

Пономарев Дмитрий Андреевич

**МОДЕЛЬНО-НЕЗАВИСИМЫЙ МЕТОД ОПРЕДЕЛЕНИЯ  
ЛОКАЛЬНОГО АТОМНОГО СТРОЕНИЯ С РАЗРЕШЕНИЕМ ПО  
ГЛУБИНЕ В МНОГОСЛОЙНЫХ МЕТАЛЛИЧЕСКИХ  
НАНОГЕТЕРОСТРУКТУРАХ С НИЗКОЙ КОНТРАСТНОСТЬЮ**

01.04.07 – физика конденсированного состояния

Автореферат  
диссертации на соискание ученой степени кандидата  
физико-математических наук

Екатеринбург – 2018

Работа выполнена в Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Институте физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук

**Научный руководитель:** Бабанов Юрий Александрович  
доктор физико-математических наук,  
профессор, главный научный сотрудник  
лаборатории электрических явлений ИФМ  
УрО РАН, г. Екатеринбург.

**Официальные оппоненты:** Свалов Андрей Владимирович  
доктор физико-математических наук,  
старший научный сотрудник отдела  
магнетизма твёрдых тел Института  
естественных наук и математики ФГАОУ  
ВО «УрФУ имени первого Президента  
России Б.Н. Ельцина», г. Екатеринбург.

Песин Леонид Абрамович  
доктор физико-математических наук,  
профессор, профессор кафедры физики и  
методики обучения физике ФГБОУ ВО  
«ЮУрГГПУ», г. Челябинск.

**Ведущая организация:** ФГБОУ ВО «Санкт-Петербургский  
государственный университет», г. Санкт-  
Петербург.

Защита состоится « 13 » апреля 2018г. в 11<sup>00</sup> часов на заседании  
диссертационного совета Д 004.003.01 при ФГБУН Институте физики  
металлов имени М.Н. Михеева УрО РАН по адресу: 620108, г.Екатеринбург,  
ул.С.Ковалевской, 18.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ИФМ УрО РАН и на  
сайте [www.imp.uran.ru](http://www.imp.uran.ru).

Автореферат разослан «    » \_\_\_\_\_ 2018г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета,  
доктор физико-математических наук

Чарикова Т.Б.

## Общая характеристика работы

Актуальность темы. Многослойные наногетероструктуры  $Fe/Cr$  – искусственно синтезированные структуры, обладающие уникальными магнитотранспортными свойствами. На многослойных наногетероструктурах  $Fe/Cr$  П.Грюнбергом и А.Ферттом впервые был открыт гигантский магниторезистивный (ГМР) эффект [1,2]. В последующие годы было опубликовано большое количество работ, посвящённых исследованию этих структур. Было показано, что величина ГМР эффекта зависит от степени несовершенства интерфейсных областей [3,4]. Для понимания этой связи необходимо знать подробную информацию о локальном атомном строении в интерфейсах между слоями, а также распределение атомов в слоях и интерфейсах. Для этого необходим метод исследования, позволяющий получить информацию о локальном атомном строении с разрешением по глубине. Существующие методы исследования позволяют получить либо распределение атомов с глубиной в образце и информацию о степени несовершенства межслойных интерфейсов, либо информацию о локальной атомной структуре, усреднённой по всей глубине образца.

В работах [3–5], авторы предлагают объединить разные экспериментальные методики для того, чтобы исследовать локальную атомную структуру с разрешением по глубине. Эти работы имеют две ключевые особенности:

1. Они применимы к высококонтрастным системам (системам, в которых характеристики рассеяния сильно различаются, например,  $Gd$  и  $3d$  переходные металлы);
2. Для интерпретации экспериментальных данных требуется построение теоретической модели, параметры которой будут варьироваться для максимального соответствия модельного и экспериментального спектров.

Эти особенности делают затруднительным применение предложенных методов для исследования локального атомного строения с разрешением по глубине многослойных структур с низкой контрастностью или состоящих из большого числа слоев.

Таким образом требуется метод исследования, позволяющий определять локальную атомную структуру с разрешением по глубине. Он должен быть применим к системам как с высокой, так и низкой рентгеновской контрастностью материалов слоев. Метод не должен использовать модель структуры при обработке экспериментальных данных.

Поэтому тематика диссертационной работы несомненно, является актуальной.

Целью настоящей работы является разработать и апробировать метод исследования локальной атомной структуры с разрешением по глубине в многослойных наногетероструктурах, включающий в себя рентгеновскую рефлектометрию и EXAFS-спектроскопию.

Для достижения цели работы были поставлены следующие задачи:

1. Разработать алгоритм метода исследования локальной атомной структуры с разрешением по глубине, использующего взаимодополняющие данные рентгеновской рефлектометрии и EXAFS-спектроскопии.
2. Определить возможности и погрешности разработанного метода на модели слоистой системы  $Fe/Cr$ .
3. Применить разработанный метод для исследования многослойной наногетероструктуры  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10,5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ .

Научная новизна. В работе впервые:

1. Представлен алгоритм метода исследования локального атомного строения многослойных металлических наногетероструктур с разрешением по глубине, комбинирующий рентгеновскую рефлектометрию и EXAFS-спектроскопию с угловой зависимостью;

2. Получена информация о локальном атомном строении многослойной структуры  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10,5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$  с разрешением по глубине из экспериментальных данных;
3. Определен тип оксида  $Cr$ , находящегося на поверхности образца с помощью разработанного метода.

Научная и практическая ценность работы:

1. Разработанный метод исследования позволяет получать подробную информацию о локальном атомном строении многослойных наногетероструктур в слоях, интерфейсах и на поверхности образца.
2. Впервые была получена информация о структуре многослойной металлической наногетероструктуры с разрешением по глубине из комбинированных экспериментальных данных рентгеновской рефлектометрии и EXAFS-спектроскопии с угловым разрешением.
3. Данные об атомном строении, получаемые с помощью предложенного метода можно будет использовать при построении математических моделей, которые будут помогать в исследованиях магнитных и магнитотранспортных свойств образцов.

На защиту выносятся следующие положения:

1. Новый метод исследования локального атомного строения с разрешением по глубине, комбинирующий рентгеновскую рефлектометрию и EXAFS-спектроскопию.
2. Модельные численные эксперименты по определению локального атомного строения пятислойной системы  $Fe/Cr$ .
3. Результаты экспериментальных исследований окружения атомов  $Fe$  и  $Cr$ , расположенных в различных точках по глубине (включая интерфейс и поверхность), для многослойного образца  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10,5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ .

