два эксперимента, а не три [13]. Тогда будут получены два решения, одно из которых не имеет физического смысла. Выбор правильного решения в этом случае осуществляется на основании априорной информации об образце.

Зная модуль и фазу коэффициента отражения, можно провести уточнение характеристик исследуемой структуры так, чтобы обеспечить наиболее оптимальное соответствие одновременно модуля и фазы комплексного коэффициента отражения для всех каналов рассеяния нейтронов, для которых проводились эксперименты.

В случае системы с неколлинеарным магнитным упорядочением возникают четыре канала рассеяния нейтронов — два без переворота спина “+ +” и “— —” и два с переворотом спина “+ —” и “— +”, которые совпадают друг с другом. Каждый канал рассеяния описывается собственным потенциалом взаимодействия [14]:

$$\begin{aligned} V_{++}(x) &= 4\pi[\delta_n(x) + \delta_m(x) \cos \alpha + i\beta_n(x)], \\ V_{--}(x) &= 4\pi[\delta_n(x) - \delta_m(x) \cos \alpha + i\beta_n(x)], \\ V_{+-}(x) &= V_{-+}(x) = 4\pi\delta_m(x) \sin \alpha. \end{aligned} \quad (4)$$

Все потенциалы выражаются через набор характеристик отдельных слоев. Величина $\delta_n(x) = \text{Re}[N(x)b_n(x)]$ описывает преломление и отражение нейтронов в веществе и зависит от длины ядерного рассеяния нейтронов $b_n(x)$ и числа частиц $N(x)$ в единице объема на глубине x . Величина, описывающая поглощение нейтронов в веществе $\beta_n(x) = \text{Im}[N(x)b_n(x)]$, также зависит от $b_n(x)$ и $N(x)$. Магнитное рассеяние нейтронов описывается величиной $\delta_m(x) = \mu(x)N(x)b_m(x)$, зависящей от длины магнитного рассеяния нейтронов $b_m(x)$ и магнитного момента частиц $\mu(x)$ на глубине x , выраженного в магнетонах Бора. Также при расчете учитывается угол α между направлением магнитного момента падающих нейтронов и направлением магнитного момента частиц образца. Если в образце не ферромагнитное упорядочение, то α различен в разных слоях.

Таким образом, вместо расчета потенциалов взаимодействия можно определить набор характеристик для каждого слоя: толщины, ядерные и магнитные плотности длин рассеяния, шероховатости границ, направления магнитных моментов. Математически эти характеристики могут быть сведены в один вектор неизвестных величин, которые уточняются по любому алгоритму спуска так, чтобы обеспечить наиболее оптимальное совпадение одновременно для всех имеющихся наборов экспериментальных данных (модули и фазы для всех измеренных каналов рассеяния). В настоящей работе для решения обратной задачи применяли алгоритм Левенберга—Марквардта. По уточненным характеристикам при необходимости могут быть построены потенциалы взаимодействия для каждого канала рассеяния.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

На установке ULVAC (ИФМ УрО РАН, Екатеринбург) методом высоковакуумного магнетронного распыления были синтезированы образцы: $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(100 \text{ \AA})/\text{Cr}(10.5 \text{ \AA})/\text{Fe}(100 \text{ \AA})/\text{Cr}(20 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{Cr}(50 \text{ \AA})$ и $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})/\text{Cr}(23 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{Cr}(50 \text{ \AA})$. В обоих образцах элемент структуры $\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{Cr}(50 \text{ \AA})$ выступал в качестве опорного слоя. Слой хрома использовался для защиты слоя гадолиния от окисления. Спектры отражения поляризованных нейтронов были измерены на времяпролетном рефлектометре РЕМУР импульсного реактора ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна).

