

УДК 538.9

РЕЗОНАНСНАЯ НЕЙТРОННАЯ РЕФЛЕКТОМЕТРИЯ НА КОМПАКТНОМ ИСТОЧНИКЕ НЕЙТРОНОВ

© 2023 г. Е. С. Никова^{а, *}, Ю. А. Саламатов^а, Е. А. Кравцов^{а, б}

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

^бУральский Федеральный университет, Екатеринбург, 620002 Россия

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

Поступила в редакцию 25.12.2022 г.

После доработки 21.02.2023 г.

Принята к публикации 21.02.2023 г.

В статье представлен подход для решения фазовой проблемы в нейтронной рефлектометрии (в том числе в рефлектометрии поляризованных нейтронов), основанный на эффекте резонансного взаимодействия ядер изотопов гадолиния ^{155}Gd и ^{157}Gd с тепловыми нейтронами. Этот эффект используют для реализации метода опорного слоя, который позволяет по результатам трех экспериментов восстановить комплексный коэффициент отражения исследуемого образца. Знание комплексного коэффициента отражения дает возможность модельно-независимого анализа потенциала взаимодействия, как ядерного, так и магнитного. Основное применение данного подхода — изучение строения слоев и межслойных границ, а также определение магнитного состояния многослойных металлических наногетероструктур. Приведена теоретическая основа метода, заключающаяся в нанесении на исследуемый образец слоя гадолиния с известными параметрами, один из которых можно контролируемо варьировать. Подробно описана схема проведения эксперимента на примере модельных численных расчетов. Приведен наглядный экспериментальный результат для простого однослойного образца ниобия, для которого были рассчитаны модуль и фаза коэффициента отражения. Предложены перспективные направления усовершенствования метода и возможные направления дальнейшей работы. Сформулированы пожелания к характеристикам компактного источника нейтронов, необходимым для оптимальной реализации предлагаемого метода.

Ключевые слова: поляризованные нейтроны, резонансная нейтронная рефлектометрия, многослойные наноструктуры, опорный слой, комплексный коэффициент отражения, компактный источник нейтронов, фазовая проблема.

DOI: 10.31857/S1028096023070117, EDN: TEZEMM

ВВЕДЕНИЕ

Уникальные возможности рефлектометрии поляризованных нейтронов весьма востребованы при изучении магнитных свойств и характеристик слоев многослойных металлических наногетероструктур, толщина отдельных слоев в которых составляет от нескольких единиц до нескольких десятков нм. Параллельно развивают и методы исследования как в части постановки эксперимента, так и в части математической обработки полученных данных. Большое внимание уделяют и решению фазовой проблемы, которая препятствует однозначной интерпретации результатов вследствие потери информации о фазе комплексного коэффициента отражения. Например, было предложено использовать логарифмическое дисперсионное соотношение [1], чтобы рассчитать фазу, зная только модуль коэффициента отражения. Хотя этот метод дает неплохие результаты для простых систем (например, однослойных),

с ростом числа слоев и межслойных границ возникает задача достаточно точного определения положения в комплексной плоскости нулей коэффициента отражения. Эта задача сложная и требует много вычислительного времени. Пренебрежение влиянием нулей приводит к низкой точности определения фазы описанным методом.

Другим возможным подходом является использование особых постановок эксперимента или проведение цикла экспериментов с различными условиями. Известным экспериментальным способом определения фазы коэффициента отражения является метод опорного слоя.

Впервые метод опорного слоя был предложен двумя независимыми группами для решения фазовой проблемы в исследованиях методом рефлектометрии многослойных немагнитных наногетероструктур [2, 3]. Метод заключается в нанесении на исследуемую систему слоя с известными характеристиками, которые можно контро-

