

УДК 538.9

МЕТОД ОПОРНОГО СЛОЯ Gd ДЛЯ СЛУЧАЯ ДВУХ РЕФЛЕКТОМЕТРИЧЕСКИХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

©2024 г. Е. С. Никова^{а,*}, Ю. А. Саламатов^а, Е. А. Кравцов^а

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

*e-mail: e.nikova@mail.ru

Поступила в редакцию 04.07.2024 г.

После доработки 14.09.2024 г.

Принята к публикации 14.09.2024 г.

В статье представлен подход к определению модуля и фазы коэффициента отражения нейтронов с использованием опорного слоя гадолиния, позволяющий сократить количество необходимых экспериментов с трех до двух. Показано, что возможно восстановить амплитуду отражения по результатам только двух рефлектотметрических экспериментов. Однако, при проведении двух экспериментов расчет амплитуды отражения осложняется тем, что вместо одного будет два решения. Поэтому необходимо провести оценку полученных результатов, так как одно из этих решений не будет иметь физического смысла. Оценку результатов проводят на основании априорной информации об образце или с помощью дополнительного моделирования потенциала взаимодействия. Подробно описана теория предлагаемого подхода, проведена его апробация на модельных численных расчетах для пленки Al_2O_3/Ti . Представлены экспериментальные результаты для тестовых образцов Al_2O_3/Nb и $Si/Cr/Fe/Cr$. Проведено сравнение амплитуд отражения, полученных при обработке трех и двух экспериментов. Обнаружено, что в условиях недостаточной статистики проведение двух экспериментов предпочтительнее, так как решение, в данном случае, содержит меньше артефактов математической обработки.

Ключевые слова: поляризованные нейтроны, резонансная нейтронная рефлектотметрия, многослойные наноструктуры, опорный слой, амплитуда отражения, фазовая проблема.

DOI: 10.31857/S1028096024120118, **EDN:** QWMAOS

ВВЕДЕНИЕ

Рефлектотметрия поляризованных нейтронов (РПН) за последнее время хорошо зарекомендовала себя в качестве метода исследования многослойных металлических структур. Ее уникальные возможности весьма востребованы для определения величин и направлений векторов намагниченности отдельных слоев.

Интенсивно развиваются особые способы постановки экспериментов и методы обработки полученных результатов. Одним из таких способов является метод опорного слоя, предложенный двумя независимыми группами, для решения фазовой проблемы при исследовании немагнитных систем [1, 2]. Этот метод был мо-

дернизирован и успешно применен для исследования магнитных систем с использованием РПН [3, 4].

В качестве опорного слоя при данном подходе используется слой гадолиния. Вместо изменения намагниченности опорного слоя, как это делалось в работах [1–2, 5–8], эксперименты проводятся при различных длинах волн первичного пучка либо при различных углах падения нейтронов на образец (в случае времяпролетных рефлектотметров). Если гадолиний входит только в состав опорного слоя, то рассеяние образца не изменится, а опорный слой даст разные картины рассеяния нейтронов. Причина в том, что длина рассеяния тепловых нейтронов для гадолиния сильно зависит от энергии нейтронов,

поскольку два изотопа гадолиния (^{155}Gd и ^{157}Gd , входят в состав природного гадолиния) обладают резонансным взаимодействием с тепловыми нейтронами [9].

Алгоритм постановки эксперимента по методу опорного слоя с использованием Gd приведен на рис. 1 в [10]. В начале проводится три рефлектометрических измерения при трех различных длинах волн или углах падения первичного пучка. Далее рассчитывается амплитуда отражения R , которую удобно представить в виде $R = \text{Re}R + i\text{Im}R = |R|e^{i\varphi}$, где $|R| = \sqrt{(\text{Re}R)^2 + (\text{Im}R)^2}$ – модуль амплитуды отражения, $\varphi = \arctg \frac{\text{Im}R}{\text{Re}R}$ – фаза амплитуды отражения. Зная амплитуду отражения в широком диапазоне q , строят потенциал взаимодействия с помощью уравнения Гельфанда–Левитана–Марченко [11–13]. Если диапазон q невелик, то используют алгоритм Левенберга–Марквардта [14, 15] или иной алгоритм спуска. При этом обработку кривых для модуля и фазы коэффициента отражения проводят одновременно. Определяют характеристики многослойной структуры и, при необходимости, строят потенциал взаимодействия. В случае использования поляризованных нейтронов, обработка данных проводится для каналов рассеяния с сохранением спина “++” и “--”. Каналы рассеяния с переворотом спина “+-” и “-+” зависят только от магнитного рассеяния образцом и не изменяются опорным слоем, который магнитным рассеянием не обладает.

