## МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ имени М.В. ЛОМОНОСОВА ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

### Баулин Роман Алексеевич

# Поляризационные эффекты в мёссбауэровской и рентгеновской резонансной рефлектометрии магнитных многослойных структур

01.04.07 – физика конденсированного состояния

ДИССЕРТАЦИЯ на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор физ.-мат. наук, в.н.с. Андреева Марина Алексеевна

Москва

2019

Введение
Глава I. Литературный обзор
§ 1. Поляризационные эффекты в рентгеновской оптике10
§ 2. Поляризационные эффекты в мёссбауэровской спектроскопии26
Основные результаты Главы І40
Глава II. Поляризационные особенности мёссбауэровских спектров
отражения
§ 1. Общая характеристика мёссбауэровской рефлектометрии41
§ 2. Особенности мёссбауэровских спектров отражения для π-
поляризованного излучения от ядерного монохроматора SMS46
§ 3. Ядерно-резонансная рефлектометрия: эксперимент на ID18 (ESRF)
§ 4. Исследование кластерно-слоистого образца с ферромагнитным
упорядочением
§ 5. Исследование образца с антиферромагнитным межслойным
упорядочением65
§ 6. Исследование образца со спиральным магнитным упорядочением73
Основные результаты Главы II82
Глава III. <b>Поляризационный анализ магнитного отражения</b>
§ 1. Селекция π→σ` поляризационной компоненты мёссбауэровсокого
отражения
§ 2. Эксперимент по мёссбауэровской рефлектометрии с применением
поляризационного анализа
§ 3. Стоячие волны в теории рефлектометрии96
§ 4. Селекция $\sigma \rightarrow \pi$ ` поляризационной компоненты в рентгеновской
резонансной магнитной рефлектометрии104
Основные результаты Главы III115

Глава IV. Влияние поляризационных характеристик сверхтонких переходов на временные спектры ядерно-резонансного рассеяния на изотопе <sup>161</sup>Dy

§ 1. Общая характеристика мёссбауэрских исследований на <sup>161</sup> Dy116
§ 2. Временные спектры ядерно-резонансного отражения от <sup>161</sup> Dy118
§ 3. Ядерно-резонансная рефлектометрия120

§ 4. Эксперимент	по	ядерно-резонансной	рефлектометрии	ОТ
сверхрешентки	и [Dy/ <b>C</b>	Gd] <sub>n</sub>		122
Основные результа	ты Гла	авы IV		127

Основные результаты и выводы	129
Литература	
Список публикаций автора	146

### Введение

### Актуальность работы

Ультратонкие пленки и создаваемые многослойные структуры, обнаруживающие уникальные магнитные, оптические, транспортные и др. свойства, являются ключевыми объектами в современной науке, как благодаря их огромной потенциальной востребованности в разнообразных технических приложениях (спинтронике, сенсорике, оптоэлектронике и т.д.), так и фундаментального необычным вследствие интереса к магнитным, магнитотранспортным и другим эффектам в таких структурах. Детальные исследования магнитной структуры таких объектов является необходимым этапом при создании новых материалов и устройств. Синхротронное излучение (СИ) в последние годы стало мощным инструментом исследований магнитной структуры таких объектов. Мёссбауэровская (ядерно-резонансная) рефлектометрия является сравнительно недавно сформировавшимся эффективным неразрушающим методом исследования магнитной структуры тонких пленок и многослойных структур с ультравысоким разрешением по глубине. Метод технически обеспечен на многих современных источниках синхротронного излучения 3-го поколения. Однако, существуют большие сложности в обработке и интерпретации данных, получаемых этим методом, и, как следствие, неоднозначность получаемых профилей распределения сверхтонких магнитных полей и ориентации намагниченности по глубине структуры. Проблема обусловлена огромным числом параметров, от которых зависят экспериментальные данные. Усовершенствование экспериментов и адаптация общей теории отражения к особенностям ядерно-резонансного взаимодействия с излучением может существенно упростить обработку данных и детерминировать результат. В диссертационной работе показано, что оперирование поляризацией излучения, как падающего, так и рассеянного, дает важные преимущества в магнитных структурных исследованиях. В работе, в частности, предложено использовать поляризационный анализ

рассеянного излучения как дополнительной канал получения информации в ядерно-резонансной И рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии. Проведен ряд тестовых измерений на поляризованном синхротронном излучении, выполнена разработка программ обработки экспериментальных данных с анализом поляризации и получены интересные результаты для ряда объектов. Результаты работы являются важным этапом становления развития нового метода исследования И магнитного упорядочения в многослойных пленках – мёссбауэровской рефлектометрии.

### Цель работы

Целью диссертационной работы является развитие новой модификации метода резонансной магнитной рефлектометрии, включающей использование зависимости отражения от магнитоупорядоченных пленок от поляризации падающего излучения и поляризационный анализ отраженного излучения.

### Научная новизна работы

Поляризационный анализ в мёссбауэровскких экспериментах использовался в очень редких работах и только в геометрии прохождения, в то время как исследования распределения намагниченности по глубине тонких пленок и многослойных структур возможно только в геометрии отражения (рефлектометрия). В резонансной магнитной рефлектометрии , в отличие от рефлектометрии поляризованных нейтронов, поляризационный анализ отраженного излучения раннее не применялся.

### Научная и практическая значимость

В работе продемонстрированы существенные преимущества метода ядерно-резонансной и рентгеновской магнитной рефлектометрии для исследования магнитных многослойных структур со сложным типом магнитного межслойного упорядочения. Использование поляризации синхротронного излучения, а также предлагаемый анализ поляризации отраженного излучения в экспериментах по резонансной рефлектометрии может существенно обогатить получаемую в методе информацию.

### Защищаемые положения

- Возможность восстановления профилей намагниченности в сложных неколлинеарных магнитных многослойных структурах при совместной обработке набора мёссбауэровских спектров отражения и угловых кривых ядерно-резонансного отражения с учетом их зависимости от поляризации.
- Возможность расшифровки слабо разрешенных мёссбауэровских спектров отражения при помощи селекции по поляризации отраженного излучения.
- Теоретическое обоснование влияния стоячих рентгеновских волн, образуемых в многослойной структуре, на амплитуду магнитной составляющей зеркального отражения при условии малости этой составляющей.
- Возникновение пика вблизи критического угла полного внешнего отражения для отраженного излучения с измененной (π→σ`) поляризацией, обусловленного влиянием стоячей рентгеновской волны на резонансную составляющую в отраженный сигнал.

### Апробация работы

Результаты работы были доложены на следующих конференциях:

1. Седьмой международный научный семинар и Пятая международная научная школа-семинар "Современные методы анализа дифракционных

данных и актуальные проблемы рентгеновской оптики" (Великий Новгород, 2015)

- 2. Конференция "Рентгеновская оптика 2016" (Черноголовка, 2016)
- 3. Первый российский кристаллографический конгресс (Москва, 2016)
- 8-ой международный научный семинар и 6-ая Международная научная школа-семинар "Современные методы анализа дифракционных данных и актуальные проблемы рентгеновской оптики" (Великий Новгород, 2016)
- 5. XIV Международная конференция "Мёссбауэровская спектроскопия и её применения" (Казань, 2016)
- 6. VI Euro-Asian Symposium "Trends in MAGnetism" (Красноярск, 2016)
- Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных "Ломоносов-2017" (Москва, 2017)
- International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect -ICAME 2017 (Санкт-Петербург, 2017)
- Moscow international symposium on magnetism MISM 2017 (Москва, 2017)
- 10.Конференция "Рентгеновская оптика 2018" (Черноголовка, 2018)
- 11.XV International conference "Mössbauer spectroscopy and applications" (Sochi, 2018)
- 12. Международная научная конференция студентов, аспирантов и молодых учёных "Ломоносов-2019" (Москва, 2019)

### Публикации

Результаты работы опубликованы в 9 статьях [A1-A9], индексируемых в базах Web of Science, Scopus, RSCI, в 16 материалах научных конференций и совещаний [A10-A25], также в 5 электронных публикациях [A26-A30].

### Личный вклад автора

Автором совместно с научным руководителем были сформулированы цели и задачи научного исследования. Изложенные в диссертационной работе результаты получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор проводил измерения магнитных многослойных структур на станции ID18 Европейского синхротрона методом ядерно-резонансной рефлектометрии. Для обработки экспериментальных данных автор выполнил разработку и модернизацию вычислительных программ и проводил численное моделирование. Интерпретацию данных и оформление результатов автор проводил совместно с научным руководителем.

### Структура и объем диссертационной работы

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, основных выводов и содержит 152 страниц, 70 рисунков, 2 таблицы и список литературы из 154 наименований.

<u>Первая глава</u> содержит обзор литературы по теме диссертационной работы.

Во второй главе представлена теория ядерно-резонансной рефлектометрии с учетом  $\pi$ -поляризованного излучения от SMS (Synchrotron Mössbauer Source). Проанализированы особенности мёссбауэровских спектров отражения от многослойных структур с разным типом межслойного упорядочения: ферромагнитного, антиферромагнитного, Впервые неколлинеарного. получены экспериментальные данные по ядерно-резонансной рефлектометрии на энергетической шкале. Показаны преимущества метода для исследования сложных структур: кластерно-слоистых, структур с антиферромагнитным и со спиральным межслойным упорядочением.

<u>В третей главе</u> показаны особенности селекции по поляризации отраженного излучения в ядерно-резонансной рефлектометрии. Показаны преимущества регистрации «повернутой» поляризационной компоненты  $(\pi \rightarrow \sigma)$ 

отраженного излучения: более простой вид мёссбауэровских спектров отражения, увеличение селективности по глубине. Впервые применен поляризационный анализ в ядерно-резонансной и в резонансной магнитной рефлектометрии: зарегистрирован характерный пик в критическом угле для "повернутой" поляризации. Измерены мёсбауэровские спектры отражения с селекцией по поляризации.

<u>В четвертой главе</u> проанализированы особенности ядерно-резонансной рефлектометрии и временных спектров ядерно-резонансного отражения на изотопе <sup>161</sup>Dy с учетом о-поляризованного падающего излучения. Впервые проведен эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии на изотопе <sup>161</sup>Dy. В многослойной пленке [Dy/Gd]<sub>n</sub> обнаружена периодическая магнитная структура, магнитный период которой несоразмерен химическому.

### Глава І. Литературный обзор

### § 1. Поляризационные эффекты в рентгеновской оптике

#### Поляризационные эффекты в нерезонансном рентгеновском рассеянии

Ключевым моментом исследования магнетизма с помощью электромагнитного или нейтронного излучения является поляризация излучения. Взаимодействие рентгеновского излучения с магнитными моментами атомов зависит от векторного потенциала излучения **A**, а гамильтониан взаимодействия различен для спиновой и орбитальной составляющих магнитного момента [1]:

$$H = \sum_{j} \frac{1}{2m} \left( \mathbf{p}_{j} - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_{j}) \right)^{2} + \sum_{ij} \frac{1}{2m} V(\mathbf{r}_{ij}) - \frac{e\hbar}{2mc} \sum_{ij} \frac{1}{2m} \mathbf{s}_{j} \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}_{j}) - \frac{e\hbar}{2(mc)^{2}} \sum_{j} \mathbf{s}_{j} \mathbf{E}(\mathbf{r}_{j}) \times \left( \mathbf{p}_{j} - \frac{e}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_{j}) \right) + \sum_{\mathbf{k}\lambda} \hbar \omega_{k} \left( c^{+}(\mathbf{k}\lambda) c(\mathbf{k}\lambda) + \frac{1}{2} \right), \quad (I.1.1)$$

где *е*, *m* заряд и масса электрона, **p**, **s** – импульс и оператор спина, **A** – векторный потенциал  $\mathbf{E} = -\nabla \Phi - \left(\frac{1}{c}\right) \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ ,  $\Phi$  – скалярный потенциал,

 $V(\mathbf{r})$  – потенциал внешнего поля, в котором находится электрон,  $c^+(\mathbf{k}\lambda)$ ,  $c(\mathbf{k}\lambda)$  -операторы рождения и уничтожения фотона,  $\mathbf{k}$  – волновой вектор фотона,  $h\omega_k$  – энергия фотона.

Амплитуда нерезонансного рентгеновского рассеяния в первом порядке по **k** может быть представлена следующим образом [2,3]:

$$f(\mathbf{Q}) = f^{charge} + f^{mag} =$$

$$= r_0 \left\langle a \left| \sum_{j} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}_j} \right| a \right\rangle \mathbf{e} \cdot \mathbf{e} - r_0 \frac{i\hbar\omega}{mc^2} \left\langle a \left| \sum_{j} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}_j} \left( i\frac{\mathbf{Q} \times \mathbf{p}_j}{\hbar k^2} \cdot \mathbf{A} + \mathbf{s}_j \cdot \mathbf{B} \right) \right| a \right\rangle, \quad (I.1.2)$$

где  $f^{charge}$  – амплитуда зарядового рассеяния на электронах,  $f^{mag}$  - амплитуда с учетом взаимодействия излучения с орбитальным (зависящим от

импульса  $\mathbf{p}_j$ ) и спиновым моментом  $\mathbf{s}_j$  электронов в атоме. j – число электронов в атоме.  $\mathbf{Q}=\mathbf{k}\cdot\mathbf{k}$  – вектор рассеяния,  $\mathbf{r}_0$  – классический радиус электрона,  $\mathbf{e}$ ,  $\mathbf{e}$  – поляризационные орты для падающего и рассеянного излучения. **A** и **B** в (I.1.2) поляризационные матрицы записываемые в виде:  $\mathbf{A} = \mathbf{e} \times \mathbf{e}$ ,  $\mathbf{B} = \mathbf{e} \times \mathbf{e} + (\hat{\mathbf{k}} \times \mathbf{e})(\hat{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{e}) - (\hat{\mathbf{k}} \times \mathbf{e})(\hat{\mathbf{k}} \times \mathbf{e})$ .

В системе координат, представленной на Рис. 1.1.1, матрицы, описывающие поляризационные зависимости для орбитальной и спиновой составляющей, могут быть записаны в σ,π-ортах следующим образом:

$$\frac{1}{2}\mathbf{L}\cdot\mathbf{A} = 2(\sin^2\theta) \begin{pmatrix} 0 & -(\cos\theta)L_1\\ (\cos\theta)L_1 & (\sin 2\theta)L_2 \end{pmatrix}, \qquad (I.1.3)$$

$$\mathbf{S} \cdot \mathbf{B} = \begin{pmatrix} (\sin 2\theta) S_2 & -2(\sin^2 \theta)[(\cos \theta) S_1 - (\sin \theta) S_3] \\ 2(\sin^2 \theta)[(\cos \theta) S_1 + (\sin \theta) S_3] & (\sin 2\theta) S_2 \end{pmatrix}, (II.1.4)$$

где  $\theta$  угол падения, S<sub>i</sub>, L<sub>i</sub> проекции спинового и углового момента на базис U<sub>i</sub> (Рис 1.1.1). В формулах (I.1.3), (I.1.4) диагональные члены отвечают за рассеяние без поворота поляризации ( $\sigma \rightarrow \sigma$ `,  $\pi \rightarrow \pi$ `), а недиагональные за рассеяние с поворотом поляризации ( $\sigma \rightarrow \pi$ `,  $\pi \rightarrow \sigma$ `).



Рис. 1.1.1. Геометрия рассеяния к формулам (I.1.2)-(I.1.4),  $\hat{e}_{\perp}, \hat{e}_{\parallel}$  соответствуют  $\sigma$ ,  $\pi$ -ортам. Из работы [3].

Из (I.1.3), (I.1.4) следует, что при рассеянии на атомах с противоположным направлением магнитного момента амплитуда магнитного нерезонансного рассеяния изменяет знак, и, следовательно, период для магнитного рассеяния удваивается на антиферромагнитных структурах. Еще лабораторном источнике рентгеновского В 1972 году на излучения наблюдались магнитные дифракционные пики (1/2 1/2 1/2) и (3/2 3/2 3/2) от антиферромагнитного кристалла NiO (Рис. 1.1.2) [4], и впервые была продемонстрирована чувствительность рентгеновского излучения к магнитной структуре, хотя эффект был чрезвычайно малым: ~ 10<sup>-7</sup> к зарядовому рассеянию.



Рис. 1.1.2. Отражения (1/2 1/2 1/2) и (3/2 3/2 3/2) от кристалла NiO при температуре 25°С и 275°С. Из работы [4].

Синхротронные источники, обладающие уникальной яркостью, активизировали эксперименты по рентгеновской магнитной дифракции. Кроме того, синхротронное излучение имеет практически 100% линейную поляризацию в плоскости орбиты. Это открывает возможность проводить анализ изменения поляризации при рассеянии, что существенно расширяет возможность структурных и магнитных рентгеновских исследований.

Такой анализ поляризации дифрагированного излучения, например, решил задачу о происхождении добавочного сателлита, возникающего при дифракции на кристалле гольмия [5], характеризующегося при низких температурах спиральным магнитным упорядочением (Рис. 1.1.3 (а)). Вблизи отражения (004) было обнаружено два дифракционных сателлита (Рис.1.1.3 (b)). Поляризационный анализ рассеянного излучения показал чисто магнитную природу только одного из сателлитов (левый пик на Рис. 1.1.3 (b)), в то время как второй пик был обусловлен тетрагональным искажением кристаллической решетки.



Рис. 1.1.3. (а) Схематическое изображения спиральной структуры в гольмии. Из работы [6]. (b) Рассеяние вблизи 004 дифракционного пика гольмия при 17К. Незакрашенные символы показывают рассеяние без селекции по поляризации, закрашенные – с анализом по поляризации σ→π`. Из работы [5].

Измерения степени поляризации отраженного излучения В дифракционных сателлитах показали, что магнитное рассеяние в основном орбитальным определяется [7, 8]: магнитным гольмия моментом интенсивность дифракционного сателлита σ→π` существенно превышала интенсивность  $\sigma \rightarrow \sigma$  сателлита. А в работе [9] был определен количественно вклад орбитального магнитного момента (17±3%) в общую намагниченность NiO с использованием поляризационного анализа отраженного излучения.

### Рентгеновский магнитный круговой дихроизм

Современные синхротронные станции предоставляют возможности работы с любой поляризацией излучения, а широкий энергетический спектр позволяет проводить исследования практически с любой длиной волны. Наибольший интерес представляют края поглощения различных элементов, рассеяние для таких энергий фотонов носит резонансный характер. При этом происходит переход электронов из внутренних оболочек атомов на незаполненные внешние, так что этот резонансный переход фактически тестирует внешнюю оболочку атомов, включая ее магнитное состояние. Для магнитной информации наиболее эффективно использование излучения круговой поляризации, поскольку при поглощении фотона с круговой поляризацией происходит изменение проекции магнитного момента возбуждаемого электрона на ±1. А возможность такому электрону занять место на внешней оболочке зависит от наличия вакантных мест для электрона с имеющимся спином, который не меняется при переходе. Незанятые места на внешней оболочке могут быть только для электронов с определенным спином. Но именно такие незанятые состояния и определяют магнитный момент атома.

Таким образом, эффект в различии поглощения фотонов правой и левой круговой поляризации (XMCD - X-ray magnetic circular dichroism) быстро стал основой уникального элементно-селективного метода магнитных исследований.

В 1985 году была теоретически предсказан значительный дихроичный эффект в редкоземельных металлах на М<sub>4</sub> и М<sub>5</sub> краях поглощения [10], что было экспериментально подтверждено через год в работе [11], в которой впервые был зарегистрирован сигнал магнитного дихроизма.

В области мягкого рентгена магнитный круговой дихроизм впервые наблюдался на L<sub>2</sub> и L<sub>3</sub> краях поглощения Ni [12].

В 1992-1993 годах было выведено магнето оптическое правило сумм [13,14], позволяющее из спектров XMCD на  $L_2$  и  $L_3$  краях определить по

14

отдельности величину орбитального и спинового момента атома. Экспериментальное подтверждение было представлено для кобальта и железа в работе [15].

В 1993 был зарегистрирован сильный сигнал от гематита (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) на L<sub>2</sub> и L<sub>3</sub> краях поглощения железа [16]. В [17] был экспериментально показан дихроичный сигнал на L<sub>2</sub> и L<sub>3</sub> для целого ряда переходных элементов: Fe, Co, Cr, V (Puc 1.1.4) в объемных образцах и многослойных структурах.



Рис. 1.1.4. Спектры поглощения и сигнал XMCD на краю поглощения кобальта в образце Fe(2.5 нм)/Fe(20. нм)/FeCo(5 нм)/Co(5 нм), железа в образце Fe(2.5 нм)/Fe(20 нм), хрома в образце  $Cr(2.5 \text{ нм})/Cr(1.5 \text{ нм})/[Cr(0.15 \text{ нм})/Fe(0.75 \text{ нм})]_{40}$  и ванадия в образце  $Cr(2.5 \text{ нм})/Cr(1.5 \text{ нм})/[V(0.15 \text{ нм})/Fe(0.75 \text{ нм})]_{40}$ . Из работы [17].

Методом XMCD на L<sub>2,3</sub> краях поглощения кобальта было обнаружено существование магнитной анизотропии в системе Au/Co/Au [18] и показана зависимость эффекта от толщины слоя Co.

Так как XMCD является элементно-селективным методом, то он отлично подходит для исследования сложных систем. Так, например, в работах [19, 20] на атомах Pt, которые не являются магнитными, был найден наведенный магнитный момент в соединениях с переходными металлами TM-Pt<sub>3</sub> (TM = Cr, Mn, Co, Fe). Аналогичные эксперименты по обнаружению магнитного момента у атомов немагнитной меди в интерфейсах многословных структур Co/Cu [21, 22] и Fe/Cu [22].

В работе [23] на К-краю поглощение железа был измерен слабый дихроичный сигнал величиной ~10<sup>-4</sup>, обусловленный орбитальным магнитным моментом. А в [24] было представлено теоретическое описание поглощения кругополяризованного излучения в железе на К-краях поглощения.



Рис. 1.1.5. Верхняя часть: спектры поглощения Со для правой и левой круговой поляризации для одномерных цепочек (а), двумерных монослоев (b), и объемного Со (c). Нижняя часть: сигнал XMCD для этих структур. Из работы [25].

Уникальная яркость синхротронного излучения позволяет измерять очень слабые сигналы, например, исследовать одномерные и двумерные системы. например, в [25] методом ХМСD исследовалось магнитное состояние одномерных цепочек кобальта (Со) на платиновой подложке (Pt) и было обнаружено существование дальнего ферромагнитного порядка в цепочках Со (Рис. 1.1.5). Также было зафиксировано значительно изменение соотношения интенсивностей дихроичного сигнала на  $L_2$  и  $L_3$  краях поглощения на разных объектах, соответствующее увеличению орбитального момента атомов кобальта при понижении размерности.

#### Рентгеновский магнитный линейный дихроизм

Более простым в экспериментальной реализации является эффект рентгеновского линейного магнитного дихроизма (XMLD – X-ray magnetic linear dichroism) поскольку синхротронное излучение по своей природе имеет практически 100% линейную поляризацию. В методе XMLD регистрируется разность В коэффициентах поглощения для случаев, когда вектор электрического напряженности излучения параллелен поля И перпендикулярен намагниченности образца. Однако эффект XMLD является существенно меньшим по величине, чем XMCD, т.к. согласно, например, [26, 10] этот эффект является квадратичным по величине магнитного поля. Отметим, что в видимом диапазоне эффект линейного дихроизма был зарегистрирован еще в 1967 году [27].

Теоретические расчеты, представленные в [28], предсказали сильную величину эффекта XMLD для 3d- элементов. В работе [29] были представлены *ab initio* исследования линейного рентгеновского дихроизма для Fe, Co, Ni. Было показано, что сигнал XMLD можно рассчитывать, используя результаты XMCD, так как оба метода характеризуют 3d- валентные оболочки.

17

### Поляризационные особенности в резонансном рассеянии

Дифракция вблизи краев поглощения на излучении круговой и линейной поляризации также демонстрирует более яркую магнитную чувствительность, чем нерезонансное магнитное рассеяние [30].

В работе [2] было теоретически предсказано сильное усиление эффектов магнитного рассеяния вблизи краев поглощения. Первый сигнал резонансного магнитного рассеяния был зарегистрирован при дифракции на монокристалле Ni [31].

В арсениде урана (UAs) наблюдалось огромное ( $10^5$ - $10^7$  относительно нерезонансного рассеяния) усиление магнитного резонансного сигнала на M<sub>4</sub> и M<sub>5</sub> краях поглощения урана [32], а поляризационный анализ рассеянного излучения  $\sigma \rightarrow \sigma$ ` и  $\sigma \rightarrow \pi$ ` показал доминирующий вклад "повернутой" поляризации, согласующейся с [26].

Более подробное описание магнитного резонансного рассеяние с учетом поляризационных особенностей падающего и отраженного излучения, включающее рассеяние на L<sub>2,3</sub>, M<sub>2-5</sub> краях поглощения редкоземельных металлов и актиноидов, а также на L- и К- краях поглощения переходных элементов было представлено в работе [26]. Также большая величина эффекта была предсказана у ферро- и ферримагнитных соединениях с 5d-переходных элементов, соединениях с актиноидами и в редкоземельных соединениях [33].

Поляризационные зависимости амплитуды рассеяния для резонансного случая были представлены в [26, 33, 34]:

$$f_{E1}^{res} \propto F^{(0)} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \cos 2\theta \end{pmatrix} - iF^{(1)} \begin{pmatrix} 0 & M_1 \cos \theta + M_3 \sin \theta \\ M_1 \cos \theta - M_3 \sin \theta & M_2 \sin 2\theta \end{pmatrix}, \quad (I.1.5)$$

$$\begin{split} f_{E2}^{res} \propto F_{E2}^{(0)} \begin{pmatrix} \cos 2\theta & 0 \\ 0 & \cos^2 2\theta \end{pmatrix} - \\ & -i\cos 2\theta F_{E2}^{(1)} \begin{pmatrix} M_2 \tan 2\theta & -M_1 \cos \theta - M_3 \sin \theta \\ -M_3 \sin \theta + M_1 \cos \theta & 2M_2 \cos 2\theta \end{pmatrix} + \end{split}$$

$$+(F_{E2}^{(2)} - F_{E2}^{(0)}) \begin{pmatrix} M_1^2 \cos^2 \theta + M_2^2 \cos 2\theta - M_3^2 \sin^2 \theta & -M_1 M_2 \sin \theta \cos 2\theta + M_2 M_3 \cos \theta \cos 2\theta \\ M_1 M_2 \sin \theta \cos 2\theta + M_2 M_3 \cos \theta \cos 2\theta & \cos^2 2\theta (M_1^2 + M_3^2) \end{pmatrix} + \\ + \sin 2\theta F_{E2}^{(2)} \begin{pmatrix} 0 & -M_1 M_2 \cos \theta - M_2 M_3 \sin \theta \\ M_1 M_2 \cos \theta - M_2 M_3 \sin \theta & -\sin 2\theta (M_1^2 + M_3^2) \end{pmatrix} + \\ + \sin 2\theta F_{E2}^{(0)} \begin{pmatrix} 0 & M_1 M_2 \cos \theta + M_2 M_3 \sin \theta \\ -M_1 M_2 \cos \theta + M_2 M_3 \sin \theta & -M_2^2 \sin 2\theta \end{pmatrix} \end{pmatrix}$$
(I.1.6)

где М<sub>i</sub> направление магнитного момента в той же системе координат, что изображена на Рис. 1.1.1.

Отметим существенное различие между нерезонансным (I.1.2) и резонансным рассеянием (I.1.5-I.1.6). 1) Резонансное рассеянии обладает элементной селективностью. 2) Процессы обладают кардинально разной поляризационной зависимостью. 3) Анализ особенностей поляризационной зависимости в нерезонансном рассеянии позволяет разделить спиновую и орбитальную составляющую при анализе поляризации рассеянного излучения, в то время как в резонансном рассеянии такой анализ возможен с использованием спектральных зависимостей дифракционного отражения. 4) В резонансном рассеянии для перехода Е1 канал σ→о` полностью подавлен с точность до квадратичного по намагниченности вклада. Таким образом, анализ угловых зависимостей и поляризационных особенностей резонансного рассеяния позволяет разделить вклад от E1 и E2 переходов.

Селекция по поляризации отраженного излучения магнитных сателлитов гольмия [8] вблизи  $L_3$  края поглощения показала существенно разную энергетическую зависимость между  $\sigma \rightarrow \sigma$ ` и  $\sigma \rightarrow \pi$ ` каналами рассеяния (Рис 1.1.6).

19



Рис. 1.1.6. (а) Спектр поглощения вблизи  $L_3$  края поглощения Ho. (b-d) Интенсивность магнитных сателитов с селекцией поляризации: закрашенные кружки  $\sigma \rightarrow \pi$ , незакрашенные  $\sigma \rightarrow \sigma$ . Из работы [8].

Поляриметрия позволила разделить вклад квадрупольного  $(1s \rightarrow 3d)$  и дипольного  $(1s \rightarrow 4p)$  резонансного рассеяния от антиферромагнитного образца СоО [35]. Измеренные спектры (Рис. 1.1.7) магнитного отражения  $(1/2 \ 1/2 \ 1/2)$  вблизи края поглощения Со показали для  $\sigma \rightarrow \sigma$ ` резонансный пик в предкрае поглощения Со (при энергии 7.707 кэВ). Так как из (I.1.5- I.1.6) следует, что для Е1 канал рассеяния без поворота поляризации должен быть полностью подавлен, поэтому он соответствовал переходу тип Е2. Второй резонансный пик при более высокой энергии (7.724 кэВ) был обнаружен только в  $\sigma \rightarrow \pi$ ` канале, что означало переход Е1. Ширина резонанса перехода Е1 была существенно больше чем Е2, что соответствует тому, что 4p энергетический уровень шире, чем 3*d*.



Рис. 1.1.7. Спектры магнитного отражения (1/2 1/2 1/2) вблизи К-края поглощения Со с селекцией по поляризации отраженного излучения. Из работы [35].

Наличие двух типов рассеяния было также обнаружено при отражении от антиферромагнитного кристалла  $RbMnF_3$  на К-крае поглощения марганца [36]. А в работе [37] было обнаружено анти-ферроквадрупольное (antiferroquadrupolar order) упорядочение в  $DyB_2C_2$  на атомах диспрозия.

В области мягкого рентгена магнитное резонансное рассеяние наблюдалось впервые на монокристалле железа [38]. В этом эксперименте магнитное поле прикладывалось перпендикулярно плоскости рассеяния, а падающее излучение имело π-поляризацию. Изменения направления поля на противоположное приводило к существенному изменению регистрируемого спектра (T-MOKE эффект). Однако анализ поляризации в данной работе не использовался.

Отметим, что поляризационные особенности излучения проявляются и в запрещенных рефлексах в немагнитных кристаллах, впервые

наблюдаемых в [39-41]. В работах [42-44] представлено теоретическое описание существования таких рефлексов с учетом поляризационных характеристик. В [44] произведено разделение на два типа запрещенных рефлексов: І тип, в котором компоненты тензорного атомного фактора  $F_{xx}=F_{yy}=F_{xy}=0$ , и II тип, в котором  $F_{xx}=-F_{xy}\neq 0$  или/и  $F_{xy}\neq 0$ . Было показано, что интенсивность рефлекса І-го типа обусловлена только вкладом "повернутой" поляризации  $\sigma \rightarrow \pi$ ` ( $\pi \rightarrow \sigma$ `), в то время как канал  $\sigma \rightarrow \sigma$ ` ( $\pi \rightarrow \pi$ `) полностью подавлен. Измерение поляризационной зависимости дифрагированного излучения дает возможность определять компоненты тензора  $F_{ij}$ .

### Резонансной магнитная рефлектометрия

Рентгеновская рефлектометрия является эффективным методом исследования профилей электронной плотности различных многослойных структур. Очевидно, что чувствительность амплитуды рентгеновсокого рассеяния к магнитному состоянию атомов вблизи краев поглощения расширяет возможности метода на исследование магнитного упорядочения и профилей распределения магнитных моментов по глубине магнитных многослойных структур. Эти исследования приобрели в последние годы большое значения, поскольку магнитные пленки являются практически перспективными незаменимыми И материалами В спинтронике, магнитронике сенсорике и т.д.

