

Влияние малых магнитных добавок к восприимчивости на угловые зависимости отражения рентгеновского поляризованного излучения от многослойных структур

М. А. Андреева¹⁾, Е. Е. Одинцова

Физический факультет МГУ им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 3 ноября 2010 г.

После переработки 29 ноября 2010 г.

Метод рентгеновского резонансного отражения поляризованного излучения (XRMS – X-ray resonant magnetic scattering) дает возможность определения оптических констант, включая магнитные поправки, существенные вблизи краев рентгеновского поглощения резонансных атомов, по сдвигу угла Брэгга при отражении от периодических мультислоев. Недавно Valvidares с соавторами [Phys. Rev. B **78**, 064406 (2008)] обнаружили существенные различия формы “магнитных” брэгговских максимумов отражения от $[\text{Co}_{73}\text{Si}_{27}(50 \text{ \AA})/\text{Si}(30 \text{ \AA})]_{10}$ пленки для двух противоположных случаев антиферромагнитного (АФМ) межслойного упорядочения. Авторы предположили, что эти особенности можно объяснить наличием магнитно-резонансной поправки на преломление. Мы показали, что такие поправки в случае АФМ структур не приводят к смещению брэгговского максимума, но форма “магнитных” максимумов объясняется интерференцией магнитной и немагнитной амплитуд отражения.

В последние полтора десятилетия на всех синхротронах активно развивается новый метод исследования магнитных свойств многослойных структур: рентгеновское резонансное отражение поляризованного излучения (XRMS – X-ray resonant magnetic scattering). Обладая такой же магнитной чувствительностью и элементной селективностью, как и метод рентгеновского магнитного кругового или линейного дихроизма (XMCD or XMLD – X-ray magnetic circular dichroism, X-ray magnetic linear dichroism), XRMS предоставляет возможность восстанавливать особенности магнитного упорядочения и профили распределения по глубине магнитных моментов резонансных атомов в многослойных наноразмерных пленках (см., например [1–5]). А эта информация является очень важной для тестирования и создания рабочих элементов спинтроники.

Другая задача, которую может решать XRMS, – экспериментальное определение преломления волн в среде, то есть абсолютных значений рентгеновской восприимчивости, включая магнитные добавки, в области краев поглощения. Такая информация практически отсутствует в имеющихся базах данных для амплитуд рассеяния и для показателей преломления различных веществ. Задача определения оптических констант для рентгеновского излучения вблизи краев поглощения представляет фундаментальный интерес для теории твердого тела. Кроме того, эта информация необходима при обработке экспериментальных

спектров и угловых зависимостей XRMS для получения селективной по глубине информации о магнитной структуре.

В случае мягкого рентгеновского излучения эффект преломления существенно сдвигает положение максимумов брэгговского отражения от периодических многослойных структур. Измеряя положение брэгговского максимума для разных энергий фотонов в области краев поглощения для излучения правой и левой круговой поляризации, получают энергетические зависимости реальной части восприимчивости, включающая магнитные добавки [6–10]. В случае жесткого рентгеновского излучения для решения такой задачи использовался сдвиг осцилляций Кизиха на угловой кривой отражения от магнитной пленки [11].

В недавно появившейся статье Valvidares с соавторами [12] представили результаты исследования периодической структуры $[\text{Si}(30 \text{ \AA})/\text{Co}_{73}\text{Si}_{27}(50 \text{ \AA})]_{10}$ методом XRMS с использованием мягкого рентгеновского излучения. Результаты работы неопровержимо показали наличие антиферромагнитного (АФМ) межслойного упорядочения в этой системе, поскольку на кривых отражения излучения круговой поляризацией с энергией 778 эВ (L_3 – край поглощения Co) наблюдался “магнитный” брэгговский максимум, отвечающий удвоению магнитного периода по сравнению со структурным. Отметим, что в системах Co/Si получить АФМ межслойное упорядочение достаточно сложно, а его прямое наблюдение методом XRMS делает работу [12] очень интересной.