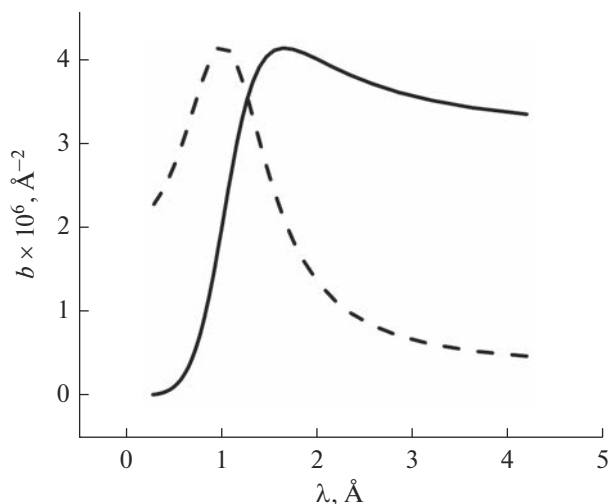


Рис. 1. Действительная (сплошная линия) и мнимая (штриховая линия) части плотности когерентной длины рассеяния нейтронов в Gd.

лируется изменять. Этот вспомогательный слой и называется опорным. В качестве него использовали ферромагнитный металл, его намагниченность изменяли внешним магнитным полем. Было проведено три эксперимента с различными значениями намагниченности опорного слоя, исследуемая система при изменении магнитного поля своих характеристик не меняла. Тогда, по результатам этих трех экспериментов, можно рассчитать комплексный коэффициент отражения неизвестной части образца, не входящей в состав опорного слоя. Был также предложен ряд вариаций описанного подхода [4–7].

Недостатком метода опорного слоя в указанном варианте является необходимость использования магнитного поля. Это исключает возможность его применения для исследования магнитных систем в рефлектометрии поляризованных нейтронов, поскольку при изменении магнитного поля потенциал неизвестной части образца также будет меняться. Но это ограничение можно снять, если использовать опорный слой из вещества, ядра атомов которого обладают резонансным взаимодействием с тепловыми нейтронами.

Резонансное взаимодействие возникает, когда энергия падающих нейтронов близка к расстояниям между энергетическими уровнями ядра. В этом случае резко возрастает вероятность поглощения нейтрона ядром с переходом на более высокий уровень. Затем происходит релаксация ядра посредством вторичного излучения (например, гамма-квантов).

Эти процессы приводят к заметной величине мнимой части плотности длины рассеяния, т.е. к значимому поглощению нейтронов. Кроме того, плотность длины рассеяния становится функ-

цией энергии нейтронов (рис. 1). И тот, и другой эффект нехарактерны для большинства веществ. Примером вещества с резонансным взаимодействием с тепловыми нейтронами является гадолиний, изотопы которого (^{155}Gd и ^{157}Gd) имеют сильную зависимость длины рассеяния от длины волны нейтронов в диапазоне $0.5\text{--}10 \text{\AA}$ [8]. Эти изотопы входят в состав природного гадолиния, поэтому его можно использовать в качестве опорного слоя и проводить эксперименты при различных длинах волн (различных углах падения на времяпролетных рефлектометрах).

В настоящей работе описан подход к решению фазовой проблемы в нейтронной рефлектометрии, основанный на особенностях резонансного взаимодействия нейтронов с изотопами гадолиния. Представлены некоторые модельные численные расчеты и экспериментальные результаты. Обсуждена возможность реализации данного метода на компактном источнике нейтронов DARIA [10] и выведен ряд требований к техническим характеристикам как самого источника, так и инструмента-рефлектометра, установленного на нем.

МЕТОДИКА

Зеркальное отражение и прохождение нейтронов в планарных системах описывают одномерным уравнением Шредингера:

$$\frac{d^2}{dx^2} \psi(x) + [k^2 - V(x)] \psi(x) = 0, \quad (1)$$

Волновая функция представлена в виде суперпозиции падающей и отраженной волн:

$$\psi(x) = A(x) \exp(ikx) + B(x) \exp(-ikx). \quad (2)$$

Для численных расчетов строят дискретную сетку по x с необходимым шагом, на ней задается потенциал $V(x)$. Амплитуду волны, отраженной от всей гетероструктуры, можно определить, как $B = B(x_N)$, где x_N соответствует поверхности пленки. Аналогично, амплитуда прошедшей через всю структуру волны $A = A(x_0)$, где x_0 соответствует границе пленки и подложки. Анализируя уравнение Шредингера (1), можно связать эти амплитуды через оптическую матрицу [11]:

$$\begin{pmatrix} A \\ 0 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} 1 \\ B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_{11} & m_{12} \\ m_{21} & m_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ B \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где полная оптическая матрица M представляет собой произведение оптических матриц для каждого слоя в образце

$$M = M_0 M_1 \dots M_n \dots M_{N-1} M_N. \quad (4)$$

Так как рефлектометрия имеет дело со сколькими углами падения, следует учитывать лишь