Уже после первой работы [45] по рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии (XRMR – X-ray resonant magnetic reflectometry), в которой наблюдались магнитные максимумы при отражении от структуры с антиферромагнитным межслойным упорядочением, стало очевидно, что этот метод является мощным конкурентом рефлектометрии поляризованных нейтронов. Важным преимуществом рентгеновской резонансной рефлектометрии является элементная селективность.



Рис. 1.1.8. Магнитные максимумы от многослойной структуры [Ag/Ni] с антиферромагнитным межслойным упорядочением в слоях никеля. Из работы [45].

В методе рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии, в котором измеряется разность зеркально отраженного излучения для право- и лево- кругополяризованного излучения (либо разностью сигнала, когда образец намагничен по и перпендикулярно пучку СИ при использовании падающего линейно поляризованного излучения), дополняет магнитные исследование пространственным разрешением (<1 нм). В работе [46] было получено распределение по глубине наведенного магнитного момента платины при контакте с магнитным кобальтом в системе Pt/Co (Puc. 1.1.9) Для усиление разрешающей способности использовался метод стоячих которые рентгеновских волн [47], формировались нижележащей многослойной структурой.



Рис. 1.1.9. Распределение наведенного магнитного момента Pt и профиль концентрации атомов Co и Pt в интерфейсе. Из работы [47].

Антиферромагнитное межслойное упорядочение было обнаружено в работе [48] многослойной структуре [Со<sub>73</sub>Si<sub>27</sub>(5 нм) / Si (30 нм)]<sub>10</sub>. В работе [49] была продемонстрирована температурная профилей эволюция Gd многослойной намагниченности в слоях структуре В [Gd(5 нм)/Fe(1.5 нм)]<sub>15</sub>(Рис. 1.1.10).



Рис. 1.1.10. Слева: кривые XRMR от  $[Gd(5 \text{ нм})/Fe(1.5 \text{ нм})]_{15}$  на L<sub>2</sub> крае поглощения Gd для различных температур. Справа: распределение намагниченности в слоях Pt теоретические без учета шероховатости интерфейсов (а), полученные из обработки XRMR кривых без учета шероховатости интерфейсов(b), полученные из обработки XRMR кривых без учета шероховатости интерфейсов(c). Из работы [49].

В работе [50] было исследовано обменное взаимодействие Си и Мп в образце [Co/Cu(x)/CuMn/Cu(x)], которое индуцировалась кобальтом. Было показано, что с увеличением толщины слоев Си магнитный момент Мп

уменьшался, это свидетельствовало, о том, что природа магнетизма Cu и Mn кроется в интерфейсах.

Исследование перехода из антиферромагнитного в парамагнитное состояние в системе NdNiO<sub>3</sub> было проделано в [51]. В [52] изучался профиль намагниченности Mn в сверхрешетке CaMnO<sub>3</sub>/CaRuO<sub>3</sub>.

Сложное спиральное закручивание намагниченности в слоях LaNiO<sub>3</sub> и одновременно антиферромагнитное межслойное упорядочение в слоях LaMnO<sub>3</sub> (Рис. 1.1.11) было обнаружено в сверхрешетке LaNiO<sub>3</sub>/LaMnO<sub>3</sub> [53].



Рис. 1.1.11. Сверху: рефлектометрия для правой (синяя) и левой (оранжевая) поляризации на L<sub>2</sub> крае поглощения Ni. Снизу: асимметрия по знаку круговой поляризации (I<sub>+</sub>-I<sub>-</sub>)/(I<sub>+</sub>+I<sub>-</sub>) для магнитного поля направленного по и противоположно направлению СИ. Из работы [53]. Слева: схематичный профиль распределения намагниченности для LaNiO<sub>3</sub>/LaMnO<sub>3</sub>.

В [54] методом XRMR изучали наведенный магнитный момент на платине в бислоях Pt/Fe, Pt/Ni<sub>33</sub>Fe<sub>67</sub>, Pt/Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>, and Pt/Ni. Наличие магнитного момента у гадолиния в многослойных системах [Fe/Gd]<sub>10</sub> при комнатной температуре было зафиксировано в [55]. А совместная обработка рефлектометрия поляризованных нейтронов позволила И проследить температурную зависимость магнитного состояния сверхрешетке В [Fe(3.5 нм)/Gd(5 нм)]<sub>5</sub> с необычайно высокой точностью [56]. Было обнаружено скручивание магнитных моментов в слоях железа и гадолиния при низких температурах.

### § 2. Поляризационные эффекты в мёссбауэровской спектроскопии

Для мёссбауэровского излучения расщепление ядерных уровней означает одновременно и энергетическое разделение поглощенных или переизлученных квантов по их поляризационному состоянию. Теоретический анализ эллиптической поляризации для мёссбауэровских переходов был рассмотрен в работе [57].

В обычной мёссбауэровской спектроскопии радиоактивный источник излучает неполяризованное излучение, поэтому поляризационное состояние различных линий поглощение практически не представляет никакого интереса. Однако поляризационные эффекты проявляются в соотношении интенсивности мёссбауэровских линий. При этом форма спектра характеризует направление намагниченности образца [58].

### Создание поляризованного мёссбауэровского излучения

Экспериментальная реализация мёссбауэровских экспериментов с анализом поляризационных характеристик на лабораторных источниках представляет огромную проблему, связанную с созданием поляризованного излучения. Высокая расходимость излучения (вообще говоря, источник

излучает в 4π стерадиан) приводит к невозможности использования поляризаторов в геометрии отражения, таких как Si(840), Ge(664), LiF(622) для 14.4 кэВ в силу их маленькой угловой апертуры ~1-100 угл. сек.

работе [59] было продемонстрированно, В что с помощью намагничивания радиоактивного источника можно получить поляризованное  $\gamma$ -излучение. Спектр излучения источника <sup>57</sup>Со в решетке  $\alpha$ -Fe состоит в общем случае из шести линий. Если направление магнитного поля, приложенного к источнику, перпендикулярно направлению излучения, то линейно линии испускания являются поляризованными. При ЭТОМ поляризация γ-излучения, соответствующая переходам Δm=0, ортогональна поляризации, соответствующей переходам  $\Delta m = \pm 1$ . Если намагниченность источника параллельна направлению излучения, то спектр состоит из 4-х круго-поляризованных линий, при этом 1-ая и 4-ая линии имеют правую круговую поляризацию, а 3-яя и 6-ая линии левую круговую поляризацию.

такой источник мёссбауэровского излучения Отметим. что В совокупности с поглотителем (образцом) со сверхтонким расщеплением из 6ти линий, вообще говоря, даст 36 линий поглощения. Положение линий в итоговом спектре будет определяться сверткой спектров источника и поглотителя. Если намагниченность источника И поглотителя перпендикулярна направлению излучения, то можно рассмотреть два предельных случая (при этом излучение является линейно-поляризованным): а) когда магнитные поля источника и поглотителя параллельны, то возбуждаются 20 линий; б) когда магнитные поля источника и поглотителя перпендикулярны друг другу – возбуждаются 16 мёссбауэровских линий в спектре. В случае, когда величина расщепления источника и поглотителя равны (например, когда источником является  ${}^{57}$ Co в решетке  $\alpha$ -Fe, а поглотителем фольга α-Fe) число линий сокращается до 9 и 6 соответственно.

Если намагниченность источника параллельна направлению распространению излучения (кругополяризованное излучение) и направления намагниченностей источника и поглотителя коллинеарны, на

<sup>27</sup> 

мёссбауэровском спектре присутствуют 8 линий. Сокращение числа линий по сравнению с линейнополяризованным источником обусловлено тем, что кванты с правой круговой поляризацией поглощаются только на 1-ой и 4-ой линиях поглотителя, а кванты с левой круговой поляризацией только на 3-ей и 6-ой линиях. В случае, когда величина сверхтонкого расщепления источника и поглотителя совпадает число линий в мёссбауэровском спектре и вовсе сокращается до трех.



Рис. 1.2.1. Спектры поглотителей LiNbO<sub>3</sub>-<sup>57</sup>Fe (слева) и <sup>57</sup>FeCO<sub>3</sub> (справа), измеренные с монокристаллическим источником LiNbO<sub>3</sub>-<sup>57</sup>Co, ось *с* которого ориентирована перпендикулярно направлению излучения, для 2х случаев: ось *с* поглотителя ориентирована параллельно оси *с* источника (верхние спектры) и перпендикулярно оси *с* источника (нижние спектры). Из работы [61].

Создание поляризованного излучения возможно также при использовании мёссбауэровксих источников с квадрупольным расщеплением, таких как Be-<sup>57</sup>Co и LiNbO<sub>3</sub>-<sup>57</sup>Co, [60, 61]. Если источник и поглотитель

имеют квадрупольное расщепление уровней, то в мёсбауэровском спектре в общем случае будут присутствовать 4 линии. Однако, если величины квадрупольных расщеплений равны по величине, то число линий сокращается до трех. На Рис. 1.2.1 показаны спектры с источником LiNbO<sub>3</sub>- $^{57}$ Co и поглотителем LiNbO<sub>3</sub>- $^{57}$ Fe [61] для двух различных взаимных ориентаций главных осей градиента электрического поля для источника и поглотителя (в этой структуре главная ось градиента электрического поля для совпадает с осью кристалла *c* [62]).

На Рис 1.2.1 справа представлены спектры с поглотителем FeCO<sub>3</sub>. Величина квадрупольного расщепление для этой структуры практически совпадает с величиной квадрупольного расщепления источника (LiNbO<sub>3</sub>-<sup>57</sup>Со). Заметим, что при взаимно перпендикулярной ориентацией осях с источника и поглотителя линия при v=1.8 мм/с, соответствующая переходу  $\pm 3/2 \leftrightarrow \pm 1/2$  практически полностью подавлена, так как вектор поляризации источником, поляризации испускаемого ортогонален излучения, мёссбауэровского Таким образом, линейно перехода поглотителя. поляризованное проходит без резонансного излучение от источника поглощения.

Важно заметить, что создание источников поляризованного излучения с квадрупольным расщеплением является достаточно сложной задачей, так как для этого нужно вырастить идеальный монокристалл с внедренными атомами кобальта, которые должны находиться в определенном кристаллографическом положении.

Альтернативным способом создания поляризованного мёссбауэровского излучения является использование эффекта дихроизма, при котором некоторые поляризационные компоненты селективно поглощаются ИЗ пучка. В этом методе неполяризованная одиночная линия мёссбауэровского источника приводится в резонанс с одной из шести линий намагниченного поглотителя (поляризатора) из α-Fe. Если намагниченность поляризатора перпендикулярна направлению излучения, а толщина его

29

достаточно большая, то прошедшее γ-излучение является практически полностью линейно поляризованным [63-65]. Кругополяризованное мёссбауэровское излучение можно создать, намагничивая поляризатор параллельно распространению излучения [66]. Для реализации этого метода используется либо мёссбауэровский спектрометр с двумя системами движения (источника и поляризатора) [64], либо подбираются поляризаторы с соответствующим необходимым изомерным сдвигом [65].

## *Мёссбауэровские поляризационные эксперименты с использованием* лабораторного источника

В работе [66] был представлен метод с использованием линейно поляризованного у-излучения для определения ориентации спинов и главной оптической оси градиента электрического поля в поглотителе. В этой работе интенсивности мёссбауэровских исследовалась относительные линий поглощения, получаемых при различных ориентациях монокристаллического образца взаимодействия FeSiF<sub>6</sub>·6H<sub>2</sub>O с наличием квадрупольного относительно направления излучения мёссбауэровского источника. Аналогичный эксперимент был произведен с магнитным расщеплением Ca(Fe) [Fe]  $O_5$  [66].

В работе [67] с использованием поляризованного излучения были измерены мёссбауэровские спектры системы Ru-Fe (Puc. 1.2.2) для резонансного перехода <sup>99</sup>Ru (90 кэВ). Выделение поляризации было осуществлено при помощи дополнительного покоящегося поглотителя Ru-Fe (поляризатора), намагниченного перпендикулярно направлению излучения. Отметим, что в этом случае поляризация излучения для энергий, соответствующих переходу  $\Delta m=0$ , ортогональна поляризации для переходов  $\Delta m=\pm1$ , а в нерезонансной области излучение является неполяризованным.

Поляризационные зависимости мёссбауэровского поглощения были теоретически описаны *M. Blume & O. Kistner* [68] с помощью 2х2 матриц показателя преломления. Авторы ввели также математические операции с 30

этими матрицами, в частности, описали процедуру возведения экспоненты в *p<sup>inkz</sup>* c помощью спиновых матриц Паули. степень Если изменения поляризации при распространении в среде описываются матричным экспоненциалом, то, очевидно, что результат преобразования поляризации и интенсивности излучения последовательно расположенных для двух поглотителей будет различным при перестановке поглотителей местами, поскольку матричные экспоненциалы в общем случае некоммутативны, что нарушает принцип взаимности. Это обстоятельство было экспериментально проверено в работе [69], выполненной на линейно поляризованном качестве поглотителя использовалась пластинка железа. излучении, в Прошедшее излучение также селектировалось по σ-поляризации, a измерения проходили BO временном режиме (по времени распада резонансных ядер – см. далее), и соответствовали результатам, полученным в [67] (Рис. 1.2.2).



Рис. 1.2.2. Мёссбауэровский спектр поглощения образца 4.8 at.% Ru<sup>99</sup> в Fe. Мёссбауэровский источник: Rh<sup>99</sup> в решетке Ru<sup>104</sup>. (a) Образец ненамагничен, (b) образец намагничен перпендикулярно направлению распространения излучения, (c) образец намагничен под 54.75°. Из работы [67].

В работах [63, 64] выделение поляризованного излучения осуществлялось для резонансного перехода  $\Delta m=0$ . Источник двигался с постоянной скоростью v=3.1 мм/с, а выделение поляризации осуществлялось с помощью фольги <sup>57</sup>Fe, намагниченной перпендикулярно направлению  $\gamma$ -излучения в горизонтальной плоскости (Рис. 1.2.3). В такой геометрии эксперимента кванты с  $\pi$ -поляризацией для перехода  $\Delta m=0$  поглощались, и в итоге получалось  $\sigma$ -поляризованное излучение. Был продемонстрирован эффект вращения плоскости поляризации (эффект Фарадея) при прохождении через мёссбауэровскую среду <sup>57</sup>Fe для резонансного перехода  $\Delta m=0$  (Рис. 1.2.3).



Рис. 1.2.3 Сверху: экспериментальная схема регистрации эффекта Фарадея при прохождении через мёссбауэровскую среду. Снизу: зависимость интенсивности в зависимости от угла поворота поляризатора (направления намагниченности поляризатора) без поглотителя (а), с образцом <sup>57</sup>Fe без внешнего магнитного поля (b), с образцом <sup>57</sup>Fe, намагниченным параллельно направлению излучения (c). Из работы [63].

Эксперименты по наблюдению Фарадеевского вращения были проведены на образце ферримагнетика MgFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [70] после теоретического анализа проблемы в [71].



Рис. 1.2.4. Слева: схема мёссбауэровского поляриметра. Справа: зависимость интенсивности от угла поворота анализатора. Из работы [72].

В [72] был проделан эксперимент с использованием мёссбауэровского поляриметра, состоящего из радиоактивного источника <sup>57</sup>Со в решетке α-Fe и α-Fe анализатора, намагниченных перпендикулярно направлению излучения (Puc. 1.2.4). Анализатор мог вращаться относительно оси, совпадающей с направлением распространения излучения. Исследовалась зависимости интенсивности прошедшего излучения от угла поворота анализатора. Результирующая кривая описывалась законом Малюса. Отметим, что, поскольку линии источника и поглотителя совпадали, вибраторы скоростей для создания доплеровского сдвига в этой работе не использовались.

### Мёссбауэровские эксперименты на синхротронах

Использование синхротронного излучения (СИ), которое по своей природе является практически полностью линейно поляризованным, существенно расширяет возможности мёссбауэровских (ядерно-резонансных экспериментов) экспериментов. В большинстве таких экспериментов используется техника временной задержки: после короткого импульса СИ регистрируется временная картина задержанного отклика от возбужденных ядер [73, 74], и это позволяет отделить электронное рассеяние, от рассеяния на ядрах. На таком временном мёссбауэровском спектре сверхтонкое расщепление ядерных уровней приводит к так называемым квантовым биениям, и поляризационные состояния различных сверхтонких компонент являются чрезвычайно важными, т. к. они определяют результат их интерференции: волны с ортогональной друг другу поляризацией не интерферируют, точнее их интерференция не появляется в интенсивности рассеянного излучения.



Рис. 1.2.5. Временные мёссбауэровские спектры (В) рассеяния вперед и соответствующие энергетические спектры (А) на фольге <sup>57</sup>Fe для различной ориентации сверхтонкого поля B<sub>hf</sub> относительно синхротронного излучения. Из работы [75].

В случае, когда направление сверхтонкого поля параллельно вектору поляризации синхротронного излучения H<sub>hf</sub> || х на Рис. 1.2.5 (следует учитывать, что в случае с <sup>57</sup>Fe возбуждается переход типа M1) возбуждаются 4 сверхтонких перехода с линейными поляризациями, которые могут интерферировать между собой, в результате чего для симметричного спектра наблюдается сложная картина квантовых биений в которой присутствует 4 частоты [75]. Однако, когда намагниченность образца <sup>57</sup>Fe параллельна синхротронному пучку (случай H<sub>hf</sub> || z на Рис 1.2.5), то 4 сверхтонких перехода возбужденных σ-поляризованным СИ дают только одну частоту квантовых биений, т. к. возбуждающиеся правая и левая круговые Поэтому поляризации, являющиеся ортогональными друг другу. интерференционный член подавлен.

Изменение частотного состава временных спектров отражения под действием приложенного поля, измеренных при трех углах скольжения для многослойной структуры [<sup>57</sup>Fe (3.0 нм)/Cr (1.2 нм)]<sub>10</sub> с антиферроманитным межслойным упорядочением, позволило в работе [76] проследить послойное изменение направления сверхтонкого поля (Рис. 1.2.6).



Рис. 1.2.6. Слева: временные спектры ядерно-резонансного отражения от [<sup>57</sup>Fe (3.0 нм)/Cr (1.2 нм)]<sub>10</sub>, измеренные при трех углах скольжения при различном магнитном поле. Справа: Направление намагниченности в каждом слое Fe в функции приложенного поля. Из работы [76]

Зарегистрировать все частоты квантовых биений Рис 1.2.7 (а,б) для случая, когда намагниченность образца параллельна СИ позволяет селекция по поляризации рассеянного излучения [77, 78], т.к. линейная поляризация, возникающая в результате когерентного сложения двух круговых поляризаций, вращается со временем задержки (Рис. 1.2.7 (в)).



Рис. 1.2.7. Временные мёссбауэровские спектры рассеяния вперед без селекции (а) и с селекцией (б) по поляризации. Вращение плоскости поляризации рассеянного излучения (в). Из работы [77].

Отметим, что так как СИ обладает уникально малой расходимостью (~3µrad), то селекция по поляризации может осуществляется при помощи
идеальных кристаллов в геометрии отражения, например Si(840) для 14.4 кэВ, что существенно расширяет экспериментальные возможности. В отличие от использования намагниченного поглотителя в качестве анализатора (поляризатора) [63-65] выделение поляризации происходит не для отдельных резонансных переходов, а сразу для всего энергетического диапазона мёссбауэровского спектра.

Селекция по поляризации рассеянного излучения помогает отделить временной сигнал ядерного рассеяния от гигантского мгновенного сигнала электронного рассеяния [79-81]. Электронное рассеяние не меняет поляризацию падающего излучения, в то время как, рассеяние на ядрах может давать поляризацию, ортогональную к падающей. Таким образом, эффективно селекция ПО поляризации дает возможность подавлять нерезонансное электронное рассеяние, что позволяет измерять спектры практически сразу после мгновенного импульса СИ [79, 80]. Данный способ регистрации особенно актуален для мёссбауэровских изотопов с коротким временем жизни возбужденного уровня.

### Поляризационные эффекты в мёссбауэровской дифракции

Отсутствие интерференции между ортогональными круговыми поляризациями приводит к возникновению запрещенных отражений в мёссбауэровской дифракции. В работах [82-86] было предсказано существование максимумов дифракции магнитных при В антиферромагнитном кристалле с мёссбауэрским изотопом. В работе [87] наблюдалось брэгговское отражение (111), которое является запрещенным в электронной дифракции, от гематита при дифракции резонансного мёссбауэровского излучения. Наблюдение данного эффекта впоследствии привело выделению 4-х компонентного спектра при дифракции от железоиттриевого граната (YIG) из практически белого (по отношению к ширине мёссбауэровского резонанса) спектра СИ [73], а в последствии, путем нагревания кристалла FeBO<sub>3</sub> до температуры Нееля, к выделению одиночной

37

линии шириной и созданию ядерного монохроматора (SMS) [88]. Сразу же были экспериментально продемонстрированы преимущества использования поляризованного излучения в мёссбауэровских экспериментах: в зависимости от ориентации намагниченности фольги <sup>57</sup>Fe относительно пучка СИ мёссбауэровский спектр состоял из 2-х, 4-х или 6-ти линий, в то время как при использовании лабораторного неполяризованного источника всегда возбуждаются сразу 4 или 6 сверхтонких перехода, что дает существенно меньшую информацию о направлении сверхтонких полей. В настоящее время такие монохроматоры используются на синхротронах SPring-8 (Япония) [89-91] и ESRF (Франция) [92].

#### Эксперименты с использованием круговой поляризации

Мёссабуэровские эксперименты С использованием падающего кругополяризованного излучения представлены в эксклюзивных работах. В работе [93] в геометрии зеркального отражения исследовался образец <sup>56</sup>Fe(5 нм)/Cr(1.1 нм)/<sup>57</sup>Fe(5 нм)/Cr(1.1 нм)/<sup>56</sup>Fe(5 нм) для определения знака сверхтонкого поля (при использовании линейно поляризованного излучения ориентация сверхтонкого поля определяется с точностью до знака). Для линейно выделения круговой поляризации ИЗ поляризованного СИ использовалось брэгговское отражение (111) от монокристалла алмаза в геометрии Лауэ на пропускание («четвертьволновая фазовая пластинка»). Отклонение от точного угла Брэгга давало 87% кругополяризованное излучение. При использовании кругополяризованного излучения В магнитноупорядоченном образце возбуждаются либо 1 и 4 линии для правой поляризации, либо 3 и 6 для левой. Так как расстояния между этими линиями одинаковы, то на картине квантовых биений присутствует лишь одна частота, и результат является неразличимы. Для детерминирования результата использовался дополнительный поглотитель из нержавеющей стали SS, с одиночной мёссбауэровской линией, который приводился в постоянное движение для смещения резонансной линии на -5.6 мм/с.

38

Интерференция одиночной линии поглотителя и линий образца давала две дополнительные частоты в квантовых биениях. Это позволило однозначно определить ориентацию сверхтонкого поля. В результате была получена селективная кривая намагниченности для тестерного слоя <sup>57</sup>Fe в середине всей структуры (Рис 1.2.8а), которая существенно отличалась от интегральной кривой намагниченности от всего образца (Рис 1.2.8b), что означало существование сложной неколлинеарной структуры в слоях железа в образце (Рис. 1.2.8с).



Рис. 1.2.8. Слева: Временные мёссбауэровские спектры ядерно-резонансного отражения измеренные с линейной и круговой поляризацией от образца <sup>56</sup>Fe(5 нм)/Cr(1.1 нм)/ <sup>57</sup>Fe(5 нм)/Cr(1.1 нм) <sup>56</sup>/Fe(5 нм). Справа: (а) Изотоп селективная кривая намагниченности от центрального слоя <sup>57</sup>Fe (5 нм); (б) Макроскопическая кривая намагниченности (от всех слоев). Угол между направлением намагниченности между центральным слоем <sup>57</sup>Fe и внешними слоями <sup>56</sup>Fe. Из работы [93].

На энергетической шкале измерений мёссбауэровский эксперимент с использованием круговой поляризации был проведен в работе [94]. Было показано, что для правой круговой поляризации возбуждаются 1-ая и 4-ая линии в мёссбауэровском секстете, а для левой 3-ая и 6-ая.

## Основные результаты Главы І

Обзор исследований показывает, что использование поляризационных свойств излучения является ключевым фактором в рентгеновских магнитных исследованиях. Использование линейной или круговой поляризации падающего излучения, а также поляризационный анализ рассеянного излучения позволяют получить уникальную информацию о магнитных свойствах веществ, восстановить структуру магнитного упорядочения, разделить спиновый и орбитальный вклад и т.д.

В мёссбауэровской спектроскопии ввиду сложности создания и анализа поляризованного ү-излучения от радиоактивного источника поляризационные исследования представлены в эксклюзивных работах, и только в геометрии прохождения. Синхротронное излучение позволяет в полной мере использовать поляризационные свойства излучения, однако, до недавнего времени ядерно-резонансные эксперименты были доступны только на временной шкале измерения.

# Глава II. Поляризационные особенности мёссбауэровских спектров отражения

## § 1. Общая характеристика мёссбауэровской рефлектометрии

Задача о распространении излучения в анизотропной плоско-слоистой структуре представима в виде [95, 96]:

$$\frac{d}{dz} \begin{pmatrix} \mathbf{H}_{t}(z) \\ [\mathbf{q}\mathbf{E}(z)] \end{pmatrix} = i \frac{\omega}{c} \hat{M}(z) \begin{pmatrix} \mathbf{H}_{t}(z) \\ [\mathbf{q}\mathbf{E}(z)] \end{pmatrix}, \quad (II.1.1)$$

где  $\hat{M}$  – дифференциальная матрица распространения излучения в анизотропной среде, **q** – единичный вектор нормали к поверхности, **H**<sub>t</sub>=[**q**[**qH**]], *c* – скорость света в вакууме,  $\omega$  – частота излучения. Поскольку тангенциальные компоненты магнитного и электрического полей излучения непрерывны на границах раздела слоев, в случае многослойной среды интегральная матрица распространения может быть представлена как произведение матричных экспоненциалов отдельных слоев с толщинами *d*<sub>i</sub>, в каждом из которых  $\hat{M}_i(z) = const$ :

$$\hat{L}(D_{\text{total}}) = \exp(i\frac{\omega}{c}\hat{M}_n d_n) \times \exp(i\frac{\omega}{c}\hat{M}_{n-1}d_{n-1}) \dots \exp(i\frac{\omega}{c}\hat{M}_1 d_1). \quad (\text{II}.1.2)$$

Интегральная матрица распространения (II.1.2) связывает тангенциальные компоненты амплитуд пооля на верхней (z=0)И нижней  $(z=d_1+d_2+...+d_n=D_{total})$  границах структуры. Поле на верхней поверхности представляет сумму падающей и отраженной волн, поле на нижней только прошедшую волну. Связь между тангенциальными компонентами электрического и магнитного полей излучения В каждой волне  $\mathbf{q}\mathbf{E}^{0,R,D} = \hat{\gamma}^{0,R,D}\mathbf{H}_t^{0,R,D}$  задана планарным тензором поверхностного импеданса  $\hat{\gamma}^{0,R,D}$ , вычисленном в [96, 97]. 2х2-матрица отражения для тангенциальных компонент магнитного поля излучения  $\mathbf{H}_{t}^{R} = \hat{r}\mathbf{H}_{t}^{0}$  получается в виде:

$$\hat{r} = \left[\hat{\gamma}^{D}(\hat{L}_{1} + \hat{L}_{2}\hat{\gamma}^{R}) - (\hat{L}_{3} + \hat{L}_{4}\hat{\gamma}^{R})\right]^{-I} \left[(\hat{L}_{3} + \hat{L}_{4}\hat{\gamma}^{0}) - \hat{\gamma}^{D}(\hat{L}_{1} + \hat{L}_{2}\hat{\gamma}^{0})\right], \quad (\text{II.1.3})$$
41

где  $\hat{L}_i$  - 2х2 блоки интегральной матрицы .  $\hat{L}(D_{\text{total}}) = \begin{pmatrix} \hat{L}_1 & \hat{L}_2 \\ \hat{L}_3 & \hat{L}_4 \end{pmatrix}$ .

Для случая мёссбауэровского отражения приближенное выражение для дифференциальной матрицы распространения, справедливое при скользящих углах падения излучения, получено в виде [97]:

$$\hat{M}^{M} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ \mathbf{a}\hat{\chi}\mathbf{q} & 0 & 0 & \theta_{0}^{2} + \mathbf{a}\hat{\chi}\mathbf{a} \\ \theta_{0}^{2} + \mathbf{q}\hat{\chi}\mathbf{q} & 0 & 0 & \mathbf{q}\hat{\chi}\mathbf{a} \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix},$$
(II.1.4)

где **a**=[**bq**], **b** – тангенциальная составляющая волнового вектора падающей волны в единицах  $\omega/c$ . Таким образом, мёссбауэровское отражение зависит только от планарной проекции тензора  $\hat{\chi}$  на плоскости, перпендикулярные направлению распространения излучения (Рис. 2.1.1), то есть от  $\hat{\chi}_{\perp} \propto \begin{pmatrix} \mathbf{a}\hat{\chi}\mathbf{a} & \mathbf{a}\hat{\chi}\mathbf{q} \\ \mathbf{q}\hat{\chi}\mathbf{a} & \mathbf{q}\hat{\chi}\mathbf{q} \end{pmatrix}$ , при этом различием направлений волновых векторов

падающей и отраженной волн при скользящих углах пренебрегают.



Рис. 2.1.1. Система координат, описывающая направления векторов **a**, **b**, **q** и направление магнитного поля.

Для вычисления ядерно-резонансного отражения используется восприимчивость резонансной среды, состоящая в соответствии с (II.1.5) из двух частей:

$$\hat{\chi} = \chi^{el} + \hat{\chi}^{nucl}(\omega), \qquad (II.1.5)$$

связанных с рассеянием на электронах  $\chi^{el}$  и на резонансных ядрах  $\hat{\chi}^{nucl}(\omega)$ .

$$\chi_{\nu=\nu'}^{\rm el} = -\frac{\lambda^2}{\pi} r_{\rm e} \sum_{n} \rho_{\rm n} \, (Z_{\rm n} + \Delta f_{\rm n}' + i f_{n}''), \qquad ({\rm II}.1.6)$$

$$\hat{\chi}_{\perp}^{nucl}(\omega) = \frac{\lambda^2}{\pi} \sum_{j} \rho_{j}^{nucl} \left[ f_{j}^{nucl}(\omega) \right]_{\nu,\nu'}, \qquad (II.1.7)$$

 $\rho_{\rm n}$ - объемная плотность атомов n-типа,  $Z_{\rm n}$  их атомный номер,  $\Delta f_{\rm n}$ ,  $\Delta f_{\rm$ 

$$f_{j}^{nucl}(\omega, \nu \to \nu') = = -\frac{1}{2\lambda} \sigma_{res} \frac{2L+1}{2I_{e}+1} f_{j}^{LM} \sum_{m_{e},m_{g}} \frac{\frac{\Gamma_{j}}{2} \left| \left\langle I_{g}m_{g}L\Delta m \middle| I_{e}m_{e} \right\rangle \right|^{2}}{\hbar\omega - E_{jR}(m_{e},m_{g}) + \frac{i\Gamma_{j}}{2}} \left[ \vec{h}_{j\Delta m} \circ \vec{h}_{j\Delta m}^{*} \right]_{\nu \to \nu'}, \quad (\text{II.1.8})$$

где для <sup>57</sup>Fe L=1,  $I_e=3/2$ ,  $I_g=1/2$ ,  $m_e,m_g$  магнитные квантовые числа,  $\Delta m = m_e - m_g = \pm 1, 0, \langle I_g m_g L \Delta m | I_e m_e \rangle$  коэффициенты Клебша-Гордана,  $\sigma_{res}$ =2.56 10<sup>-4</sup> нм<sup>2</sup> сечение резонансного поглощения,  $\lambda = 0.086$  нм, j нумерует тип сверхтонкого взаимодействия (то есть различные мультиплеты в мёссбауэровском спектре),  $f_j^{LM}$  Фактор Лэмба-Мёссбауэра,  $\hat{h}_{\Delta m}$ сферические орты системы осей сверхтонкого взаимодействия  $\vec{h}_x, \vec{h}_y, \vec{h}_z$ :

$$\vec{h}_{\pm 1} = \mp i \frac{\vec{h}_x \pm i \vec{h}_y}{\sqrt{2}}, \ \vec{h}_0 = i \vec{h}_z,$$
 (II.1.9)

Знак • в (II.1.8) обозначает внешнее произведение сферических орт.



