

УДК 3937

НЕЙТРОННАЯ РЕФЛЕКТОМЕТРИЯ В СВЕРХРЕШЕТКАХ С СИЛЬНО ПОГЛОЩАЮЩИМИ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫМИ МЕТАЛЛАМИ (Gd, Dy)

© 2023 г. Н. О. Антропов^{а, *}, Е. А. Кравцов^{а, б, **}

^аИнститут физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, Екатеринбург, 620990 Россия

^бУральский федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

*e-mail: nikolayanropovekb@gmail.com

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

Поступила в редакцию 17.11.2022 г.

После доработки 18.02.2023 г.

Принята к публикации 18.02.2023 г.

Методом рефлектометрии поляризованных нейтронов проведено исследование сверхрешеток Dy/Gd с различным соотношением толщин слоев Dy и Gd: 1 : 1, 2 : 1, 3 : 1. Экспериментально показано, что формирование геликоидального магнитного упорядочения в слоях Dy с периодом, не соизмеримым с периодом сверхрешетки, проявляется в возникновении магнитного сверхрешеточного рефлекса, который запрещен из-за равенства толщин чередующихся слоев Dy и Gd с соотношением 1 : 1. В остальном формирование геликоидального магнитного упорядочения мало сказывается на форме нейтронных рефлектометрических кривых. Таким образом, оптимизация структуры редкоземельных сверхрешеток для нейтронного рефлектометрического эксперимента позволяет детектировать в сверхрешетках геликоидальное магнитное упорядочение с периодом, не соизмеримым со структурным сверхрешеточным упорядочением.

Ключевые слова: многослойные магнитные наноструктуры, геликоидальное магнитное упорядочение, рефлектометрия поляризованных нейтронов, редкоземельные металлы.

DOI: 10.31857/S1028096023070038, **EDN:** TBULYL

ВВЕДЕНИЕ

Магнитные редкоземельные сверхрешетки – искусственные магнетики, образованные чередующимися слоями магнитных редкоземельных металлов, для которых характерна “богатая” магнитная фазовая диаграмма, зависящая от температуры и магнитного поля [1, 2]. Особый интерес представляют сверхрешетки, содержащие слой редкоземельных металлов с геликоидальным магнитным упорядочением, таких как Dy или Cd, в которых зачастую формируется длиннопериодическая магнитная структура, когерентно распространяющаяся по сверхрешетке [3]. Определение параметров этой длиннопериодической структуры представляет значительные трудности ввиду ограниченности выбора соответствующих экспериментальных методик. Рефлектометрия поляризованных нейтронов – мощный метод исследования многослойных наноструктур, позволяющий получить информацию о распределении по глубине ядерной и магнитной плотности [4, 5]. Было показано, что рефлектометрия поляризованных нейтронов может быть эффективно использована для исследования планарных наноструктур на основе редкоземельных гелимагнети-

ков [6]. С помощью нейтронной рефлектометрии можно определять внутрислойную магнитную структуру в редкоземельных сверхрешетках со сравнительно тонкими слоями редкоземельных металлов и небольшим числом пар слоев [7, 8]. Это выгодно отличает данный метод от нейтронной дифрактометрии, которая требует большого количества рассеивающего материала, что предполагает синтез образцов, содержащих сотни пар редкоземельных слоев [9, 10].

В применении рефлектометрии поляризованных нейтронов к исследованию редкоземельных сверхрешеток серьезную проблему представляет поглощение нейтронов, что ограничивает глубину проникновения нейтронного пучка в образец. Наибольшие трудности возникают при исследовании систем, содержащих Gd, который отличается рекордными значениями сечения поглощения тепловых нейтронов [11]. В настоящей работе рассмотрим случай сверхрешеток Dy/Gd с разными соотношениями толщин слоев Dy и Gd (1 : 1, 2 : 1, 3 : 1) с целью выяснить, при каких условиях рефлектометрия поляризованных нейтронов может быть чувствительна к изменению внутрислойного магнитного упорядочения в сверхре-

шетках. Идея эксперимента состоит в том, что при различных соотношениях толщин слоев Dy и Gd становятся запрещенными структурные рефлексы различных порядков от ядерной сверхрешеточной структуры (рефлексы второго порядка при соотношении толщин 1 : 1, рефлексы третьего порядка при соотношении толщин 1 : 2 и так далее). Однако в случае, когда магнитная периодичность в сверхрешетке становится не соизмеримой со сверхрешеточной ядерной периодичностью, можно ожидать детектирования запрещенных сверхрешеточных рефлексов магнитного происхождения.

