

УДК 538.955

## ПЕРСПЕКТИВА ИСПОЛЬЗОВАНИЯ МЕТОДА РЕФЛЕКТОМЕТРИИ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ НЕЙТРОНОВ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ГЕЛИМАГНЕТИЗМА В РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ТОНКИХ ПЛЕНКАХ И НАНОСТРУКТУРАХ НА КОМПАКТНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ DARIA

© 2023 г. Д. И. Девятериков<sup>a, \*</sup>, Е. А. Кравцов<sup>a, b, \*\*</sup>, В. В. Проглядо<sup>a</sup>, В. Д. Жакетов<sup>c</sup>, Ю. В. Никитенко<sup>c</sup>, Yu. N. Khaydukov<sup>d</sup>

<sup>a</sup>Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, 620108 Россия

<sup>b</sup>Уральский федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

<sup>c</sup>Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980 Россия

<sup>d</sup>Институт исследований твердого тела им. Макса Планка, Штутгарт, 70569 Германия

\*e-mail: devidor@yandex.ru

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

Поступила в редакцию 14.12.2022 г.

После доработки 17.02.2023 г.

Принята к публикации 17.02.2023 г.

Представлены результаты исследования тонких пленок и сверхрешеток из редкоземельных гелимагнетиков Dy и Ho методом нейтронной рефлектометрии. Показано, что нейтронная рефлектометрия позволяет исследовать магнитные фазовые переходы в этих наноструктурах и получать информацию об их периоде. Предложено создание нейтронного рефлектометра с возможностью проведения поляризационного анализа на базе компактного источника нейтронов DARIA, оптимизированного для изучения длиннопериодических магнитных упорядочений в редкоземельных магнетиках, и указаны возможные направления этой оптимизации.

**Ключевые слова:** редкоземельные металлы, диспрозий, гольмий, нейтронная рефлектометрия, магнитное упорядочение, компактный источник нейтронов, DARIA.

**DOI:** 10.31857/S102809602307004X, **EDN:** TDRAAF

### ВВЕДЕНИЕ

В последние годы наблюдается растущий интерес научного сообщества к использованию компактных источников нейтронов для нейтронографических исследований [1], обусловленный как потенциально большей доступностью измерительного времени на таких установках, так и возможностью оптимизации параметров источников для ограниченного набора исследовательских методик. Одним из перспективных в России является проект компактного источника нейтронов DARIA, занимающего в классификации промежуточное положение между источниками нейтронов средней мощности [2] и источниками университетского типа [3–5], предназначенными для подготовки квалифицированных кадров в области использования методик нейтронного рассеяния. Пучок нейтронов формируется в такой установке при помощи линейного ускорителя протонов, предназначенного для работы в импульсном либо непрерывном режиме, бериллиевой мишени, захватывающей протоны и испускающей нейтроны, а также

замедлителя, задающего энергетический спектр испускаемых нейтронов, и системы прерывателей, формирующих импульсы нейтронов заданной длительности [6]. Предполагается, что один источник DARIA позволит эксплуатировать до шести различных научных приборов.

Одним из инструментов, который можно было бы реализовать на компактном источнике нейтронов DARIA, является времяпролетный нейтронный рефлектометр. Нейтронная рефлектометрия – перспективный метод исследования как атомного строения [7], так и магнитных свойств [8] планарных наноструктур, и соответствующие установки функционируют на большинстве крупных источников нейтронов, включая ILL (Франция) и ИБР-2 (ОИЯИ, Россия). Среди объектов исследования рефлектометрии поляризованных нейтронов можно отдельно выделить несоизмерные периодические магнитные структуры в редкоземельных гелимагнетиках Dy и Ho, интерес к которым обусловлен перспективами использования этих материалов в устройствах спинтроники [9].