нормальную к поверхности пленки составляющую волнового вектора. Тогда в уравнении (1) величина $k = \frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta$, где θ – угол падения, отложенный от поверхности пленки, λ – длина волны нейтронов. Вводя обозначение $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda}$, получим $k = k_0 \sin \theta$. В рефлектометрии также часто используют величину $q = 2k$, которая имеет смысл нормальной компоненты изменения волнового вектора при отражении. В дальнейшем будем использовать именно такую нотацию.

Оптическая матрица для i -го слоя толщиной d_i имеет вид:

$$M_i = \frac{1 + \frac{\kappa_i}{\kappa_{i+1}}}{2} \begin{pmatrix} \exp(i\kappa_i d_i/2) & -r_i \exp(-i\kappa_i d_i/2) \\ -r_i \exp(i\kappa_i d_i/2) & \exp(-i\kappa_i d_i/2) \end{pmatrix}, \quad (5)$$

где введен коэффициент Френеля для границы между i -ым и $(i+1)$ -ым слоями

$$r_i = \frac{\kappa_i - \kappa_{i+1}}{\kappa_i + \kappa_{i+1}}, \quad \kappa_i = \sqrt{k^2 - V_i}. \quad (6)$$

Величины амплитуд отраженной и прошедшей волн всей структуры равны:

$$B = -\frac{m_{21}}{m_{22}}, \quad A = m_{11} - \frac{m_{12}m_{21}}{m_{22}}. \quad (7)$$

Пусть образец состоит из двух частей, отражающие свойства которых можно описать матрицами G и H : на поверхности слоя G с неизвестной структурой расположен известный опорный слой H . Данную систему можно рассматривать, как двухслойную, и ее полная оптическая матрица $M = GH$. Амплитуды прошедшей A и отраженной B волн для такого образца определяются соотношением

$$\begin{pmatrix} A \\ 0 \end{pmatrix} = M \begin{pmatrix} 1 \\ B \end{pmatrix} = GH \begin{pmatrix} 1 \\ B \end{pmatrix}. \quad (8)$$

В этом случае амплитуда отражения от неизвестной части образца B_g представляет собой точку в комплексной плоскости, лежащую на окружности радиуса ρ с центром в точке γ [12]:

$$\gamma = \frac{Rh_{22}h_{12}^* - h_{21}h_{11}^*}{Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*}, \quad (9)$$

$$\rho = \sqrt{R} \frac{|h_{11}h_{22} - h_{12}h_{21}|}{Rh_{12}h_{12}^* - h_{11}h_{11}^*}, \quad (10)$$

здесь h_{ij} – элементы матрицы H , а $R = BB^*$ – коэффициент отражения для полной системы.

Длина рассеяния нейтронов природным гадолинием существенно зависит от энергии падаю-

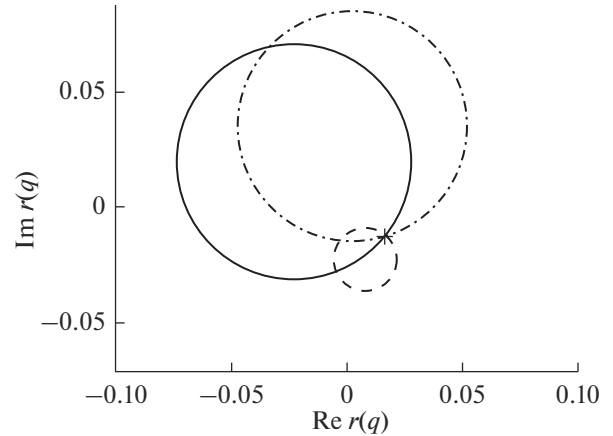


Рис. 2. Определение коэффициента отражения [12]. Точкой отмечено решение задачи нахождения коэффициента отражения частиц от образца.

