

ДИФРАКЦИЯ И РАССЕЯНИЕ
ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ

УДК 53.083.2, 539.2, 53.08

РОЛЬ МАГНИТНЫХ ПЕРЕХОДНЫХ СЛОЕВ В ФОРМИРОВАНИИ
ЗАПРЕЩЕННЫХ ОТРАЖЕНИЙ© 2023 г. Р. А. Баулин^{1,*}, М. А. Андреева¹¹Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

*E-mail: baulin.roman@physics.msu.ru

Поступила в редакцию 10.01.2023 г.

После доработки 10.01.2023 г.

Принята к публикации 18.01.2023 г.

Показана возможность существования запрещенных брэгговских отражений в мессбауэровской рефлектометрии, обусловленных влиянием переходных слоев на зеркальное отражение. Расчеты показывают, что измерение мессбауэровских спектров с использованием запрещенных отражений дает принципиальную возможность селективно исследовать переходные слои.

DOI: 10.31857/S002347612370011X, EDN: XADTKX

ВВЕДЕНИЕ

Запрещенные отражения играют ключевую роль в рентгеновских и нейтронных исследованиях магнитных и анизотропных характеристик кристаллических решеток. В рентгеновской дифракции с их помощью исследуют магнитные структуры кристаллов [1–3], тепловые колебания и ангармонизм колебаний атомов [4, 5], наличие неэквивалентных положений атомов [6], определяют знак взаимодействия Дзялошинского–Мории [7, 8]. В мессбауэровской дифракции возможно формирование чисто ядерных отражений от антиферромагнитных кристаллов [9–12]. В [13] наблюдалось запрещенное для рентгеновской дифракции ядерно-резонансное отражение 111 от гематита, обогащенного до 85% изотопом ⁵⁷Fe. В дальнейшем удалось наблюдать возбуждение ядерных переходов с помощью синхротронного излучения, используя запрещенное отражение от железо-иттриевого граната [14]. В настоящее время чисто ядерное отражение от монокристалла ⁵⁷FeBO₃, выделяющееся при определенных условиях из практически белого синхротронного спектра одиночную линию, ширина которой сравнима с шириной γ -резонанса [15], является основой для современных синхротронных мессбауэровских источников [16–19].

В рентгеновской рефлектометрии и рефлектометрии поляризованных нейтронов при изучении периодических многослойных структур наличие запрещенных отражений определяется соотношением толщин слоев в периоде [20, 21]. В самом

простом случае, когда многослойная структура состоит из двух периодически повторяющихся слоев с толщинами d_1 , d_2 и $d_1 = d_2 = D/2$ (D – полный период многослойной структуры), подавляются четные брэгговские отражения. С помощью запрещенных отражений методом рефлектометрии поляризованных нейтронов можно исследовать эффект близости для границы между сверхпроводящим и магнитным слоями [22] и спин-флоп-переход [23].

В настоящей работе проанализировано возникновение запрещенных отражений в мессбауэровской (ядерно-резонансной) рефлектометрии и показана их исключительная чувствительность к сверхтонким взаимодействиям в переходных слоях периодической структуры.

ТЕОРИЯ

В кинематическом приближении коэффициент отражения R от периодической многослойной структуры можно представить в виде [24]:

$$R = L_N(\theta, D) F(\theta, z_i, \chi_i(\omega)), \quad (1)$$

где $L_N(\theta, D)$ – функция Лауэ, определяющая угловое положение брэгговских отражений, $F(\theta, z_i, \chi_i(\omega))$ – структурный фактор одного периода, θ – угол скольжения падающего излучения, D – период многослойной структуры, z_i – координата слоя внутри периода, $\chi_i(\omega)$ – восприимчивость i -го слоя, ω – частота падающего излучения. Разбивая среду на тонкие слои, чтобы учесть