Однако, не всегда имеется возможность проведения трех экспериментов, особенно в случае монохроматических инструментов. Конфигурация большинства монохроматоров и фильтров на нейтронных рефлектометрах допускает использование только двух длин волн. Получение третьей длины волны требует существенной перенастройки прибора, что не всегда возможно. Кроме того, большой спрос на нейтронные эксперименты сокращает время, выделенное пользователям на эксперимент. И этого времени может не хватить на три полноценных измерения. Поэтому еще в ранних работах [16, 17] был предложен алгоритм сокращения количества проводимых экспериментов до двух. В настоящей статье представлена адаптация этого подхода к методу, использующего опорный слой гадолиния. Также приведены результаты апробации предлагаемой методики на модельных численных расчетах и на экспериментальных данных по нейтронной рефлектометрии.

МЕТОДИКА

Разделим исследуемую структуру на отдельные слои конечной толщины, в которых потенциал взаимодействия можно считать постоянным. Полная оптическая матрица M такой структуры будет представлять собой произведение оптических матриц для каждого слоя в образце:

$$M = M_{N+1}M_N \dots M_n \dots M_2M_1. \quad (1)$$

В методе опорного слоя предполагается, что образец состоит из двух условных частей: “неизвестной” исследуемой структуры и опорного слоя, содержащего Gd, с известными характеристиками [3]. Реально эти условные “слои” могут состоять из любого количества физических слоев различных материалов. Тогда в произведении (1) будет две матрицы: $M = GH$. Матрица G описывает исследуемую структуру, а матрица H – опорный слой. Амплитуды прошедшей t и отраженной r волн для такого образца определяются следующим соотношением:

$$\begin{pmatrix} t \\ 0 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} 1 \\ r \end{pmatrix} = G \cdot H \begin{pmatrix} 1 \\ r \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ r \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Величина полного коэффициента отражения r :

$$r = -\frac{m_{21}}{m_{22}} = -\frac{h_{11}r_g - h_{21}}{h_{12}r_g - h_{22}}. \quad (3)$$

В этом случае амплитуда отражения от неизвестной части образца r_g представляет собой точку в комплексной плоскости, лежащую на окружности радиуса ρ с центром в точке γ [1]:

$$\gamma = \frac{Rh_{22}h_{12}^* - h_{21}h_{11}^*}{Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*}, \quad (4)$$

$$\rho = \sqrt{R} \frac{|h_{11}h_{22} - h_{12}h_{21}|}{|Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*|}, \quad (5)$$

здесь h_j – элементы матрицы H ; $R = rr^*$ – коэффициент отражения для полной системы.

Если провести три эксперимента при трех различных длинах волн первичного пучка (или при трех различных углах падения на времяпролетном рефлектометре), то амплитуда отражения r_g нейтронов от неизвестной части образца может быть однозначно определена как точка пересечения трех соответствующих окружностей:

$$r_g = \frac{\alpha_1(\gamma_2 - \gamma_3) + \alpha_2(\gamma_3 - \gamma_1) + \alpha_3(\gamma_1 - \gamma_2)}{\gamma_1^*(\gamma_2 - \gamma_3) + \gamma_2^*(\gamma_3 - \gamma_1) + \gamma_3^*(\gamma_1 - \gamma_2)}. \quad (6)$$

Коэффициенты α_i связаны с центром и радиусом ρ соотношением $\alpha_i = \gamma_i \gamma_i^* - \rho_i^2$.

При проведении двух экспериментов расчет амплитуды отражения осложняется тем, что вместо одного решения будет два, так как в общем случае, две окружности пересекаются в двух точках (рис. 1а). Возможны частные случаи: когда окружности пересекаются лишь в одной точке (рис. 1г) и когда окружности не пересекаются, так как находятся далеко друг от друга либо одна в другой (рис. 1б, 1в). Случаи, приведенные на рисунке 1б и 1в, указывают на ошибку при проведении эксперимента или обработки данных. Для

реальных физических систем возможны только случаи 1а и 1г, потому что у реальной системы обязательно есть ненулевая амплитуда отражения и окружности не могут не пересекаться.

Известно, что две данные точки пересечения можно найти, решив систему уравнений:

$$\begin{cases} |r_g - \gamma_1|^2 = \rho_1^2 \\ |r_g - \gamma_2|^2 = \rho_2^2 \end{cases}, \quad (7)$$

где r_g — полный коэффициент, $\gamma_{1,2}$ — центры окружностей, $\rho_{1,2}$ — радиусы окружностей.

