

На правах рукописи

КРАВЦОВ Евгений Алексеевич

**КОМПЛЕМЕНТАРНОЕ ПРИМЕНЕНИЕ РАССЕЯНИЯ НЕЙТРОННОГО
И СИНХРОТРОННОГО ИЗЛУЧЕНИЙ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ
МАГНИТНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ НАНОСТРУКТУР**

01.04.11 – физика магнитных явлений

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени
доктора физико-математических наук

Екатеринбург – 2017

Диссертационная работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук (ИФМ УрО РАН).

Научный консультант: доктор физико-математических наук, академик РАН

Устинов Владимир Васильевич

Официальные оппоненты:

Гарифуллин Ильгиз Абдулсаматович, доктор физико-математических наук, главный научный сотрудник лаборатории физики перспективных материалов Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Казанского научного центра Российской академии, г. Казань;

Григорьев Сергей Валентинович, доктор физико-математических наук, заведующий отделом исследований конденсированного состояния Петербургского института ядерной физики Национального Исследовательского Центра "Курчатовский Институт", г. Гатчина;

Фраерман Андрей Александрович, доктор физико-математических наук, заведующий отделом магнитных наноструктур института физики микроструктур РАН — филиала «Федерального исследовательского центра Институт прикладной физики Российской академии наук», г. Нижний Новгород

Ведущая организация: Международная межправительственная организация Объединенный институт ядерных исследований, г. Дубна

Защита состоится «25» декабря 2017 г. в 11.00 часов на заседании диссертационного совета Д 004.003.01 при ИФМ УрО РАН по адресу: 620108, г. Екатеринбург, ГСП-170, ул. С.Ковалевской, 18.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИФМ УрО РАН и на сайте института www.imp.uran.ru.

Автореферат разослан «____» сентября 2017 г.

Ученый секретарь

диссертационного совета

доктор физ.-мат. наук

Чарикова Т.Б.

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Магнитные металлические наноструктуры - новый класс искусственных магнитных материалов, которые чрезвычайно активно исследуются в последние 20-25 лет. Эти объекты представляют собой тонкие плёнки либо многослойные структуры, образованные чередующимися слоями различных металлов, выращенные на монокристаллической подложке, которая задаёт кристаллографическую ориентацию системы. Хотя бы один из слоев, образующих магнитную наноструктуру, содержит магнитоупорядоченный металл - ферромагнетик либо антиферромагнетик. Типичные толщины отдельных слоёв обычно составляют от единиц до сотен нанометров и прецизионно контролируются на атомном уровне. Одним из важных примеров магнитных металлических наноструктур являются магнитные сверхрешетки, в которых несколько раз повторяются блоки из чередующихся слоев различных металлов, образуя таким образом искусственную магнитную решетку в направлении роста слоев.

Сегодня эта область исследований представляет собой чрезвычайно перспективную часть физики конденсированного состояния, быстрое развитие которой диктуется как актуальностью возникающих фундаментальных физических проблем, так и потребностями современной микроэлектроники и наноэлектроники. Присуждение А. Ферту и П. Грюнбергу Нобелевской премии по физике 2007 года за их пионерские работы в данной области подчёркивает актуальность и фундаментальную значимость исследований многослойных металлических наноструктур. В настоящее время за рубежом исследования и поиски новых перспективных материалов спинтроники приняли массовый характер, по результатам исследований опубликовано множество научных статей и ряд монографий, регулярно появляются сообщения о предложениях по коммерческому использованию полученных материалов.

Фундаментальный интерес к многослойным металлическим наноструктурам обусловлен прежде всего тем, что эти объекты обладают новыми уникальными свойствами и открывают новые возможности по сравнению с традиционными объёмными материалами. Во-первых, использование сверхчистых материалов, высокосовершенных монокристаллических подложек и современных методик послойного роста (молекулярно-лучевой эпитаксии, высоковакуумного магнетронного распыления, лазерной абляции и др.) позволяет контролируемым образом варьировать неравновесные условия роста наноструктур (задаваемая подложкой кристаллографическая ориентация системы, скорости напыления материалов, температуры подложки и источников) и, таким образом, контролируемым образом влиять на формирование внутрислойной атомной структуры образцов. Во-вторых, возможность выращивать сверхтонкие слои металлов и прецизионно контролировать их толщину позволяет управлять размерными эффектами, связанными с малой толщиной слоёв. Одним из наиболее существенных проявлений размерных эффектов является осциллирующее межслойное обменное взаимодействие между ферромагнитными слоями в металлических наноструктурах через парамагнитную или антиферромагнитную прослойку. В-третьих, послойный рост различных ферромагнитных, антиферромагнитных и парамагнитных материалов позволяет выращивать многослойные магнитные структуры, обладающие новой искусственной периодичностью магнитных моментов отдельных слоёв - ферромагнитного, антиферромагнитного и неколлинеарного типа.

В формировании макроскопических свойств металлических магнитных наноструктур большую роль играет атомная и магнитная структура межслойных границ, влияние близости соседних слоёв и, в частности, гибридизация двух различных материалов в интерфейсной области, образование областей с уменьшенной или увеличенной намагниченностью вблизи интерфейсов и др. Кроме того, очень важную роль играет распределение магнитных моментов внутри отдельных слоёв магнитных сверхрешёток, т.к. конкуренция межслойного

и внутрислойного обменного взаимодействия может приводить к неоднородному распределению магнитных моментов внутри отдельных слоёв. Все указанные факторы нередко решающим образом влияют на макроскопическое поведение магнитных наноструктур и определяют их свойства. Для понимания природы эффектов, присущих металлическим магнитным наноструктурам и эффективного их прикладного использования необходимо развитие и применение новых неразрушающих методов исследования атомной и магнитной микроструктуры отдельных слоев, образующих такие наноструктуры. Методы, основанные на использовании рассеяния нейтронов и синхротронного излучения, особенно, в случае комплементарного (взаимодополняющего) их использования, позволяют наиболее эффективно решить сформулированную задачу. Тема настоящей диссертации, посвященной развитию нейтронно-синхротронных методов исследования металлических магнитных наноструктур и применению их к исследованию широкого класса важных магнитных металлических наноструктур, несомненно, является актуальной.

Актуальность темы настоящей работы определяется настоятельной необходимостью разработки неразрушающих методов прямого определения атомной и магнитной микроструктуры магнитных металлических наноструктур, имеющих большое научное и прикладное значение.

Цель работы состояла в исследовании атомной и магнитной микроструктуры магнитных металлических наноструктур, основанном на комплементарном (взаимодополняющем) использовании рассеяния нейтронов и синхротронного излучения. Для достижения данной цели потребовалось **решить следующие задачи:**

1. Исследование влияния структурных свойств межслойных границ на магнитное упорядочение в сверхрешетках Fe/Cr с помощью

- комплементарного применения рефлектометрии поляризованных нейтронов, незеркального рассеяния нейтронов и рентгеновской рефлектометрии.
2. Определение внутрислойной магнитной структуры сверхрешеток Fe/Gd с помощью комплементарного применения резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии и рефлектометрии поляризованных нейтронов.
 3. Исследование влияния эффектов близости и размерных эффектов на волны спиновой плотности в слоистых наноструктурах Cr/V с помощью комплементарного применения рентгеновской и нейтронной дифрактометрии.
 4. Определение локальной атомной структуры вблизи кристаллографически неэквивалентных позиций пленок ферритов Fe_2MnO_4 с использованием техники DAFS спектроскопии.

Методология и методы исследования.

Для исследования структурных и магнитных свойств магнитных металлических сверхрешеток был задействован широкий спектр методик, основанных на использовании рассеяния нейтронов и синхротронного излучения.

Структурные исследования образцов проводились методами рентгеновской дифрактометрии и рефлектометрии высокого разрешения.

Определение межслойного магнитного упорядочения в магнитных металлических сверхрешетках выполнено с помощью рефлектометрии и незеркального рассеяния поляризованных нейтронов.

Определение векторных магнитных профилей с разрешением по элементам и по глубине в магнитных металлических сверхрешетках было проведено с помощью комплементарного применения поляризационной нейтронной и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии.

Определение магнитной структуры внутри антиферромагнитных слоев Cr в наноструктурах Cr/V было произведено с помощью комплементарного

применения рентгеновской дифрактометрии высокого разрешения и нейтронной дифрактометрии.

Определение локальной атомной структуры атомов, расположенных в кристаллографически неэквивалентных узлах кристаллической решетки в тонких пленках искусственных ферритов было выполнено с использованием DAFS спектроскопии.

Соответствие диссертации паспорту специальности.

Содержание диссертации соответствует формуле Паспорта специальности 01.04.11 – физика магнитных явлений в пунктах 2 и 3:

пункту 2 «Экспериментальные исследования магнитных свойств и состояний веществ различными методами, установление взаимосвязи этих свойств и состояний с химическим составом и структурным состоянием, выявление закономерностей их изменения под влиянием различных внешних воздействий»»;

пункту 3 «Исследование явлений, связанных с взаимодействием различного рода электромагнитных излучений и потоков элементарных частиц с магнитными моментами вещества или его структурных составляющих: атомов, атомных ядер, электронов (парамагнитный, ферромагнитный, ядерный магнитный, ядерный гамма резонансы и др)»».

Научная новизна:

1. Установлена корреляция между степенью несовершенства межслойных границ Fe-Cr и углом между магнитными моментами соседних слоев Fe в сверхрешетках Fe/Cr с неколлинеарным магнитным упорядочением.
2. Экспериментально показано, что в сверхрешетках Fe/Cr формируется латеральная доменная структура, рассеяние поляризованных нейтронов на которой приводит к незеркальному рассеянию нейтронов с переворотом спина. Предложен метод определения угла неколлинеарности в магнитных

сверхрешетках из анализа незеркального рассеяния поляризованных нейтронов.

3. Впервые определены элементарно-чувствительные векторные профили намагниченности в магнитных сверхрешетках с помощью комплементарного применения рефлектометрии поляризованных нейтронов и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии.
4. Впервые показано, что эффекты близости слоев ванадия приводят к изменению поляризации и направления распространения волн спиновой плотности в наноструктурах Cr/V.
5. Установлено, что в слоях Cr в сверхрешетках Cr/V вблизи межслойных границ формируются парамагнитные области толщиной до 5 нм.
6. Впервые экспериментально продемонстрирована возможность управляемого обратимого изменения магнитного состояния сверхрешеток Cr/V путем насыщения их водородом.
7. Впервые экспериментально обнаружено значительное уменьшение координационного числа первой координационной сферы для атомов Mn, расположенных в узлах типа B в пленках искусственных марганцевых ферритов.

Научная и практическая значимость работы.

Разработанные в диссертационной работе методы исследования магнитных наноструктур, основанные на комплементарном применении нейтронного и синхротронного рассеяния, будут востребованы в ведущих нейтронных и синхротронных центрах для проведения исследований, усовершенствования и создания экспериментальных установок.

Научные положения и результаты, сформулированные и обоснованные в работе, позволяют понять природу формирования магнитных свойств металлических магнитных наноструктур, установить фазовые диаграммы

магнитных сверхрешеток и будут способствовать расширению элементной базы спинтроники.

Результаты исследований по управлению магнитным состоянием металлических наноструктур путем насыщения их водородом могут быть использованы для конструирования датчиков водорода. Результаты исследований искусственных ферритов могут быть использованы при разработке новых материалов для высокочастотных устройств.

Основные результаты и положения, выносимые на защиту:

1. Экспериментальное доказательство формирования латеральной доменной структуры в сверхрешетках Fe/Cr, полученное с помощью незеркального рассеяния тепловых нейтронов, падающих под малыми углами скольжения к поверхности образца.
2. Установление корреляции между среднеквадратичной шероховатостью межслойных границ и углом между магнитными моментами слоев Fe в сверхрешетках Fe/Cr с неколлинеарным магнитным упорядочением.
3. Экспериментальное доказательство формирования при низких температурах неоднородной магнитной структуры внутри слоев Gd в сверхрешетках Fe/Gd с малым числом повторений.
4. Экспериментальное доказательство влияния эффектов близости ванадия на поляризацию и направление распространения несоизмеримых волн спиновой плотности в наноструктурах Cr/V.
5. Экспериментальное доказательство формирования парамагнитной области в слоях Cr вблизи интерфейсов Cr-V с характерной толщиной до 5 нм.
6. Экспериментальное доказательство возможности обратимого контролируемого изменения магнитного состояния сверхрешеток Cr/V путем насыщения их водородом.
7. Установлено, что по мере увеличения толщины слоев Cr в сверхрешетках Cr/V формирование магнитного состояния идет от парамагнитного

состояния к соизмеримой волне спиновой плотности и далее к несоизмеримой волне спиновой плотности.

8. Доказательство уменьшения координационного числа для первой координационной сферы атомов В(Mn) в пленках искусственных марганцевых ферритов.

Личный вклад автора заключается в постановке цели и конкретных задач исследования, проведении экспериментальных исследований магнитных наноструктур с использованием рентгеновского излучения, пучков нейтронов и синхротронного излучения. Автором были сформулированы теоретические модели и разработаны компьютерные программы для моделирования, обработки и фитирования спектров рентгеновской рефлектометрии, рефлектометрии поляризованных нейтронов и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии, рентгеновской и нейтронной дифрактометрии, спектров DAFS. Автором лично был проведен анализ полученных экспериментальных результатов и проведено фитирование полученных нейтронных и рентгеновских данных с использованием разработанных им компьютерных программ, сопоставление полученных результатов с данными магнитных и магнитотранспортных измерений. Автором проведено обобщение полученных результатов и сформулированы выводы.

Результаты, изложенные в диссертации, получены автором в кооперации с сотрудниками лаборатории электрических явлений ИФМ Уро РАН, ведущих научных центров России (ОИЯИ), Франции (Институт Лауэ-Ланжевена, Европейский центр синхротронного излучения), Германии (Научный центр Юлих, Рур-университет г. Бохум, Немецкий центр синхротронного излучения в г. Гамбург), Швеции (университет г. Уппсала), США (Аргоннская национальная лаборатория, Национальный институт стандартов и технологий).

Исследования по теме диссертации выполнены в рамках государственного задания ФАНО России (тема «Спин» № 01201463330) и были частично

поддержана грантами Минобрнауки Российской Федерации № 8682 и № 14.616.21.0067, а также грантами РФФИ (№ 14-02-00013-а, 14-22-01063-офи-м, 95-02-04813-а, 98-02-17517-а, 01-02-17119-а, 01-02-17202-а, 04-02-16464-а, 10-02-96033-р-урал, 12-02-12054-офи-м).