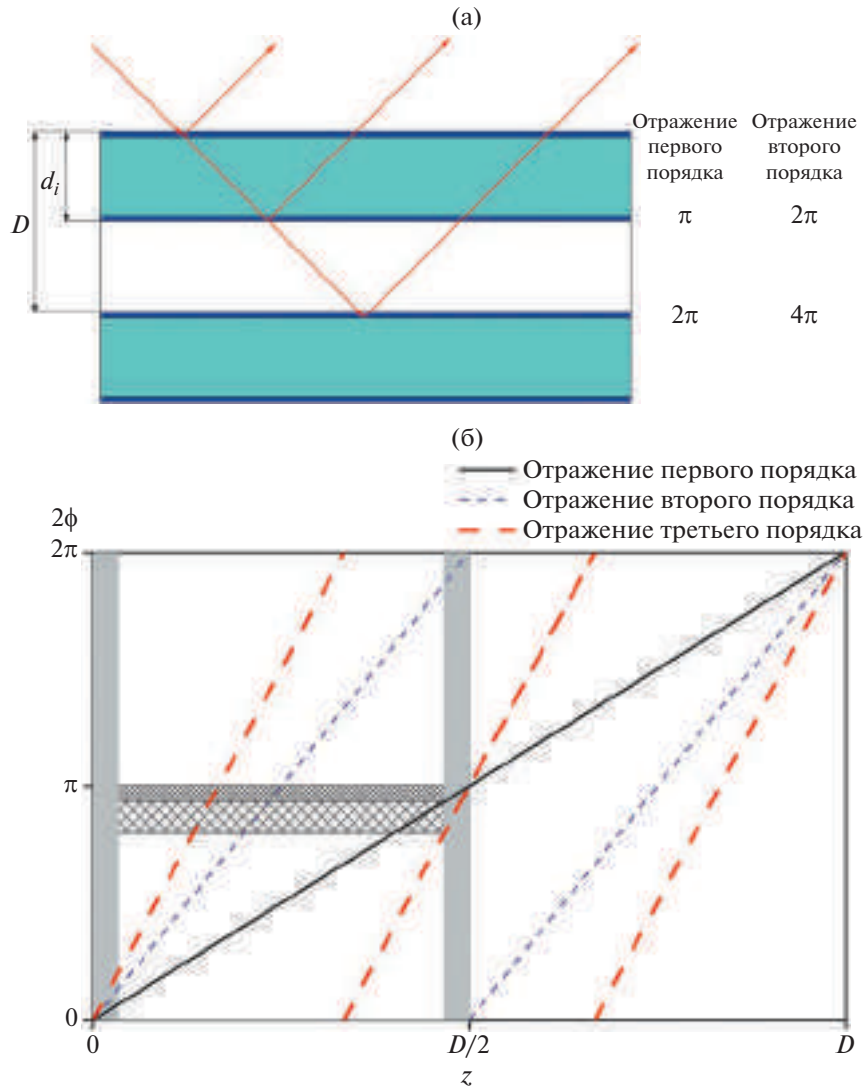


Рис. 1. Схематичное изображение сложения фаз волн, отраженных от переходных слоев, в случае брэгговских рефлексов первого и второго порядков (а). Изменение набег фаз между волнами, отраженными от верхней границы периода и последующих слоев, в зависимости от их координаты z в периоде для брэгговских отражений первого, второго и третьего порядков (б).

их индивидуальные резонансные свойства, структурный фактор представим в виде [24]:

$$F = \frac{i\lambda}{\sin \theta} \sum_{k=1}^K \sigma_k f_k(\omega) \exp(iQz_k), \quad (2)$$

где σ_k — поверхностная плотность рассеивающих центров, $f_k(\omega)$ — амплитуда когерентного рассеяния вперед в каждом слое, включающая рассеяние на электронных оболочках атомов и на резонансных ядрах, $Q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta$, а положение каждого слоя z_k отсчитывается от границы бислая. Если толщина переходного слоя $d_i \ll D$, толщина резонансного слоя $d_{\text{res}} = D/2$ и амплитуда рассеяния в переходных слоях отличается от амплитуды рассеяния внутри резонансного слоя, то вклад отра-

