

során hirtelen nagymértékben elkeskenyednek. Az átmenet előtti, már ismert, körülbelül $4,5 \mu\text{m}$ nagyságú domének legalább $30 \mu\text{m}$ körüli doménekké „fornak össze”. A durvult domének valószínűleg még ennél is jóval nagyobbak, de ennek megállapítását a berendezés felbontóképessége nem tette lehetővé.

Összefoglalás és köszönetnyilvánítás

A bemutatott példák meggyőzően bizonyítják, hogy a szinkrotronsugárzás súroló beesésű nukleáris rezonanciaszórása, a szinkrotron-Mössbauer-reflektometria az antiferromágnesesen csatolt multirétegek doménszerkezete tanulmányozásának hatékony eszköze. A diffúz SMR módszerével végzett doménszerkezeti vizsgálatok megmutatták, hogy az alkalmazott külső mágneses terek alkalmasan megválasztott sorozatával a domének mérete nagymértékben befolyásolható és tudatosan alakítható.

Az ismertetett eredmények elérésében igen fontos szerepet játszott a Leuveni Katolikus Egyetemen folytatott sok éves együttműködés. A mérések elvégzését az ESRF által rendelkezésre bocsátott nyalábidő, valamint

az ESRF munkatársainak aktív részvétele tette lehetővé. A kutatási projekt anyagi támogatásáért köszönet illeti az Országos Tudományos Kutatási Alapprogramokat (T 047094 sz. projekt), a Tét Alapítványt (B-2/02 sz. magyar-flamand projekt) és az Európai Bizottságot (a DYNASYNC konzorcium NMP4-CT-2003-001516 sz. STREP projektje).

Irodalom

1. P. GRÜNBERG, R. SCHREIBER, Y. PANG, M. B. BRODSKY, H. SOWERS – Phys. Rev. Lett. 57(1986) 2442
2. M.N. BAIBICH, J.M. BROTO, A. FERT, F. NGUYEN VAN DAU, F. PETROFF, P. EITENNE, G. CREUZET, A. FRIEDERICH, J. CHAZELAS – Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472
3. NAGY D.L. – Fizikai Szemle 47(1997) 150
4. DEÁK L., BOTTYÁN L., MAJOR M. – Fizikai Szemle 54 (2004) 372
5. M. MAJOR, D. AERNOUT, L. BOTTYÁN, A. CHUMAKOV, B. CROONENBORGHES, L. DEÁK, B. DEGROOTE, J. DEKOSTER, O. LEUPOLD, J. MEERSCHAUT, D.L. NAGY, R. RÜFFER, J. SWERTS, E. SZILÁGYI, F. TANCZIKÓ, K. TEMST, V. VANHOOF, A. VANTOMME – közlés előtt
6. L. BOTTYÁN, L. DEÁK, J. DEKOSTER, E. KUNNEN, G. LANGOUCHE, J. MEERSCHAUT, M. MAJOR, D.L. NAGY, H.D. RÜTER, E. SZILÁGYI, K. TEMST – J. Magn. Magn. Mater. 240 (2002) 514
7. D.L. NAGY, L. BOTTYÁN, B. CROONENBORGHES, L. DEÁK, B. DEGROOTE, J. DEKOSTER, H.J. LAUTER, V. LAUTER-PASYUK, O. LEUPOLD, M. MAJOR, J. MEERSCHAUT, O. NIKONOV, A. PETRENKO, R. RÜFFER, H. SPIERING, E. SZILÁGYI – Phys. Rev. Lett. 88 (2002) 157202

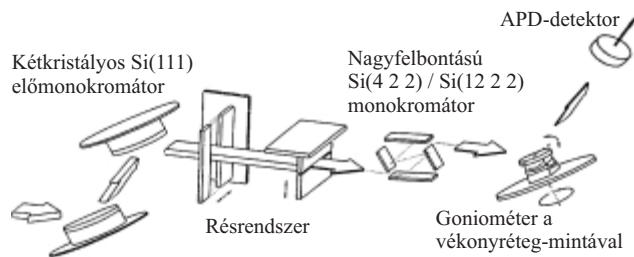
VÉKONYRÉTEGEK SZINKROTRON-MÖSSBAUER-REFLEKTOMETRIAI VIZSGÁLATA STROBOSZKÓPOS DETEKTÁLÁSSAL

Deák László, Bottyán László, Major Márton
KFKI Részecske és Magfizikai Kutatóintézet