Актуальность и значимость проведенных исследований подчеркивается большим числом грантов и проектов, в рамках которых выполнялись работы по теме диссертации.

Достоверность полученных результатов обеспечивается использованием аттестованных образцов и апробированных методик исследования, проведением различных экспериментов на одних и тех же образцах при одних и тех же экспериментальных условиях, согласием и непротиворечивостью полученных результатов и результатов, полученных другими авторами и опубликованных в литературе.

Апробация работы.

Результаты работы были представлены на международных конференциях: международная школа-семинар «Новые магнитные материалы микроэлектроники» НМММ-2000, 2002 и 2009, международный симпозиум «ILL Millennium» -2001, международный Евроазиатский симпозиум «Тенденции в магнетизме» EASTMag-2001 и 2010, на международных симпозиумах по металлическим мультислоям MML в 2001 и 2004, на годовых сессиях немецкого (2003) и американского (2006) физических обществ, на 13 международной конференции EXAFS-2006, на американской конференции по нейтронному рассеянию ACNS-2008.

Публикации.

Результаты работы изложены в 22 статьях в журналах, включенных ВАК в перечень ведущих рецензируемых журналов. Список основных публикаций приведен в конце автореферата.

Структура диссертации.

Диссертационная работа состоит из введения, четырех глав, заключения и списка использованной литературы. Работа изложена на 199 страницах, в том числе 58 рисунков и 8 таблиц.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **введении** дан краткий обзор, проблематики, связанной с исследованиями магнитных металлических наноструктур, обосновывается необходимость развития современных неразрешающих методов прямого определения их атомной и магнитной микроструктуры отдельных слоев, образующих такие наноструктуры, с разрешением по глубине. Во введении сформулированы цель и задачи работы, ее научная новизна, сформулированы основные положения, выносимые на защиту.

Первая глава диссертации посвящена развитию методов рентгеновской рефлектометрии и незеркального рассеяния поляризованных нейтронов и их применению к исследованию атомной и магнитной структуры сверхрешеток Fe/Cr. Сверхрешетки Fe/Cr считаются классической системой, в которых впервые были обнаружены такие фундаментально важные эффекты как осциллирующее межслойное обменное взаимодействие и гигантское магнетосопротивление. Было установлено, что в сверхрешетках Fe/Cr при изменении толщины прослойки Cr межслойное обменное взаимодействие осциллирует с периодом примерно 1.8 нм, смена знака взаимодействия приводит к смене взаимной ориентации магнитных моментов соседних слоев Fe. В частности, при толщине прослойки Cr 0.9 нм в сверхрешетке реализуется антипараллельное упорядочение, при 1.8 нм – параллельное и т.д. Характерно, что в Fe/Cr в ряде случаев экспериментально наблюдалось неколлинеарное магнитное упорядочение.

Для его объяснения наблюдаемых эффектов была предложена концепция биквадратичного межслойного обменного взаимодействия, физические причины возникновения которого были неясны. Было предложено несколько возможных физических механизмов биквадратичного обменного взаимодействия: нелинейные

поправки в рамках косвенного РККИ взаимодействия, флуктуации толщины неферромагнитной прослойки, наличие магнитных примесей вблизи интерфейсов в прослойке и другие.

Главным вопросом стала экспериментальная проверка предлагаемых механизмов биквадратичного обменного взаимодействия, для чего потребовалось развитие и использование экспериментальных методик прямого определения магнитного упорядочения в металлических магнитных сверхрешетках с разрешением по глубине, а также определения структуры межслойных границ. Одной из таких методик является рефлектометрия поляризованных нейтронов, которая начала активно развиваться к началу работы над диссертацией. Ввиду прямого взаимодействия спина нейтрона с магнитным моментом в сверхрешетке, рефлектометрия поляризованных нейтронов, в принципе, позволяет определять распределение магнитных моментов в магнитных наноструктурах на уровне отдельных слоев. Однако, в конкретном случае сверхрешеток Fe/Cr применение этой методики затрудняется, тем что формирование латеральной доменной структуры приводит к сильному незеркальному рассеянию нейтронов. В этом случае информация о магнитном упорядочении в сверхрешетке может быть получена из анализа незеркального рассеяния. Ввиду сравнительно слабого потока, данная методика менее эффективна для исследования межслойных границ, однако, данная задача может быть решена методами рентгеновской рефлектометрии. Комплементарное (взаимодополняющее) применение двух вышеназванных методик позволяет достичь значительного прогресса в исследовании магнитных наноструктур.

Методами рентгеновской рефлектометрии было исследовано влияние условий роста (температуры подложки) на структурные свойства межслойных границ в сверхрешетках Fe/Cr. На рисунке 1 приведены рефлектометрические кривые и результаты их обработки для двух образцов серии $[\text{Fe}(20 \text{ \AA})/\text{Cr}(9 \text{ \AA})]_8$, выращенных методом молекулярно-лучевой эпитаксии. Структура межслойных границ сверхрешеток характеризовалась среднеквадратичной шероховатостью, на

рисунке 2 приведена определенная из анализа рефлектометрических кривых зависимость среднеквадратичной шероховатости межслойных границ Fe/Cr и Cr/Fe от температуры подложки. Установлено, что температура роста оказывает существенное влияние на структуру границ, причем оптимальные условия для формирования границ раздела Fe/Cr и Cr/Fe отличаются. При отклонении от оптимальных температур роста среднеквадратичная шероховатость межслойных границ резко возрастает.

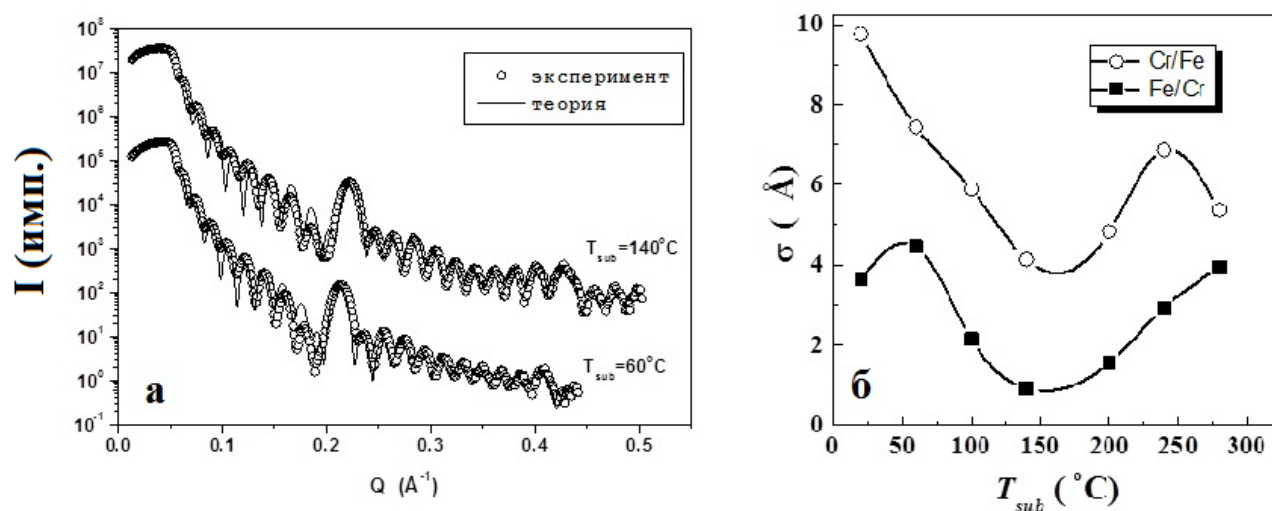


Рис.1. (а) Кривые рентгеновской рефлектометрии и результаты их обработки для двух образцов серии сверхрешеток Fe/Cr. (б) Зависимость среднеквадратичной шероховатости межслойных границ сверхрешеток Fe/Cr от температуры подложки в процессе роста.

Магнитная структура сверхрешеток Fe/Cr была определена с помощью незеркального рассеяния поляризованных нейтронов. На рисунке 2 в координатах углов падения (α_{in}) и отражения (α_f) нейтронного пучка приведены карты незеркального рассеяния от сверхрешетки $^{57}\text{Fe}(70\text{\AA})/\text{Cr}(9\text{\AA})$, измеренные с использованием позиционно-чувствительного детектора в состоянии насыщения (рис. 2а, $H = 5.5$ кЭ) и вдали от этого состояния (рис 2б, $H=440$ Э). Измерения проведены на длине волны нейтронов 4.41 \AA . В состоянии насыщения полученные результаты согласуются с моделью сверхрешетки с ферромагнитно

упорядоченными моментами слоев Fe, магнитное состояние вдали от насыщения не соответствует традиционной модели однородно намагниченных слоев. Из анализа приведенных графиков сделан вывод, что вдали от состояния насыщения в образце формируется магнитная суперструктура с периодом, вдвое превышающим период сверхрешетки. когда присутствует латеральная доменная структура, значительная часть рассеянных с переворотом спина нейтронов выходит из зеркально отражённого пучка и не регистрируется в зеркальном канале. Образец разбит на набор латеральных доменов, у которых проекция намагниченности на направление магнитного поля одинакова, а перпендикулярная компонента намагниченности изменяет знак. Вдоль нормали к поверхности неколлинеарное магнитное упорядочение магнитных моментов соседних слоев Fe в сверхрешетке строго выдерживается.

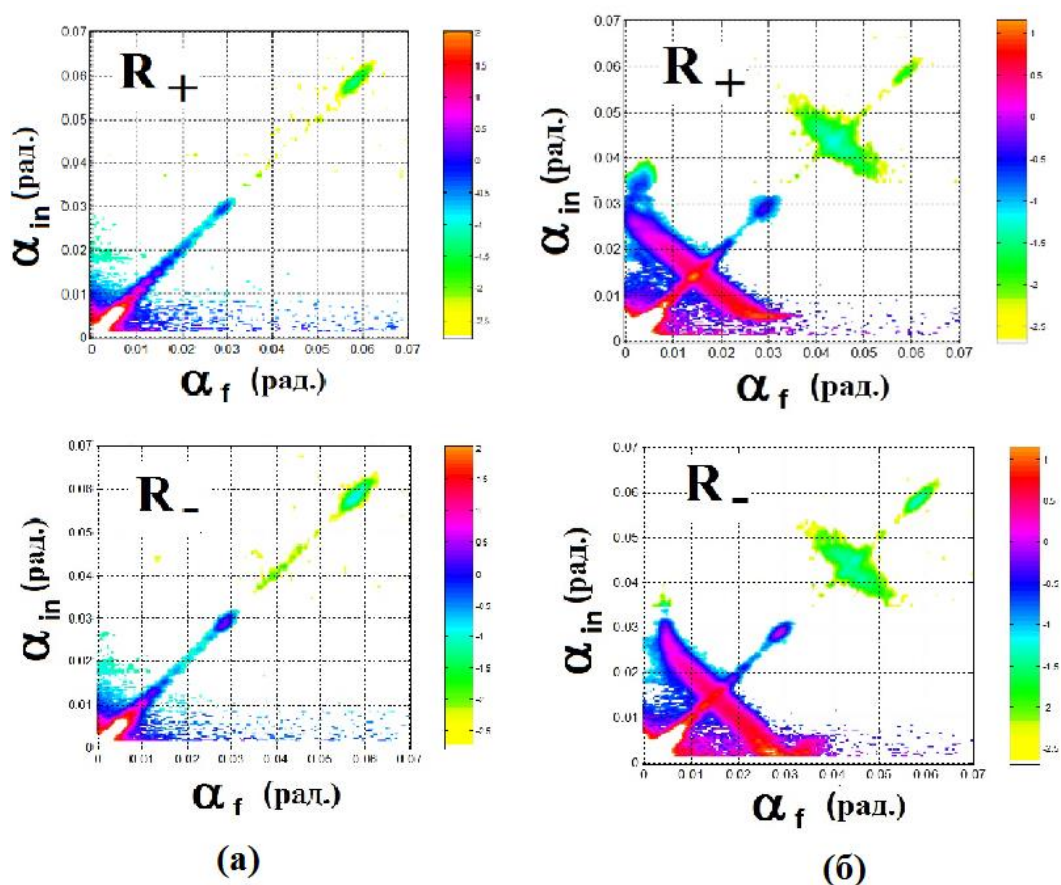


Рис. 2. Карты незеркального рассеяния поляризованных нейтронов от сверхрешетки Fe(70Å)/Cr(9Å), измеренные (а) в состоянии насыщения ($H = 5.5$ кЭ) и (б) вдали от этого состояния ($H=440$ Э).

Таким образом, для получения информации о микроскопической магнитной структуре сверхрешеток нельзя ограничиваться только экспериментальными данными зеркального рассеяния нейтронов и необходимо привлекать данные по незеркальному рассеянию нейтронов.

Для прямого определения угла между магнитными моментами ферромагнитных слоев в сверхрешетках с латеральной доменной структурой был предложен метод, основанный на анализе незеркального рассеяния нейтронов при углах падения, близких к углам полного внешнего отражения. Критический угол, ограничивающий проникновение нейтронов с положительной проекцией спина в магнитную сверхрешетку определяется уравнением

$$\sin \alpha_{in}^c = \lambda \sqrt{N(b_n + b_m)/\pi}, \quad (1)$$

где λ есть длина волны нейтронов, N – атомная плотность, b_n и b_m – ядерная и магнитная части нейтронной длины рассеяния. В случае неколлинеарно-упорядоченных моментов ферромагнитных слоев, когда магнитные моменты слоев повернуты на угол $\pm\theta/2$ относительно приложенного магнитного поля магнитная часть длины рассеяния будет определяться параллельной компонентой намагниченности $b_m = C \mu \cos(\theta/2)$, где $C = 0.2692 \cdot 10^{-4} \text{ \AA}/\mu_B$ и μ – атомный магнитный момент. На рисунке 3 приведены экспериментальные карты незеркального рассеяния положительно поляризованных нейтронов от сверхрешетки Fe(70\AA)/Cr(9\AA), измеренные в магнитном поле а) $H=440 \text{ Э}$ и в) $H = 1.6 \text{ кЭ}$ и определение угла неколлинеарности в них с использованием формулы (1). Приведены также результаты теоретического моделирования в рамках модели DBWA, выполненные Б.П. Топервергом для данных значений углов, для магнитных полей б) $H=440 \text{ Э}$ и г) $H = 1.6 \text{ кЭ}$. Измерения проведены на длине волны нейтронов 4.41 \AA.

Из сопоставления данных рентгеновской рефлектометрии и незеркального рассеяния нейтронов установлено, что в сверхрешетках Fe, выращенных при различных температурах подложки, существует прямая корреляция между

среднеквадратичной шероховатостью межслойных границ и углом неколлинеарности Θ , составляющим $\Theta=180^\circ$ при оптимальной температуре роста, $\Theta=130^\circ$ при $T_{\text{sub}} = 600$ и $\Theta=140^\circ$ при $T_{\text{sub}} = 280^\circ\text{C}$.