жения от переходных слоев в структурный фактор примет вид

$$F_{\text{int}} = \frac{i\lambda}{\sin \theta} (\sigma_1 f_1(\omega) + \sigma_1 f_1(\omega) \exp(i\pi n)), \quad (3)$$

где n — порядок брэгговского отражения. Выражение (3) показывает, что в случае разрешенных брэгговских отражений ($n = 1, 3, 5, \dots$) вклад переходных слоев в отражение несущественен (рис. 1а). В случае запрещенных отражений ($n = 2, 4, 6, \dots$) вклад переходных слоев максимален, а рассеяние в остальной части резонансных слоев подавлено:

$$F_{\text{mid}} = \frac{i\lambda}{\sin \theta} \sigma_{\text{mid}} f_{\text{mid}} \int_{d_i}^{D/2-d_i} \exp(iQz_k) dz_k \cong 0, \quad (4)$$

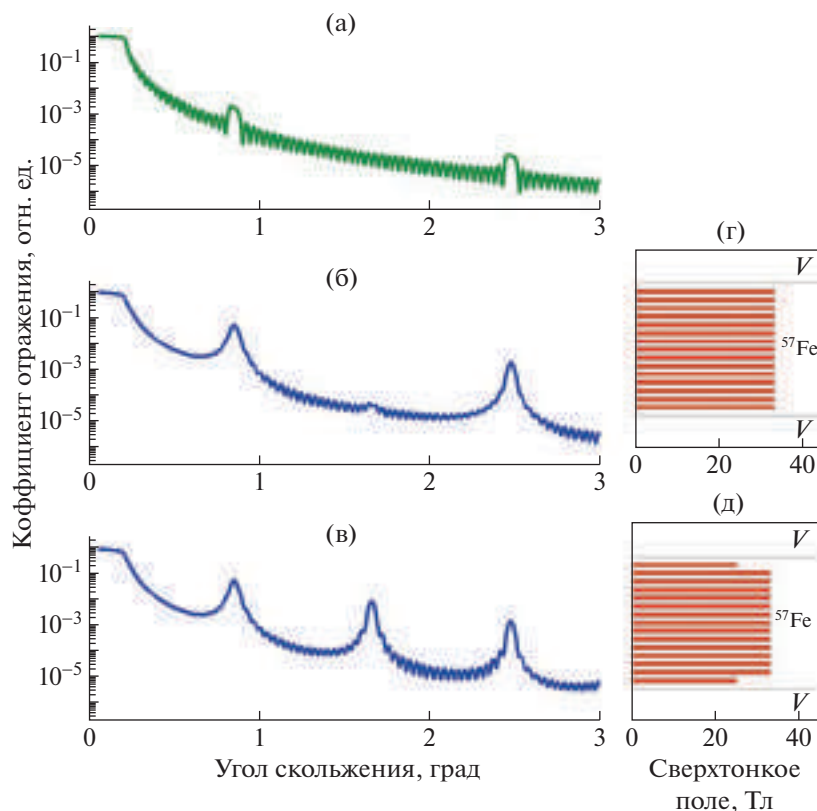


Рис. 2. Рентгеновская рефлектометрия (а), мессбауэровская рефлектометрия при однородном распределении магнитного сверхтонкого поля ($B_{hf} = 33$ Тл) по глубине слоя железа (б) и в более слабом сверхтонком поле ($B_{hf} = 26$ Тл) в переходных слоях (в), соответствующие распределения сверхтонкого поля по глубине одного слоя железа (г), (д). Расчет проведен для структуры $[^{57}\text{Fe}(1.5 \text{ нм})/\text{V}(1.5 \text{ нм})]_{20}$. Толщина переходного слоя принята за 0.1 нм. В расчетах сверхтонкое поле направлено вдоль пучка излучения.