A γ -fotonok visszalökődésmentes magrezonancia-abszorpciójának (szórásának) jelenségét *Mössbauer-spektroszkópia* néven csaknem fél évszázada alkalmazzák az anyagtudományban. Az idők során e spektroszkópiai módszer folyamatosan fejlődött, számos új ága jött létre. Ilyen új lehetőség, a *szinkrotronsugárzás* nukleáris rezonanciaszórása, amelyet kísérletileg először éppen húsz évvel ezelőtt sikerült megfigyelni. Ahogy az elnevezés mutatja, a Mössbauer-spektroszkópia hagyományos radioaktív forrása helyett alkalmazható tehát szinkrotronsugár-forrás is, kihasználva a szinkrotronsugárzás előnyös tulajdonságait. A szinkrotronsugárzás kis felületre fókuszálható óriási intenzitása jól használható kisméretű minták vizsgálata során, például a nagy nyomáson vagy vékonyrétegeken végzett kísérletekben. A szinkrotronsugárzás polarizáltsága lehetőséget ad a hiperfinom terek irányának meghatározására. A párhuzamos, jól kollimált nyalábszerkezetnek köszönhetően nemcsak előreszórási (transzmissziós), hanem például reflexiós geometriában is végezhetünk méréseket.

A vékonyréteg-kutatás szempontjából a nukleáris rezonanciaszórás *reflektometriai elrendezésben* való detek-

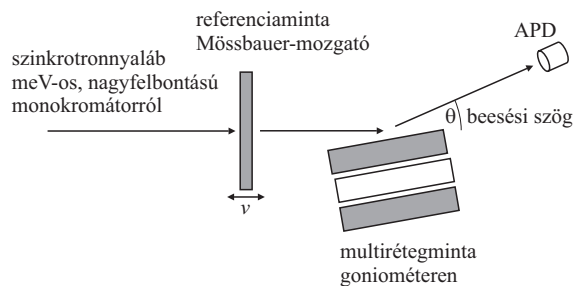
tálása rendkívül fontos, hiszen ekkor a Mössbauer-spektromokból kinyerhető szokásos, a hiperfinom-kölcsönhatásokra vonatkozó információk *mélységselektív* meghatározására is lehetőségünk van. A mélységselektivitást elméletileg a fotonok hullámhossza korlátozza, ami az általában használt rezonanciaenergiákra atomi méretű (pl. a vas 57-es tömegszámú izotópja $E = 14,4 \text{ keV}$ -os Mössbauer-átmenetére $\lambda = 0,086 \text{ nm}$). A hiperfinom terek így kísérletileg is közelítőleg atomi felbontásban határozhatók meg. A szinkrotronsugárzás polarizáltságának köszönhetően pedig nemcsak a nagyságuk, hanem még az „irányuk” is kiértékelhető [1]. Mivel a röntgenhullámok tartományában az anyagok törésmutatója alig különbözik az egységtől, a rétegszerkezet szempontjából releváns beesési és visszaverődési szögek a felülettől mérve tipikusan 2 fok alattiak, azaz súroló beesésről beszélhetünk. Az irodalomban a nukleáris rezonanciaszórás alapuló fenti vékonyréteg-vizsgálati módszert *szinkrotron-Mössbauer-reflektometriának* (SMR) nevezzük. A módszert az elmúlt évtizedben KFKI RMKI Nukleáris Szilárdtestfizikai Osztályán számos nemzetközi együttműködés keretében fejlesztettük és alkalmaztuk [1, 2].



