

УДК 538.9

МЕТОД ФАЗОВО-АМПЛИТУДНЫХ ФУНКЦИЙ В РЕФЛЕКТОМЕТРИИ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ НЕЙТРОНОВ

© 2022 г. Ю. А. Саламатов^{a, *}, Е. А. Кравцов^{a, b, **}, В. В. Садилов^c,
А. В. Нагорный^{c, d, e}, В. В. Проглядо^a, М. А. Миляев^a

^aИнститут физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, 620137 Россия

^bУральский федеральный университет им. Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, 620002 Россия

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

^dКиевский национальный университет им. Тараса Шевченко, Киев, 01601 Украина

^eГосударственное учреждение “Институт геохимии окружающей среды НАН Украины”,
Киев, 03142 Украина

*e-mail: salamatov@imp.uran.ru

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

Поступила в редакцию 27.02.2022 г.

После доработки 05.04.2022 г.

Принята к публикации 05.04.2022 г.

Приведено преобразование фазового уравнения в матричную форму, позволяющую рассчитывать одновременно все каналы рассеяния в рефлектометрии поляризованных нейтронов. Потенциалы взаимодействия представлены в явном виде. Проанализирован частный случай системы с коллинеарным упорядочением магнитных моментов. Показана возможность решения обратной задачи и экспериментального определения характеристик многослойных систем с различными магнитными состояниями путем одновременного анализа рефлектометрических кривых для различных типов поляризации нейтронов.

Ключевые слова: рефлектометрия поляризованных нейтронов, многослойные наногетероструктуры, потенциалы взаимодействия, нелинейное дифференциальное уравнение, нелинейное матричное уравнение, метод Рунге–Кутты, алгоритм Левенберга–Марквардта.

DOI: 10.31857/S1028096022120275

ВВЕДЕНИЕ

Рефлектометрия поляризованных нейтронов представляет собой удобный и точный метод определения атомной и магнитной структур тонких наноразмерных пленок и сверхрешеток. Она основана на наличии у нейтронов собственного магнитного момента, который при рассеянии взаимодействует с магнитными моментами атомов образца. Это приводит к дополнительному вкладу в потенциал взаимодействия, который существенно зависит от магнитного состояния системы. Для получения наиболее полной информации первичный пучок поляризуют – выстраивают магнитные моменты нейтронов вдоль некоторого выбранного направления. Анализ рассеяния нейтронов с различной поляризацией (в том числе с изменением поляризации в процессе рассеяния) позволяет определить тип магнитного упорядочения атомов или слоев и рассчитать величину и направление магнитных моментов. Особенно активно рефлектометрия поляризованных нейтронов применяется для изучения ме-

таллических многослойных наноструктур, обладающих необычными электрическими и магнитными свойствами и составляющих элементную базу квантовой наноспинтроники. Рефлектометрия является неразрушающим методом и никак не изменяет свойства образца. Все это обусловило довольно широкое применение данного подхода в исследованиях магнитных свойств многослойных пленок [1, 2]. Рефлектометрия поляризованных нейтронов также дает возможность анализа тонких эффектов, например, влияния магнитной текстуры многослойных металлических пленок на рассеяние нейтронов [3].

Для расчета интенсивности рассеяния нейтронов с различной поляризацией на заданной системе применяют обобщенный метод оптических матриц Абеле [4], когда коэффициенты отражения выводятся из произведения матриц размерности 8×8 , которые учитывают как ядерное, так и магнитное взаимодействие [5]. В настоящей работе представлен альтернативный подход к расчету интенсивности, основанный на применении

фазово-амплитудных функций и решении нелинейного матричного дифференциального уравнения, связывающего коэффициенты отражения нейтронов и потенциалы взаимодействия. К плюсам этого метода можно отнести меньшие вычислительные затраты (уравнение записывается для матриц 2×2) и, соответственно, более высокую скорость вычислений. Использование фазово-амплитудных функций также упрощает моделирование и анализ систем со сложным магнитным упорядочением, в частности, с геликоидальным упорядочением моментов.