если $Qd_i \ll \pi$. Отметим, что последнее условие ухудшается с увеличением порядка отражения вследствие увеличения Q (рис. 1б), так что подавление вклада центральной части резонансных слоев менее выражено для брэгговского максимума, например, четвертого порядка по сравнению со вторым. В (4) σ_{mid} — поверхностная плотность рассеивающих центров, f_{mid} — амплитуда когерентного рассеяния в центральной части резонансного слоя.

МОДЕЛЬНЫЕ РАСЧЕТЫ

Для демонстрации эффекта проведены модельные расчеты с помощью программного пакета REFTIM [25, 26], адаптированного для моделирования энергетических спектров мессбауэровского отражения и мессбауэровской рефлектометрии, измеряемых как интеграл по резонансному спектру. Рентгеновская рефлектометрическая кривая, рассчитанная для длины волны $\lambda = 0.086$ нм, показана на рис. 2а. Для модельного расчета выбрана периодическая многослойная структура $[^{57}\text{Fe}(1.5 \text{ нм})/\text{V}(1.5 \text{ нм})]_{20}$. Соотношение толщин

слоев 1:1 в периодической структуре обеспечивает подавление четных брэгговских отражений (например, при $\theta = 1.65^\circ$). В случае равномерного распределения сверхтонкого магнитного поля по глубине слоя железа (рис. 2г) четные брэгговские отражения также практически отсутствуют на кривых мессбауэровской рефлектометрии (рис. 2б). Слабо выраженный максимум при угле $\theta = 1.65^\circ$ (рис. 2б) объясняется неполным подавлением F_{int} вследствие влияния резонансного поглощения в слое, которым в (3) пренебрегли. При более аккуратном рассмотрении набег фазы при двукратном прохождении бислоя определяется выражением [24]:

$$\exp(iQz_k) \Rightarrow \exp\left(iQz_k + \frac{2\lambda}{\sin \theta} \sum_{m=2}^k \sigma_{m-1} f_{m-1} d_{m-1}\right), \quad (5)$$

обуславливающим неполное подавление четных отражений. При наличии меньшего сверхтонкого поля ($B_{hf} = 26$ Тл) в переходных слоях (рис. 2в, 2д) отражение становится разрешенным.

Проведенные расчеты подтверждают, что в первом брэгговском максимуме ($\theta = 0.85^\circ$) вол-