1. ábra. Az SMR-mérés sematikus kísérleti elrendezése

A szinkrotronsugár-forrással felvett spektrumok értelmezése lényegesen eltér a hagyományosan, radioaktív forrással felvett spektrumokétól. A radioaktív források 4π térszögben, véletlenszerűen sugároznak ki γ -fotonokat, melyeket kvázi-monokromatikus hullámoknak tekinthetünk. Ugyanakkor a szinkrotronnaláb 50–100 ps szélességű, periodikus impulzusokból áll, amelyek következőképpen nem monokromatikusak. Az időben keskeny nyaláboknak ugyanis energiában széles eloszlás felel meg. A nyaláb egyszerre gerjeszti a hiperfinom-kölcsönhatásoktól felhasadt nívók közötti Mössbauer-átmeneteket. A magok koherensen, a nívófelhasadásokra jellemző „lebegést” mutatva bomlanak le. A Mössbauer-spektroszkópia energiafüggő spektrumai helyett, szinkrotronsugár-forrás alkalmazása esetén tehát „idő-spektrumokat”, más kifejezéssel „idődifferenciális SMR-spektrumokat” mérhetünk. Az időspektrumok és az energiaspektrumok egymással Fourier-transzformációs kapcsolatban állnak, habár nem a mért intenzitások, hanem a szórási amplitúdók egymás Fourier-transzformáltjai. Az SMR kísérleti elrendezését az 1. ábrán mutatjuk be. A szinkrotronsugárzás réseken keresztül, elő-, majd nagyfelbontású monokromatizálás után éri el a goniométeren esetlegesen kriosztátban, és/vagy külső mágneses térben elhelyezett mintát. A szórt fotonok a spekuláris reflexiót követően a detektorba jutnak, amelynek jeleit idő-amplitúdó konverzió után a szinkrotronimpulzustól eltelt idő függvényében sokcsatornás analizátorban számláljuk.

Az előmonokromátor energiefelbontása 14,4 keV röntgenenergia körül jellemzően 10 eV, míg a nagyfelbontású monokromátoré néhány, esetleg néhány tized meV, tehát a mintára jutó nyaláb jelentős szélességben lefedi a hiperfinom-kölcsönhatások tipikusan 10 neV-os energiatartományát. Minthogy a fotonok a minta elektronjain a teljes energiatartományban szórást szenvedhetnek, és ezen nem rezonáns, elektronikusan szórt fotonok száma a valóban rezonánsan szórt fotonok számát 5–8 nagyságrenddel meghaladhatja, valamint mivel ezen a skálán további energiadiszkriminációra semmilyen detektor nem képes, a szinkrotron pulzált időstruktúráját kihasználva idő szerinti differenciálással választjuk ki a rezonáns fotonokat. A nem rezonáns, elektronikus szórás ugyanis *azonnali*, míg a rezonánsan is szórt fotonok *késleltettek*. Ezért manapság detektálásra a néhány ns időfelbontással rendelkező lavinadiódát (Avalanche Photo Diode – APD), illetve a más magélettartam-méréseknél is elterjedt gyors-lassú sémát használjuk. A szinkrotronimpulzust követő néhány detektorfelbontásnyi időn belül az elektronok által szórt,



2. ábra. A stroboszkópos SMR kísérleti elrendezése

ezután pedig a következő impulzus megérkezéséig a késleltetett fotonok detektálhatók.

A fentiek alapján háromféle reflektometriai mérést tudunk elvégezni. Az első mérés a már említett *idődifferenciális SMR*, ami rögzített beesési szög mellett az időspektrum meghatározását jelenti. Mivel általában nincs lehetőség elegendően sok beesési szögnél az idődifferenciális spektrum kellő statisztikával történő meghatározására, úgynevezett *időintegrális SMR*-méréseket is végzünk. Az időintegrális mérés során minden, a szinkrotronimpulzust követő adott időintervallumon belül érkező késleltetett foton detektálunk a beesési szög függvényében. Az időintegrális SMR-görbék fontos szerkezeti információkat hordoznak, megmutatják például, hogy milyen beesési szögeknél várható elegendően nagy beütésszám az idődifferenciális mérések során.

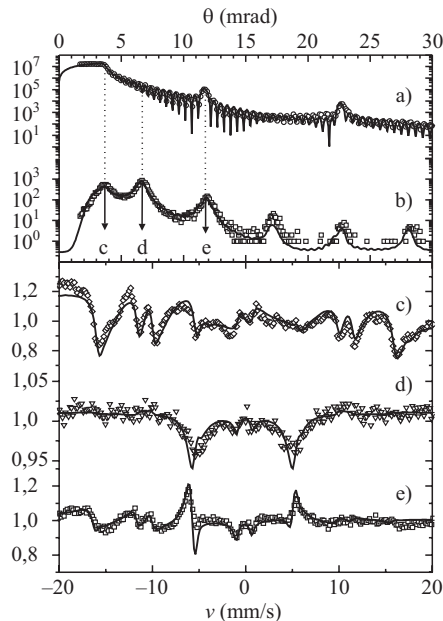
A harmadik típusú mérés a *prompt röntgen-reflektometria*, mely mérést az időintegrális spektrumok felvételével azonos időben is elvégezhetünk. Elterjedten az itt vázolt három különböző mérés együttes elvégzését és kiértékelését nevezzük *SMR-mérésnek*.