Метод фазово-амплитудных функций как эффективный способ решения различных задач квантовой механики был введен в работах Калоджеро [6] и Бабикова [7]. В них он представлен в наиболее общем виде. Затем были рассмотрены более узкие задачи, например, применение метода для анализа нелокальных потенциалов взаимодействия [8]. Этот метод был адаптирован для рентгеновской и нейтронной рефлектометрии [9] и показал достаточно хорошие результаты как в моделировании интенсивности отражения от различных систем, так и в определении характеристик потенциала взаимодействия по известной картине зеркального отражения. В [9] также можно найти краткий обзор других работ по применению метода фазово-амплитудных функций. В настоящей работе показано, как с его помощью решать прямую и обратную задачи в рефлектометрии поляризованных нейтронов.

ТЕОРИЯ МЕТОДА

В отличие от рассеяния рентгеновских лучей и ядерного рассеяния нейтронов взаимодействие поляризованных нейтронов с магнитными моментами атомов является более сложной задачей многоканального рассеяния. Возникают два канала рассеяния – для нейтронов со спином “вверх” и для нейтронов со спином “вниз” (направления выбраны условно). Для упрощения дальнейших выкладок введем обозначения: канал нейтронов со спином “вверх” обозначим знаком “+” (плюс); канал нейтронов со спином “вниз” знаком “–” (минус). Кроме того, имеется перемешивание каналов – нейтроны могут изменить направление спина в момент рассеяния на образце.

В результате получим четыре различных в общем случае коэффициента отражения: два основных, без изменения состояния (“++” и “--”), и два с изменением состояния (“+-” и “-+”). Из-за наличия взаимодействия каналов невозможно получить независимые уравнения для каждого коэффициента отражения. Фазовое уравнение принимает матричный вид, хотя схема его вывода остается аналогичной описанной в [6, 7, 9]:

$$\frac{d}{dx} \mathbf{B} = (\mathbf{E}^+ + \mathbf{B}\mathbf{E}^-) \mathbf{V} (\mathbf{E}^+ + \mathbf{B}\mathbf{E}^-). \quad (1)$$

Здесь \mathbf{B} – матрица коэффициентов отражения:

$$\mathbf{B} \equiv \begin{pmatrix} B_{++}(x, k) & B_{+-}(x, k) \\ B_{-+}(x, k) & B_{--}(x, k) \end{pmatrix}, \quad (2)$$

каждый элемент матрицы является коэффициентом отражения в определенном канале рассеяния и представляет собой функцию глубины x и волнового числа $k = 2\pi/\lambda \sin \theta$, где λ – длина волны падающих нейтронов, θ – угол падения.

Уравнение (1) – не единственно возможная форма записи фазового уравнения. Например, в [10] предлагается выразить фазовое уравнение через логарифмическую производную показателя преломления и эйконал. Этот подход удобен для анализа задач оптики при нормальном падении луча на границу раздела сред. В нейтронной рефлектометрии при скользких углах падения более предпочтительна форма (1).

Матрица \mathbf{V} описывает потенциал взаимодействия в каждом канале:

$$\mathbf{V} \equiv \begin{pmatrix} V_{++}(x) & V_{+-}(x) \\ V_{-+}(x) & V_{--}(x) \end{pmatrix}. \quad (3)$$

Чаще всего потенциал взаимодействия является только функцией глубины. Но для некоторых веществ, ядра которых резонансно взаимодействуют с тепловыми нейтронами, может возникнуть зависимость потенциала от длины волны и, следовательно, от волнового числа. Примером такого вещества является гадолиний.

Матрицы \mathbf{E}^+ и \mathbf{E}^- связаны с падающей и отраженной волнами соответственно:

$$\mathbf{E}^+ \equiv \begin{pmatrix} \frac{\exp(ikx)}{\sqrt{-2ik}} & 0 \\ 0 & \frac{\exp(ikx)}{\sqrt{-2ik}} \end{pmatrix}, \quad (4)$$

$$\mathbf{E}^- \equiv \begin{pmatrix} \frac{\exp(-ikx)}{\sqrt{-2ik}} & 0 \\ 0 & \frac{\exp(-ikx)}{\sqrt{-2ik}} \end{pmatrix}.$$

Все произведения в уравнении (1) являются матричными и в общем случае некоммутативны. Введем обозначения:

$$\begin{aligned} \delta_n(x) &= \text{Re}[N(x) b_n(x)], \\ \beta_n(x) &= \text{Im}[N(x) b_n(x)], \end{aligned} \quad (5)$$

где $b_n(x)$ – длина ядерного рассеяния нейтронов на глубине x , $N(x)$ – число частиц в единице объема на глубине x . Величина $\delta_n(x)$ описывает пре-

ломление и отражение нейтронов в веществе, $\beta_n(x)$ – поглощение.

