05,12 Некоторые возможности рефлектометрии поляризованных нейтронов

© А.В. Ковалев

Петербургский институт ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН, Гатчина, Ленинградская обл., Россия

E-mail: kovalev@pnpi.spb.ru

(Поступила в Редакцию 12 июля 2010 г. В окончательной редакции 25 августа 2010 г.)

> Методом рефлектометрии поляризованных нейтронов изучались особенности магнитных текстур многослойных тонкопленочных систем [CoFe/TiZr]₆₈ и [CoFe/TiZr]₁₉₅ при разных вариантах приложения внешнего магнитного поля. Разработана методика учета систематических погрешностей измерительной установки, что позволило в зеркальных отражениях "с переворотом спина нейтрона" обнаружить дополнительные компоненты, происхождение которых не связано с известным механизмом "зеемановского расщепления". Для указанных образцов наблюдались сильные различия гистерезисных кривых, остаточной намагниченности и магнитных текстур. При анализе полученных экспериментальных данных использовались результаты предыдущих работ автора.

> Работа выполнена в рамках Программы ОФН РАН "Нейтронные исследования структуры вещества и фундаментальных свойств материи".

1. Введение

В начале обзора [1] отмечается, что основные принципы использования поляризованных нейтронов, полученные результаты и возможности дальнейших исследований являются достоянием узкого круга специалистов. Причины такой ситуации в области рефлектометрии поляризованных нейтронов (РПН) можно понять на примере работы [2], которая посвящена наглядной интерпретации получаемых экспериментальных данных и надежности их количественного анализа. После этого предлагается "простая" методика вычисления сечений рассеяния для всех типов незеркального рассеяния, "совершенно необходимым условием появления которого является нарушение трансляционной симметрии в латеральном направлении на масштабах меньших, чем латеральная проекция когерентной длины" [3]. В работе [4] предполагается такой же механизм незеркального рассеяния, в определении которого авторы используют термин "диффузное".

Столь категоричное мнение специалистов приводит к существенному ограничению возможностей использования РПН. В частности, все качественные особенности незеркальных отражений однослойными ферромагнитными пленками соответствуют схеме, в которой основная причина появления этих отражений — переворот спина нейтрона внутри образца [5]. (Понятие "переворот спина нейтрона" используется как для описания результатов измерений, так и для классификации квантовомеханических процессов взаимодействия нейтрона с образцом.)

Для однослойных пленок наблюдаются сильные различия результатов рефлектометрических измерений при, казалось бы, одинаковых условиях изготовления образцов, что связано с разными кристаллическими текстурами низкосимметричных магнитных фаз. Определение таких текстур оказывается чрезвычайно сложной экспериментальной задачей [6], но естественно предположить, что некая взаимосвязь кристаллической и магнитной текстуры образца проявляется при малоугловом рассеянии поляризованных нейтронов [7].

Для решения каждой конкретной задачи необходим оптимальный выбор образцов и условий измерений. Например, для решения задачи о происхождении незеркальных отражений наиболее удобными оказались толстые $(2.5\,\mu\text{m})$ пленки сплава $\text{Со}_{67}\text{Fe}_{31}\text{V}_2$, изготовленные методом магнетронного распыления на стеклянные подложки толщиной 5 mm [5,8]. Но термомагнитный эффект [7] при обнаруженной исходной магнитной текстуре таких пленок должен быть очень слабым.

Измерения на многослойных системах $[CoFe/TiZr]_n$ были начаты в связи с тем, что в однослойных пленках легкая ось намагничивания (*EA*) совпадает с направлением движения подложки в установке магнетронного распыления, а для "суперзеркал" *EA* также находится в плоскости пленки, но ортогональна указанному направлению.

Далее излагается методика предварительной обработки исходных экспериментальных данных, что необходимо для обнаружения слабых эффектов.