щих нейтронов и может быть рассчитана теоретически по формуле Брейта–Вигнера [8]. Также она может быть определена экспериментально из анализа поглощения нейтронов в гадолиниевой пленке [9]. Если известный опорный слой содержит гадолиний, а неизвестная часть образца его не содержит, то можно провести три эксперимента при трех различных длинах волн первичного пучка (или при трех различных углах падения на времяпролетном рефлектометре). Тогда комплексная амплитуда отражения нейтронов от неизвестной части образца B_g может быть однозначно определена как точка пересечения трех соответствующих окружностей (рис. 2):

$$B_g = \frac{\alpha_1(\gamma_2 - \gamma_3) + \alpha_2(\gamma_3 - \gamma_1) + \alpha_3(\gamma_1 - \gamma_2)}{\gamma_1^*(\gamma_2 - \gamma_3) + \gamma_2^*(\gamma_3 - \gamma_1) + \gamma_3^*(\gamma_1 - \gamma_2)}. \quad (11)$$

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

Можно провести два эксперимента, а не три [13]. Тогда будут получены два решения (две окружности пересекаются, в общем случае, в двух точках), одно из которых не имеет физического смысла. Выбор правильного решения в этом случае должен быть осуществлен на основании априорной информации об образце.

Зная комплексную амплитуду отражения, можно применять модельно-независимые методы определения потенциала взаимодействия, например, для этой цели можно использовать уравнение Гельфанда–Левитана–Марченко [14]. Для решения этого уравнения необходимо знать амплитуду отражения в широком диапазоне q , что, к сожалению, редко бывает на практике. Поэтому для определения потенциала (или набора характеристик слоистой системы) можно использовать алгоритм Левенберга–Марквардта или иной ал-

