

УДК 539.26; 539.216.2; 539.219.3

## ДИНАМИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В ЯДЕРНО-РЕЗОНАНСНОМ БРЭГГОВСКОМ ОТРАЖЕНИИ, ВЛИЯЮЩИЕ НА ТОЧНОСТЬ ОПРЕДЕЛЕНИЯ КОЭФФИЦИЕНТА САМОДИФФУЗИИ В ПЕРИОДИЧЕСКИХ МУЛЬТИСЛОЯХ $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe}$

М. А. Андреева, Н. Г. Моница, С. Станков

(кафедра физики твердого тела)

E-mail: marina@ttk.ru

**Угловые зависимости ядерно-резонансного отражения (ЯРО) существенно отличаются от соответствующих кривых рентгеновской рефлектометрии (РР), что обусловлено особенностями регистрации и эффектом ускорения распада (speed-up) ядерной подсистемы в условиях когерентного рассеяния. Модельными расчетами показано, что кинематическая формула, связывающая интенсивность брэгговских максимумов (БМ) ЯРО на разных стадиях отжига с коэффициентом диффузии, неприменима, когда БМ находится вблизи критического угла.**

### Введение

Рентгенооптические элементы на основе металлических мультислойных покрытий практически не используются вследствие значительной межслойной диффузии в таких системах. В последние годы ведется работа по исследованию влияния структуры ультратонких металлических пленок на процессы диффузии. В частности, было показано, что диффузия резко уменьшается в эпитаксиальных, а также аморфных металлических мультислоях [1]. В последнем случае это объясняется изменением механизма диффузии — вместо прыжковых заполнений вакансий в аморфных системах происходит плавное течение некоторых объемов вещества, как в жидкостях.

Среди многочисленных методов исследования диффузии особые возможности предоставляет мессбауэровское, т.е. ядерно-резонансное отражение (ЯРО), позволяющее исследовать самодиффузию в мультислоях [ $^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe}$ ], используя селективное ядерное рассеяние на изотопе  $^{57}\text{Fe}$  [1–3]. При этом чередующиеся слои могут иметь одинаковый химический состав, так что на кривых рентгеновской рефлектометрии (РР) брэгговские максимумы (БМ) вовсе отсутствуют, но для ЯРО брэгговские пики наблюдаются, поскольку структура имеет изотопную периодичность.

Для периодических мультислоев (ПМ) наиболее простым способом определения коэффициента диффузии является исследование изменения интенсивности БМ на кривых РР или отражения нейтронов под действием дозированного отжига [4–5]. Этот же подход использовался и для описания влияния диффузии на кривые ЯРО в работах [1–3]. Однако, как мы показываем в данной статье, интер-

претация кривых ЯРО существенно сложнее, чем обычных кривых РР.

### Ядерно-резонансная рефлектометрия

Ядерно-резонансное возбуждение характеризуется достаточно большим временем жизни (для изотопа  $^{57}\text{Fe}$  среднее время жизни возбужденного уровня 14.4 кэВ составляет 141 нс), рассеяние же на электронных оболочках происходит практически мгновенно. Поэтому ЯРО измеряется на синхротронном излучении (СИ), имеющем практически белый спектр на шкале ядерного резонанса, с помощью временной фильтрации: для каждого угла скольжения регистрируется отраженный сигнал, проинтегрированный по времени задержки после очередного импульса СИ, исключая мгновенный сигнал. Таким образом разделяются два канала рассеяния: электронный и ядерно-резонансный, а соответствующие кривые отражения называют обычно мгновенной (prompt) и задержанной (delayed) кривыми отражения.

Коэффициент отражения, как и в РР, вычисляется с помощью рекуррентных соотношений Паррата [6], однако с учетом анизотропии ядерно-резонансного рассеяния эти соотношения становятся матричными. Другой способ вычисления основывается на матрицах распространения, которые при переходе от изотропного случая к анизотропному становятся матрицами  $4 \times 4$ . Кроме того, в случае ЯРО восприимчивости слоев, используемые в этих вычислениях, включают как электронную часть, так и ядерно-резонансную, зависящую от смещения энергии вблизи резонанса (или частоты падающего излучения  $\omega$ ). Таким образом, амплитуда отраженного многослойной структурой сигнала вычисляется как функция частоты  $R = R(\omega)$ , а затем для нахождения зависящего от времени  $t$  отклика системы на