Личный вклад автора:

Совместно с научным руководителем Бабановым Ю. А. автор участвовал в постановке цели и задач исследования. Автор принимал непосредственное

участие в разработке нового метода определения локальной атомной структуры с разрешением по глубине. С этой целью автором лично был разработан программный пакет на языке программирования C#. Автор также принимал личное участие в постановке и проведении рентгеновских экспериментов на станции структурного материаловедения и станции «ФАЗА» на Курчатовском специализированном источнике синхротронного излучения «КИСИ-Курчатов» (г. Москва). Автором лично проведены обработка и анализ экспериментальных данных. Все публикации, раскрывающие результаты работы, создавались при непосредственном участии автора. Основные результаты и выводы диссертации были сформулированы автором.

*Апробация работы:*

Основные положения и результаты работы докладывались и обсуждались на следующих конференциях и семинарах: 15-ая международная конференция по тонкой структуре спектров поглощения рентгеновских лучей (Китай, Пекин, 2012 год); XIII международная конференция дислокационная структура и механические свойства металлов и сплавов – ‘ДСМСМС-2014’(Россия, Екатеринбург, 2014 год); 16-ая международная конференция по тонкой структуре спектров поглощения рентгеновских лучей (Германия, Карлсруэ, 2015 год); VI евразийский симпозиум “Trends in Magnetism” (Россия, Красноярск, 2016 год); V международная научная конференция «НАНОСТРУКТУРНЫЕ МАТЕРИАЛЫ-2016: БЕЛАРУСЬ-РОССИЯ-УКРАИНА» (НАНО-2016) (Белоруссия, Минск, 2016); всероссийская молодежная школа-семинар по проблемам физики конденсированного состояния вещества (СПФКС-12, 13, 14, 18) (Россия, Екатеринбург, 2011, 2012, 2013, 2017 годы); XI российская конференция физики полупроводников (Россия, Санкт-Петербург, 2013); совещание и молодежная конференция по использованию рассеяния нейтронов и синхротронного излучения в конденсированных средах (РНСИ-КС-2014) (Россия, Санкт-Петербург, 2014);

VI-ая всероссийская конференция по наноматериалам с элементами научной школы для молодежи (НАНО-2016), (Россия, Москва, 2016).

Достоверность результатов обеспечивается теоретическим обоснованием используемых алгоритмов обработки экспериментальных данных и их апробацией на модельных численных расчётах, воспроизводящих условия реальных экспериментов. Все предлагаемые методики являются модельно-независимыми, что повышает объективность получаемых результатов.

Рентгеновские измерения проводились на современном высокоточном оборудовании станциях структурного материаловедения и «ФАЗА» Курчатовского специализированного источника синхротронного излучения «КИСИ-Курчатов». Полученные данные обрабатывались с помощью различных алгоритмов, результаты обработки находились в согласии между собой.

Работа выполнялась в ИФМ УрО РАН в соответствии с планом научно-исследовательских работ по теме «Спин» №01201463330, при поддержке РФФИ (грант №16-32-00676-мол\_а), Министерства образования и науки (грант 14.Z50.31.0025).

Основное содержание диссертации изложено в 6 статьях, в том числе 5 из них опубликованы в журналах, входящих в перечень ВАК и системы цитирования. Список работ приводится в конце диссертации.

Соответствие паспорту специальности. Содержание диссертации соответствует пункту 6 Паспорта специальности 01.04.07 – физика конденсированного состояния “Разработка экспериментальных методов изучения физических свойств и создание физических основ промышленной технологии получения материалов с определенными свойствами”.

Объём и структура диссертации. Работа состоит из введения, 4 глав, заключения и списка литературы. Содержание диссертации изложено на 124 страницах печатного текста, включая 38 рисунков, 5 таблиц и приложения. Библиографический список содержит 83 наименования.

## Краткое содержание работы

Во введении обосновывается актуальность разработки нового метода исследования локального атомного строения с разрешением по глубине, описывается необходимость развития алгоритмов обработки данных рентгеновской рефлектометрии и EXAFS-спектроскопии, основанных на методе регуляризации Тихонова, сформулированы цель и задачи исследования, аргументирована научная новизна и показана практическая значимость полученных результатов, изложены выносимые на защиту положения.

Первая глава диссертации носит обзорный характер. В ней даны основные понятия и определения, используемые в диссертации. Рассмотрены основные методики синтеза многослойных наногетероструктур, основы рентгеновской рефлектометрии и EXAFS-спектроскопии. Проведен анализ работ [6–9] в которых описываются методы исследования с разрешением по глубине, комбинирующие несколько экспериментальных методик.

Во второй главе описывается математический алгоритм разработанного метода исследования локального атомного строения многослойных наногетероструктур с разрешением по глубине. Алгоритм состоит из трех этапов. На первом этапе определяется концентрационный профиль  $p_i(z)$  исследуемого образца – вероятность найти атом определенного сорта  $i$  на глубине  $z$  от поверхности образца, определяемый как:

$$p_i(z) = n_i(z)/n_{0i}, \quad (1)$$

где  $n_i$  - атомная плотность элемента  $i$  в текущем слое,  $n_{0i}$  - плотность элемента  $i$  в чистом слое. Концентрационный профиль получается при решении обратной задачи для уравнения рентгеновской рефлектометрии:

$$R(s) = \frac{(4\pi r_e)}{s^2} \sum_{i=1}^n n_{0i} f_i(s, E) \int_0^\infty \left( \frac{dp_i(z)}{dz} \right) \exp(isz) dz, \quad (2)$$



где  $R(s)$  - коэффициент отражения рентгеновского излучения,  $z$  - составляющая вектора рассеяния  $s$ ;  $n$  - количество типов атомов в образце;  $r_e$  - классический радиус электрона; рентгеновский формфактор  $f_i(s, E)$  является комплексной функцией:  $f_i(s, E) = f_i^0(s) + f_i'(E) + if_i''(E)$  с атомным формфактором  $f_i^0(s)$ , дисперсией  $f_i'(E)$ , и поправкой поглощения  $f_i''(E)$  в зависимости от энергии излучения  $E$ , которая рассматривается как параметр. Суммирование проводится по всем типам атомов. На эксперименте снимаются спектры интенсивности отраженного рентгеновского излучения  $I^R(s)$ , а не коэффициент отражения рентгеновского излучения  $R(s)$ , поэтому для обработки экспериментальных данных необходимо уравнение (2) записать в виде:

$$I^R(s) = |R(s)|^2 = (Re R(s))^2 + (Im R(s))^2 \quad (3)$$

Обратная задача решается для уравнения (3) с помощью метода решения, использующего регуляризацию Тихонова. Полученный концентрационный профиль передается в качестве входных данных на следующий этап алгоритма.