Рис. 2.1.2. Теоретические мёссбауэровские спектры зеркального отражения (слева) многослойной  $[{}^{57}\text{Fe}(0.8 \text{ HM})/\text{Cr}(2 \text{ HM})]_{30}$ для структуры с антиферромагнитным межслойным упорядочением в слоях железа В критическом угле, в магнитном максимуме и в первом брэгговском максимуме. Кривая ядерно-резонансного отражения (справа внизу), путем мёссбауэровских полученная интегрирования спектров (заштрихованные области на спектрах) отражения для каждого угла скольжения.

На энергетической шкале измерения ядерно-резонансные рефлектометрические кривые измеряются путем интегрирования по мёссбауровскому спектру отражения при каждом угле скольжения (Рис. 2.1.2):

$$I(\theta) = \int_{\omega_1}^{\omega_2} R(\omega, \theta) d\omega \qquad (II.1.10)$$

где  $\hbar\omega_1 \div \hbar\omega_2$  - интервал, в котором варьируется энергия фотонов падающего монохроматического излучения. Пределы интегрирования могут меняться и

выбираются в зависимости от полного расщепления мёссбауэровских спектров. Это необходимо для повышения резонансного вклада в кривую ядерно-резонансного отражения. Интегрирование может производиться двумя способами: суммированием всех каналов измеряемых спектров для каждого угла скольжения или посредством увеличения ширины линии ядерного монохроматора SMS с помощью небольшого изменения его температуры, при этом весь спектр возбуждается одновременно.

Ядерно-резонансная рефлектометрия, измеренная на энергетической шкале, сильно отличается от ядерно-резонансной рефлектометрии на временной шкале (которая измеряется как интеграл по задержанному сигналу). Ядерно-резонансная рефлектометрия на временной шкале характеризуется "интерференционным пиком" в области критического угла [99, 100], который обусловлен интерференцией между амплитудой ядерно-резонаноного рассеяния и амплитудой рассеяния на электронах.

на энергетической При измерениях шкале ядерно-резонансная рефлектометрия, демонстрирует плато (Рис. 2.1.2) в области полного внешнего отражения (типичное для рентгеновской рефлектометрии). Это свойством френелевского является основным отражения (которая справедливо и для ядерно-резонансного случая), которое стремиться к 1 при При углах θ стремящихся к нулю. малых углах θ модуляция рефлектометрической кривой резонансным поглощением является малой. Отметим, что подобная форма рефлектометрических кривых была показана в работе [101], в которой справедливость формализма Френеля была подтверждена для случая ядерно-резонансного рассеяния. Интерференция амплитуд ядерно-резонансного и электронного рассеяния проявляется как ассиметричное искажения линий в мёссбауэровских спектрах отражения. Данный эффект особо заметен в области критического угла: линии в мёссбауэровском спектре проявляются как минимумы при углах  $\theta$  меньших критического, в области критического угла как кривые дисперсионного вида и как ассиметричные максимумы при углах больших критического [101-103].

45

# § 2. Особенности мёссбауэровских спектров отражения для πполяризованного излучения от ядерного монохроматора SMS

Выпишем в явном виде угловые зависимости матрицы поперечного тензора  $\hat{\chi}_{\perp}^{nucl}(\omega)$  (II.1.7) в  $\sigma$ - и  $\pi$ -поляризационных ортах для дипольных мессбауэровсикх переходов с  $\Delta m=\pm 1,0$ , представленных в (II.1.8) как внешнее произведение сферических векторов:

$$\hat{\chi}_{\Delta m=0}^{\perp} \propto \begin{pmatrix} \sin^2\beta\cos^2\gamma & -\sin\beta\cos\beta\cos\gamma \\ -\sin\beta\cos\beta\cos\gamma & \cos^2\beta \end{pmatrix}$$
(II.2.1)

$$\hat{\chi}_{\Delta m=\pm 1}^{\perp} \propto \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \sin^2 \gamma + \cos^2 \gamma \cos^2 \beta & (\cos \beta \cos \gamma \mp i \sin \gamma) \sin \beta \\ (\cos \beta \cos \gamma \pm i \sin \gamma) \sin \beta & \sin^2 \beta \end{pmatrix}, \quad (II.2.2)$$

где  $\beta$  and  $\gamma$  полярный и азимутальный углы, определяющие направление сверхтонкого магнитного поля **B**<sub>hf</sub> относительно поверхности образца и направления пучка (Рис 2.2.1).



Рис. 2.2.1. Система координат и углы, описывающие направление сверхтонкого магнитного поля **B**<sub>hf</sub>.

Более точно угловые зависимости амплитуды рассеяния должны определятся для волновых векторов  $\mathbf{k}_o$  и  $\mathbf{k}_R$ , но в экспериментах по мёссбауэровской рефлектометрии угол падения  $\theta$  и угол отражения являются малыми( $\theta < 1^\circ \div 2^\circ$ ), поэтому для угловых зависимостей амплитуд

рассеяния ( $\sim \sin\beta, \cos\beta$ ) отличием  $\mathbf{k}_o$  и  $\mathbf{k}_R$  от направления вдоль поверхности можно пренебречь.

Для 14.4 кэВ М1 ядерного перехода <sup>57</sup>Fe матрицы (II.2.1) и (II.2.2) следует рассматривать для магнитного поля излучения, которое соответствует случаю  $\pi$ -,  $\sigma$ -поляризации для  $\sigma$ -,  $\pi$ -электрического поля излучения. Излучение ядерного монохроматора SMS практически полностью π-поляризовано [92], таким образом вектор-столбец магнитного поля излучения для падающего π-поляризованного излучения представим как  $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ , и первый столбец в (II.2.1), (II.2.2) описывает зависимость  $f_{\Delta m}^{nuc}$ амплитуды ядерно-резонансного рассеяния направления OT сверхтонкого магнитного поляризационные свойства поля И при

Результаты расчетов, представленных Рис. 2.2.2, показывают изменение формы спектров отражения, при варьировании направления магнитного сверхтонкого поля **B**<sub>hf</sub> в плоскости поверхности образца.

использовании ядерного монохроматора.

Расчеты показывают, что для  $\pi$ -поляризованного излучения имеются существенные изменения формы мёссбауэровских спектров отражения в зависимости от азимутального угла  $\gamma$ . В продольной геометрии ( $\mathbf{B}_{hf} \parallel \mathbf{k}$ ,  $\gamma=90^{\circ}$ ) присутствуют 1-я, 3-я, 4-я, 6-я линии в спектре, и полное расщепление спектра обусловлено расстоянием между 1-ой и 6-ой линиями. В поперечной геометрии ( $\mathbf{B}_{hf} \perp \mathbf{k}$ ,  $\gamma=0^{\circ}$ ) в мёссбауэровском секстете присутствуют только 2-я и 5-я лини. Когда азимутальный угол находится между значениями  $\gamma=0.90^{\circ}$  в спектр отражения вносят вклад все шесть линий. Расчеты также показывают, что случай, когда сверхтонкое поле распределено случайно в пространстве неотличим от случая, когда сверхтонкое поле лежит в плоскости поверхности при азимутальном угле  $\gamma=56.4^{\circ}$ . А распределение случайного в плоскости неотличимо от случая  $\gamma=46.7^{\circ}$ .



Рис. 2.2.2. Модельные расчеты формы мёссбауэровского спектра отражения для угла скольжения  $\theta = 0.16^{\circ}$  при различий ориентации сверхтонкого поля (рассмотрение для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения). Спектры нормированы и смещены по вертикали. Расчет проведен с использованием следующих параметров: величина магнитного сверхтонкого поля  $\mathbf{B}_{\rm hf} = 16$  T, уширение линии  $\Delta \mathbf{B}_{\rm hf} = 1$  T, изомерный сдвиг  $\delta = 0$ , градиент электрического поля  $\Delta \mathbf{E}_{\rm q} = 0$ , электронная восприимчивость  $\chi = (-13+i0.5) \cdot 10^{-6}$ .

Расчеты, результаты которых представлены на Рис. 2.2.2. и далее, проводились в рамках точного решения задачи на отражение, алгоритм которого описан в первом параграфе и реализован в компьютерном коде [104], однако, в кинематическом приближении угловые зависимости линий в мессбауэровских спектрах отражения можно описывать зависимостями амплитуды ядерно-резонансного рассеяния (II.2.1)-(II.2.2), и, как мы видим, качественно расчеты соответствуют формулам (II.2.1)-(II.2.2). Отметим что электронное рассеяние всегда учитывается В полной также, восприимчивости (II.1.5) при точных расчетах, но электронное рассеяние при скользящих углах приводит только к асимметрии спектров отражения и слабо влияет на соотношение линий в этих спектрах.

Аналогичные расчеты были проведены в работах [75,105,106] для  $\sigma$ поляризованного синхротронного излучения при рассмотрении временных спектров ядерно-резонансного отражения. В этих работах было показано, что в случае если магнитное сверхтонкое поле лежит в плоскости поверхности образца, то в резонансных спектрах отражения присутствуют всегда 4 линии вне зависимости от азимутального угла  $\gamma$  (но квантовые биения на временных спектрах, определяемые интерференцией этих линий, изменяются при разных углах  $\gamma$ ).

Для периодической многослойной структуры, в которой магнитный период в два раза больше химического периода *D*, можно использовать структурную амплитуду магнитного периода для ядерно-резонансного рассеяния:

$$F_{\Delta m}^{nuc} = f_{\Delta m}^{nuc}(\beta_1, \gamma_1) + f_{\Delta m}^{nuc}(\beta_2, \gamma_2)e^{2i\phi} , \qquad (II.2.3)$$

где  $2\phi \approx \frac{4\pi D}{\lambda} \sin \theta$ . Фазовая разница между волнами, отраженными двумя последующими магнитными слоями в периоде равна  $2\phi = 2\pi, 4\pi$  для брэгговсих (структурных) максимумов на рефлектометрической кривой (и при критическом угле, где  $2\phi \approx 0$ ) и  $2\phi = \pi, 3\pi, ...$  для "магнитных" максимумов полуцелого порядка с индексами 1/2, 3/2 и т.д.

Угловые и поляризационные зависимости структурной амплитуды в случаях неколлинеарного ( $\gamma_2 \neq \gamma_1 + 180^\circ$ ) и коллинеарного ( $\gamma_2 = \gamma_1 + 180^\circ = \gamma$ ) антиферромагнитного упорядочения между двумя соседними магнитными слоями в магнитном периоде представлены в Табл. 2.2.1. Рассматривается случай, когда сверхтонкие поля лежат в плоскости поверхности, то есть  $\beta_1 = \beta_2 = \beta = 90^\circ$ , а падающее излучение  $\pi$ -поляризовано.

Для структурного максимума:

Для "магнитного" максимума:

$$F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} \cos^2 \gamma_1 + \cos^2 \gamma_2 \\ 0 \end{pmatrix} \qquad F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} \cos^2 \gamma_1 - \cos^2 \gamma_2 \\ 0 \end{pmatrix} \\ F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} \sin^2 \gamma_1 + \sin^2 \gamma_2 \\ \pm i(\sin \gamma_1 + \sin \gamma_2) \end{pmatrix} \qquad F_{\Delta m=\pm 1}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} \sin^2 \gamma_1 - \sin^2 \gamma_2 \\ \pm i(\sin \gamma_1 - \sin \gamma_2) \end{pmatrix} \\ F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} 2\cos^2 \gamma \\ 0 \end{pmatrix} \qquad F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \\ F_{\Delta m=0}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} 0 \\ \pm 2i\sin \gamma \end{pmatrix} \\ F_{\Delta m=\pm 1}^{nuc} \propto \begin{pmatrix} 0 \\ \pm 2i\sin \gamma \end{pmatrix} \end{pmatrix}$$

Таблица. 2.2.1. Угловые зависимости структурных амплитуд для "магнитного" периода (представленных как вектор-столбцы в  $\pi$ - и  $\sigma$ - ортах) в случаях неколлинеарного (верхняя часть) и коллинеарного (нижняя часть) антиферромагнитного межслойного упорядочения для различных сверхтонких переходов ( $\Delta m = \pm 1, 0$ ).

Из Табл. 2.2.1 следует, что для коллинеарной антиферромагнитной структуры поляризация излучения в структурном максимуме совпадает с поляризацией падающего пучка. Когда ориентация намагниченности и соответствующее сверхтонкие магнитные поля  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  двух антиферромагнитно упорядоченных слоев (i=1,2) перпендикулярны пучку ( $\gamma_1 = 0^\circ, \gamma_2 = 180^\circ$ ) только линии с  $\Delta m = 0$  (2-я и 5-я) присутствуют в мёссбауэровском спектре отражения, а когда  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  выстроено вдоль пучка СИ ( $\gamma_1 = 90^\circ, \gamma_2 = -90^\circ$ ) возбуждаются четыре линии с  $\Delta m = \pm 1(1-я, 3-я, 4-я, 6-я)$  (Puc.2.2.3).



Рис. 2.2.3. Мёссбауэровские спектры отражения при угле в  $\theta = 1.34^{\circ}$  (в брэгговском максимуме), рассчитанные для многослойной структуры [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>. Спектры рассчитаны для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения при ориентации  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  в плоскости поверхности образца и различных азимутальных углах  $\gamma$  для оси антиферромагнитного межслойного упорядочения, изображенных на пиктограммах около каждого спектра. Спектры нормированы и смещены по вертикали.

Структурные амплитуды в "магнитных" максимумах в случае коллинеарного антиферромагнитного межслойного упорядочения отличны от нуля только для  $\Delta m = \pm 1$  и только излучение с "повернутой"  $\pi \rightarrow \sigma$  поляризацией присутствует в магнитных максимумах. Из Табл. 2.2.1 видно, что интенсивность магнитного максимума максимальна при  $\gamma_1 = 90^\circ$ ,  $\gamma_2 = -90^\circ$ . Появление 2-ой и 5-ой линии в мёссбауэровском спектре в "магнитном" максимуме возможно только для неколлинеарной антиферромагнитной структуры (Рис. 2.2.4). Однако эти две линии имеют ту же поляризацию, что и падающее излучение (то есть  $\pi$ -поляризацию).



Рис. 2.2.4. Мёссбауэровские спектры отражения при угле в  $\theta = 0.70^{\circ}$  (в "магнитном" максимуме), рассчитанные для многослойной структуры  $[^{57}$ Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>. Спектры рассчитаны для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения при ориентации  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  в плоскости поверхности образца и различных азимутальных углах  $\gamma$ , изображенных на схемах около каждого спектра. Слева представлены спектры для случая коллинеарного антиферромагнитного упорядочения и справа – для случая неколинеарного. Нижние спектры соответствуют практически исчезнувшей интенсивности в "магнитном" максимуме. Спектры представлены в одном масштабе и сдвинуты по вертикали.

Точный расчет не дает полное отсутствие второй и пятой линии, когда намагниченность практически перпендикулярна направлению пучка (например для случая  $\gamma_1 = 1^o$ ,  $\gamma_2 = -179^o$ ), т.к. фазовое соотношение  $2\varphi = \pi, 3\pi$  слишком идеализированно. Фазовый сдвиг для волны отраженной от второго слоя относительно амплитуды отраженной от первого слоя должен вычисляться по точной формуле (для простоты вычисления буферный нерезонансный слой не учитывается):

$$2\varphi = \frac{4\pi}{\lambda} \eta_1 d_1, \qquad (II.2.4)$$

где

$$\eta_1 = \sqrt{\sin^2 \theta + \chi_1} \approx \sin \theta + \frac{\chi_1}{2\sin \theta}.$$
 (II.2.5)

Выражение (II.2.5) описывает преломление и поглощение излучения в первом резонансом слое с толщиной  $d_1$  и восприимчивостью  $\chi_1$ . Можно оценить, величину уменьшения амплитуды волны отраженной от второго слоя из-за поглощения при прохождении через первый слой:

$$\left|\exp\left\{2i\varphi\right\}\right| \approx \exp\left\{-\frac{4\pi}{\lambda}\frac{\operatorname{Im}\chi_{1}}{2\sin\theta}d_{1}\right\}.$$
 (II.2.6)

Для параметров  $d_1=1$  нм,  $\theta=10$  мрад (0.57°),  $\lambda=0.086$  нм и  $\text{Im}\chi \approx 10^{-5}$ (оценивается для резонанса <sup>57</sup>Fe) получается значение  $\exp\{-0.073\}\approx 0.93$ . Это означает, что амплитуда волн, отраженных от первого и второго резонансных слов не являются равными по величине, и когда они складываются в противофазе в магнитном максимуме, то волны не компенсируют друг друга. Таким образом, полного подавления  $\pi \rightarrow \pi$ ` компоненты для структурных амплитуд  $F_{\Delta m=0}^{nuc}$  и  $F_{\Delta m=\pm1}^{nuc}$  в "магнитном" максимуме не происходит.

Эффекты преломления и поглощения в одном резонансном слое проявляются по-разному в мёссбауэровских спектрах отражения рассчитанной для обратной последовательности слоев с несимметричными углами ориентации  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  в магнитном периоде (Рис 2.2.5). Электронный вклад в полное отражение от нерезонансного верхних или нижних слоев также может вносить существенное влияние на форму спектров отражения. В реальных экспериментах рефлектометрии с ультратонкими слоями <sup>57</sup>Fe

сверхтонкие поля характеризуются наличием широкого распределения. В итоге результате наложения линий, эффекты преломления и поглощения вносят существенный вклад в форму мёссбауэровского спектра отражения.



Рис. 2.2.5. Сравнение мёссбауэровских спектров отражения, рассчитанных для двух разных последовательностей намагниченности в слоях <sup>57</sup>Fe.  $\gamma_1$  относится к верхнему слою,  $\gamma_2$  к нижнему слою в магнитном периоде. Параметры расчета аналогичны параметрам на Рис. 2.2.4.

В добавлении к этому форма спектра сильно зависит от даже незначительного изменения угла скольжения, как в спектрах, измеряемых в критическом угле, так и в брэгговских максимумах [103].

#### § 3. Ядерно-резонансная рефлектометрия: эксперимент на ID18 (ESRF)

Эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии был проведен на станции Ядерно-резонансного рассеяния ID18 Европейского Синхротрона (ESRF) [107]. Схема эксперимента представлена на Рис. 2.2.1. Белый пучок синхротронного излучения первоначально монхроматизировался с помощью монохроматора с высокой тепловой нагрузкой: два отражения Si (111) [108], настроенного на энергию 14.4125 кэВ ядерно-резонансного перехода изотопа <sup>57</sup>Fe. Далее СИ коллимировалось системой составных преломляющий рентгеновских линз до угловой расходимости в несколько микрорадиан. После излучение попадало на монохроматор высокого разрешения [107], с пропускной способностью ~15 мэВ. Итоговая монохроматизация до ~8 нэВ осуществлялась с использованием ядерного монохроматора FeBO<sub>3</sub> [92]. Далее пучок был сфокусирован при помощи многослойных зеркал в схеме Киркпатрика-Байеза до размера 8×10 мкм<sup>2</sup>. Интенсивность излучения, падающего на образец, составляла ~10<sup>4</sup> фотон/с.



Рис. 2.3.1. Экспериментальная схема.

Для исследования была выбрана система Fe/Cr с ультратонкими слоями железа. Такие структуры характеризуются многими интересными свойствами: Кондо-подобное поведение электрического сопротивления, состояние спинового стекла при низких температурах [109], эффект гигантского магнетосопротивления [110, 111]. Обнаружение этого последнего свойства, важного для различных магнитных устройств, привело к присуждению Нобелевской премии по физики в 2007 году.

Образцы изготавливались в ИФМ УрО РАН (г. Екатеринбург) методом молекулярно-лучевой эпитаксии (MBE - molecular beam epitaxy). для эксперимента было приготовлено 3 образца (Таблица 2.3.1).

Образец 1	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cr(7 нм)/[ <sup>57</sup> Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)] <sub>30</sub> /Cr(1.2 нм)
Образец 2	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cr(7 нм)/[ <sup>57</sup> Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)] <sub>30</sub> /Cr(1.2 нм)
Образец 3	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cr(7 нм)/[ <sup>57</sup> Fe(0.8 нм)/Cr(2 нм)] <sub>30</sub> /Cr(1.2 нм)
Т	

Таблица 2.3.1. Структура исследованных образцов. Указаны

номинальные толщины.



Рис. 2.3.2. Температурная зависимость электрического сопротивления образца [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30.</sub> Данные предоставлены Д.А. Пономаревым и Л.Н. Ромашевым (ИФМ УрО РАН).

Согласно [112], в образце [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub> слои уже являются не периодической многослойной структурой с непрерывными слоями железа в латеральной плоскости, а кластерно-слоистой. При этом эти кластеры железа являются суперпарамагнитными, а мёссбауэровский спектр образца, измеренный при комнатной температуре представлял собой одиночную линию [А3]. Данный образец показал наличие Кондо-подобного сопротивления: эффект возрастания величины электрического сопротивления с понижением температуры (Рис. 2.3.2).

Так как не все исследуемые образцы были магнитны при комнатной температуре, то исследования проводились в криостате, который позволяет охлаждать образцы до 4 К. На ID18 криостат снабжен сверхпроводящим магнитом, позволяющим прикладывать к образцам внешнее магнитное поле до 5 Т в двух направлениях: вдоль и поперек пучка СИ в горизонтальной плоскости.

Для многослойного образца [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub> с прослойкой хрома 1.05 нм предполагалось наличие антиферромагнитного межслойного упорядочения в слоях железа, а для [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(2нм)]<sub>30</sub> с прослойкой

2 нм – ферромагнитного межслойного упорядочения. Таким образом, образцы отлично подходили для демонстрации чувствительности методики ядерно-резонанной рефлектометрии на энергетической шкале к межслойному магнитному упорядочению.

# § 4. Исследование кластерно-слоистого образца с ферромагнитным упорядочением

Мёссбауэровский спектр отражения от образца [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>, измеренный вблизи критического угла полного внешнего отражения при температуре 4 К, представлен на Рис. 2.4.1. Как мы видим, магнитное сверхтонкое расщепление при гелиевой температуре появилось, но расщепление спектра еще недостаточно для визуализации отдельных линий.



Рис. 2.4.1. Мёссбауэровский спектр отражения, измеренный при угле скольжения 0.069° в отсутствии внешнего магнитного поля при температуре 4 К (слева) и распределение сверхтонкого поля P(**B**<sub>hf</sub>) (справа). Спектр подогнан в предположении, что направления сверхтонких полей распределены случайно в пространстве.

При 4 К в отсутствии внешнего магнитного поля имеется широкое распределение величины магнитных сверхтонких полей B<sub>hf</sub> (Рис. 2.4.1), однако распределение имеет четко выраженные максимумы, каждый из которых соответствует конкретному числу атомов Cr в первой

57

координационной сфере <sup>57</sup>Fe в ОЦК структуре. Максимальное поле  $\mathbf{B}_{hf}$ ~23.7 T соответствует окружению исключительно атомами железа (8 атомов) в первой координационной сфере <sup>57</sup>Fe. Наиболее существенный вклад в спектр дает сверхтонкое поле  $\mathbf{B}_{hf}$ ~12.7 T, которое соответствует половине атомов Cr в окружении <sup>57</sup>Fe.

Полученное распределение  $\mathbf{B}_{hf}$  кардинально отличается от биномиального распределения атомов в сплаве  $Cr_xFe_{1-x}$  для x~10.5/(1.2+10.5)  $\approx 0.9$  (Рис 2.4.2), но выглядит типичным для интерфейсных областей, которые преобладают в многослойной структуре [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>.



Рис. 2.4.2. Вероятность различного окружения атома <sup>57</sup>Fe атомами Cr в сплаве  $Cr_xFe_{1-x}$  при различных концентрациях хрома х. Жирная кривая соответствует обработке экспериментального спектра (Рис. 2.4.1).

Отметим, рентгеновской рефлектометрической кривой что на (Рис. 2.4.3), измеренной в лаборатории для λ=0.154 нм в широком угловом интервале, брэгговский максимум не проявился (Рис. 2.4.4). На кривой ядерно-резонансной рефлектометрии "магнитный" максимум, который мог бы появиться при увеличенном контрасте восприимчивостей слоев Fe и Cr за счет ядерной добавки и характеризовать антиферромагнитное межслойное упорядочение, также не был обнаружен. Таким образом, рефлектометрические кривые не обнаружили периодичность в структуре.



Рис. 2.4.3. Рентгеновская рефлектометрическая образца кривая OT  $[{}^{57}\text{Fe}(0.12 \text{ HM})/\text{Cr}(1.05 \text{ HM})]_{30}$ λ=0.154 нм. Ha измеренная для вставке изображен профиль по глубине реальной и мнимой части восприимчивости. Д.А. Пономаревым Экспериментальные данные предоставлены И Л.Н. Ромашевым (ИФМ УрО РАН).

Согласно обработке рефлектометрических кривых в образце имеется однородный слой  $Cr_xFe_{1-x}$  ( $\approx 30.6$  нм) с нарушенным поверхностным слоем ( $\approx 2.7$  нм). Полученная модель распределения электронной плотности представлена на вставке к Рис. 2.4.3. В то же время распределения сверхтонких полей, полученные при обработке мессбауэровских спектров отражения, характеризуют структуру с большим количеством интерфейсных областей, типичную для слоистой структуры. Мы можем констатировать, что мессбауэровские спектры отражения более детально характеризуют образец, чем рентгеновская рефлектометрия.

Таким образом, данные свидетельствуют о существовании кластерной структуры в [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub> образце с большой долей Fe/Cr интерфейсных областей, которые проявляются только в наличии специфического распределения сверхтонких полей.



Рис. 2.4.4. Рентгеновская (черная) и ядерно-резонансная (синяя) рефлектометрическая кривая от образца  $[^{57}Fe(0.12 \text{ нм})/Cr(1.05 \text{ нм})]_{30}$ , измеренная при  $\lambda$ =0.086 нм.

Поскольку периодичность образца не была слоев для ЭТОГО обнаружена, то есть брэгговские максимумы на рефлектометрической рентгеновской и ядерно-резонанной кривой отсутствовали, мёссбауэровские спектры отражения измерялись только вблизи критического угла при разных температурах (4, 50, 150 К) и при разных внешних полях - Рис. 2.4.5. При понижении температуры ниже 150 К одиночная линия в спектрах начинает уширяться, и эффект усиливается при приложении внешнего поля, что свидетельствует о начале магнитного фазового перехода. Увеличение намагниченности при дальнейшем понижении температуры коррелирует с возрастанием электрического сопротивления (см. Рис. 2.3.2) (Кондоподобное поведение для этого образца и подобных кластерно-слоистых образцах исследовалось в работе [112]), что может использоваться для объяснения эффекта. Таким образом, можно заключить, ЧТО именно возникающее магнитное упорядочение обуславливает эффект Кондоподобного поведения.



Рис. 2.4.5. Мёссбауэровские спектры отражения, измеренные вблизи критического угла при различных температурах и внешних магнитных полях, приложенных вдоль и перпендикулярно пучку СИ в плоскости поверхности образца. На каждом спектре указан азимутальный угол  $\gamma$ , полученный в результате обработки спектров и характеризующий направление сверхтонких полей **B**<sub>hf</sub><sup>(i)</sup> в плоскости поверхности ( $\gamma = 90^{\circ}$  соответствует направлению вдоль пучка СИ,  $\gamma = 56^{\circ}$  эквивалентно в этом способе измерений случайной в пространстве ориентации сверхтонкого поля). На вставках изображены полученные распределения величины сверхтонкого поля P(|**B**<sup>tot</sup>|).

С увеличением внешнего поля, приложенного перпендикулярно пучку СИ, мёссбауэровские спектры при 4 К визуально сужаются. На самом деле происходит выстраивание сверхтонких полей перпендикулярно пучку СИ (полное выстраивание не происходит даже при 4 Т, мы получаем при этом поле  $\gamma = 31^{\circ}$ ). При такой ориентации **B**<sub>hf</sub><sup>(i)</sup> в спектре частично пропадают 1,3,4 и 6 линии, а остаются только вторая и пятая. Вторая и пятая линии остаются в спектре при приложении 4 Т перпендикулярно пучку и при 150 К, что визуально выглядит как "расщепление" одиночной уширенной линии.

При **H**<sub>ext</sub>=2 T и T=4 К мёсбауэровские спектры отражения существенно отличаются для двух взаимноперпендикулярных направлениях внешнего магнитного поля **H**<sub>ext</sub>. Обработка дает одно и тоже распределение сверхтонкого поля, но разные азимутальные углы:  $\gamma = 57^{\circ}$  для **H**<sub>ext</sub> || k и  $\gamma = 34^{\circ}$  для **H**<sub>ext</sub>  $\perp$  k. Различие углов составляет 90° (случай 180- $\gamma$ и  $\gamma$  являются эквивалентными), как и должно быть при такой частичной ориентации и это подтверждает лишь частичную ориентацию **B**<sub>hf</sub><sup>(i)</sup> вдоль **H**<sub>ext</sub>.

Несколько странным выглядит полученное при фитировании изменение распределения полей с изменением температуры и величины поля. Эти изменения связаны с несколькими обстоятельствами. Резонансные ядра в разных окружениях переходят в магнитоупорядоченное состояние при разных температурах и величинах полей. Кроме того, следует учитывать, что добавляется внешнее поле также К сверхтонкому (но полю с противоположным знаком [113]). Это сказывается на величине И распределении суммарного поля, особенно, если величина сверхтонкого поля сопоставима с величиной внешнего поля. Поскольку при недостаточно сильных полях сохраняется некоторая неупорядоченность в направлениях сверхтонкого поля, то векторное прибавление внешнего поля приводит к появлению распределения полей даже случае одного В значения сверхтонкого поля. Это обстоятельство иллюстрирует простой расчет, на Рис. 2.4.6. Расщепление результаты которого приведены спектра определяется полным полем **B**<sup>tot</sup>, которое является векторной суммой  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$ + $\mathbf{H}_{ext}$ . В зависимости от взаимной ориентации  $\mathbf{B}_{hf}$  и  $\mathbf{H}_{ext}$  полное поле  $\mathbf{B}^{tot}$ может принимать значения в пределах  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} \pm \mathbf{H}_{ext}$ . В насыщении  $\mathbf{B}_{hf}$  и  $\mathbf{H}_{ext}$ должны быть антипараллельны, что приводит к смещению **B**<sup>tot</sup> в область меньших значений.



Рис. 2.4.6. Схематичное изображение случайной в пространстве ориентации  $\mathbf{B}_{hf}$  ( $|\mathbf{B}_{hf}|=16$  T) в отсутствии внешнего магнитного поля (а) и ориентация  $\mathbf{B}^{\text{tot}(i)}$  при приложении поля  $\mathbf{H}_{ext}=4$  T (б). На (в) и (г) приведены соответствующие этим случаям распределения поля  $\mathbf{P}(|\mathbf{B}^{\text{tot}}|)$  ((в) и (г)).

Рис. 2.4.6 показывает, что даже в самом простом случае, когда есть только одна компонента сверхтонкого поля  $\mathbf{B}_{hf}$ =16 T (одна линия на распределении сверхтонкого поля на Рис. 2.4.6а), но распределенная случайно в пространстве, приложение сверхтонкого поля приводит к широкому распределению  $\mathbf{B}^{tot}$  (от 12 T до 20 T), которое имеет максимум сдвинутый ниже значения 16 T в случае, когда внешнее поле вызывает частичное упорядочение  $\mathbf{B}_{hf}$  (противоположное направлению  $\mathbf{H}_{ext}$ ).

При 4 К до намагничивания обработка дает соотношение линий в мёссбауэровском спектре (спектр с номером 01), соответствующее случайному в пространстве распределению сверхтонких полей  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  (то есть "эффективному" азимутальному углу  $\gamma \approx 56.4$  °). После приложения внешнего магнитного поля в поперечной геометрии ( $\mathbf{H}_{ext} \perp \mathbf{k}$ ) и его снятия,  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  становится частично (но не полностью) упорядоченным - Рис. 2.4.76 (спектр с номером 40).