возбуждение мгновенным импульсом синхротронного излучения осуществляют преобразование Фурье

$$R(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} R(\omega) e^{-i\omega t} d\omega. \quad (1)$$

Для каждого угла скольжения падающего излучения  $\theta$  можно вычислить временной спектр ЯРО  $I_{\text{nucl}}(t, \theta) = A|R(t, \theta)|^2$  (рис. 1). Нормировочный множитель  $A$  определяется спектральной плотностью СИ в резонансной области. Интеграл по времени задержки для каждого  $\theta$  дает кривую ЯРО:

$$I_{\text{nucl}}(\theta) = A \int_{0+\delta}^{\infty} |R(t, \theta)|^2 dt. \quad (2)$$

Уже первые эксперименты, в которых измерялась кривая ЯРО, продемонстрировали ее существенные отличия от кривой РР [8]. Вместо известной ступеньки в области критического угла на кривых ЯРО наблюдается максимум (рис. 1), который назвали «интерференционным» максимумом (ИМ), поскольку его формирование связывалось с интерференцией ядерно-резонансного и электронного рассеяния. Важной особенностью кривых ЯРО является их чувствительность к особенностям магнитного упорядочения в магнитных мультислоях [9].

Здесь мы хотим показать, что форма кривой ЯРО существенно зависит от особенностей ее регистрации. В частности, на практике интегрирование по задержанному сигналу отражения (2) не может быть осуществлено полностью. Существует «мертвое время» детектора  $\delta$ , перегруженного гигантским мгновенным импульсом электронного рассеяния, так что начальная часть распада ядерно-резонансной подсистемы исключается из регистрации. Верхний предел интегрирования ограничен интервалом между последующими импульсами СИ (например, при 16-банчевом режиме работы Европейского источника СИ в Гренобле этот интервал составляет  $\sim 176$  нс). Если бы скорость распада была одинаковой для всех углов скольжения, то ограничение временного окна регистрации не приводило бы к искажению формы кривой ЯРО. Однако скорость распада существенно изменяется с углом скольжения (рис. 1) в зависимости от эффективности коллективных эффектов взаимодействия. Она становится максимальной вблизи критического угла и в БМ. Экспериментальному исследованию эффекта ускорения коллективного распада (speed-up effect) посвящено много работ [10, 11]. На рис. 2 хорошо видно, что форма пиков и соотношение интенсивности БМ и ИМ существенно изменяется уже при очень малых ограничениях «временного окна» регистрации ЯРО. Это происходит, как мы