Для магнитного рассеяния

$$\delta_m(x) = \mu(x) N(x) b_m(x), \quad \beta_m(x) = 0, \quad (6)$$

где $b_m(x)$ – длина магнитного рассеяния нейтронов, $\mu(x)$ – магнитный момент частиц на глубине x в магнетонах Бора. Мнимая часть длины рассеяния отсутствует, поскольку взаимодействие с магнитной подсистемой не приводит к поглощению нейтронов.

Тогда элементы матрицы потенциала \mathbf{V} могут быть представлены следующим образом [11]:

$$\begin{aligned} V_{++}(x) &= 4\pi[\delta_n(x) + \delta_m(x) \cos \alpha + i\beta_n(x)], \\ V_{--}(x) &= 4\pi[\delta_n(x) - \delta_m(x) \cos \alpha + i\beta_n(x)], \\ V_{+-}(x) &= V_{-+}(x) = 4\pi\delta_m(x) \sin \alpha. \end{aligned} \quad (7)$$

Здесь введена величина α – угол между направлением магнитного момента падающих нейтронов и направлением магнитного момента частиц образца. Если в образце не ферромагнитное упорядочение, то α различен в разных слоях. В геликоидальных системах с плавным поворотом магнитного момента угол является функцией глубины $\alpha(x)$. В случае несимметричного взаимодействия каналов рассеяния $V_{+-}(x) \neq V_{-+}(x)$, но в рефлектометрии поляризованных нейтронов такие задачи не рассматриваются.

Матричное уравнение (1) может быть представлено и в виде системы из четырех связанных дифференциальных уравнений для каждого коэффициента отражения. Такая система весьма громоздка для записи и неудобна для численного решения, хотя может быть полезна для теоретического анализа частных случаев при определенных значениях и соотношениях между элементами потенциала. Например, используя систему, легко показать, что, если $V_{+-}(x) = V_{-+}(x)$, то и $B_{+-}(x) = B_{-+}(x)$. Но для расчетных задач предпочтительнее более компактная матричная форма.

Рассмотрим важный частный случай магнитной коллинеарной системы. Возможны два значения угла: $\alpha = 0^\circ$ (ферромагнитное упорядочение) или $\alpha = 180^\circ$ (антиферромагнитное упорядочение). Тогда из (7) следует, что $V_{+-}(x) = V_{-+}(x) = 0$. Уравнение для коэффициента отражения $B_{+-}(x)$ имеет вид (аргументы опущены для краткости):

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} B_{+-} &= -\frac{1}{2ik} \{[(\exp(ikx) + B_{++}\exp(-ikx)) \times \\ &\times (\exp(ikx) + B_{--}\exp(-ikx)) + \\ &+ B_{+-}\exp(-2ikx)]V_{+-} + \\ &+ B_{+-}[(1 + B_{++}\exp(-2ikx))V_{++} + \\ &+ (1 + B_{--}\exp(-2ikx))V_{--}]\}. \end{aligned} \quad (8)$$