¹⁾ e-mail: Mandreeva1@yandex.ru

Наша заметка относится к интерпретации экспериментальных кривых, полученных в [12], и связана с теорией магнитно-резонансного отражения. Удивительным оказался тот факт, что профиль АФМ сверхструктурного брэгговского максимума существенно различался для образцов с противоположными типами АФМ упорядочения, приготовленными под воздействием слабого внешнего магнитного поля, приложенного в двух противоположных направлениях (рис.3с в [12], соответствующие расчетные кривые представлены на вставке рис.1). Для физического объяснения этого эффекта ав-

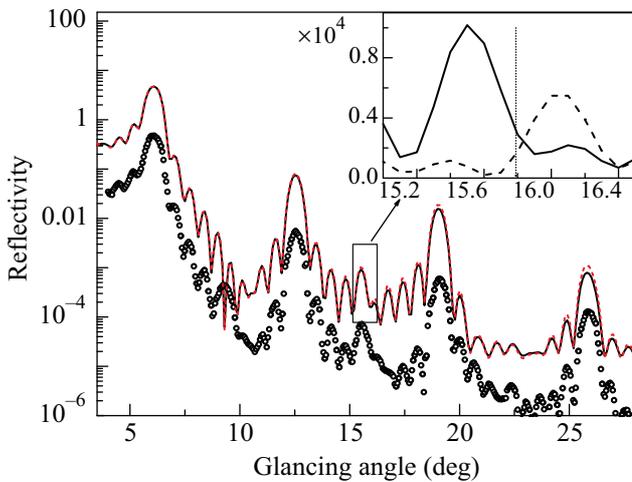


Рис.1. Моделирование экспериментальной кривой отражения из работы [12], полученной для пленки $[\text{Si}(30 \text{ \AA})/\text{Co}_{0.73}\text{Si}_{2.7}(50 \text{ \AA})]_{10}/\text{Si}(30 \text{ \AA})/\text{Si}(111)$ – подложка на излучении правой круговой поляризации с энергией фотонов $E_{ph} = 778 \text{ эВ}$ ($\lambda = 1.5936 \text{ нм}$). Сплошная кривая – расчет по точной теории отражения [13, 14] (тензорный алгоритм), пунктирная кривая – расчет на базе упрощенного скалярного подхода, не учитывающего перемешивание собственных круговых поляризаций. Оцифрованная экспериментальная кривая, соответствующая рис.2 из [12], представлена символами, теоретические кривые приведены со сдвигом. На вставке: рассчитанный “магнитный” максимум 5/2 для правой (сплошная кривая) и левой (штриховая кривая) поляризации излучения. Разное положение максимума для двух типов АФМ упорядочения (или для двух круговых поляризаций) трактуется в статье [12] как сдвиг брэгговского максимума, возникающий за счет магнитно-резонансного преломления

торы предложили учесть поправки к положению брэгговского максимума, возникающие за счет магнитно-резонансного преломления (“magnetic-resonant-refraction corrections to the Bragg’s angle”). Однако из общих соображений довольно очевидно, что положение брэгговского угла в случае АФМ

периодических структур не должно зависеть от магнитных поправок к восприимчивости.

В кинематическом приближении положение брэгговского максимума определяется условием, что разность фаз волн, рассеянных двумя последовательными периодами, равна $2\pi n$ (n – порядок брэгговского отражения):

$$\text{Re}(2\Psi) \cong QD + \frac{\kappa}{\sin \vartheta} \text{Re} \sum_{j=1}^J (\chi_j \pm \chi_{jm}) d_j = 2\pi n, \quad (1)$$

где D – период многослойной пленки, $Q = (4\pi/\lambda) \sin \vartheta$ – вектор рассеяния, $\kappa = 2\pi/\lambda$, λ – длина волны, $\vartheta = \vartheta_B + \Delta\vartheta$ – угол скольжения, ϑ_B – идеальный угол Брэгга, определяемый из соотношения $2D \sin \vartheta_B = n\lambda$, $\sin \vartheta - \sin \vartheta_B \cong \Delta\vartheta \cos \vartheta_B$, j нумерует слои в периоде (от верхней границы периода), d_j – толщина каждого j -го слоя в периоде, $(\chi_j \pm \chi_{jm})$ – восприимчивости слоев, χ_{jm} – магнитный вклад в восприимчивость для рассматриваемой собственной поляризации падающего излучения, а знак зависит от направления намагниченности в данном слое (или, что то же самое, от знака круговой поляризации падающего излучения). В геометрии, в которой проводился эксперимент в [12], когда вектор намагниченности лежит в плоскости пленки и в плоскости рассеяния (L-МОКЕ геометрия), при малых углах скольжения можно считать круговые поляризации собственными поляризациями задачи. Легко видеть из (1), что если полное число вкладов $\chi_{jm} d_j$ со знаком + и – одинаково в удвоенном АФМ периоде, положение брэгговского максимума не зависит от магнитной добавки χ_{jm} . Очевидно также, что сумма в (1) не зависит от последовательности слоев с различным направлением намагниченности.