Объемные Dy и Gd кристаллизуются в ГПУ-решетках с близкими постоянными ($a = 3.3 \text{ \AA}$, $c/a = 1.57$ для Dy; $a = 3.4 \text{ \AA}$, $c/a = 1.59$ для Gd), что делает возможным получение эпитаксиальных сверхрешеток Dy/Gd. Объемный Gd – ферромагнетик с температурой Кюри $T_C = 292 \text{ K}$, магнитный момент в нем ориентирован вдоль оси c при низких температурах, при температурах от 130 K до комнатной он отклоняется от оси c на угол до 30° . Объемный Dy – ферромагнетик при температурах ниже $T_C = 85 \text{ K}$, магнитный момент в котором ориентирован вдоль оси a в базовой плоскости [12]. В интервале температур от $T_C = 85 \text{ K}$ до $T_N = 179 \text{ K}$ в Dy формируется длиннопериодическая геликоидальная магнитная структура, в которой магнитные моменты лежат в базовой плоскости и угол поворота магнитных моментов при переходе от монослоя к монослою вдоль оси c меняется с температурой от 43.2° при температуре T_N до 26.5° при температуре T_C . Период геликоидальной магнитной структуры не соизмерим с параметром кристаллической решетки. Известно, что эпитаксиальные сверхрешетки Dy/Gd с осью c ГПУ-решетки, ориентированной вдоль нормали к поверхности образца, можно вырастить на монокристаллических подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(1\bar{1}\bar{2}0)$ с буферными слоями Nb(110) и Y(0001) [3], что делает возможным исследование магнитного упорядочения в таких сверхрешетках методом рефлектометрии поляризованных нейтронов. В эпитаксиальных сверхрешетках Dy/Gd ориентация магнитных моментов неизвестна, но можно предположить, что магнитные моменты в слоях Dy будут ориентированы в базовой плоскости, а магнитные моменты в слоях Gd – вдоль оси c кристаллической ГПУ-решетки Gd.

ЭКСПЕРИМЕНТ

В работе была исследована серия из трех сверхрешеток (0001)[Dy/Gd]₂₀ с различным соотношением толщин слоев Dy и Gd: Dy(90 Å)/Gd(30 Å), Dy(60 Å)/Gd(60 Å) и Dy(60 Å)/Gd(30 Å). Сверхрешетки были синтезированы методом высоковакуумного магнетронного распыления

на монокристаллических подложках $\text{Al}_2\text{O}_3(1\bar{1}\bar{2}0)$ с буферными слоями Nb(110) (1000 Å) и Y(0001) (500 Å). Выбор подложки и буферных слоев обеспечил рост редкоземельных слоев с ориентацией (0001) вдоль нормали к поверхности образцов. Для защиты от окисления структура была закрыта слоем Al толщиной 100 Å. Характеризацию слоистой и кристаллической структуры образцов проводили методами рентгеновской рефлектометрии и дифрактометрии на лабораторном дифрактометре Panalytical Empyrean Series 2 с использованием CrK_α - и CoK_α -излучения. Обработку (подгонку) рентгеновских рефлектограмм осуществляли с использованием коммерческой программы PANalytical X'Pert Reflectivity. С помощью рентгеновской дифрактометрии было установлено, что в сверхрешетках сформировалась эпитаксиальная кристаллическая структура, причем ось c кристаллической ГПУ-решетки в слоях Dy и Gd ориентирована вдоль нормали к поверхности сверхрешетки [13]. Нейтронные рефлектометрические измерения были выполнены на рефлектометре N-REX, установленном на реакторе FRM-II. Длина волны нейтронного излучения составляла 4.3 Å. Измерения были выполнены с полным поляризационным анализом в магнитном поле 100 Э при температурах 10 и 100 K, соответствующих ферромагнитному и геликоидальному магнитному упорядочению в объемном Dy. Магнитное состояние в сверхрешетках было приготовлено путем охлаждения в магнитном поле 4.5 кЭ от комнатной температуры до 10 K, после чего магнитное поле было уменьшено до 100 Э.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В ходе нейтронных измерений, выполненных при температуре ниже температуры Нееля для Dy (170 K), не удалось обнаружить спутники вблизи положения отражения (0001) геликоидальной магнитной структуры в Dy, как это было сделано в [4]. По всей видимости, сильное поглощение в слоях Gd значительно ограничивает глубину проникновения нейтронного пучка в образец, а большой угол отражения нейтронного пучка от магнитного спутника при используемой длине волны приводит к ослаблению рефлектометрического сигнала до уровня фона. Таким образом, при анализе редкоземельных сверхрешеток, содержащих сильно поглощающие элементы, можно рассчитывать только на анализ кривых рефлектометрии поляризованных нейтронов, измеренных в стандартном режиме при малых значениях переданного импульса.