Для каждого образца были измерены рефлектометрические спектры при трех различных углах скольжения и двух типах поляризации (“+” и “—”). Углы выбирали таким образом, чтобы использовать диапазон длин волн нейтронов, в котором

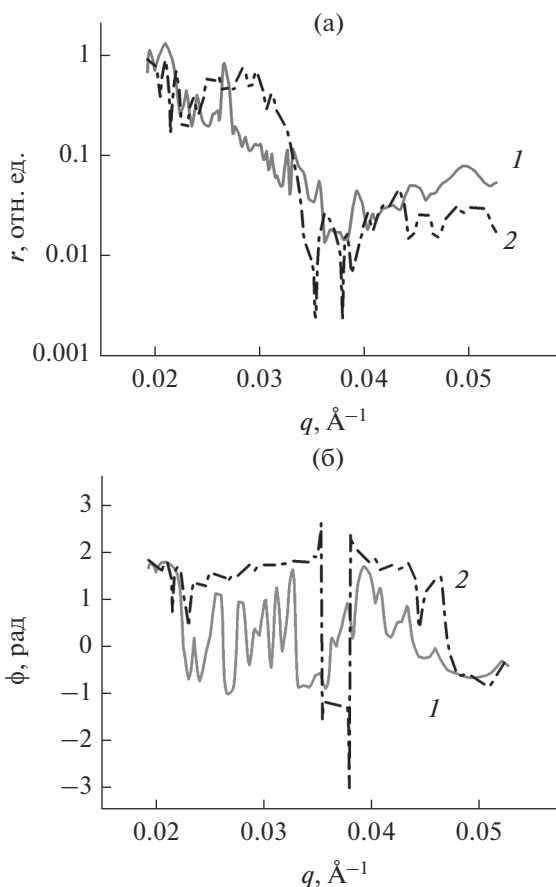


Рис. 1. Модуль (а) и фаза (б) комплексного коэффициента отражения для системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(10.5 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(20 \text{ Å})$ и канала рассеяния: “+ +” (1); “– –” (2).

наблюдаются максимальные отличия рефлектометрических спектров. Измерения проводили в диапазоне q от 0.015 до 0.055 Å^{-1} во внешнем магнитном поле 24 Э.

По известным характеристикам опорного слоя Gd/Cr были рассчитаны модули и фазы комплексного коэффициента отражения для исследуемой части образца. Модуль и фаза для каналов рассеяния “+ +” и “– –” в образце $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(10.5 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(20 \text{ Å})$ представ-

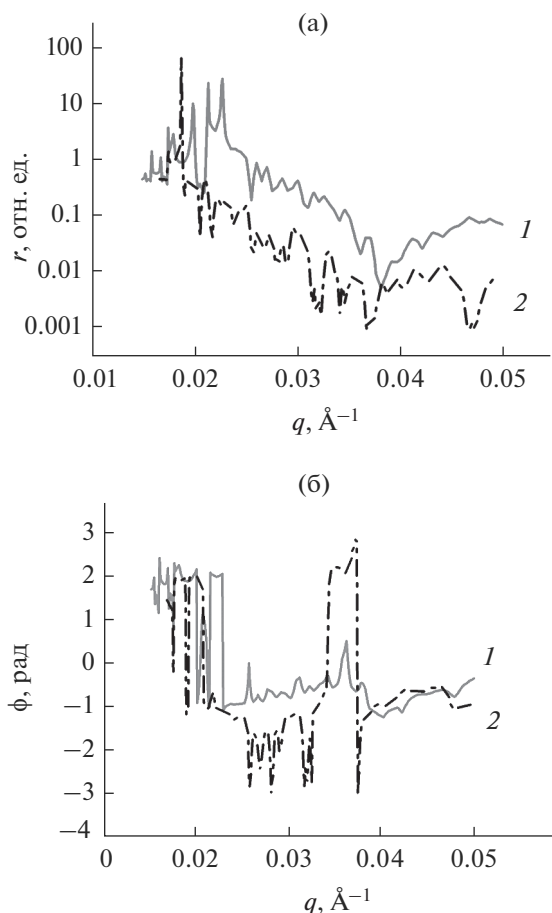


Рис. 2. Модуль (а) и фаза (б) комплексного коэффициента отражения для системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ Å})/\text{Fe}(90 \text{ Å})/\text{Cr}(23 \text{ Å})/\text{Fe}(90 \text{ Å})$ и канала рассеяния: “+ +” (1); “– –” (2).