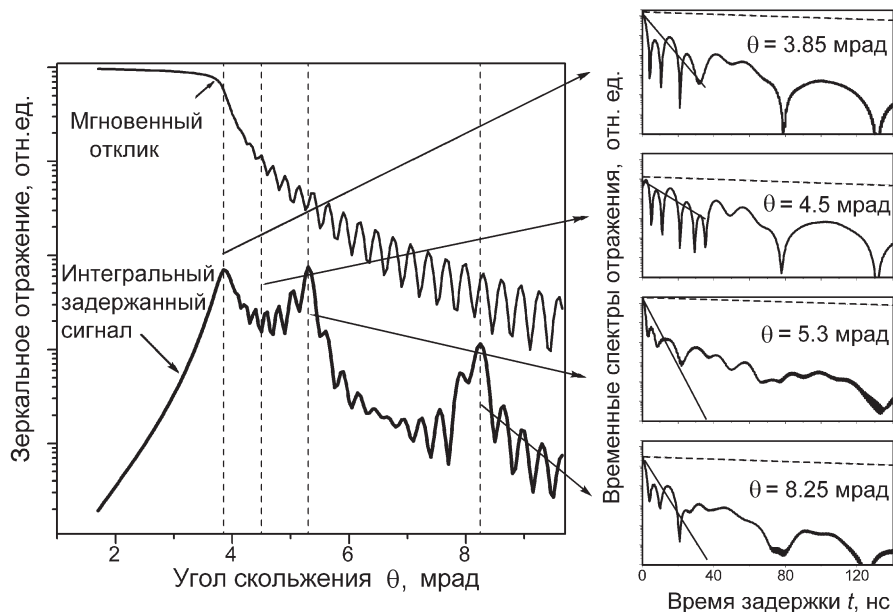


Рис. 1. Рассчитанные кривые РР и ЯРО для структуры  $[^{56}\text{Fe}(4 \text{ нм})/^{57}\text{Fe}(8 \text{ нм})]_{10}$  на кремниевой подложке. Абсолютные интенсивности этих двух кривых зависят от разных параметров: РР — от интегральной падающей интенсивности по всему спектру падающего излучения, ЯРО — от спектральной плотности в резонансной области. Справа показаны временные спектры ЯРО в логарифмическом масштабе для разных углов скольжения. На этих спектрах пунктирная линия представляет естественный распад, а точечные линии показывают ускорение коллективного распада в начальный момент, изменяющееся с углом скольжения. При расчетах предполагалось, что на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  имеется сверхтонкое магнитное поле 32 Т с распределением 3 Т, а намагниченность ориентирована в плоскости пленки (планарная анизотропия)

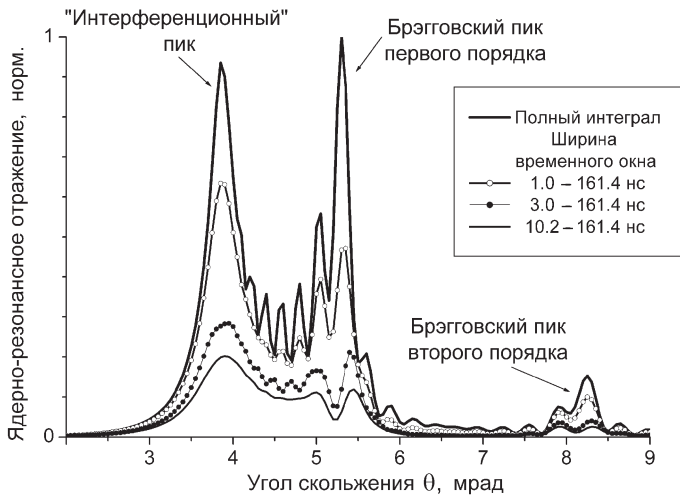


Рис. 2. Изменение кривых ЯРО в зависимости от ширины временного окна регистрации задержанного по времени сигнала. Расчетные параметры те же, что и для рис. 1

полагаем, именно вследствие изменения эффекта ускорения с углом скольжения. Сглаженная форма БМ ЯРО наблюдалась ранее при исследовании ПМ  $[^{57}\text{Fe}/\text{Sc}/\text{Fe}/\text{Sc}]_{25}$  в работе [11], а в работе [3] наблюдаемое раздвоение БМ ЯРО, которое в наших расчетах появляется при ограничении временного окна интегрирования, ошибочно объяснялось нарушением периодичности.

Существенно, что динамический характер взаимодействия, приводящий к ускорению распада, зависит не только от структурных параметров, таких, например, как профиль распределения по глубине резонансных ядер, но и от параметров сверхтонких взаимодействий. На рис. 3, например, приведено изменение формы кривой ЯРО при изменении ширины линий ядерного резонанса. Изменение ширины

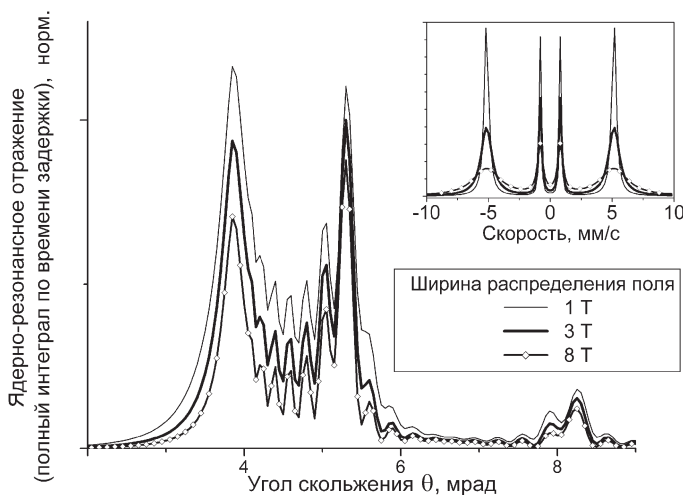


Рис. 3. Рассчитанное изменение кривых ЯРО в зависимости от уширения линий магнитного секстета в мессбауэровском спектре (приведен в вставке). Нормировка на максимум кривой, рассчитанной для поля с шириной распределения 3 Т

резонансных линий уменьшает спектральную плотность ядерно-резонансного взаимодействия и соответственно изменяет speed-up эффект, что приводит к изменению соотношения интенсивностей ИМ и БМ.