На рис. 1–3 приведены кривые рентгеновской и нейтронной рефлектометрии трех образцов с различным соотношением толщин Dy и Gd. Сопоставление рентгеновских и нейтронных кри-

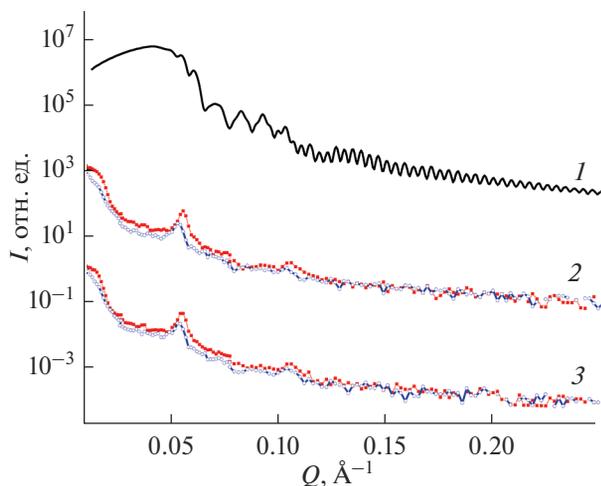


Рис. 1. Кривые рентгеновской (1) и нейтронной (2, 3) рефлектометрии образца Dy(90 Å)/Gd(30 Å) при 10 (2) и 100 К (3): закрашенные символы – R_{++} ; пустые символы – R_{--} . R_{++} и R_{--} – коэффициенты отражения нейтронов.

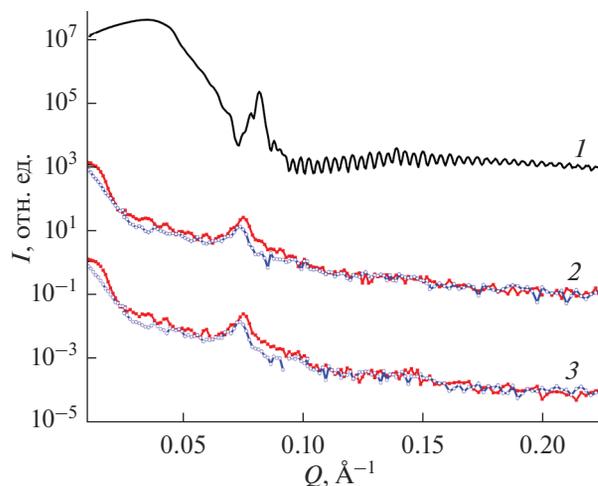


Рис. 2. Кривые рентгеновской (1) и нейтронной (2, 3) рефлектометрии образца Dy(60 Å)/Gd(30 Å) при 10 (2) и 100 К (3): закрашенные символы – R_{++} ; пустые символы – R_{--} . R_{++} и R_{--} – коэффициенты отражения нейтронов.

вых позволяет различить рефлексы магнитного и структурного происхождения на нейтронограммах. На рентгеновских рефлектограммах видны резкие сверхрешеточные рефлексы, которые отражают наличие периодической многослойной структуры вдоль нормали к поверхности образца. В ходе обработки рентгеновских рефлектограмм были определены периоды сверхрешеток, а также среднеквадратичная шероховатость межслойных границ, которая составляет два–три атомных монослоя. Реальные значения периода сверхрешеток отличаются от номинальных на 1–2 Å. Конкретные значения толщин слоев Dy и Gd установить не удалось ввиду низкого контраста рентгеновских показателей преломления Dy и Gd. Модельные рентгеновские кривые малочувствительны к конкретным соотношениям толщин слоев в сверхрешеточном бислое при условии, что период сверхрешетки зафиксирован.

На кривых рентгеновской рефлектометрии образца Dy(90 Å)/Gd(30 Å) (рис. 1) видны сверхрешеточные рефлексы первого и второго порядков, аналогичные рефлексы видны и на нейтронных рефлектограммах. На рентгеновских и нейтронных рефлектограммах образца Dy(60 Å)/Gd(30 Å) (рис. 2) видны сверхрешеточные рефлексы только первого порядка, рефлексы более высоких порядков отсутствуют. Кривые спин-флип-рассеяния не приведены, так как рассеяние нейтронов с переворотом спина в экспериментах не было детектировано. Из сопоставления рентгеновских и нейтронных данных видно, что появление указанных пиков обусловлено наличием структурной периодичности сверхрешетки. Магнитная периодичность сверхрешеток либо совпадает со

структурной, либо слабо проявляется на нейтронограммах. Кроме того, в сверхрешетках наблюдается небольшой ферромагнитный компонент, причем нейтронные кривые, измеренные выше и ниже температуры Кюри Dy, отличаются незначительно. Таким образом, в данном случае нейтронная рефлектометрия оказывается малочувствительной к изменению магнитного упорядочения в слоях Dy.