Второй этап алгоритма метода заключается в переходе от угловой зависимости спектров EXAFS к зависимости коэффициента поглощения от глубины образца с помощью решения обратной задачи для уравнения (4):

$$I_f(E, \varphi) = \frac{I_0 \varepsilon n_{oi}}{\sin \varphi} \int_0^D p_i(z) \mu(E, z) \exp \left\{ - \left( \frac{\mu_T(E)}{\sin \varphi} + \frac{\mu_f}{\sin \theta} \right) z \right\} dz, \quad (4)$$

где  $\varepsilon(E)$  - выход флуоресценции в единицу телесного угла,  $E_f$  - энергия флуоресцентных фотонов,  $I_0$  - интенсивность первичного пучка,  $\mu(E, z)$  - коэффициент поглощения,  $\varphi$  - угол падения рентгеновского излучения на образец,  $\theta$  - угол выхода рентгеновской флуоресценции.

Этот этап является самым важным, так как именно на нем происходит объединение данных двух независимых экспериментов. При решении обратной задачи методом регуляризации Тихонова, получается коэффициент

поглощения образца  $\mu(E, z)$  на К-краю поглощения атома сорта  $i$  с разверткой по глубине. Входными данными для обратной задачи являются: концентрационный профиль  $p_i(z)$  исследуемого образца и  $I_f(E, \varphi)$ -экспериментальная интенсивность флуоресцентного излучения.

На третьем этапе происходит получение информации о локальном атомном строении в виде парциальных парных корреляционных функций  $g_{ij}(z, r)$ . Парциальная парная корреляционная функция (пПКФ) - это плотностью вероятности нахождения атома сорта  $i$  на расстоянии  $r$  от атома сорта  $j$  [10].

Этот этап необходимо начинать с выделения нормированной осциллирующей части коэффициента поглощения в виде:

$$\chi(E, z) = \frac{\mu(E, z) - \mu_0(E)}{\mu_0(E)}, \quad (5)$$

где  $\mu_0(E)$  – поглощение изолированного атом, которое берется на электронном ресурсе [11]. После перевода нормированной осциллирующей части из пространства энергий в пространство  $k$  – волновых векторов решается обратная задача для уравнения (6) EXAFS-спектроскопии методом регуляризации Тихонова. Для решения обратной задачи необходимо выбрать фиксированные точки по оси глубин, то есть положить  $z = \text{const}$ .

$$\chi_i(z, k) = 4\pi\rho_0 \sum_{j=1}^n c_j \int_0^{\infty} f_j(k, r) \exp\left(-\frac{2r}{\lambda_i(k)}\right) \sin\left(2kr + \psi_{ij}(k, r)\right) g_{ij}(z, r) dr, \quad (6)$$

где  $k$  – волновой вектор;  $f(k, r)$  – модуль амплитуды рассеяния назад фотоэлектрона;  $\lambda(k)$  - длина свободного пробега фотоэлектрона, экспоненциальный множитель учитывает затухание фотоэлектронной волны вследствие неупругих потерь;  $2\delta(k)$  - сдвиг фазы из-за рассеяния на центральном атоме;  $\phi(k, r)$  - фаза рассеяния назад.

Полученные при решении пПКФ  $g_{ij}(z, r)$  содержат информацию о межатомных расстояниях и координационных числах исследуемого вещества на глубине  $z$  от поверхности образца.

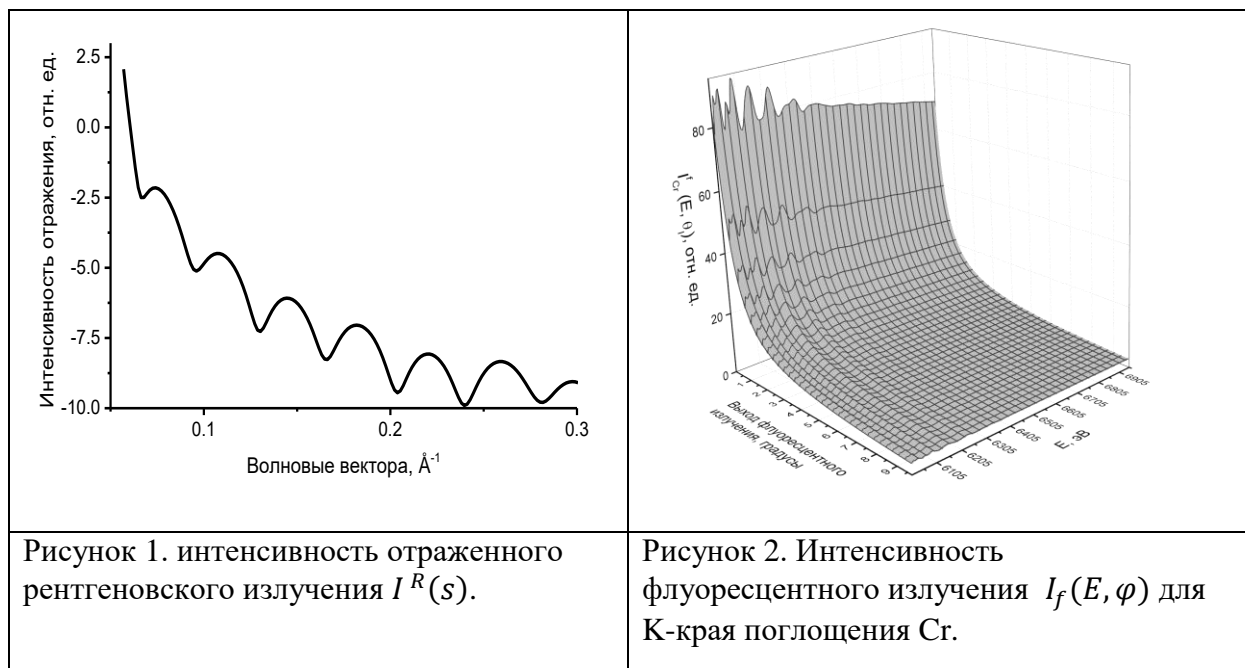
Третья глава диссертации посвящена определению возможностей и погрешности разработанного метода. Для этого с его помощью восстанавливается информация о локальном атомном строении модели многослойной наногетероструктуры  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10.5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ . Она была выбрана, потому что далее, с помощью разработанного метода, будет экспериментально исследоваться структура с такими же номинальными толщинами слоев.

