

## ФИЗИКА КОНДЕНСИРОВАННОГО СОСТОЯНИЯ ВЕЩЕСТВА

## Поляризационный анализ для интерпретации плохо разрешенных синхротронных мессбауэровских спектров

Р.А. Баулин,<sup>1,2, a</sup> М.А. Андреева,<sup>1</sup> А.И. Чумаков,<sup>3,2</sup> Д. Бессас,<sup>3</sup> Р. Рюффер<sup>3</sup><sup>1</sup> Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, физический факультет  
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2<sup>2</sup> Национальный исследовательский центр «Курчатовский институт». Россия, 123182, Москва  
<sup>3</sup> ESRF-The European Synchrotron. CS40220, 38043 Grenoble Cedex 9, France

Поступила в редакцию 17.12.2021, после доработки 19.01.2022, принята к публикации 24.01.2022.

В работе продемонстрировано использование поляризационного анализа отраженного излучения для выявления вкладов от магнитоупорядоченных фаз в плохо-разрешенных мессбауэровских спектрах, полученных с  $\pi$ -поляризованным излучением от синхротронного мессбауэровского источника. Исследование проведено для кластерно-слоистой структуры  $[^{57}\text{Fe}(0.08 \text{ нм})/\text{Cr}(1.08 \text{ нм})]_{30}$ , в результате которого показано, что только 16% атомов железа ферромагнитно-упорядочены, остальная часть атомов железа находится в состоянии спинового стекла.

**Ключевые слова:** мессбауэровская спектроскопия, тонкие пленки, кластерные структуры.

УДК: 53.083.2, 539.2, 53.08. PACS: 76.80.+y, 75.70.Cn, 36.40.-c, 07.85.-m, 61.10.Kw.

## ВВЕДЕНИЕ

Поляризационный анализ излучения представляет собой важное для решения многих задач развитие метода мессбауэровской спектроскопии в геометрии пропускания или отражения. Реализация метода стала возможна на синхротронных станциях ядерно-резонансного рассеяния, оборудованных ядерными монохроматорами (SMS — Synchrotron Mossbauer Source [1–4]), позволяющими осуществлять мессбауэровские эксперименты на энергетической шкале (см., например, [5–9]). Практически полная линейная поляризация излучения SMS является предпосылкой осуществления поляризационного анализа прошедшего или рассеянного излучения. Если селекция «повернутой» поляризации в прежних мессбауэровских экспериментах, осуществляемых на временной шкале, использовалась для подавления мгновенного нерезонансного рассеяния [10–12], то в мессбауэровских экспериментах на энергетической шкале с использованием SMS поляризационный анализ может существенно помочь в интерпретации результатов исследования. Первые эксперименты с поляризационным анализом продемонстрировали интересные особенности угловых зависимостей и спектров отражения, измеренных с селекцией «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma'$  поляризации: наличие пика вблизи угла полного внешнего отражения на кривых ядерно-резонансной рефлектометрии и изменение формы спектров отражения в области полного отражения [13], возможность разделения ферро- и антиферромагнитных фаз в мессбауэровских спектрах отражения [14], решения задач однозначного определения особенностей реориентации спинов в исследуемых антиферромагнитных структурах [15].

В настоящей работе мы предлагаем использовать поляризационный анализ для интерпретации плохо разрешенных мессбауэровских спектров, которые являются типичными как для образцов с содержанием

нанокластеров железа [16], так и для железосодержащих сплавов [17]. Отметим, что поляризационный анализ возможен не только для спектров отражения (рис. 1, а), исследованных в нашей работе, но и в экспериментах на пропускание (рис. 1, б).

