

## Ядерно-резонансная рефлектометрия сверхрешеток Dy/Gd

М. А. Андреева<sup>а1)</sup>, Р. А. Баулин<sup>а</sup>, Н. О. Антропов<sup>б,с</sup>, Е. А. Кравцов<sup>б,с1)</sup>, М. В. Рябухина<sup>б</sup>, В. В. Попов<sup>б</sup>,  
В. В. Устинов<sup>б,с</sup>, А. И. Чумаков<sup>д,е</sup>, Р. Рюффер<sup>д2)</sup>

<sup>а</sup> Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, физический факультет, 119991 Москва, Россия

<sup>б</sup> Институт физики металлов им. М.Н. Михеева УрО РАН, 620990 Екатеринбург, Россия

<sup>с</sup> Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

<sup>д</sup> ESRF-The European Synchrotron, CS 38043 Grenoble, France

<sup>е</sup> Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 декабря 2017 г.

Впервые проведены измерения ядерно-резонансного отражения от сверхрешетки  $[\text{Dy}_{19}\text{Gd}_{19}] \times 20$  при возбуждении ядерных уровней 25.651 кэВ изотопа  $^{161}\text{Dy}$ . Измеренные временные спектры ядерно-резонансного отражения позволили проследить изменение сверхтонкого магнитного поля  $B_{\text{hf}}$  на ядрах диспрозия в интервале температур 4–110 К и определить время релаксации сверхтонкого поля, используя эффект ускорения распада возбужденного состояния ядер  $^{161}\text{Dy}$ .

DOI: 10.7868/S0370274X18030116

Редкоземельные металлы являются важными элементами современных магнитных устройств, благодаря огромным значениям магнитных моментов редкоземельных атомов, а также вследствие многообразия и вариабельности магнитных структур на их основе, интенсивно исследуемых различными методами [1].

Одним из примеров редкоземельного магнетика со сложной магнитной фазовой диаграммой является металлический диспрозий Dy [2, 3]. В объемном диспрозии в интервале между температурами Кюри ( $T_C = 85$  К) и Нееля ( $T_N = 178$  К) имеет место несоразмерная спиральная магнитная структура [4]. При этом магнитные моменты лежат в базисной плоскости, а период спирали меняется с температурой практически по линейному закону. В сверхрешетках  $[\text{Dy}/\text{Y}]_n$  также обнаружено спиральное магнитное упорядочение в слоях диспрозия [5], которое не прерывается на границах слоев (период спирали более четырех бислоев). Такое неколлинеарное магнитное упорядочение детектировано при значительно более низкой температуре (10 К), чем в объемной структуре. В сверхрешетке  $[\text{Dy}/\text{Fe}]_n$  с аналогичными толщинами слоев спиральное упорядочение намагниченности не обнаружено даже при 4 К [6]. В работе [7] предсказано существование различных магнитных структур в сверхрешетках  $[\text{Gd}/\text{Dy}]_n$ : анти-

ферромагнитной, веерной или спиральной (с чередующимися знаками вращения).

Мессбауэровские исследования на изотопе  $^{161}\text{Dy}$  на резонансной энергии 25.651 кэВ ( $5/2 \xrightarrow{E1} 5/2$ ) проводились во многих работах (например, [8, 9]). Для металлического диспрозия характерно большое значение сверхтонкого поля  $B_{\text{hf}} = 568.9$  Тл при 4 К [10], которому соответствует расщепление магнитного спектра  $\sim \pm 225$  мм/с, что существенно осложняет проведение эксперимента на энергетической шкале измерений. Электрическое квадрупольное расщепление оказалось также весьма большим даже в металлическом диспрозии  $\Delta E_Q = e^2 Qq \approx 125$  мм/с. Для исследованной многослойной структуры  $[\text{Dy}/\text{Fe}]_n$  определены температуры Кюри  $T_C = 200$  К и Нееля  $T_N = 110$  К [6], какого-либо упорядочения магнитных моментов Dy не обнаружено, что объяснялось большими толщинами интерфейсов в структуре, в которых ориентация магнитных моментов Fe разупорядочена.