Рис. 2.4.7. а) и b) Мёссбауровские спектры отражения в отсутствии внешнего магнитного поля до (слева) и после (справа) намагничивания; с) и d) – соответствующие (одинаковые) распределения сверхтонких полей. Спектр на (а) обработан в предположении равновероятного направления сверхтонких полей в пространстве, спектр на (b) обработан для разных азимутальных углов γ для каждой компоненты распределения, подписанных на d).

Такое частичное и неодинаковое для разных сверхтонких полей магнитное упорядочение объясняет различие спектров, измеренных при 4 К до приложения поля и после приложения поля и его снятия – Рис. 2.4.7. Компоненты с бо́льшим сверхтонким полем остаются намагниченными вдоль направления **H**<sub>ext</sub>, даже после снятия магнитного поля. Таким образом, на этом образеце обнаружен эффект магнитный памяти. Исследование длительности эффекта требует дополнительных измерений.

Отметим, что обработка спектров и угловых кривых ядернорезонансного отражения для этого и всех остальных образцов проводилась с помощью пакета программ REFTIM [104], который изначально был предназначен для анализа временных спектров ядерно-резонананого отражения, но для целей данной работы был переработан для анализа мёссбауэровских спектров отражения с учетом *π*-поляризации от SMS и превратился в REFSPC. Сложный вид мёссбауэровских спектров отражения, полученных от образцов с ультратонкими слоями железа, потребовал дальнейшего усовершенствования программ расчета, в частности были включены опции варьируемой функции распределения величины сверхтонкого поля.

## § 5. Исследование образца с антиферромагнитным межслойным упорядочением

Толщины слоев <sup>57</sup>Fe в образце [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub> уже достаточны для появления магнитного упорядочения уже при комнатной температуре – мёссбауэровский спектр, измеренный в лаборатории на конверсионных электронах, представлял собой для этого образца хорошо разрешенный секстет. Толщины прослойки хрома ~1.05 нм должны были обеспечить наличие антиферромагнитного межслойного упорядочения для слоев <sup>57</sup>Fe.

Как и предполагалось, для заявленных толщин прослоек Cr ~ 1 нм образец обнаруживает антиферромагнитное межслойное упорядочение между слоями <sup>57</sup>Fe, что проявляется в наличии "магнитного" максимума на ядерно-резонансной рефлектометрии \_ (Рис. 2.5.1) кривой CM. (и отсутствующего на кривой рентгеновской рефлектометрии), магнитного по соответствующего удвоению периода сравнению с химическим периодом D. Мёссбауэровские спектры отражения для этого образца были измерены не только в критическом угле, но и в "магнитном" максимуме. На вставках к Рис. 2.5.1 четко видно различия в форме приведенных спектров для этих двух углов скольжения.

Обработка кривой рентгеновской рефлектометриии (Рис. 2.5.1) дает геометрические параметры многослойной структуры И электронные структуры Dоказался 1.587 нм плотности слоев. Период равным (d<sub>Fe</sub>=0.64 нм, d<sub>Cr</sub>= 0.95 нм), что немного меньше номинального значения. Ширина интерфейсов определена как ~ 0.6 нм. Таким образом, слои Fe и Cr

65

значительно перемешаны, что проявляется также в наличии распределения сверхтонких полей (см. далее Рис. 2.5.4).



Рис. 2.5.1. Рентгеновская для  $\lambda = 0.086$  нм (верхняя) и ядерно-резонансная (нижняя) рефлектометрические кривые, измеренные в отсутствии внешнего магнитного поля ( $\mathbf{H}^{ext} = 0$ ). На вставках изображены мёссбауэровские спектры отражения в критическом угле полного внешнего отражения и в "магнитном" максимуме. Символами изображены экспериментальные данные, линиями – обработка.

Совместная обработка мёссбауэровских спектров отражения и ядернорезонансной рефлектометрии дает эффективный азимутальный угол  $\gamma \approx 66^{\circ}$ . Это означает, что даже в отсутствии внешнего магнитного поля в образце присутствует предпочтительное направление намагниченности вдоль длинной стороны (образец имеет размеры поверхности 5x15мм, а более длинная сторона была ориентирована вдоль пучка СИ).

Изменения интенсивности "магнитного" максимума на кривых ядерно-резонансной рефлектометрии (Рис. 2.5.2) и мёссбауэровских спектров отражения (Рис. 2.5.3) характеризует переориентацию  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  в слоях

<sup>57</sup>Fe под действием внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$ , что показано пиктограммами на Рис. 2.5.2 и Рис. 2.5.3.



Рис. 2.5.2. Угловые зависимости ядерно-резонансного отражения, измеренные при различной величине и ориентации внешнего магнитного  $\mathbf{H}^{ext}$ Пиктограммы при каждой поля кривой дают схематичное изображение направления сверхтонких полей  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  в соседних слоях <sup>57</sup>Fe, полученные в результате совместной обработки угловых зависимостей и мёссбауэровских отражения. изображены спектров Символами обработка. Верхний график линиями – экспериментальные данные, рентгеновскую рефлектометрическую включает также кривую ДЛЯ λ=0.086 нм, измеренную до брэгговского максимума первого порядка.

При приложении  $\mathbf{H}^{ext} = 0.15 \text{ T}$  "магнитный" максимум исчезает, если  $\mathbf{H}^{ext}$  параллельно пучку СИ (то есть вектору **k**). Исходя из этого, можно было бы сделать вывод, что антиферромагнитное межслойное упорядочение разрушено и образец стал ферромагнитным. Но при этом же поле  $\mathbf{H}^{ext} = 0.15 \text{ T}$ , приложенном перпендикулярно пучку СИ, интенсивность "магнитного" максимума как раз максимальна. Это эффект спин-флопа:

антиферромагнитные пары сверхтонких полей <sup>57</sup>Fe в соседних слоях железа выстраиваются перпендикулярно  $\mathbf{H}^{ext}$ . Согласно Таблице 2.2.1 если  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} \perp$  $\mathbf{H}^{ext} \parallel \mathbf{k}$  ( $\gamma_1 = 0$ ,  $\gamma_2 = 180^o$ ) "магнитный" максимум исчезает т.к. проекции  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  на направления СИ становятся равными. Но в случае, когда  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} \perp$  $\mathbf{H}^{ext} \perp \mathbf{k}$  ( $\gamma_1 = 90^o$ ,  $\gamma_2 = -90^o$ ) разница в проекциях  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  на направление СИ для двух слоев <sup>57</sup>Fe максимальна и интенсивность "магнитного" максимума наивысшая. Заметим, что при максимальном поле  $\mathbf{H}^{ext} = 3$  T, приложенном перпендикулярно направлению СИ магнитный максимум до сих пор существует. Таким образом даже такое сильное поле  $\mathbf{H}^{ext} = 3$  T выстраивает сверхтонкие поля в слоях <sup>57</sup>Fe лишь частично.



Рис. 2.5.3. Мёссбауэровские спектры отражения в критическом угле (а) и в "магнитном" максимуме (b) при различной величине и ориентации внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$ . Пиктограммы при каждой кривой дают схематичное изображение направления сверхтонких полей  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  в соседних слоях <sup>57</sup>Fe (аналогичные изображенным на Рис. 2.5.2) Символами изображены экспериментальные данные, линиями – модельные спектры.

Спин-флоп переход лучше всего проявляется на мёсбауэровских спектрах отражения, измеренных вблизи критического угла полного внешнего отражения, поскольку в них остаются только вторая и пятая линии при  $\mathbf{H}^{ext} \parallel \mathbf{k}$  и только 1,3,4,6 при  $\mathbf{H}^{ext} \perp \mathbf{k}$ . Поскольку "магнитный" максимум в этом случае максимален, это спин флоп состояние с ориентацией сверхтонких полей перпендикулярно внешнему полю и вдоль пучка СИ. Вторая и пятая линии при  $\mathbf{H}^{ext} \perp \mathbf{k}$  остаются в спектре и в случае  $\mathbf{H}^{ext} = 3$  Т, но "магнитный" максимум в этом случае **В**<sup>(i)</sup> направлены практически отсутствует. Это означает, что в этом случае  $\mathbf{B}^{(i)}_{hf}$  направлены практически ферромагнитно и перпендикулярно плоскости отражения, как показано пиктограммами на Рис. 2.5.3.

Распределение полного поля  $P(B^{tot})$ , полученное при обработке спектров на Рис. 2.5.3, представлено на Рис. 2.5.4. Распределения были разложены на 7 сверхтонких полей  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  с соответствующим распределением  $\Delta \mathbf{B}_{hf}^{(i)}$ , которое уширяет линии в каждом секстете.



Рис. 2.5.4. Распределения сверхтонкого поля  $P(B^{tot})$ , полученной при обработке мёсбауэровских спектров отражения и кривых ядерно-резонансной рефлектометрии для различных величин внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$ .

Антипаралельное выстраивание  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  относительно  $\mathbf{H}^{ext}$ , характерное для ядер <sup>57</sup>Fe, подтверждается смещением максимума распределения  $P(\mathbf{B}^{\text{tot}})$  в область меньших значений при увеличении  $\mathbf{H}^{ext}$ . Уширение каждой компоненты сверхтонкого поля  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  в распределении  $P(\mathbf{B}^{\text{tot}})$  при некотором среднем значении приложенного поля (например  $\mathbf{H}^{ext} = 1$  T) может быть объяснено существованием углового распределения для ориентации сверхтонкого поля  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$ , как это иллюстрируется Рис. 2.4.6 и Рис. 2.5.5. Это размытие различных компонент остается и при 3 T (однако оно существенно меньше, чем при  $\mathbf{H}^{ext} = 1$  T).



Рис. 2.5.5. Появляющееся распределение  $P(\mathbf{B}^{\text{tot}})$  полного магнитного поля  $\mathbf{B}^{\text{tot}}$  на ядрах <sup>57</sup>Fe под действием внешнего магнитного поля, если величина  $\mathbf{B}_{hf}$  фиксирована, но ориентация  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  характеризуется наличием углового распределения. Распределение рассчитано для случая, когда средний угол между  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  и  $\mathbf{H}^{ext}$  составляет 135°, но ориентация  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  характеризуется гауссовским угловым распределением с шириной  $\pm 20^{o}$  (два "веера" на (b)). Для сравнения: сплошная вертикальная линяя на (a) показывает значение  $\mathbf{B}^{\text{tot}} = |\mathbf{B}_{hf}|$  для случая, когда  $\mathbf{H}^{ext} = 0$ . Пунктирная вертикальная линия показывает значение  $\mathbf{B}^{\text{tot}} = 0.95 |\mathbf{B}_{hf}|$  для случая, когда все  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  выстроены антипараллельно при  $\mathbf{H}^{ext} = 0.05 |\mathbf{B}_{hf}|$ .

Таким образом, на самом деле азимутальный угол, указанный на пиктограммах на Рис. 2.5.2 и Рис. 2.5.3 является эффективным углом, при котором получается соответствие теории с экспериментальными данными, но с учетом широкого углового распределения компонент В<sup>tot</sup>.

Форма мёссбауэровских спектров, измеренных в "магнитном" максимуме, практически не меняется при изменении внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$ . Эти спектры обработаны с тем же распределением  $P(\mathbf{B}^{tot})$  и той же ориентацией  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$ , что и спектры в критическом угле и кривые ядернорезонансной рефлектометрии.

Спектры показывают наличие линий при ~±3.2 мм/с. В общем случае это может соответствовать позициям второй и пятой линии для поля  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} pprox$ 33 Т. Однако в магнитном максимуме эти линии могут быть появляться неколлинеарном антиферромагнитном только при упорядочении (Табл. 2.2.1), что не подтверждается при обработке. Вместо этого одновременная обработка ядерно-резонансной рефлектометрии и всех измеренных мёссбауэровских спектров отражения показывает, что эти линии возникают из-за присутствия в распределении P(B<sup>tot</sup>) значительной доли компоненты с величиной около ≈ 20 Т. Другими словами на самом деле это первая и шестая линии в мёссбауэровском секстете с  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} \approx 20 \text{ T}.$ 

В отличие от "магнитного" максимума, вторая и пятые линии мёссбауэрповского секстета для  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)} \approx 33 \text{ T}$  могут давать вклад в мёссбауэровские спектры отражения, измеренных вблизи критического угла полного внешнего отражения,. В этих спектрах положение второй и пятой линий секстета будет ~ ±3.2 мм/с. Интересно отметить, что на первый взгляд эти линии должны быть более выраженными для случайной ориентации антиферромагнитно связанных слоев (верхний спектр на Рис. 2.5.3), чем в

случае практически полного ферромагнитного упорядочения  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  вдоль направления пучка (левый нижний спектр на Рис. 2.5.3), на котором они должны отсутствовать полностью для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения. Но в эксперименте мы видим противоположный результат.



Рис. 2.5.6. Иллюстрация объясняющая природу разного соотношения мёссбауэровских линий в спектре отражения при угле  $\theta$ =3.5 мрад (0.20°) для антиферромагнитного (а) и ферромагнитного (б) межслойного упорядочения. Расчет проведен для многослойной структуры [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>, **B**<sub>hf</sub> =33 T,  $\Delta$ **B**<sub>hf</sub> =0.5 T, азимутальный угол направления сверхтонкого поля **B**<sub>hf</sub> принят за 75°. Толстой линией показан спектр без селекции поляризации ( $\pi \rightarrow \pi' + \sigma'$ ), пунктирной линией спектр без поворота поляризации  $\pi \rightarrow \pi'$ , тонкой линией изображен спектр ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) отражения. Вклад  $\pi \rightarrow \sigma'$  практически полностью подавляется для антиферромагниного межслойного упорядочения уменьшает минимумы соответствующие первой, третей, четвертой и шестой линиям, что визуально увеличивает вторую и пятую линии.

Наблюдаемое поведение определяется не увеличением интенсивности второй и пятой линии, а уменьшением первой, третей, четвертой и шестой линий в случае ферромагнитного упорядочения. Для почти ферромагнитного выстраивания намагниченности в слоях <sup>57</sup>Fe линии  $\Delta m = \pm 1$  уменьшаются из-

72
за вклада  $\pi \rightarrow \sigma$ ` отражения (с "повернутой" поляризацией). В области полного внешнего отражения, мёссбауэровский спектр отражения выглядит похожим на спектр поглощения, то есть (с минимумами при энергиях резонанса). Резонансные линии в  $\pi \rightarrow \sigma$ ` спектре отражения представлены как максимумы (см. Главу III), которые уменьшают интенсивность линий с  $\Delta m = \pm 1$  в измеряемом спектре. Этот эффект иллюстрирует Рис. 2.5.6.

#### § 6. Исследование образца со спиральным магнитным упорядочением

Толщина прослойки хрома ~2 нм в образце [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(2.0 нм)] предполагает существование ферромагнитного межслойного упорядочения в слоях железа [110, 114]. Исследование этого образца методом ядернорезонансной рефлектометрии проведено на станции ID18, ESRF [107].



Рис. 2.6.1. Рентгеновская и ядерно-резонансная рефлектометрические кривые от образца Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr(7 нм)/[<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(2.0 нм)]<sub>30</sub>/Cr(1.2 нм), измеренные при 4 К в отсутствии внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$ . На вставках изображены мёссбауэровские спектры отражения, измеренные вблизи критического угла полного внешнего отражения и в "магнитном" максимуме. Для сравнения пунктирная на кривой ядерно-резонансной ЛИНЯЯ рефлектометрии теоретическую показывает кривую для простого межслойного антиферромагнитного упорядоченияс азимутальными углами 45°/-135°.

Угловые зависимости рентгеновской (для λ=0.086 нм) и ядернорезонансной рефлектометрии для этого образца представлены на Рис. 2.6.1. рентгеновской рефлектометрической Обработка кривой дает период структуры *D*=2.24 нм с толщиной буферного слоя Cr=1.58 нм. Такая толщина прослойки хрома соответствует промежуточному значению между ферромагнитным и антиферромагнитным межслойным упорядочением в системе Fe/Cr [110, 114]. Профиль распределения электронной плотности, полученный при обработке рентгеновской рефлектометрии, представлен на Рис. 2.6.2. Этот профиль был использован при фитировании ядернорезонансной рефлектометрии и мёссбауэровских спектров отражения.



Рис. 2.6.2. Профиль распределения электронной плотности по глубине в образце Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cr(7 нм)/[<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(2.0 нм)]<sub>30</sub>/Cr(1.2 нм), полученный при фитировании кривой рентгеновской рефлектометрии.

В противоречии с предполагаемым ферромагнитным межслойным упорядочением на кривой ядерно-резонансной рефлектометрии обнаруживается небольшой размытый максимум при угле скольжения  $\theta$  =0.57°, соответствующему (1/2) брэгговскому отражению. Поведение этого максимума при приложении внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$  (Рис. 2.6.3) подтверждает его чисто магнитную природу. Интенсивность "магнитного" максимума при приложении поперечного магнитного поля  $\mathbf{H}^{ext}$  поначалу увеличивается, а затем пропадает.



Рис. 2.6.3. Эволюция "магнитного" максимума при приложении внешнего магнитного поля **H**<sup>*ext*</sup> приложенного перпендикулярно пучку СИ. Символами изображены экспериментальные данные, сплошной линией – обработка. Кривые сдвинуты по вертикали.

Наличие "магнитного" максимума может свидетельствовать об удвоении магнитного периода в слоях <sup>57</sup>Fe по сравнению с химическим. Однако этот максимум имеет достаточно широкую и размытую форму, кроме того наблюдается необычное искажение 1-го брэгговского максимума, вследствие наличия сателлитов вблизи него.

Появление таких сателлитов кривой отражения на может свидетельствовать о существовании более сложной магнитной структуры, чем антиферромагнитное межслойное магнитное упорядочение. Чтобы прояснить особенности рефлектометрических кривых, для различных типов неколлинеарного магнитного упорядочения были произведены модельные расчеты, результаты которых представлены на Рис 2.6.4. Расчеты показали, что одновременное наличие магнитного максимума и сателлитов вблизи брэгговского максимума должно наблюдаться в магнитной структуре, включающей в себя как антиферромагнитное межслойное упорядочение, так и спиральное.



Рис. 2.6.4. Угловые зависимости ядерно-резонансного отражения для: первый столбик: – ферромагнитного межслойного упорядочения ( $\Phi\Phi$ ) и  $\mathbf{B}_{hf} \perp \mathbf{k}_{o}$  (a), ферромагнитного межслойного упорядочения  $(\Phi\Phi)$ И  $\mathbf{B}_{hf} \| \mathbf{k}_{o}$ (б), антиферромагнитного межслойного упорядочения (A $\Phi$ ) и  $\pm \mathbf{B}_{hf} \perp \mathbf{k}_{o}$  (в), антиферромагнитного межслойного упорядочения (AФ) и  $\pm \mathbf{B}_{hf\parallel}\mathbf{k}_{o}$  (г); второй столбик: – спирального межслойного упорядочения с различным числом оборотов намагниченности по глубине структуры: 1/2 оборота (д), 1 оборот (е), 2 оборота (ж), 4 оборота (з) (везде магнитный период составляет 8 D); третий столбик:  $-\frac{1}{2}$  оборота спирали (15 D) + AФ слои (15 D) (и), 1 оборот спирали (15 D) + A $\Phi$  слои (15 D) (к), ½ оборота спирали (8 D) + A $\Phi$ слои (14 D) +  $\frac{1}{2}$  оборота спирали (8 D) (л), 1 оборот спирали (8 D) + АФ слои (14 D) + 1 оборот спирали (8 D) (м); четвертый столбик: – ½ оборота спирали из АФ слоев (н), 1 оборот спирали из АФ слоев (о), 1/2 оборота спирали из A $\Phi$  слоев (8 D) + A $\Phi$  слоев (14 D) + ½ спираль из AF слоев (8 D) (п), 1 оборот спирали из AF слоев (8 D) + AF слои (14 D) + 1 оборот спирали из АF слоев (8 D) (р).

Мёссбауэровские спектры отражения могут стать дополнительным каналом информации для интерпретации особенностей измеренных кривых ядерно-резонансной рефлектометрии. Спектры были измерены для двух углов скольжения падающего излучения: вблизи критского угла и в магнитном максимуме (Рис. 2.6.5).



Рис. 2.6.5. Мёссбауэровские спектры отражения, измеренные вблизи критического угла полного внешнего отражения  $\theta = 0.18^{\circ}$  и в "магнитном" максимуме для различных значений  $\mathbf{H}^{ext}$ , приложенного перпендикулярно пучку СИ в плоскости поверхности образца.

Обработка спектров дала достаточно сложное распределение сверхтонких полей  $P(B^{tot})$  (Рис. 2.6.6), что характерно для ультратонких слоев <sup>57</sup>Fe, когда интерфейсы соизмеримы с толщинами слоев <sup>57</sup>Fe и для атомов <sup>57</sup>Fe имеет место различное окружение.



Рис. 2.6.6. Верхний график: Распределение сверхтонкого поля  $P(\mathbf{B}_{hf}^{(i)})$  описываемое семью уширенными секстетами (*i*=1,...7), полученное при совместной обработке экспериментальных спектров (Рис. 2.6.5) и ядернорезонансных рефлектометрических кривых. Нижний график: полученное распределение по глубине секстетов в одном периоде. Можно отметить, что интерфейс Cr-на-Fe значительно толще интерфейса Fe-на-Cr, что соответствует [115].

Целесообразно было бы начинать обработку спектра в ситуации, когда сверхтонкие поля  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  выстроены внешнем магнитным полем  $\mathbf{H}^{ext}$  (из Рис. 2.6.3 следует, что это происходит при ~1 Т), однако при таком внешнем поле "магнитный" максимум пропадает. Поэтому при таком поле мёсбауэровский спектр измерен только в критическом угле. Кроме того, при приложении поля  $\mathbf{H}^{ext}$  перпендикулярно СИ в мёссбауэровском спектре отражения остается только вторая и пятая линии ( $\Delta m = 0$ ), которые плохо разрешены.



Рис. 2.6.7. Профиль распределения ориентации сверхтонкого поля в слоях железа в отсутствии  $\mathbf{H}^{ext}$  (а) и при  $\mathbf{H}^{ext} = 0.3$  Т (б), приложенного вдоль оси у. Звездочками обозначены четные слои <sup>57</sup>Fe, квадратами – нечетные.

Получить распределение полей по глубине в многослойной структуре, состоящей из 30 повторений слоев <sup>57</sup>Fe достаточно сложно из одного мёссбауэровского спектра отражения, который к тому же и плохо разрешен. С другой стороны, для спектров, измеренных в отсутствии магнитного поля или при малых значениях  $\mathbf{H}^{ext}$ , в число варьируемых параметров нужно добавлять распределение ориентацию  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  (углов  $\beta^{(i)}$  и  $\gamma^{(i)}$ ) в каждом слое <sup>57</sup>Fe. Таким образом, обработка требует поочередного фитирования спектров при разных величинах  $\mathbf{H}^{ext}$ . Для каждого значения  $\mathbf{H}^{ext}$  применялось

одновременное фитирование кривых ядерно-резонансной рефлектометрии и имеющихся мёссбауэровских спектров отражения.

Сравнение спектров в магнитном максимуме на Рис. 2.6.3 показывает, что интенсивность второй и пятой линий, соответствующих сверхтонкому переходу  $\Delta m = 0$  (~± 3 мм/с) существенно выше при  $\mathbf{H}^{ext} = 0$ , чем при  $\mathbf{H}^{ext} = 0.3$  Т. В случае симметричного выстраивание магнитных моментов относительно СИ эти линии должны быть подавлены в мёссбауэровском спектре отражения в "магнитном" максимуме. Поэтому их появление свидетельствует о неколлинеарной магнитной структуре, в слоях <sup>57</sup>Fe.

После нахождения сверхтонких полей была произведена обработка одновременная ядерно-резонансной рефлектометрии И  $\mathbf{H}^{ext}$ . мёсбауэровских отсутствии Было спектров отражения В предположено, ЧТО внутри одного конкретно взятого слоя железа азимутальный угол для всех  $\mathbf{B}_{hf}^{(i)}$  одинаков. Иначе число варьируемых бы слишком велико. Обработка дает достаточно параметров было необычный профиль распределения ориентации сверхтонкого поля $\mathbf{B}_{hf}$  по глубине (Рис. 2.6.7 (а)). Магнитная структура формирует две спирали, одна в четных слоях железа, другая в нечетных, с разным знаком вращения (т.е. разной киральностью). Эта двойная спираль на поверхности образует практически антиферромагнитное межслойное упорядочение в слоях железа. Вращение двух спиралей в противоположном направлении приводит к тому, что на некоторой глубине два соседних слоя железа становятся практически ферромагнитными друг относительно друга и происходит эффект спинфлопа (поворот магнитных моментов на 180° в каждой подрешетке). На большей глубине обе спирали по-прежнему имеют разные знаки вращения друг относительно друга.



Рис. 2.6.8 Мёссбауэровский спектр отражения, измеренный в "магнитном" максимуме (символы). Тонкая линия – результат обработки с моделью, представленной на Рис. 2.6.7 (а). Пунктирная линия – теоретический спектр для модели с антиферромагнитным межслойным упорядочением с углами, дающими наилучшее соответствие теории и эксперимента.

Для того, чтобы продемонстрировать чувствительность метода к ориентации сверхтонкого было проведено сравнение поля  $\mathbf{B}_{hf}$ теоретических мёссбауэровских спектров отражения, рассчитанных для Рис. 2.6.7 изображенной на (a), модели, с моделью с простым антиферромагнитным межслойным упорядочением  $\mathbf{B}_{hf}$ , которая дает наилучшее соответствие теории с экспериментальным спектром ДЛЯ азимутальных углов  $\gamma_1 = 45^o$ ,  $\gamma_2 = -135^o$  (Рис. 2.6.8). Такое же сравнение приведено для ядерно-резонансной рефлектометрии на Рис. 2.6.1. Видно, что простое антиферромагнитное межслойное упорядочение  $\mathbf{B}_{hf}$  не дает сателлитов вблизи брэгговского отражения 1-го порядка и "магнитного" максимумов. Вероятно, это наиболее наглядное доказательство существования сложной магнитной структуры при **H**<sup>ext</sup> =0.

Как видно из Рис. 2.6.3, увеличение магнитного поля в эксперименте от 0.075 до 0.15 Т приводит к значительному увеличению интенсивности "магнитного" максимума. Обработка дает достаточно простую картину антиферромагнитного межслойного упорядочения: сверхтонкие магнитные поля выстраиваются перпендикулярно приложенному магнитному полю (спин-флоп эффект). При  $\mathbf{H}^{ext} = 0.3$  Т сверхтонкие поля  $\mathbf{B}_{hf}^{1,2}$  начинают  $\mathbf{H}^{ext}$ (напомним, выстраиваться вдоль ЧТО сверхтонкое поля В металлическом железе антипараллельно намагниченности) и этот начинается с верхних и нижних слоев, где межслойное обменное взаимодействие меньше (Рис. 2.6.7(b)). При приложении  $\mathbf{H}^{ext} = 1$  Т структура полностью переходит в ферромагнитное состояние и магнитный максимум исчезает (Рис. 2.6.3).

#### Основные результаты Главы II

В данной главе представлена общая теория ядерно-резонансной рефлектометрии, рассмотрена чувствительность мёссбауэровских спектров отражения к ориентации сверхтонкого поля с учетом π-поляризации излучения от ядерного монохроматора, проведены результаты модельных расчетов формы мёссбауэровских спектров отражения от структур с ферро- и антиферромагнитным межслойным упорядочением при разных углах скольжения.

Методом мёссбауэровской рефлектометрии экспериментально были исследованы три образца: [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>, [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>.

Мёссбауэровские спектры отражения от образца [<sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub> с Кондо-подобным поведением сопротивления,

показывают начало магнитного фазового перехода при температуре 150 К. При дальнейшем понижении температуры увеличение намагниченности коррелирует с возрастанием электрического сопротивления.

 $[{}^{57}\text{Fe}(0.8 \text{ HM})/\text{Cr}(1.05 \text{ HM})]_{30}$ Образец показывает наличие антиферромагнитного межслойного упорядочения в слоях железа, что что проявляется в наличии "магнитного" максимума на кривой ядернорезонансной рефлектометрии соответствующего удвоению магнитного периода по сравнению с химическим. Изменения интенсивности "магнитного" максимума на кривых ядерно-резонансной рефлектометрии и мёссбауэровских спектров отражения при приложении внешнего поля позволяет описать переориентацию магнитных моментов.

рефлектометрия Ядерно-резонансная образца OT [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Сr(2 нм)]<sub>30</sub>. показывает наличие размытого магнитного максимума, соответствующий брэгговскому отражению полуцелого порядка. Поведение этого максимума при приложении внешнего магнитного поля обработка подтверждает его чисто магнитную природу. Совместная мёссбауэровских спектров И угловых кривых ядерно-резонансного отражения выявила сложную распределения магнитныго межслойного упорядочения: две спирали, одна в четных слоях железа, другая в нечетных, с разным знаком вращения (т.е. разной киральностью).

## Глава III. Поляризационный анализ магнитного отражения

# § 1. Селекция π→σ` поляризационной компоненты мёссбауэровсокого отражения

Поляризация излучения является важнейшей характеристикой сверхтонких переходов в мёссбауэровском рассеянии (и в рентгеновском магнитном рассеянии), и, как было показано в предыдущей главе, изменение поляризации падающего излучения (с неполяризованного на  $\pi$ -поляризацию) радикально изменяет мёссбауэровские спектры отражения и, что важно, позволяет более детально характеризовать ориентацию сверхтонкого обосновывают целесообразность поля. Эти результаты магнитного рассмотрения вопроса об анализе спектров и угловых зависимостей мёссбауэровсого отражения с разделением поляризации отраженного пучка. Актуальность такого рассмотрения следует и из аналогии мёссбауэровсого отражения и рефлектометрии поляризованных нейтронов, в которой кривые отражения исследуются в четырех модах [116]: "up" - "up", "up" - "down, "down" - "up", "down" - "down", где символы "up" и "down" относятся к направлению спинов нейтронов в падающем и отраженном пучке относительно направления ведущего магнитного поля.

Теоретические расчеты угловых зависимостей и спектров мессбауэровского отражения демонстрируют нетривиальные различия этих зависимостей для  $\pi \to \pi$ ` и  $\pi \to \sigma$ ` каналов рассеяния - Рис. 3.1.1. Расчет был произведен для многослойной структуры [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(2 нм)]<sub>30</sub>, величина сверхтонкого поля в слоях <sup>57</sup>Fe была принята за B<sub>hf</sub>=33 T с распределением  $\Delta B_{hf}$ =1 T. Было рассмотрено два направления намагниченности относительно СИ и два типа межслойного упорядочения между соседними слоями <sup>57</sup>Fe (ферромагнитное и антиферромагнитное). Направления токов сверхтонких переходов ( $\Delta m$ =0,  $\Delta m$ =±1), разрешенных для  $\pi$ -поляризованного излучения, обозначены оранжевыми линиями.



Рис. 3.1.1. Модельные расчеты угловых зависимостей ядерно-резонансной рефлектометрии (a-d) и мёссбауэровские спектры отражения в критическом угле 0.17° (e-g) и в "магнитном" максимуме (i) для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения и различных случаев ориентации ферромагнитного и антиферромагнитного межслойного упорядочения между слоями <sup>57</sup>Fe, относительно падающего излучения, схематично изображенных справа.

Угловые зависимости мёссбауэровского отражения рассчитывались, как и в Главе 2, как интеграл по мёссбауэровскому спектру отражения для каждого угла скольжения  $\theta$  (см. иллюстрацию на Рис. 2.1.2). Форма кривых для  $\pi \rightarrow \pi$ ` и  $\pi \rightarrow \sigma$ ` отражения существенно отличаются друг от друга:  $\pi \rightarrow \pi$ ` угловая зависимость имеет область плато в области полного внешнего отражения, в то время как  $\pi \rightarrow \sigma$ ` кривая отражения характеризуется наличием острого максимума в критическом угле (Рис. 3.1.1 (b, d)). В случае антиферромагнитного межслойного упорядочения (Рис. 3.1.1 (d)) "магнитный" максимум, соответствующий удвоению магнитного периода по сравнению с химическим, определяется практически полностью рассеянием с "поворотом" поляризации  $\pi \to \sigma$ ". Когда направление намагниченности перпендикулярно пучку СИ, канал рассеяния  $\pi \to \sigma$ " полностью подавлен (Рис. 3.1.1 (a, c)).