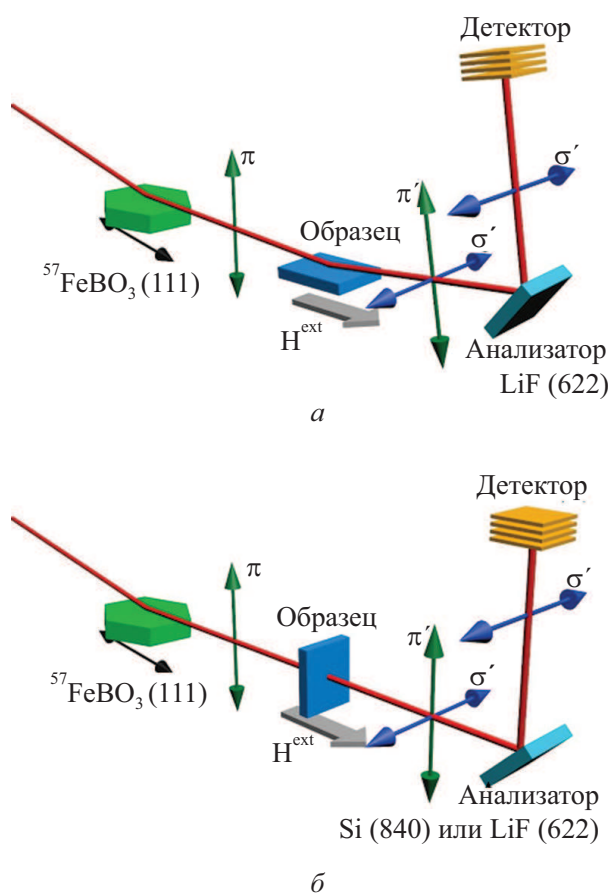


Рис. 1. Схемы измерения мессбауэровских спектров отражения (а) и поглощения (б) с селекцией «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma'$  поляризации

<sup>a</sup> E-mail: [baulin.roman@physics.msu.ru](mailto:baulin.roman@physics.msu.ru)

## 1. ЭКСПЕРИМЕНТ

Эксперимент проведен на станции ядерно-резонансного рассеяния ID18 [18] Европейского синхротрона (ESRF, Гренобль, Франция) с использованием «синхротронного мессбауэровского источника» [4]. Измерения проводились при температуре 4 К в скользящей геометрии. Внешнее магнитное поле  $H_{ext} = 1$  Т было приложено вдоль пучка СИ. Для поляризационного анализа излучения, отраженного от резонансного образца, в настоящей работе использовался монокристалл LiF (отражение (622)), обеспечивающий максимально полный захват отраженного излучения, благодаря достаточно большой ширине брэгговского пика  $\sim 90''$  [14]. В геометрии на пропускание, где не требуется большая апертура кристалла-анализатора, возможно использование кристалла Si (отражение 840).

В работе исследовался кластерно-слоистый образец  $[^{57}\text{Fe}(0.08 \text{ нм})/\text{Cr}(1.08 \text{ нм})]_{30}$  с ультратонкими слоями железа. Вследствие существенного перемешивания ультратонких слоев и малого оптического контраста для слоев Fe и Cr, рентгеновские рефлектометрические кривые не выявили наличие периодичности в структуре. Мессбауэровские измерения с использованием SMS проводились в области полного внешнего отражения при угле скольжения  $\theta = 0.2^\circ$ , в этих условиях мессбауэровские спектры отражения, измеренные без анализа поляризации, похожи на спектры поглощения, а спектры, измеренные с анализатором «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma'$  поляризации отраженного пучка, всегда имеют вид спектров испускания [13].

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты измерения, представленные на рис. 2, *а, б*, наглядно демонстрируют, что селекция поляризации в отраженном пучке обеспечивает существенно лучшее разрешение резонансных компонент. Это обусловлено, во-первых, отсутствием вклада нерезонансного рассеяния на электронных оболочках всех атомов в образце и, во-вторых, участием в формировании «повернутой» поляризации только тех резонансных ядер и тех ядерных переходов, которые обеспечивают наличие дихронного эффекта. При планарной ориентации намагниченности в образце возникновение «повернутой» поляризации связано только с линиями мессбауэровского магнитного секстета 1,3,4 и 6, и только для ядер, сверхтонкое поле на которых имеет нескомпенсированную составляющую в направлении пучка излучения.

Обработка полученных спектров проводилась с использованием разработанного нами программного комплекса REFSPC [19, 20], который позволяет проводить расчет и обработку мессбауэровских спектров отражения, рентгеновской и мессбауэровской рефлектометрии от многослойных структур. Расчеты выполняются для  $\pi$ -поляризованного падающего излучения, т.е. излучения от синхротронного мессбауэровского источника [4]. Вычисления коэффициента отражения проводятся методом 4x4-матриц распространения [21–24]. При обработке экспериментальных данных оптимизация варьируемых параметров