### Кинематическая формула, связывающая коэффициент диффузии и интенсивность брэгговских максимумов

Еще в 1940 г. Дю-Мондом и соавторами [4] было получено выражение, связывающее коэффициент диффузии  $D$  и интенсивность БМ на кривых отражения, измеренных от ПМ при разных временах  $T$  их отжига:

$$\ln \left( \frac{I_m(T)}{I_m(0)} \right) = \ln \left( \left| \frac{C_m}{C_0} \right|^2 \right) = -\frac{8\pi^2 m^2}{d^2} DT, \quad (3)$$

где  $m$  — порядок БМ,  $d$  — период структуры. Это соотношение, очень удобное для анализа экспериментальных данных, имеет, однако, существенные ограничения. Оно получено в кинематическом приближении теории отражения (т.е. когда учитывается однократное отражение от каждого слоя), которое применимо при углах скольжения, значительно больших критического угла полного отражения, а также когда интенсивность БМ невелика. Амплитуда отражения от ПМ в этом случае может быть представлена в виде

$$R_m \sim (f_1 - f_2) \int_0^d C(z) e^{iQ_m z} dz, \quad (4)$$

где  $Q_m = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta_m = \frac{2\pi m}{d}$  — вектор рассеяния для БМ  $m$ -го порядка,  $C(z)$  — концентрация одного из элементов в периоде с амплитудой рассеяния  $f_1$ .

Выражение (4) удобно тем, что оно фактически выражает амплитуду рассеяния от ПМ в направлении БМ  $m$ -го порядка через соответствующую фурье-компоненту концентрации  $C_m = \frac{1}{d} \int_0^d C(z) e^{iQ_m z} dz$ . Существует аналитическое решение уравнения диффузии, описывающее изменение именно фурье-коэффициентов концентрации:

$$C_m = \sum_m C_{0m} \exp(-Q_m^2 DT). \quad (5)$$

Из соотношений (4) и (5) сразу следует (3).

Используя (5), легко рассчитать профиль электронной плотности бислоя, составляющего ПМ, для разных значений параметра  $DT$ :

$$C(z) = \sum_m C_m e^{-iQ_m z} \quad (6)$$

и провести анализ интегральных интенсивностей БМ. Можно убедиться, что, когда БМ находится близко к критическому углу, возникают существенные отличия от закономерности (3).

### Динамические эффекты в ядерно-резонансном взаимодействии

В кинематическом случае амплитуда ЯРО пропорциональна амплитуде рассеяния отдельным ядром, для которой преобразование Фурье (1) дает естественный закон распада независимо от угла скольжения. Вблизи критического угла амплитуда отражения является более сложной функцией, обычно получаемой только численно, а не аналитически, Фурье преобразование которой описывает ускоренный коллективный распад. Поэтому переход от кинематического к динамическому рассеянию вблизи критического угла или в достаточно интенсивных БМ приводит в случае ЯРО, кроме необходимости отказа от описания БМ по формуле (3), к дополнительным проблемам, связанным с ограничением «временного окна» регистрации. На рис. 4 приведены полные и «усеченные» ограниченным «временным окном» кривые ЯРО, вычисленные с учетом диффузии, т.е. для разных профилей распределения резонансных ядер, рассчитанных по формулам (5), (6) для нескольких значений параметра  $DT$ . По этим теоретическим кривым проведен анализ интегральных интенсивностей БМ первого и второго порядков. Результаты сравнива-

ются с теоретической формулой (3) на рис. 4, г. Видно, что зависимость полученных расчетным путем интегральных интенсивностей ЯРО от параметра  $DT$  следует достаточно хорошо теоретической зависимости (3) только для БМ второго порядка, значительно удаленного от критического угла и имеющего небольшую интенсивность. Для БМ первого порядка отличие полученной зависимости от кинематической формулы (3) достаточно велико, и оно становится существенно больше, если учесть ограниченность «временного окна» регистрации. Таким образом, специфические динамические эффекты и особенности регистрации ЯРО увеличивают ошибку при определении коэффициента диффузии по формуле (3), применяемой в работах [1–5].