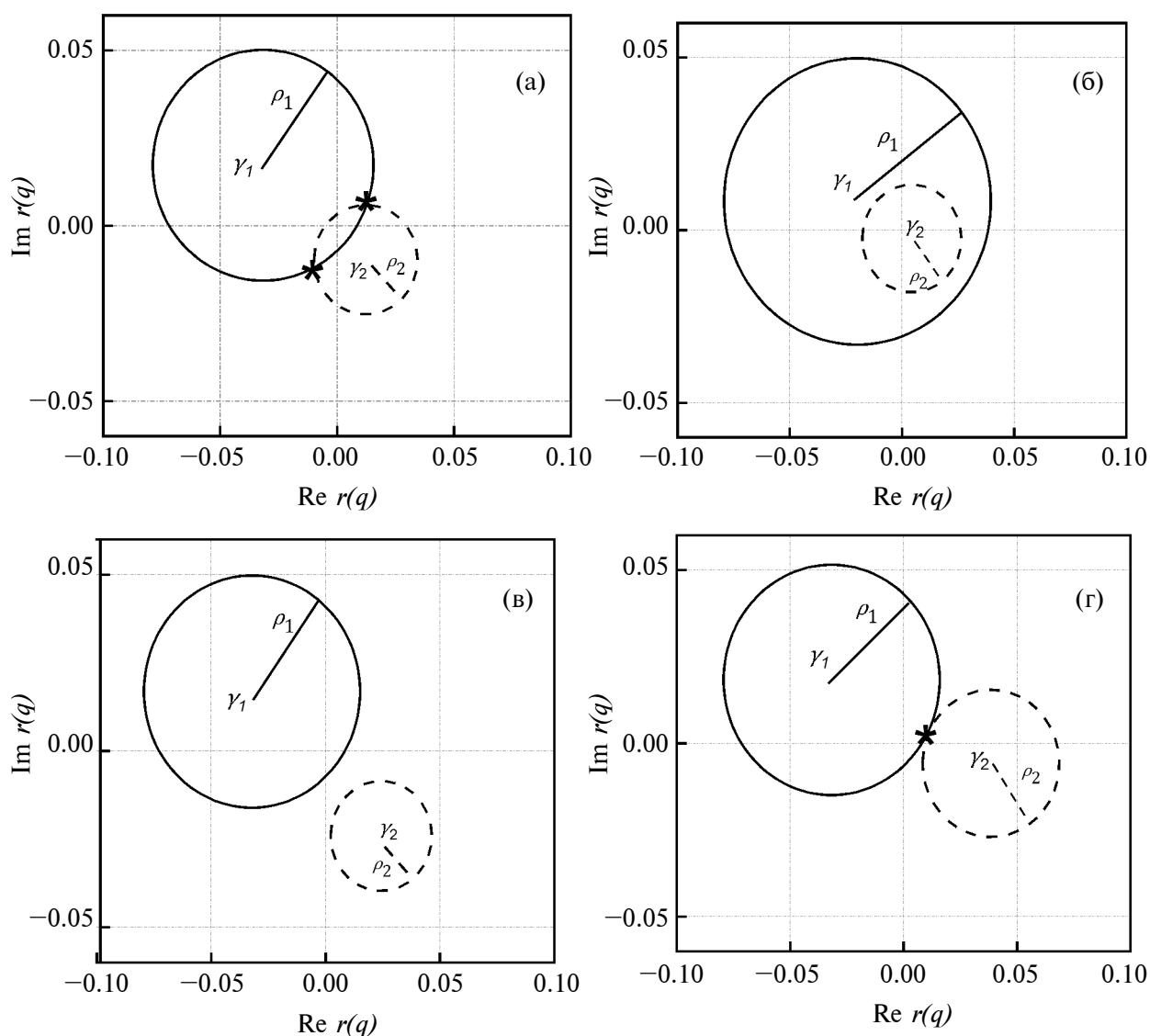


Рис. 1. Возможные варианты представления амплитуд отражения нейтронов по двум экспериментам, как двух окружностей в комплексной плоскости.

Перепишав систему уравнений (7) в виде:

$$\begin{cases} (r_g - \gamma_1)(r_g^* - \gamma_1^*) = \rho_1^2 \\ (r_g - \gamma_2)(r_g^* - \gamma_2^*) = \rho_2^2 \end{cases}, \quad (8)$$

заменив $r_g^* = \frac{\rho_1^2}{r_g - \gamma_1} + \gamma_1^*$ и выполнив математические преобразования, получаем квадратное уравнение относительно неизвестной r_g :

$$Ar_g^2 + Br_g + C = 0, \quad (9)$$

где $A = \gamma_1^* - \gamma_2^*$; $B = -A(\gamma_1 + \gamma_2) + \rho_1^2 - \rho_2^2$;
 $C = A\gamma_1\gamma_2 + \gamma_1\rho_2^2 - \gamma_2\rho_1^2$.