Процедура моделирования атомной структуры следующая:

1. Построение массива атомов с объёмно-центрированной кубической (ОЦК) решеткой, состоящей из 500000 атомов с параметром решетки  $a_{Cr} = 2,885 \text{\AA}$ . Атомы представлялись в виде твердых сфер конечного радиуса.
2. Разделение массива на 5 слоев ( $Cr, Fe, Cr, Fe, Cr$ ) с толщинами, заданными формулой образца.
3. Выбор случайным образом положения атомов  $Cr$  и  $Fe$  в интерфейсах (составляющих 2 атомных монослоя).
4. Определение центра симметрии в каждом слое  $Fe$ .
5. Сжатие каждого слоя  $Fe$  для получения величины параметра решетки  $a_{Fe} = 2,866 \text{\AA}$ .
6. Искажение интерфейсной области в соответствии с межатомными расстояниями между  $Cr$  и  $Fe$ . Если рядом находились два атома  $Cr$ , то расстояние между ними полагалось  $a_{Cr}$ , если два атома  $Fe$  то  $a_{Fe}$ , а если соседями были атом  $Cr$  и  $Fe$ , то расстояние между ними рассчитывалось, как  $(a_{Cr} + a_{Fe})/2$ .

На основе этой модели были рассчитаны модельные входные данные для разработанного метода. В качестве них используются интенсивность

отраженного рентгеновского излучения  $I^R(s)$ , и  $I_f(E, \varphi)$ - интенсивность флуоресцентного излучения.



При решении обратной задачи для уравнения рентгеновской рефлектометрии был получен концентрационный профиль образца, показанный на рисунке 3. Обратная задача решалась для двух случаев: без наложения ограничений на концентрационный профиль и с наложением ограничения:  $0 \leq p_A(z) \leq 1$ . Без наложения ограничений R-фактор между полученным из модели атомной структуры и полученным при решении концентрационным профилем составляет 3%; при наложении ограничений, значение R-фактора падает до 0.3%. Для проверки устойчивости алгоритма на втором этапе метода к возмущениям на входных данных, модельные спектры флуоресцентного излучения были искажены статистическим шумом. Разница между зашумленным и чистым сигналом составила 10%. Итогом обработки модельных спектров с шумом стала информация о локальном атомном строении на трех разных глубинах в образце. Выбранные глубины показаны на рисунке 3 цифрами.

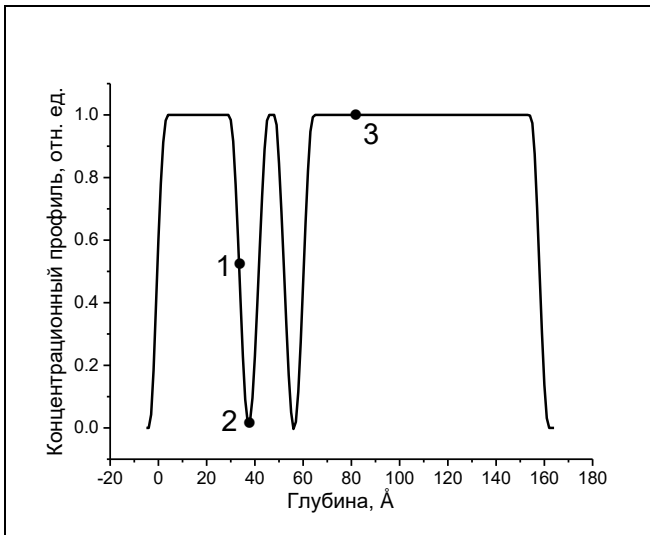


Рисунок 3. Концентрационный профиль Cr модельной системы  $Al_2O_3/Cr(100\text{Å})/[Fe(8\text{Å})/Cr(10.5\text{Å})]_2/Cr(20\text{Å})$ . Точками обозначены глубины на которых исследовалась атомная структура.

Численные результаты показаны в таблице 1. Максимальное значение разницы между модельными и расчетными значениями было принято за погрешность метода. Получено, что погрешность метода в определении межатомных расстояний для первой и второй координационных сфер составила  $\pm 0.01\text{Å}$ , для третьей координационной сферы  $\pm 0.03\text{Å}$ . Погрешность определения координационных чисел первой

координационной сферы составляет  $\pm 2$  атома. Для остальных сфер координационные числа не определялись, в связи со слишком большой погрешностью.

Таблица 1. Результаты обработки данных модельного эксперимента и модельные данные для структуры  $Al_2O_3/Cr(100\text{Å})/[Fe(8\text{Å})/Cr(10.5\text{Å})]_2/Cr(20\text{Å})$  для первой координационной сферы.

		Cr-Cr		Cr-Fe		Fe-Cr		Fe-Fe	
		$r_1, \text{Å}$	$n_1$	$r_1, \text{Å}$	$n_1$	$r_1, \text{Å}$	$n_1$	$r_1, \text{Å}$	$n_1$
Точка 1	Модель	2.52	6.0	2.50	2.0	2.50	5.0	2.48	3.0
	Решение	2.51	5.2	2.50	2.2	2.49	5.2	2.48	2.4
Точка 2	Модель	2.52	6.0	2.50	2.0	2.50	2.0	2.48	6.0
	Решение	2.51	4.7	2.49	1.1	2.50	2.2	2.48	5.1
Точка 3	Модель	2.52	8.0	-	-	-	-	-	-
	Решение	2.51	7.1	-	-	-	-	-	-

Численный модельный эксперимент, представленный в этой главе, показывает возможности разработанного метода получения информации о локальном атомном строении с разрешением по глубине в слабоконтрастных многослойных наногетероструктурах. Были определены погрешности определения межатомных расстояний и координационных чисел

разработанным методом. Этот численный эксперимент также являлся подготовкой для последующей обработки экспериментальных данных аналогичной системы.