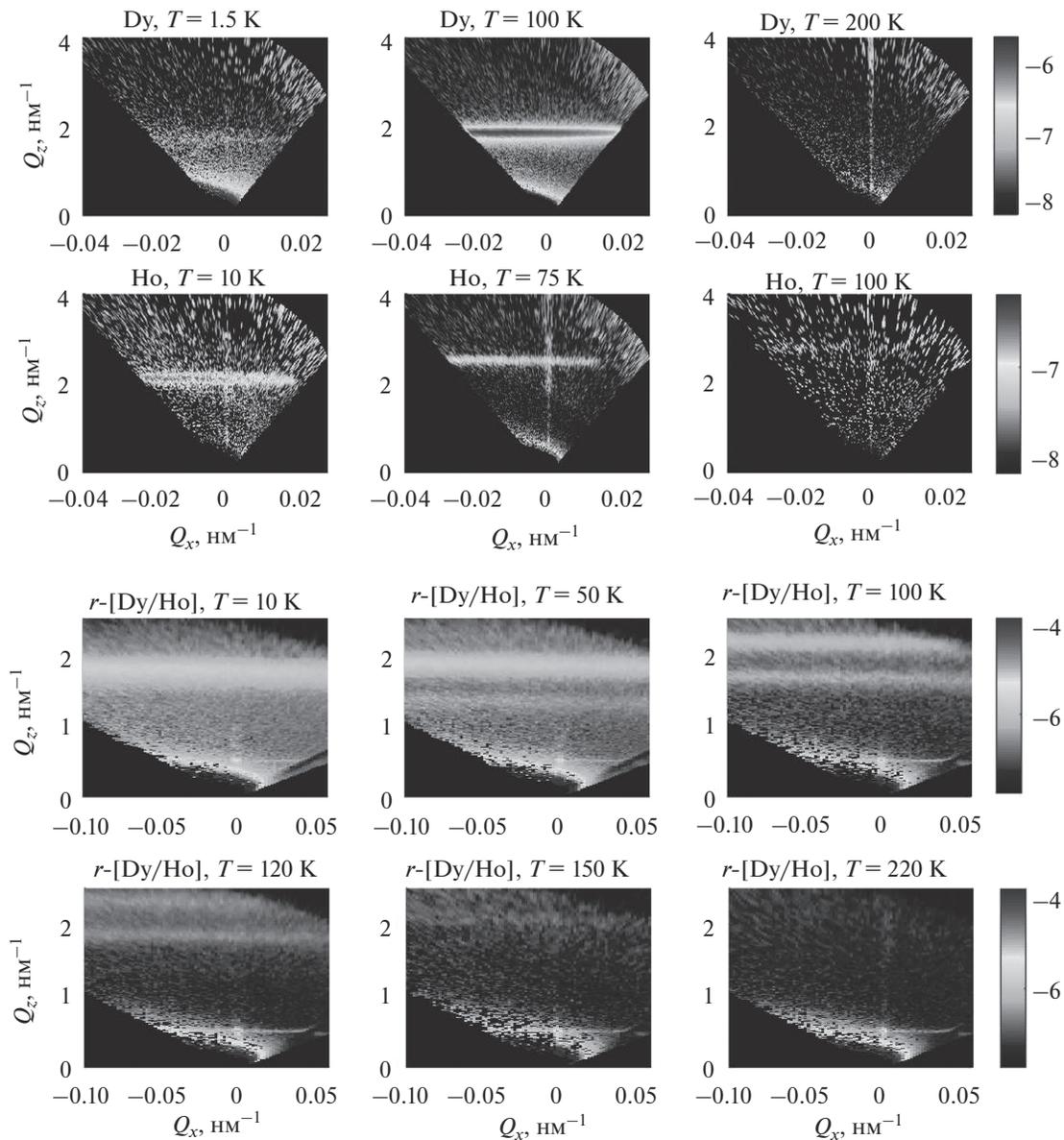
Оптимизация источника DARIA и установленного на нем нейтронного рефлектометра под нужды изучения объектов такого типа может обеспечить интенсивность пучка нейтронов в позиции образца и разрешающую способность, сопоставимые с параметрами, характерными для рефлектометров на источниках нейтронов мирового уровня.

тур в редкоземельных гелимагнетиках, имеет смысл ознакомиться с результатами более ранних измерений тонких пленок Dy (200 нм) и Ho (200 нм) и сверхрешеток [Dy (60 нм)/Ho (60 нм)] × 34, выполненных на времяпролетном рефлектометре РЕМУР (ОИЯИ, Дубна) и рефлектометре SuperADAM (ILL, Франция) в режиме фиксированной длины волны.