Измерения ядерно-резонансного рассеяния на синхротронном излучении (СИ) на переходе 25.651 кэВ  $^{161}\text{Dy}$  начались в 1997 году в геометрии рассеяния вперед [11, 12]. Спектры измерялись по времени распада возбужденного состояния ядра после мгновенного импульса СИ. На временных спектрах сверхтонкие расщепления ядерных уровней появляются как квантовые биения (см., например, обзор [13]). Спиновая релаксация приводит к уско-

<sup>1)</sup> e-mail: mandreeva1@yandex.ru; kravtsov@imp.uran.ru

<sup>2)</sup> R. Rüffer

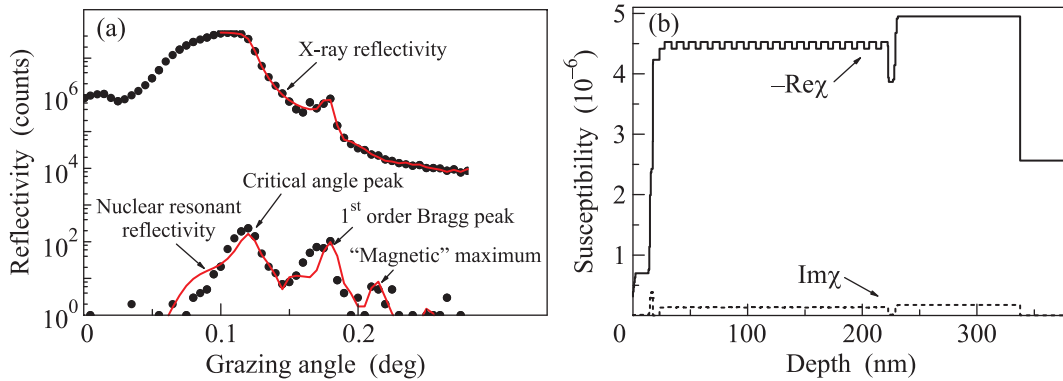


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Угловые зависимости рентгеновской рефлектометрии и ядерно-резонансного отражения для образца  $[Dy_{19}Gd_{19}] \times 20$ , измеренные при 4 К. Символы – экспериментальные точки, сплошные кривые – результат подгонки. (b) – Распределения по глубине электронной плотности и эффективного поглощения, полученные подгонкой угловых зависимостей на (a)

рению распада, наглядно представленному в работе [14], посвященной исследованию  $Dy_2Ti_2O_7$  при температурах 8–287.3 К.

В нашей работе представлены результаты измерений временных спектров ядерно-резонансного рассеяния в геометрии отражения для перехода 25.651 кэВ  $^{161}Dy$  от многослойной пленки  $[Dy_{19}Gd_{19}] \times 20$  (подстрочные индексы указывают число атомных монослоев; среднее межплоскостное расстояние для структур Dy и Gd составляет 0.281 нм). Образцы изготовлены методом магнетронного напыления на подложке  $(110)Al_2O_3$  с буферными слоями Nb(100 нм)/Y(50 нм); поверхность пленки закрыта слоем Al(10 нм). При напылении использован диспрозий с естественным содержанием резонансного изотопа  $^{161}Dy$  (18.9%). Подробности изготовления образцов изложены в [15, 16]. Измерения проведены на станции ID18 Европейского синхротрона в Гренобле (ESRF) [17] с использованием крио-магнитной установки. Охлаждение образцов до 4 К проводилось в поле 4 Тл, перпендикулярном поверхности образца.