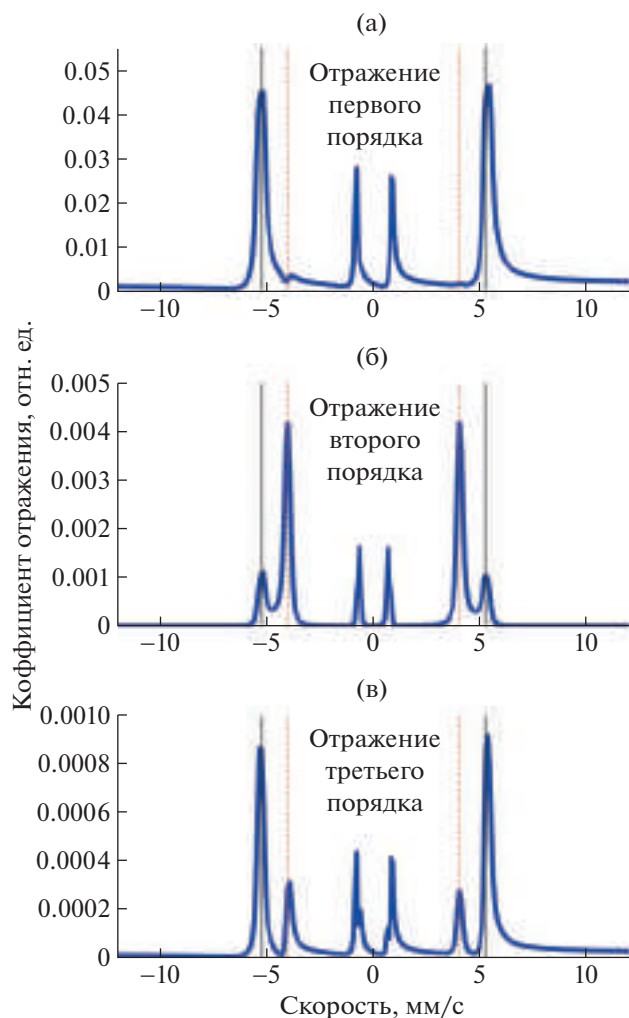


Рис. 3. Мессбауэровские спектры отражения первых трех порядков ($\theta = 0.85^\circ, 1.65^\circ, 2.45^\circ$). Модель многослойной структуры соответствует рис. 1б. Вертикальные линии обозначают положения первой и шестой резонансных линий для расщеплений, соответствующих сверхтонкому полю $B_{hf} = 26$ Тл (пунктирная линия) и 33 Тл (сплошная линия).

ны, отраженные от переходных слоев, складываются в противофазе, поэтому мессбауэровский мультиплет, соответствующий $B_{hf} = 26$ Тл, практически полностью подавлен. Вклад в отражения вносит только центральная часть резонансного слоя с расщеплением спектра, соответствующим $B_{hf} = 33$ Тл. Во втором брэгговском максимуме ($\theta = 1.65^\circ$) ситуация противоположная: волны, отраженные от переходных слоев, складываются в фазе, в то время как отражение от центральной части слоя подавляется в соответствии с (4), так как отражение является запрещенным при $d_1 \cong D/2$. Таким образом, ненулевая интенсивность запрещенного отражения обеспечивается преимущественно переходными слоями.

Важным преимуществом мессбауэровской рефлектометрии является возможность измерения спектров отражения разных порядков при разных углах скольжения, что позволяет получить распределение мессбауэровских параметров и ориентации магнитного сверхтонкого поля по глубине одного периода. Обработка временных спектров ядерно-резонансного отражения двух порядков была проведена в [24, 25] для структуры $[^{57}\text{Fe}(1.05 \text{ нм})/\text{V}(0.75 \text{ нм})]_{20}$ (рис. 10 в [24, 25]). В случае структур с антиферромагнитным межслойным упорядочением информация дополняется исследованием сверхструктурных максимумов с полуцелыми индексами [27–29].

Отметим, что формы спектров в случае разрешенных и запрещенных отражений различаются. Подавление рентгеновского рассеяния в случае запрещенного отражения приводит практически к нулевому фону вне области резонанса и отсутствию интерференции между рентгеновским и ядерно-резонансным рассеянием, которая проявляется в асимметрии спектров. Аналогичный эффект наблюдался для магнитных максимумов [29] и с применением поляризационного анализа [30]. Различие мессбауэровских спектров в случае брэгговских максимумов первого и третьего порядков объясняется ненулевой толщиной переходного слоя и более быстрым изменением набега фаз отраженных волн (рис. 1б). Данные факторы обеспечивают неполное подавление вклада переходных слоев в случае отражения третьего порядка.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, измерение мессбауэровских спектров с использованием запрещенных отражений позволяет выделить вклад в резонансный спектр переходных слоев, что может быть полезно при исследовании магнитных эффектов, возникающих на границе раздела сред.

Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (грант № 075-15-2021-1353).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *de Bergevin F., Brunel M.* // Phys. Lett. A. 1972. V. 39. P. 141.
[https://doi.org/10.1016/0375-9601\(72\)91054-7](https://doi.org/10.1016/0375-9601(72)91054-7)
2. *Gibbs D., Moncton D.E., D'Amico K.L. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. P. 234.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.55.234>
3. *Gibbs D., Grübel G., Harshman D.R. et al.* // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. P. 5663.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.43.5663>
4. *Collins S.P., Laundry D., Dmitrienko V.E. et al.* // Phys. Rev. B. 2003. V. 68. P. 064110.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.064110>