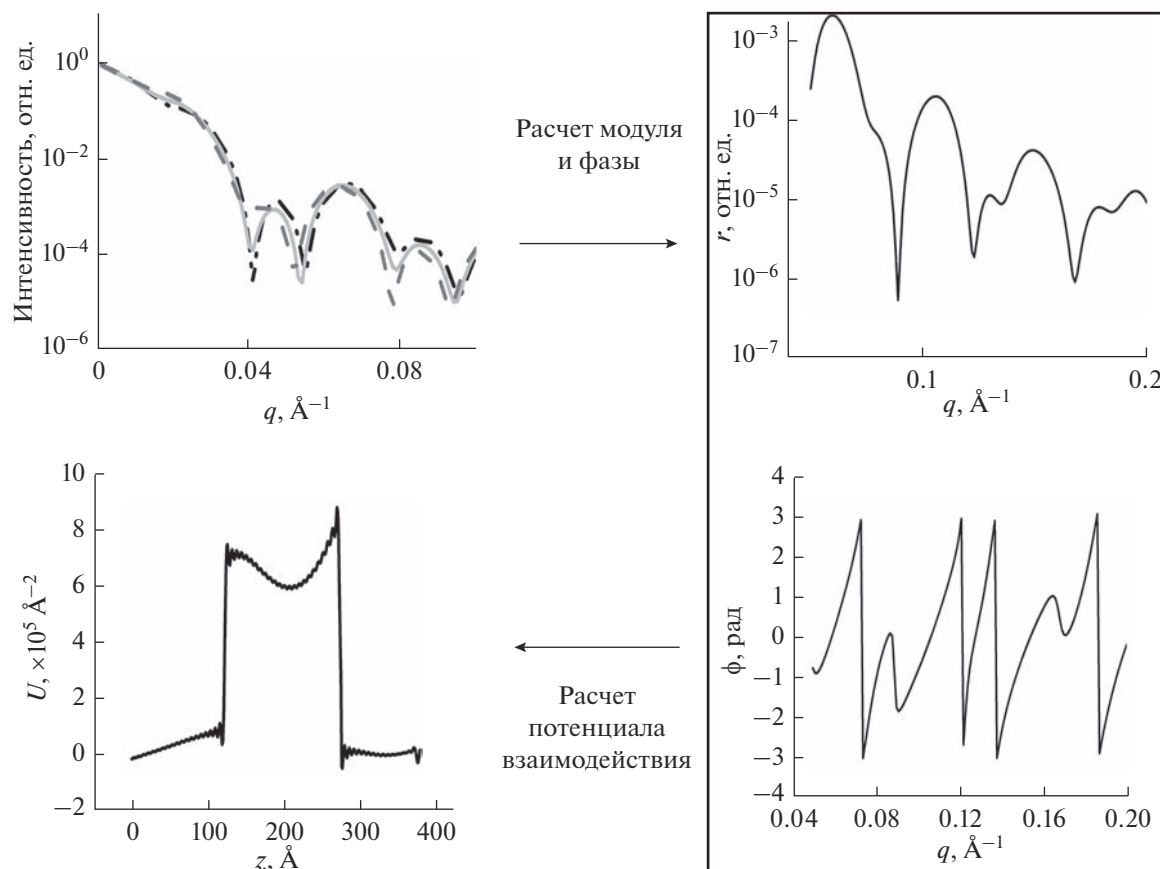


Рис. 3. Схема проведения эксперимента по методу опорного слоя. Кривые на схеме приведены для модельных численных расчетов на трехслойной системе Cr(125 Å)/Fe(150 Å)/Cr(100 Å). Магнитный потенциал взаимодействия для Fe не учитывали.

горитм спуска, обрабатывая одновременно кривые модуля и фазы. В случае рефлектометрии поляризованных нейтронов проводится одновременная обработка модулей и фаз для всех измеренных каналов рассеяния.

Общая схема проведения эксперимента по методу опорного слоя с использованием Gd проиллюстрирована на рис. 3.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

На установке ULVAC (ИФМ УрО РАН, Екатеринбург) методом высоковакуумного магнетронного распыления был синтезирован образец $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ Å})/\text{V}(15 \text{ Å})/\text{Gd}(100 \text{ Å})/\text{V}(150 \text{ Å})$. Слой Gd(100 Å)/V(150 Å) выступает в качестве опорного слоя и расположен сверху образца, чтобы пучок нейтронов проходил сначала его, а потом исследуемую часть. Слой ванадия использован для защиты слоя гадолиния от окисления. Спектры отражения нейтронов были измерены на времяпролетном рефлектометре REFLEX импульсного реактора ИБР-2 (ОИЯИ, Дубна) при комнатной температуре. Рабочий диапазон длин

волн нейтронов составлял от 1 до 12 Å. Измерения проводили при трех различных углах падения пучка. Результаты представлены на рис. 4. Видны различия в зависимостях интенсивности отражения от q при углах падения пучка 8.8, 7.3, и 5.0 мрад, обусловленные наличием в образце гадолиния.

По известным характеристикам опорного слоя Gd/V были рассчитаны модуль и фаза комплексной амплитуды отражения для исследуемой части образца (рис. 5). Определение потенциала взаимодействия в этом эксперименте не проводили. С другими результатами по апробации метода опорного слоя Gd, в том числе, на магнитных системах можно ознакомиться в работах [15–18].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В настоящей работе показано, что применение резонансных свойств изотопов Gd позволяет решить фазовую проблему в задачах нейтронной рефлектометрии, в том числе с использованием поляризованных нейтронов. Предлагаемый подход апробирован как на модельных численных расчетах, так и на экспериментальных данных, по-

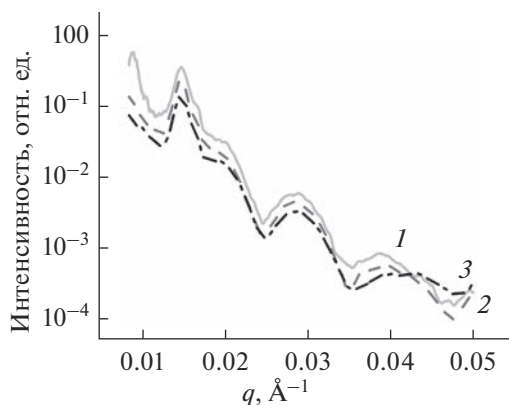


Рис. 4. Рефлектометрические кривые для системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})/\text{Gd}(100 \text{ \AA})/\text{V}(150 \text{ \AA})$ при углах падения пучка нейтронов 8.8 (1); 7.3 (2); 5.0 мрад (3).