Первое слагаемое, очевидно, обращается в ноль. Чтобы определить поведение второго слагаемого, необходимо рассмотреть граничное условие для B_{+-} . В [9, 12] было показано, что граничным условием является амплитуда волны, отраженной от полубесконечной подложки, рассчитанная по формуле Френеля:

$$B_{+-}(0, k) = \frac{k - n}{k + n}. \quad (9)$$

Здесь $n = \sqrt{k^2 - 4\pi(\delta_{+-} + i\beta_{+-})} = \sqrt{k^2 - V_{+-}} = \sqrt{k^2} = k$, т.к. $V_{+-} = 0$. Тогда граничное условие $B_{+-}(0, k) = 0$. Можно показать как аналитически, так и численно, что решением уравнения (8) при таких условиях будет $B_{+-}(x, k) = \text{const} = 0$. Это означает, что перемешивания каналов рассеяния в магнитно-коллинеарных системах нет. Система уравнений в этом случае превращается в два независимых уравнения для каждого канала, полностью идентичных фазовому уравнению из [7]:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dx} B_{++} &= -\frac{1}{2ik} V_{++} (\exp(ikx) + B_{++}\exp(-ikx)), \\ \frac{d}{dx} B_{--} &= -\frac{1}{2ik} V_{--} (\exp(ikx) + B_{--}\exp(-ikx)). \end{aligned} \quad (10)$$

Матричное уравнение (1) может быть решено методом Рунге–Кутты, характеристики потенциала определяются при помощи алгоритма Левенберга–Марквардта [13], возможно применение и других алгоритмов спуска.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ АПРОБАЦИЯ

С целью апробации метода были проведены эксперименты по рефлектометрии поляризованных нейтронов на следующих образцах: $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(300 \text{ \AA})$ – немагнитная система, проверка возможности обработки простых данных; $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(500 \text{ \AA})/\text{Nb}(50 \text{ \AA})$ – система с одним магнитным слоем, проверка возможности обработки данных без переворота спина; $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(100 \text{ \AA})/\text{Fe}(250 \text{ \AA})/\text{Nb}(20 \text{ \AA})/\text{Fe}(250 \text{ \AA})/\text{Nb}(50 \text{ \AA})$ – система с двумя магнитными слоями, проверка возможности обработки данных при наличии рассеяния с переворотом спина.

Поверхность подложки совпадает с кристаллографической плоскостью $(1 \bar{1} 02)$. Все образцы были приготовлены на установке магнетронного распыления ULVAC (Институт физики металлов УрО РАН, г. Екатеринбург) [14]. Базовое давление в камере роста составляло 6×10^{-7} Па, давление аргона 0.1 Па, температура комнатная, внешнее магнитное поле отсутствовало.

Нейтронные измерения проводились на времяпролетном рефлектометре поляризованных нейтронов РЕФЛЕКС [15], установленном на им-

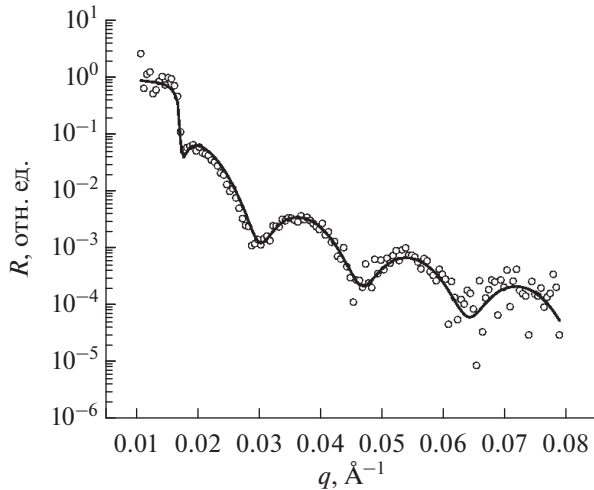


Рис. 1. Экспериментальная (точки) и рассчитанная (сплошная линия) по результатам обработки рефлектометрические кривые для образца 1.

пульсном ядерном реакторе ИБР-2 (Объединенный институт ядерных исследований, г. Дубна Московской обл.). На рис. 1 точками представлены экспериментальные рефлектометрические данные для образца 1 – тонкой пленки Nb. В результате обработки эксперимента с использованием метода фазово-амплитудных функций было установлено, что толщина пленки составляет 325 Å. Средние величины шероховатости на границе раздела с подложкой и на поверхности пленки не превышают 4 Å. На поверхности образовался окисленный слой Nb_2O_5 толщиной 25 Å. Рефлектометрическая кривая, рассчитанная по определенным параметрам, также представлена на рис. 1. Несоответствие с экспериментальными данными составляет 5.4%.