лены на рис. 1, в образце $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ Å})/\text{Fe}(90 \text{ Å})/\text{Cr}(23 \text{ Å})/\text{Fe}(90 \text{ Å})$ — на рис. 2. Скачки фазы связаны с тем, что процедура расчета определяет фазу в диапазоне от $-\pi$ до $+\pi$. Каналы рассеяния “+ –” и “– +” были измерены в эксперименте, но из-за низкой интенсивности и сильной зашумленности не включены в обработку эксперимента.

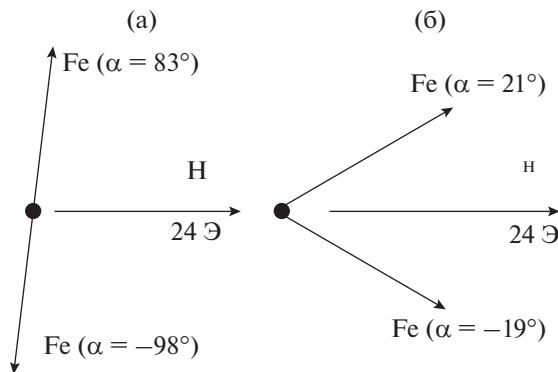
В табл. 1 и 2 приведены результаты определения толщин слоев (h , Å) и углов отклонения маг-

Таблица 1. Параметры слоев системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(10.5 \text{ Å})/\text{Fe}(100 \text{ Å})/\text{Cr}(20 \text{ Å})$

Слой	Номинальная толщина h_0 , Å	Экспериментальная толщина h , Å	Угол отклонения магнитного момента, град
Cr	100	106	—
Fe	100	88	83
Cr	10.5	8	—
Fe	100	78	–98
Cr	20	24	—

Таблица 2. Параметры слоев системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})/\text{Cr}(23 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})$

Слой	Номинальная толщина h_0 , $\text{\AA}$	Экспериментальная толщина h , $\text{\AA}$	Угол отклонения магнитного момента, град
Cr	100	96	—
Fe	90	78	21
Cr	23	23	—
Fe	90	77	–19

**Рис. 3.** Отклонение магнитного момента в слоях железа от напряженности внешнего магнитного поля для системы: а – $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(100 \text{ \AA})/\text{Cr}(10.5 \text{ \AA})/\text{Fe}(100 \text{ \AA})/\text{Cr}(20 \text{ \AA})$; б – $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})/\text{Cr}(23 \text{ \AA})/\text{Fe}(90 \text{ \AA})$. Верхняя стрелка соответствует слою Fe, ближайшему к подложке, нижняя – ближайшему к поверхности.

нитного момента слоя от направления внешнего поля как характеристик, представляющих наибольший практический интерес. Углы отклонения магнитного момента в каждом слое Fe от направления внешнего магнитного поля $\mathbf{H}$ для исследуемых систем приведены на рис. 3.