Отметим, что в области полного отражения мёссбауэровские  $\pi \rightarrow \pi$ ` спектры доминантного отражения (как и в случае измерений без анализа поляризации) напоминают спектры поглощения [101], но они асимметричны, или имеют дисперсионную форму вследствие интерференции ядернорезонансного рассеяния и рассеяния на электронных оболочках атомов. А спектры с «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma$ ` поляризацией имеют в области отражения радикально другую форму: они представлены пиками в резонансах практически на нулевом фоне, и эта форма характерна для всех углов скольжения.

В общем случае селекция по поляризации, во-первых, приводит к сокращению числа линий в мёссбауэровском спектре отражения и, вовторых, исключает эффекты интерференции с электронным рассеянием. Такое упрощение спектров может быть полезным для интерпретации слаборазрешенных мёссбауэровских спектров.

Рис. 3.1.2 также иллюстрирует преимущество селекции ПО поляризации установлении интерпретации В однозначности при спектров плохоразрешенных с неизвестным априори направлением намагниченности в образце.

Экспериментальный мёссбауэровский спектр из Главы II (Рис. 2.4.1), представленный на Рис 3.1.2 (а), может быть обработан как минимум тремя различающимися разными моделями, предполагаемым направлением B<sub>hf</sub>, сверхтонкого магнитного поля что дает при фитировании экспериментального спектра совершенно разное распределение сверхтонкого поля Рис. 3.1.2 (b-d). Рассмотрено три возможных направления B<sub>hf</sub>, характеризуемого в плоскости поверхности азимутальным углом у: B<sub>hf</sub> перпендикулярно пучку СИ (ү=0°), В<sub>hf</sub> параллельно пучку СИ (ү=90°), и у=57°, для этого значения азимутального угла спектр без селекции по

поляризации неотличим от спектра со случайной в пространстве ориентацией сверхтонкого поля B<sub>hf</sub>.



Рис. 3.1.2. (а) Мёссбауэровский спектр отражения из Главы II (Рис. 2.4.1) без селекции по поляризации от образца <sup>57</sup>Fe(0.12 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>. Символы – экспериментальные данные, три сплошные линии (практически неразличимые друг от друга) – результаты фитирования тремя моделями распределения величины сверхтонкого поля - (e-g), при предполагаемой различной B<sub>hf</sub>, обозначенной ориентации сверхтонкого поля на теоретических спектрах (b-d) рассчитанных для отражения с селекцией по  $\pi \rightarrow \pi$ ` и  $\pi \rightarrow \sigma$ ` поляризации.

Если спектры отражения без анализа поляризации совершенно неотличимы для трех рассмотренных моделей, то рассчитанные спектры для  $\pi \rightarrow \sigma$  поляризационной компоненты отраженной интенсивности существенно отличаются друг от друга для этих трех случаев. Этот модельный эксперимент показывает, что, с применением

поляризационного анализа можно восстановить истинную ориентацию и реальное распределение сверхтонкого поля.

# § 2. Эксперимент по мёссбауэровской рефлектометрии с применением поляризационного анализа

Измерения проводились на станции ядерно-резонансного рассеяния ID18 Европейского Синхротрона (ESRF) [107]. Схема эксперимента представлена на Рис. 3.2.1. Отличие этого эксперимента от того, который был главе, описан В предыдущей заключалось В отсутствии системы коллимирующих КВ-зеркал и в дополнительном устройстве для селекции поляризации отраженного пучка. Размер пучка, падающего на образец составлял 200×500 мкм<sup>2</sup>. Интенсивность излучения, падающего на образец,  $\sim 10^{4}$ фотон/с. Селекция составляла ПО поляризации  $\pi \rightarrow \sigma$ канала отраженного излучения осуществлялась при помощи двукратного отражения от кристалла-"бабочки" кремния, 90-градусное (840)-отражение от которого  $(\theta_{\rm B} = 45.1 \text{ для } \lambda = 0.086 \text{ нм})$  обеспечивало подавление  $\pi$ -поляризации до  $10^{-5}$ уровня интенсивности. Угловая ширина кривой отражения анализатора составляла ~2``.



Рис. 3.2.1. Экспериментальная схема.

Исследовались образцы [<sup>57</sup>Fe/Cr]<sub>30</sub>, описанные в Главе II. Анализатор поляризации следовало установить в отраженном пучке. Однако, «поймать» отраженный пучок оказалось неожиданно достаточно непросто. Угловое сканирование анализатором с приемной апертурой ~2`` (ширина кривой отражения для кристалла кремния) показало значительную расходимость 88

отраженного излучения (до 200``) для всех исследованных образцов. Разумеется, в обычной рефлектомерии используются детекторы с достаточно проблемы, широким приемным окном, И связанные с увеличенной расходимостью отраженного сигнала от многослойных структур, не возникали, этот вопрос фактически никогда не исследвовался. И Исследования диффузного рассеяния и малоуглового рассеяния (GISAXS grazing incidence small angle scattering [117,118]) обычно проводятся в более широком угловом интервале. На Рис. 3.2.2 представлены данные для образца <sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Сr(1.05 нм)]<sub>30</sub>.



Рис. 3.2.2. Угловые распределения ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) отражения от образца [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>, измеренные при сканировании кристаллаанализатора Si(840) в вертикальной плоскости для каждого угла  $\theta$ .

По сути образцы состояли из множества блоков, разориентированных относительно друг друга. Поэтому излучение, отраженное образцом [<sup>57</sup>Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]<sub>30</sub>, состояло из множества пиков, в угловом диапазоне 200<sup>°</sup>. При такой большой расходимости отраженного от образца излучения, анализатор, с апертурой ~2<sup>°</sup>, пропускал только 4% излучения. 89

Поэтому измерение кривой ортогональной поляризации существенно осложнилось.

Из-за низкой скорости счета, измерения в слабом "магнитном" максимуме для образца с антиферромагнитным межслойным упорядочением были невозможны, поэтому измерения были произведены только в критическом угле. Чтобы увеличить интенсивность ( $\pi \rightarrow \sigma$ )-отражения, вдоль пучка СИ было приложено магнитное поле 5 T, которое обеспечивало ферромагнитное упорядочение образца.

Для увеличения скорости счета, температура мёссбауэровского монохроматора  ${}^{57}$ FeBO<sub>3</sub> понижалась до 70°C, что приводило к-значительному SMS до ~230 нэВ (~5 MM/c). уширению линии Для угловых рефлектометрических кривых, измеряемых как интеграл ПО мёссбауэровскому спектру отражения, это уширение было приемлемым, а интенсивность отраженного ( $\pi \rightarrow \sigma$ )-излучения увеличивается на порядок.

Ядерно-резонансная кривая (π→σ`) отражения, показанная на Рис. 3.2.3, получена интегрированием угловых распределений, представленных на Рис. 3.2.2, для каждого угла скольжения.



Рис. 3.2.3. Угловая зависимость ядерно-резонансной рефлектометрии, измеренной с селекцией по поляризации ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) и без селекции по поляризации ( $\pi \rightarrow \pi$  + $\sigma$ ) Линии с символами показывают экспериментальные данные. Сплошные линии – теоретический расчет.

Предсказанный в теории пик вблизи критического угла полного внешнего отражения для ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) отраженной интенсивности отчетливо виден на Рис 3.2.3. Угловая зависимость без селекции по поляризации показывает плато ниже критического угла. К сожалению, значения сигналов для двух кривых нельзя сравнивать, так как они были сняты при различной интенсивности падающего излучения и в существенно различных условиях (при наличии и отсутствии кристалла –анализатора).



Рис. 3.2.4. Мёссбауэровские спектры отражения, измеренные от образца  $[{}^{57}$ Fe(0.8 нм)/Cr(1.05 нм)]\_{30} без селекции по поляризации (a) и с селекцией по  $(\pi \rightarrow \sigma^{5})$  поляризации (b,c). Линии с символами показывают экспериментальные данные. Сплошные линии – теоретический расчет, соответствующий распределению ядер с различными  $B_{hf}^{(i)}$ , представленному на Рис. 3.2.5(b), левая колонка. Пунктирные линии (зеленые) - расчет для независящей от глубины концентрации ядер с различным  $B_{hf}^{(i)}$  (см. Рис. 3.2.5(b), средняя колонка).

Измерение мёссбауэровских спектров  $\pi \to \sigma$  - отражения, возможное только с достаточно узкой линией излучения от ядерного монохроматора,

потребовало очень длительных измерений. Спектры с селекцией  $\pi \rightarrow \sigma$ ` поляризационной компоненты были измерены двух углах скольжения  $\theta$ =0.19° и  $\theta$ =0.22° (Рис. 3.2.4). Для сравнения также представлен спектр без селекции по поляризации (Рис. 3.2.4 (а)). Линии в этом спектре имеют дисперсионную форму, и они существенно уширены, как и должно быть при углах близких к критическому. Важно отметить, что, несмотря на существенно лучшую статистику спектра без селекции по поляризации, его размытая форма усложняет правильную интерпретацию. Поэтому спектры отражения с селекцией по поляризации лучше подходят для анализа данных, при условии, если удастся достичь лучшей статистики.



**b**)

Рис. 3.2.5. (а) Распределение сверхтонкого поля, полученное при обработке спектров на Рис 3.2.4 и его разложение на 7 уширенных секстетов. (b) Распределение по глубине в слоях <sup>57</sup>Fe для каждого из этих секстетов  $B_{hf}^{(i)}$  (i=1,7) в двух верхних периодах и для последующей периодической части (левая колонка). Первоначально предполагалось одинаковое распределение по глубине для всех  $B_{hf}^{(i)}$ , представленное в средней колонке. Резонансные спектры для каждой компоненты  $B_{hf}^{(i)}$  (правая колонка).

Расчеты проводились с помощью программного пакета REFSPC [104], адаптированного для обработки мёссбауэровских спектров отражения, измеренных с селекцией по поляризации. При фитировании спектров Рис. 3.2.4 использовалась отражения на модель, включающая семь сверхтонких полей B<sub>hf</sub><sup>(i)</sup>, i=1,...,7, полученных при разложении на полей  $P(B_{hf})$ , лоренцевские пики распределения сверхтонких представленного на Рис. 3.2.5 (а). Профили распределения по глубине резонансных ядер, характеризующихся этими B<sub>hf</sub><sup>(i)</sup>, представлены на рис Рис. 3.2.5. (b). Видно, что сверхтонкие поля в двух верхних слоях существенно отличаются от полей в глубине образца. На поверхности величина сверхтонкого расщепления <sup>57</sup>Fe в среднем меньше по величине. Предполагая такое же распределение поля в верхних слоях, как и во всей периодической части (Рис. 3.2.2 (b), средний столбец), получаем теоретические спектры, представленные пунктирными линиями на Рис. 3.2.4. Сравнение спектров, рассчитанных при разных распределениях сверхтонких взаимодействий по глубине подтверждают улучшенную структуры, структурную информативность мёссбауэровской рефлектометрии, дополненной селекцией по поляризации отраженного излучения.

Фитирование набора спектров не является однозначным ввиду огромного числа параметров для фита и плохой статистики измеренных спектров (хотя набор каждого спектра осуществлялся более 8 часов! Эффект возникновения  $\pi \rightarrow \sigma$ ` поляризации в отраженном сигнале мал ~  $10^{-3+.5}$  от полного коэффициента отражения, но именно потери за счет малой угловой апертуры анализатора практически гасят результат), осложняющей задачу. Представленные модельные спектры на Рис. 3.2.4 фактически только демонстрируют чувствительность спектров к распределению по глубине сверхтонких взаимодействий вблизи поверхности.

Несмотря на плохую статистику, вызванную существенной потерей интенсивности при использовании анализатора, в мёссбауэровских спектрах  $(\pi \rightarrow \sigma)$  отражения можно увидеть некоторые важные особенности.

Резонансные линии представлены в виде пиков, как это предсказывает теория (см. Рис. 3.1.1). Наблюдаемая асимметрия спектров, измеренных при двух близких углах скольжения  $\theta = 0.19^{\circ}$  и  $\theta = 0.22^{\circ}$ , оказалась неожиданной. Для ее объяснения сначала было высказано предположение, что селекция по поляризации является неполной, и очень маленький процент, но существенно большей интенсивности ( $\pi \rightarrow \pi$ ) отражения может давать такое искажение формы спектров  $(\pi \rightarrow \sigma)$  отражения. Однако модельные расчеты не подтвердили данное предположение. Последующий анализ позволил объяснить наблюдаемую асимметрию эффектом преломления.



Рис. 3.2.6. (а) Модельные расчеты  $\pi \rightarrow \sigma$ ` поляризационной компоненты в мёссбауэровском спектре отражения при разных углах скольжения. Пунктирные вертикальные линии указывают энергии, при которых угловые зависимости (в) были посчитаны. (б) Резонансный спектр для  $B_{hf} = 30$  T и 28 T. (с) Угловая зависимость для 1-ой (v= -5 мм/с) и 6-ой (v= 5 мм/с) линий более широкого резонансного спектра, соответствующего  $B_{hf} = 30$  T. Пунктирные вертикальные линии на с), указывают углы, для которых были рассчитаны спектры (а).

Для понимания эффекта был проведен модельный расчет с простой моделью, в которой только два сверхтонких поля  $B_{hf} = 28$  T и 30 T на ядрах <sup>57</sup>Fe имели место в отражающем образце (пленка <sup>57</sup>Fe толщиной 10 нм). Резонансные спектры для этих полей нарисованы на Рис. 3.2.6 (b). Угловые зависимости ядерно-резонансной  $\pi \rightarrow \sigma$  рефлектометрии, соответствующие двум крайним линиям секстета с бо́льшим расщеплением спектра, показывают разное угловое положение пика для критического угла (Рис. 3.2.6 (с)). Это смещение пика объясняет асимметрию мёссбауэровских спектров ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) - отражения.

Положение критического угла определяется действительной частью восприимчивости  $\chi$  (или показателем преломления  $n=1+\chi/2$ ). Для ядерно-резонансного рассеяния восприимчивость включает электронное рассеяние и ядерно-резонансную добавку. Действительная часть ядерно-резонансного вклада имеет разные знаки с двух сторон от точного резонанса. Поэтому резонансные линии секстета с меньшим расщеплением от  $B_{hf} = 28$  Т имеют противоположное влияние на показатель преломления для длин волн излучения, соответствующих 1-ой и 6-ой линиям более широкого секстета от  $B_{hf} = 30$  Т, что, соответственно, изменяет положение критического угла для этих длин волн. Так как максимум коэффициента отражения для этих двух линий находится при разных углах, то относительные интенсивности 1-ой и 6-ой линий широкого секстета в спектре отражения не одинаковы. Таким образом, эффект резонансного преломления.

### § 3. Стоячие волны в теории рефлектометрии

Если ультратонкий слой помещен над некоторой отражающей подложкой (Рис. 3.3.1), то, как показано было в [119, 120], и что соответствует [121] коэффициент отражения от всей системы может быть представлен в виде:

$$R^{tot} \cong R + R \frac{\sin \theta}{\eta} 2ik\eta d + (1+R)^2 r^d = R(1+iQd) + (1+R)^2 r^d \cong .$$
 (III.3.1)  
$$\cong R^{substr} e^{iQ(H+d)} + (1+R^{substr} e^{iQH})^2 r^d$$



Рис. 3.3.1. Схема, иллюстрирующая отражение от ультратонкого слоя в присутствии подложки.

В выражении (III.3.1)  $r^d$  – амплитудный коэффициент отражения от ультратонкого слоя в отсутствие подложки:

$$r^{d} \cong \frac{-r_{01}}{1-r_{01}^{2}} 2i\varphi^{d} = \frac{\eta^{2} - \sin^{2}\theta}{4\sin\theta\eta} i2k\eta d = \frac{ikd\ \chi}{2\sin\theta} , \qquad \text{(III.3.2)}$$

а  $(1 + R^{substr} e^{iQH})^2$  - квадрат амплитуды поля на ультратонком слое. Если ультратонкий слой помещен внутри многослойной среды зависимость от квадрата амплитуды поля для отражения от этого слоя сохраняется, но эта величина уже вычисляется более сложным образом:

$$E^{2}(z) = T(z)T'(z)(1 + R^{below}(z))^{2}, \qquad \text{(III.3.3)}$$

где

$$T(z)T'(z) = e^{2i(\varphi_1 + \varphi_2 + \dots + \varphi_{j-1})} \times \frac{(1 - r_1^2)(1 - r_2^2)\dots(1 - r_{j-1}^2)}{(1 + r_1R_2e^{2i\varphi_1})^2(1 + r_2R_3e^{2i\varphi_2})^2\dots(1 + r_{j-1}R_je^{2i\varphi_j-1})^2}$$
(III.3.4)

Если мёссбауэровское рассеяние существенно меньше рассеяния на электронных оболочках и не влияет на формирования общего поля в среде, то мёссбауэровское отражение с "повернутой"  $\pi \rightarrow \sigma$  поляризацией от всей многослойной структуры может быть вычислено простым суммированием резонансных  $\pi \rightarrow \sigma$  амплитуд, как в кинематической теории, но с учетом изменения по глубине квадрата амплитуды возбуждающего поля:

$$I^{\pi \to \sigma'}(\theta, \omega) = \left| \frac{\pi}{\lambda \sin \theta} \int \chi^{\pi \to \sigma'}(z, \omega) E_{\pi}^{2}(\theta, z, \omega) dz \right|^{2}. \quad \text{(III.3.5)}$$

Выражение (III.3.5) содержит амплитуду полного поля  $E(\theta, z, \omega)$  в четвертой степени ("квадрат стоячей волны"), и это объясняет существенные особенности мёссбауэровского  $\pi \rightarrow \sigma$  отражения. Во-первых, оно объясняет пик в критическом угле для ортогональной поляризации, так как  $\pi \rightarrow \sigma$ отражение оказывается зависящим от "квадрата" стоячей волны, (известно, волны  $|E(\theta,z)|^2$ вблизи поверхности рентгеновские стоячие что характеризуются наличием пика в критическом угле полного внешнего который проявляется, например, в угловой зависимости отражения, вторичного излучения, [122-124]). Во-вторых,  $|E^2(\theta, z, \omega)|^2$  является более контрастной функцией глубины , чем  $|E(\theta, z)|^2$ , что значительно улучшает разрешение по глубине π→б` отражения. Так, на Рис. 3.3.2 сравнивается распределение по глубине величин  $|E(\theta, z)|^2$  (слева) и  $|E^2(\theta, z, \omega)|^2$  (справа) для углов скольжения в окрестности критического угла в простейшей модели.



Рис. 3.3.2. Зависимости  $|E(\theta, z)|^2$  (слева) и  $|E^2(\theta, z, \omega)|^2$  (справа) от угла скольжения  $\theta$  и глубины проникновения *z*, рассчитанные для зеркала железа без учета ядерно-резонансного вклада в рассеяние.

В-третьих, этот подход существенно упрощает и ускоряет расчет отражения от анизотропных многослойных структур, при условии, что анизотропная часть амплитуды рассеяния мала. Стоячая волна  $E(\theta, z)$  на глубине z без учета резонансного взаимодействия может быть рассчитана в рамках обычной теории рентгеновской рефлектометрии (например, по алгоритму Паррата [125]), а не по сложному, и очень времязатратному алгоритму отражения от слоистоанизотропных сред (см. Главу 2, §1). Дихроичный сигнал  $I^{\pi \to \sigma'}(\theta, \omega)$  рассчитывается по формуле (III.3.5), использующей простое суммирование  $\chi_{res}^{\pi \to \sigma'}(z, \omega)$  с разных слоев с весами и фазовыми множителями  $E_{\pi}^2(\theta, z)$ . Если ядерно-резонансное рассеяние достаточно велико, поле  $E_{\pi}$  может изменяться по резонансному спектру  $E_{\pi} = E_{\pi}(\theta, z, \omega)$ . Однако, в большинстве случаев зависимостью  $E_{\pi}(\theta, z, \omega)$  от  $\omega$  можно пренебречь, особенно, когда ядерно-резонансная рефлектометрия



Рис. 3.3.3. (а) Использованная в расчетах модель: два тонких слоя <sup>57</sup>Fe с разными значениями сверхтонкого поля и их резонансные спектры. Сверхтонкое поле ориентировано вдоль пучка СИ. (b, нижняя часть) Зависимости  $|E_{\pi}^{2}(\theta, z, \omega)|^{2}$  от угла скольжения и глубины, рассчитанные для двух энергий фотонов (то есть скоростей мёссбауэровской развертки v), горизонтальные линии показывают положение двух слоев; (b, верхняя часть) угловые зависимости  $\pi \rightarrow \sigma^{5}$  отражения, соответствующего этим энергиям. Сплошные и пунктирные линии (практически неотличимые) соответствуют расчетам по формуле (III.3.5) и по точной теории по программе REFSPC [104]. (с) Мёссбауэровские спектры без селекции по поляризации (левая колонка) и с селекцией  $\pi \rightarrow \sigma^{5}$  отражения (правая колонка), рассчитанная для трех углов.

Улучшение разрешающей способности по глубине при измерении мёссбауэровских спектров  $\pi \rightarrow \sigma$ ° отражения по сравнению со спектрами без селекции по поляризации проиллюстрировано расчетом, результаты которого показаны на Рис. 3.3.3. Для того чтобы отличить верхний слой (1.5 нм <sup>57</sup>Fe) от нижнего (3 нм <sup>57</sup>Fe), в верхнем слое значение сверхтонкого поля принято

за  $B_{hf} = 26 \text{ T}$ , а в нижнем  $B_{hf} = 33 \text{ T}$ . Рассчитанные спектры отражения с селекцией и без селекции по поляризации для углов вблизи критического угла демонстрируют, что вклад верхнего слоя (1.5 нм <sup>57</sup>Fe) в спектры с  $\pi \rightarrow \sigma^{\gamma}$  отражения более существенен, чем для спектров без селекции по поляризации. Данная особенность объясняет также результаты, полученные на Рис. 3.2.5.

Применимость кинематического приближения (III.3.5) также была проверена расчетами, представленными на Рис. 3.3.3 (b). Угловые кривые были рассчитаны двумя способами: по формуле (III.3.5) и по точной теории с использованием программного пакета REFSPC [104] (сплошные И пунктирные линии соответственно). Оба результата совпадают. Однако для практически соответствия достижения полного ядерно-резонансная восприимчивость была уменьшена в 5 раз относительно значения чистого α-<sup>57</sup>Fe. Но такая уменьшенная восприимчивость характерна для реальных тонких пленок с широким распределением сверхтонких магнитных полей. Таким образом, прямое сравнение кинематического приближения (III.3.5) и точной теории показывает отличное согласие при условии, если резонансный вклад не слишком велик.

### Матрица отражения для ультратонкого слоя

Для возбуждения поляризации, ортогональной к падающей ( $\pi \rightarrow \sigma$ ) слой должен проявлять анизотропные (точнее дихроичные) свойства. Амплитудный коэффициент отражения от изотропного слоя хорошо известен (см., например, [121]). Попробуем здесь вывести аккуратно амплитудный коэффициент отражения от анизотропного слоя при помощи матрицы распространения. В анизотропном случае матрица распространения является матрицей 4х4, и она описывает изменение двумерных тангенциальных векторов электрического и магнитного поля излучения  $\mathbf{H}_t = \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \end{pmatrix}$  и

 $\mathbf{q} \times \mathbf{E} = \begin{pmatrix} -E_y \\ E_x \end{pmatrix}$  (ось *z* перпендикулярна отражающей поверхности, ось *x* 

выбрана перпендикулярна плоскости рассеяния, у в плоскости рассеяния, **q** - единичный вектор нормали к поверхности ):

$$\frac{d}{dz} \begin{pmatrix} H_{x}(z) \\ H_{y}(z) \\ -E_{y}(z) \\ E_{x}(z) \end{pmatrix} = ik \hat{M}(z) \begin{pmatrix} H_{x}(z) \\ H_{y}(z) \\ -E_{y}(z) \\ E_{x}(z) \end{pmatrix} \qquad . \tag{III.3.6}$$

В общем случае матрица  $\hat{M}(z)$  описана в книге [95] координатным методом и тензорном методом в [96, 126]. Если материальные уравнения включают только тензор диэлектрической восприимчивости  $\hat{\chi}$ ( $\mathbf{D} = \hat{\epsilon} \mathbf{E} = (1 + \hat{\chi}) \mathbf{E}, \ \mathbf{B} = \mathbf{H}$ ), тогда  $\hat{M}(z)$  с учетом малости  $\hat{\chi}$  в рентгеновском диапазоне представима в следующем виде [127, 128]:

$$\hat{\boldsymbol{M}} = \begin{pmatrix} -\frac{\chi_{yz}}{1+\chi_{zz}}\cos\theta & 0 & 1+\chi_{yy} - \frac{\chi_{zy}\chi_{yz}}{1+\chi_{zz}} & \frac{\chi_{yz}\chi_{zx}}{1+\chi_{zz}} - \chi_{yx} \\ \frac{\chi_{xz}}{1+\chi_{zz}}\cos\theta & 0 & \frac{\chi_{zy}\chi_{xz}}{1+\chi_{zz}} - \chi_{xy} & \chi_{xx} - \frac{\chi_{zx}\chi_{xz}}{1+\chi_{zz}} + \sin^2\theta \\ 1 - \frac{\cos^2\theta}{1+\chi_{zz}} & 0 & -\frac{\chi_{zy}}{1+\chi_{zz}}\cos\theta & \frac{\chi_{zx}}{1+\chi_{zz}}\cos\theta \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} \approx \\ & \approx \begin{pmatrix} -\chi_{yz}\cos\theta & 0 & 1+\chi_{yy} & -\chi_{yx} \\ \chi_{xz}\cos\theta & 0 & -\chi_{xy} & \sin^2\theta + \chi_{xx} \\ \frac{\sin^2\theta + \chi_{zz}}{1+\chi_{zz}} & 0 & -\chi_{zy}\cos\theta & \chi_{zx}\cos\theta \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$
(III.3.7)

Для случая мёссбауэровского отражения, которое существенно только при скользящих углах, когда соsθ≅1 матрица распространения упрощается:

$$\hat{M}^{Messb} \cong \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ \chi_{xz} & 0 & 0 & \sin^2 \theta + \chi_{xx} \\ \sin^2 \theta + \chi_{zz} & 0 & 0 & \chi_{zx} \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}.$$
 (III.3.8)

Интегральная матрица распространения  $\hat{L}(d)$  для ультратонкого слоя толщиной d и  $\hat{\chi}(z) = const$  может быть легко рассчитана при помощи разложения матричного экспоненциала до первого порядка по kd:

$$\hat{L}(d) = \exp(ikd\hat{M}) = \begin{pmatrix} \hat{l}_{1} & \hat{l}_{2} \\ \hat{l}_{3} & \hat{l}_{4} \end{pmatrix} \approx 1 + ikd\hat{M} \approx$$

$$\approx \begin{pmatrix} 1 - ikd \chi_{yz} \cos\theta & 0 & ikd (1 + \chi_{yy}) & -ikd \chi_{yx} \\ ikd \chi_{xz} \cos\theta & 1 & -ikd \chi_{xy} & ikd (\sin^{2}\theta + \chi_{xx}) \\ ikd \frac{\sin^{2}\theta + \chi_{zz}}{1 + \chi_{zz}} & 0 & 1 - ikd \chi_{zy} \cos\theta & ikd \chi_{zx} \cos\theta \\ 0 & ikd & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad \text{(III.3.9)}$$

Удобно разделить матрицу 4х4 на блоки 2х2  $\hat{l}_j$ , j = 1,..4.