На рис. 2 приведены экспериментальные данные для образца $Al_2O_3/Nb(100 \text{ Å})/Fe(500 \text{ Å})/Nb(50 \text{ Å})$. Данный образец снимали в магнитном поле напряженностью 3 кЭ, он находился в состоянии насыщения. Регистрировали нейтроны с поляризацией “+” и “-”. Состояния с изменением спина отсутствуют, поскольку направление намагниченности параллельно спину нейтронов.

По результатам обработки определена следующая структура образца 2: $Al_2O_3/Nb(114 \text{ Å})/Fe(508 \text{ Å})/Nb(26)/Nb_2O_5(29 \text{ Å})$. Характерная шероховатость поверхности не превышает 8 Å. Образец действительно находится в ферромагнитном состоянии, угол направления намагниченности слоя Fe и спином нейтронов в состоянии “+” равен 0° . Несоответствие между расчетной и экспериментальной кривыми составляет 13% для поляризации “+” и 6% для поляризации “-”. Параметры структуры определяли так, чтобы одновременно обеспечить наиболее оптимальное согласие двух спектров.

Образец 3 перед началом измерений был намагничен до насыщения, рефлектометрические кривые были получены в поле 100 Э. На рис. 3 приведены экспериментальные данные в сравнении с расчетными. Расхождения кривых составляют 13% для поляризации “++”, 10% для “--” и 12% для “+-”.

В данном образце наблюдалось слабое рассеяние нейтронов с переворотом спина (рис. 3в) с поляризацией “+-” и “-+”. Как и следует из теории, эти два типа поляризации совпадают друг с другом в пределах экспериментальной погрешности. Для анализа была взята поляризация “+-”, поскольку в этом случае меньше статистического шума. Наличие рассеяния с переворотом спина свидетельствует о формировании в образце

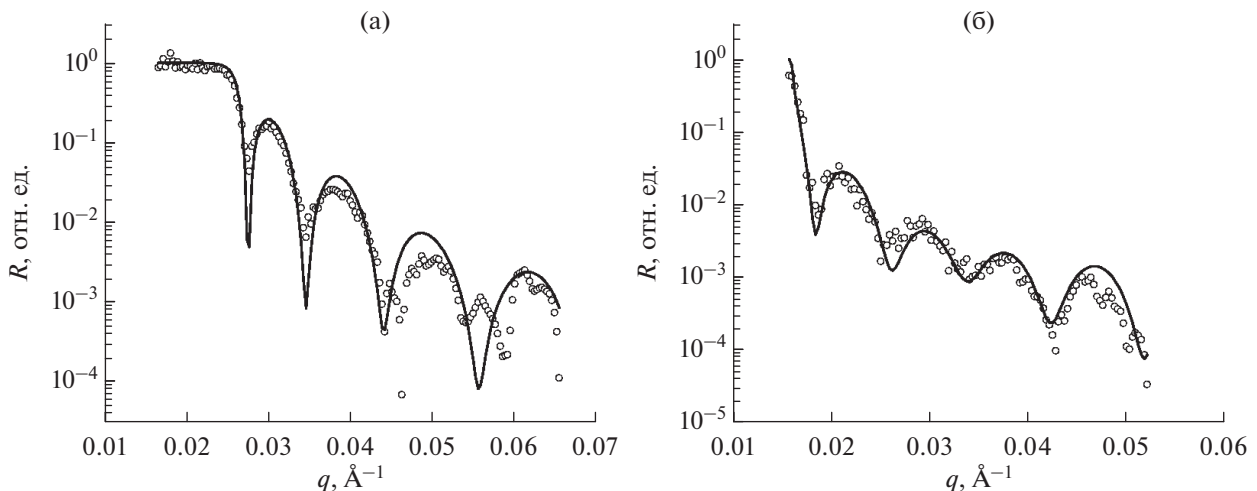


Рис. 2. Экспериментальные (точки) и расчетные (сплошные линии) рефлектометрические кривые для образца 2 и поляризации “+” (а) и “-” (б).