Систематические погрешности измерительной установки

Идеальная схема измерений, которые выполнялись на установке малоуглового рассеяния "Вектор" (реактор ВВР-М, Гатчина), приведена на рис. 1. Пучок поляри-



Рис. 1. Схема рефлектометрических измерений. Стрелками показаны направления магнитного поля **H** и спинов нейтронов **S**, которым соответствуют четыре типа интенсивностей J(mn).

зованных нейтронов (средняя длина волны $\lambda = 9.2$ Å, $\Delta\lambda/\lambda = 0.25$ [9]) после прохождения первого флиппера и рассеяния образцом проходит через второй флиппер, после чего нейтроны регистрируются детекторной системой (20 зеркал-анализаторов перед каждым счетчиком нейтронов), установленной на платформе, которая может поворачиваться вокруг оси вращения образца. Угловое расстояние между счетчиками равно 13'. Поэтому для получения всей картины рассеянных нейтронов достаточно выполнить 16 циклов измерений, в каждом из которых после смещения детекторной системы на угол $\Delta\theta \approx 0.87'$ измеряются четыре типа интенсивностей J(mn). Индексами m и n здесь обозначены состояния флипперов (0 — выключен, 1 — включен), необходимых для переворота спинов нейтронов на 180°.

После измерения угловых распределений интенсивностей J(mn) прямого пучка детекторная система устанавливается так, чтобы в одном из центральных счетчиков регистрировался максимум интенсивности пика (00), полуширина которого $W \approx 12'$. Затем выполняется такая юстировка образца, при которой максимум зеркального отражения J(00) наблюдается в соответствующем счетчике при $\theta = 2\vartheta_i$, где ϑ_i — выбранный угол скользящего падения нейтронного пучка. После этого образец остается неподвижным до завершения измерений при разных магнитных полях. Вертикальное поле **H** на образце создается электромагнитом, после выключения тока которого остается $H \approx 7$ Oe.

Для идеальной схемы исходная поляризация P_0 пучка и эффективности флипперов равны 1, многослойные анализаторы отражают нейтроны только с одним направлением спина (вдоль магнитного поля), а конфигурация "ведущих" магнитных полей не приводит к изменению квантовых состояний нейтронов.

Угловые распределения интенсивностей J(01) и J(10) без образца приведены на рис. 2. Произвольные единицы здесь — числа импульсов, регистрируемые счетчиками,

деленные на 1000. Далее используются относительные величины интегральных интенсивностей Q(mn), определенные стандартным методом аппроксимации функциями Гаусса.

Из рис. 1 следует, что при идеальных флипперах должно быть $Q(00) = Q(11) = K(\eta N_1 + \xi N_2), Q(01) = Q(10) = K(\xi N_1 + \eta N_2)$. Здесь N_1 и N_2 — потоки нейтронов с противоположными направлениями спинов $(N_1 \gg N_2)$ в месте расположения образца, η и ξ — коэффициенты отражения нейтронов, спины которых направлены вдоль и против магнитного поля зеркала-анализатора. Следовательно, измеряемая центральным счетчиком поляризация нейтронного пучка

$$P_{\rm mes} = [(N_1 - N_2)/(N_1 + N_2)][(\eta - \xi)/(\eta + \xi)] = P_0 C.$$
(1)

При обычном малоугловом рассеянии на массивных образцах измеренные в направлении прямого пучка значения поляризации нормируют на эту величину P_{mes} . Но для РПН поляризация не является измеряемым параметром, и в этом случае необходимо использовать более сложную методику предварительной обработки исходных экспериментальных данных. На первом этапе посмотрим, что могут дать результаты измерений параметров прямого пучка: Q(00)/Q(11) = 1.008(2), Q(01)/Q(10) = 1.17(3), $P_{\text{mes}} \approx 0.92$.

Пусть f_1 и f_2 — эффективности первого и второго флипперов, а эффективности зеркал-анализаторов можно не учитывать. В таком случае измеренные Q(00), Q(01), Q(10) и Q(11) должны быть пропорциональны величинам

$$N_1, N_1(1-f_2) + N_2f_2, N_1(1-f_1) + N_2f_1, N_1f_1f_2,$$
(2)

что, в частности, выполняется при $N_1/N_2 = 24$, $f_1 = 0.9998$, $f_2 = 0.992$.