Рентгеновские (по мгновенному отклику) и ядерно-резонансные угловые зависимости на излучении 0.0483 нм ( $E_{ph} = 25.651$  кэВ) представлены на рис. 1. Кривые ядерно-резонансной рефлектометрии  $I^{nucl}(\theta)$ , чувствительные к магнитному упорядочению в слоях Dy, измеряются на станциях синхротронного излучения как интеграл по времени задержки  $t_d$ :

$$I^{nucl}(\theta) = \int_{\Delta}^T I^{nucl}(\theta, t_d) dt_d, \quad (1)$$

где  $\Delta$  – “мертвое” время детектора (т.е. время его отключения) после мгновенного импульса СИ, а  $T$  – интервал между импульсами СИ. Временная зави-

симость интенсивности ядерно-резонансного отражения вычисляется через фурье-преобразование амплитуд отражения в энергетическом представлении  $R^{\sigma \Rightarrow \sigma, \pi}(\theta, \omega)$ :

$$I^{nucl}(\theta, t) = \left| \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} R^{\sigma \Rightarrow \sigma}(\theta, \omega) E^{-i\omega t} d\omega \right|^2 + \left| \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} R^{\sigma \Rightarrow \pi}(\theta, \omega) e^{-i\omega t} d\omega \right|^2, \quad (2)$$

алгоритм вычисления которых с учетом поляризационных особенностей ядерно-резонансных переходов представлен, например, в [18, 19]. Обработка экспериментальных данных проводилась с помощью разработанного нами пакета программ [20], адаптированного для E1 ядерного перехода 25.651 кэВ в  $^{161}Dy$ .

Обработка рентгеновской кривой отражения дает значение 11.4 нм для периода структуры, шероховатость поверхности  $\sim 1.4$  нм, шероховатости слоев практически не проявляются на величине брэгговского максимума первого порядка. На ядерно-резонансной кривой, измеренной при  $T = 4$  К, присутствует слабо выраженный дополнительный максимум при  $\Theta \approx 0.21^\circ$ , который можно объяснить наличием магнитной структуры с периодом  $D^{magn} \approx 8.7$  нм. Магнитный период  $D^{magn}$  не соизмерим с химическим периодом сверхрешетки и примерно вдвое превосходит период магнитной геликоиды, формирующейся в объемном Dy выше температуры Кюри  $T_c = 85$  К. Мы полагаем, в исследуемой сверхрешетке в слоях Dy формируется геликоидальное магнитное упорядочение с чередующейся киральностью в соседних слоях, аналогично наблюдавшемуся ранее в сверхрешетках Dy/Gd со сравнительно