Решение такого уравнения в общем случае даст нам две комплексных амплитуды отражения:

$$r_{g1,2} = \frac{-B \pm \sqrt{B^2 - 4AC}}{2A}. \quad (10)$$

Одно из этих решений не имеет физического смысла и его нужно исключить. Однако, из-за того, что расчет амплитуды происходит независимо в каждой отдельной точке по q , решения на полном диапазоне в общем случае окажутся перемешанными. Упорядочить решения можно, анализируя знак дискриминанта уравнения (9). В работе [17] показано, что при смене знака зависимости дискриминанта от q происходит переход с одного на другое решение. После упорядочивания решений, определить то решение, которое имеет физический смысл можно при помощи моделирования, зная априорную информацию об образце — состав, очередность слоев, толщину и т.д. В сложных случаях можно провести обработку обоих решений, восстановить потенциалы взаимодействия и определить, какой из них соответствует исследуемой системе и уже известной информации об образце.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

Для проверки применимости метода предварительно были проведены модельные численные расчеты для простой структуры $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(500 \text{ \AA})/\text{V}(20 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})\text{V}(50 \text{ \AA})$, где опорным слоем является комбинация $\text{Gd}(50 \text{ \AA})\text{V}(50 \text{ \AA})$. Для этого образца были смоделированы две рефлектометрические кривые для двух углов падения 3.3 и 10.1 мрад (рис. 2). Углы были

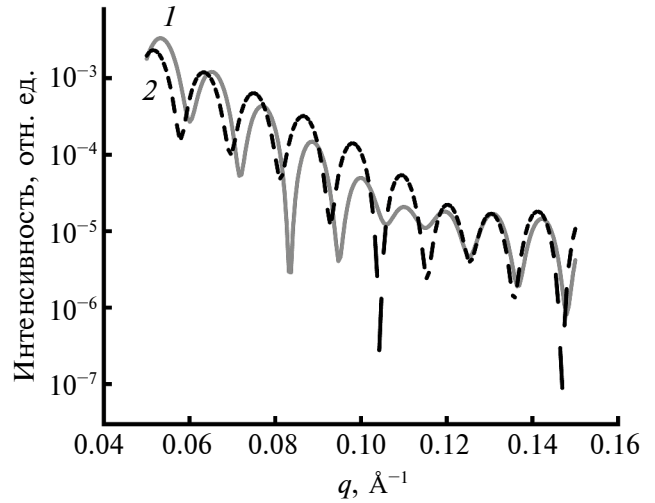


Рис. 2. Модельные рефлектометрические кривые для структуры $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(500 \text{ \AA})/\text{V}(20 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})\text{V}(50 \text{ \AA})$ для двух углов падения 3.3 мрад (1) и 10.1 мрад (2).

подобраны таким образом, чтобы рефлектометрические кривые были максимально различны.

Далее были определены две амплитуды отражения, представленные на рис. 3 в виде модуля и фазы. Также на этом рисунке приведены соответствующие кривые для исследуемой части модельной системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(500 \text{ \AA})/\text{V}(20 \text{ \AA})$. Видно, что одно из решений хорошо совпадает с модельными данными, тогда как второе кардинально отличается от него.

Далее были обработаны экспериментальные данные, полученные на металлических образцах (на образцах металлических многослойных пленок) $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})/\text{Gd}(100 \text{ \AA})/\text{V}(150 \text{ \AA})$ и $\text{Si}/\text{Cr}(287 \text{ \AA})/\text{Fe}(299 \text{ \AA})/\text{Cr}(186 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{V}(50 \text{ \AA})$. Образцы были синтезированы методом высоковакуумного магнетронного распыления на установке ULVAC (ИФМ УрО РАН, Екатеринбург). Спектры отражения нейтронов были измерены на времяпролетном рефлектометре REFLEX импульсного реактора ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна) при комнатной температуре. Для первой пленки $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})/\text{Gd}(100 \text{ \AA})/\text{V}(150 \text{ \AA})$ две рефлектометрические кривые для двух углов падения 8.8 и 5.0 мрад приведены на рис. 4.

Используя алгоритм обработки для двух экспериментов, по известным характеристикам рассеяния нейтронов [18] для опорного слоя Gd/V были рассчитаны модуль и фаза амплитуды отражения для исследуемой части образца (рис. 5). На графиках приведены оба полученных решения, а также