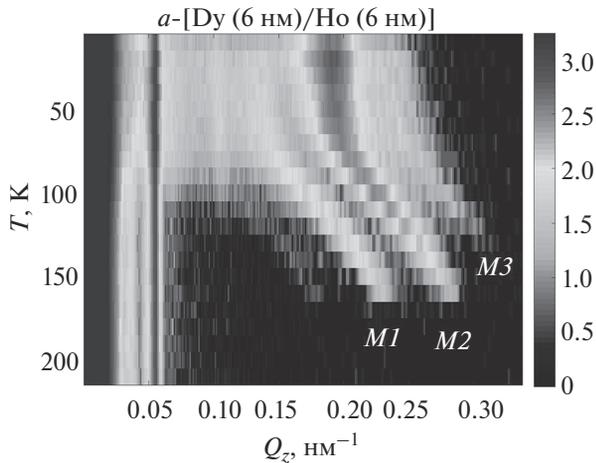
### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для определения желаемых параметров нейтронного рефлектометра на компактном источнике нейтронов DARIA, оптимизированном для изучения длиннопериодических магнитных струк-

Исследование кристаллической структуры данных образцов подтвердило аксиальную текстуру [0001] вдоль нормали к поверхности образца, так как ось магнитного геликоида совпадает с направлением [0001] в элементарных ячейках Dy и Ho. Наличие такой текстуры сделало возможным непосредственное наблюдение магнитных сател-

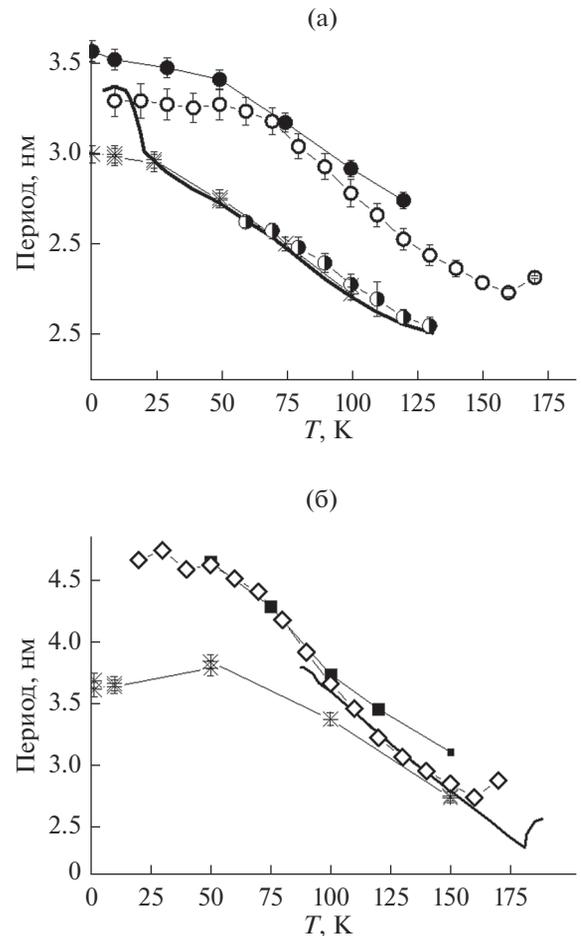


**Рис. 1.** Двумерные карты рассеяния нейтронной рефлектометрии для пленок Dy и Ho, а также сверхрешетки Dy/Ho в координатах компонент вектора рассеяния  $Q_x$ - $Q_z$ .



**Рис. 2.** Кривые зеркального отражения нейтронов для сверхрешетки [Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] в координатах  $Q_z - T$ . Отметки M1–M3 отмечают положение магнитных спутников.