Теперь предположим, что $N_2 = 0$, $f_1 = 1$, а пики $(\theta \approx 0)$ на рис. 2 — зеркальные отражения анализаторами нейтронов, спины которых после второго флиппе-



Рис. 2. Прямой пучок. Интенсивности J(01) (1, 3) и J(10) (2, 4) до (1, 2) и после (3, 4) описанной далее обработки экспериментальных данных.

ра противоположны направлению магнитного поля на зеркалах-анализаторах. В таком случае должно выполняться условие Q(00) - Q(11) = Q(01) - Q(10), что и наблюдается для измеренных интенсивностей

$$Q(00) = 338.9(5), \quad Q(01) = 16.7(4),$$

 $Q(10) = 14.2(4), \quad Q(11) = 336.3(5).$ (3)

Таким образом, приведенные результаты измерений позволяют определить только величину $f_1f_2 \approx 0.992$. Однако, используя в качестве образцов разработанные в Отделе нейтронной оптики ПИЯФ суперзеркала, можно получить оценку величины поляризации P_0 первичного нейтронного пучка.

Измеренные интенсивности зеркальных отражений для [CoFe/TiZr]₆₈ при $\vartheta_i \approx 39'$ и H = 770 Ое равны

$$Q(00) = 540(5), \quad Q(11) = 11.04(23),$$

 $Q(01) = 24.64(12) \quad \text{m} \quad Q(10) = 2.33(26).$ (4)

Для идеальной установки и общепринятого механизма зеркальных отражений с переворотом спина нейтрона Q(01) = Q(10). Поэтому столь сильное различие этих интенсивностей — результат большой величины отношения Q(00)/Q(11), что позволяет получить оценку параметра ξ в (1): $\xi \approx (Q(01) - Q(10))/Q(00) \approx 0.04$. Полученное значение ξ соответствует интенсивностям (3) и величине $P_{\text{mes}} \approx 0.92$, если в (1) $P_0 \approx 1$, $\eta > 0.9$.

Минимальное значение P_0 получим следующим образом. В измеренном зеркальном пике (10) содержатся три компоненты, источниками которых являются: зеркальные отражения (10) и (11) образца (Q_1 и Q_2), а также нейтроны N_2 в первичном пучке (Q_3). Q_1 пока неизвестна, но $Q_2 \approx 0.04Q(11) \approx 0.44$, т.е. $Q_1 + Q_3 \approx 1.89$. При высокой эффективности первого флиппера $A_{\min} \approx Q(00)/(Q_1 + Q_3) = 285(40)$, т.е. (P_0)_{min} = ($A_{\min} - 1$)/($A_{\min} + 1$) = 0.993(1).

Таким образом, систематические погрешности измеряемых интенсивностей связаны в основном с эффективностью анализаторов, для учета которой необходимо определить величины $R_{\rm an} = (1/\xi_{\rm an})$. Для решения этой задачи в выражениях

$$J_{\rm cor}(01) = J(01)_{\rm mes} - J(00)_{\rm mes}/R_1$$

$$H J_{\rm cor}(10) = J(10)_{\rm mes} - J(11)_{\rm mes}/R_2$$
(5)

выберем такие параметры R_1 и R_2 , чтобы интенсивности $J_{cor}(01)$ и $J_{cor}(10)$ выглядели как кривые 3 и 4 на рис. 2, где $R_1 = 22$ и $R_2 = 26$. Причиной полученных пиков при $\theta \approx 10'$ являются, вероятнее всего, незеркальные отражения (01) анализаторов, интенсивности которых составляют около 0.4% от величины зеркального отражения (00). Учет вклада этих пиков в интенсивности J(01) и J(10) приводит к согласованию всех приведенных выше результатов. Параметры R определялись для всех анализаторов, которые используются для измерения интенсивностей отраженных нейтронов.