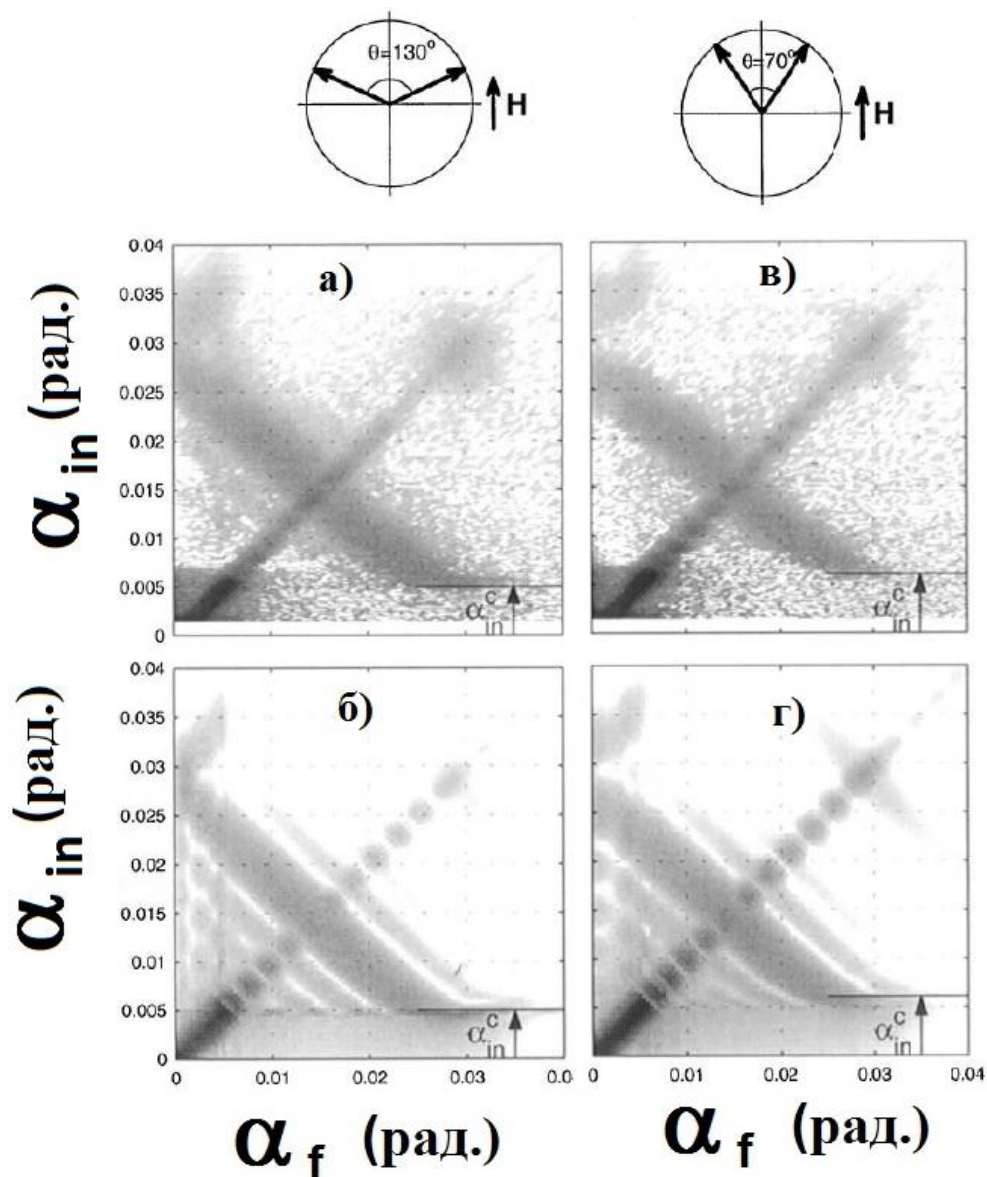


Рис. 3. Определение угла неколлинеарности в сверхрешетке Fe(70Å)/Cr(9Å) с помощью незеркального рассеяния положительно поляризованных нейтронов измеренные в магнитном поле а) $H=440$ Э и в) $H = 1.6$ кЭ, а также результаты теоретического моделирования в рамках модели DBWA для магнитных полей б) $H=440$ Э и г) $H = 1.6$ кЭ.

Вторая глава диссертации посвящена развитию метода определения элементарно-чувствительных векторных профилей намагниченности в магнитных

наноструктурах, основанного на комплементарном применении рефлектометрии поляризованных нейтронов (РПН) и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии (РРМР). Проведен сравнительный анализ достоинств и недостатков двух методов при их применении к определению неоднородной внутрислойной магнитной структуры в магнитных металлических сверхрешетках. РПН основана на анализе спин-зависящего зеркального отражения поляризованных нейтронов от поверхности магнитных наноструктур. Преимуществом этой методики является то, что она основана на прямом взаимодействии спина нейтронов с атомными магнитными моментами и позволяет получить информацию о толщинной зависимости двух компонент магнитного момента, лежащих в плоскости образца. С другой стороны, эта техника не обладает чувствительностью к элементному составу и, ввиду низкой интенсивности нейтронных пучков, имеет ограниченное пространственное разрешение.

При работе в режиме жёсткого рентгеновского излучения, РРМР основана на использовании резонансного усиления магнитного рассеяния рентгеновских лучей вблизи К-краёв переходных металлов и L-краёв редкоземельных элементов. РРМР обеспечивает как чувствительность к элементному составу, так и высокое пространственное разрешение. Однако, при работе с циркулярно-поляризованным излучением, с помощью РРМР можно измерить только одну компоненту магнитного момента, лежащую в плоскости образца и в плоскости рассеяния. Кроме того, зачастую, не всегда возможно измерить резонансные магнитные сигналы для всех элементов, присутствующих в исследуемых наноструктурах.

Комплементарный подход, сочетающий ПНР и РРМР, позволяет компенсировать недостатки и усилить достоинства обоих методов и, таким образом, определять неоднородные элемент-чувствительные профили намагниченности в ферромагнитных наноструктурах с очень высоким пространственным разрешением. Одновременный самосогласованный анализ рентгеновских и нейтронных рефлектометрических спектров позволяет определять

элементно-чувствительные толщинные зависимости вектора намагниченности в плоскости слоёв в многослойных системах с беспрецедентной точностью, включая определение неоднородной внутрислойной магнитной структуры с разрешением, близким к атомному.

Развитый метод был применен к определению неоднородной внутрислойной магнитной структуры сверхрешеток $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$. Проанализировано состояние исследований сверхрешеток Fe/Gd с большим числом пар, проведено сопоставление литературных данных с магнитометрическими данными, полученными для системы $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$. На рисунке 4 приведены результаты измерения температурной зависимости магнитного момента на единицу площади $M(T)$ в магнитных полях $H = 100$ Э и $H = 500$ Э, а также петли гистерезиса, измеренные при температурах $T = 20, 60, 140$ К.

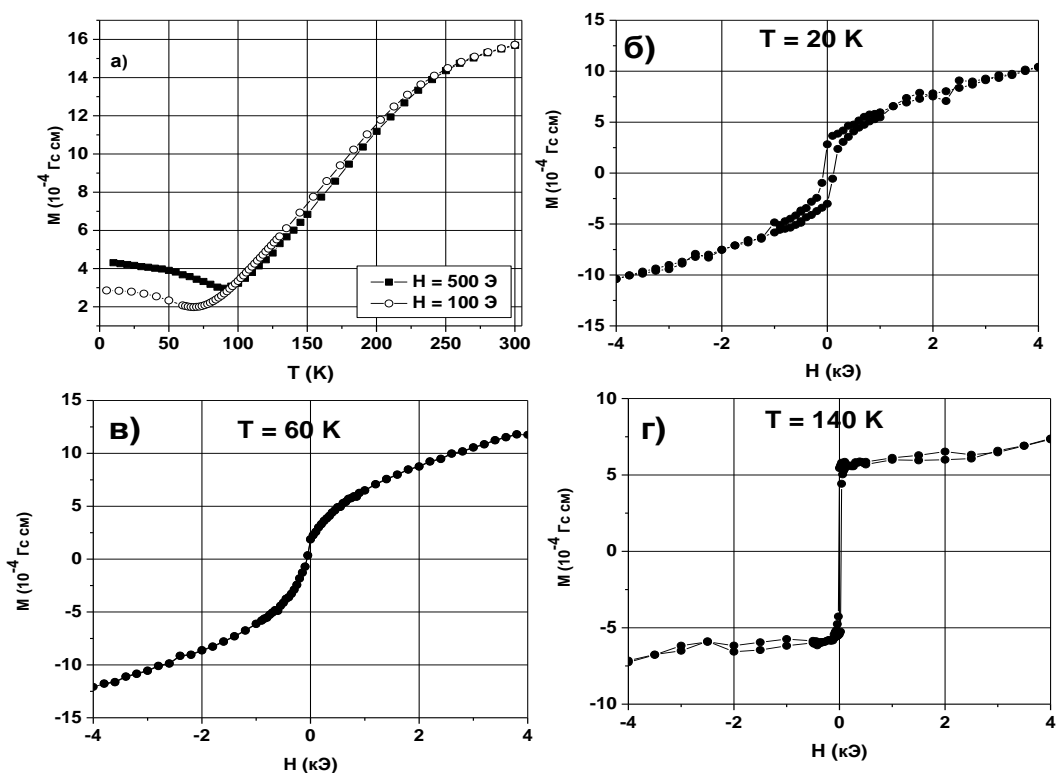


Рис. 4. а) Температурная зависимость магнитного момента на единицу площади $M(T)$ и петли гистерезиса $M(H)$ при температурах (б) $T = 20$ К, (в) $T = 60$ К, (г) $T = 140$ К.

Температурная зависимость $M(T)$, представленная на рисунке 4а, типична для рассматриваемых систем, минимум на температурной зависимости соответствует температуре компенсации. Выше температуры компенсации (рис. 4г) реализуется Fe-упорядоченная фаза, при которой магнитные моменты слоев Fe направлены вдоль направления приложенного магнитного поля, а моменты Gd – против поля. При температуре компенсации (рис. 4в) магнитные моменты Fe и Gd подсистем примерно скомпенсированы. При температурах ниже температуры компенсации ожидается реализация Gd-упорядоченной фазы, однако, представленная на рис. 4б зависимость ей не соответствует. Таким образом, при температурах $T = 20$ К можно ожидать формирования неоднородной внутрислойной магнитной структуры.

Применение предлагаемой методики комплементарного применения РПН и РРМР предполагает несколько этапов. На первом этапе помощью экспериментов по рентгеновскому поглощению (EXAFS, XMCD) были определены рентгеновские длины рассеяния для резонансного элемента (Gd). На рисунке 5 представлены экспериментальные спектры EXAFS и XMCD, измеренные вблизи L_2 края поглощения Gd. Спектр измерен в реманентном состоянии при температуре $T = 20$ К.

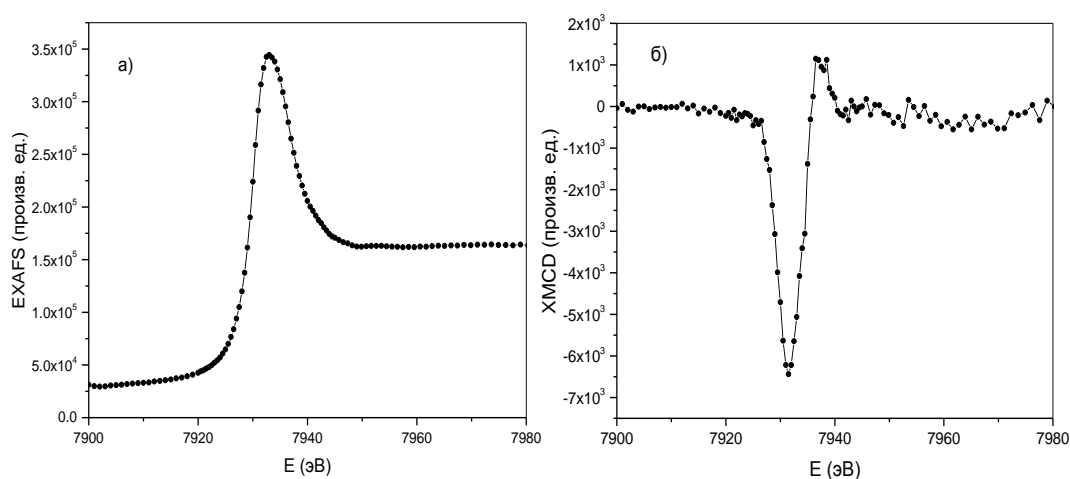


Рис. 5. Экспериментальные спектры а) EXAFS и б) XMCD, измеренные вблизи L_2 края поглощения Gd для для сверхрешетки $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$.

Мнимая часть зарядового фактора рассеяния f'' связана со спектром поглощения Gd через оптическую теорему и может быть прецизионно определена путем нормирования экспериментально измеренного спектра поглощения на табулированные значения факторов рассеяния Gd вдали от резонанса, а вещественная часть f' может быть после этого получена с помощью дифференциального преобразования Крамерса-Кронига. Табулированные и экспериментально определенные зарядовые факторы рассеяния приведены на рисунке 6а. Для определения магнитного фактора рассеяния (в относительных единицах) проводится аналогичная процедура в предположении, что f_m равен нулю вдали от резонанса. Для определения f_m была проведена дополнительная калибровка, описанная нами ниже, результаты приведены на рисунке 6б.