В четвертой главе происходит апробация предложенного метода на экспериментальных данных многослойной наногетероструктуры  $Fe/Cr$ . Для экспериментальной апробации разработанного метода была выбрана система, содержащая атомы  $Fe$  и  $Cr$ , так как она является классической низкоконтрастной системой, обладающей ГМР эффектом. Была выбрана пятислойная система, в которой присутствуют два одинаковых бислоя. Буферный слой толщиной  $t_{Cr} = 100\text{\AA}$ , позволит минимизировать влияние шероховатости подложки на атомное строение многослойной наногетероструктуры [12]. Толщина слоя  $Cr$  была выбрана  $t_{Cr} = 10,5\text{\AA}$ , так как она обеспечивает антиферромагнитное упорядочение между слоями  $Fe$ . Для выбора толщины слоя  $Fe$  был синтезирован набор пятислойных структур с разными толщинами слоя  $Fe$  ( $t_{Fe} = 1.2 - 8\text{\AA}$ ). Выбранная система обладает максимальным значением магнитосопротивления. В итоге была выбрана  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10.5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ .

Образец был выращен на монокристаллической подложке  $Al_2O_3$  методом молекулярно-лучевой эпитаксии в Институте физики металлов имени М.Н. Михеева Уральского отделения РАН. После синтеза образец был аттестован на наличие гигантского магниторезистивного эффекта. Магнитосопротивление измерялось стандартным четырехконтактным методом в магнитном поле напряженностью до 90 кЭ. Магнитное поле прикладывалось в плоскости пленки. Величина магнитосопротивления рассчитывалась, как  $r(H) = [R(H) - R(0)]/R(0)$ , где  $R(H)$  – электросопротивление при наложении магнитного поля,  $R(0)$  – электросопротивление в нулевом поле.

Для первого этапа разработанного метода были сняты спектры рентгеновской рефлектометрии. Эксперименты по рентгеновской рефлектометрии проводились с использованием специализированного рентгеновского дифрактометра «Panalytical Empyrien Series 2» для линий  $K_{\alpha_1}/K_{\alpha_2}$  Co в геометрии параллельного пучка, который был сформирован параболическим зеркалом на основе сверхрешеток W/Si. Высота первичного пучка рентгеновского излучения была ограничена щелью 0,05мм. Вторичное излучение регистрировалось позиционно-чувствительным детектором «PIXel 3D», который обеспечивает разрешение по шкале  $2\theta$  ( $\theta$  – угол падения рентгеновского излучения на образец) не менее  $0,0016^\circ$  в режиме фиксированного количества каналов записи. Запись спектров выполнялась при стандартной геометрии проведения экспериментов  $\theta - 2\theta$ . Угловой размер одного канала детектора составляет 0,229167 мрад. Для выделения из спектров рентгеновской рефлектометрии вклада зеркального отражения была использована методика, описанная в работе [13], так как только он используется в методе для получения данных из рентгеновской рефлектометрии. В работе представлена система линейных уравнений для интенсивности отражения рентгеновского излучения  $I(s, \alpha_i)$ , где  $\alpha_i$  - количество каналов детектора. Эта система позволяет разделять вклады зеркального отражения  $I_{spec}(s)$  и диффузного рассеяния  $I_{dif}(s, \alpha_i)$  в экспериментальных данных, полученных для двух разных ширин щели детектора  $\alpha_i$ .

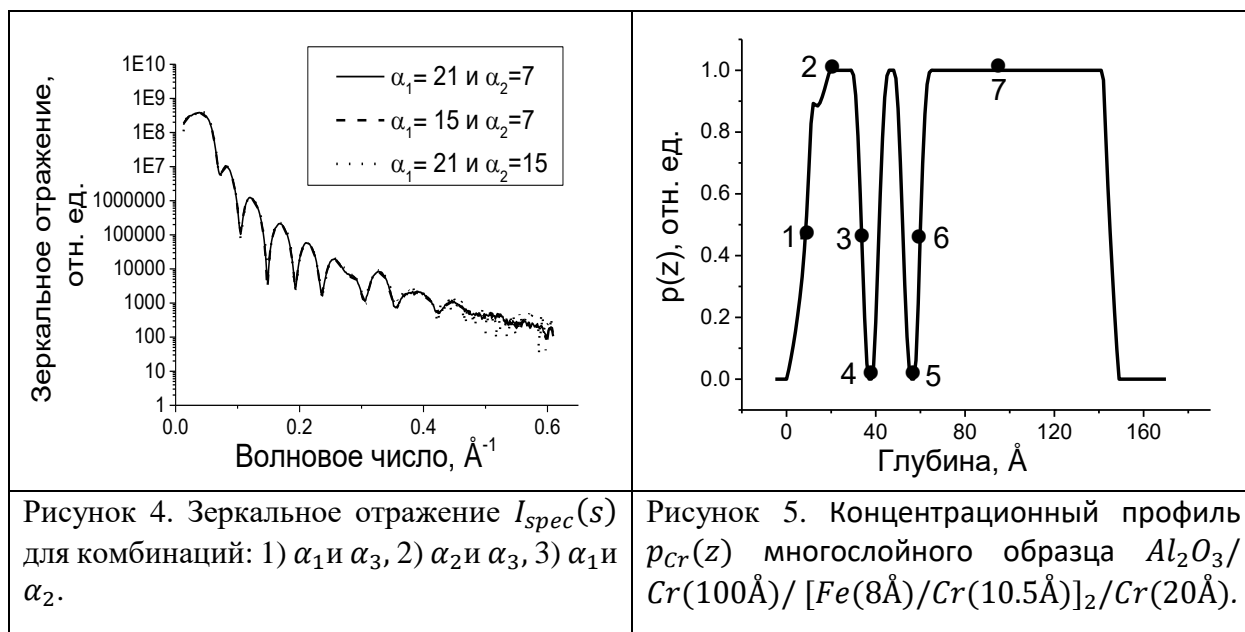
$$\begin{cases} I(s, \alpha_1) = I_{spec}(s) + \alpha_1 I_{dif}(s, \alpha_1) \\ I(s, \alpha_2) = I_{spec}(s) + \alpha_2 I_{dif}(s, \alpha_2) \end{cases} \quad (7)$$

Из этой системы можно выразить функцию  $I_{spec}(s)$ . Она запишется в виде:

$$I_{spec}(s) = \frac{1}{\alpha_2 - \alpha_1} (\alpha_2 I(s, \alpha_1) - \alpha_1 I(s, \alpha_2)). \quad (8)$$

Для выделения зеркального вклада рентгеновской рефлектометрии исследуемого образца были поведены эксперименты при трех разных

размерах щелей. На рисунке 4 показаны зеркальные вклады для трех комбинаций щелей.