Az említett SMR-mérések kiértékelésénél problémát jelent, hogy a szokásos energiaspektrumok helyett relatíve bonyolult lefutású idődiagramokkal kell dolgoznunk. A leuveni egyetemen kidolgozott új módszer – a *stroboszkópos detektálás* – alkalmazásával a szinkrotronos méréseket is felvehetjük az energia függvényében [3, 4]. Ezek a spektrumok bizonyos értelemben hasonlóak a hagyományos Mössbauer-spektrumokhoz. (A stroboszkópia természetesen nem csak reflektometriai geometriában alkalmazható, de mi itt a reflektometria esetére szorítkozunk.) A stroboszkópos detektálás során a minta elé (vagy mögé) egy további abszorbenst, egy referenciamintát helyezünk Mössbauer-mozgatóra (2. ábra). Adott beesési szög esetén a spektrumok a gerjesztés óta eltelt időn kívül így a referenciaminta sebességétől is függenek. Az időintegrálás után tisztán sebességfüggő (azaz energiafüggő) spektrumokat kapunk, hiszen a mozgató a Doppler-effektus következtében a referenciaminta magnívóit az aktuális sebességnek megfelelően eltolja. A Mössbauer-spektroszkópiában az energiát sebességegységekben szokás megadni, ami a stroboszkópos detektálás használatával szinkrotronsugár-forrás alkalmazása mellett is lehetséges.

A stroboszkópos spektrumokkal kiválthatjuk tehát az idődifferenciális spektrumokat. Természetesen az adott kísérletben vizsgált probléma határozza meg, hogy az idődifferenciális vagy a stroboszkópos detektálási mód alkalmazása célszerűbb. Bonyolult kémiai szerkezetek

esetében a stroboszkópos detektálás lehet előnyösebb, hiszen közvetlenül a rezonanciavonalakat láthatjuk, míg a nagy pontosságot igénylő, de egyszerűbb szerkezetű anyagokon végzett méréseknél a referenciáminta elhagyása, azaz az idődifferenciális mérés a kedvezőbb.

A stroboszkópos SMR-mérések kiértékelésének elméletét a KFKI RMKI-ban dolgoztuk ki, míg ugyancsak mi végeztünk először ilyen típusú kísérletet a japán SPring-8 szinkrotronsugár-forrás rezonanciaszórás nyalábjánál. Az elv működőképességét bizonyítandó, egy MgO(001) hordozóra epitaxiálisan növesztett $[^{57}\text{Fe}(2,6 \text{ nm})/\text{Cr}(1,3 \text{ nm})]_{20}$ antiferromágneses multiréteg SMR-méréseit végeztük el. Az eredményeket a 3. ábrán mutatjuk be. A röntgenreflektogramot a 3.a ábrán láthatjuk. A görbén a rétegszerkezet periodicitása (Fe–Cr) következtében megjelenő első és másodrendű szuperrács Bragg-reflexiókat figyelhetjük meg, míg a gyors oszcillációk a teljes rétegvastagságnak megfelelő interferencia miatt fellépő Kieszig-oszcillációk. Az időintegrális SMR-görbét a 3.b ábrán mutatjuk. Az erős rezonanciaabszorpció miatt a teljes vastagságnak megfelelő oszcillációk ezen a spektrumon már nem figyelhetők meg. A 3.a ábrán látott Bragg-csúcsok itt is megjelennek, de a réteg-antiferromágnesség (és ennek következtében a szomszédos vasrétegek mágnesezettségének ellentétes irányú beállása) miatti cellaképződés további Bragg-csúcsokat is eredményez. Ennek az az oka, hogy a rezonáns fotonok elsősorban a minta hiperfinom mágneses tere tekintetében érzékenyek a rétegszerkezetre. Az első három csúcsot nyilakkal jelöltük meg. E csúcsok rendre: a teljes visszaverődés határ-szögénél fellépő csúcs (c), az antiferromágneses Bragg-csúcs (d), valamint a vas–króm periódusnak megfelelő, a 3.a ábrán is megjelenő, úgynevezett strukturális Bragg-csúcs (e). A stroboszkópos SMR-spektrumokat a fent említett három beesési szögnél vettük fel (3.c–e ábrák). A vas jól ismert rezonanciavonalain kívül (ebben az elrendezésben négy rezonanciavonalat várnánk $v = \pm 0,84 \text{ mm/s}$ és $v = \pm 5,31 \text{ mm/s}$ energiáknál) további rezonanciavonalak is fellépnek. Ennek az az oka, hogy a szinkrotronimpulzusok T_b periódusidővel követik egymást, ezért az ennek megfelelő h/T_b energia (ahol h a Planck-állandó) egész számú többszöröseivel a valódi rezonanciáktól eltérő energiákon (sebességeken) szintén rezonanciavonalak jelennek meg. Ezeket nevezzük stroboszkópos rezonanciavonalaknak. A kísérlet során $T_b = 8 \text{ ns}$ -os időablakot használtunk, ami a fentiek szerint körülbelül 10 mm/s sebességnek (energiának) felel meg, azaz a 3.c–e ábrákon a ± 1 -rendű stroboszkópos rezonanciákat is megfigyelhetjük. A 8 ns-os időablak az ^{57}Fe mágneses hiperfinom-spektrumának stroboszkópos rendjei már csaknem szeparáltak. Ennél rövidebb periódusidejű szinkrotronmódus azért nem használható, mert még nincsenek olyan gyors detektorok, hosszabbak pedig azért nem, mert a rendek jelentősen átfednének, és a mintára jellemző rezonanciaspektrumot elfednék. Azért kellett a méréseket a japán SPring-8 szinkrotronnál végezni, mert a világon csak ott van jelenleg a fenti kívánalmaknak megfelelő időstruktúrával rendelkező szinkrotronnaláb. A figyelmes olvasónak szembeötlő, hogy a 3.c ábrán a stroboszkópos rezonanciák dominálnak, míg a 3.d ábrán