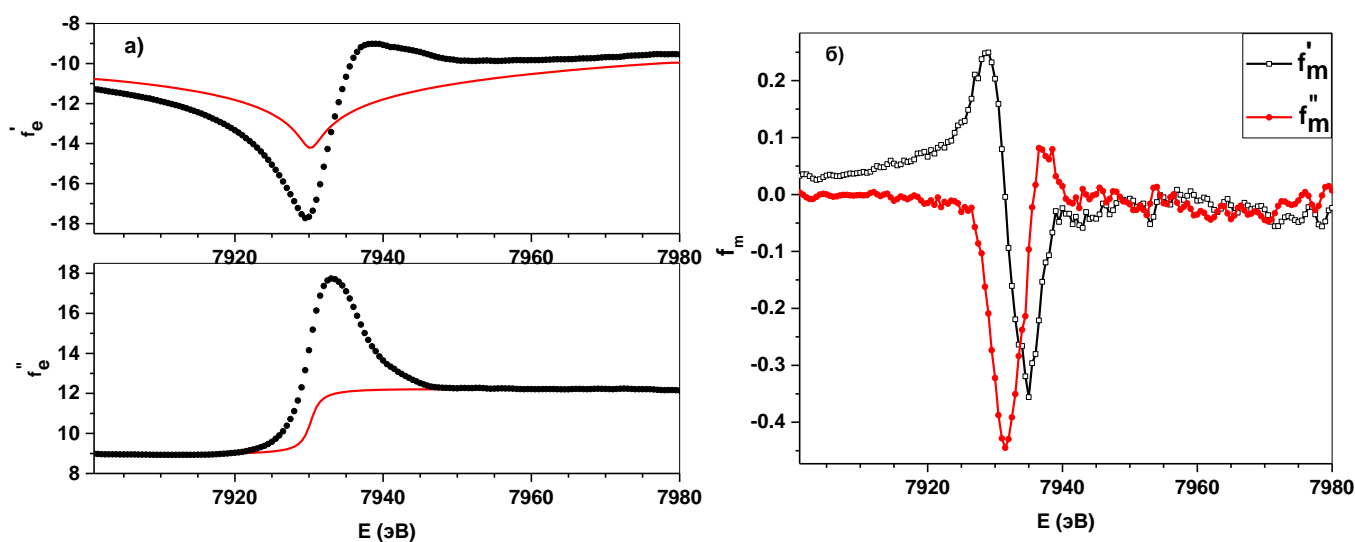


Рис. 6. Зарядовый (а) и магнитный (б) факторы рассеяния Gd вблизи L_2 края поглощения, определенные из анализа спектров поглощения.

Структурная характеристика была проведена с помощью рентгеновской рефлектометрии. На рисунке 7 представлены кривые рентгеновской рефлектометрии, измеренные при энергиях вдали от края поглощения Gd ($E = 6500$ эВ) и вблизи L_2 края поглощения Gd ($E = 7929$ эВ), а также соответствующие теоретические кривые, полученные одновременным фитированием обоих

рефлектометрических кривых. При анализе были использованы экспериментальные значения зарядового форм фактора рассеяния, приведенные на рисунке 6а.

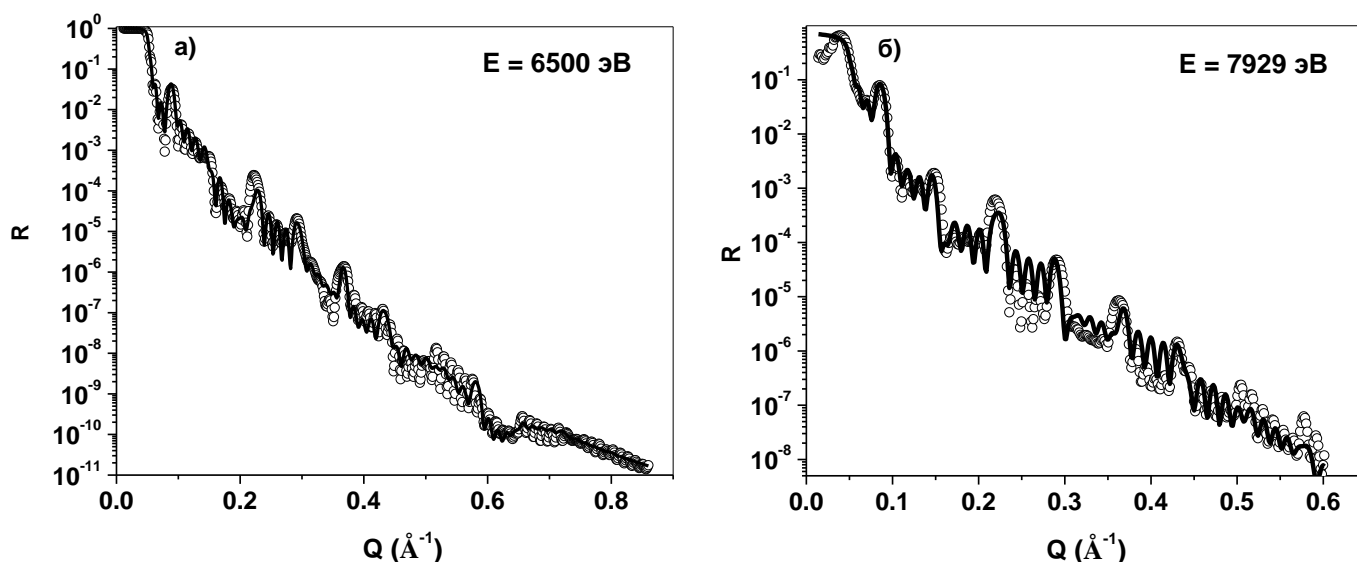


Рис. 7. Экспериментальные кривые рентгеновской рефлектометрии и результаты их фитирования для сверхрешетки $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$, измеренные а) вдали от края поглощения Gd ($E = 6500$ эВ) и б) вблизи L_2 края поглощения Gd ($E = 7929$ эВ).

Поскольку нейтронные сечения рассеяния Gd сильно зависят от энергии из-за сильного резонансного поглощения в области тепловых энергий, для каждой конкретной системы необходимо определять их экспериментально. Далее, для того, чтобы прецизионно определить нейтронные и рентгеновские длины рассеяния в абсолютных единицах, проводится калибровочный нейтронно-синхротронный эксперимент в Fe-упорядоченном состоянии ($T=140$ К, $H=500$ Э). Экспериментальные кривые РРМР и РПН и результаты их одновременного фитирования в рамках единой модели представлены на рисунке 8. Коэффициент асимметрии РРМР, меняет знак при переключении магнитного поля, это говорит о том, что сигнал РРМР исключительно магнитного происхождения. На кривых РПН отсутствует рассеяние с переворотом спина, что подтверждает наличие коллинеарного упорядочения в сверхрешетке.

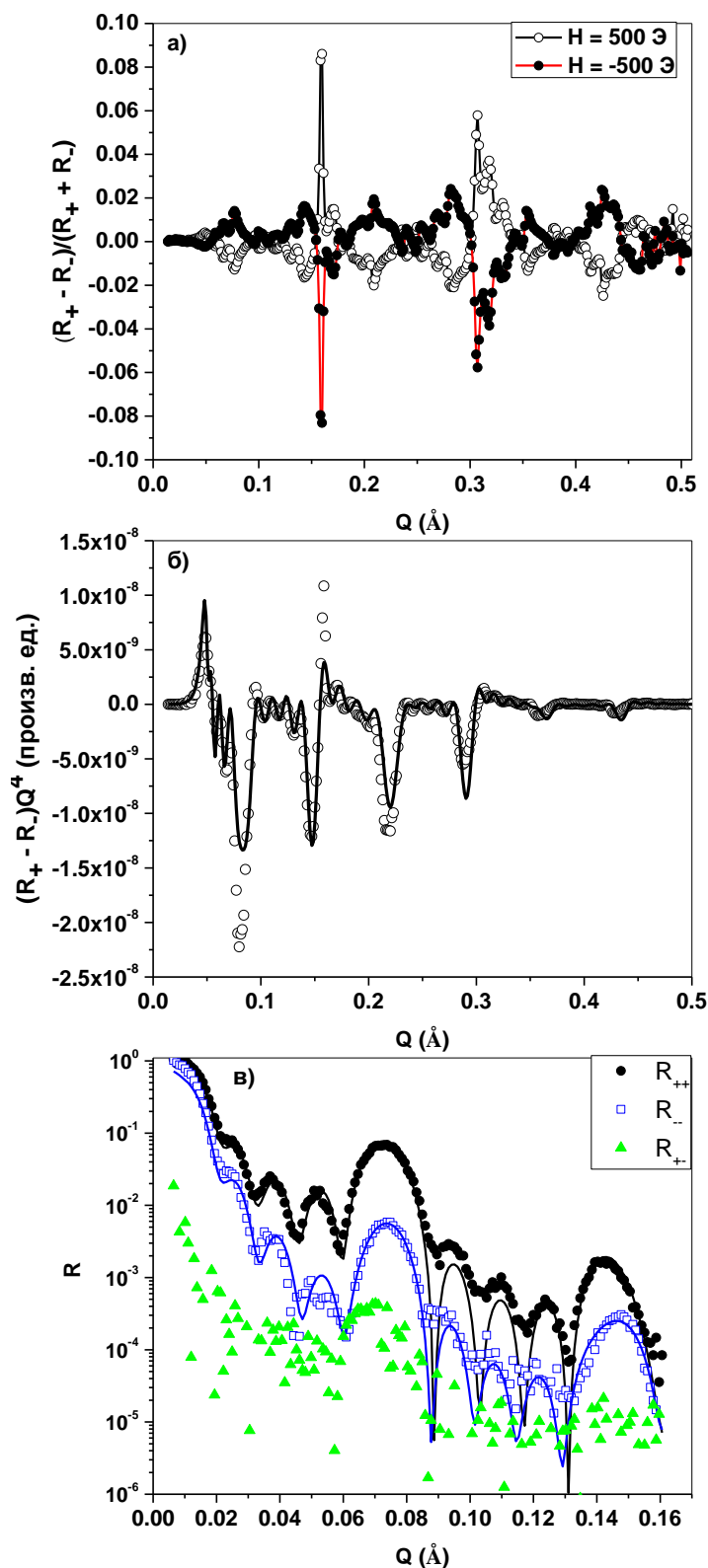


Рис. 8. а) Коэффициент асимметрии РРМР, спектры (б) РРМР и (в) РПН и результаты их фитирования (линии) для образца $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$, измерения проведены при $T=140\text{ K}$, $H = 500 \text{ Э}$ и $H = -500 \text{ Э}$. Рентгеновские измерения проведены на L_2 крае поглощения Gd ($E = 7929 \text{ эВ}$).

Для определения длин рассеяния была использована следующая процедура. Сначала данные РРМР были отфитированы (Рис. 8б) в относительных единицах магнитного момента, используя полученную ранее структурную информацию и рентгеновские длины рассеяния. Далее, полученные ранее структурный профиль и относительный профиль намагниченности $M(z)$ были зафиксированы и была произведена подгонка кривых РПН, варьируя величину намагниченности Fe, атомную когерентную длину рассеяния Gd и коэффициент пропорциональности для магнитного момента Gd (Рис. 8в). Таким образом, были полностью определены нейтронные и рентгеновские длины рассеяния Gd. Полученный в результате вышеописанной процедуры одновременного фитирования спектров РРМР и РПН профиль намагниченности представлен на рисунке 9. Величины упорядоченных магнитных моментов нормированы на их значения в насыщении: $M_{\text{Fe}} = 2.2 \mu_B / \text{атом}$ и $M_{\text{Gd}} = 7.5 \mu_B / \text{атом}$. Отметим, что упорядоченный магнитный момент Gd (в пересчете на атом) резко увеличивается в малой области с характерным размером 4 \AA вблизи межслойных границ: в середине слоя Gd он составляет $2.45 \mu_B / \text{атом}$, а вблизи межслойных границ достигает значения $7.23 \mu_B / \text{атом}$.

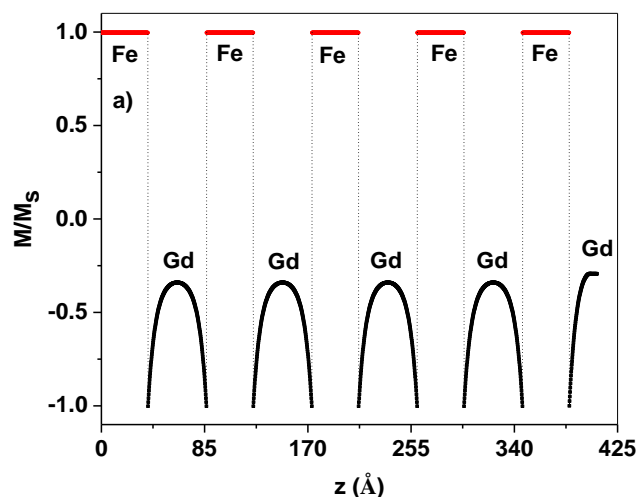


Рис. 9. Зависимость величины упорядоченных магнитных моментов от глубины в сверхрешетке $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$ при $T=140 \text{ K}$, $H = 500 \text{ Э}$.

Зная рентгеновские и нейтронные длины рассеяния, можно исследовать магнитные состояния, в которых изменяется направление магнитных моментов внутри слоев. На рисунке 10 представлены экспериментальные кривые РРМР и РПН, результаты их одновременного фитирования и полученный при этом профиль намагниченности для сверхрешетки $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$ при $T=20\text{ K}$, $H = 500\text{ \AA}$.