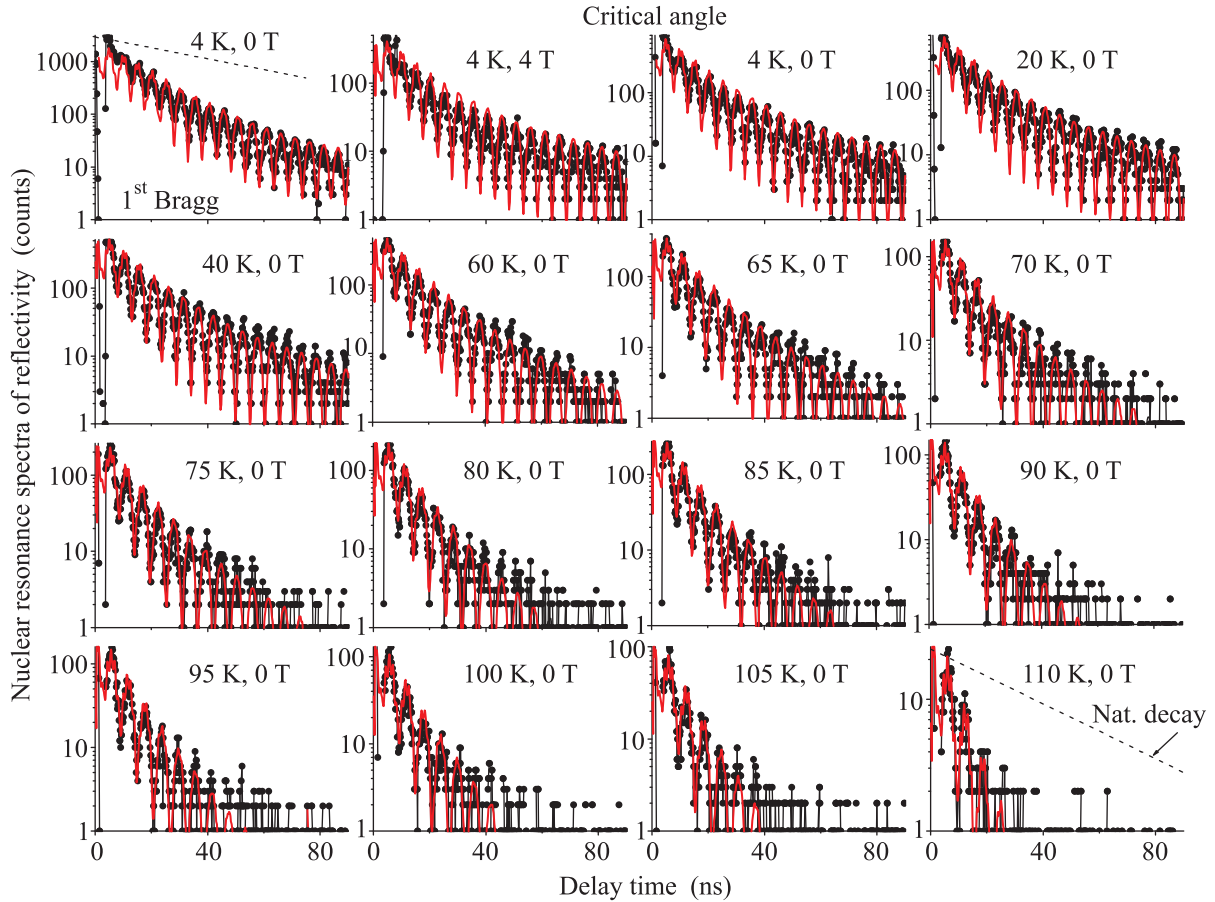


Рис. 2. (Цветной онлайн) Временные спектры ядерно-резонансного отражения от исследованной многослойной структуры, измеренные в критическом угле (первый спектр измерен в брэгговском максимуме) в диапазоне температур 4–110 К. Символы – экспериментальные точки, сплошные кривые – результат подгонки. Пунктирная линия на первом и последнем графике представляет кривую естественного распада возбужденного состояния ядра со средним временем жизни  $\tau = 41.81$  нс

тонкими слоями Ду [7], что и объясняет удвоение магнитного периода. Переход в ферромагнитную фазу в слоях Ду при этом подавлен. Стоит отметить, что для прецизионного определения магнитной периодичности необходимы дополнительные измерения.

Временные спектры ядерно-резонансного отражения измерялись с 4 К при постепенном увеличении температуры (рис. 2). Выше 110 К ядерно-резонансный сигнал полностью был подавлен релаксацией, скорость счета уменьшилась до 0.1 имп/с. Спектры, представленные на рис. 2, характеризуются фактически одной частотой квантовых биений. Она определяется интерференцией двух центральных компонент магнитного спектра диспрозия, разность энергий которых определяется выражением:

$$\Delta E_{\text{hf}}(\text{нэВ}) = \mu_N(\mu_e/I_e - |\mu_g|/I_g) \cdot B_{\text{hf}}(\text{Т}), \quad (3)$$

где  $\mu_N = 31.5245$  нэВ/Тл – ядерный магнетон,  $\mu_g = -0.4803(25)$ ,  $\mu_e = 0.594(3)$  – магнитные моменты

основного и возбужденного (25.651 кэВ) состояний  $^{161}\text{Dy}$  со спинами  $I_g = I_e = 5/2$ , соответственно [21]. Поскольку в первом приближении

$$\Delta E_{\text{hf}} = h/\Delta t, \quad (4)$$

где  $\Delta t$  – период биений,  $h = 4.13566727 \cdot 10^{-6}$  нэВ·с, эти спектры однозначно определяют величину сверхтонкого магнитного поля  $B_{\text{hf}}$ . При 4 К получаем  $B_{\text{hf}} = 569.7$  Тл, что хорошо согласуется с работой [10]. По спектрам на рис. 2 наглядно видно, что период биений увеличивается с увеличением температуры, т.е.  $B_{\text{hf}}$  уменьшается. Полученная зависимость  $B_{\text{hf}}$  от температуры представлена на рис. 3. Влияние электрического квадрупольного расщепления  $\Delta E_Q$  на положение центральных линий спектра незначительно, поэтому определить  $\Delta E_Q$  по измеренным временным спектрам не представлялось возможным.