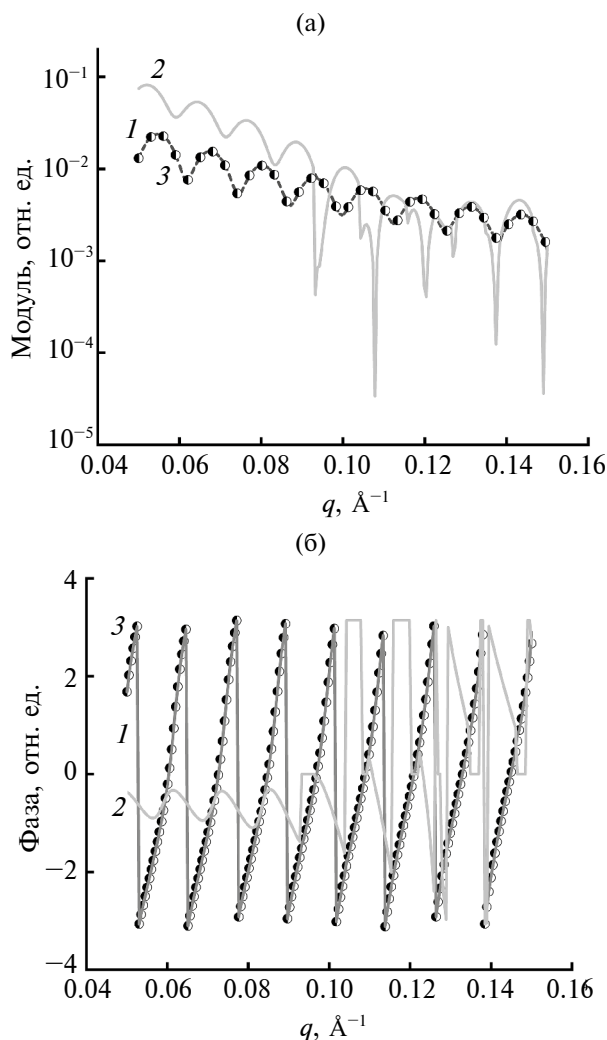


Рис. 3. Модули (а) и фазы (б) амплитуды отражения системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(500 \text{ \AA})/\text{V}(20 \text{ \AA})$ в сравнении с модельными данными: первое решение (1), второе решение (2), модельные данные (3).

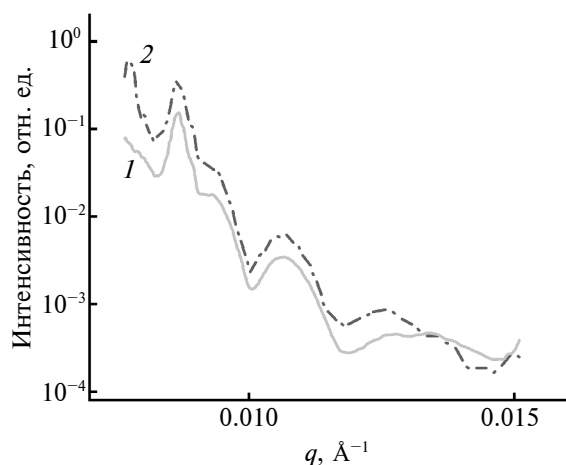


Рис. 4. Экспериментальные рефлектометрические кривые для системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})/\text{Gd}(100 \text{ \AA})/\text{V}(150 \text{ \AA})$ при углах падения пучка нейтронов 5.0 мрад (1); 8.8 мрад (2).

модуль и фаза, рассчитанные по данным трех рефлектометрических экспериментов [10].

На рис. 5 видно, что одно из полученных решений имеет такие же структурные особенности, что и решение, полученное для трех экспериментов.

Для пленки $\text{Si}/\text{Cr}(287 \text{ \AA})/\text{Fe}(299 \text{ \AA})/\text{Cr}(186 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{V}(50 \text{ \AA})$ две рефлектометрические кривые для углов падения 3.1 и 9.0 мрад приведены на рис. 6.

Для данной пленки аналогично были рассчитаны модуль и фаза амплитуды отражения для исследуемой части образца (рис. 7).