лученных на рефлектометрах реактора ИБР-2 (г. Дубна). Ранее предложен способ экспериментального уточнения резонансных характеристик изотопов гадолиния [9].

Перспективным способом усовершенствовать метод является сокращение количества необходимых экспериментов с трех до двух. В настоящий момент проверяют алгоритмы для разделения решений и проверки их физического смысла.

Для работы при температурах ниже точки Кюри гадолиния (292 К) предложено использовать парамагнитные сплавы, содержащие гадолиний. Сейчас на модельных численных экспериментах подбирают оптимальные составы таких сплавов, обеспечивающие достаточное влияние резонансных свойств гадолиния на рефлектометрические кривые.

Помимо этого, ведут работу, направленную на повышение точности метода, в частности, исследуют факторы, влияющие на значение фазы и не-

однозначность ее определения. Кроме того, интерес представляют реализация и проверка на эксперименте предложенного в статье [19] алгоритма исправления комплексной амплитуды отражения в области ниже критического угла.

Предлагаемый метод опорного слоя Gd может быть реализован и на компактном источнике нейтронов. В этом случае создать оптимальные условия может быть даже проще, чем на рефлектометре на атомном реакторе. В частности, необходим замедлитель, обеспечивающий максимум распределения нейтронов в области длин волн 1.5–2.0 Å. Большим преимуществом была бы возможность смены замедлителей, чтобы варьировать положение максимума распределения нейтронов по длинам волн, что позволило бы добиться высоких потоков частиц при необходимых длинах волн. Поскольку резонансные эффекты гадолиния максимальны при малых длинах волн падающих нейтронов, необходим детектор с хорошей разрешающей способностью по энергии нейтронов, чтобы избежать “сжатия” картины рефлектометрии. Наконец, желательна высокая частота следования импульсов (~50 Гц). Медленные нейтроны в данных экспериментах не требуются, при этом можно существенно повысить интенсивность пучка.

Таким образом, применение резонансной нейтронной рефлектометрии для решения фазовой проблемы может быть перспективным пунктом научной программы проектируемых компактных источников нейтронов, привлекательным для специалистов, работающих в области нейтронных исследований конденсированных сред.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема “Спин” 22021000036-3). Нейтронографические исследования выполнены при

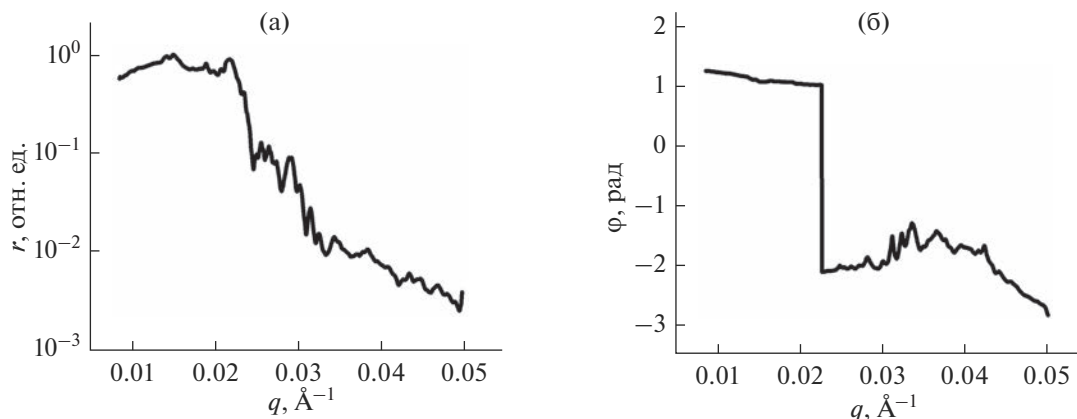


Рис. 5. Модуль (а) и фаза (б) комплексной амплитуды отражения нейтронов от системы $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}(500 \text{ \AA})/\text{V}(15 \text{ \AA})$.

финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Соглашения № 075-10-2021-115 от 13 октября 2021 г. (внутренний номер 15.СИН.21.0021).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Klibanov M.V., Sacks P.E.* // J. Math. Phys. 1992. V. 33. № 11. P. 3813.
2. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. P. 10827.
3. *de Haan V.O., van Well A.A., Adenwalla S., Felcher G.P.* // Phys. Rev. B. 1995. V. 52. № 15. P. 10831.
4. *Majkrzak C.F., Berk N.F.* // Phys. Rev. B. 1998. V. 58. P. 15416.
5. *Majkrzak C.F., Berk N.F., Silin V.* // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. P. 248.
6. *Kirby B.J., Kienzle P.A., Maranville B.B., Berk N.F., Krycka J., Heinrich F., Majkrzak C.F.* // Curr. Opin. Colloid Interface Sci. 2012. V. 17. P. 44.
7. *Majkrzak C.F., Carpenter E., Heinrich F., Berk N.F.* // J. Appl. Phys. 2011. V. 110. P. 102212.
8. *Lynn J.E., Seeger P.A.* // Atomic Data Nucl. Data Tables. 1990. V. 44. Iss. 2. P. 191.
9. *Nikova E.S., Salamatov Yu.A., Kravtsov E.A., Bodnarchuk V.I., Ustinov V.V.* // Physica B. 2019. V. 552. P. 58.
10. *Павлов К.А., Коник П.И., Коваленко Н.А., Кулевой Т.В., Серебренников Д.А., Субботина В.В., Павлова А.Е., Григорьев С.В.* // Кристаллография. 2022. V. 67. № 1. P. 5.
11. *Lekner J.* // Exact results. In: Theory of Reflection of Electromagnetic and Particle Waves. Developments in Electromagnetic Theory and Applications, V. 3. Springer Science Business Media Dordrecht, 1987. C. 12.
12. *de Haan V.O., van Well A.A., Sacks P.E., Adenwalla S., Felcher G.P.* // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. P. 524.
13. *Majkrzak C.F., Berk N.F., Perez-Salas U.A.* // Langmuir. 2003. V. 19. P. 7796.
14. *Zimmerman K.M.* Advanced Analysis Techniques for X-ray Reflectivities: Theory and Application. Karlsruhe, 2005. 190 p.
15. *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.
16. *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. 161.
17. *Nikova E.S., Salamatov Yu.A., Kravtsov E.A., Ustinov V.V.* // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. 2021. V. 15. P. 899.
18. *Никова Е.С., Саламатов Ю.А., Кравцов Е.А., Проглядо В.В., Жакетов В.Д., Миляев М.А.* // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2022. № 11. С. 1. <https://www.doi.org/10.31857/S1028096022110176> (в печати).
19. *Book A., Kienzle P.A.* // Physica B: Condensed Matter. 2020. V. 588. P. 412181.

Resonant Neutron Reflectometry on a Compact Neutron Source

E. S. Nikova^{1, *}, Yu. A. Salamatov¹, E. A. Kravtsov^{1, 2}

¹Miheev Institute of Metal Physics UB RAS, Ekaterinburg, 620990 Russia

²Ural Federal University, Ekaterinburg, 620002 Russia

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

This paper presents an approach to solving the phase problem in neutron reflectometry (including polarized neutron reflectometry) based on the effect of resonant interaction of nuclei of gadolinium isotopes ¹⁵⁵Gd and ¹⁵⁷Gd with thermal neutrons. This effect is used to implement the reference layer method, which allows, based on the results of three experiments, to calculate the complex reflection coefficient of the sample under study. Knowledge of the complex reflection coefficient makes it possible to model-independent analysis of the interaction potential, both nuclear and magnetic. The main application of this approach is the study of the structure of layers and interfaces, as well as the determination of the magnetic state of multilayer metal nanoheterostructures. The theoretical basis of this method is given, which consists in deposition on the sample top of a gadolinium layer with known parameters, one of which can be varied in a controlled manner. The scheme of the experiment is described in detail using model numerical calculations. An experimental result is given for a simple single-layer niobium sample, for which the modulus and phase of the reflection coefficient were calculated. Promising directions for improving the method and possible directions for further work are proposed. The requests for the characteristics of a compact neutron source, necessary for the optimal implementation of the proposed method, are formulated.

Keywords: polarized neutrons, resonant neutron reflectometry, multilayer nanostructures, reference layer, complex reflection coefficient, compact neutron source, phase problem.