Отличие скорости распада возбужденных состояний ядер от естественного распада при 4 К объ-

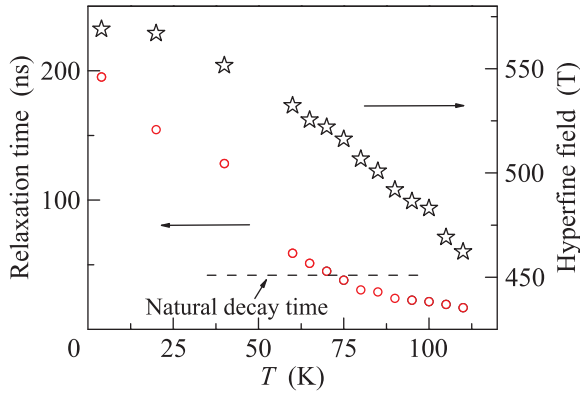


Рис. 3. (Цветной онлайн) Температурная зависимость сверхтонкого поля  $B_{\text{hf}}$  и времени релаксации  $\tau$ , полученная в результате обработки временных спектров ядерно-резонансного отражения на рис. 2

яняется известным эффектом “ускорения распада” (speed-up) при когерентном рассеянии в условиях зеркального отражения [13, 22]. Временные спектры с увеличением температуры постепенно “схлопываются” к началу распада, что может быть объяснено только спиновой релаксацией, увеличивающейся с температурой. Для описания релаксации мы ввели увеличение ширины линии рассеяния  $\Delta\Gamma$  на отдельном ядре:

$$f^{\text{nucl}}(\omega) \propto \frac{\Gamma_0/(2\hbar)}{\omega - \omega_0 + i \frac{\Gamma_0 + \Delta\Gamma}{2\hbar}}. \quad (5)$$

При этом, очевидно, время релаксации  $\tau$  определяется соотношением

$$\tau = \frac{\hbar}{\Delta\Gamma}. \quad (6)$$

Полученная при обработке временных спектров зависимость времени релаксации  $\tau$  от температуры представлена на рис. 4, из которого следует, что эта зависимость в области 50–110 К, где релаксация заметна, удовлетворяет уравнению Аррениуса. Вблизи магнитного фазового перехода при температуре  $\sim 110$  К значение  $\tau$  оказалось равным  $\sim 16$  нс, что согласуется с работой [14].

В заключении отметим, что в работе продемонстрированы возможности ядерно-резонансной рефлектометрии на резонансном ядерном переходе 25.651 кэВ в  $^{161}\text{Dy}$ . Метод позволил выявить в сверхрешетке  $[\text{Dy}_{19}\text{Gd}_{19}] \times 20$  наличие магнитной структуры с периодом  $\approx 8.7$  нм и проследить релаксационное подавление сверхтонкого магнитного расщепления ядерных уровней до температуры фазового перехода  $\sim 110$  К в рассматриваемой структуре. До сих

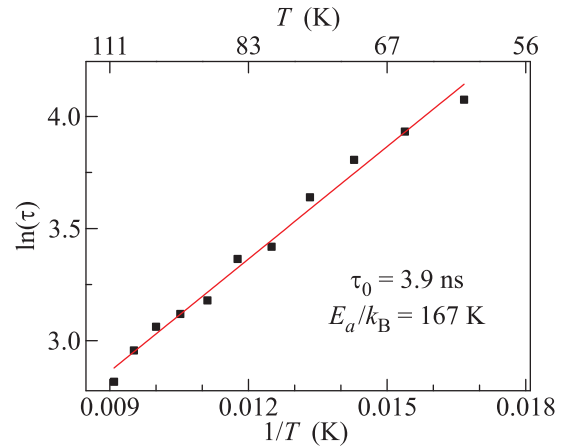


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость  $\ln \tau$  от  $T(\text{K})$  и ее аппроксимация с использованием уравнения Аррениуса  $\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right)$ ,  $E_a$  – энергия активации

пор подобные исследования были возможны только методом рефлектометрии поляризованных нейтронов.