Граничные условия с интегральной матрицей распространения представимы в виде четырех уравнений:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}_{t}^{T} \\ \mathbf{q} \times \mathbf{E}^{T} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{l}_{1} & \hat{l}_{2} \\ \hat{l}_{3} & \hat{l}_{4} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{H}_{t}^{0} + \mathbf{H}_{t}^{R} \\ \mathbf{q} \times \mathbf{E}^{0} + \mathbf{q} \times \mathbf{E}^{R} \end{pmatrix}.$$
 (III.3.10)

Определим амплитуду отражения  $\hat{p}$  для тангенциальных компонент магнитного поля излучения следующим соотношением:

$$\mathbf{H}_t^R = \hat{p} \ \mathbf{H}_t^0, \tag{III.3.11}$$

( $\hat{p}$  является матрицей 2х2), и введем 2х2 матрицу  $\hat{\gamma}^{0,R,T}$  обеспечивающую связь между тангенциальными векторами  $\mathbf{H}_t$  и  $\mathbf{q} \times \mathbf{E}$  для падающей, прошедшей, и отраженной волны (верхние индексы  $^{0,R,T}$  соответственно):

$$\mathbf{q} \times \mathbf{E}^{0,R,T} = \hat{\gamma}^{0,R,T} \mathbf{H}_t^{0,R,T} . \qquad (\text{III.3.12})$$

Тогда решение (III.3.10) представимо как [126]:

$$\hat{p} = [\hat{\gamma}^{T} (\hat{l}_{1} + \hat{l}_{2} \hat{\gamma}^{R}) - (\hat{l}_{3} + \hat{l}_{4} \hat{\gamma}^{R})]^{-1} [(\hat{l}_{3} + \hat{l}_{4} \hat{\gamma}^{0}) - \hat{\gamma}^{T} (\hat{l}_{1} + \hat{l}_{2} \hat{\gamma}^{0})].$$
(III.3.13)

Если ультратонкий слой находится в вакууме, матрицы  $\hat{\gamma}^{0,R,T}$  имеют очень простую форму:

$$\hat{\gamma}^{0,R,T} = \pm \begin{pmatrix} \sin\theta & 0\\ 0 & \frac{1}{\sin\theta} \end{pmatrix}.$$
 (III.3.14)

Вычисление числителя" в (III.3.13) дает в первом приближении:

$$\begin{aligned} (\hat{l}_{3} + \hat{l}_{4}\hat{\gamma}^{0}) - \hat{\gamma}^{T}(\hat{l}_{1} + \hat{l}_{2}\hat{\gamma}^{0}) &= \\ &= \left( ikd \frac{\sin^{2}\theta + \chi_{zz}}{1 + \chi_{zz}} - 0 \\ 0 & ikd \right) + \left( 1 - ikd \chi_{zy} \cos\theta - ikd \chi_{zx} \cos\theta \right) \left( \frac{\sin\theta - 0}{0 - \frac{1}{\sin\theta}} \right) - \\ &- \left( \frac{\sin\theta - 0}{0 - \frac{1}{\sin\theta}} \right) \left[ \left( 1 - ikd \chi_{yz} \cos\theta - 0 \\ ikd \chi_{xz} \cos\theta - 1 \right) + \left( \frac{ikd(1 + \chi_{yy}) - ikd \chi_{yx}}{-ikd \chi_{xy}} - ikd (\sin^{2}\theta + \chi_{xx}) \right) \left( \frac{\sin\theta - 0}{0 - \frac{1}{\sin\theta}} \right) \right] = \\ &= ikd \left( \begin{array}{c} \chi_{zz} \cos^{2}\theta - \chi_{yy} \sin^{2}\theta + (\chi_{yz} - \chi_{zy}) \cos\theta \sin\theta - \frac{1}{\sin\theta} (\chi_{zx} \cos\theta + \chi_{yx} \sin\theta) \\ - \frac{-1}{\sin\theta} (\chi_{xz} \cos\theta - \chi_{xy} \sin\theta) - \chi_{xx} / \sin^{2}\theta \end{array} \right) \end{aligned}$$

(III.3.15)

"Знаменатель" в (III.3.13) может быть упрощен до:

$$\begin{split} [\hat{\gamma}^{T}(\hat{l}_{1}+\hat{l}_{2}\hat{\gamma}^{R})-(\hat{l}_{3}+\hat{l}_{4}\hat{\gamma}^{R})] = \\ = & \begin{pmatrix} 1-ikd\,\chi_{zy}\cos\theta & ikd\,\chi_{zx}\cos\theta \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sin\theta & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sin\theta} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} ikd\,\frac{\sin^{2}\theta+\chi_{zz}}{1+\chi_{zz}} & 0 \\ 0 & ikd \end{pmatrix} + \\ & + \begin{pmatrix} \sin\theta & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sin\theta} \end{pmatrix} \left[ \begin{pmatrix} 1-ikd\,\chi_{yz}\cos\theta & 0 \\ ikd\,\chi_{xz}\cos\theta & 1 \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} ikd\,(1+\chi_{yy}) & -ikd\,\chi_{yx} \\ -ikd\,\chi_{xy} & ikd\,(\sin^{2}\theta+\chi_{xx}) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sin\theta & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sin\theta} \end{pmatrix} \right] \cong \\ & \cong \begin{pmatrix} 2\sin\theta & 0 \\ 0 & 2/\sin\theta \end{pmatrix} \end{split}$$
(III.3.16)

и обратная матрица легко вычисляется:

$$\begin{pmatrix} 2\sin\theta & 0\\ 0 & 2/\sin\theta \end{pmatrix}^{-1} = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 2/\sin\theta & 0\\ 0 & 2\sin\theta \end{pmatrix}.$$
(III.3.17)

В итоге получается:

$$\hat{p} = \frac{ikd}{2} \begin{pmatrix} 1/\sin\theta & 0\\ 0 & \sin\theta \end{pmatrix} \times \\ \times \begin{pmatrix} \chi_{zz}\cos^{2}\theta - \chi_{yy}\sin^{2}\theta + (\chi_{yz} - \chi_{zy})\cos\theta\sin\theta & \frac{1}{\sin\theta}(\chi_{zx}\cos\theta + \chi_{yx}\sin\theta)\\ \frac{-1}{\sin\theta}(\chi_{xz}\cos\theta - \chi_{xy}\sin\theta) & -\chi_{xx}/\sin^{2}\theta \end{pmatrix} = \\ = \frac{ikd}{2\sin\theta} \begin{pmatrix} \chi_{zz}\cos^{2}\theta - \chi_{yy}\sin^{2}\theta + (\chi_{yz} - \chi_{zy})\cos\theta\sin\theta & \frac{1}{\sin\theta}(\chi_{zx}\cos\theta + \chi_{yx}\sin\theta)\\ -\sin\theta(\chi_{xz}\cos\theta - \chi_{xy}\sin\theta) & -\chi_{xx} \end{pmatrix}$$

(III.3.18)

Вместо (III.3.11), целесообразно иметь матрицу отражения для электрического поля излучения  $\hat{r}$  и представить ее в базисе  $\sigma$ - и  $\pi$ -поляризационных орт. Если во внешней среде  $\chi_0 = 0$ , то преобразование из  $\hat{p}$  в  $\hat{r}$  простое:

$$\hat{r} = \begin{pmatrix} r_{\sigma \to \sigma'} & r_{\pi \to \sigma'} \\ r_{\sigma \to \pi'} & r_{\pi \to \pi'} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -p_{22} & p_{21} / \sin \theta \\ -p_{12} \sin \theta & p_{11} \end{pmatrix}.$$
 (III.3.19)

Матрица отражения для ультратонкого слоя принимает следующий вид:

$$\hat{r}^{Messb} \cong \frac{ikd}{2\sin\theta} \begin{pmatrix} \chi_{XX} & -\chi_{XZ} \\ -\chi_{ZX} & \chi_{ZZ} \end{pmatrix} = \frac{id\lambda}{\sin\theta} \rho^{Messb} \begin{pmatrix} f^{\sigma \to \sigma'} & -f^{\pi \to \sigma'} \\ -f^{\sigma \to \pi'} & f^{\pi \to \pi'} \end{pmatrix}.$$
(III.3.20)

# § 4. Селекция σ→π` поляризационной компоненты в рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии

В настоящее время рентгеновские эксперименты на базе синхротронных источников излучения сформировали эффективные методы исследования магнетизма XMCD (Magnetic X-ray Circular Dichroism –

магнитный круговой дихроизм для рентгеновского излучения), MXLD (Magnetic X-ray Linear Dichroism – магнитный линейный дихроизма для рентгеновского излучения), XM $\chi$ D (рентгеновский магнитокиральный дихроизм), фарадеевское вращение, X-MOKE (X-ray Magneto-Optical Kerr Effect – магнито-оптический эффект Керра для рентгеновского излучения), XRMR (X-ray resonant magnetic reflectivity – рентгеновская резонансная магнитная рефлектометрия), DAFS (аномальная тонкая структура спектров дифракции) [129-133, 30]. Резонансные спектры поглощения и рассеяния вблизи краев поглощения рентгеновского излучения исследуются на специализированных синхротронных станциях не только с очень хорошим энергетическим разрешением, но и селективно по поляризации излучения.

Обычно для магнитных исследований методом XRMR используются две круговые поляризации и анализируется параметр асимметрии отражения  $(I_+ - I_-)/(I_+ + I_-)$ , где  $I_+$  и  $I_-$  интенсивность отражения для правой и левой круговых поляризаций. Пологая, что матрица амплитуд отражения в  $\sigma$ -и  $\pi$ -поляризационных ортах может быть представлена в виде:

$$\hat{R}^{tot} = \begin{bmatrix} R_{\sigma\sigma'} & R_{\sigma\pi'} \\ R_{\pi\sigma'} & R_{\pi\pi'} \end{bmatrix}, \qquad (\text{III.3.21})$$

интенсивности отраженного излучения  $I_+$  и  $I_-$  для правой  $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix}$  и левой

 $\frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}$  круговых поляризаций падающего излучения могут быть

рассчитаны как:

$$I_{+} = \frac{1}{2} (|R_{\sigma\sigma'} + iR_{\sigma\pi'}|^{2} + |R_{\pi\sigma'} + iR_{\pi\pi'}|^{2}) =$$
  
=  $\frac{1}{2} \{|R_{\sigma\sigma'}|^{2} + |R_{\sigma\pi'}|^{2} + 2(\operatorname{Re} R_{\sigma\pi'} \operatorname{Im} R_{\sigma\sigma'} - \operatorname{Re} R_{\sigma\sigma'} \operatorname{Im} R_{\sigma\pi'}) + , \quad (\operatorname{III.3.22}) + |R_{\pi\sigma'}|^{2} + |R_{\pi\pi'}|^{2} + 2(\operatorname{Re} R_{\pi\pi'} \operatorname{Im} R_{\pi\sigma'} - \operatorname{Re} R_{\pi\sigma'} \operatorname{Im} R_{\pi\pi'})\}$ 

$$I_{-} = \frac{1}{2} (|R_{\sigma\sigma'} - iR_{\sigma\pi'}|^{2} + |R_{\pi\sigma'} - iR_{\pi\pi'}|^{2}) =$$
  
=  $\frac{1}{2} \{|R_{\sigma\sigma'}|^{2} + |R_{\sigma\pi'}|^{2} - 2(\operatorname{Re} R_{\sigma\pi'} \operatorname{Im} R_{\sigma\sigma'} - \operatorname{Re} R_{\sigma\sigma'} \operatorname{Im} R_{\sigma\pi'}) + . \quad (\text{III.3.23}) + |R_{\pi\sigma'}|^{2} + |R_{\pi\pi'}|^{2} - 2(\operatorname{Re} R_{\pi\pi'} \operatorname{Im} R_{\pi\sigma'} - \operatorname{Re} R_{\pi\sigma'} \operatorname{Im} R_{\pi\pi'})\}$ 

Эффект дихроизма в отражении ними вычисляется как:

$$(I_{+} - I_{-}) = 2(\operatorname{Re} R_{\pi\pi'} \operatorname{Im} R_{\pi\sigma'} - \operatorname{Re} R_{\sigma\sigma'} \operatorname{Im} R_{\sigma\pi'} + \operatorname{Im} R_{\sigma\sigma'} \operatorname{Re} R_{\sigma\pi'} - \operatorname{Im} R_{\pi\pi'} \operatorname{Re} R_{\pi\sigma'}) \quad . \tag{III.3.24}$$

Из (III.3.24) следует, что амплитуда отражения ортогональной поляризации, которая имеет чисто магнитную природу рассеяния и является обычно малой величиной, в методе XRMR усилена амплитудами отражения  $R_{\sigma\sigma'}$ ,  $R_{\pi\pi'}$ , которые являются существенно большими по величине. Этот факт делает, с одной стороны, измерения магнитного рассеяния намного проще, обработку однако, с другой стороны, существенно осложняет экспериментальных данных и извлечение магнитной информации, так как магнитные добавки исследуются не в чистом виде. Выражение (III.3.24) опровергает утверждение авторов [134, 135] о чисто магнитной природе параметра асимметрии. Можно отметить, что исследование чисто магнитной составляющей рассеяния была проделана в работе [136] на ферромагнитном многослойном образце Fe/C при комбинировании различных измерений (L-МОКЕ, Т-МОКЕ и Эффект Фарадея).

Очевидно, что селекция по поляризации отраженного излучения сразу дает недиагональные элементы матрицы отражения (III.3.21) в чистом виде.

Вычисление матрицы амплитудного коэффициента отражения начинается с задания тензора диэлектрической проницаемости  $\hat{\varepsilon} = 1 + \hat{\chi}$  с учетом магнитного рассеяния. Магнитные добавки для кругового  $\Delta \chi_m$  и линейного  $\Delta \chi_l$  дихроизма к восприимчивости  $\chi_0$  в случае дипольного резонансного перехода могут быть представлены в виде [137]:

$$\hat{\boldsymbol{\chi}} = \boldsymbol{\chi}_0 + i\Delta\boldsymbol{\chi}_m \mathbf{h}^{\times} + \Delta\boldsymbol{\chi}_l \mathbf{h} \circ \mathbf{h} , \qquad (\text{III.3.25})$$

где **h** единичный вектор намагниченности,  $\mathbf{h}^{\times}$  тензор дуальный вектору **h**.

В выбранной системе координат (Рис. 2.1.1) вектор намагниченности **h** может быть записан следующем образом:

$$\mathbf{h} = (\sin\beta\cos\gamma, \sin\beta\sin\gamma, \cos\beta). \tag{III.3.26}$$

Так как эффекты линейного дихроизма намного меньше эффектов кругового дихроизма, то оставим только добавки  $\Delta \chi_m$ :

$$\hat{\chi} = \chi_0 \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & -i\Delta\chi_m \cos\beta & i\Delta\chi_m \sin\beta\sin\gamma \\ i\Delta\chi_m \cos\beta & 0 & -i\Delta\chi_m \sin\beta\cos\gamma \\ -i\Delta\chi_m \sin\beta\sin\gamma & i\Delta\chi_m \sin\beta\cos\gamma & 0 \end{pmatrix}$$
(III.3.27)

Предположим, что намагниченности в ультратонком слое лежит в плоскости поверхности вдоль направления излучения (геометрия меридиального эффекта Керра, L-MOKE, β=90° и γ=90°), тогда получаем

$$\hat{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_0 & 0 & i\Delta\chi_m \\ 0 & \chi_0 & 0 \\ -i\Delta\chi_m & 0 & \chi_0 \end{pmatrix},$$
(III.3.28)

и из (III.3.19), (III.3.20) следует:

$$\hat{r}^{d} \cong \frac{ikd}{2\sin\theta} \begin{pmatrix} \chi_{0} & -i\Delta\chi_{m}\cos\theta\\ i\Delta\chi_{m}\cos\theta & \chi_{0}\cos2\theta \end{pmatrix}.$$
 (III.3.29)

Таким образом для  $\sigma$ -поляризованного падающего излучения, амплитуда которого представима в виде  $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$ , мы имеем амплитудный коэффициент отражения для  $\sigma \rightarrow \sigma$ ` канала отражения:

$$r_{\sigma \to \sigma'} = \frac{ikd}{2\sin\theta} \chi_0, \qquad (\text{III.3.30})$$

и для  $\sigma \rightarrow \pi$ ` канала отражения:

$$r_{\sigma \to \pi'} = \frac{-kd}{2\sin\theta} \Delta \chi_m \cos\theta \,. \tag{III.3.31}$$

Используя (III.3.3), коэффициент отражения от такого магнитного ультратонкого слоя, помещенного над отражающей подложкой, может быть записан в виде:

$$|R^{tot}|^2 \approx |R^{substr}e^{iQ(H+d)} + (E^{tot}(H))^2 r_{\sigma \to \sigma'}|^2 + |(E^{tot}(H))^2 r_{\sigma \to \pi'}|^2$$
, (III.3.32)  
где  $E^{tot}(H) = 1 + R^{substr}e^{iQH}$  амплитуда полного поля на позиции  
ультратонкого магнитного слоя,  $H$  расстояние от ультратонкого слоя до  
подложки. Выражение (III.3.32) состоит из двух слагаемых: первое  
представляет коэффициент отражения с той же поляризацией, что и  
падающее излучение, второе, ответственно за ортогональную к падающей  
поляризацию. Важно отметить, что второе слагаемое имеет чисто магнитную  
природу:

$$\left|R_{\sigma \to \pi'}\right|^{2} = \left|\left(E_{tot}(H)\right)^{2} \frac{kd \cos\theta}{2\sin\theta} \Delta \chi_{m}\right|^{2}.$$
 (III.3.33)

В общем случае, для произвольного направления намагниченности коэффициент отражения для  $\sigma \rightarrow \pi$ ` канала  $\left| R_{\sigma \rightarrow \pi'} \right|^2$  принимает вид:

$$\left| R_{\sigma \to \pi'} \right|^{2} = \left| \frac{kd}{2\sin\theta} (E_{tot}(H))^{2} \chi_{\sigma \to \pi'} \right|^{2} =$$

$$= \left| \frac{kd}{2\sin\theta} (E_{tot}(H))^{2} (-\chi_{yx} \sin\theta - \chi_{Zx} \cos\theta) \right|^{2}$$
(III.3.34)

Рис. 3.4.1 показывает угловую зависимость компоненты  $|R_{\sigma \to \pi}|^2$  при различном расстоянии ультратонкого слоя от подложки *H*. Расчет произведен для слоя Gd 0.1 нм для L<sub>2</sub> края поглощения гадолиния ( $E_{ph}$ =7930 eV,  $\lambda$ =0.1563 нм) на подложке кремния. Значения восприимчивостидля для гадолиния  $\chi_0$ =(-31.0+i\*10.0)\*10<sup>-6</sup> and  $\Delta \chi_m$ =(-0.1-i\*0.23)\*10<sup>-6</sup> были взяты из [138], для кремния  $\chi_0$ =(-15.6 +i 0.37) \*10<sup>-6</sup> из [139].

Полученные зависимости (Рис. 3.4.1) схожи с зависимостями, полученными в работе [123], посвященной влиянию стоячей волн на
флуоресценцию тяжелых атомах в Ленгмюр-Блоджетт пленке. Однако контраст в осцилляциях в рассчитанных зависимостях для ортогональной поляризации более явный из-за "квадрата амплитуды стоячей волны". Как наблюдаться повышенная следствие, должна чувствительность к поверхности. Важно отметить, что кривые, рассчитанные на Рис. 3.4.1 при (III.3.34) полностью идентичны помощи выражения точной теории магнитного отражения матрицами 4х4.



Рис 3.4.1 Угловые зависимости коэффициента отражения ортогональной поляризации (а), и разница левой и правой круговой поляризации  $(I_+ - I_-)$  (б) рассчитанной для ультратонкого магнитного слоя Gd, помещенного на различном расстоянии от *H* подложки Si. Намагниченность направлена параллельно излучению.

Важно отметить, что полученные формулы (III.3.33) и (III.3.34) позволяют проводить вычисления магнитных добавок в коэффициент отражения существенно быстрее, по сравнению с алгоритмом, основанным на матрицах распространения 4х4 [95, 96].

Пробные измерения отражения с селекцией по поляризации проведены на станции ФАЗА Курчатовского источника СИ (КИСИ). Измерения проводились вблизи L<sub>2</sub> края поглощения гадолиния (7930 эВ). Для монохроматизации синхротронного излучения использовался двухкристальный монохроматор Si(111). На Рис. 3.4.2 представлен скан по

энергии от образца [Fe/Pd/Gd/Pd]<sub>6</sub>, полученный для точной настройки монохроматора на нужную резонансную энергию фотонов *E*<sub>ph</sub>.



Рис. 3.4.2. Зависимость выхода  $L_{\beta}$  Gd — флуоресценции I<sub>flu</sub> от энергии пучка СИ  $E_{ph}$  для исследуемого образца вблизи  $L_2$  края поглощения гадолиния. Сплошная тонкая кривая — производная от графика флуоресценции в условных единицах. За рабочую точку принята энергия, при которой наблюдается максимум производной и где, согласно [49], ожидается максимальный магнитный эффект.

Для усиления эффекта дихроизма исследуемые образцы помещались на постоянный магнит (поле на образце было оценено как ~ 1.5 кЭ). Магнитное поле было направлено вдоль пучка СИ. Образец находился на оси «в» многокружного гониометра Huber 5021. Для селекции по поляризации составляющих отраженного пучка на оси «20» располагался кристалл-(20<sub>в</sub> =89.682° для излучения анализатор Si(422) с λ=0.15635 нм). Кристалл-анализатор вместе с детектором мог поворачиваться на 90° отраженного пучка и, таким образом, относительно регистрировать отраженное излучение селективно по σ'- и π'- поляризации. Съемка кривых рентгеновской рефлектометрии осуществлялась в режиме « $\theta$ -2 $\theta$ ».

Перед началом эксперимента были произведены измерения поляризации синхротронного пучка, которая оказалась смесью σ-и π-

поляризаций. Соотношение σ- и π- поляризации в пучке зависит от вертикального смещения относительно оси пучка СИ из поворотного магнита электронного накопителя и при нестабильном положении пучка относительно используемой оптики могло меняться.

Выбор образца для исследования с помощью "повернутой"  $\sigma \rightarrow \pi$ ` поляризации оказался непростым. Для L<sub>2,3</sub> краев поглощения переходных металлов, где эффект может быть максимальным, измерения на Курчатовском источнике (КИСИ) невозможны, поскольку эти края лежат в области мягкого рентгеновского излучения (E<sub>ph</sub> < 1 кэВ).

Для эксперимента был выбран образец Ті(10 нм)/Gd<sub>0.23</sub>Co<sub>0.77</sub>(250 нм)/Ті(10 нм). Согласно [140], температура компенсации для этого образца Т<sub>сотр</sub>=433 К, это означает, что при комнатной температуре должно наблюдаться магнитное упорядочение подрешетки гадолиния.



Рис. 3.5.3. Двумерные сканы отражения излучения при резонансной энергии фотонов E<sub>ph</sub>=7930 эВ от образца Ti(10 нм)/GdCo(250 нм)/Ti(10 нм) с селекцией σ- (а) и π- (b) поляризации излучения.

Измерения кривых отражения для этого образца с анализаторомполяризации выполнялись пошагово: для каждого угла скольжения проводилось сканирование по углу выхода из плоскости отражения, чтобы учесть возможный скос образца (Рис. 3.5.3). Рефлектометрические кривые отдельно для σ- и π- отраженного излучения (Рис. 3.5.4) получались интегрированием сканов по углу выхода ψ.



Рис. 3.5.4. Угловые зависимости отражения с селекцией по поляризации отраженного излучения, полученные путем интегрирования по углу ψ зависимостей на Рис. 3.5.3).

Наличие в падающем излучении значительной доли π-поляризации существенно усложняет возможность наблюдение дихроичного эффекта ("повернутой" из  $\sigma$ - в  $\pi$ - компоненты  $I_{\sigma \to \pi'}$ ) в отраженном излучении. Так как при скользящих углах падения коэффициенты  $\sigma \rightarrow \sigma'$  и  $\pi \rightarrow \pi'$  отражения имеют одинаковые зависимости, вычитая из кривой, измеренной с анализом π-поляризованного отраженного излучения, кривую с анализом σполяризованного отраженного излучения с соответствующим коэффициентом, была получена зависимость для  $\sigma \rightarrow \pi'$  отражения  $I_{\sigma \rightarrow \pi'}$ (Рис. 3.5.5). Хотя эффект является очень малым (как и следует из теории), но его угловая зависимость характеризуется максимумом В области критического Для подтверждения эффекта были проделаны угла. дополнительные измерения аналогичных кривых для энергии вне края поглощения (E<sub>ph</sub>=7920 эВ), которые показали что вне резонансной области пик в критическом угле для поляризации, ортогональной к падающей поляризации отсутствует.

Величина эффекта дихроизма также уменьшена из-за наличия ~10 нм защитной пленки титана на поверхности образца. Так как глубина проникновения излучения в области критического угла полного внешнего отражения крайне мала, то основной вклад в дихроичный эффект вносит интерфейсная область, а не пленка GdCo. Расчетная кривая для  $\sigma \rightarrow \pi$ ` отражения  $I_{\sigma \rightarrow \pi'}$  на Рис. 3.5.5 (а) соответствует несколько меньшему значению магнитной добавки к амплитуде рассеяния, чем та, что получена в работе [49] для 20 К, что ожидаемо, так как измерения проводились при комнатной температуре.



Рис. 3.5.5. (a) Экспериментальные кривые зеркального отражения  $\sigma \rightarrow \sigma'$  и  $\sigma \rightarrow \pi'$  от образца Ti(10 нм)/GdCo(250 нм)/Ti(10 нм) для энергии фотонов в краю поглощения E<sub>ph</sub>=7930 эВ (синие кривые) и вне края поглощения Е<sub>рh</sub>=7920 эВ (зеленые кривые). Символы – зависимости, полученные из эксперимента, сплошные линии – теоретические зависимости; (b) Сплошная профиль распределения по глубине магнитной добавки к линяя восприимчивости В интерфейсе  $Ti/Gd_{0.23}Co_{0.77}$ . Пунктирные кривые изображают профили квадрата стоячей волны при 3-х углах скольжения, выступают "весовыми множителями" при которые интегрировании магнитной добавки к амплитуде рассеяния.

К сожалению, большая ошибка при нахождении величины эффекта дихроизма, которая возникает из-за необходимости вычитания близких по величине зависимостей, не позволяет количественно определить значение Gd образце. магнитного момента В Однако. последующее усовершенствование эксперимента (например, использование дополнительного кристалла-поляризатора для падающего излучения) позволит проводить элементно-селективные магнитные исследования с помощью протестированной методики использованием линейнос поляризованного излучения.

#### Основные результаты главы Ш

Глава посвящена поляризационному анализу зеркально отраженного излучения в ядерно-резонансной и рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии.

Приведены результаты модельных расчетов, демонстрирующих, как изменятся мёссбауэровские спектры и угловые кривые ядерно-резонансного отражения при селекции поляризационных компонент в отраженном сигнале. Показано, что ядерно-резонансные рефлектометрические  $\pi \rightarrow \pi$ ` и  $\pi \rightarrow \sigma$ ` кривые отличаются друг от друга:  $\pi \rightarrow \pi$ ` угловая зависимость имеет область плато полного внешнего отражения, в то время как  $\pi \rightarrow \sigma$ ` кривая характеризуется наличием острого максимума в критическом угле.

Впервые проведен эксперимент по мёссбауэровской рефлектометрии с применением поляризационного анализа отраженного излучения на станции ID18 Европейсткого синхротрона ESRF. Был зарегистрирован предсказанный максимум отражения вблизи критического угла для  $\pi \rightarrow \sigma$ ` отраженного излучения и измерены  $\pi \rightarrow \sigma$ ` мёссбауэровские спектры в этом максимуме.

Развита обобщенная кинематическая теория отражения, применимая для всех углов скольжения, включая область критического угла. Показано, что если резонансное рассеяние мало и не нарушает структуру поля излучения внутри многослойной отражающей среды, то суммарная резонансная амплитудная компонента в отраженном сигнале может быть получена интегрированием резонансных амплитуд рассеяния с весовым множителем, являющимся квадратом полного поля на каждой глубине, где имеется резонансный отклик. Показано, что при этом резонансный отклик модулируется стоячими рентгеновскими волнами "в квадрате", что обуславливает, в частности, возникновение пика в критическом угле полного внешнего отражения для отраженной волны с "повернутой" поляризацией ( $\pi \rightarrow \sigma$ ` или  $\sigma \rightarrow \pi$ `), а также улучшение селективности по глубине при анализе поляризации отраженного излучения.

На станции ФАЗА Курчатовского источника СИ (КИСИ) впервые осуществлен эксперимент с анализом поляризации отраженного излучения на образце Ti(10 нм)/Gd<sub>0.23</sub>Co<sub>0.77</sub>(250 нм)/Ti(10 нм). Измерения проводились вблизи L<sub>2</sub> края поглощения гадолиния (7930 эВ). Обработка результатов подтвердила наличие пика в критическом угле для отраженного излучения с поляризацией, ортогональной к поляризации падающего излучения, обусловленного магнитном рассеянием.

# Глава IV. Влияние поляризационных характеристик сверхтонких переходов на временные спектры ядернорезонансного рассеяния на изотопе <sup>161</sup>Dy

## § 1. Общая характеристика мёссбауэрских исследований на <sup>161</sup>Dy

Мёссбауэровские исследования на изотопе <sup>161</sup>Dy возможны на низкоэнергетичном резонансном переходе с энергией 25.651 кэВ [141, 142]. Переход происходит между уровнями 5/2 → 5/2 с мультипольностью Е1.



Рис. 4.1.1. Схема разрешенных переходов <sup>161</sup>Dy (а), и штрих-диаграммы возбуждаемых мёссбауэровских переходов при скользящих углах падающего  $\sigma$ -поляризацованного излучения при разных направлениях сверхтонкого поля:  $B_{hf}$  лежащего в плоскости поверхности образца и перпендикулярного СИ,  $\mathbf{B}_{hf} \perp \mathbf{k}_{0,R}$  (б), параллельно СИ  $\mathbf{B}_{hf} \parallel \mathbf{k}_{0,R}$  (в) и для случайной в пространстве ориентации сверхтонкого поля (г). Для расчета выбрана величина сверхтонкого поля  $B_{hf}$ =550 T, квадрупольное расщепление принято равным нулю.

Для такого типа перехода взаимодействие ядра происходит не с магнитным полем излучения, как в случае М1 перехода в <sup>57</sup>Fe, а с электрическим полем излучения, поэтому мы должны рассматривать переходы, возбуждаемые при σ-поляризации СИ синхротронного излучения. В зависимости от направления намагниченности образца число разрешенных переходов меняется (Рис. 4.1.1).

На Рис. 4.1.1 показана схема разрешенных переходов <sup>161</sup>Dy. С учетом правил отбора (для дипольного перехода  $\Delta m=\pm 1,0$ ) для перехода  $5/2 \rightarrow 5/2$  в общем случае могут возбуждаться 16 линий (Рис. 4.1.1 г). При использовании линейной поляризации СИ, с учетом поляризационных свойств переходов, число линий может сокращается в зависимости от ориентации сверхтонкого поля относительно СИ (Рис. 4.1.1 б,в).

Диспрозий магнитоупорядочивается при низких температурах (для металлического Dy температура Неля  $T_N=178$  K, а температура Кюри  $T_c=90$  K. [143, 144], и в интервале между температурой Кюри ( $T_C=85$  K) и температурой Нееля ( $T_N=178$  K) имеет место несоразмерная спиральная магнитная структура [145]). Мёссбауэровские спектры <sup>161</sup>Dy при гелиевых температурах характеризуются крайне большим расщеплением ±225 мм/с, что соответствует сверхтонкому полю B<sub>hf</sub>~570 T [146].

Мёссбауэровские эксперименты с изотопом <sup>161</sup>Dy [147, 148] на синхротронах возможны только на временной шкале измерения. В таких экспериментах спектры измеряются по времени распада возбужденного уровня резонансного ядра (для <sup>161</sup>Dy время жизни возбужденного состояния 42 нс), после короткого (почти мгновенного) импульса СИ. На таких спектрах мёссбауэровское расщепление проявляется как квантовые биения, которые возникают в результате интерференции различных компонент спектра. По квантовым биениям можно восстановить величину сверхтонкого расщепления [149, 150]. Период квантовых биений  $\Delta t$  связан с разностью энергий для двух мёссбауэровских переходов  $\Delta E$  следующим соотношением:

117

$$\Delta t(\mu c) = \frac{h}{\Delta E(\mu \ni B)}.$$
 (IV.1)

С учетом связи 1 мм/с=85.3567 нэВ:

$$\Delta t(\mu c) = \frac{48.3343669(\text{MM/ }c^* \text{ Hc})}{\Delta E(\text{MM/ }c)}.$$
 (IV.2)

Исхоля (IV.2) наибольшему соотношения расшеплению ИЗ (2\*225мм/с) соответствуют квантовые биения с частотой  $\Delta t \approx 0.11$  нс. Это значение меньше временного разрешения детекторов (>0.3 нс) на современных станциях ядерно-резонансного рассеяния, что не позволяет зафиксировать интерференцию крайних линий В спектре, однако интерференцию между центральными линиями зарегистрировать возможно.

### § 2. Временные спектры ядерно-резонансного отражения от <sup>161</sup>Dy

Интенсивность отраженного излучения во временном представлении можно  $I(\theta, t)$  для падающего  $\sigma$ -поляризованного излучения можно вычислить по формуле:

$$I(\theta,t) = \left| \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} R^{\sigma \to \sigma'}(\theta,\omega) e^{-i\omega t} d\omega \right|^2 + \left| \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} R^{\sigma \to \pi'}(\theta,\omega) e^{-i\omega t} d\omega \right|^2, \quad (\text{IV.3})$$

 $R^{\sigma \to \sigma'}(\theta, \omega) = R^{\sigma \to \pi'}(\theta, \omega)$  амплитуды зеркального отражения, без гле изменения поляризации и с изменением поляризации отраженного излучения соответственно. Чувствительность мёссбауэровских спектров отражения к ориентации сверхтонкого поля B<sub>hf</sub>, основана на поляризационных особенностях токов соответствующих сверхтонких переходах. Проекция токов на плоскость, перпендикулярную направлению излучения, определяет поляризацию поглощенного и рассеянного излучения. Когда ток ортогонален поляризации падающего излучения, то переход не возбуждается. При этом при рассеянии линейно поляризованного СИ поляризация излучения может меняться. Так в случае, когда сверхтонкое поле параллельно падающему



излучению ( $\mathbf{B}_{hf} \parallel \mathbf{k}_{0,R}$ ), рассеянное излучение на переходах с  $\Delta m = \pm 1$  имеет круговую поляризацию.

Рис. 4.2.1. Слева: мёссбауэровские спектры отражения, рассчитанные в критическом угле  $\theta$ =0.11° для различной ориентации сверхтонкого поля относительно направления СИ (ориентация аналогична Рис. 4.1.1). По центру: соответствующие временные спектры отражения, усредненные по времени 0.3 нс (на вставке изображен фрагмент временного спектра без усреднения). Справа: Фурье-преобразование спектров без усреднения, показывающее частоты квантовых биений (на вставке изображено Фурье преобразование для временных спектров после усреднения по времени). Расчет отражения был произведен для структуры Cr(10 нм)/Dy (50 нм)/Y (100  $B_{hf}=550$ нм)/Nb (100)нм)/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Τ, Величина сверхтонкого поля квадрупольное расщепление принято равным нулю.

На временной шкале измерения поляризация рассеянного излучения играет ключевую роль. Так рассеянное (или отраженное) излучение с правой и левой круговой поляризацией не интерферирует между собой, точнее, их интерференция не проявляются в квантовых биениях интенсивности (Рис. 4.2.1). Поэтому, не смотря на то, что для случая  $\mathbf{B}_{hf} \| \mathbf{k}_{0,R}$  в мёссбауэровском спектре возбуждаются близкорасположенные линии ( $\Delta E = 9.185 \text{ мм/c}$ ), они не дают осцилляций интенсивности с периодом  $\Delta t = 48.3343669 (\text{мм/c}) * hc / \Delta E(mm/c) = 5.26$  нс на квантовых биениях, так как обладают круговой поляризацией с разными знаками.