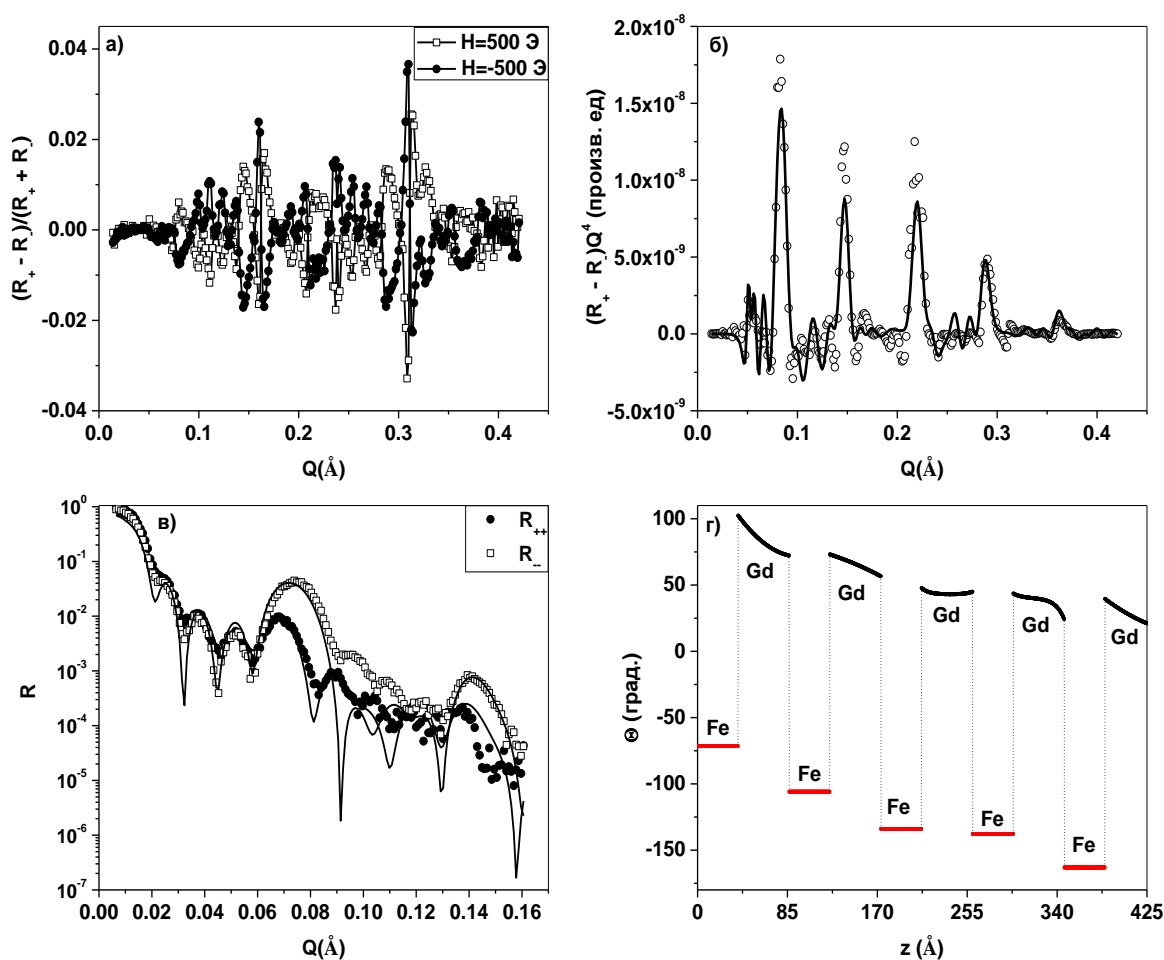


Рис. 10. а) Коэффициент асимметрии РРМР, спектры (б) РРМР и (в) РПН и результаты их фитирования (линии) для образца $[\text{Fe}(35\text{\AA})/\text{Gd}(50\text{\AA})]_5$ при $T=20\text{ K}$ и $H = 500\text{ \AA}$. а также определенная из результатов фитирования зависимость ориентации упорядоченных магнитных моментов от глубины. Рентгеновские измерения проведены на L_2 крае поглощения Gd ($E = 7929\text{ эВ}$).

Как следует из результатов, представленных на рисунке 10, при низких температурах в сверхрешетках Fe/Gd с малым числом повторений, в отличие от систем с большим числом повторений, не образуется Gd-упорядоченной фазы, а изменяется внутрислойная магнитная структура Gd.

Третья глава посвящена комплементарному применению нейтронной и рентгеновской дифрактометрии для исследования распространения волн спиновой плотности в магнитных наноструктурах Cr/V. Наноструктуры на основе Cr – это антиферромагнитные системы, в которых распространяется волна спиновой плотности (ВСП), несоизмеримая с периодичностью ОЦК-решётки Cr. ВСП представляет собой периодическую модуляцию величины антиферромагнитно-упорядоченных магнитных моментов Cr с типичным периодом 50-70 Å. ВСП в системах на основе Cr сосуществует вместе с волной зарядовой плотности и волной упругих напряжений (ВУН), которые представляют собой периодическую модуляцию соответственно зарядовой плотности и межатомных расстояний с периодом вдвое меньше периода ВСП. Эпитаксиальные напряжения, примеси, размерные эффекты и эффекты близости от соседних слоёв могут привести к трансформации несоизмеримой ВСП в ВСП, соизмеримую с периодом кристаллической решётки Cr.

Проведен сравнительный анализ достоинств и недостатков нейтронных и синхротронных методов исследования ВСП в тонкопленочных наноструктурах на основе Cr. Магнитное рассеяние нейтронов позволяет непосредственно определить магнитное состояние в слоях Cr и, в принципе, способно предоставить полную информацию о свойствах ВСП. Модуляция величины магнитного момента Cr в несоизмеримой ВСП приводит к возникновению сателлитов, наблюдаемых при рассеянии нейтронов вблизи запрещённых брегговских пиков. В случае соизмеримой ВСП нейтронные рефлексы наблюдаются непосредственно в позициях запрещённых пиков. Однако, интенсивности потока нейтронов на современных исследовательских реакторах зачастую недостаточны для получения результатов с высоким разрешением. С другой стороны, рассеяние

синхротронного рентгеновского излучения позволяет детектировать сателлиты, возникающие вблизи фундаментальных брегговских пиков Cr из-за распространения ВУН и, таким образом, определить свойства ВУН с очень высоким разрешением, но при этом теряется информация о поляризации ВСП. Кроме того, рентгеновская дифрактометрия неспособна предоставить какую-либо информацию о соизмеримой ВСП.

Несмотря на то, что применение любой из двух указанных методик не позволяет определить полную магнитную фазовую диаграмму системы с высоким разрешением, это становится возможным при комбинированном использовании сразу двух методик. При этом нейтронная дифрактометрия позволяет качественно определить поляризацию и направление распространения ВСП, а рентгеновская дифрактометрия – с высоким разрешением количественно определить период и температуру Нееля несоизмеримой ВСП. На рисунке представлена схематическая диаграмма рефлексов, возникающих при рассеянии нейтронов и синхротронного излучения на ВСП и ВУН в наноструктурах на основе Cr.

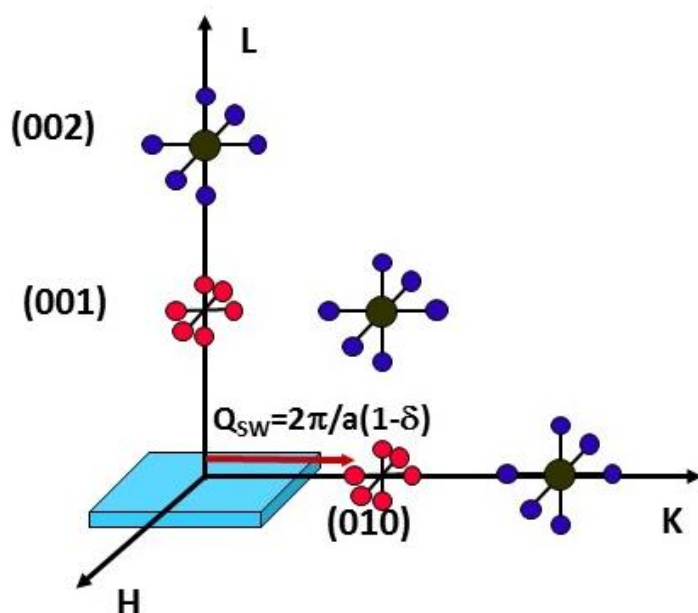


Рис. 11. Схематическая изображение рефлексов, которые могут детектироваться при рассеянии нейтронов и синхротронного излучения на волнах спиновой плотности и волнах упругих напряжений.

Далее в главе излагается применение предложенной комплементарной методики к исследованию эффектов близости в наноструктурах Cr/V. Рассмотрим сначала

влияние эффектов близости тонких слоев V на распространение ВСП в толстых пленках Cr. Были исследованы 3 образца: Cr (2000 Å), Cr(2000 Å)/V(14 Å) и V(14 Å)/Cr(2000 Å)/V(14 Å), выращенные на монокристаллических подложках (001)MgO. На рисунке 12 представлены результаты комплементарных нейтронных и синхротронных измерений для образца Cr(2000 Å)/V(14 Å).

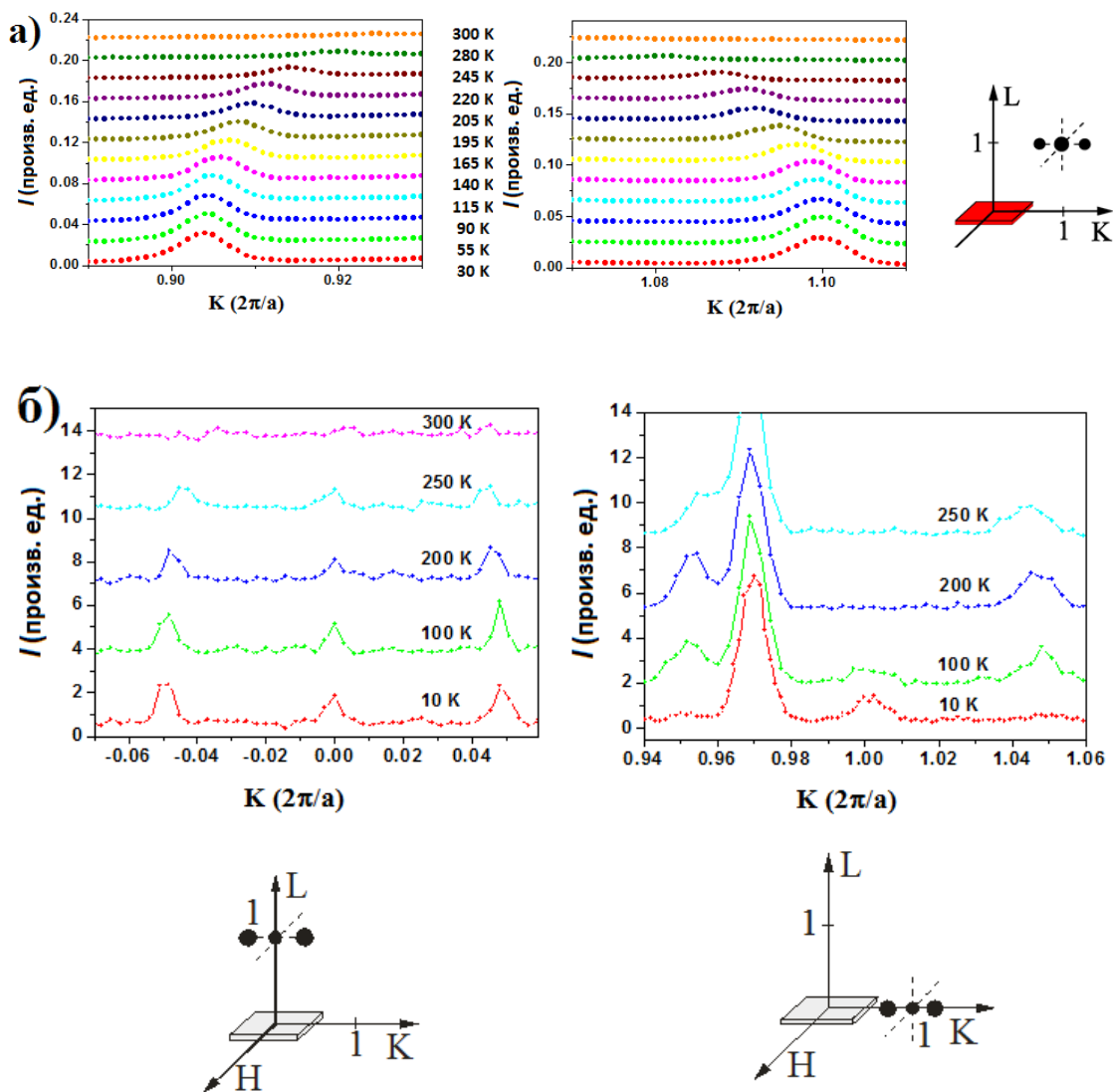


Рис. 12. Температурная зависимость а) спутников ВУН, и б) спутников ВСП для образца Cr(2000 Å)/V(14 Å), измеренных с помощью рассеяния синхротронного излучения и нейтронов соответственно. Схематические диаграммы показывают положения рефлексов в обратном пространстве, вблизи которых были детектированы спутники.

На рисунке 12а видны два сателлита от ВУН, которые по мере увеличения температуры приближаются к фундаментальному пику (011)Cr, что отражает увеличение периода волны с температурой. Интенсивность сателлитов служит параметром порядка для описания фазового перехода. На рисунке 12б видны сателлиты от ВСП, детектированные в К направлении вблизи (010)Cr и (001)Cr позиций, а также рефлексы от соизмеримой ВСП. Интенсивный не зависящий от температуры пик при $K = 0.97$ есть экспериментальный артефакт, вызванный отражением от подложки (022)MgO нейтронов с длиной волны $\lambda/2$. Как следует из представленных графиков, несоизмеримая ВСП распространяется в этом образце в плоскости слоев. При низких температурах ВСП имеет продольную поляризацию, а при $T = 100$ К происходит спин-ориентационный переход к поперечной поляризации, причем спины атомов Cr ориентированы в плоскости слоев.

На рисунке 13 представлены результаты температурной зависимости сателлитов ВСП для образца $V(14 \text{ \AA})/Cr(2000 \text{ \AA})/V(14 \text{ \AA})$.

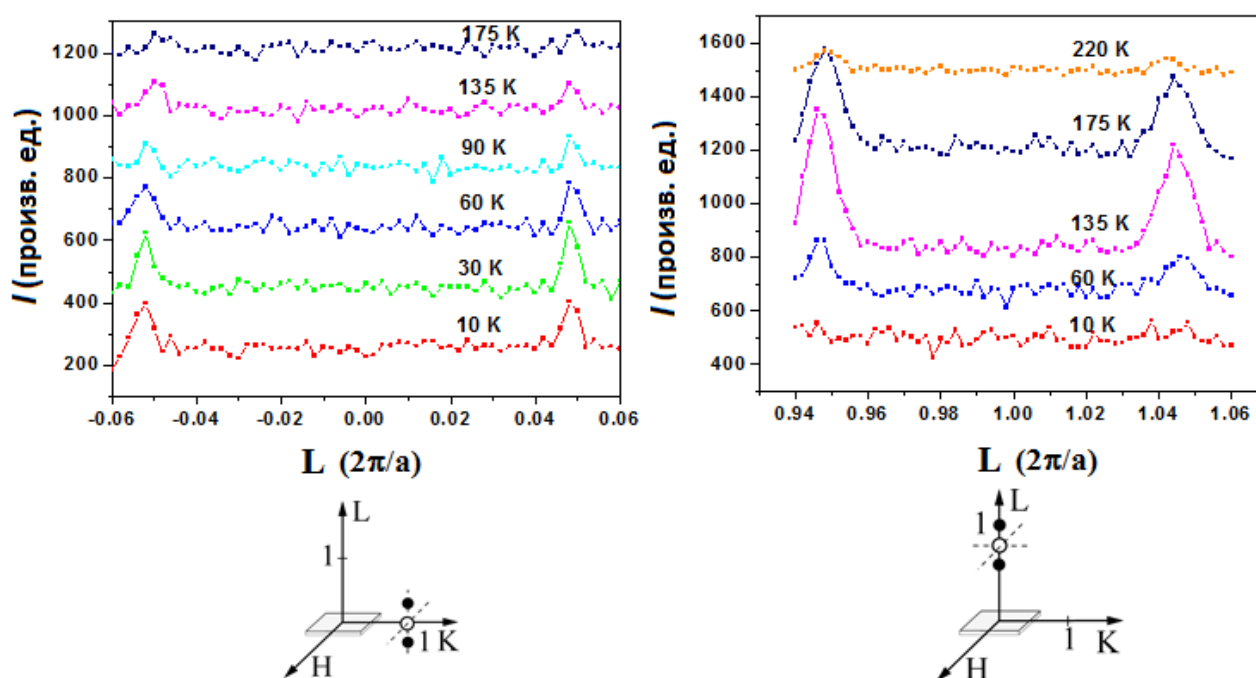


Рис. 13. Температурная зависимость сателлитов ВСП для образца $V(14 \text{ \AA})/Cr(2000 \text{ \AA})/V(14 \text{ \AA})$, измеренных с помощью рассеяния нейтронов.