Для использования в качестве входных данных был использован только один спектр, показанный на рисунке 5 сплошной линией, так как особой разницы в полученных спектрах не наблюдается. На первом этапе разработанного метода был получен концентрационный профиль образца, представленный на рисунке 5. Полученные толщины слоев с учетом погрешности ( $\pm 1\text{\AA}$ ) соответствуют номинальным толщинам образца, это показывает, что с помощью метода молекулярно-лучевой эпитаксии удалось получить высококачественную многослойную структуру, которая пригодна для апробации разработанного алгоритма.

На втором этапе разработанного метода использовались спектры интенсивности флуоресцентного излучения для пяти разных углов падения рентгеновского излучения на образец ( $\varphi_l = 1^\circ; 2^\circ; 3,85^\circ; 7,55^\circ; 15^\circ$ ), снятые на станции «ФАЗА» Курчатовского специализированного источника синхротронного излучения «КИСИ-Курчатов» для К-краев поглощения  $Fe$  и  $Cr$ . Интенсивности флуоресцентного излучения  $I_f(E, \varphi)$  показаны на рисунке 6.



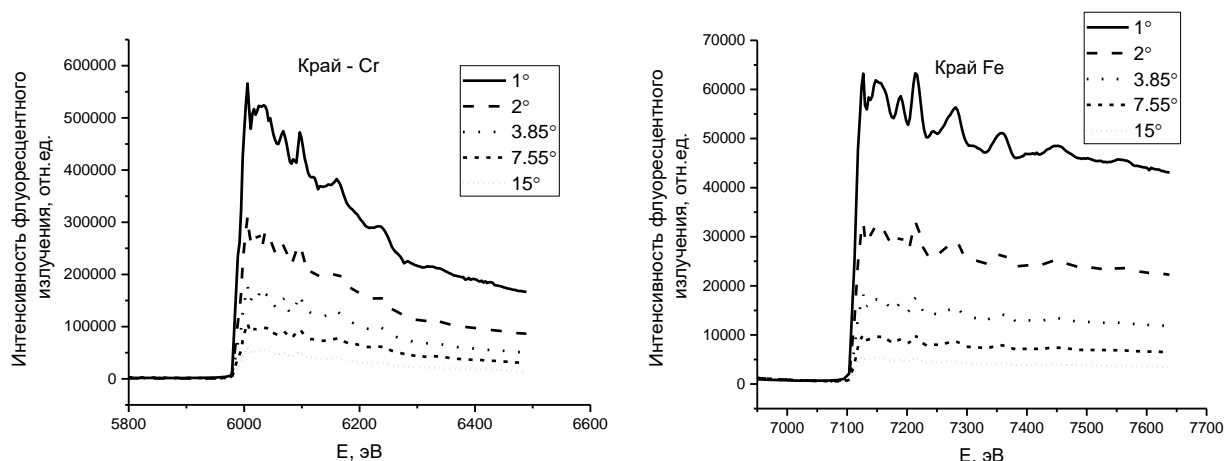


Рисунок 6. Спектры флуоресценции  $K_{\alpha}$  многослойного образца  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10.5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ . Спектры сняты при разных углах падения рентгеновского излучения: край  $Cr$  (слева); край  $Fe$  (справа).

Полученные на втором этапе коэффициенты поглощения  $\mu_{Cr}^f(z, E)$  и  $\mu_{Fe}^f(z, E)$ , зависящие от глубины, показаны на рисунке 7.

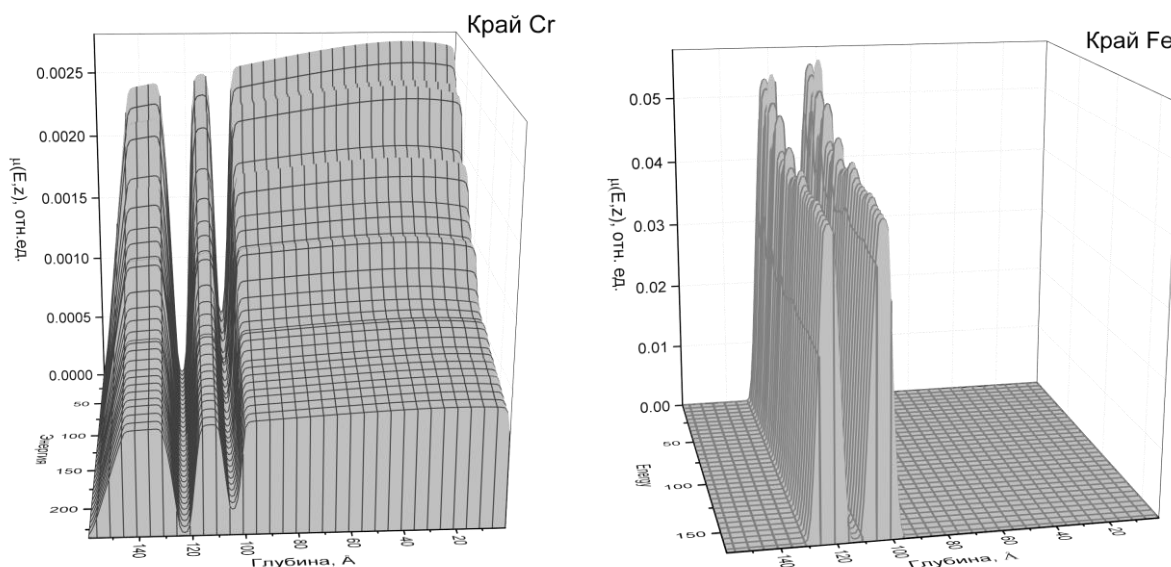


Рисунок 7. Коэффициенты поглощения  $\mu_{Cr}^f(z, E)$  и  $\mu_{Fe}^f(z, E)$  образца на К-краю поглощения  $Cr$ (слева) и  $Fe$ (справа).

Для последующего решения были выбраны 7 точек на оси глубин. Они обозначены цифрами 1-7 на концентрационном профиле образца на рисунке 5. Точка 1 соответствует поверхности образца. Точки 2, 7 – слои  $Cr$ ; точки 3, 6 – интерфейсные области между слоями  $Cr$  и  $Fe$ ; 4, 5 – слои  $Fe$ . Выбор точек в схожих областях был обусловлен тем, что это первая проверка предложенного метода исследования локальной атомной структуры с разрешением по глубине

на эксперименте. Совпадение информации о локальной атомной структуре в схожих областях с учетом погрешности метода позволяет показать его возможность работы с экспериментальными данными. Информация, полученная в точке 1, представлена в таблице 2. Видно, что межатомные расстояния близки к теоретическим значениям межатомных расстояний  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ .

Таблица 2. Межатомные расстояния Cr-Cr и Cr-O, полученные при обработке экспериментальных данных и теоретические значения для $\text{Cr}_2\text{O}_3$		
пПКФ	Экспериментальные данные	Теоретическое значение $\text{Cr}_2\text{O}_3$
Cr-Cr	2,62 Å ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	2,65 Å
Cr-O	1,95 Å ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	1,97 Å

Это позволяет говорить о том, что на поверхности образца присутствует  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . Численные результаты, полученные при обработке экспериментальных данных на К-краю поглощения  $\text{Cr}$  в точках 2 и 7 представлены в

таблице 2. Полученные данные о межатомных расстояниях совпадают с учетом погрешности с теоретическими данными для первой, второй и третьей координационных сфер. Отсутствие пПКФ для атомов  $\text{Fe}$ , говорит о том, что в ходе решения оказалось, что в этих точках  $\text{Fe}$  отсутствует.

Таблица 3. Результаты экспериментального исследования локальной атомной структуры, вокруг атомов Cr (межатомное расстояние  $r_i$ , число ближайших соседей  $n_i$  в разных точках глубины для многослойного образца  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cr}(100\text{Å})/[\text{Fe}(8\text{Å})/\text{Cr}(10.5\text{Å})]_2/\text{Cr}(20\text{Å})$ .

	Точка 2	Точка 7	Cr ОЦК решетка
Cr – Cr, $r_1$ , Å	2.51 ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	2.51 ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	2.52
Cr–Cr, $N_1$ , ат.	6.98 ( $\pm 2$ )	7.11 ( $\pm 2$ )	8
Cr-Cr, $r_2$ , Å	2.90 ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	2.90 ( $\pm 0.01\text{Å}$ )	2.91
Cr-Cr, $r_3$ , Å	4.14 ( $\pm 0.03\text{Å}$ )	4.15 ( $\pm 0.03\text{Å}$ )	4.12

Обработка данных для края  $\text{Fe}$  происходила в точках 3, 4, 5, 6, так как в них присутствуют атомы  $\text{Fe}$ . Численные результаты, представленные в таблице 4, свидетельствуют о том, что предложенный метод с высокой точностью позволяет получить информацию об как об интерфейсных областях, так и о чистых слоях.

Таблица 4. Результаты экспериментального исследования локальной атомной структуры, вокруг атомов Cr (межатомное расстояние  $r_i$ , число ближайших соседей  $n_i$  в разных точках глубины для многослойного образца  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10.5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ .

	Точка 3	Точка 4	Точка 5	Точка 6	Fe ОЦК решетка
Fe-Fe, $r_1$ , $\text{\AA}$	2.48 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2,48 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.48 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.48 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.48
Fe-Fe, $N_1$ , ат.	3.2	5.7	5.9	3.6	8
Fe-Cr, $r_1$ , $\text{\AA}$	2.49 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2,49 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.49 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.49 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	-
Fe-Cr, $N_1$ , ат.	3.0	1.6	1.3	3.2	-
Fe-Fe, $r_2$ , $\text{\AA}$	2.87 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2,87 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.87 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.87 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.87
Fe-Cr, $r_2$ , $\text{\AA}$	2.89 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2,89 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.89 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	2.89 ( $\pm 0.01\text{\AA}$ )	-
Fe-Fe, $r_3$ , $\text{\AA}$	4.12 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4,14 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.09 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.10 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.05
Fe-Cr, $r_3$ , $\text{\AA}$	4.13 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.16 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.14 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	4.13 ( $\pm 0.03\text{\AA}$ )	-

Видно, что межатомные расстояния в первой и второй координационных сферах совпадают во всех четырех точках, также они совпадают с табличными значениями для чистого образца *Fe*. Координационные числа позволяют делать качественные выводы о соотношении количества атомов в интерфейсной области образца и в чистом слое. Погрешность определения координационных чисел ( $\pm 2$  атома) следует относить к сумме координационных чисел для пары атомов *Fe-Fe* и *Fe-Cr*.

## Заключение

В ходе выполнения работы разработан модельно-независимый метод исследования локальной атомной структуры слоев, интерфейсов и поверхности многослойных наногетероструктур, объединяющий рентгеновскую рефлектометрию и EXAFS-спектроскопию с угловым разрешением. Подробно описан математический аппарат разработанного метода.

Разработанный метод апробирован на модельной системе  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10.5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ . Показано, что он позволяет

получить межатомные расстояния для первой и второй координационных сфер на выбранной глубине с точностью ( $\pm 0,01 \text{ \AA}$ ), а для третьей координационной сферы ( $\pm 0,03 \text{ \AA}$ ). Информацию о локальном атомном строении образца по глубине можно получать с шагом  $2 \text{ \AA}$ .

Впервые из экспериментальных данных получена информация о локальном атомном строении слоев, интерфейсов, поверхности для низкоконтрастной системы с перекрывающимися координационными сферами  $Al_2O_3/Cr(100\text{\AA})/[Fe(8\text{\AA})/Cr(10,5\text{\AA})]_2/Cr(20\text{\AA})$ . Показано, что на поверхности образца присутствует  $Cr_2O_3$ . Толщина поверхностного слоя образца оказалась равной  $20\text{\AA} \pm 1\text{\AA}$ . Полученные толщины слоев соответствуют номинальным толщинам образца; это еще раз подтверждает, что метод молекулярно-лучевой эпитаксии дает высококачественные структуры, которые можно использовать для апробации нового метода исследования.

Для получения структурных характеристик был использован эффективный метод решения обратных некорректных задач - метод регуляризации Тихонова, а для решения нелинейных задач применялся алгоритм Левенберга-Марквардта.

Разработанный метод исследования локального атомного строения с разрешением по глубине планируется применить для изучения локальной атомной структуры многослойных наногетероструктур  $Fe/Cr$  с различными толщинами слоев, а также для сверхрешеток с большим числом пар слоев.

Разработанный метод позволяет определять распределение атомов в слоях, интерфейсах и на поверхности синтезированных многослойных наногетероструктур.

С помощью математического формализма, описанного в главе 2, может быть получена зависимость от глубины для данных угловой фотоэмиссии и рентгеновского магнитного циркулярного дихроизма.

Полученная в ходе работы информация о структурных характеристиках многослойной наногетероструктуры может быть использована для установления связи между атомным строением металлических многослойных наногетероструктур и магнитотранспортными свойствами.