При рассмотрении эффектов в резонансной области взаимодействия естественно возникает желание проанализировать, влияет ли каким-либо образом сильное поглощение на положение брэгговского максимума. Такое влияние учитывает динамическое приближение в теории отражения [15, 16], также рассмотренное в [12]. Хотя, отметим сразу, это приближение относится к структурам с достаточно большим (в идеале бесконечным) числом периодов и сильным отражениям, что заведомо не выполняется для исследованной в [12] структуры. Тем не менее, ориентируясь на это приближение как на предельный случай, можно проследить тенденции влияния поглощения на положение брэгговского максимума. На практике, как правило, имеет место промежуточный случай между кинематическим и динамическим приближениями. Общая формула для смещения брэгговского максимума $\Delta\vartheta = \vartheta - \vartheta_B$ включает кинема-

тическую, $\Delta\vartheta_{\text{kin}}$, соответствующую условию (1), и динамическую, $\Delta\vartheta_{\text{din}}$, поправки:

$$\begin{aligned}\Delta\vartheta &\cong \Delta\vartheta_{\text{kin}} + \Delta\vartheta_{\text{din}}, \\ \Delta\vartheta^{\text{kin}} &= \frac{\bar{\delta}}{\sin\vartheta_B \cos\vartheta_B}, \\ \Delta\vartheta^{\text{din}} &= \frac{\sin^3\vartheta_B}{2\bar{\beta}(n\pi)^2 \cos\vartheta_B} \text{Im}(rr') \cong \\ &\cong \frac{1}{4\bar{\beta}(n\pi)^2 \sin\vartheta_B \cos\vartheta_B} \times \\ &\times \left(\sum_{j=1}^J (\Delta\delta_j \Delta\beta_j) + \right. \\ &\left. + 2 \sum_{j=1}^J \sum_{k=j+1}^J (\Delta\delta_j \Delta\beta_k + \Delta\delta_k \Delta\beta_j) \cos Q(z_j - z_k) \right),\end{aligned}\quad (2)$$

где r, r' – амплитудные коэффициенты отражения от структурного периода с двух сторон, $z_j - z_k$ – координата границы раздела между $(j-1)$ и j подслоями, $z_1 = 0$, $z_{j+1} = D$. В (2) использованы обозначения:

$$\frac{1}{D} \sum_{j=1}^J (\chi_j + \chi_{jm}) d_j = -2\bar{\delta} + 2i\bar{\beta},$$

$$-2\Delta\delta_j = \text{Re}(\chi_{j-1} - \chi_j) + \text{Re}(\chi_{j-1m} - \chi_{jm}), \quad (3)$$

$$2\Delta\beta_j = \text{Im}(\chi_{j-1} - \chi_j) + \text{Im}(\chi_{j-1m} - \chi_{jm}). \quad (4)$$

Если период включает в себя всего два слоя и $\Delta\delta_1 = \Delta\delta = -\Delta\delta_2$, $\Delta\beta_1 = \Delta\beta = -\Delta\beta_2$, то (2) упрощается и принимает известный вид, полученный в [15] и используемый во многих работах (см., например, [8, 10]):

$$\Delta\vartheta_{\text{din}} = \frac{\Delta\delta\Delta\beta \sin^2(\pi n\gamma)}{2\bar{\beta}(n\pi)^2 \sin\vartheta_B \cos\vartheta_B}, \quad (5)$$

где $\gamma = d_1/D$.

При рассмотрении “магнитных” максимумов период структуры должен содержать как минимум 4 слоя. Структурные параметры χ_j не дают вклада в такие отражения, поскольку амплитуды отражения r от четных и нечетных бислоев складываются со сдвигом фаз π и компенсируют друг друга. (Соответствующие углы рассеяния иногда называют “анти-Брэггом”). В таких максимумах мы можем рассматривать градиенты восприимчивости $\Delta\delta_j$ и $\Delta\beta_j$ как чисто магнитные. Учитывая, что

$$\begin{aligned}2\Delta\delta_1 &= -\text{Re}\chi_m = -2\Delta\delta_2 = -2\Delta\delta_3 = 2\Delta\delta_4, \\ 2\Delta\beta_1 &= \text{Im}\chi_m = -2\Delta\beta_2 = -2\Delta\beta_3 = 2\Delta\beta_4,\end{aligned}\quad (6)$$