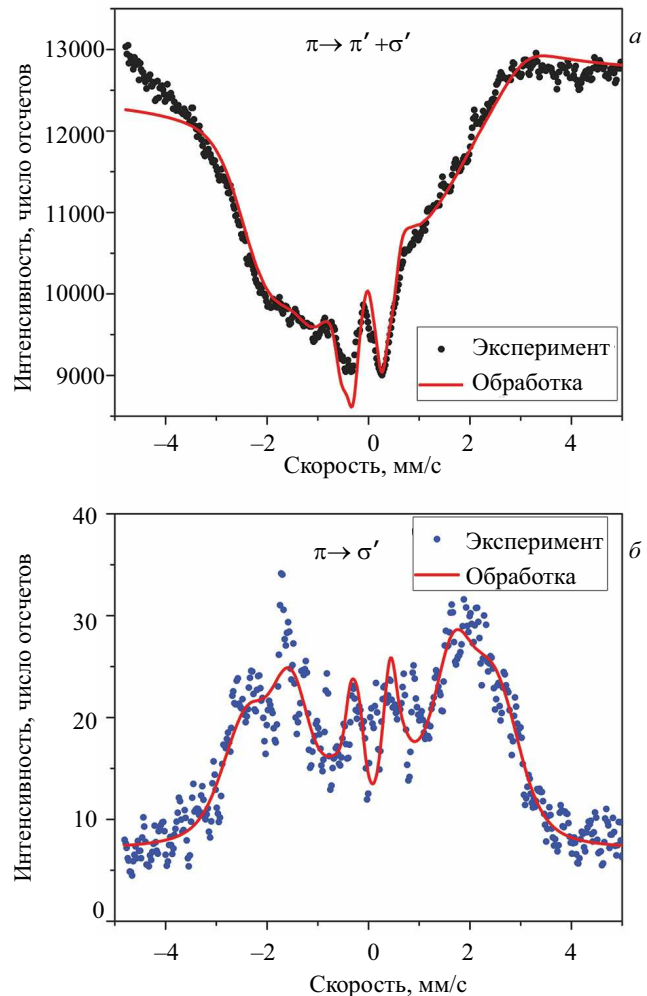


Рис. 2. Мессбауэровские спектры отражения ( $\theta=0.2^\circ$ ) от кластерно-слоистой структуры  $[^{57}\text{Fe}(0.08 \text{ нм})/\text{Cr}(1.08 \text{ нм})]_{30}$ , измеренные без анализа поляризации (*а*) и с селекцией «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma'$  поляризации (*б*) в магнитном поле  $H_{ext} = 1$  Т

осуществляется методом последовательного градиентного спуска (использовался в данной работе) или методом Нелдера—Мида. Для данной работы программный пакет был дополнен программой обработки спектров, измеренных с селекцией по поляризации отраженного излучения.

На рис. 3 представлена функция распределения величины сверхтонкого поля  $P(|B_{hf}|)$  для исследуемого образца и та ее часть, которая соответствует ферромагнитно-упорядоченной фазе. Как видно из рис. 3, магнитное упорядочение во внешнем поле 1 Т имеет место только для небольшой части атомов железа, сверхтонкое поле на ядрах которых соответствует  $\sim 14.5$  и  $10.5$  Т. Важно отметить, что общий вид  $P(|B_{hf}|)$  оказалось однозначно получить только при совместной обработке спектров, измеренных с селекцией «повернутой»  $\pi \rightarrow \sigma'$  поляризации и без анализа отраженной интенсивности.

Как следует из площадей полученных распределений, только 16% атомов железа находятся в ферромагнитном состоянии, остальная часть атомов железа находится в состоянии спинового стекла [20].