В случае случайного в пространстве распределения сверхтонкого поля, близкорасположенные линии оказываются одинаково линейно поляризованными, и на временных спектрах соответствующая частота присутствует. Частоты  $\Omega_1 = 1/5.26 = 0.19$  нс<sup>-1</sup>, а также частоты  $\Omega_2 = 1.6$  нс<sup>-1</sup> ( $\Delta E$ =77.88 мм/с,  $\Delta t = 0.62$  нс) и  $\Omega_3 = 1.8$  нс<sup>-1</sup> ( $\Delta E = 87.065$  мм/с,  $\Delta t = 0.555$  нс) (см Рис. 4.1.1) могут быть еще зарегистрированы детектором, в случае, когда сверхтонкое поле распределено случайно в пространстве.

#### § 3. Ядерно-резонансная рефлектометрия

При измерениях ядерно-резонансного отражения по времени распада ядерно-резонансная кривая отражения измеряется как интеграл по задержанному сигналу:

$$I^{delayed}(\theta) = \int_{\Delta}^{T} I(\theta, t) dt$$
 (IV.4)

△ - время включения детектора после синхротронного импульса (~5-10 нс). Т
 – интервал между импульсами (банчами).

Ядерно-резонансное рассеяние зависит от направления B<sub>hf</sub>, поэтому наличие периодической структуры (например, несоразмерной геликоидальной магнитной структуре объемном образце, В или антиферромагнитного межслойного упорядочения многослойной В структуре) приводит к появлению дополнительных максимумах на кривых ядерно-резонансной рефлектометрии. Согласно [145] в объемном диспроизии может существовать несоразмерная геликоидальная магнитная структура, а

период геликоида зависит от температуры. А в работе [151] наблюдалось геликоидальное магнитное упорядочение в многослойной структуре [Dy/Y]<sub>n</sub> в слоях диспрозия, при этом геликоид не прерывался на границах слоев.



Рис. 4.3.1. Рентгеновская рефлектометрическая кривая для энергии фотонов 25.6 кэВ, И ядерно-резонансные рефлектометрический кривые ДЛЯ геликоидальной магнитной структуры в слоях диспрозия с различным Расчет магнитным периодом. произведен для модели Cr(10 нм)/[Dy(3 нм)/Gd(6 нм)] <sub>20</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Величина сверхтонкого поля  $B_{hf}$ =550 T, квадрупольное расщепление принято равным нулю.

На Рис. 4.3.1 показан расчет влияния геликоидальной структуры в зависимости от магнитного периода на кривые ядерно-резонансного отражения от Cr(10 нм)/[Dy(3 нм)/Gd(6 нм)] <sub>20</sub>/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Наличие магнитного

периода, отличного от химического, приводит к появлению дополнительных максимумах на кривой ядерно-резонансного отражения.

# § 4. Эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии от сверхрешентки [Dy/Gd]<sub>n</sub>

Эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии был произведен **ID18** [107] Европейского синхротрона (ESRF). на станции Схема эксперимента показана на Рис. 4.4.1. Белый пучок синхротронного излучения первоначально монхроматизировался с помощью монохроматора с высокой тепловой нагрузкой: два отражения Si (111) [108], настроенного на энергию  $^{161}$ Dy. 25.651 кэВ ядерно-резонансного перехода изотопа Далее СИ коллимировалось системой составных преломляющий рентгеновских линз до угловой расходимости в несколько микрорадиан. После излучение попадало на монохроматор высокого разрешения [107], с пропускной способностью ~0.9 мэВ. Интенсивность излучения, падающего на образец, составляла 107 фотон/с.



Рис. 4.4.1. Схема эксперимента.

многослойный образец Исследовался периодический Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb(100 нм)/Y(50 нм)/[Dy(6 нм)/Gd(6 нм)]<sub>20</sub>/Al(10 нм), приготовленный методом магнетронного напыления в ИФМ УрО РАН (г. Екатеринбург). Подробности изготовления образца изложены в статьях 152]. [A2, Использовался диспрозий с естественной концентрацией резонансного изотопа <sup>161</sup>Dy (18.9%). Образец был помещен в криостат и охлажден до 4 К. Чтобы избежать формирование магнитных ломенов охлаждение производилось в магнитном поле 4Т, после охлаждения поле было снято.



Рис. 4.4.2. Рентгеновская и ядерно-резонансной рефлектометрия для образца [Dy(6 нм)/Gd(6 нм)]<sub>20</sub> измеренная при 4 К. Символами показаны экспериментальные данные, сплошными линиями – обработка.

Кривые рентгеновского и ядерно-резонансного отражения показаны на Рис. 4.4.2. Обработка рентгеновской рефлектометрии дает значение химического периода структуры 14.4 нм (Рис. 4.4.3) и шероховатость поверхности 1.4 нм.



Рис. 4.4.3. Распределение электронной плотности по глубине, полученное в результате обработки рентгеновской рефлектометрии представленной на Рис 4.4.2.

Ядерно-резонансная рефлектометрическая кривая показывает наличие дополнительного "магнитного" максимума соответствующего магнитному периоду  $D^{magn} \approx 8.7$  нм. Магнитный период  $D^{magn}$  не соизмерим с химическим периодом ( $D^{chem} \approx 11.4$  нм) сверхрешетки и примерно двое превосходит период магнитной геликоиды, формирующейся, как известно, в объемном Dy выше температуры Кюри  $T_c = 85K$  [145]. Однако, для выявления спирального упорядочения магнитных моментов Dy в сверхрешетке [Dy/Gd] требуются дополнительные измерения.



Рис. 4.4.3. Временные спектры ядерно-резонансного отражения, измеренные в критическом угле в температурном диапазоне от 4 до 110 К. Символами показаны экспериментальные данные, сплошными линиями – обработка. Пунктирная линия на нижнем графике представляет естественный распад.

Временные спектры Рис. 4.4.3 ядерно-резонансного отражения измерялись в критическом угле в температурном диапазоне от 4 до 110 К. При температуре выше 110 К измерения не представлялись возможными, Ha вследствие релаксационного подавление резонансного сигнала. временных спектрах присутствует только одна частота квантовых биений, интерференцией которая определяется двух центральных линий мёссбауэровского спектра диспрозия (см Рис. 4.1.1). По периоду осцилляций можно однозначно определить величину сверхтонкого магнитного поля B<sub>hf</sub>. Величина сверхтонкого поля, определенная по наблюдаемому периоду 4 К составила  $B_{hf}$  =569.7 Г, что согласуется с осцилляций, при литературными данными [146]. При повышении температуры период биений увеличивается, то есть сверхтонкое поле уменьшается. Полная зависимость величины сверхтонкого поля от температуры показана на Рис. 4.4.4. К сожалению, по одной осцилляции на временных спектрах невозможно определить величину квадрупольного расщепления  $\Delta E_0$ , так как его влияние на положение центральных линий незначительно.



Рис. 4.4.5. Зависимость времени релаксации и величины сверхтонкого поля от температуры.

Отличие скорости распада возбужденных состояний ядер от естественного распада при 4 К объясняется известным эффектом "ускорения распада" (speed-up) при когерентном рассеянии в условиях зеркального отражения [75, 153], а также релаксационными процессами. Временные спектры постепенно сжимаются к началу времени распада с увеличением температуры. Этот эффект может быть объяснен только спиновой релаксацией, которая увеличивается с температурой. Для описания спиновой релаксации можно ввести параметр увеличения ширины линии рассеяния ΔГ. Тогда амплитуда рассеяния примет вид:

$$f^{nucl}(\omega) \propto \frac{\Gamma_0 / 2\hbar}{\omega - \omega_0 + i \frac{\Gamma_0 + \Delta\Gamma}{2\hbar}}$$
(IV.5)

Связь времени релаксации τ с ΔГ определяется соотношением:

$$\tau = \frac{\hbar}{\Delta\Gamma}$$
 (IV.6)

Зависимость времени релаксации т от температуры Т показана на Рис. 4.4.5. В диапазоне температур 50÷110 К (где релаксация проявляется наиболее явно) температурная зависимость времени релаксации удовлетворяет уравнению Аррениуса (Рис. 4.4.6). При температуре 110 К полученное время релаксации равно ~16 нс, что согласуется с [154].



Рис. 4.4.6. Зависимость  $\ln \tau$  от температуры T, аппроксимированное уравнением Аррениуса  $\tau = \tau_0 \exp(\frac{E_a}{k_B T})$ , где  $E_a$  – энергия активации.

Таким образом, нами продемонстрирована принципиальная возможность проведения мёссбауэровских исследований магнитного упорядочения в многослойных структурах, содержащих изотоп <sup>161</sup>Dy используя возможности синхротронных станций ядерно-резонансного рассеяния. Ранее подобные исследования были возможны только с использованием поляризованных нейтронов.

#### Основные результаты главы IV

Эта последняя глава посвящена ядерно-резонансной рефлектометрии с возбуждением ядерного E1 перехода 25.651 кэВ в изотопе <sup>161</sup>Dy.

Дан краткий обзор мёссбауэрских исследований на мёссбауэровском изотопе <sup>161</sup>Dy, рассмотрены разрешенные сверхтонкие переходы в <sup>161</sup>Dy с учетом линейной σ-поляризации СИ и проанализированы особенности спектров ядерно-резонансного отражения. временных Показано, что квантовые биения на временной шкале распада, соответствующие максимальному расщеплению магнитного спектра при характерном для <sup>161</sup>Dy сверхтонком магнитном поле ~ 550 T, не могут быть зарегистрированы при существующем временном разрешении ~0.3 нс детекторов, а наблюдаемая биений соответствует разнице энергий близлежащих линий частоты (например, для переходов  $+1/2 \rightarrow -1/2$  и  $-1/2 \rightarrow +1/2$ ).

Приведены результаты модельных расчетов угловых зависимостей ядерно-резонансной рефлектометрии, измеряемой как интеграл по задержанному сигналу для разных типов магнитного межслойного упорядочения в многослойной структуре при возбуждении ядерного перехода в <sup>161</sup>Dy.

Впервые проведен эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии с возбуждением ядерного E1 перехода 25.651 кэВ в изотопе  $^{161}$ Dy. Временные спектры ядерно-резонансного отражения от сверхрешетки [Dy(6 нм)/Gd(6 нм)]<sub>20</sub> измерены в критическом угле в температурном диапазоне от 4 до 110 К. Величина сверхтонкого поля, определенная по наблюдаемому периоду осцилляций, при 4 К составила B<sub>hf</sub> =569.7 Т.

По наличию дополнительного максимума на угловых зависимостях ядерно-резонансной рефлектометии сделано заключение о существовании

127

периодической магнитной структуры в исследованной сверхрешетке, магнитный период которой (D<sup>magn</sup>≈8.7 нм) не соизмерим с ее химическом периодом (D<sup>chem</sup>≈11.4 нм).

#### Основные результаты и выводы

Диссертационная работа посвящена развитию метода резонансной мёссбауэровской и рентгеновской резонансной магнитной рефлектометрии для исследования многослойных магнитоупорядоченных пленок с использованием поляризационных характеристик резонансного поглощения Основные работы рассеяния. результаты могут быть кратко И сформулированы следующим образом.

- 1. Выполнены экспериментальные исследования методом мёссбауэровской рефлектометрии на поляризованном излучении, формируемым ядерным монохроматором синхротронного излучения, и проведена расшифровка магнитного упорядочения в различных многослойных пленках и его трансформации под действием приложенного поля. Обнаружена двойная спиральная структура магнитных моментов атомов Fe в образце [<sup>57</sup>Fe/Cr]<sub>30</sub>, толщина прослоек Cr в котором является промежуточной для создания феррои антиферромагнитного упорядочения между слоями <sup>57</sup>Fe.
- Разработаны теоретические основы для анализа поляризационных зависимостей ядерно-резонансного отражения и созданы пакеты программ для расчета и обработки экспериментальных угловых и спектральных зависимостей мёссбауэровского отражения с селекцией отраженного излучения по поляризации.
- 3. Развита обобщенная кинематическая теория отражения, применимая для всех углов скольжения, включая область критического угла, применимая к описанию компонент отраженного излучения с поляризацией, ортогональной к поляризации падающего излучения. стоячими Показано, что эти компоненты модулируются "В квадрате", что обуславливает, рентгеновскими волнами В частности, возникновение пика в критическом угле полного внешнего отражения для отраженной волны с "повернутой" поляризацией  $(\pi \rightarrow \sigma)$  или  $\sigma \rightarrow \pi)$ , а также улучшение селективности по глубине при анализе поляризации отраженного излучения.
- 4. Впервые проведен эксперимент с анализом поляризации отраженного излучения в мёссбауэровской рефлектометрии на станции ID18 Европейсткого синхротрона ESRF. Обнаружен пик в критическом

угле для отраженного излучения с поляризацией, ортогональной к поляризации падающего излучения. Показаны новые возможности метода с селекцией по поляризации, а именно исключение нерезонансного вклада в отраженную интенсивность, упрощение формы мёссбауэровских спектров отражения, улучшение селективности по глубине.

- 5. Ha ΦA3A СИ станции Курчатовского источника (КИСИ) осуществлен эксперимент с анализом поляризации отраженного образце Ti(10 нм)/Gd<sub>0.23</sub>Co<sub>0.77</sub>(250 нм)/Ti(10 нм). излучения на Измерения проводились вблизи L<sub>2</sub> края поглощения гадолиния (7930 эВ). Обработка результатов подтвердила наличие теоретически предсказанного пика в критическом угле для отраженного излучения с поляризацией, ортогональной к поляризации падающего излучения, обусловленного магнитном рассеянием в предкраевой области.
- 6. Впервые проведен эксперимент по ядерно-резонансной рефлектометрии с возбуждением мёссбауэровского уровня 25.651кэВ на изотопе <sup>161</sup>Dy. Рассчитана схема расщепления уровней и показано, что вследствие гигантского магнитного расщепления спектра при доступном разрешении ~0.3 нс детекторов квантовые биения на временной шкале распада могут быть зарегистрированы только для близких линий в спектре. Сжатие временных спектров отражения при повышении температуры от 4 К до ~ 110 К объяснено релаксацией. В многослойной пленке  $[Dy/Gd]_{20}$ обнаружена периодическая магнитная структура, магнитный период которой (D<sup>magn</sup>≈8.7 нм) не соизмерим с химическом периодом сверхрешетки (D<sup>chem</sup>≈11.4 нм).

# Литература

[1] А.С. Давыдов Квантовая Механика // Изд-во Наука. Москва. 1973. 703с.

[2] *M. Blume* Magnetic scattering of x rays // J. App. Phys. 1985. V. 57. p.3615-3618.

[3] *M. Blume, D. Gibbs* Polarization dependence of magnetic x-ray scattering // Phys. Rev. B. 1988. V. 37. p.1779-1798.

[4] *F. de Bergevin, M. Brunel* Observation of magnetic superlattice peaks by X-ray diffraction on an antiferromagnetic NiO crystal // Phys. Lett. A. 1972. V. 39. p.141-142.

[5] D. Gibbs, D.E. Moncton, K.L. D'Amico, J. Bohr, B.H. Grier Magnetic Scattering Studies of Holmium Using Synchrotron Radiation // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. p.234-237.

[6] J. Bohr, D. Gibbs, D.E.Moncton, K.L. D'Amico Spin slips and lattice modulations in holmium: A magnetic x-ray scattering study // Physica A. 1986.
 V. 140. p.349-358.

[7] D. Gibbs, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, C. Vettier Polarization and Resonance Properties of Magnetic X-Ray Scattering in Holmium // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 61. p.1241-1244.

[8] D. Gibbs, G. Grübel, D. R. Harshman, E. D. Isaacs, D. B. McWhan, D. Mills, C. Vettier Polarization and resonance studies of x-ray magnetic scattering in holmium // Phys. Rev. B. 1991. V. 43. p.5663-5681.

[9] V. Fernandez, C. Vettier, F. de Bergevin, C. Giles, W. Neubeck Observation of orbital moment in NiO // Phys. Rev. B. 1998. V. 57. p.7870-7876.

B.T. Thole, G. van der Laan, G.A. Sawatzky Strong Magnetic Dichroism
 Predicted in the M<sub>4,5</sub> X-Ray Absorption Spectra of Magnetic Rare-Earth Material //
 Phys. Rev. Lett. 1985. V. 55. p.2086-2088.

[11] G. van der Laan, B.T. Thole, G.A. Sawatzky, J.B. Goedkoop, J.C. Fuggle, J.M. Esteva, R.C. Karnatak, J.P. Remeika, H.A. Dabkowska Experimental proof of magnetic x-ray dichroism // Phys. Rev. B. 1986. V. 34. p. 6529-6531.

[12] C.T. Chen, F. Sette, Y. Ma, S. Modesti Soft-x-ray magnetic circular dichroism at the L<sub>2,3</sub> edges of nickel // Phys. Rev. B. 1990. V. 42. p.7262-7265.

[13] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette, G. van der Laan X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization // Phys. Rev. Lett. 1992. V. 68. p.1943-1946.
[14] P. Carra, B.T. Thole, M. Altareli, X. Wang X-ray circular dichroism and local magnetic fields // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 70. p.694-697.

[15] C.T. Chen, Y.U. Idzerda, H.-J. Lin, N.V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G.H. Ho, E. Pellegrin, F. Sette Experimental Confirmation of the X-Ray Magnetic Circular Dichroism Sum Rules for Iron and Cobalt // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. p.152-155.

[16] *P. Kuiper, B.G. Searle, P. Rudolf, L.H. Tjeng, C.T. Chen* X-Ray magnetic Dichroism of antiferromagnet Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: the orientation of magnetic moments observed by Fe 2p X-Ray Absorption spectroscopy // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 70. p.1549-1552.

[17] *M.M. Schwickert, G.Y. Guo, M.A. Tomaz, W.L. O'Brien, G.R. Harp* X-Ray magnetic linear dichroism in absorption at the L edge of metallic Co, Fe, Cr and V // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. p.R4289-R4292.

[18] D. Weller, J. Stöhr, R. Nakajima, A. Carl, M. G. Samant, C. Chappert, R. Mégy, P. Beauvillain, P. Veillet, G. A. Held Microscopic Origin of Magnetic Anisotropy in Au/Co/Au Probed with X-Ray Magnetic Circular Dichroism //Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75. p.3752-3755.

[19] *H. Maruyama, F. Matsuoka, K. Kobayashi, H. Yamazaki* A separation of the Pt 5d orbital and spin moments in a ferrimagnetic CrPt3 compound // Physica B. 1995. V. 208-209. p.787-788.

[20] *H. Maruyama, F. Matsuoka, K. Kobayashi, H. Yamazaki* 5d electronic states in Pt alloys probed by magnetic circular X-ray dichroism // Journ. of Magn. Magn. Mater. 1995. V. 140-143. part 1. p.43-44.

[21] M.G. Samant, J. StoK hr, S.S.P. Parkin, G.A. Held, B.D. Hermsmeier, F. Herman, M. van Schilfgaarde, L.-C. Duda, D.C. Mancini, N. Wassdahl, R.

*Nakajima* Induced Spin Polarization in Cu Spacer Layers in Co/Cu Multilayers // Phys. Rev. Lett. 1994. V. 72. p.1112-1115.

[22] S. Pizzini, A. Fontaine, C. Giorgetti, E. Dartyge, J.F. Bobo, M. Piecuch, F. Baudelet Evidence for the Spin Polarization of Copper in Co/Cu and Fe/Cu Multilayers // Phys. Rev. Lett. 1995. 74. p.1470-1473.

[23] G. Schütz, W. Wagner, W. Wilhelm, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahm, G. Materlik Absorption of circularly polarized x rays in iron // Phys. Rev. Lett. 1987.
V. 58. p.737-740.

[24] *H. Ebert, P. Strange, B.L. Gyorffy* Theory of circularly polarized x-ray absorption by ferromagnetic Fe // J. Appl. Phys. 1988. V. 63. p.3055-3057.

[25] P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M. C. Malagoli, W. Eberhardt, K. Kern, C. Carbone Ferromagnetism in one-dimensional monatomic metal chains // Nature. 2002. V. 416. p.301-304.

[26] J.P. Hannon, G.T. Trammell, M. Blume, D. Gibbs X-Ray Resonance Exchange Scattering // Phys. Rev. Lett. 1988. V. 61. p.1245-1248.

[27] R. V. Pisarev, I. G. Siny, G. A. Smolensky Magnetic exchange dichroism in ferrimagnetic RbNiF<sub>3</sub> and antiferromagnetic KNiF<sub>3</sub> // Solid State Commun. 1967.
 V. 5. p.959-961.

[28] *P. Kuiper, B.G. Searle, P. Rudolf, L.H. Tjeng, C.T. Chen* X-Ray magnetic Dichroism of antiferromagnet Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>: the orientation of magnetic moments observed by Fe 2p X-Ray Absorption spectroscopy // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 70. p.1549-1552.

[29] *J. Kunes, P.M. Oppeneer* Anisotropic x-ray magnetic linear dichroism at the L2,3 edges of cubic Fe, Co, and Ni: *Ab initio* calculations and model theory // Phys. Rev. B. 2003. V. 67. p.024431-1-9.

[30] Е.Н. Овчинникова, А.П. Орешко, Е.В. Дмитриенко Синхротронные исследования конденсированных сред. Резонансная дифракция синхротронного излучения // ООП Физического факультета МГУ. Москва. 2016. 214 с.

[31] K. Namikava, M. Ando, T. Nakajima, H. Kawata X-Ray Resonance Magnetic Scattering // Phys. Soc. Jpn. 1985. V. 54. p.4099-4102.

[32] E. D. Isaacs, D. B. McWhan, C. Peters, G. E. Ice, D. P. Siddons, J. B. Hastings, C. Vettier, O. Vogt X-ray resonance exchange scattering in UAs // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 62. p.1671-1674.

[33] *P. Carra, M. Altarelli, F. De Bergevin* Resonant exchange scattering of x rays in ferromagnetic systems // Phys. Rev. B. 1989. V. 40. p.7324-7327.

[34] *J. P. Hill, D. F. McMorrow* Resonant Exchange Scattering: Polarization Dependence and Correlation Function // Acta Cryst. 1996. V.A52. p.236-244.

[35] W. Neubeck, C. Vettier, K.-B. Lee, F. de Bergevin K-edge resonant x-ray magnetic scattering from CoO // Phys. Rev. B. 1999. V. 60. p.R9912- R9912.

[36] A. Stunault, F. de Bergevin, D. Wermeille, C. Vettier, Th. Brückel, N. Bernhoeft, G. J. McIntyre, and J. Y. Henry K-edge resonant x-ray magnetic scattering from RbMnF<sub>3</sub>//Phys. Rev. B. 1999. V. 60. p.10170-10179.

[37] *T. Matsumura, N. Oumi, K. Hirota, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Wakabayashi, T. Arima, S. Ishihara, Y. Endoh* Observation of the antiferroquadrupolar order in DyB2C2 by resonant x-ray scattering // Phys. Rev. B. 2002 V. 65. p.094420-1-11.

[38] C. Kao, J.B. Hastings, E.D. Johnson, D.P. Siddons, G.C. Smith, G. A. Prinz

Magnetic-resonance exchange scattering at the iron  $L_{II}$  and  $L_{III}$  edges // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 65. p.373-376.

[39] D. H. Templeton, L.K. Templeton X-ray dichroism and polarized anomalous scattering of the uranyl ion // Acta Cryst. 1982. V. A38. p.62-67.

[40] D. H. Templeton, L.K. Templeton X-ray dichroism and anomalous scattering of potassium tetra-chloroplatinate(II) // Acta Cryst. 1985. V. A41. p.365-371.

[41] *D. H. Templeton, L.K. Templeton.* X-ray birefringence and forbidden reflections in sodium bromate// Acta Cryst. 1986. V. A42. p.478-481.

[42] *V. E. Dmitrienko* Forbidden reflections due to anisotropic X-ray susceptibility of crystals. Acta Cryst. 1983. V. A39. p.29-37.

[43] V. E. Dmitrienko Anisotropy of X-ray susceptibility and Bragg reflections in cubic crystals //Acta Cryst. 1984. A40. p.89-95.

[44] В.А. Беляков, В.Е. Дмитриенко Поляризационные явления в рентгеновской оптике // Успехи физ. наук. 1989. Т. 158. с.679-721.

[45] J. M. Tonnerre, L. Sève, D. Raoux, G. Soullié, B. Rodmacq, P. Wolfers Soft X-Ray Resonant Magnetic Scattering from a Magnetically Coupled Ag / Ni Multilayer // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 75 p.740-743.

[46] J. Geissler, E. Goering, M. justen, F. Weigand, G. Schutz, J. Langer, D Schmitz, H. Maletta, R. Mattheis Pt magnetization profile in a Pt/Co bilayer studied by resonant magnetic x-ray reflectometry // Phys. Rev. B. 2001. V. 65. p.020405-1-4.

[47] S.-K. Kim, J.B. Kortright Modified magnetism at a bured Co/Pd interface resolved with X-Ray standing Waves // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 86. p.1347-1350.

[48] S. M. Valvidares, C. Quirós, A. Mirone, J.-M. Tonnerre, S. Stanescu, P. Bencok, Y. Souche, L. Zárate, J. I. Martín, M. Vélez, N. B. Brookes, J. M. Alameda Resolving antiferromagnetic states in magnetically coupled amorphous Co-Si-Si multilayers by soft x-ray resonant magnetic scattering // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. p.064406-1-7.

[49] Y. Choi, D. Haskel, R. E. Camley, D. R. Lee, J. C. Lang, G. Srajer, J. S. Jiang,
S. D. Bader Temperature evolution of the Gd magnetization profile in strongly coupled Gd/Fe multilayer // Phys. Rev. B. 2004. V. 70. 134420-1-10.

[50] M. Abes, D. Atkinson, B. K. Tanner, T. R. Charlton, Sean Langridge, T. P. A. Hase, M. Ali, C. H. Marrows, B. J. Hickey, A. Neudert, R. J. Hicken, D. Arena, S. B. Wilkins, A. Mirone, S. Lebègue Spin polarization and exchange coupling of Cu and Mn atoms in paramagnetic CuMn diluted alloys induced by a Co layer // Phys. Rev. B. 2010.V. 82. p.184412-1-11.

[51] S. Catalano, M. Gibert, V. Bisogni, F. He, R. Sutarto, M. Viret, P. Zubko, R. Scherwitzl, G. A. Sawatzky, T. Schmitt, J.-M. Triscone Tailoring the electronic transitions of NdNiO3 films through (111)<sub>pc</sub> oriented interfaces // APL Materials. 2015. V. 3. p.062506-1-7.

[52] J. W. Freeland, J. Chakhalian, A. V. Boris, J.-M. Tonnerre, J. J. Kavich, P. Yordanov, S. Grenier, P. Zschack, E. Karapetrova, P. Popovich, H. N. Lee, B.

*Keimer* Charge transport and magnetization profile at the interface between the correlated metal  $CaRuO_3$  and the antiferromagnetic insulator  $CaMnO_3$  // Phys. Rev. B. 2010. V. 81. p.094414-1-7.

[53] M. Gibert, M. Viret, P. Zubko, N. Jaouen, J.-M. Tonnerre, A. Torres-Pardo, S. Catalano, A. Gloter, O. Stéphan, J.-M. Triscone Interlayer coupling through a dimensionality-induced magnetic state // Nature Communications. 2016. V. 7. p.11227-1-7.

[54] C. Klewe, T. Kuschel, J.-M. Schmalhorst, F. Bertram, O. Kuschel, J. Wollschläger, J. Strempfer, M. Meinert, G. Reiss Static magnetic proximity effect in Pt/Ni1-xFex bilayers investigated by x-ray resonant magnetic reflectivity // Phys. Rev. B. 2016. V. 93. p.214440-1-9.

[55] D.R. Lee, Y.J. Park, S.H. Park, Y.H. Jeong, K.B. Lee, N. Ishimatsu, H. Hashizume, N. Hosoito Resonant X-ray reflectivity measurements of a magnetic multilayer [Gd/Fe]<sub>10</sub> // Physica B. 1998. V. 248. p.146-151.

[56] E. Kravtsov, D. Haskel, S. G. E. te Velthuis, J. S. Jiang, B. J. Kirby Complementary polarized neutron and resonant x-ray magnetic reflectometry measurements in Fe/Gd heterostructures: Case of inhomogeneous intralayer magnetic structure // Phys. Rev. B 2009. V. 79. p.134438-1-13.

[57] H. Frauenfelder, D.E. Nagle, R.D. Taylor, D.R. Cochran, W.M. Visscher
 Elliptical Polarization of Fe<sup>57</sup> Gamma Rays // Phys. Rev. 1961. V. 126. p.1065-1075

[58] *R. M. Housley, R. W. Grant, U. Gonser* Coherence and Polarization Effects in Mössbauer Absorption by Single Crystals // Phys. Rev. 1979. V. 178. p.514-522.

[59] G. J. Perlow, S. S. Hanna, M. Hamermesh, C. Littlejohn, D. H. Vincent, R. S. Preston, J. Heberle Polarization of Nuclear Resonance Radiation in Ferromagnetic Fe<sup>57</sup> // Phys. Rev. Lett. 1960. V.4. p.74-75.

[60] *R. M. Housley* A convenient source of nearly monochromatic linearly polarized <sup>57</sup>Fe gamma-rays // Nuclear Instr. Methods. 1968. V.62. p.321-322.

[61] U. Gonser, H. Sakai, W. Keune Fe<sup>57</sup> polarimetry based on quadrupole interaction // J. Phys. Colloques. 1976 V. 37. p.C6-709-C6-711.

[62] W. Keune, S. K. Date, I. Dézsi, and U. Gonser Mössbauer-effect study of Co<sup>57</sup> and Fe<sup>57</sup> impurities in ferroelectric LiNbO<sub>3</sub> // Journal of Applied Physics. 1975. V. 46. p.3914-3914.

[63] *P. Imbert* Etude par l'effet mössbauer de l'effet faraday au voisinage des raies d'absorption de Fe<sup>57</sup> // Physics Letters. 1964. V. 8. p.95-96.

[64] P. Imbert Étude des phénomènes de dispersion associés aux raies d'absorption
 Mössbauer de <sup>57</sup>Fe // Journal de Physique. 1966. V. 27. 429-432.

[65] *M. Henry, F. Varret* Mössbauer polarimetry using fluosilicates double motion drive and effective thickness measurements // Phys. Stat. Sol. 1977. V. A44. p.601-607.

[66] *S. Shtrikman* Mössbauer spectroscopy with polarized monochromatic radiation // Solid State Communications. 1967. V. 5. p.701-703.

[67] *O.C. Kistner* Test for Time-Reversal Invariance of the Electromagnetic Interaction Using the MÖssbauer Effect in Ru<sup>99</sup> Phys. Rev. Lett. 1967. V. 19. p. 872-887.

[68] *M. Blume, O.C.Kistner* Resonant absorption in the presence of Faraday rotation // *Phys. Rev.* 1968. V. 171. p.417-425.

[69] L. Deák, L. Bottyán, T. Fülöp, G. Kertész, D. L. Nagy, R. Rüffer, H. Spiering, F. Tanczikó, and G. Vankó Switching Reciprocity On and Off in a Magneto-Optical X-Ray Scattering Experiment Using Nuclear Resonance of  $\alpha$ -<sup>57</sup>Fe Foils // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 109. p.237402-1-4.

[70] R. *M. Housley, U. Gonser* Mössbauer Faraday Effect // Phys. Rev. 1969. V.171. p.480-484.

[71] *U. Gonser, R. M. Housley* Sign determination of the magnetic hyperfine field by the Mössbauer-Faraday effect // Physics Letters A. 1968. V. 26. p.157-158.

[72] *H.-D. Pfannes, U. Gonser* Mössbauer birefringence rotation polarimeter // Nuclear Instruments and Methods. 1974. V. 114. p.297-299.

[73] E. Gerdau, R. Rüffer, H. Winkler, W. Tolksdorf, C.P. Klages, J.P. Hannon Nuclear Bragg diffraction of synchrotron radiation in Yttrium Iron Garnet // Phys. Rev. Lett. 1985. V. 54. p.835-838. [74] J. B. Hastings, D.P. Siddons, U. van Bürck, R. Hollatz, U. Bergmann Mössbauer spectroscopy using synchrotron radiation // Phys. Rev. Lett. 1991. V.
66. p.770-773.

[75] *G.V. Smirnov* General properties of nuclear resonant scattering // Hyperfine Interactions. 1999. V. 123 p.31-77.