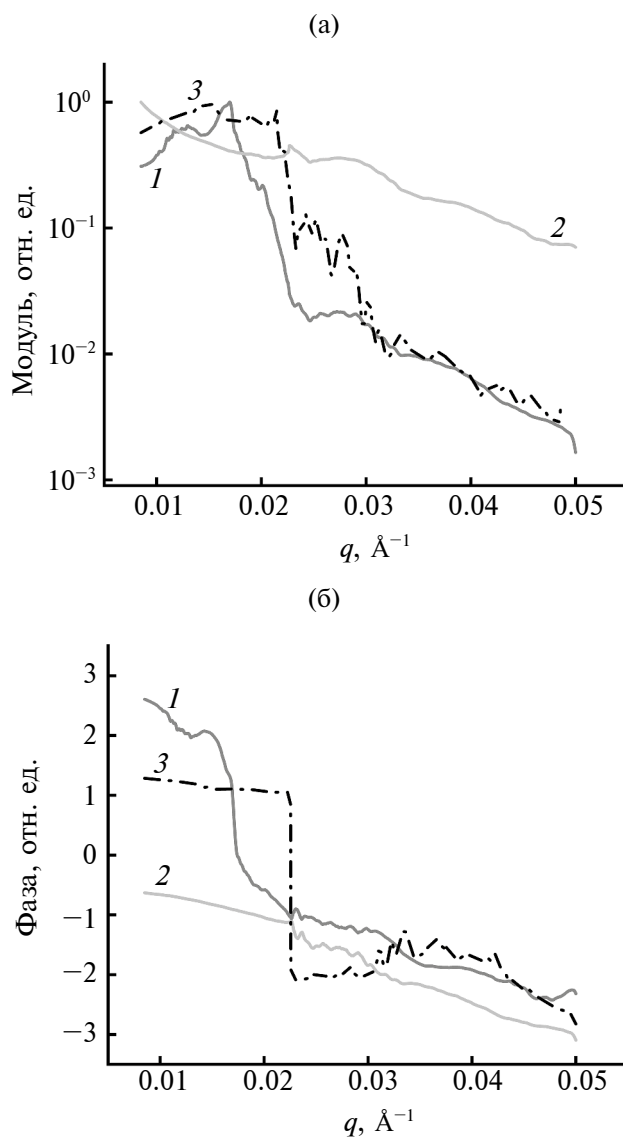


Рис. 5. Модули (а) и фазы (б) амплитуды отражения системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})$ в сравнении с данными по трем рефлектометрическим экспериментам: первое решение (1), второе решение (2), данные по трем экспериментам (3).

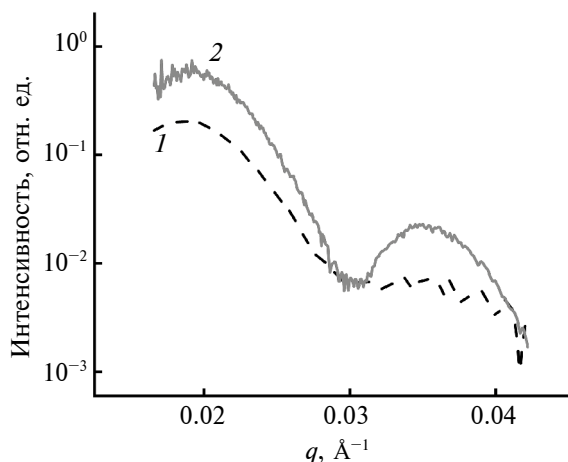


Рис. 6. Экспериментальные рефлектометрические кривые для системы Si//Cr(287 Å)/Fe(299 Å)/Cr(186 Å)/Gd(50 Å)/V(50 Å) при углах падения пучка нейтронов 3.1 мрад (1); 9.0 мрад (2).

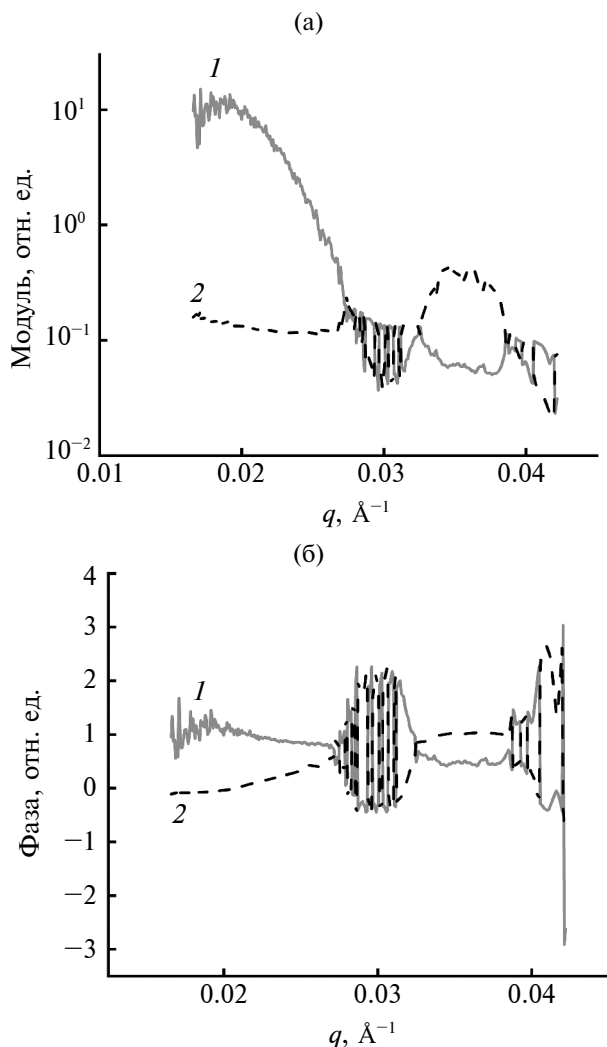


Рис. 7. Модуль (а) и фазы (б) амплитуды отражения системы Si//Cr(287 Å)/Fe(299 Å)/Cr(186 Å): первое решение (1), второе решение (2). Для примера представлены перемешанные решения.