Для прямого пучка $R_1 < R_2$, так как $f_1 > f_2$. Но для образца можно получить и равенство $R_1 = R_2$, так как вклад интенсивности Q_3 в пик (01) будет теперь в Q(00)/Q(11) раз меньше, чем в пик (10).

3. К вопросу о механизмах переворота спина нейтрона в ферромагнитных пленках

Разработанная методика учета систематических погрешностей измерительной установки позволила приступить к задаче о структуре зеркальных отражений (01) и (10), т.е. о наличии в них двух компонент [5]. Обычно считается, что причиной таких отражений является двулучепреломление нейтронных волн на границе пленки, если направления локальных значений индукции **B**_i не совпадают с направлением **H**. При росте *H* пленка намагничивается, интенсивности этих пиков падают, а угловое расстояние $\Delta \theta = \theta(01) - \theta(10) > 0$ между ними увеличивается. (Угол θ отсчитывается от направления прямого пучка в сторону зеркальных отражений.) В настоящей работе возможная максимальная величина $\Delta \theta_{max} < 2'$ (почти зеркальные отражения).

Однако приведенные на рис. 3–5 результаты свидетельствуют о наличии некоторого дополнительного механизма переворота спина нейтронов. Аналогичные эффекты наблюдались и на однослойных пленках, но



Рис. 3. Интенсивности отражений J(01) (1) и J(10) (2), измеренные при указанных полях после размагничивания образца.



Рис. 4. Полевая зависимость разности угловых положений зеркальных пиков (10) и (01).



Рис. 5. Полевые зависимости интенсивностей зеркальных пиков (01) (1) и (10) (2), незеркального отражения (10) (3) и параметра S (4), который считается мерой намагниченности пленки.

наиболее полный набор экспериментальных данных получен на суперзеркале $[CoFe/TiZr]_{68}$, особенности магнитных текстур которого будут показаны в следующем разделе.

К размагниченному образцу прикладывались поля от 7 до 770 Ое. При каждой величине H измерялись угловые распределения интенсивностей рассеянных нейтронов. Затем ток электромагнита выключался, выполнялись аналогичные измерения при H = 7 Ое, после чего процесс повторялся при большей величине H.

Максимумы зеркальных отражений на рис. 3, *а* наблюдаются при $\theta \approx 78'$. Рост *H* приводит к изменению угловых положений пиков (01) и (10), но, как и для незеркальных отражений, $\theta(01) < \theta(10)$. Зависимость $\Delta\theta(H)$ приведена на рис. 4. Общая закономерность наблюдается и для интенсивностей: при росте поля от 130 до 770 Ое отношения Q(01)/Q(10) для зеркальных и незеркальных отражений становятся больше почти на 40%.

На рис. 5 при H > 400 Ос отношение $Q(01)/Q(10) \approx 2$, что приводит к вопросу о корректности выбора параметров $R_1 = R_2 = 26$, так как при меньших величинах R_1 можно в принципе получить равенство Q(01) = Q(10). Поэтому для обоснования выбора R_1 достаточно очевидного условия: исправленные значения интенсивностей $J_{\rm cor}$ не могут быть отрицательными, что выполняется при $R_1 \ge 26$. С другой стороны, при изменении R_2 от 26 до 40 Q(10) возрастает лишь на 10%.

Таким образом, можно говорить о наличии дополнительных компонент в зеркальных отражениях (01) и (10), происхождение которых связано с переворотами спинов нейтронов внутри образцов. Вопрос же о механизмах таких переворотов остается открытым. (Еще раз отметим, что все рассматриваемые здесь и далее эффекты не являются особенностями многослойной структуры.) Общие результаты измерений интенсивностей, показанные на рис. 5, позволяют, однако, привести следующие соображения.