и проведя суммирование в (2), получаем, что в динамическом приближении магнитные поправки к восприимчивости дают смещение “магнитных” максимумов отражения от АФМ структуры (формула (7) отличается от (5) коэффициентом 4, так как амплитуда r удваивается для магнитного периода):

$$\Delta\vartheta^{\text{din}} = \Delta\vartheta_m^{\text{din}} = -\frac{\text{Re}\chi_m \text{Im}\chi_m \sin^2(\pi n\gamma)}{2\bar{\beta}(n\pi)^2 \sin\vartheta_B \cos\vartheta_B}. \quad (7)$$

Выражение (7) не может объяснить изменение профиля “магнитного” максимума при двух типах АФМ упорядочения (или знака круговой поляризации), как и было отмечено в [12], поскольку оно квадратично по магнитной восприимчивости χ_m . Интересно также оценить $\Delta\vartheta_m^{\text{din}}$ в рассматриваемом случае. Используя параметры структуры, полученные при подгонке оцифрованной экспериментальной кривой из [12], по формуле (2) мы получаем $\Delta\vartheta^{\text{kin}} = -0.068^\circ$ (этот сдвиг отмечен на верхнем графике рис.2, он обусловлен только немагнитной составляющей восприимчивости, для рассматриваемой длины волны в резонансной области $\bar{\chi}$ положительно, и соответственно сдвиг отрицательный), а $\Delta\vartheta_m^{\text{din}} = 0.000036^\circ = 0.13''$. Очевидно, что это практически ненаблюдаемая величина. В принципе, для других структур “динамический сдвиг” может быть замечен. Отметим, что для его наблюдения можно использовать неполяризованное или линейно поляризованное излучение, так $\Delta\vartheta_m^{\text{din}}$ не зависит от знака круговой поляризации излучения.

Чтобы объяснить наблюдаемый эффект, авторы [12] предположили, что “the strong photon polarization dependence of the atomic-scattering factor and the tensor nature of the SXRMS process in multilayers must be considered” (стр.064406-4 в [12]). Действительно, в общем случае тензорная природа восприимчивости среды вблизи краев поглощения, обуславливающая перемешивание поляризаций при отражении, не позволяет использовать выражение (2) для $\Delta\vartheta$. Этот вопрос был проанализирован в [13] при анализе энергетических зависимостей смещения, где было показано, что перемешивание поляризаций уменьшает амплитуду смещений брэгговского максимума на энергетической шкале. Однако для сравнительно небольших углов скольжения круговые поляризации все же можно рассматривать как собственные поляризации задачи [17]. Моделирование рассматриваемой задачи показывает (см. рис.1), что перемешивание поляризаций не объясняет “сдвига” АФМ брэгговского пика. Кривые отражения, рассчитанные по точной теории отражения [13, 14] (тензорный алгоритм, программный пакет XRMR

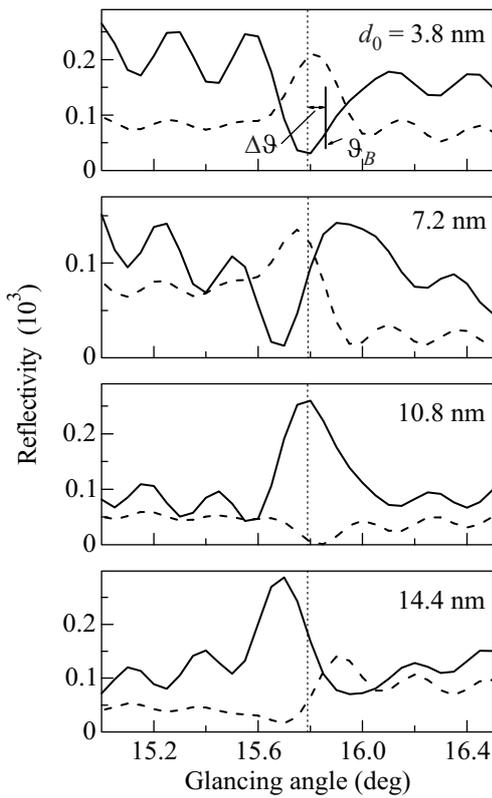


Рис.2. Изменение формы “магнитного” максимума 5/2 при разных толщинах d_0 поверхностного слоя, параметры периодической структуры $[\text{Si}(30 \text{ \AA})/\text{Co}_{73}\text{Si}_{27}(50 \text{ \AA})]_{20}$ (кроме числа повторений) соответствуют рис.1. Сплошные кривые – расчет для правой круговой поляризации, штриховые – для левой. Вертикальная черта на верхнем рисунке отмечает положение идеального угла Брэгга. Вертикальные точечные линии обозначают теоретическое положение угла Брэгга с учетом кинематического преломления