Тот факт, что сателлиты были детектированы в L направлении, свидетельствует об изменении направления распространения ВСП, вызванного добавлением тонкого слоя ванадия. При низких температурах в образце распространяется продольная ВСП, которая переходит в поперечную ВСП при $T = 60\text{K}$. Результаты нейтронных измерений для пленки $\text{Cr}(2000 \text{ \AA})$ представлены на рисунке 14. Как и в случае $\text{Cr}(2000 \text{ \AA})/\text{V}(14 \text{ \AA})$, ВСП распространяется в плоскости образца, но при температурах выше $T = 100 \text{ K}$ спины атомов Cr ориентированы вдоль нормали к поверхности образца.

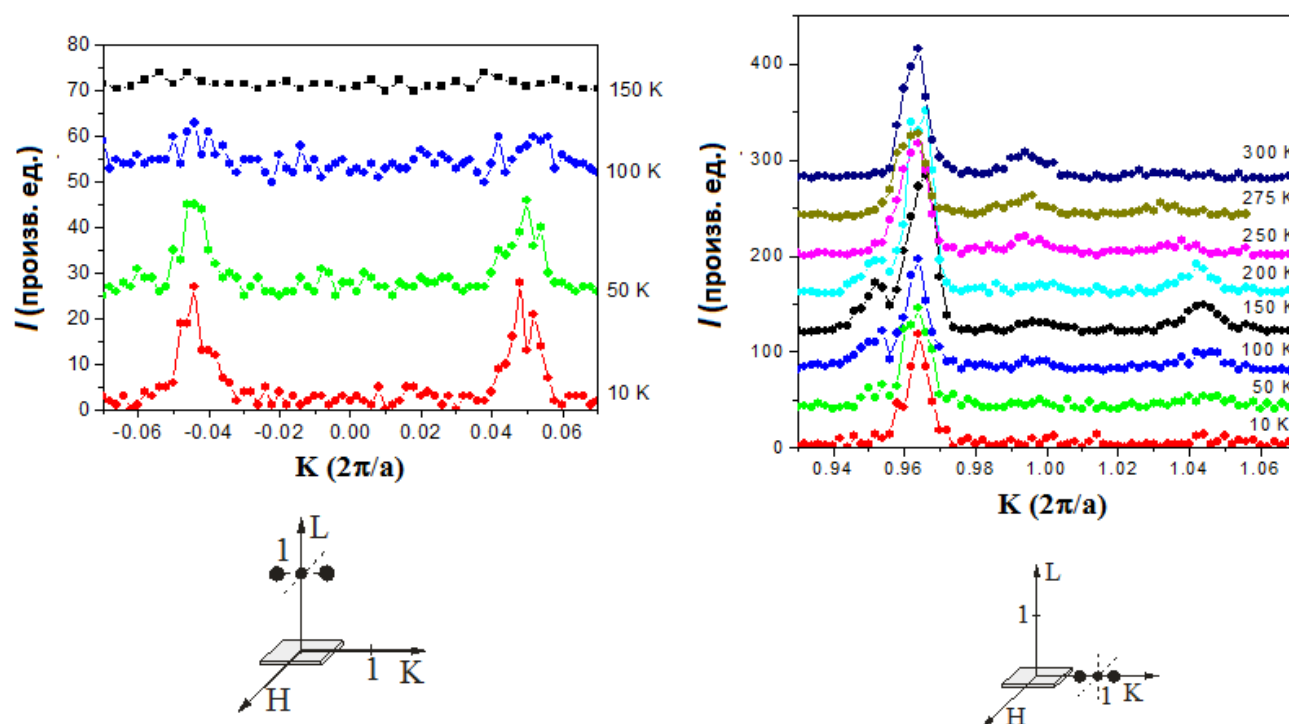


Рис. 14. Температурная зависимость сателлитов ВСП для образца $\text{Cr}(2000 \text{ \AA})$, измеренных с помощью рассеяния нейтронов. Схематические диаграммы показывают положения рефлексов в обратном пространстве, вблизи которых были детектированы сателлиты.

Измерения, проведенные с помощью рентгеновской дифрактометрии, не выявили существенных отличий в структурных свойствах трех рассмотренных выше образцов. Таким образом, наблюдаемые в сравнительно толстых пленках Cr эффекты вызваны исключительно влиянием V ввиду гибридизации на

интерфейсах Cr-V: в системе Cr/V она определяет поляризацию поперечной ВСП, а в системе V/Cr/V определяет также и направление распространения ВСП и приводит к уменьшению температуры Нееля несоизмеримой ВСП до 230 К.

Далее в главе комплементарными методами рассеяния нейтронов и синхротронного излучения проведено систематическое исследование влияния размерных эффектов на формирование ВСП в сверхрешетках Cr/V с различными толщинами слоев Cr от 90 до 1000 Å. На рисунке 15 представлены результаты нейтронных измерений для сверхрешетки [Cr(500Å)/V(14Å)]₄.

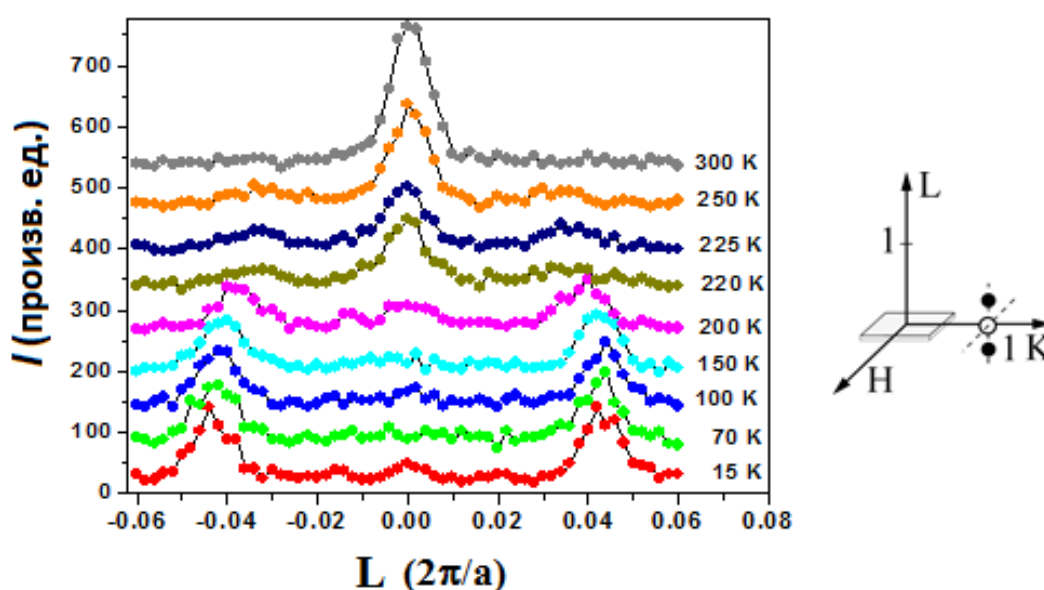


Рис. 15. Температурная зависимость сателлитов ВСП для сверхрешетки [Cr(500Å)/V(14Å)]₄. измеренных с помощью рассеяния нейтронов.

В этом случае были детектированы сателлиты от несоизмеримой ВСП только в K направлении вблизи положения (010)Cr, которые при температуре $t = 220$ К сменяются на рефлекс от соизмеримой ВСП. Таким образом, в данном образце распространяется продольная ВСП, спин-ориентационный переход подавлен. При повышенных температурах возникает соизмеримая ВСП, которая сохраняется в образце значительно выше комнатной температуры.

При дальнейшем уменьшении толщины слоев Cr происходит модификация спин-волнового состояния. На рисунке 16 представлены результаты нейтронных

измерений для сверхрешетки $[\text{Cr}(250\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_4$. В данном случае ВСП снова распространяется вдоль нормали к поверхности и спин-ориентационный переход подавлен. Однако, соизмеримая и несоизмеримые фазы ВСП сосуществуют в образце при всех температурах и с ростом температуры объемная доля соизмеримой фазы возрастает. Выше температуры $T = 150\text{ K}$ несоизмеримая фаза полностью исчезает, а соизмеримая сохраняется до температур выше комнатной.

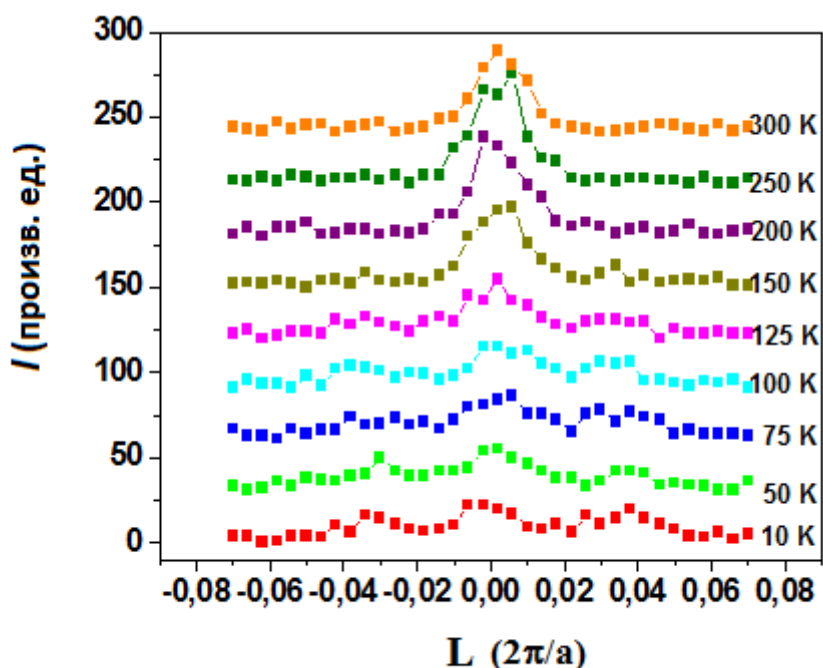


Рис. 16. Температурная зависимость рассеяния нейтронов от сверхрешетки $[\text{Cr}(250\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_8$, измеренная в L направлении вблизи положения $(010)\text{Cr}$.

Измерения спутников от ВУН (см. рисунок 17), выявили ещё одну важную особенность магнитного поведения системы – поскольку положение спутников ВУН постоянно при всех температурах, то период несоизмеримой ВСП не меняется с температурой. Наблюдаются только изменения в интенсивности спутников, что отражает факт фазового перехода от несоизмеримой к соизмеримой фазе ВСП.

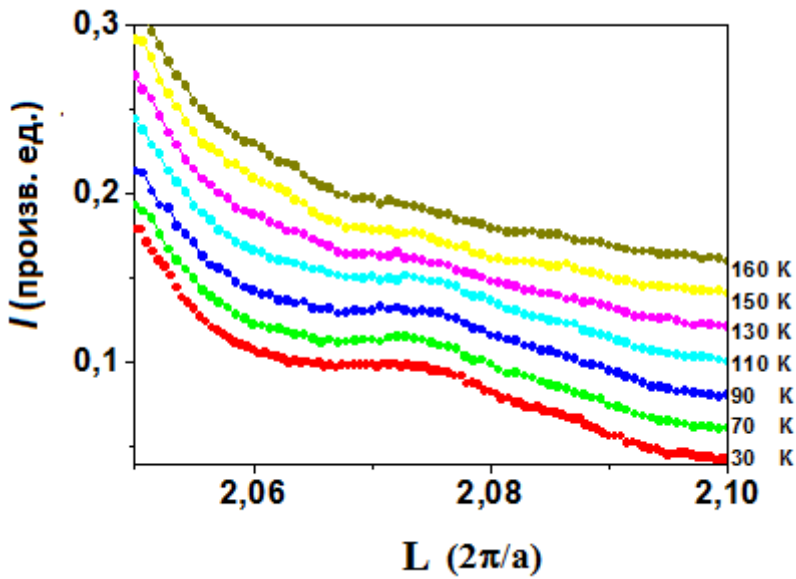


Рис. 17. Температурная зависимость рассеяния синхротронного излучения от сверхрешетки $[\text{Cr}(250\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_8$, измеренная в L направлении вблизи положения $(002)\text{Cr}$.

Если толщина слоев Cr в сверхрешетке уменьшается далее, то происходят дальнейшие изменения магнитного состояния системы. На рисунке 18 представлены результаты нейтронных измерений для образца $[\text{Cr}(125\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_4$.

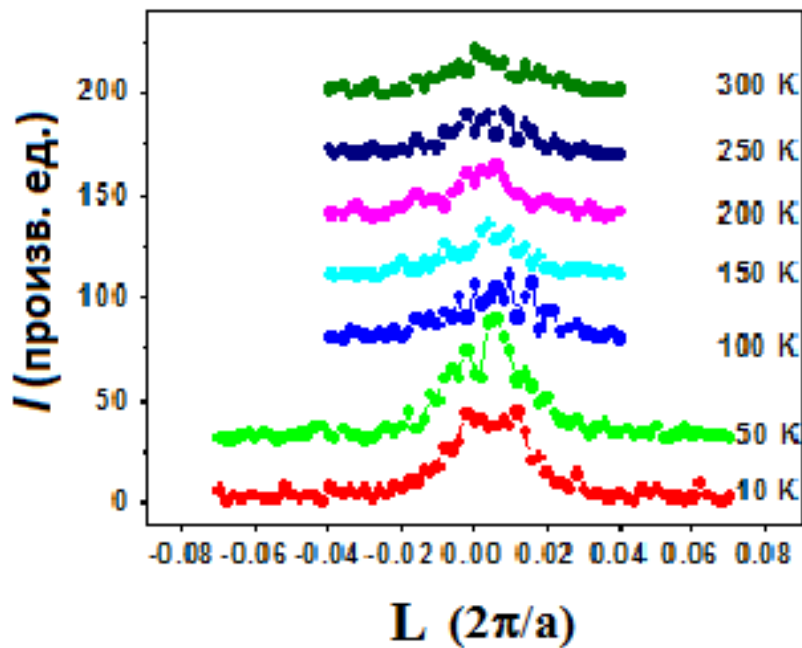


Рис. 18. Температурная зависимость рассеяния нейтронов от сверхрешетки $[\text{Cr}(125\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_4$, измеренная в L направлении вблизи положения $(010)\text{Cr}$.