Аналогично первому случаю, решения были разделены посредством анализа дискриминанта уравнения (9). На рис. 8 сравниваются результаты, полученные в работе [19] при обработке трёх рефлектометрических кривых и решение, полученное представленным в данной работе методом обработки двух рефлектометрических кривых.

Модули и фазы, рассчитанные различными методами, демонстрируют достаточно хорошее сходство. Фаза, будучи более чувствительной характеристикой структурных параметров, имеет более заметные различия.

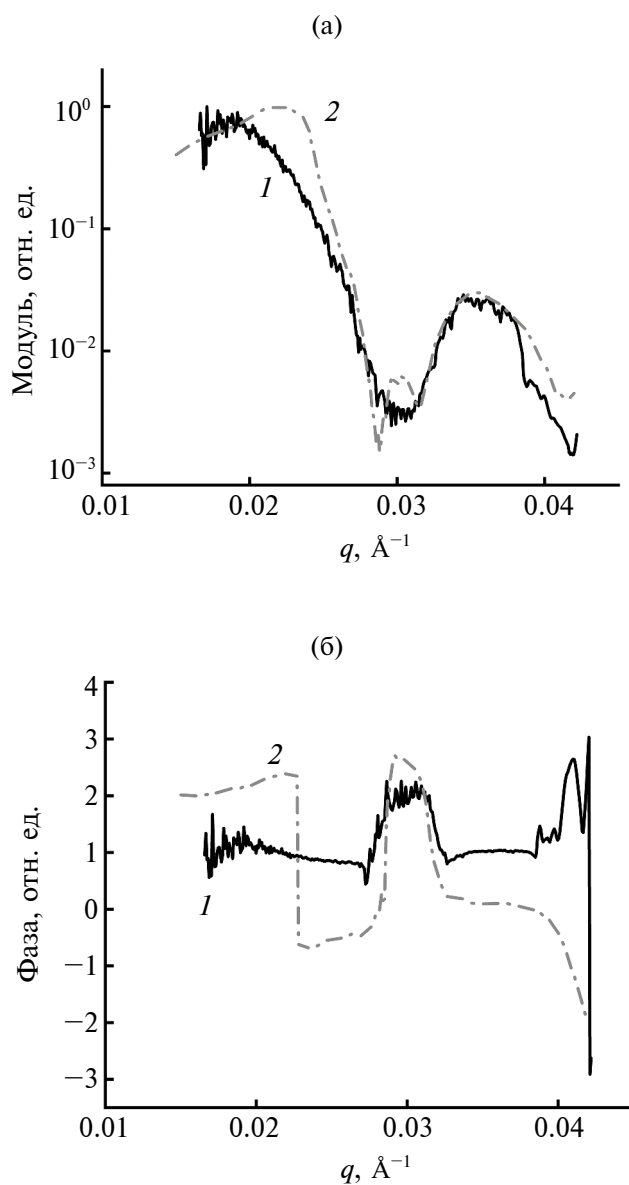


Рис. 8. Модуль (а) и фазы (б) амплитуды отражения системы Si//Cr(287 Å)/Fe(299 Å)/Cr(186 Å): данные по двум экспериментам (1), данные по трем экспериментам (2).

Интересно отметить, что решения, полученные по данным двух экспериментов, содержат меньше артефактов математической обработки (острые выбросы, резкий перепад на фазе), чем результаты обработки трех рефлектометрических кривых. По-видимому, это связано с отсутствием дополнительного набора погрешностей с третьей кривой. Таким образом, подход с двумя экспериментами может оказаться предпочтительным для измерений с недостаточной статистикой, проводимых в условиях низких потоков нейтронов или малой экспозиции. Для экспериментов с высокой статистикой алгоритм с тремя измерениями должен давать, все-таки, более точный результат.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе представлен алгоритм реализации метода опорного слоя Gd при исследовании слоистых наноструктур для случая двух экспериментов по нейтронной рефлектометрии. Предлагаемый подход апробирован на модельных численных расчётах на примере однослойной системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}(500 \text{ \AA})/\text{V}(20 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{V}(50 \text{ \AA})$, атажена экспериментальных данных для образцов $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})/\text{Gd}(100 \text{ \AA})/\text{V}(150 \text{ \AA})$ и $\text{Si}/\text{Cr}(287 \text{ \AA})/\text{Fe}(299 \text{ \AA})/\text{Cr}(186 \text{ \AA})/\text{Gd}(50 \text{ \AA})/\text{V}(50 \text{ \AA})$. Сравнительный анализ экспериментальных результатов определения амплитуды отражения методом опорного слоя Gd, полученных по двум и трем рефлектометрическим кривым показывает хорошее качественное согласие для одного из решений. Второе же решение не имеет физического смысла.