[76] *M. Andreeva, A. Gupta, G. Sharma, S. Kamali, K. Okada and Y. Yoda*, Field induced spin reorientation in [Fe/Cr]<sub>n</sub> multilayers studied by nuclear resonance reflectivity, Phys. Rev. B **92**, 134403-1-12 (2015).

[77] D. P. Siddons, U. Bergmann, J.B. Hastings Time-dependent polarization in Mössbauer experiments with synchrotron radiation: suppression of electronic scattering // Phys. Rev. Lett. 1993. V. 70. p.359-362.

[78] D. P. Siddons, U. Bergmann, J.B. Hastings Polarization effects in resonant nuclear scattering // Hyperfine Interactions. 1999. V.123/124. p.681-719.

[79] T.S. Toellner, E.E. Alp, W. Sturhahn, T. M. Mooney, X. Zhang, M. Ando, Y. Yoda, S. Kikuta Polarizer/analyzer filter for nuclear resonant scattering of synchrotron radiation // Appl. Phys. Lett. 1995. V. 67. p.1993-1995.

[80] *C. L'abbé, R. Coussement, J. Odeurs, E.E. Alp, W. Sturhahn, T.S. Toellner, C.* Johnson Experimental demonstration of time-integrated synchrotron-radiation spectroscopy with crossed polarizer and analyzer // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. p.4181-4185.

[81] J. Haber, K.S. Schulze, K. Schlage, R. Loetzsch, L. Bocklage, T. Gurieva, H. Bernhardt, H.-C. Wille, R. Rüffer, I. Uschmann, G. G. Paulus & R. Röhlsberger Collective strong coupling of X-rays and nuclei in a nuclear optical lattice // Nature Photonics. 2016. V.10. p. 445-449.

[82] В.А. Беляков, Ю.М. Айвазян О прямом определении структуры, образуемой магнитными кристаллическими полями на ядрах, имеющих месбауэровские изотопы // Письма в ЖЭТФ. 1968. Т. 7. с.477-480.

[83] *М.А. Андреева, Р.Н. Кузьмин* Возможности мёссбауэрографии в определении магнитной структуры кристаллов // Кристаллография. 1969. Т.14. с.708-710. [84] М.А. Андреева, Р.Н. Кузьмин Сверхтонкая структура брэгговских максимумов в мёссбауэрографии // ДАН СССР 1969. Т.185. с.1282-1284.

[85] В.А. Беляков, Ю.М. Айвазян О квадрупольных дифракционных максимумах в мессбауэровском рассеянии // Письма в ЖЭТФ. 1969. Т. 9. с.637-639.

[86] В.А. Беляков, Ю.М. Айвазян О прямом определении магнитной структуры кристаллов с помощью эффекта Мёссбауэра // УФН. 1969. Т. 97. с.743-746.

[87] Г.В.Смирнов, В.В. Скляревский, Р.А. Восканян, А.Н. Артемьев Ядерная дифракция резонансного ү-излучения на антиферромагнитном кристалле // Письма в ЖЭТФ. 1969. Т. 9. с.123-127.

[88] G. V. Smirnov, U. van Bürck, A. I. Chumakov, A. Q. R. Baron, and R. Rüffer Synchrotron Mossbauer source // Phys. Rev. B. 1997. V. 55. p.5811-5815.

[89] *T. Mitsui, M. Seto, M. Hirao, Y. Ohishi, Y. Kobayashi, Y. Higashitaniguchi, R. Masuda* Ultrahigh-Pressure Measurement in the Multimegabar Range by Energy-Domain Synchrotron Radiation <sup>57</sup>Fe-Mössbauer Spectroscopy Using Focused X-Rays // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V.46. p.L382-L384.

[90] *T. Mitsui, M. Seto, R. Masuda K., Kiriyama, Y. Kobayashi, Synchrotron* Radiation Mössbauer Spectroscopy Using Doppler-Shifted 14.4 keV Single-Line <sup>57</sup>Fe-Mössbauer Radiation // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V. 46. p.L703-L705.

[91] *T. Mitsui, M. Seto R. Masuda* Variable-Frequency Nuclear Monochromator Using Single-Line Pure Nuclear Bragg Reflection of Oscillating <sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> Single Crystal // Jpn. J. Appl. Phys. 2007. V. 46. p.L930-L932.

[92] V. Potapkin, A.I. Chumakov, G.V. Smirnov, J.-P. Celse, R. Rüffer, C. McCammon, L. Dubrovinsky The <sup>57</sup>Fe Synchrotron Mössbauer Source at the ESRF // J. Synchrotron Rad. 2012. V. 19. p.559-569.

[93] C. L'abbé, J. Meersschaut, W. Sturhahn, S.J. Jiang, T.S. Toellner, E.E. Alp,
S.D. Bader Nuclear Resonant Magnetometry and its Application to Fe/Cr
Multilayers // Phys. Rev. Lett. 2004. V. 93. p.037201 – 037204.

[94] T. Mitsui, Y. Imai, R. Masuda, M. Seto, K. Mibu 57Fe polarization-dependent synchrotron Mössbauer spectroscopy using a diamond phase plate and an iron

borate nuclear Bragg monochromator // J. Synchrotron Rad. 2015. V. 22. p.427-435.

[95] Р. Аззам, Н. Башара Эллипсометрия и поляризованный свет (пер. под ред. А.В. Ржанова и К.К. Свиташева). М.: Мир. 1981. 583 с.

[96] Л.М. Барковский, Г.Н. Борздов, В.И. Лаврукович Тензорный импеданс и преобразование световых пучков системами анизотропных слоев. П. Косое падение. // Журнал прикладной спектроскопии. 1976. Т. 25. с.526-531.

[97] Андреева М.А., Росете К. Теория отражения от мёссбауэровского зеркала. Учёт послойных изменений параметров СТВ вблизи поверхности // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1986. Т. 27. с.57-62.

[98] *M. Andreeva, A. Gupta, G. Sharma, S. Kamali, K. Okada, Y. Yoda* Field induced spin reorientation in [Fe/Cr]<sub>n</sub> multilayers studied by nuclear resonance reflectivity // Phys. Rev. B. 2015. V.92. p.134403-1-12. (Supplemental Material at http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevB.92.134403).

[99] A.Q.R. Baron, J. Arthur, S.L. Ruby, A.I. Chumakov, G.V. Smirnov, G.S. Brown Angular dependence of specular resonant nuclear scattering of x-rays. Phys. Rev. B. 1994. V. 50. p.10354–10357.

[100] T. S. Toellner, W. Sturhahn, R. Röhlsberger, E. E. Alp, C. H. Sowers, E. E. Fullerton Observation of Pure Nuclear Diffraction from a Fe/Cr Antiferromagnetic Multilayer // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 74. p.3475–3478.

[101] *S. Bernstein, E. C. Campbell* Nuclear anomalous dispersion in <sup>57</sup>Fe by the method of total reflection // Phys. Rev. 1963. V. 132. 1625-1633.

[102] S.A. Isaenko, A.I. Chumakov, S.I. Shinkarev Studies of grazing incidence reflection of nuclear *γ* -radiation from 57Fe film. Phys. Lett. A. 1994. V.186. 274-278.

[103] M.A. Andreeva, A.I. Chumakov, G.V. Smirnov, Yu.A. Babanov, D.I. Devyaterikov, B.Yu. Goloborodsky, D.A. Ponomarev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov, R. Rüffer Striking anomalies in shape of the Mössbauer spectra measured near "magnetic" Bragg reflection from [Fe/Cr] multilayer // Hyperfine Interact. 2016. V.237. p.1-9.

[104] *M. A. Andreeva, B. Lindgren, V. Panchuck* REFSPC // http://www.esrf.eu/computing/scientific/REFTIM/MAIN.htm

[105] *R. Röhlsberger, J. Bansmann, V. Senz, K. L. Jonas, A. Bettac, K. H. Meiwes-Broer, O. Leupold* Nanoscale magnetism probed by nuclear resonant scattering of synchrotron radiation // Phys. Rev. Lett. 1995. V.74. p.3475-3475.

[106] М.А. Андреева, Н.Г. Монина, Б. Линдгрен, Л. Хаггстрем, Б. Кальска Магнитное упорядочение в ОЦК [Fe/Co]<sub>35</sub> пленке, исследованное методом ядерно-резонансной рефлектометрии // ЖЭТФ. 2007 Т.131 с.652-661.

[107] *R. Rüffer, A.I. Chumakov* Nuclear Resonance Beamline at ESRF // Hyperfine Interact. 1996. V.97/98. p.589-604.

[108] A. I. Chumakov, I. Sergeev, J.-P. Celse, R. Rüffer, M. Lesourd, L. Zhang and M. Sánchez del Río Performance of a silicon monochromator under high heat load // J. Synchrotron Rad. 2014. V. 21. p.315-324.

[109] A.B. Drovosekov, N.M. Kreines, D.I. Kholin, A.V. Korolev, M.A. Milyaev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov Spin-glass state of Fe/Cr multilayer structures with ultrathin iron layers // JETP Lett. 2008. V. 88 p.118-112.

[110] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. *Eitenne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas* Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices // Physical Review Letters. 1988. V.61. p.2472-2475.

[111] *G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn* Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange // Phys. Rev. 1989. B. V. 39. p.4828-4830.

[112] V.V. Ustinov, L.N. Romashev, M.A. Milayev, A.V. Korolev, T.P. Krinitsina, A.M. Burkhanov Kondo-like effect in the resistivity of superparamagnetic clusterlayered Fe/Cr nanostructures // JMMM. 2006. V. 300. p.148–152.

[113] *N. Blum L. Grodzins* Sign of the Magnetic Hyperfine Field in Dilute Iron Alloys Using the Mössbauer Effect // Phys. Rev. 1964. V.136. p.A133-A136.

[114] S. S. P. Parkin, N. More, K. P. Roche Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr // Phys. Rev. Lett. 1990. V. 64 p.2304-2307.

[115] Н.В. Багрец, Е.А. Кравцов, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, А.В. Семериков, В.В. Устинов Влияние температуры роста на структуру межслойных границ сверхрешеток Fe/Cr // Физика металлов и металловедение. 2003. Т. 96. с.88-93.

[116] S. G. E. te Velthuis, J. S. Jiang, S. D. Bader, G. P. Felcher Spin Flop Transition in a Finite Antiferromagnetic Superlattice: Evolution of the Magnetic Structure // Phys. Rev. Lett.V. 89, p.127203-1-4.

[117] G. *Renaud, R. Lazzari, F. Leroy* Probing surface and interface morphology with Grazing Incidence Small Angle X-Ray Scattering // Surface Science Reports. 2009. V.64. p.255-380.

[118] A.V. Ragulskaya, M.A. Andreeva, M.A. Rogachev, S.N. Yakunin // The investigation of [Fe/Cr] multilayer by GISAXS // Superlattices Microstruct. 2019. V. 125. p.16-25.

[119] М. А. Андреева, Б Линдгрен Стоячие волны и зеркальное отражение от ультратонких слоев // Письма в ЖЭТФ. Т. 76. с.833-835.

[120] M.A. Andreeva, B. Lindgren Nuclear resonant spectroscopy at Bragg reflections from periodic multilayers: Basic effects and applications // Phys. Rev. B. 2005. V. 72. p.125422-1-22.

[121] В.И. Иверонова, Г.П. Ревкевич Теория рассеяния рентгеновских лучей // М.:Изд. Моск. Ун-та. 1978. 276 с.

[122] *B.L. Henke*. Ultrasoft-X-Ray Reflection, Refraction, and Production of Photoelectrons (100-1000-eV Region) // Phys. Rev. A. 1972. V.6. p.94-104.

[123] *M.J. Bedzyk, G.M. Bommarito, J.S. Schildkraut* X-ray standing waves at a reflecting mirror surface // Phys. Rev. Lett. 1989. V. 62. p.1376-1379,

[124] A.I. Chumakov, G.V. Smirnov Mössbauer spectroscopy of conversion electrons: determining the range of depths that can be analyzed by nondestructive depth profiling, *Sov. Phys.* JETP. 1985. V. 62. p1044-1050.

[125] L. G. Parratt Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays // Phys. Rev. 1954. V. 95 p.359-369.

[126] Л.М. Барковский, Г.Н. Борздов, Ф.И. Федоров. Волновые операторы в оптике // Препринт № 304. Минск: Институт физики АН Белорусской ССР. 1983. 45 с.

[127] *M.A. Andreeva, A.G. Smekhova* Theoretical analysis of the spectra of X-ray resonant magnetic reflectivity // Appl. Surf. Science. 2006. V. 252. p.5619-5621.

[128] S. A. Stepanov, S. K. Sinha X-ray resonant reflection from magnetic multilayers: Recursion matrix algorithm // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. p.15302-15311.

[129] *М.А. Андреева*, Рентгеновское излучение в исследовании магнетизма // Учебное пособие для аспирантов и студентов старших курсов, под ред. проф. А.С. Илюшина, Оперативная печать физического факультета МГУ, Москва. 2018. 192 с.

[130] A. Rogalev, F. Wilhelm, N. Jaouen, J. Goulon, J.-P.Kappler X-ray Magnetic Circular Dichroism: Historical Perspective and Recent Highlights // Magnetism: A Synchrotron Radiation Approach. 2006. p.73-97.

[131] *Ch. Brouder* Angular dependence of X-ray absorption spectra // J. Phys. Condens. Matter. 1990. V. 2, p.701-738.

[132] *J. Stöhr* X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy of transition metal thin films // J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 1995. V. 75. p.253-272.

[133] G. van der Laan Applications of soft x-ray magnetic dichroism // J. Phys.: Conf. Ser. 2013 V.430 p.012127-1-21.

[134] *H. Höchst, D. Zhao, D.L. Huber* M<sub>2,3</sub> magnetic circular dichroism (MCD) measurements of Fe, Co and Ni using a newly developed quadruple reflection phase shifter // Surf. Sci. 1996 V.352–354. p.998-1002.

[135] H. Höchst, D. Rioux, D. Zhao, D. L. Huber Magnetic linear dichroism effects in reflection spectroscopy: A case study at the Fe M<sub>2,3</sub> edge // J. Appl. Phys. 1997.
V.81, p.7584-7588. [136] H.-Ch.Mertins, D. Abramsohn, A. Gaupp, F. Schäfers, W. Gudat, O. Zaharko, H. Grimmer, P. M. Oppeneer Resonant magnetic reflection coefficients at the Fe 2 p edge obtained with linearly and circularly polarized soft x rays // Phys. *Rev. B.* 2002. V.66. p.184404-1-8.

[137] S.A. Stepanov, S.K. Sinha X-ray resonant reflection from magnetic multilayers: Recursion matrix algorithm // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. p.15302-15311.

[138] C. Sorg, A. Scherz, K. Baberschke, H. Wende, F. Wilhelm, A. Rogalev, S. Chadov, J. Minár, H. Ebert Detailed fine structure of x-ray magnetic circular dichroism spectra: Systematics for heavy rare-earth magnets // Phys. Rev. B. 2007. V.75. p.064428-1-5.

[139] <u>http://henke.lbl.gov/optical\_constants/getdb2.html</u>.

[140] А.В. Свалов, Г.В. Курляндская, К.Г. Балымов, К.Г. Васьковский Спиновые клапаны на основе аморфных ферримагнитных пленок Gd–Co // Физика металлов и металловедение. 2016. Т.117. с.907-913.

[141] S. Ofer, M. Rakavy, E. Segal, B. Khurgin Mössbauer Effect in Dy<sup>161</sup> in Metallic Dysprosium, DyFe<sub>2</sub>, and DyAl<sub>2</sub> // Phys. Rev. 1965. V.138. p.241-246.

[142] B. Khurgin I. Nowik, M. Rakavy, S. Ofer Spin relaxation phenomena in Mössbauer spectra of magnetically ordered dysprosium intermetallic compounds // J. Phys. Chem. Solids. 1970. V.31. p.49-54.

[143] *A. Andrianov, A. Vasil'ev, Y. Gaidukov* Low temperature phase diagrams of dysprosium and Gadolinium // Physica B. 1991. V.169, p.469-470.

[144] A.S. Chernyshov, A.O. Tsokol, A.M. Tishin, K.A. Gschneidner, Jr., V.K. *Pecharsky* Magnetic and magnetocaloric properties and the magnetic phase diagram of single-crystal dysprosium // Phys. Rev. B. 2005. 71. p.184410-1-17.

[145] *M.K. Wilkinson, W.C. Koeller, E.O. Wollan, J.W. Cable* Neutron Diffraction Investigation of Magnetic Ordering in Dysprosium // J. Appl. Phys. 1961. V.32. p.48S-49S.

[146] *Y. Berthier, J. Barak, and B. Barbara*, NMR of Dy nuclei in ferromagnetic DyAl<sub>2</sub> and Dy metal // Solid State Commun. 1975. 17. p.153-155.
[147] I. Koyama, Y. Yoda, X. Zhang, M. Ando, S. Kikuta Nuclear Resonant
 Excitation of <sup>161</sup>Dy and <sup>151</sup>Eu by Synchrotron Radiation // Jpn. J. Appl. Phys. 1996.
 V.35. p.6297-6300.

[148] Yu.V. Shvidko, M. Gerken, H. Franz, M. Lucht, E. Gerdau Nuclear resonant scattering of synchrotron radiation from <sup>161</sup>Dy at 25.61 keV // Europhysics Lett.
 2001. V.56. p.309-315.

[149] *G.T. Trammell, J.P. Hannon* Quantum beats from nuclei excited by synchrotron pulses // Phys. Rev. B. 1978. V.18. p.165-172.

[150] Yu. Kagan, A.M. Afanas'ev, V.G. Kohn // On excitation of isomeric nuclear states in a crystal by synchrotron radiation // J. Phys. C: Solid State Phys. 1979. V.12. p.615-631.

[151] M.B. Salamon, Shantanu Sinha, J. J. Rhyne, J. E. Cunningham, Ross W. Erwin, Julie Borchers, C. P. Flynn Long-range incommensurate magnetic order in a Dy-Y multilayer // Phys. Rev. Lett. 1986. V.56. p.259-262.

[152] *Н.О. Антропов, Е.А. Кравцов, В.В. Проглядо, М.В. Рябухина, В.В. Устинов* Кристаллическая структура и магнитные свойства сверхрешеток Dy/Gd // Физ. Мет. Металловед. 2017. Т.118. с.1283-1290.

[153] М.А. Андреева, С.М. Иркаев, К.А. Прохоров, Н.Н. Салащенко, В.Г. Семенов, А.И. Чумаков, Р. Рюффер Ядерная оптика скользящего падения для синхротронного излучения // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 1999. № 1. с.61-74.

[154] J. P. Sutter, S. Tsutsui, R. Higashinaka, Y. Maeno, O. Leupold, and A. Q. R. Baron Relaxation in the spin ice Dy<sub>2</sub>Ti<sub>2</sub>O<sub>7</sub> studied using nuclear forward scattering // Phys. Rev. B 2007. V.75. p.140402(R)-1-4.

## Список публикаций автора

Научные статьи, опубликованные в журналах Scopus, WOS, RSCI

[A1] <u>*Р.А. Баулин, М. А. Андреева* Моделирование угловых зависимостей ядерно-резонансной рефлектометрии для разных типов неколлинеарного магнитного упорядочения // Вестн. Моск. ун-та. Сер. 3. Физ. Астрон. 2016. № 2. с.40–45.</u>

[A2] М.А. Андреева, Н.О. Антропов, <u>Р.А. Баулин</u>, Е.А. Кравцов, М.В. *Рябухина, Е.М. Якунина, В.В. Устинов* Ядерно-резонансное отражение синхротронного излучения от тонких пленок Dy с различными типами магнитного упорядочения // Физика металлов и металловедение. 2016. Т.117. с.1247-1255.

[A3] *M. A. Andreeva*, <u>*R. A. Baulin*</u>, *A. I. Chumakov*, *R. Rüffer*, *G. V. Smirnov*, *Y. A. Babanov*, *D. I. Devyaterikov*, *B. Yu. Goloborodsky*, *D. A. Ponomarev*, *L. N. Romashev*, *V. V. Ustinov*, Field-temperature evolution of the magnetic state of [Fe(1.2 Å)/Cr(10.5 Å)]\*30 structure by Mössbauer reflectometry with synchrotron radiation // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2017. V. 440. p.225–229.

[A4] M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, R. Rüffer, G.V. Smirnov,
 Yu.A. Babanov, D.I. Devyaterikov, M.A. Milyaev, D.A. Ponomarev,
 L.N. Romashev, V.V. Ustinov Nuclear resonance reflectivity from [<sup>57</sup>Fe/Cr]<sub>30</sub>
 multilayer with the Synchrotron Mössbauer Source // J. Synchrotron Rad. 2018. V.
 25. p.473–483.

[A5] M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, R. Rüffer, G.V. Smirnov,
Y.A. Babanov, D.I. Devyaterikov, M.A. Milyaev, D.A. Ponomarev, L.N. Romashev,
and V. V. Ustinov Double-spiral magnetic structure of the Fe/Cr multilayer
revealed by nuclear resonance scattering // Phys. Rev. B. 2018. V. 97. p.024417-16.

[А6] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, М.М. Борисов, Е.А. Ганьшина, Г.В. Курляндская, Э.Х. Мухамеджанов, Ю.Л. Репченко, А.В. Свалов Исследование магнитного дихроизма при отражении от образца Ti(10 nm)/Gd<sub>0.23</sub>Co<sub>0.77</sub>(250 nm)/Ti(10 nm) с использованием линейнополяризованного СИ // ЖЭТФ. 2018. T.153. с.966–976.

[А7] М.А. Андреева, <u>Р. А. Баулин</u>, Н. О. Антропов, Е. А. Кравцов, М.В. *Рябухина, В.В. Попов, В.В. Устинов, А.И. Чумаков, Р. Рюффер* Ядернорезонансная рефлектометрия сверхрешеток Dy/Gd // Письма в ЖЭТФ. 2018. T.107. c.198-202.

[A8] *M. Andreeva, <u>R. Baulin</u>, A. Chumakov, T. Kiseleva, R. Rüffer* Polarization analysis in Mössbauer reflectometry with Synchrotron Mössbauer Source // Condensed Matter. 2019. V.4(1). 8.

[A9] *M. Andreeva, <u>R. Baulin</u>, Y Repchenko* Standing wave approach in the theory of x-ray magnetic reflectivity // J. Synchrotron Rad. 2019. V.26. p.483-496.

## Тезисы докладов и статьи в трудах конференций

[А10] <u>Р.А. Баулин</u>, М.А. Андреева Анализ особенностей ядерно-резонансной рефлектометрии для разных типов неколлинеарного магнитного упорядочения в многослойной структуре // Сборник материалов Седьмого международного научного семинара и Пятой международной научной школы-семинара "Современные методы анализа дифракционных данных и актуальные проблемы рентгеновской оптики", место издания Великий Новгород, 24-29 августа 2015 г, место издания Великий Новгород, с. 30-33.

[A11] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, Ю.А. Бабанов, Б.Ю. Голобородский, Д.И. Девятериков, Д.А. Пономарев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов, Р.Рюффер, Г.В. Смирнов, А.И. Чумаков Ядерно-резонансная рефлектометрия кластернослоистых [Fe/Cr]n наноструктур, демонстрирующих Кондо-подобное поведение // Доклады конференции «Рентгеновская оптика — 2016» (г. Черноголовка, 26-29 сентября 2016 г. с. 13-14.

[А12] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, А.И. Чумаков, Г.В. Смирнов, Р. Руффер, Ю.А. Бабанов, Д.И. Девятериков, Б.Ю. Голобородский, Д.А. Пономарев, Л.Н. Ромашев, В.В. Устинов Исследование [Fe/Cr]\*n структур методом ядернорезонансного отражения с использованием мессбауэровского синхротронного источника // Сборник тезисов Первого российского кристаллографического конгресса, Москва, ВДНХ, 21-26 ноября 2016 г, место издания ООО "НП-Принт" СПб, с. 149.

[А13] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, М.М. Борисов, Э.Х. Мухамеджанов, Ю.Л. Репченко Возбуждение ортогональной к падающей поляризации в отраженном пучке как способ исследования магнитного упорядочения в многослойных пленках // Доклады конференции «Рентгеновская оптика — 2016» (г. Черноголовка, 26-29 сентября 2016 г.), место издания ИПТМ РАН, Черноголовка, Россия, с. 6-8.

[А14] <u>Р.А. Баулин</u>, М.А. Андреева Анализ возможностей селекции по поляризации отраженного излучения для расшифровки плохо разрешенных мессбауэровских спектров //Материалы конференции 8-ой Международный научный семинар и 6-ая Международная научная школа-семинар "Современные методы анализа дифракционных данных и актуальные проблемы рентгеновской оптики", место издания Великий Новгород. 2016. с. 24-25.

[A15] M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, G.V. Smirnov, R. Rüffer, Yu A. Babanov, D.I. Devyaterikov, B.Yu. Goloborodsky, D.A. Ponomarev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov Mössbauer reflectivity investigations of [Fe/Cr]n multilayers using Synchrotron Mössbauer Source // Сборник тезисов XIV Международной конференции "Мёссбауэровская спектроскопия и её применения" (Казань, 28 сент.-1 окт., 2016), место издания Казань, университет, с. 146-146.

[A16] M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, R. Rüffer, G.V. Smirnov, Yu A. Babanov, D.I. Devyaterikov, B.Yu. Goloborodsky, D.A. Ponomarev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov Field-temperature evolution of the magnetic state of [Fe(1.2 Å)/Cr(10.5 Å)]\*30 sample by Mössbauer reflectometry with synchrotron radiation в сборнике Abstracts: VI Euro-Asian Symposium "Trends in MAGnetism" (EASTMAG-2016, Krasnoyarsk, August 15-19, 2016. (ISBN 978-5-904603-06-9), место издания Krasnoyarsk, Kirensky Institute of Physics RAS, c.451-451.

[А17] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, М.М. Борисов, Г.В. Курляндская, Э.Х. Мухамеджанов, Ю.Л. Репченко, А.В. Свалов Исследование магнитного дихроизма с использованием линейно-поляризованного СИ // Сборник тезисов докладов «Совещания пользователей Курчатовского комплекса синхротронно-нейтронных исследований», место издания, Москва, 20-23 ноября 2017г, с. 22.

[A18] M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, R. Rüffer, G.V. Smirnov, Yu A. Babanov, D.I. Devyaterikov, B.Yu. Goloborodsky, D.A. Ponomarev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov Spiral structure of [<sup>57</sup>Fe/Cr]n multilayers revealed by nuclear resonance reflectivity // Book of Abstract of MISM 2017, место издания Moscow Faculty of Physics M.V. Lomonosov MSU, c. 406.

[A19] *M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, T.Yu Kiseleva, R. Rüffer* Polarimetry in Mössbauer Spectroscopy with Synchrotron Mössbauer Source // International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect - ICAME 2017. Conference Programme and Book of Abstracts, место издания Aising St.Petersburg, c. 37.

[A20] <u>R.A Baulin</u>., M.A. Andreeva, N.O. Antropov, E.A. Kravtsov, V.V. Proglyado, A.I. Chumakov, R. Rüffer Magnetic relaxation of Dy in [Dy/Gd]\*20 multilayer detected by Nuclear resonance reflectivity // Book of Abstract of MISM 2017, место издания Moscow Faculty of Physics M.V. Lomonosov MSU. C 1043. [A21] <u>R.A Baulin</u>, M.A. Andreeva, N.O. Antropov, E.A. Kravtsov, V.V. Proglyado, A.I. Chumakov, R. Rüffer Magnetic structure and relaxation in [Dy/Gd]\*20 multilayers investigated by Nuclear Resonance Reflectivity // International Conference on the Applications of the Mössbauer Effect - ICAME 2017. Conference Programme and Book of Abstracts, место издания Aising St.Petersburg, c. 161.

[A22] *М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, Ю.Л. Репченко, М.М. Борисов, Э.Х. Мухамеджанов* Формализм стоячих волн в теории рентгеновской магнитной рефлектометрии // сборник докладов конференции "Рентгеновская оптика 2018", место издания Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов Российской академии наук г. Черноголовка, с. 109-111.

[A23] *M.A. Andreeva, <u>R.A. Baulin</u>, A.I. Chumakov, Yu L. Repchenko, R. Rüffer* Polarization analysis of the Mössbauer reflectivity with synchrotron radiation // XV International Conference Mossbauer Spectroscopy and Applications. Book of Abstracts. 10-16 September 2018, Sochi, Russia., место издания Издательство Южного федерального университета. Ростов-на-Дону, Таганрог, с. 77.

[A24] М.А. Андреева, <u>Р.А. Баулин</u>, М.М. Борисов, Г.В. Курляндская, Э.Х. Мухамеджанов, Ю.Л. Репченко, А.В. Свалов Исследование магнитного дихроизма с использованием линейно-поляризованного СИ // Сборник тезисов докладов Совещания пользователей Курчатовского комплекса синхротронно-нейтронных исследований (20 – 23 ноября 2017 года), место издания Изд-во Национального исследовательского центра "Курчатовский институт" Москва, с. 22-22.

[A25] <u>Р.А. Баулин</u>, М.А. Андреева, Н.О. Антропов, Е.А. Кравцов, М.В. Рябухина, В.В. Устинов, А.И. Чумаков, Р. Рюффер Геликоидальная магнитная структура в сверхрешетке Dy/Gd исследуемая методом ядернорезонансной рефлектометрии // XV International Conference Mossbauer Spectroscopy and Applications. Book of Abstracts. 10-16 September 2018, Sochi, Russia., место издания Издательство Южного федерального университета. Ростов-на-Дону, с. 137.

## Электронные публикации

[A26] *M. A. Andreeva*, <u>*R. A. Baulin*</u>, *Y. L. Repchenko* Standing wave approach in the theory of x-ray magnetic reflectivity // 2018. <u>http://arxiv.org/abs/1804.05104</u>

[A27] *M. A. Andreeva, <u>R. A. Baulin</u>, A. I. Chumakov, T. Yu. Kiseleva, R. Rüffer* Polarimetry in Mossbauer spectroscopy with Synchrotron Mossbauer Source // 2018. <u>https://arxiv.org/pdf/1803.10117</u>

[A28] E.A. Kravtsov, M.A. Andreeva, N. Antropov, <u>R.A. Baulin</u>, M. Ryabukhina, V.V. Popov, A.I. Chumakov, R. Rüffer, Russian Grant Proposal: Study of exchange interactions between chiral-ordered magnetic layers in rare earth superlattices // 2018. <u>http://ftp.esrf.fr/pub/UserReports/61482\_B.pdf</u>

[A29] *M. A. Andreeva, <u>R. A. Baulin</u>, T.Yu. Kiseleva, A. I. Chumakov, G. V. Smirnov, R. Rüffer* Spin-glass investigations by Mössbauer spectroscopy with Synchrotron Mössbauer Source using ellipsometric approach // 2017. http://ftp.esrf.fr/pub/UserReports/60774\_A.pdf

[A30] M. A. Andreeva, <u>R. A. Baulin</u>, A. I. Chumakov, R. Rüffer, G. V. Smirnov, Y. A. Babanov, D. I. Devyaterikov, M. A. Milyaev, D. A. Ponomarev, L. N. Romashev, and V. V. Ustinov Double-spiral magnetic structure of the Fe/Cr multilayer revealed by nuclear resonance scattering // 2016. <u>http://arxiv.org/abs/1708.06269</u>

Автор выражает искреннюю благодарность и признательность своему научному руководителю, Марине Алексеевне Андреевой, за предложение заниматься столь интересным, актуальным направлением в исследованиях магнетизма, за постоянную поддержку и неоценимую помощь на всех этапах работы.

Автор благодарит Александра Игоревича Чумакова, Рудольфа Рюффера, Дмитрия Андреевича Пономарева, Евгения Алексеевича Кравцова, Николая Олеговича Антропова, Энвера Хамзявича Мухамеджанова за помощь в проведении экспериментов, Юрия Александровича Бабанова, Лазаря Николаевича Ромашева, Галину Владимировну Курляндскую, Андрея Владимировича Свалова за предоставление образов.

И, несомненно, автор очень благодарен сотрудникам кафедры физики твердого тела за постоянную поддержку в течении семи лет.

Работа поддержана фондом развития теоретической физики и математики «Базис» (грант 18-2-6-22-1) и РФФИ (гранты 15-02-01502-а и 15-02-01674-а).