Работа выполнена при поддержке Минобрнауки РФ (проект RFMEFI61616X0067).

1. R. J. Elliott, *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*, Plenum, N.Y. (1972), 430 p.
2. A. Andrianov, A. Vasil'ev, and Y. Gaidukov, *Physica B* **169**, 469 (1991).
3. A. S. Chernyshov, A. O. Tsokol, A. M. Tishin, K. A. Gschneidner, Jr., and V. K. Pecharsky, *Phys. Rev. B* **71**, 184410 (2005).
4. M. K. Wilkinson, W. C. Koeller, E. O. Wollan, and J. W. Cable, *J. Appl. Phys.* **32**, 48S (1961).
5. M. B. Salamon, Sh. Sinha, J. J. Rhyne, J. E. Cunningham, R. W. Erwin, J. Borchers, and C. P. Flynn, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 259 (1986).
6. J. Tappert, W. Keune, R. A. Brand, P. Vulliet, J.-P. Sanchez, and T. Shinjo, *J. Appl. Phys.* **80**, 4503 (1996).
7. C. F. Majkrzak, J. Kwo, M. Yjng, Y. Yafet, D. Gibbs, C. L. Chen, and J. Bohr, *Adv. Phys.* **40**, 99 (1991).
8. S. Ofer, M. Rakavy, E. Segal, and B. Khurgin, *Phys. Rev.* **138**, 241 (1965).
9. B. Khurgin, I. Nowik, M. Rakavy, and S. Ofer, *J. Phys. Chem. Solids* **31**, 49 (1970).
10. Y. Berthier, J. Baran, and B. Barbara, *Solid State Commun.* **17**, 153 (1975).
11. I. Koyama, Y. Yoda, X. W. Zhang, M. Ando, and S. Kikuta, *Jpn. J. Appl. Phys.* **35**, 6297 (1997).
12. Yu. V. Shvyd'ko, M. Gerken, H. Franz, M. Lucht, and E. Gerdau, *Europhys. Lett.* **56**, 309 (2001).

13. G. V. Smirnov, *Hyperfine Interactions* **123/124**, 31 (1999).
14. J. P. Sutter, S. Tsutsui, R. Higashinaka, Y. Maeno, O. Leupold, and A. Q. R. Baron, *Phys. Rev. B* **75**, 140402(R) (2007).
15. М. А. Андреева, Н. О. Антропов, Р. А. Баулин, Е. А. Кравцов, М. В. Рябухина, Е. М. Якунина, В. В. Устинов, *Физ. Мет. Металловед.* **117**(12), 1247 (2016).
16. Н. О. Антропов, Е. А. Кравцов, В. В. Проглядо, М. В. Рябухина, В. В. Устинов, *Физ. Мет. Металловед.* **118**(12), 1283 (2017).
17. R. Ruffer and A. I. Chumakov, *Hyperfine Interaction* **97/98**, 589 (1996).
18. M. Andreeva, A. Gupta, G. Sharma, S. Kamali, K. Okada, and Y. Yoda, *Phys. Rev. B* **92**, 134403 (2015).
19. M. Andreeva, A. Gupta, G. Sharma, S. Kamali, K. Okada, and Y. Yoda, <http://link.aps.org/supplemental/10.1103/PhysRevB.92.134403>.
20. <http://www.esrf.eu/computing/scientific/REFTIM/MAIN.htm>.
21. <http://www.medc.dicp.ac.cn/Resources.php>.
22. М. А. Андреева, С. М. Иркаев, К. А. Прохоров, Н. Н. Салащенко, В. Г. Семенов, А. И. Чумаков, Р. Рюффер, *Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования* **1**, 61 (1999) [*J. Surface Investigation* **15**, 83 (1999)].