При H > 400 Ое степень намагниченности образца, мерой которой считается параметр S = (Q(00) - Q(11))/(Q(00) + Q(11)), не изменяется. При таких полях остаются неизменными и интенсивности отражений Q(01) и Q(10), что соответствует исчезновению компонент, связанных с наличием доменной структуры на поверхности суперзеркала. Падение же интенсивности незеркального отражения (10) с ростом H указывает на некое существенное различие механизмов переворота спина нейтронов для зеркальных и незеркальных отражений.

При построении моделей этих механизмов необходимо учитывать, что параметры любого пика интенсивности рассеянных нейтронов задаются изменениями зеемановской энергии нейтронов в результате их взаимодействий с образцом, глубиной проникновения δ в него нейтронных волн и величиной соответствующего сечения рассеяния [5,8].

В частности, на рис. 3, *b* для незеркальных пиков $Q(10) \gg Q(01)$, потому что при $\vartheta_i \approx 40'$ и выбранном химическом составе СоFe сплава $\delta(10) \gg \delta(01)$. Наблюдаемое смещение углового распределения J(10) в сторону бо́льших углов при росте *H* легко объяснить возрастанием средней величины индукции $\langle \mathbf{B}_i \rangle$ на поверхности образца, а изменение формы этого пика может быть связано с метастабильными состояниями намагниченности [10]. Для зеркальных отражений такой схеме соответствует лишь зависимость $\Delta\theta(H)$ на рис. 4. Теперь понятно, что для определения природы слабых компонент этих отражений необходимо выполнить измерения при разных ϑ_i и бо́льших величинах *H*.

Наведенная анизотропия, магнитная текстура и остаточная намагниченность

Для изучения взаимосвязи изучаемых явлений нами предполагалось использовать лишь однослойные пленки. Но предложенные автором соображения [7] соответствуют и экспериментальным данным, полученным на



Рис. 6. Интенсивности отражений J(01) (1) и J(10) (2) для первого (*a*) и второго (*b*) образцов после приложения поля H = 800 Ос. Измерения при H = 7 Ос.

многослойных системах: [CoFe/TiZr]₆₈ (первый образец) и [CoFe/TiZr]₁₉₅ (второй образец).

Разработки суперзеркал на основе сплавов CoFe и TiZr ведутся [11] для получения оптимальных параметров нейтронно-оптических устройств, в которых, как правило, к пленкам прикладываются магнитные поля порядка 500 Oe. Но в некоторых случаях желательно иметь высокую поляризующую эффективность нейтронных зеркал при малой величине *H* [12,13].

Угловые распределения интенсивностей J(01) и J(10)для двух образцов приведены на рис. 6, сравнение которого с рис. 3 позволяет обнаружить некоторые закономерности результатов рефлектометрических измерений. Для размагниченного образца (рис. 3, *a*) наблюдаются несимметричные распределения интенсивностей отраженных нейтронов, "крылья" которых при росте *H* превращаются в незеркальные пики (01) и (10). При H = 770 Ое для двух образцов наблюдались одинаковые картины угловых распределений интенсивностей отраженных нейтронов. Сильные же различия рис. 6, *a* и *b* — следствие разной степени магнитной анизотропии этих многослойных систем, для которых гистерезисные кривые приведены на рис. 7.

Отметим, что вид гистерезисных кривых вдоль легкой оси намагничивания не дает однозначного ответа на вопрос о величине остаточной намагниченности, в то время как при H = 7 Ое для первого образца S = 0.59(1), для второго — S = 0.967(3).

Причиной наведенной анизотропии наших пленок является кристаллическая текстура моноклинной фазы, с пространственным распределением осей **b** которой связана форма гистерезисных кривых [6]. Для однослойных пленок установлена взаимосвязь степени намагниченности и направления легкого намагничивания с геометрией пучков напыляемых частиц [14]. В многослойных системах процесс формирования указанной кристаллической текстуры, по-видимому, каким-то образом связан и с материалом немагнитных слоев, что приводит к изменению направления оси легкого намагничивания.