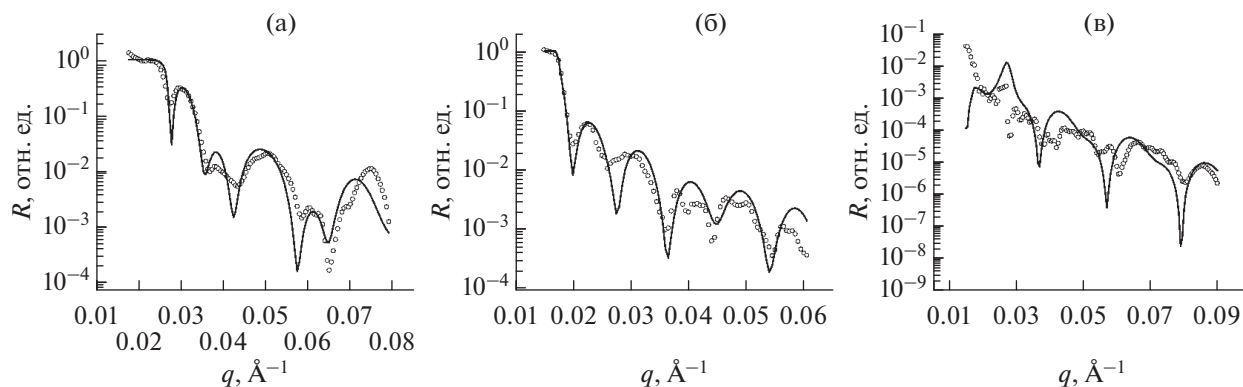


Рис. 3. Экспериментальные (точки) и расчетные (сплошные линии) рефлектометрические кривые для образца 3 и поляризации “+” (а), “-” (б) и “+-” (в).

слабо неколлинеарного упорядочения магнитных моментов слоев Fe.

В результате анализа было установлено, что образец имеет следующую структуру: $\text{Al}_2\text{O}_3//\text{Nb}(88 \text{ \AA})/\text{Fe}(248 \text{ \AA})/\text{Nb}(21 \text{ \AA})/\text{Fe}(256 \text{ \AA})/\text{Nb}(29 \text{ \AA})/\text{Nb}_2\text{O}_5(31 \text{ \AA})$. Эти значения хорошо согласуются с номинальными параметрами, заданными при напылении, что свидетельствует о высоком качестве образца. Шероховатость поверхности не превышает 5 \AA . Самой размытой оказалась граница между прослойкой Nb и ближайшим к поверхности слоем Fe. Это можно объяснить диффузией Fe в слой Nb еще во время напыления. При этом нет следов интенсивной диффузии из ближайшего к подложке слоя Fe в буферный слой Nb. Связано это с тем, что в тонких слоях обычно не успевают сформироваться кристаллическая решетка, структура слоя близка к аморфной, имеется множество точечных и линейных дефектов. В результате такой слой оказывается более рыхлым. Кроме того, возможен островковый рост тонкого слоя Nb, тогда атомы Fe заполняют пространства между островками, формируя размытую ($\sim 10 \text{ \AA}$) межслойную границу.

Магнитные моменты слоев Fe отклонены от направления внешнего поля на небольшие углы (9° и 4°) в разные стороны в плоскости слоев, суммарный момент образца отклонен от направления поля на 6.5° . Неодинаковость углов может быть обусловлена наличием собственной магнитной анизотропии в исследуемой пленке.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе предложен и экспериментально проверен метод фазово-амплитудных функций для анализа данных рефлектометрии поляризованных нейтронов. Матричное дифференциальное уравнение для многоканального рассеяния было приведено к виду, удобному для практического использования в расчетных зада-