Таким образом, в сочетании с результатами других экспериментов метод может быть успешно применен в анализе многослойных металлических наногетероструктур методом нейтронной рефлектометрии (в том числе с использованием поляризованных нейтронов).

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Спин” 122021000036-3) и при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-15-2022-830 от 27 мая 2022 г. (продолжение Соглашения № 075-15-2021-1358 от 12 октября 2021 г).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *de Haan V.O., van Well A.A., Sacks P.E., Adenwalla S., Felcher G.P.* // Phys. Rev. B. 1996. V. 221. P. 524.
2. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. P. 10827.
3. *Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А., Макарова М.В., Проглядо В.В., Устинов В.В., Боднарчук В.И., Нагорный А.В.* // Физика металлов и металловедение. 2019. V. 120. P. 913.
4. *Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А., Проглядо В.В., Жакетов В.Д., Миляев М.А.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2022. № 11. P. 15.
<https://doi.org/10.31857/S1028096022110176>
5. *de Haan V.O., van Well A.A., Adenwalla S., Felcher G.P.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. № 15. P. 10831
6. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 15416.
7. *Majkrzak C.F., Berk N.F., Silin V.* // Phys. Rev. B. 2000. V. 283. P. 248.
8. *Leeb H., Grötz H., Kasper J., Lipperheide R.* // Phys. Rev. B. 2001. V. 63. P. 045414
9. *Lynn J.E., Seeger P.A.* // Atomic Data and Nuclear Data Tables. 1990. V. 44, Iss. 2. P. 191
10. *Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А.* // Поверхность. Рентген., синхротр. и нейтрон. исслед. 2023. № 7. P. 102. EDN: TEZEMM
<https://doi.org/10.31857/S1028096023070117>
11. *Agranovich Z. S., Marchenkov V. S.* The inverse Problem of Scattering Theory. Gordon and Breach. New York. 1963. 290 p.
12. *Chadan K., Sabatier P. C.* Inverse Problems in Quantum Scattering Theory. Text and Monographs in Physics. Springer. Berlin. 2nd ed., 1989. 250 p.
13. *Kay I.* // Comm. Pure and Appl. Math. 1960. V. 13. P. 371.
14. *Levenberg K. A.* // Quart. Appl. Math. 1944. V. 2. P. 164.
15. *Marquardt D.* // SIAM Journal on Applied Mathematics. 1963. V. 11 (2). P. 431.
16. *Majkrzak C.F., Berk N.F., Perez-Salas U.A.* // Langmuir. 2003. V. 19, P. 7796.
17. *Paul E. Sacks and Tuncay Aktosun* // SIAM J. Appl. Math. 2000. V. 60, № 4, P. 1340.
18. *Nikova E.S., Salamatov Yu.A., Kravtsov E.A., Bodnarchuk V.I., Ustinov V.V.* // Physica B. 2019. V. 552. P. 58.
19. *Nikova E.S., Salamatov Yu. A., Kravtsov E. A., Ustinov V. V., Bodnarchuk V. I., Nagorny A. V.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2020. V. 14. P. 164.

Gd REFERENCE LAYER METHOD FOR THE CASE OF TWO REFLECTOMETRY EXPERIMENTS

E. S. Nikova^{1, *}, Yu. A. Salamatov¹, E. A. Kravtsov¹

¹*Miheev Institute of Metal Physics UB RAS, Ekaterinburg, 620108 Russia*

**e-mail: e.nikova@mail.ru*

The article presents an approach to determining the modulus and phase of the neutron reflectance using a gadolinium reference layer, which allows reducing the number of necessary experiments from three to two. It is shown that it is possible to reconstruct the reflection amplitude based on the results of only two reflectometric experiments. However, when conducting two experiments, calculating the reflection amplitude is complicated by the fact that there will be two solutions instead of one. Therefore, it is necessary to evaluate the obtained results, since one of these solutions will have no physical meaning. The results are evaluated based on a priori information about the sample or with the help of additional modeling of the interaction potential. The theory of the proposed approach is described in detail, and it is tested on model numerical calculations for the $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}$ film. Experimental results for the test samples $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ and $\text{Si}/\text{Cr}/\text{Fe}/\text{Cr}$ are presented. A comparison of the moduli and phases of the reflectivity obtained by processing three and two experiments is carried out. It was found that under conditions of poor statistics, conducting two experiments is preferable, since the solution, in this case, contains fewer artifacts of mathematical processing.

Keywords: polarized neutrons, resonant neutron reflectometry, multilayer nanostructures, reference layer, reflection amplitude, phase problem.