### Список работ автора

- A1. Babanov Yu. A. Interatomic distances for overlapping shells in disordered systems: model-less approach / Yu. A. Babanov, D. A. Ponomarev, Yu. A. Salamatov // *Journal of Physics: Conference Series*. – 2013. – Vol. 430, №1. – P. 012118.
- A2. Бабанов Ю.А. Визуализация атомного строения твердых растворов со структурой NaCl / Бабанов Ю.А., Пономарев Д.А., Устинов В.В. // *Физика твёрдого тела*. — 2015. — Т. 57, №4. — С. 700—703.  
Перевод: Visualization of the atomic structure of solid solutions with the NaCl structure / Yu. A. Babanov, D. A. Ponomarev, V. V. Ustinov // *Physics of the Solid State*. — 2015. — Vol. 57, №4. — P. 717—721.
- A3. Структурная характеристика мультислойных наноструктур Cr/Gd/Cr и Cr/Gd/Fe/Cr по данным рентгеновской рефлектометрии / Бабанов Ю.А., Саламатов Ю.А., Пономарев Д.А., Наумова Л.И., Проглядо В.В., Миляев М.А., Устинов В.В. // *Физика металлов и металловедение*. — 2015. — Т. 116. — С. 1173—1184.  
Перевод: Structural Characterization of Cr/Gd/Cr and Cr/Gd/Fe/Cr Multilayer Nanostructures by Xray Reflectometry / Yu. A. Babanov, Yu. A. Salamatov, D. A. Ponomarev, L. I. Naumova, V. V. Proglyado, M. A. Milyaev, V. V. Ustinov // *Physics of Metals and Metallography*. — 2015. — Vol. 116. — P. 1116—1126.
- A4. Local atomic structure of solid solutions with overlapping shells by EXAFS: The regularization method / Yu.A. Babanov, D.A. Ponomarev, V.V. Ustinov, A.N. Baranov, Ya.V. Zubavichus // *J. Electron Spectroscopy & Related Phenomena*. — 2016. — Vol. 211. — P. 1—11.

- A5. Striking anomalies in the shape of Mössbauer spectra measured near “magnetic” Bragg reflection from [Fe/Cr] multilayer / Andreeva M.A., Chumakov A.I., Smirnov G.V., Babanov Y.A., Devyaterikov D.I., Goloborodsky B.Y., Ponomarev D.A., Romashev L.N., Ustinov V.V., Ruffer R. // *Hyperfine Interaction*. — 2016. — Vol. 237, № 1. — P. 25—33.
- A6. Local atomic structure of Fe/Cr multilayers: Depth-resolved method / Babanov Yu. A., Ponomarev D. A., Devyaterikov D. I., Salamatov Yu. A., Romashev L. N., Ustinov V. V., Vasin V. V., Ageev A. L. // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*. — 2017. — Vol. 440. — P. 203—206.

### Список цитируемой литературы

---

1. Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers / P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, H. Sowers // *Phys. Rev. Lett.* – 1986. – Vol.57, № 19. – P. 2442–2445.
2. Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices / M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, J. Chazelas // *Phys. Rev. Lett.* – 1988. – Vol.61, № 21. – P. 2472–2475.
3. Parkin S.S.P. Origin of enhanced magnetoresistance of magnetic multilayers: Spin-dependent scattering from magnetic interface states / S. S. P. Parkin // *Phys. Rev. Lett.* – 1993. – Vol.71, № 10. – P. 1641–1644.
4. Relation between interface roughness and giant magnetoresistance in MBE-grown polycrystalline Fe/Cr superlattices / P. Beliën, R. Schad, C. D. Potter, G. Verbanck, V. V. Moshchalkov, Y. Bruynseraede // *Phys. Rev. B* – 1994. – Vol.50, № 14. – P. 9957–9962.
5. Исследование интерфейсов многослойных структур Co/Cu методом ядерного магнитного резонанса / С. А. Чупраков, Н. С. Банникова, И. В. Блинов, И. В. Криницина, М. А. Миляев, В. В. Попов, В. В. Устинов // *Физика металлов и металловедение*. – 2015. – Т. 116, № 2. – С. 145–149.
6. Pressure-Induced Electronic Mixing and Enhancement of Ferromagnetic

- Ordering in Eu  $X$  ( $X = \text{Te, Se, S, O}$ ) Magnetic Semiconductors / N. M. Souza-Neto, D. Haskel, Y.-C. Tseng, G. Lapertot // *Phys. Rev. Lett.* – 2009. – Vol. 102, № 5. – P. 57206.
7. Kayser Y. Depth-Resolved X-ray Absorption Spectroscopy by Means of Grazing Emission X-ray Fluorescence / Y. Kayser, J. Sá, J. Szlachetko // *Anal. Chem.* – 2015. – Vol.87, № 21. – P. 10815–10821.
  8. Optimized end station and operating protocols for reflection extended x-ray absorption fine structure (ReflEXAFS) investigations of surface structure at the European Synchrotron Radiation Facility beamline BM29 / V. López-Flores, S. Ansell, D. T. Bowron, S. Díaz-Moreno, S. Ramos, A. Muñoz-Páez // *Rev. Sci. Instrum.* – 2007. – Vol. 78, № 1. – P. 13109.
  9. Heald S.M. Glancing-angle extended x-ray-absorption fine structure and reflectivity studies of interfacial regions / S. M. Heald, H. Chen, J. M. Tranquada // *Phys. Rev. B.* – 1988. – Vol.38, № 2. – P. 1016–1026.
  10. Zaiman J.M. Models of disorder / J. M. Zaiman – London: Cambridge university press, Cambridge, 1979.– 478 p.
  11. X-ray Interactions with matter [Электронный ресурс]. URL: [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/](http://henke.lbl.gov/optical_constants/).
  12. Tsurin V.A. Mössbauer study of spatial dispersion of magnetization at Fe/Cr superlattice interfaces / V. A. Tsurin, L. N. Romashev, V. V. Ustinov // *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* – 2010. – Vol. 74, № 3. – P. 352–357.
  13. Separation of the diffuse contribution to the specular x-ray scattering of multilayer films / V. P. Romanov, S. V Ulyanov, V. M. Uzdin, G. Nowak, K. Shokuie, H. Zabel // *Phys. Rev. B* – 2010. – Vol. 82, № 16. – P. 165416.

---

Отпечатано на Ризографе ИФМ УрО РАН тир. 100 зак. № 3  
Объем 1 печ. л. Формат 60x84 1/16  
620108, г. Екатеринбург, ул. С. Ковалевской, 18