имеется в свободном доступе [14]) и на базе упрощенного скалярного подхода, не учитывающего перемешивание собственных круговых поляризаций, практически совпадают для углов вплоть до $\sim 20^\circ$. Обе кривые удовлетворительно описывают экспериментальную угловую зависимость, а также изменение формы 5/2-максимума при изменении типа АФМ упорядочения (см. вставку). При подгонке экспериментальной кривой в расчетной модели учитывалась неидеальность интерфейсов и наличие поверхностного нарушенного слоя толщиной $\sim 1.3 \text{ нм}$.

Мы предлагаем свое объяснение особенностей формы “магнитных” брэгговских максимумов. Очевидно, что изменение направления намагниченности во всех АФМ слоях изменяет фазу суммарной амплитуды магнитного отражения на π . Для того что-

бы эта фаза была наблюдаема, необходима “опорная” волна. Как уже отмечалось, для брэгговских максимумов полужелого порядка ($n=1/2, 3/2, \dots$) немагнитная амплитуда отражения от идеальной периодической структуры равна нулю. Тем не менее, реальные образцы обладают неисчезающей амплитудой отражения F_e при любом угле скольжения, что обусловлено нескомпенсированным отражением от поверхности, от подложки или буферных слоев. Известно, что наличие нарушенного поверхностного слоя существенным образом изменяет форму “идеального” брэгговского пика и даже может приводить к его раздвоению [18, 19]. Амплитудный коэффициент отражения от периодической структуры с учетом отражения от поверхности, которое нельзя включить в последующие периоды повторений, может быть записан как

$$R = \frac{r_1 + R_N e^{2i\varphi_1}}{1 + r_1 R_N e^{2i\varphi_1}} \cong \frac{(\chi_0 - \chi_1)}{4 \sin^2 \vartheta} + e^{2i\varphi_1} (1 + e^{2i\Phi} + e^{4i\Phi} + e^{6i\Phi} + \dots + e^{2(N-1)i\Phi}) F, \quad (8)$$

где R_N – амплитуда отражения периодической многослойной пленкой, включающей в себя N периодов, r_1 – френелевский коэффициент отражения от поверхности, F – структурная амплитуда для одного периода повторения. Геометрическая прогрессия в (8) дает известную функцию Лауэ:

$$|L_N|^2 = \left| \frac{1 - e^{2i(N-1)\Phi}}{1 - e^{2i\Phi}} \right|^2 = \frac{\sin^2(N-1)\Phi}{\sin^2 \Phi}, \quad (9)$$

которая определяет положение и форму брэгговского пика в идеальном случае. Существенно, что фаза $2(N-1)\Phi$ в функции Лауэ быстро изменяется вблизи брэгговского максимума.

Для “магнитных” брэгговских максимумов структурная амплитуда удвоенного периода зависит только от магнитных добавок к восприимчивости $F = F_m$. Поверхностный слой обычно является немагнитным, так что первый член в (9) дает F_e – немагнитную, опорную волну. Для интенсивности АФМ брэгговских максимумов в общем случае можно записать

$$I_{\text{AF Bragg}} \sim |F_e \pm e^{2i\varphi_1} F_m L_N|^2, \quad (10)$$

где знаки \pm относятся к противоположным АФМ состояниям. В общем случае обычно малая величина магнитного отражения F_m усиливается множителем L_N и если амплитуда отражения от поверхностного слоя F_e сравнима с амплитудой второго члена в (10), их интерференция может быть ярко выражена. В реальном эксперименте весьма сложно предсказать относительную фазу между двумя слагаемыми в (10),

так как F_e и F_m также комплексны. Если при точном угле Брэгга сдвиг фаз между слагаемыми в (10) составляет $\pi/2$, то форма брэгговского пика напоминает дисперсионную кривую. Она изменяет свой наклон при изменении знака круговой поляризации (направление намагниченности в слоях), что и наблюдалось для АФМ максимума $5/2$ в работе [12]. Если при точном угле Брэгга относительный сдвиг фаз π , то вместо максимума получается провал, который преобразуется в максимум при изменении направления намагниченности. Этот случай соответствует АФМ максимуму $7/2$ в [12].