При всех температурах вплоть до комнатной температуры и выше в этом образце существует только соизмеримая волна спиновой плотности, а несоизмеримая фаза не возникает ни при каких температурах. При дальнейшем уменьшении толщины слоев Cr магнитное состояние системы полностью меняется. Для образца $[\text{Cr}(90\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_{23}$ не было зафиксировано никаких рефлексов как нейтронного, так и синхротронного рассеяния при всех температурах – образец перешел в парамагнитное состояние.

Данные по рассеянию нейтронов и синхротронного излучения, обсуждаемые нами выше, позволяют построить ясную и систематическую картину природы волн спиновой плотности в сверхрешетках Cr/V. Сверхрешетки Cr/V(14Å) являются немагнитными для толщин слоев Cr вплоть до 90Å. Далее, при толщинах слоев Cr от 90Å до 125 Å в слоях возникает магнитоупорядоченное состояние в форме соизмеримой волны спиновой плотности. Температура Нееля для соизмеримой волны спиновой плотности, по-видимому, значительно превышает комнатную температуру. По мере того, как толщина слоев Cr увеличивается, при низких температурах начинает формироваться несоизмеримая волна спиновой плотности, где она сосуществует с соизмеримой волной спиновой плотности. Мы обнаружили низкотемпературную несоизмеримую волну спиновой плотности при толщинах слоев Cr 125 Å. По мере того, как толщина слоев Cr увеличивается далее, температура Нееля для несоизмеримой волны спиновой плотности возрастает, а соизмеримая фаза начинает формироваться при более высоких температурах вблизи температуры Нееля. В случае очень толстых слоев Cr порядка 2000Å наблюдается только несоизмеримая волна спиновой плотности. Температура Нееля для несоизмеримой волны спиновой плотности возрастает с ростом толщины слоев Cr, приближаясь к значению температуры Нееля для объемного Cr в толстых пленках толщиной около 2000Å.

Температурная зависимость периода несоизмеримой волны спиновой плотности в Cr/V сверхрешетках существенно зависит от толщины слоев Cr. На рисунке 19 представлены результаты, полученные из синхротронных измерений, в

сравнении данными для объемного Cr и объемного сплава Cr/V. Температурная зависимость периода ВСП для Cr/V не следует известной зависимости для сплава CrV, скорее, она близка к результатам для тонких пленок Cr, где период возрастает с уменьшением толщины слоев.

В дополнение к размерным эффектам, хорошо известным и для других систем, отметим важную особенность, характерную исключительно для Cr/V. Волна спиновой плотности в Cr/V сильно ограничена тем, что узлы ВСП пиннингованы на интерфейсах Cr/V, т.е., внутри слоя Cr всегда должно помещаться целое число полупериодов волны спиновой плотности. Любое изменение периода волны с температурой должно сопровождаться изменением числа полупериодов волны внутри слоя. Если толщина слоя Cr мала, то изменения невозможны и период ВСП не будет изменяться с температурой, что и наблюдается для образца Cr(250 Å)/V. Температурная зависимость периода ВСП в образце Cr(500 Å)/V, очевидно, обусловлена изменением числа полупериодов волны с температурой.

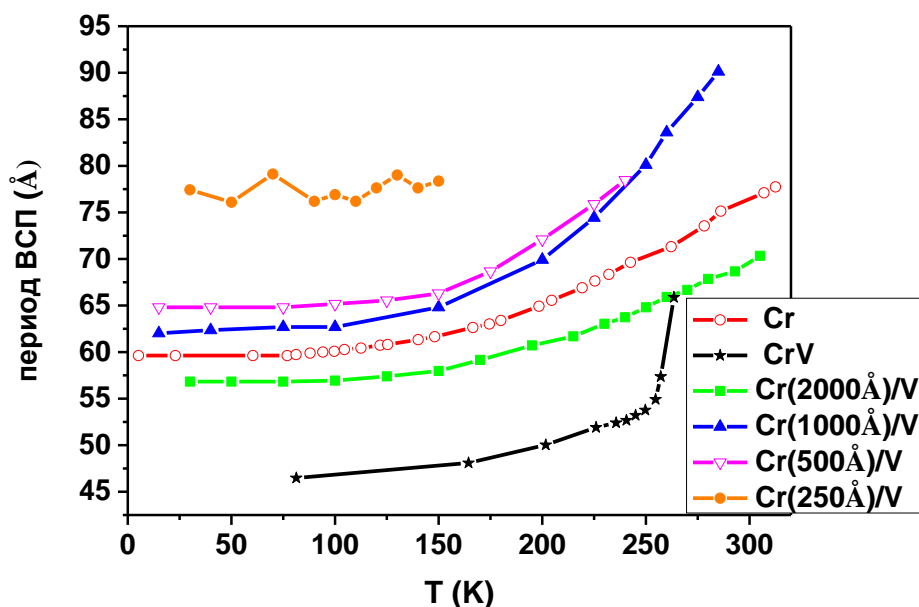


Рис. 19. Температурная зависимость периода ВСП в сверхрешетках Cr/V, определенная из анализа данных синхротронного рассеяния, а также данные для объемных Cr и CrV.

Далее в 3 главе показано, что есть возможность управлять спин-волновым состоянием Cr/V путем гидрирования. Известно, что водород не проникает в слои Cr при комнатной температуре, т.к., Cr не образует гидридов при малых и средних давлениях. Однако, ванадий - это специфический материал, который легко абсорбирует водород из окружающей атмосферы обратимым образом. Таким образом, становится возможным воздействовать на спин-волновое состояние в Cr непрямым образом путем насыщения водородом соседних слоев V. Измерения проводились на образце $[\text{Cr}(500\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_4$, в котором были проведены синхротронные и нейтронные измерения влияния давления водорода на ВУН и ВСП в сверхрешетке.

С помощью комплементарных нейтронных и синхротронных измерений было показано, что насыщение водородом соседних слоев ванадия глобальным образом изменяет поведение волн спиновой плотности в относительно толстых слоях Cr. В частности, 1) подавляется несоизмеримая фаза волны спиновой плотности и усиливается соизмеримая; 2) увеличивается период несоизмеримой волны спиновой плотности; 3) уменьшается температура Нееля для несоизмеримой фазы; 4) наблюдается эффект насыщения при давлениях водорода около 100-300 мбар. В то время как при низких температурах вдали от температуры Нееля насыщение водородом лишь несколько подавляет несоизмеримую фазу волны спиновой плотности, при повышенных температурах начинают сосуществовать соизмеримая и несоизмеримая фазы.

Если же температура достаточно близка к температуре Нееля для несоизмеримой фазы, то становится возможным осуществить плавный и обратимый переход между несоизмеримой и соизмеримой фазами путем насыщения водородом. На рисунке 20 представлены результаты нейтронных измерений ВСП в сверхрешетке сверхрешетки $[\text{Cr}(500\text{\AA})/\text{V}(14\text{\AA})]_4$ при температуре $T = 220 \text{ K}$ для различных значений давления водорода. Как следует из приведенного графика, магнитное состояние в сравнительно толстых слоях хрома может быть контролируемым образом модифицировано путем насыщения

водородом. В свободном от водорода состоянии доминирует несоизмеримая фаза и наблюдается лишь незначительный вклад от соизмеримой фазы. По мере насыщения водородом соотношение между двумя фазами меняется и, в конце концов, при достаточно высоком давлении водорода несоизмеримая фаза полностью подавляется. Этот эффект управляемого водородом перехода между несоизмеримой и соизмеримой фазами полностью воспроизводим, после отогревания образца и повторения процесса насыщения водородом наблюдаемые эффекты полностью воспроизводятся.

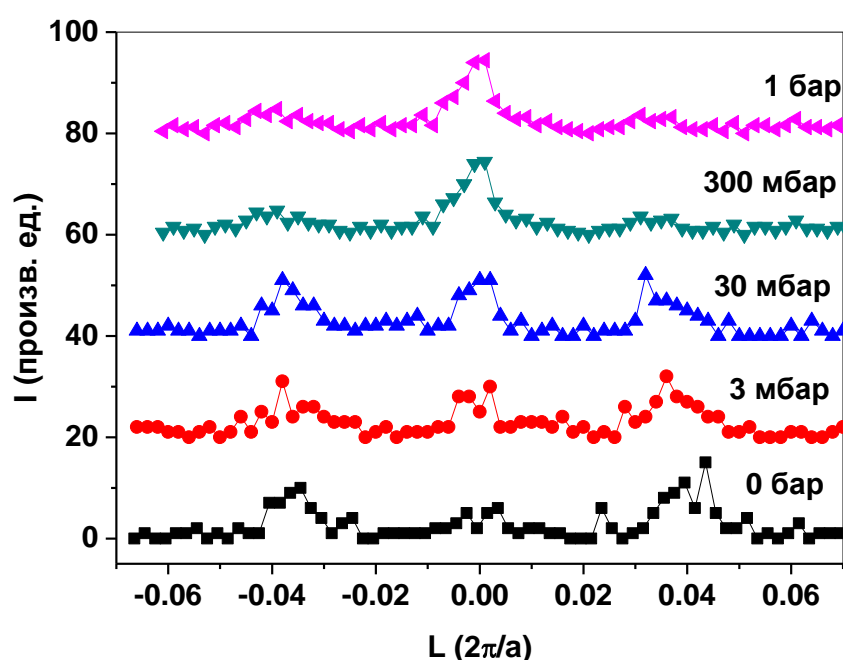


Рис. 20. Нейтронные измерения, выполненные в L направлении вблизи пика $(100)Cr$ для сверхрешетки $[Cr(500\text{\AA})/V(14\text{\AA})]_4$ при температуре $T = 220$ К для различных значений давления водорода.

Четвертая глава диссертации посвящена развитию техники DAFS спектроскопии для определения локальной атомной структуры для неэквивалентных кристаллографических позиций в сложных тонкоплёночных наноструктурах, а также ее применению к исследованию пленок ферритов Fe_2MnO_4 . В Fe_2MnO_4 (пространственная группа $Fd3m$) ионы Mn и Fe

распределены между восемью тетраэдрическими (А) и шестнадцатью октаэдрическими (В) позициями в кристаллической ячейке.

Как правило, атомы Mn предпочтительно занимают позиции А-типа, но есть небольшое количество атомов Mn на позициях В-типа. Современные техники роста позволяют значительно варьировать локальную структуру и заселенность отдельных позиций в ферритах за счет использования неравновесных условий роста. Для того, чтобы понять и быть способным целенаправленно модифицировать свойства таких искусственных ферритов, необходимо иметь детальную информацию о локальной структуре вблизи кристаллографически неэквивалентных узлов решетки в системе. Помимо заселенности отдельных узлов, необходимо также определить валентности катионов, координационные числа, межатомные расстояния.

EXAFS спектроскопия широко признана и апробирована для исследования материалов, содержащих поглощающие атомы в единичном узле кристаллической решётки. Однако, в случае систем, где поглощающие атомы занимают кристаллографически неэквивалентные узлы кристаллической решётки, возможности EXAFS независимо определять локальную структуру вблизи этих двух узлов решётки существенно снижены ввиду необходимости разделения перекрывающихся сигналов от этих позиций. При этом пространственное разрешение EXAFS ограничено разностью между К-краями поглощения для Mn (6539 eV) и Fe (7112 eV), этого разрешения недостаточно для разделения вкладов от двух различных кристаллографических позиций в ферритах. Задача может быть решена с помощью DAFS спектроскопии, техника предполагает измерение энергетической зависимости дифракционной интенсивности в различных фундаментальных брегговских пиках. Выбирая подходящий набор Брегговских рефлексов, можно полностью разделить вклады от кристаллографически неэквивалентных узлов, получая, таким образом, EXAFS-информацию для каждого узла отдельно.

Для данного волнового вектора Q и энергии E зависящий от энергии кристаллографический структурный фактор может быть представлен в виде

$$F(Q, E) = F_0 \exp(i\varphi) + \sum N_j \exp(iQR_j) f_j(E), \quad (2)$$

где первый член представляет собой вклад нерезонансных атомов, а второй описывает резонансные вклады от атомов Mn, N_j – заселённости атомных позиций Mn с радиус-векторами R_j и f_j – комплексные резонансные амплитуды рассеяния, которые различны для различных кристаллографически неэквивалентных узлов решётки Mn. Тогда теоретическое выражение для интенсивности сигнала DAFS можно записать в виде:

$$I(E) = \left[\left(F_0 \cos \varphi + f'(E) \right)^2 + \left(F_0 \sin \varphi + \beta f''(E) \right)^2 \right], \quad (3)$$

Выбирая различные Брегговские рефлексy, можно получить сумму вкладов от А и В кристаллографических узлов с различными весовыми множителями.

Для проведения количественного анализа данные DAFS преобразовываются к EXAFS-подобным спектрам, а именно, определяется мнимая часть резонансной амплитуды рассеяния $f''(E)$ с помощью интерактивной процедуры, основанной на том, что вещественная и мнимая части резонансной амплитуды рассеяния связаны соотношениями Крамерса-Кронига. Итерационная процедура проводилась следующим образом.

1) Сначала строилась стартовая пробная функция $I(E)$, на основе теоретических структурных факторов, рассчитанных с использованием табличных значений $f'(E)$ и $f''(E)$.

2) Далее находились независимые от энергии параметры в уравнении (3) путём минимизации квадрата разности между экспериментальным спектром и пробной функцией.

3) Используя полученные параметры, находится $f''(E)$ из уравнения для интенсивности DAFS и новые значения $f'(E)$ используя преобразование Крамерса-Кронига.

4) Используя найденные значения параметров и энергетических зависимостей $f''(E)$, пересчитывается пробная функция $I(E)$.

5) Описанная процедура повторяется интегративным образом до тех пор, пока квадрат разности между старыми и новыми значениями резонансной амплитуды рассеяния не становился меньше некоторого наперед заданного значения. В результате применения описанной интерактивной процедуры получают связанные соотношениями Крамерса-Кронига функции $f'(E)$ и $f''(E)$, а также набор независимых от энергии параметров уравнения, позволяющих описать экспериментальные спектры.