Иная ситуация наблюдается в образце Dy(60 Å)/Gd(60 Å), рентгеновские рефлектограммы которого приведены на рис. 3. Поскольку соотношение

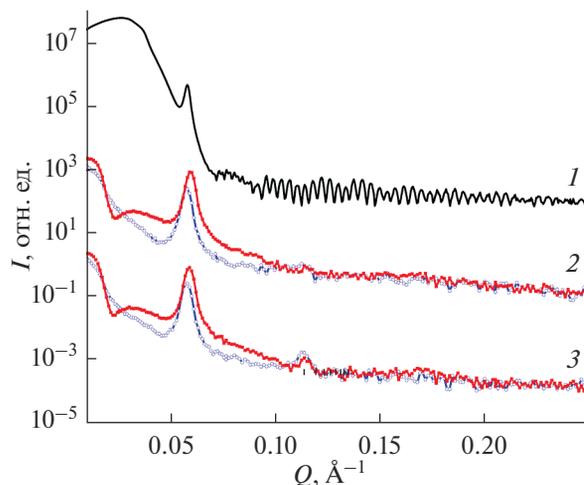


Рис. 3. Кривые рентгеновской (1) и нейтронной (2, 3) рефлектометрии образца Dy(60 Å)/Gd(60 Å) при 10 (2) и 100 К (3): закрашенные символы – R_{++} ; пустые символы – R_{--} . R_{++} и R_{--} – коэффициенты отражения нейтронов.

толщин слоев Dy и Cd 1 : 1, структурные сверхрешеточные рефлексы четных порядков запрещены. Действительно, на рентгеновской рефлектограмме присутствует только сверхрешеточный пик первого порядка, аналогичные пики видны и на нейтронограммах. На нейтронограммах, измеренных ниже температуры Кюри Dy при $T = 10$ К, сверхрешеточный пик второго порядка также отсутствует. Однако сверхрешеточные рефлексы второго порядка наблюдаются на нейтронограммах при $T = 100$ К (выше температуры Кюри, но ниже температуры Нееля Dy). Вне всяких сомнений, природа данного пика чисто магнитного происхождения, так как его наличие и интенсивность зависят от температуры. Причина появления запрещенного магнитного сверхрешеточного пика – наличие в образце магнитной периодичности, отличающейся от структурной. Как известно, период геликоидального магнитного упорядочения не соизмерим с параметрами кристаллической решетки Dy и со сверхрешеточной структурной периодичностью. Характерно, что остальные части нейтронных рефлектометрических кривых, измеренных при $T = 10$ и 100 К, крайне незначительно различаются. Фактически геликоидальное магнитное упорядочение в Dy проявляется только в возникновении запрещенного магнитного рефлекса “поверх” рефлектометрической кривой. Таким образом, для того чтобы детектировать в редкоземельных сверхрешетках несоизмеримое геликоидальное магнитное упорядочение, необходимо оптимизировать слоистую структуру сверхрешеток, подбирая такое соотношение толщин, при котором становятся запрещенными некоторые сверхрешеточные рефлексы. Разумеется, такое искусственное формирование слоистой структуры исследуемых сверхрешеток ограничивает постановку физической задачи, но другой возможности детектирования геликоидального упорядочения в сверхрешетках методом рефлектометрии поляризованных нейтронов нет.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом рефлектометрии поляризованных нейтронов исследованы сверхрешетки Dy/Gd с различным соотношением толщин слоев Dy и Gd: 1 : 1, 2 : 1, 3 : 1. Установлено, что формирование геликоидально магнитного упорядочения в слоях Dy мало сказывается на форме нейтронных рефлектометрических кривых и в общем случае не может быть детектировано методом рефлектометрии поляризованных нейтронов. Исключение представляет ситуация, когда толщины слоев Dy и Gd подобраны таким образом, что становятся запрещенными некоторые структурные сверхрешеточные рефлексы. Тогда формирование гели-

коидального магнитного упорядочения в слоях Dy с периодом, не соизмеримым со структурным периодом сверхрешетки, проявляется в возникновении магнитного сверхрешеточного рефлекса, который запрещен из-за равенства толщин чередующихся слоев Dy и Gd с соотношением 1 : 1. Оптимизация структуры редкоземельных сверхрешеток для нейтронного рефлектометрического эксперимента позволяет детектировать в сверхрешетках геликоидальное магнитное упорядочение с периодом, не соизмеримым со структурным сверхрешеточным упорядочением.