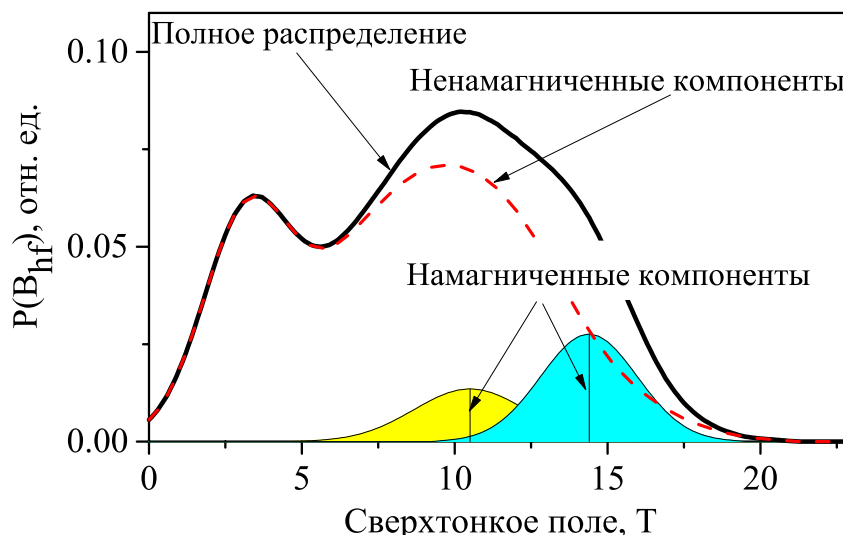


Рис. 3. Функция распределения  $P(B_{hf})$  величины сверхтонкого поля  $B_{hf}$ , полученная при одновременной обработке спектров на рис. 2. Толстая линия — полное распределение сверхтонкого поля  $P(|(B_{hf})|)$ , тонкая линия — намагниченные ферромагнитные компоненты, выстроенные полем 1 Т, пунктирная линия — немагнитные компоненты

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Поляризационный анализ рассеянного излучения позволяет выявить вклад от магнитоупорядоченных фаз в плохо разрешенные синхротронные мессбауэровские спектры. Применение данной методики в исследовании кластерно-слоистой структуры  $[^{57}\text{Fe}(0.08\text{ нм})/\text{Cr}(1.08\text{ нм})]_{30}$ , показало, что только 16% атомов железа ферромагнитно-упорядочены, остальная часть атомов железа находится в состоянии спинового стекла. Отметим, что продемонстрированный в данной работе способ может быть эффективен для интерпретации не только сложных спектров отражения, но и плохо разрешенных спектров поглощения.

Авторы признательны Ю.А. Бабанову, Д.А. Пономареву, М.А. Миляеву, Л.Н. Ромашеву, В.В. Устинову (ИФМ УрО РАН) за изготовленный и предоставленный нам образец с ультратонкими прослойками  $^{57}\text{Fe}$ . Авторы благодарны А. Рогалеву (ESRF) за возможность использования монокристалла LiF. Авторы благодарны ESRF за предоставленное экспериментальное время на станции ID18 (проект MA-4429). Работа Р.А. Баулина и М.А. Андреевой выполнена в рамках госбюджетной темы №01200108657.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Smirnov G.V., van Buerck U., Chumakov A.I. et al. // *Phys. Rev. B.* 1997. **55**. P. 5811.
2. Mitsui T., Seto M., Kikuta S. et al. // *Jpn. J. Appl. Phys.* 2007. **46**. P. 821.
3. Mitsui T., Hirao N., Ohishi Y. et al. // *J. Synchrotron Rad.* 2009. **16**. P. 723.
4. Potapkin V., Chumakov A.I., Smirnov G.V. et al. // *J. Synchrotron Rad.* 2012. **19**. P. 559.
5. Kuppenko I., McCammon C., Sinmyo R. et al. // *Earth Planet. Sci. Lett.* 2015. **423**. P. 78.
6. Andreeva M.A., Baulin R.A., Chumakov A.I. et al. // *Phys. Rev. B.* 2018. **97**. 024417.
7. Adler P., Medvedev S.A., Naumov P. G. et al. // *Phys. Rev. B.* 2019. **99**. 134443.
8. Mitsui T., Sakai S., Li S. et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2020. **125**, 236806.
9. Lyubutin I., Starchikov S., Troyan I. et al. // *Molecules.* 2020. **25**. P. 3808.
10. Siddons D.P., Bergmann U., Hastings J.B. // *Phys. Rev. Lett.* 1993. **70**. P. 359.
11. Toellner T.S., Alp E.E., Sturhahn W. et al. // *Appl. Phys. Lett.* 1995. **67**. P. 1993.
12. C. L'abbü, R. Coussemont, J. Odeurs et al. // *Phys. Rev. B.* 2000. **61**. P. 418.
13. Andreeva M.A., Baulin R.A., Chumakov A.I. et al. // *Condensed Matter.* 2019. **4**. 8.
14. Andreeva M.A., Baulin R.A., Slinko O.V. et al. // *J. of Physics: Conference Series.* 2019. **1389**. 012016.
15. Баулин Р.А., Андреева М.А., Чумаков А.И. и др. // Письма в ЖЭТФ. 2021. **113**, № 3. С. 175. (Baulin R.A., Andreeva M.A., Chumakov A.I. et al. // *JETP Lett.* 2021. **113**. P. 162.)
16. Andreeva M.A., Baulin R.A., Chumakov A.I. et al. // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* 2017. **440**. P. 225.
17. Voronina E.V., Arzhnikov A.K., Chumakov A.I. et al. // *Advances in Condensed Matter Physics.* 2018. 5781873.
18. Ruffer R., Chumakov A.I. // *Hyperfine Interact.* 1996. **97/98**. P. 589.
19. Andreeva M.A. // *Hyperfine Interact.* 2008. **185**. P. 17.
20. Andreeva M. A., Lindgren B., Panchuck V. <http://www.esrf.eu/Instrumentation/software/data-analysis/OurSoftware/REFTIM-1>.
21. Борздов Г.Н., Барковский Л.М., Лаврукович В.И. // Журнал прикладной спектроскопии. 1976. **25**. С. 526.
22. Аззам Р., Башара Н. Эллисометрия и поляризованный свет. Пер. под ред. А.В. Ржанова и К.К. Свиташева. Глава IV, § 5.7. М.: Мир, 1981. (Azzam R., Bashara N. Ellipsometry and Polarized Light. North-Holland P.C., 1977.)
23. Андреева М. А., Посете К. // Вестн. Моск. ун-та. Физ. Астрон. 1986. **27**, № 3. С. 57.
24. Irkaev S.M., Andreeva M.A., Semenov V.G. et al. // *Nuclear Instrum. and Methods in Phys. Res.* 1993. **B74**, P. 554.
25. Ustinov V. V., Milayev M. A., Romashev L. N. et al. // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* 2006. **300**. e281.