Для нашего экспериментального исследования мы выбрали (422), (222) и (111) Брегговские рефлексы в ОЦК решётке. Измеряя первые два рефлекса, можно изолировать локальное окружение Mn вблизи А и В позиций соответственно, а измерение третьего рефлекса полезно для проведения проверки самосогласованности процедуры обработки и для определения заселённостей кристаллографических позиций для катионов Mn. На рисунке 21 представлены экспериментальные спектры DAFS, измеренные от пленки Fe_2MnO_4 для брегговских рефлексов (422), (222) и (111), а также полученные в результате их обработки коэффициенты поглощения атомов Mn, локализованных на позициях типа А и В. Дальнейший анализ полученных можно провести стандартными методами EXAFS, основанными на теоретических стандартах.

Отметим следующие важные результаты проведенного анализа. В то время как в пленках Fe_2MnO_4 не обнаружено почти никакой разницы в локальной структуре позиций А(Mn) по сравнению с объемными материалами, наблюдаются значительные изменения для позиций В(Mn). Во-первых, отметим значительное увеличение расстояния Mn(A)-O для первой координационной сферы по сравнению с соответствующим значением для Fe(A)-O, в то время, как нет почти никакого изменения в расстояниях для узла В. Во-вторых, обнаружено значительное уменьшение эффективного координационного числа на узле В для первой координационной сферы.

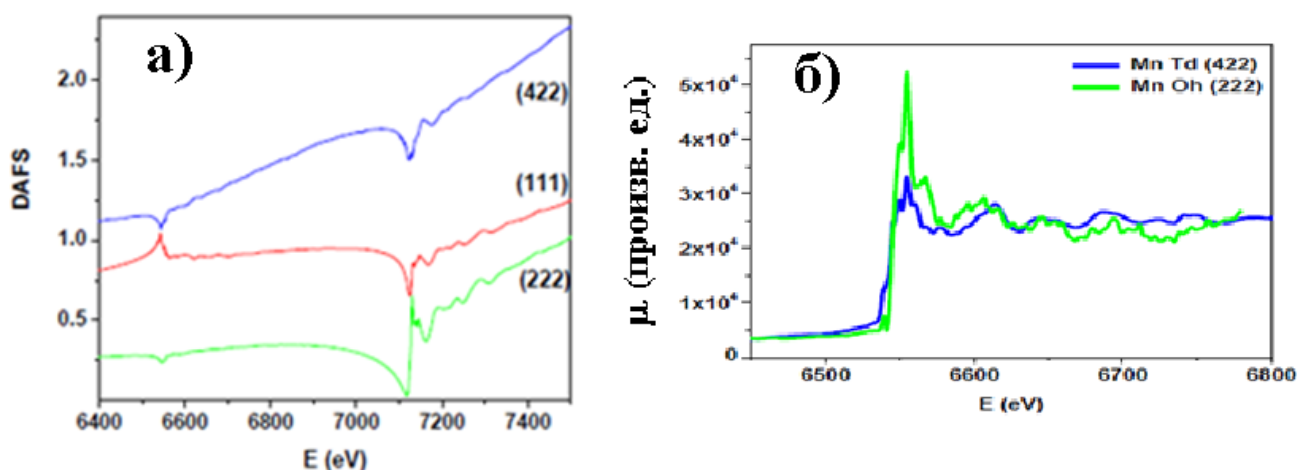


Рис. 21. а) Экспериментальные спектры DAFS, измеренные от пленки Fe_2MnO_4 для брегговских рефлексов (422), (222) и (111) и б) полученные в результате их обработки коэффициенты поглощения атомов Mn, локализованных на позициях типа А и В.

Заключение.

В работе развиты неразрушающих методы определения атомной и магнитной микроструктуры магнитных наноструктур, основанные на комплементарном (взаимодополняющем) использовании рассеяния нейтронов и синхротронного излучения, которые были применены для исследования широкого класса научно и технологически важных магнитных металлических наносистем.

1. Было экспериментально показано, что в сверхрешетках Fe/Cr формируется латеральная доменная структура, рассеяние поляризованных нейтронов на которой приводит к появлению незеркально рассеянных нейтронов. Был предложен метод определения угла неколлинеарности в магнитных сверхрешетках, основанный на анализе незеркального рассеяния поляризованных нейтронов. Комплементарным применением рентгеновской рефлектометрии, рефлектометрии поляризованных нейтронов и незеркального рассеяния нейтронов установлена прямая корреляция между среднеквадратичной шероховатостью межслойных границ и углом неколлинеарности в сверхрешетках Fe/Cr.

2. Был развит метод определения неоднородной внутрислойной структуры в магнитных сверхрешетках, основанный на комплементарном применении рефлектометрии поляризованных нейтронов и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии. С помощью развитого метода было показано, что малым числом повторений в сверхрешетках Fe/Gd с приводит при низких температурах к возникновению уникальных магнитных фаз, характеризующихся неоднородным изменением с глубиной направления магнитных моментов в слоях Gd.
3. Комплементарным применением нейтронной и рентгеновской дифрактометрии систематически исследовано влияние эффектов близости слоев ванадия и размерных эффектов на волны спиновой плотности в эпитаксиальных тонких пленках и сверхрешетках Cr/V. Показано, что близость слоев ванадия определяет поляризацию и направление распространения волны спиновой плотности в тонкопленочных системах Cr/V. Экспериментально доказано существование парамагнитного слоя толщиной до 5 нм в слоях Cr вблизи межслойных границ в сверхрешетках Cr/V. Показано, что по мере увеличения толщин слоев Cr магнитное состояние в сверхрешетках Cr/V изменяется от парамагнитного состояния к соизмеримой фазе волны спиновой плотности и, наконец, к несоизмеримой волне спиновой плотности в достаточно толстых слоях Cr. Установлено, что магнитное состояние в сравнительно толстых слоях Cr может быть контролируемым образом модифицировано путем насыщения водородом соседних слоев ванадия при относительно малых давлениях. Показано экспериментально, что, насыщая водородом слои ванадия, можно обратимым образом переводить несоизмеримую фазу волны спиновой плотности в соизмеримую.
4. Развита метод DAFS определения локальной атомной структуры тонких пленок с кристаллографически неэквивалентными узлами, занятыми

атомами элементов с близкими атомными номерами, основанный на анализе энергетической зависимости интенсивности брегговских рефлексов. При применении данного метода к исследованию тонких пленок искусственных марганцевых ферритов показано, что в системе наблюдается значительное увеличение расстояния Mn(A)-O для первой координационной сферы по сравнению с соответствующим значением для Fe(A)-O, а также значительное уменьшение эффективного координационного числа на узле B для первой координационной сферы.

В заключение отметим, что комплементарное применение нейтронного и рентгеновского синхротронного рассеяния позволяет с высоким разрешением определять неоднородную атомную и магнитную структуру внутри ферромагнитных и антиферромагнитных слоёв в магнитных металлических наноструктурах. Мы подчёркиваем важность такого комбинированного подхода, поскольку он позволяет получить результаты, которых невозможно добиться при использовании только одной из этих методик. Развитие и использование комплементарных нейтронных и рентгеновских методик значительно расширяет экспериментальные возможности при исследовании и дизайне новых материалов и устройств спинтроники.

Основное содержание работы изложено в следующих публикациях:

1. Morphology of crystallites and magnetic structure of non-collinear Fe/Cr multilayers / T.P. Krinitsina, E.A. Kravtsov, V.V. Lauter-Pasyuk, H.J. Lauter, V.V. Popov, L.N. Romashev, V.A. Tsurin, A.M. Burkhanov, V.V. Ustinov // J. Magn. Magn. Mater. – 1999. – Vol. 181. – P. 203–206.
2. Magnetic off-specular neutron scattering from Fe/Cr multilayers / V.V. Lauter-Pasyuk, H.J. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, E.A. Kravtsov, M.A.Milyaev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov // Physica B. – 2000. – Vol. 283. – P. 194–197
3. Interface formation and magnetic ordering in Fe/Cr hybrid nanostructures / E.A. Kravtsov, V.V. Lauter-Pasyuk, H.J. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, A.Petrenko,

M.A.Milyaev, L.N. Romashev, V.V. Ustinov // *Physica B.* – 2001. – Vol. 297. – P. 118–120.

4. Magnetic neutron off-specular scattering for the direct determination of the coupling angle in exchange-coupled multilayers / V. Lauter-Pasyuk, H.J. Lauter, B. Toperverg, O. Nikonov, E. Kravtsov, L. Romashev, V. Ustinov // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2001. – Vol. 226-230. – P. 1694 – 1697.

5. In-plane magnetisation anisotropy of Fe/Cr superlattices with biquadratic exchange coupling / V.V. Ustinov, M.A. Milyaev, L.N. Romashev, T.P. Krinitsina, E.A. Kravtsov // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2001. – Vol. 226- 230. – P. 1811 –1814.

6. Using of the high-grade layered structures for the demonstration of the depth resolution of the RBS method / A.P. Kobzev, E.A. Kravtsov, L.N. Romashev, A.V. Semerikov, V.V. Ustinov // *Vacuum.* – 2001. – Vol. 83. – P. 501–5054.

7. Kourtina N. Method of the reflections function in the X-ray reflectometry study of multilayers / N.V. Kourtina, E.A. Kravtsov, V.V. Ustinov // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2002. – Vol. 240. – P. 294– 296.

8. Effect of interface structure on magnetic and magnetoresistive properties of Fe/Cr multilayers / V.V. Ustinov, L.N. Romashev, T.P. Krinitsina, E.A. Kravtsov, M.A. Milyaev, A.V. Semerikov, V.A. Tsurin, N.V. Kourtina // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2002. – Vol. 240. – P. 511– 514.

9. Spin-Resolved Unpolarized Neutron Off-Specular Scattering for Magnetic Multilayer Studies / H.J. Lauter, V. Lauter-Pasyuk, B. Toperverg, L. Romashev, V. Ustinov, E. Kravtsov, A. Vorobiev, O. Nikonov, J. Major // *Appl. Phys. A.* – 2002. – Vol. 74. – P. S1557 – S1560.

10. Domains and Interface Roughness in Fe/Cr Multilayers - Influence on the Gmr Effect / H.J. Lauter, V. Lauter-Pasyuk, B. Toperverg, L. Romashev, M. Milyaev, T. Krinitsina, E. Kravtsov, V. Ustinov, A. Petrenko, V. Aksenov // *J. Magn. Magn. Mater.* – 2003. – Vol. 258. – P. 338–340.

11. Влияние температуры роста на структуру межслойных границ сверхрешеток Fe/Cr / Н.В. Багрец, Е.А. Кравцов, М.А. Миляев, Л.Н. Ромашев, А.В. Семерилов, В.В. Устинов // Физ. Мет. Metalloved. – 2003. – Т. 96. – С. 88-93.
12. Complementary polarized neutron and resonant x-ray magnetic reflectometry measurements in Fe/Gd heterostructures: Case of inhomogeneous intralayer magnetic structure / E. Kravtsov, D. Haskel, S.G.E. te Velthuis, S.J. Jiang, B.J. Kirby // Phys. Rev. B. – 2009. – Vol. 79. – p. 024421.
13. Кравцов Е.А. Комплементарное применение нейтронного и рентгеновского синхротронного рассеяния для определения магнитной микроструктуры обменно-связанных слоистых наногетероструктур / Е.А. Кравцов, В.В. Устинов // Физика твердого тела – 2010. – Т. 52 –С. 2116–2119.
14. Применение поляризационной нейтронной и резонансной рентгеновской магнитной рефлектометрии для определения неоднородной магнитной структуры в сверхрешетках Fe/Gd / Е.А. Кравцов, D. Haskel, S.G.E. te Velthuis, S.J. Jiang, B.J. Kirby // Известия Российской академии наук. Серия физическая – 2010. – Т. 74 – С. 1531– 1533.
15. Charge-magnetic interference resonant scattering studies of ferromagnetic crystals and thin films / D. Haskel, E. Kravtsov, Y. Choi, J. C. Lang, Z. Islam, G. Srajer, J. S. Jiang, S. D. Bader, P. C. Canfield // European Physical Journal-Special Topics – 2012. – Vol. 208 – P. 141–155.
16. Proximity effect of vanadium on spin-density wave magnetism in Cr films / E. Kravtsov, A. Nefedov, F. Radu, A. Remhof, H. Zabel, B. Hjorvarsson, A. Hoser, S. B. Wilkins // Phys. Rev. B. – 2004. – Vol. 70. – p. 054425.
17. Proximity effect of vanadium on strain and spin-density waves in thin Cr films / E. Kravtsov, R. Brucas, B. Hjorvarsson, A. Hoser, G. McIntyre, A. Nefedov, F. Radu, A. Remhof, H. Zabel // J. Magn. Magn. Mater. –2005. – Vol. 286. – P. 425–430.
18. Reorientation of spin-density waves in Cr films induced by proximity effect of vanadium / E. Kravtsov, A. Nefedov, H. Zabel, R. Brucas, B. Hjorvarsson, A. Hoser, G. J. McIntyre // J. Phys.: Condens. Mater. –2005. – Vol. 17. – p. 3143.

19. Onset of spin-density-wave antiferromagnetism in Cr/V multilayers / E. Kravtsov, R. Brucas, B. Hjorvarsson, A. Hoser, A. Liebig, G. J. McIntyre, M. A. Milyaev, A. Nefedov, L. Paolasini, F. Radu, A. Remhof, V. V. Ustinov, F. Yakhou, H. Zabel // *Phys. Rev. B.* – 2007. – Vol. 76. – p. 024421.
20. Fine tuning spin-density-wave state in Cr/V heterostructures via hydrogen uptake / E. Kravtsov, A. Nefedov, G. Nowak, K. Zhernenkov, H. Zabel, B. Hjorvarsson, A. Liebig, A. Hoser, G. J. McIntyre, L. Paolasini, A. Remhof // *J. Phys.: Condens. Mater.* – 2009. – Vol. 21. – p. 326006.
21. Site-specific local structure of Mn in artificial manganese ferrite films / E. Kravtsov, D. Haskel, A. Cady, A. Yang, C. Vittoria, X. Zuo, V. G. Harris // *Phys. Rev. B.* – 2006. – Vol. 74. – p. 104114.
22. Element- and site-specific oxidation state and cation distribution in manganese ferrite films by diffraction anomalous fine structure / A. Yang, Z. Chen, A. L. Geiler, X. Zuo, D. Haskel, E. Kravtsov, C. Vittoria, V. G. Harris // *Appl. Phys. Lett.* – 2008. – Vol. 93. – p. 052504.

Отпечатано на Ризографе ИФМ УрО РАН тираж 100
Зак.№ 45, объем 2.0 печ.л. формат 60x84 1/16
620108, г. Екатеринбург, ул. С.Ковалевской, 18