5. *Beutier G., Collins S.P., Nisbet G. et al.* // Eur. Phys. J. Spec. Top. 2012. V. 208. P. 53.
<https://doi.org/10.1140/epjst/e2012-01606-3>
6. *Collins S.P., Laundry D., Stunault A.* // J. Phys.: Condens. Matter. 2001. V. 13. P. 1891.
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/13/9/312>
7. *Dmitrienko V.E., Ovchinnikova E.N., Collins S.P. et al.* // Nat. Phys. 2014. V. 10. P. 202.
<https://doi.org/10.1038/nphys2859>
8. *Beutier G., Collins S.P., Dimitrova O.V. et al.* // Phys. Rev. Lett. V. 119. P. 167201.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.119.167201>
9. *Андреева М.А., Кузьмин Р.Н.* // Кристаллография. 1969. Т. 14. Вып. 4. С. 708.
10. *Андреева М.А., Кузьмин Р.Н.* // Докл. АН СССР. 1969. Т. 185. С. 1282.
11. *Беляков В.А., Айвазян Ю.М.* // Письма в ЖЭТФ. 1968. Т. 7. С. 477.
12. *Беляков В.А.* // Успехи физ. наук. 1987. Т. 151. С. 699.
<https://doi.org/10.3367/UFNr.0151.198704e.0699>
13. *Смирнов Г.В., Скляревский В.В., Восканян Р.А., Артемьев А.Н.* // Письма в ЖЭТФ. 1969. Т. 9. С. 123.
14. *Gerdau E., Rüffler R., Winkler H. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 54. P. 835.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.54.835>
15. *Smirnov G.V., van Bürck U., Chumakov A.I. et al.* // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. P. 5811.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.55.5811>
16. *Mitsui T., Seto M., Hirao M. et al.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V. 46. P. L382.
<https://doi.org/10.1143/JJAP.46.L382>
17. *Mitsui T., Seto M., Masuda R. et al.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V. 46. P. L703.
<https://doi.org/10.1143/JJAP.46.L703>
18. *Mitsui T., Seto M., Masuda R. et al.* // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V. 46. P. L930.
<https://doi.org/10.1143/JJAP.46.L930>
19. *Potapkin V., Chumakov A.I., Smirnov G.V. et al.* // J. Synchrotron Radiat. 2012. V. 19. P. 559.
<https://doi.org/10.1107/S0909049512015579>
20. *Andronova N.V., Kohn V.G., Chechin A.I. et al.* // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A. 1995. V. 359. P. 135.
[https://doi.org/10.1016/0168-9002\(94\)01680-1](https://doi.org/10.1016/0168-9002(94)01680-1)
21. *Kohn V.G.* // Phys. Status Solidi. B. 1995. V. 187. P. 61.
<https://doi.org/10.1002/pssb.2221870105>
22. *Satapathy D.K., Uribe-Laverde M.A., Marozau I. et al.* // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. P. 197201.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.108.197201>
23. *Antropov N.O., Khaydukov Yu.N., Kravtsov E.A. et al.* // JETP Lett. 2019. V. 109. P. 406.
<https://doi.org/10.1134/S0021364019060018>
24. *Andreeva M.A., Lindgren B.* // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. P. 125422.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.125422>
25. *Andreeva M.A.* // Hyperfine Interact. 2008. V. 185. P. 17.
<https://doi.org/10.1007/s10751-008-9806-6>
26. *Andreeva M.A., Lindgren B., Panchuck V.* // <http://www.esrf.eu/Instrumentation/software/data-analysis/OurSoftware/REFTIM-1>
27. *Toellner T.S., Sturhahn W., Rohlsberger R. et al.* // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 74. P. 3475.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.74.3475>
28. *Andreeva M., Gupta A., Sharma G. et al.* // Phys. Rev. B. 2015. V. 92. P. 134403.
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.134403>
29. *Andreeva M.A., Baulin R.A., Chumakov A.I. et al.* // J. Synchrotron Radiat. 2018. V. 25. P. 473.
<https://doi.org/10.1107/S1600577517017192>
30. *Baulin R.A., Andreeva M.A., Häggström L. et al.* // Surf. Interfaces. 2021. V. 27. P. 101521.
<https://doi.org/10.1016/j.surf.2021.101521>