литов  $0000^+$  от магнитных геликоидов на картах рассеяния нейтронной рефлектометрии данных образцов при температурах ниже  $T_N$  для слоев Dy и (или) Ho в них. Предварительные измерения температурных зависимостей намагниченности позволили установить, что температуры Нееля слоев Dy во всех образцах приблизительно равны величине  $T_N$  в объемных монокристаллах Dy ( $T_N = 181.5$  К), в то время как у тонкой пленки Ho (200 нм)  $T_N = 124$  К. Измерения проводили в ходе охлаждения от температуры выше  $T_N$ (Dy) до  $T = 1.5$  К (РЕМУР), либо до  $T = 10$  К (SuperADAM) во внешнем магнитном поле 1 кЭ, приложенном в плоскости образца. Избранные двумерные карты рассеяния в координатах компонент вектора рассеяния  $Q_x - Q_z$  приведены на рис. 1. Фазовая диаграмма  $T - Q_z$ , полученная для сверхрешетки [Dy (60 нм)/Ho (60 нм)]  $\times 34$ , приведена на рис. 2. Магнитные спутники (рис. 1, 2), появление которых связано с возникновением в образце геликоидального магнитного упорядочения, а положение соответствует периоду магнитной структуры, наблюдались во всех исследованных образцах при понижении температуры до  $T < T_N$ . В сверхрешетках [Dy (60 нм)/Ho (60 нм)]  $\times 34$  в определенном диапазоне температур отмечается сосуществование двух и более магнитных спутников, что свидетельствует о формировании в образце когерентно распространяющихся между слоями нескольких магнитных геликоидов с различными периодами. Такая структура аналогична ранее наблюдавшейся в [10]. Уменьшение интенсивности магнитного спутника с понижением температуры, наблюдаемое на кривых зеркального отражения нейтронной рефлектометрии пленки Dy



**Рис. 3.** Температурные зависимости периода геликоида: а – в пленке Ho (\*), в слоях Ho в сверхрешетках  $r$ -[Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] (●) и  $a$ -[Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] (спутник M2) (○) и (спутник M3) (◻) в сравнении с периодом геликоида в объемном Ho (сплошная линия); б – в пленке Dy (\*) и слоях Dy в сверхрешетках  $r$ -[Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] (■) и  $a$ -[Dy (6 нм)/Ho (6 нм)] (◊) в сравнении с периодом геликоида в объемном Dy (сплошная линия).

(200 нм) и [Dy (60 нм)/Ho (60 нм)]  $\times 34$ , может быть объяснено постепенным переходом диспрозия из геликоидального состояния в ферромагнитное, характерное для объемных монокристаллов Dy при таких температурах [11, 12].

Представленные на рис. 3 температурные зависимости периода геликоидов, распространяющихся в слоях Dy и Ho, соответственно, полученные для всех исследованных образцов, существенно отличаются как друг от друга, так и от зависимостей, характерных для монокристаллов Dy и Ho. Это свидетельствует о сильном влиянии размерных эффектов, эпитаксиальных напряжений и межслойного обменного взаимодействия на особенности магнитного упорядочения в планарных наноструктурах на основе редкоземель-

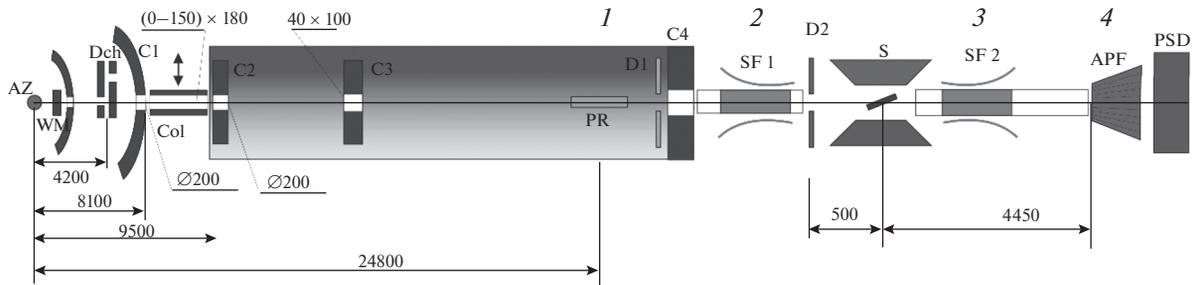


Рис. 4. Схема рефлектометра РЕМУР с отмеченным на ней поляризатором 1, флипперами 2, 3 и верным анализатором 4.

ных гелимагнетиков и требует выделения значительного количества измерительного времени для решения научных и в перспективе производственных задач, связанных с этими материалами.

### ОБСУЖДЕНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ РЕАЛИЗАЦИИ РЕФЛЕКТОМЕТРА НА КОМПАКТНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ DARIA

Использование рефлектометра в целях преимущественного изучения длиннопериодических магнитных структур в редкоземельных магнетиках позволяет оптимизировать его различные параметры. Так, можно считать периоды исследуемых магнитных структур заключенными в диапазоне от 2 до 10 нм, что дает граничные значения  $z$ -компоненты вектора рассеяния для данного инструмента 3.15 и 0.63  $\text{nm}^{-1}$ . Полагая угол падения пучка нейтронов на образец приблизительно равным 25 мрад, получим рабочий диапазон длин волн рефлектометра от 0.1 до 0.5 нм. Таким образом, в сравнении с времяпролетным рефлектометром РЕМУР данный инструмент будет работать в существенно меньшем интервале длин волн. Как показывают результаты моделирования [13], достаточной разрешающей способностью рефлектометра по переданному импульсу в случае сравнительно тонких пленок может быть даже  $\Delta q/q = 10\%$  [14], что позволяет оценить при

помощи соотношения  $\left(\frac{\delta q}{q}\right)^2 = \left(\frac{\delta \theta}{\theta}\right)^2 + \left(\frac{\delta \lambda}{\lambda}\right)^2$  и длине пролетной базы 15 м оптимальную длительность импульса 265 мкс и максимально возможную частоту этих импульсов 40 Гц, что в восемь раз превосходит частоту импульсов в реакторе ИБР-2.

Возможности исследования профилей намагниченности в пленках и сверхрешетках могут быть существенно расширены за счет использования поляризационного анализа в измерениях. Возможна регистрация четырех различных коэффициентов отражения:  $R^{++}$ ,  $R^{-}$ ,  $R^{+-}$ ,  $R^{-+}$ . Первые два соответствуют процессам рассеяния ней-

тронов с противоположно направленным спином без переворота спина, а вторые — с переворотом. На рис. 4 представлена схема рефлектометра РЕМУР [15] с отмеченным на ней поляризатором падающего пучка 1, адиабатическими радиочастотными спин-флипперами на падающем и отраженном пучках 2, 3 и верным анализатором поляризации 4 непосредственно перед позиционно-чувствительным детектором. Аналогичная схема может быть реализована и на рефлектометре, предназначенном для компактного источника нейтронов DARIA. Решить проблему удаления длинноволновых нейтронов из пучка можно при помощи кремниевого зеркала-фильтра.

Необходимость исследования длиннопериодических магнитных структур в редкоземельных магнетиках налагает особые требования и к окружению образца. В частности, необходим криостат с возможностью охлаждения образца до температур от 10 К и ниже, что позволит охватить весь температурный диапазон, в котором происходят магнитные фазовые переходы в редкоземельных гелимагнетиках и наноструктурах на их основе. Использование отдельного от криостата поворотного магнита, дающего возможность приложения внешнего поля напряженностью до 15 кЭ как в плоскости образца, так и перпендикулярно его поверхности, позволит изучать процесс разрушения геликоидального магнитного упорядочения внешним магнитным полем в образцах и составлять фазовые диаграммы в координатах  $H-T$ .

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования показали, что планарные наноструктуры на основе редкоземельных гелимагнетиков Dy и Ho обладают периодическим магнитным упорядочением, изучение особенностей которого возможно с применением метода нейтронной рефлектометрии. Однако в силу многообразия свойств и дефицита измерительного времени на источниках нейтронов мирового уровня детальное изучение данным методом таких наноструктур не всегда возможно. Компактные источники нейтронов средней мощности DARIA, снабженные времяпролетным нейтронным ре-

флектотометром, могут стать решением этой проблемы при условии оптимизации параметров инструмента для изучения магнитных свойств и особенностей длиннопериодического магнитного упорядочения в редкоземельных магнетиках. Такая оптимизация может включать ограничение рабочего диапазона длин волн, а также выбор более высокой в сравнении с рефлектометрами на импульсном реакторе ИБР-2 частоты импульсов нейтронов.

#### БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Спин” 22021000036-3). Нейтронографические исследования проведены при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-15-2022-830 от 27 мая 2022 г. (продолжение Соглашения № 075-15-2021-1358 от 12 октября 2021 г.).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Andreani C., Loong C.K., Prete G.* // *Eur. Phys. J. Plus.* 2016. V. 131. P. 217.  
<https://doi.org/10.1140/epjp/i2016-16217-1>
2. *Rucker U., Cronert T., Voigt J. et al.* // *Eur. Phys. J. Plus.* 2016. V. 131. № 1. P. 19.  
<https://doi.org/10.1140/epjp/i2016-16019-5>
3. *Lavelle C.M., Baxter D.V., Bogdanov A. et al.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2008. V. 587. P. 324.  
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2007.12.044>
4. *Wei J., Bai Y.J., Cai J.C. et al.* // *Proc. IPAC2010.* 2010. V. 10. P. 633.
5. *Kubo T., Ishihara M., Inabe N. et al.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B.* 1992. V. 70. № 1–4. P. 309.  
[https://doi.org/10.1016/0168-583x\(92\)95947-p](https://doi.org/10.1016/0168-583x(92)95947-p)
6. *Pavlov K.A., Konik P.I., Kovalenko N.A. et al.* // *Crystrallogr. Rep.* 2022. V. 67. № 1. P. 3.  
<https://doi.org/10.31857/S002347612201009X>
7. *Wong J.Y., Majewski J., Seitz M., Park C.K., Israelachvili J.N., Smith G.S.* // *Biophys. J.* 1999. V. 77. № 3. P. 1445.  
[https://doi.org/10.1016/S0006-3495\(99\)76992-4](https://doi.org/10.1016/S0006-3495(99)76992-4)
8. *Toperverg B.P.* // *Phys. Metals Metallogr.* 2015. V. 116. P. 1337.  
<https://doi.org/10.1134/S0031918X15130025>
9. *Yang S.H., Naaman R., Paltiel Y., Parkin S.S.P.* // *Nat. Rev. Phys.* 2021. V. 3. P. 328.  
<https://doi.org/10.1038/s42254-021-00302-9>
10. *Simpson J.A., Cowley R.A., McMorro D.F. et al.* // *J. Phys.: Condens. Matter.* 1996. V. 8. № 11. P. L187.  
<https://doi.org/10.1088/0953-8984/8/11/005>
11. *Chernyshov A.S., Tsokol A.O., Tishin A.M. et al.* // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. № 18. P. 184410.  
<https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.184410>
12. *V.V. Vorob'ev, M.Ya. Krupotkin, V.A. Finkel* // *Sov. Phys. JETP.* 1985. V. 61. P. 1056.
13. *Pleshonov N.K.* // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A.* 2017. V. 866. P. 213.  
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2017.06.011>
14. *Боднарчук В.И., Булкин А.П., Кравицов Е.А. и др.* // *Кристаллография.* 2022. Т. 67. № 1. С. 57.  
<https://doi.org/10.31857/S0023476122010040>
15. *Aksenov V.L., Jernenkov K.N., Kozhevnikov S.V. et al.* // *The Polarized Neutron Spectrometer REMUR at the Pulsed Reactor IBR-2.* JINR Communications D13-2004-47, 2004.

## The Prospects of Use of Polarized Neutron Reflectometry to Study Helimagnetism in Rare-Earth Thin Films and Nanostructures on a Compact Neutron Source DARIA

D. I. Devyaterikov<sup>1, \*</sup>, E. A. Kravtsov<sup>1, 2, \*\*</sup>, V. V. Proglyado<sup>1</sup>, V. D. Zhaketov<sup>3</sup>,  
Yu. V. Nikitenko<sup>3</sup>, Yu. N. Khaydukov<sup>4</sup>

<sup>1</sup>*Institute of Metal Physics UB RAS, Ekaterinburg, 620108 Russia*

<sup>2</sup>*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia*

<sup>3</sup>*Frank Laboratory of Neutron Physics, Joint Institute for Nuclear Research, Dubna, 141980 Russia*

<sup>4</sup>*Max Planck Institute for Solid State Research, Stuttgart, 70569 Germany*

\*e-mail: [devidor@yandex.ru](mailto:devidor@yandex.ru)

\*\*e-mail: [kravtsov@imp.uran.ru](mailto:kravtsov@imp.uran.ru)

The results of studying thin films and superlattices of rare-earth helimagnets Dy and Ho by neutron reflectometry are presented. It is shown that neutron reflectometry allows studying magnetic phase transitions in these nanostructures and obtain information about periodicity of magnetic helices in them. It is proposed to create a neutron reflectometer capable of conducting polarization analysis on a compact DARIA neutron source, optimized for studying long-period magnetic orderings in rare-earth helimagnets, and possible directions of this optimization are indicated.

**Keywords:** rare-earth metals, dysprosium, holmium, neutron reflectometry, magnetic ordering, compact neutron source, DARIA.