В первом образце экспериментально определена толщина слоя хрома $8 \text{ \AA}$, что соответствует первому антиферромагнитному максимуму. Во втором образце экспериментально найденная толщина слоя Cr равна $23 \text{ \AA}$ и соответствует второму антиферромагнитному максимуму. Из полученных результатов видно, что слабое внешнее поле практически не изменяет антиферромагнитное упорядочение в первом образце, однако приводит второй образец в состояние, близкое к ферромагнитному, так как в нем обменное взаимодействие гораздо слабее.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показано, что применение опорного слоя Gd позволяет проводить анализ экспериментальных рефлектометрических данных для магнитных многослойных пленок. Были исследо-

ваны два образца с различным типом упорядочения магнитных моментов. В обоих случаях удалось определить как толщины слоев, так и ориентацию магнитных моментов в каждом слое. Совместная обработка модуля и фазы для двух каналов рассеяния снижает неоднозначность получаемого результата.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Спин” № 22021000036-3). Нейтронографические исследования выполнены при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-10-2021-115 от 13 октября 2021 г. (внутренний номер 15.СИН.21.0021). Рост образцов и рентгеноструктурные измерения осуществлены в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Особая благодарность выражается Ю.В. Никитенко (ОИ-ЯИ, Дубна) за обсуждение и помощь в постановке эксперимента.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Majkrzak C.F., Berk N.F. // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. P. 10827.
2. De Haan V.O., van Well A.A., Sacks P.E., Adenwalla S., Felcher G.P. // Phys. B. 1996. V. 221. P. 524.
3. Majkrzak C.F., Berk N.F. // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 15416.
4. Majkrzak C.F., Berk N.F., Silin V., Meuse C.W. // Physica B. 2000. V. 283. P. 248.
5. De Haan V.O., van Well A.A., Adenwalla S., Felcher G.P. // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. P. 10831.
6. Lipperheide R., Weber M., Leeb H. // Phys. Rev. B. 2000. V. 283. P. 242.
7. Salamatov Yu.A., Kravtsov E.A. // J. Surf. Invest.: X-ray, Synchrotron Neutron Tech. 2016. V. 10. № 6. P. 1169.
8. Brockhouse B.N. // Canad. J. Phys. 1953. V. 31. P. 432.
9. Peterson S.W., Smit H.G. // Phys. Rev. Lett. 1961. V. 6. P. 7.
10. Smit H.G., Peterson S.W. // J. Phys. 1964. V. 25. P. 615.

11. *Nikova E.S., Salamatov Yu.A., Kravtsov E.A., Ustinov V.V.* // Superlattices and Microstructures. 2017. V. 109. P. 201.
12. *Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А., Макарова М.В., Проглядо В.В., Устинов В.В., Боднарчук В.И., Нагорный А.В.* // Физика металлов и металловедение. 2019. Т. 120. С. 913.
13. *Majkrzak C.F., Berk N.F., Perez-Salas U.A.* // Langmuir. 2003. V. 19. P. 7796.
14. *Lekner J.* Theory of Reflection of Electromagnetic and Particle Waves. Dordrecht: Springer Science—Business Media, 1987. 281 p.

Gd Reference Layer Method in Polarized Neutron Reflectometry

**E. S. Nikova^{1, 2, *}, Yu. A. Salamatov¹, E. A. Kravtsov^{1, 2}, V. V. Proglyado¹,
V. D. Zhaketov³, M. A. Milyaev¹**

¹*Miheev Institute of Metal Physics UB RAS, Ekaterinburg, 620108 Russia*

²*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia*

³*The Frank Laboratory of Neutron Physics, JINR, Dubna, 141980 Russia*

**e-mail: e.nikova@mail.ru*

The possibility of using resonant scattering of neutrons by gadolinium isotopes in the reflectometry of polarized neutrons to determine the interaction potential and calculate the structural and magnetic characteristics of multilayer metal films is considered. Experimental data of polarized neutron reflectometry for Fe/Cr/Fe films with ferromagnetic and antiferromagnetic ordering of Fe layers are presented. Using the modulus and phase of the reflection coefficient, reconstructed for the studied part of the sample, the structural characteristics and types of magnetic ordering of the layers have been determined. Processing is carried out jointly for two types of scattering channels. For each type, the modulus and phase are analyzed simultaneously.

Keywords: neutron reflectometry, multilayer nanostructures, polarized neutrons, neutron resonances, reference layer.