чах нейтронной рефлектометрии. Для решения уравнения предлагается использовать метод Рунге–Кутты, для определения характеристик потенциала взаимодействия – алгоритм Левенберга–Марквардта. Были получены экспериментальные рефлектометрические спектры для образцов с различным магнитным состоянием. Во всех случаях обработка кривых с использованием предлагаемого метода позволила определить как структурные, так и магнитные характеристики образцов. Таким образом, можно сделать вывод, что метод фазово-амплитудных функций может использоваться для моделирования и анализа экспериментальных данных в рефлектометрии поляризованных нейтронов.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (соглашение № 075-10-2021-115 от 13 октября 2021 г. (внутренний номер 15.СИН.21.0021)).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Никитенко Ю.В., Сыромятников В.Г. Рефлектометрия поляризованных нейтронов. М.: Физматлит, 2014. 220 с.
2. Majkrzak C.F. // *Physica B*. 1991. V. 173. № 1–2. P. 75. [https://doi.org/10.1016/0921-4526\(91\)90037-F](https://doi.org/10.1016/0921-4526(91)90037-F)
3. Ковалев А.В. // *ФТТ*. 2011. Т. 53. Вып. 4. С. 669. <https://doi.org/10.3367/UFNr.0163.199307f.0085>
4. Abeles F. // *Ann. Physique*. 1950. V. 12. № 5. P. 596. <https://doi.org/10.1051/anphys/195012050596>
5. X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications. Lecture Notes in Physics 770 / Ed. Daillant J., Gibaud A Heidelberg: Springer, 2009. 360 p. <https://doi.org/10.1007/978-3-540-88588-7>
6. Calogero F. Variable Phase Approach to Potential Scattering. N.Y.: Academic Press Inc., 1967. 243 p.
7. Бабиков В.В. Метод фазовых функций в квантовой механике. М.: Наука, 1976. 288 с.

8. *Talukdar B., Chattarji D., Banerjee P.* // *J. Phys. G.* 1977. V. 3. № 6. P. 813.
<https://doi.org/10.1088/0305-4616/3/6/012>
9. *Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2021. № 5. С. 3.
<https://doi.org/10.31857/S1028096021050174>
10. *Крайнов В.П., Пресняков Л.П.* // УФН. 1993. Т. 163. № 7. С. 85.
<https://doi.org/10.3367/UFNr.0163.199307f.0085>
11. *Lekner J.* Theory of Reflection of Electromagnetic and Particle Waves. Dordrecht: Springer Science–Business Media, 1987. 281 p.
12. *Costa E.D'M., Cordeiro L., Lemes N.H.T., Braga J.P.* // *Química Nova.* 2016. V. 39. № 7. P. 882.
<https://doi.org/10.5935/0100-4042.20160061>
13. *Поляк Б.Т.* // Тр. Ин-та системного анализа РАН. 2006. Т. 28. С. 48.
14. Лаборатория квантовой наноспинтроники (оборудование). http://www.imp.uran.ru/?q=ru/laboratory_equipment&lab=10
15. Лаборатория нейтронной физики им. И.М. Франка. Установка РЕФЛЕКС. <http://flnph.jinr.ru/ru/facilities/ibr-2/instruments/reflex>

Phase-Amplitude Function Method in Polarized Neutron Reflectometry

**Yu. A. Salamatov^{1, *}, E. A. Kravtsov^{1, 2, **}, V. V. Sadilov³,
A. V. Nagorny^{3, 4, 5}, V. V. Proglyado¹, M. A. Milyaev¹**

¹*M.N. Miheev Institute of Metal Physics of Ural Branch RAS, Ekaterinburg, 620137 Russia*

²*Ural Federal University named after B.N. Yeltsin, Ekaterinburg, 620002 Russia*

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

⁴*Taras Shevchenko National University of Kyiv, Kyiv, 01601 Ukraine*

⁵*Institute of Environmental Geochemistry, National Academy of Sciences of Ukraine, Kyiv, 03142 Ukraine*

*e-mail: salamatov@imp.uran.ru

**e-mail: kravtsov@imp.uran.ru

The transformation of the phase equation into a matrix form is given, which makes it possible to simultaneously calculate all scattering channels in the reflectometry of polarized neutrons. Interaction potentials are presented explicitly. A special case of a system with collinear ordering of magnetic moments is analyzed. The possibility of solving the inverse problem and experimental determination of the characteristics of multilayer systems with different magnetic states by simultaneous analysis of reflectometry curves for different types of neutron polarization is shown.

Keywords: polarized neutron reflectometry, multilayer nanoheterostructures, interaction potentials, non-linear differential equation, non-linear matrix equation, Runge–Kutta method, Levenberg–Marquardt algorithm.