**Polarization Analysis for the Interpretation of Poorly Resolved Synchrotron Mössbauer Spectra****R.A. Baulin<sup>1,2,a</sup>, M.A. Andreeva<sup>1</sup>, A.I. Chumakov<sup>3,2</sup>, D. Bessas<sup>3</sup>, R. Rüffer<sup>3</sup>**<sup>1</sup>*Department of Physics, Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia*<sup>2</sup>*Kurchatov Institute National Research Center. Moscow 123182, Russia*<sup>3</sup>*ESRF-The European Synchrotron. Grenoble 38000, France**E-mail: [a\\_baulin.roman@physics.msu.ru](mailto:a_baulin.roman@physics.msu.ru)*

This work demonstrates the usage of polarization analysis of reflected radiation to reveal the contributions from magnetically ordered phases in poorly resolved Mössbauer spectra obtained with  $\pi$ -polarized radiation from the Synchrotron Mössbauer Source. The study was carried out for the cluster-layered structure [<sup>57</sup>Fe(0.08 nm)/Cr(1.08 nm)]<sub>30</sub>. As a result it was shown that only 16% of iron atoms are ferromagnetically ordered, the rest of the iron atoms are in spin glass state.

*Keywords:* Mössbauer spectroscopy, thin films, cluster structures.*PACS:* 76.80.+y, 75.70.Cn, 36.40.-c, 07.85.-m, 61.10.Kw.*Received 17 December 2021.*English version: *Moscow University Physics Bulletin. 2022. 77, No. 1. Pp. 57–60.***Сведения об авторах**

1. Баулин Роман Алексеевич — канд. физ.-мат. наук, науч. сотрудник; тел.: (495) 939-12-26, e-mail: [baulin.roman@physics.msu.ru](mailto:baulin.roman@physics.msu.ru).
2. Андреева Марина Алексеевна — доктор физ.-мат. наук, вед. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-12-26, e-mail: [mandreeval@yandex.ru](mailto:mandreeval@yandex.ru).
3. Чумаков Александр Игоревич — Dr., scientist in charge at ID18 beamline of ESRF; e-mail: [chumakov@esrf.fr](mailto:chumakov@esrf.fr).
4. Dimitrios Bessas — Dr., scientist at ID18 beamline of ESRF; e-mail: [dimitrios.bessas@esrf.fr](mailto:dimitrios.bessas@esrf.fr).
5. Rudolf Rüffer — Dr., scientist emeritus at ID18 beamline of ESRF; e-mail: [rueffer@esrf.fr](mailto:rueffer@esrf.fr).