Еще один интересный момент виден на рис. 4. Как следует из расчетов, интенсивность ИМ не только не уменьшается, а даже увеличивается при увеличении диффузии. Это можно объяснить увеличением числа резонансных ядер в поверхностном слое. ИМ сейчас интерпретируется как результат возбуждения ядерной подсистемой стоячей рентгеновской волны, сформированной в результате полного отражения при мгновенном электронном рассеянии [12]. Известно, что амплитуда этой

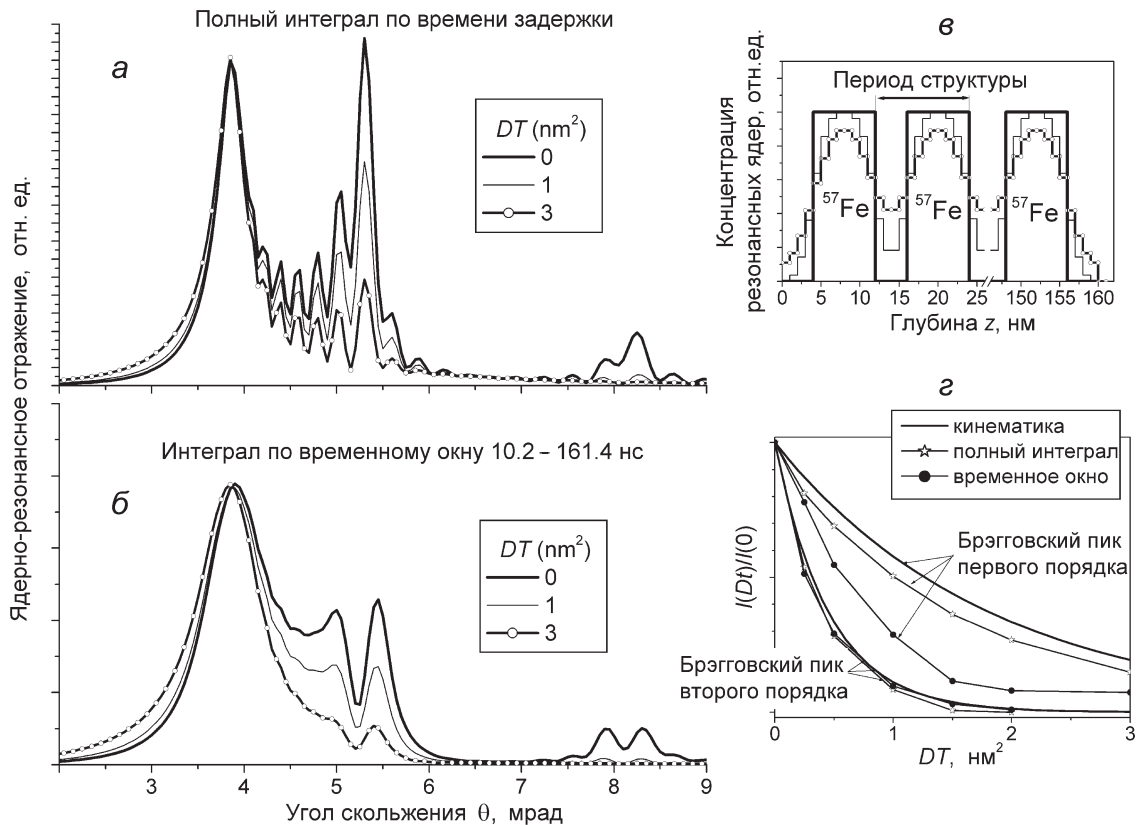


Рис. 4. Изменение интенсивностей БМ вследствие межслойной диффузии на кривых ЯРО (а) и (б); рассчитанный по формулам (5), (6) профиль распределения резонансных ядер по глубине ПМ для разных стадий процесса диффузии (в); изменение интенсивностей БМ первого и второго порядков ЯРО как функция параметра  $DT$ , рассчитанное по кинематической формуле (3), а также по теоретическим кривым ЯРО для полного интеграла по времени задержки и в условиях ограниченного временного окна регистрации (г)