Оценка минимальной величины поляризации, выполненная с использованием суперзеркала [CoFe/TiZr]₁₉₅, дает полученное ранее значение $(P_0)_{\min} = 0.992(1)$. Если же учесть интенсивность зеркального пика (10), то $P_0 = 0.998(2)$.

Малая остаточная намагниченность многослойной системы $[CoFe/TiZr]_{68}$ проявляется и в наличии заметных незеркальных отражений на угловых распределениях J(11), происхождение которых связано с переворотами спинов нейтронов на границе и внутри образца [5]. Пленки с подобными типами магнитных текстур — наиболее удобные объекты для изучения механизма термомагнитного эффекта, который используется для получения постоянных магнитов.



Рис. 7. Гистерезисные кривые для первого (*a*) и второго (*b*) образцов, измеренные при ортогональных направлениях (*1* и *2*) магнитного поля частотой 50 Hz.

5. Заключение

В настоящей работе еще раз подтверждается предложенная автором схема малоуглового рассеяния нейтронов на магнитных пленках, в которой учитываются эффекты Зеемана, связанные с переворотами спинов нейтронов на границе и внутри образца.

Определенная высокая степень поляризации первичного нейтронного пучка и разработанная методика учета систематических погрешностей измерительной установки позволяют при обработке экспериментальных данных использовать простые формулы квантовой механики и обнаружить слабые эффекты, примером чего оказалась сложная структура пиков, которые при малых магнитных полях (до 1 kOe) можно считать зеркальными отражениями.

На многослойных системах наблюдается взаимосвязь остаточной намагниченности и магнитной текстуры с формой гистерезисных кривых, которая ранее обнаружена на однослойных пленках.

Определение механизмов переворота спина нейтрона при малоугловом рассеянии оказывается необходимым условием для использования уникальных возможностей метода РПН в исследованиях магнитных явлений.

Автор благодарит В.В. Рунова за постоянный интерес к выполняемым работам и обсуждение полученных результатов, сменный персонал реактора BBP-М — за возможность выполнения длительных измерений, Н.К. Плешанова, В.Г. Сыромятникова и других сотрудников Отдела нейтронной оптики ПИЯФ — за плодотворное сотрудничество и предоставление образцов.

Список литературы

- [1] С.В. Малеев. УФН 172, 617 (2002).
- [2] B.P. Toperverg. Appl. Phys. A 74 (Suppl.), 1560 (2002).
- [3] B.P. Toperverg. Physica B **297**, 160 (2001).
- [4] С.В. Кожевников, F. Ott. ФТТ 52, 1457 (2010).
- [5] А.В. Ковалев. ФТТ **52**, 883 (2010).
- [6] А.В. Ковалев, Г.Е. Шмелев. Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исследования 4, 33 (2001).
- [7] А.В. Ковалев. Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исследования 10, 51 (2004).
- [8] А.В. Ковалев. Исследовано в России. Электрон. журн. 36, 343 (2007); http://zhurnal.ape.relarn.ru/articles/2007/036.pdf.
 [8] М.И. Р. В. С. В. 207, 224 (2001)
- [9] V.V. Runov. Physica B 297, 234 (2001).
- [10] А.В. Ковалев. Поверхность. Рентген., синхротрон. и нейтрон. исследования 8, 106 (2002).
- [11] N.K. Pleshanov, N.G. Kolyvanova, S.V. Metelev, B.G. Peskov, V.M. Pusenkov, V.G. Syromyatnicov, V.A. Ul'yanov, A.F. Schebetov. Physica B 369, 234 (2005).
- [12] N.K. Pleshanov. Physica B 297, 131 (2001).
- [13] J. Stahn, D. Clemens. Appl. Phys. A 74 (Suppl.), 1532 (2002).
- [14] A.V. Kovalev, B.G. Peskov, V.A. Ul'yanov, G.F. Shmelev, D.A. Korneev. PNPI Res. Rep. 1996–1997. Gatchina (1998). P. 264.