БЛАГОДАРНОСТИ

Синтез образцов, рентгеноструктурные измерения выполнены в центре коллективного пользования ИФМ УрО РАН. Нейтронные измерения проведены на рефлектометре N-REX исследовательского реактора FRM II (Гархинг, Германия). Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Спин” 22021000036-3), нейтронографические исследования – 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.).

Конфликт интересов: авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Rhyne J.J., Erwin R.W.* Magnetism in Artificial Metallic Superlattices of Rare Earth Metals // Handbook of Magnetic Materials. V. 8. / Ed. Buschow K.H.J. Elsevier, 1995.
2. *Salamon M.B., Sinha Sh., Rhyne J.J., Cunningham J.E., Erwin R.W., Borchers J., Flynn C.P.* // 1986. Phys. Rev. Lett. V. 56. P. 259. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.56.259>
3. *Majkrzak C.F., Kwo J., Yjng M., Yafet Y., Gibbs D., Chen C.L., Bohr J.* // Adv. Phys. 1991. V. 40. P. 99. <https://doi.org/10.1080/00018739100101482>
4. *Majkrzak C.F.* // Physica B. 1996. V. 221. P. 342. [https://doi.org/10.1016/09214526\(95\)00948-5](https://doi.org/10.1016/09214526(95)00948-5)
5. *Dosch H.* // Physica B. 1993. V. 192. P. 163. [https://doi.org/10.1016/0921-4526\(93\)90117-0](https://doi.org/10.1016/0921-4526(93)90117-0)
6. *Девятериков Д.И., Кравцов Е.А., Проглядо В.В., Жакетов В.Д., Никитенко Ю.В.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2021. № 6. С. 3. <https://doi.org/10.31857/S1028096021060054>
7. *Fritzsche H., Van Bael V.J., Temst K.* // Langmuir. 2003. V. 19. P. 7789. <https://doi.org/10.1063/1.2130666>

8. *Leiner V., Westerholt K., Blixt A.M., Zabel H., Hjorvarsson B.* // 2003. Phys. Rev. Lett. 2003. V. 91. P. 037202. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.037202>
9. *Majkrzak C.F., Cable J.W., Kwo J., Yjng M., McWhan D.B., Yafet Y., Waszczak J.V., Vettier C.* // 1986. Phys. Rev. Lett. V. 56. P. 2700. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.56.2700>
10. *Camley R.E., Kwo J., Hong M., Chien C.L.* // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64. P. 2703. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.64.2703>
11. *Lynn J.F., Seeger P.A.* // Atomic Data Nucl. Data Tables. 1990. V. 44. P. 191. [https://doi.org/10.1016/0092-640X\(90\)90013-A](https://doi.org/10.1016/0092-640X(90)90013-A)
12. *Elliott R.J.* Magnetic Properties of Rare Earth Metal / Ed. Elliott R.J. N.Y.: Plenum, 1972.
13. *Антропов Н.О., Кравцов Е.А., Хайдуков Ю.Н., Рябухина М.В., Проглядо В.В., Вешке О., Устинов В.В.* // Письма в ЖЭТФ. 2018. Т. 108. С. 361. <https://doi.org/10.1134/S0370274X18170113>

Neutron Reflectometry in Superlattices with Strongly Absorbing Rare-Earth Metals (Gd, Dy)

N. O. Antropov^{1, *}, E. A. Kravtsov^{1, 2, **}

¹*Institute of Metal Physics, Ekaterinburg, 620990 Russia*

²*Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia*

**e-mail: nikolayantropovekb@gmail.com*

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

Polarized neutron reflectometry was used to study Dy/Gd superlattices with different ratios of Dy and Gd layer thicknesses: 1 : 1, 2 : 1, 3 : 1. It has been experimentally shown that the formation of helical magnetic ordering in Dy layers with a period incommensurate with the period of the superlattice appears as a magnetic superlattice reflection, which is forbidden for structural reasons at a ratio of the thicknesses of the Dy and Gd layers 1 : 1. Otherwise, the formation of helical magnetic ordering has little effect on the shape of the neutron reflectometry curves. Thus, the optimization of the structure of rare-earth superlattices for the neutron reflectometry experiment makes it possible to detect helical magnetic ordering in superlattices with a period incommensurate with the structural superlattice ordering.

Keywords: magnetic multilayers, helical magnetic ordering, polarized neutron reflectometry, rare-earth metals.