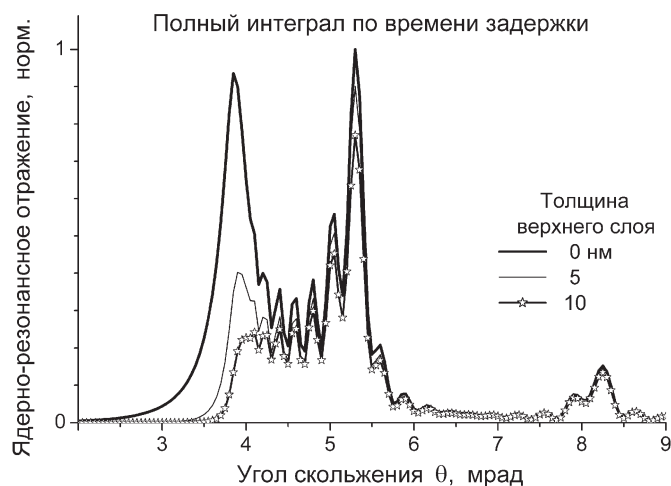


Рис. 5. Влияние наличия поверхностного нерезонансного слоя различной толщины на кривые отражения ЯРО от идеальной структуры. Остальные расчетные параметры те же, что и для других графиков

стоячей волны и, следовательно, интенсивность ЯРО в критическом угле тем больше, чем ближе рассматриваемый слой к поверхности.

Для проверки такого объяснения мы провели расчет кривых ЯРО от структуры  $[^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe}]_{10}$  с нерезонансным поверхностным слоем, толщина которого варьируется от 0 до 10 нм (рис. 5). Отметим, что при отжиге структуры нерезонансный поверхностный слой может утолщаться за счет адсорбции. Расчет показывает, что при этом БМ ЯРО практически не изменяется, а ИМ существенно уменьшается и немного сдвигается. Поведение ИМ весьма существенно, поскольку в эксперименте он часто используется для нормировки кривых ЯРО, измеренных от образцов на разных стадиях отжига. Следовательно, такая нормировка может внести дополнительную ошибку при определении коэффициента диффузии.

### Заключение

Соотношение интенсивностей максимумов на кривой ЯРО, как показали наши модельные расчеты, зависит не только от профиля распределения рассеивающих центров в бислое, как это имеет место для кривых РР. Существенное влияние на форму кривых ЯРО оказывают временное окно ре-

гистрации, параметры сверхтонких взаимодействий, в частности ширина резонансных линий, наличие распределения сверхтонких полей и т.д., а также искажения структуры поверхностного слоя. Вследствие этого определение коэффициентов самодиффузии в ПМ  $[^{56}\text{Fe}/^{57}\text{Fe}]$  с помощью простейшего алгоритма (3) может приводить к существенным ошибкам. Наиболее достоверные результаты можно получить только при полной обработке результатов эксперимента с использованием общей теории ЯРО (такая программа обработки спектров ЯРО помещена в [13]).

Авторы благодарны Р. Рюфферу за постановку проблемы, а также А. Чумакову и А. Гупта за плодотворное обсуждение.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты 05-02-16770, 07-02-00324).

### Литература

1. Gupta A., Gupta M., Dasannacharya B.A. et al. // J. Phys. Soc. Japan. 2004. **73**, N 2. P. 423.
2. Gupta A., Gupta M., Chakravarty S. et al. // Phys. Rev. B. 2005. **72**. P. 014207.
3. Rennhofer M., Sepiol B., Sladeczek M. et al. // Phys. Rev. B. 2006. **74**. P. 104301.
4. DuMond J., Paul Toutz J. // J. Appl. Phys. 1940. **11**. P. 357.
5. Wang W.H., Bai H.Y., Zhang M. et al. // Phys. Rev. B. 1999. **59**. P. 10811.
6. Parratt L.G. // Phys. Rev. 1954. **95**. P. 359.
7. Андреева М.А., Рочете К. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1986. **27**, № 3. С. 57.
8. Baron A.Q.R., Arthur J., Ruby S.L. et al. // Phys. Rev. B. 1994. **50**. P. 10354.
9. Toellner T.S., Sturhahn W., Röhlberger R. et al. // Phys. Rev. Lett. 1995. **74**, N 17. P. 3475.
10. Ruffler R., Gerdau E., Grote M. et al. // Nucl. Instrum. and Meth. in Phys. Res. A. 1991. **303**. P. 495.
11. Chumakov A.I., Smirnov G.V., Baron A.Q.R. et al. // Phys. Rev. Lett. 1993. **71**. P. 2489.
12. Андреева М.А., Линдгрэн Б. // Письма в ЖЭТФ. 2002. **76**, N 12. С. 833.
13. <http://www.esrf.fr/computing/scientific/REFTIM/MAIN.htm>.

Поступила в редакцию  
20.07.2007