Наиболее простой способ изменить относительную фазу $2i\varphi_1$ между немагнитным и магнитным вкладом в брэгговское отражение – изменить толщину поверхностного слоя. Для наглядной иллюстрации описываемого эффекта мы провели расчеты для “магнитного” максимума $5/2$ (см. вставку на рис.1), немного адаптировав модельную структуру, полученную при подгонке экспериментальной кривой из работы [12]. Для подавления слишком выраженных осцилляций Кизиха, затмевающих брэгговский максимум, мы увеличили число периодов структуры и одновременно увеличили плотность поверхностного нарушенного слоя для увеличения амплитуды F_e . Результаты расчетов наглядно демонстрируют (рис.2), что интерференция немагнитного и магнитного отражений действительно приводит к наблюдаемым особенностям формы “магнитных” брэгговских максимумов. В реальном эксперименте, безусловно, амплитуда F_e формируется не только при отражении от поверхностного слоя (который может иметь более сложную структуру), но и за счет отражения от буферного слоя или подложки, что существенно усложняет картину.

Таким образом, “сдвиг” АФМ брэгговского максимума, который наблюдался в [12], в действительности является дисперсионным изменением формы брэгговского максимума, обусловленной интерференцией магнитного и немагнитного вкладов в структурную амплитуду рассеяния. Важно, что профиль АФМ брэгговского максимума дает информацию об относительной фазе магнитного и немагнитного вкладов в амплитуду отражения, что позволяет различить два АФМ состояния, как и сообщалось в [12]. Эта информация также эффективно работает на решение задачи определения структуры (в том числе магнитной) пленки, которое всегда очень неоднозначно. Именно правильная подгонка кривых рефлектометрии для двух круговых поляризаций излучения дает более надежные значения магнитных добавок к восприимчи-

вости, чем их определение по положению брэгговских максимумов, обладающих непростой формой.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований # 09-02-01293-а, # 09-02-12207-ofi-m и # 10-02-00768-а.

1. L. Séve, N. Jaouen, J. M. Tonnerre et al., Phys. Rev. B **60**, 9662 (1999).
2. N. Ishimatsu, H. Hashizume, S. Hamada et al., Phys. Rev. B **60**, 9596 (1999).
3. A. Bergmann, J. Grabis, A. Nefedov et al., J. Phys. D: Appl. Phys. **39**, 842 (2006).
4. N. Hosoito N. T. Ohkochi, K. Kodama et al., J. Physical Society of Japan **78**, 094716 (2009).
5. E. Kravtsov, D. Haskel, S. G. E. te Velthuis et al., Phys. Rev. B **79**, 134438 (2009).
6. L. Séve, J. M. Tonnerre, and D. Raoux, J. Appl. Cryst. **31**, 700 (1998).
7. M. Sacchi, C. F. Hague, E. M. Gullikson et al., Phys. Rev. B **57**, 108 (1998).
8. M. Sacchi, C. F. Hague, L. Pasquali et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 1521 (1998).
9. M. Hecker, S. Valencia, P. M. Oppeneer et al., Phys. Rev. B **72**, 054437 (2005).
10. M. A. Andreeva, A. G. Smekhova, B. Lindgren et al., JMMM **300**, e371 (2006).
11. А. Г. Смехова, М. А. Андреева, Е. Е. Одинцова и др., Кристаллография **55**, 906 (2010) [A. G. Smekhova, M. A. Andreeva, E. E. Odintsova et al., Crystallography Reports **55**, 854 (2010)].
12. S. M. Valvidares, C. Quirós, A. Mirone et al., Phys. Rev. B **78**, 064406 (2008).
13. M. A. Andreeva and A. G. Smekhova, Appl. Surface Science **252**, 5619 (2006).
14. <http://kfft.phys.msu.ru/personalii/Andreeva/XRMR.zip>.
15. A. E. Rosenbluth and P. Lee, Appl. Phys. Lett. **40**, 466 (1982).
16. V. G. Kohn, Phys. Stat. Sol. (b) **187**, 61 (1995).
17. Е. Е. Одинцова, М. А. Андреева, Поверхность, рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования №11, 46 (2010) [E. E. Odintsova and M. A. Andreeva, J. Surface Investigation. X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques №4, 913 (2010)].
18. А. Г. Смехова, Развитие метода резонансного рентгеновского отражения вблизи $L_{2,3}$ краев поглощения для исследования магнитных мультислоев, канд. дисс., физический факультет МГУ, 2006.
19. М. А. Чуев, И. А. Субботин, Э. М. Пашаев и др., Письма в ЖЭТФ **85**, 21 (2010) [M. A. Chuev, I. A. Subbotin, E. M. Pashaev et al., JETP Letters **85**, 17 (2007)].