3. ábra. $[^{57}\text{Fe}(2,6 \text{ nm})/\text{Cr}(1,3 \text{ nm})]_{20}$ antiferromágneses multiréteg röntgen-reflektometriai (a), időintegrális SMR- (b) és stroboszkópos SMR-spektrumai. A (c), (d) és (e) spektrumok a nyilakkal jelölt beesési szögek felvett méréseket mutatnak.

szinte meg sem figyelhetők, szinte csak a központi Mössbauer-vonalakat láthatjuk. Szintén érdemes észrevenni a 3.c és 3.e spektrumok $+1$ és -1 stroboszkópos rendjeinek intenzitásában mutatkozó különbséget. Mindezek pontos magyarázatát a [5] hivatkozásban, a stroboszkópos SMR elméletét ismertető közleményünkben adjuk meg.

A stroboszkopikus SMR-méréseket *szimultán* értékeltük ki, a 3. ábrán a folytonos vonalak ennek az illesztésnek felelnek meg. Modellünkben az ötvözetlen α -vasban mérhető szobahőmérsékleti hiperfinom teret a szomszédos rétegekben ellentétes irányúnak rögzítettük. Az elektronikus törésmutatókat szintén az irodalmi értékre rögzítettük, és a periodikus szerkezetben csupán a vas- és krómréteg vastagságát és a felületi, felületközi érdességeket és a hiperfinom tér nagyságát hagytuk illesztendő paraméternek. Figyelembe véve az elmélet bonyolultságát, valamint több független mérés szimultán illesztését, az illeszkedés igen jónak mondható.

Az SMR a vékonyréteg-kutatások bár speciális, de rendkívül hasznos eszköze. Ahogy a Mössbauer-spektroszkópiának is számos változata alakult ki, úgy a szinkrotronsugárzás nukleáris rezonanciaszórását kihasználó módszerek is rendkívüli ütemben fejlődnek. Fenti példában egy új alkalmazás, a stroboszkópos SMR működőképességét demonstráltuk.

Irodalom

1. E. GERDAU, H. DE WAARD – Hyperfine Interact. 123–125 (2000) a tématerület összefoglaló cikkeinek gyűjteménye
2. L. DEÁK, L. BOTTYÁN, D.L. NAGY, H. SPIERING – Physica B 297(2001) 113–117
3. R. CALLENS, R. COUSSEMENT, C. L'ABBE, S. NASU, K. VYVEY, T. YAMADA, Y. YODA, J. ODEURS – Phys. Rev. B 65 (2002) 160404(R)
4. R. CALLENS, R. COUSSEMENT, T. KAWAKAMI, J. LADRIERE, S. NASU, T. ONO, I. SERDONS, K. VYVEY, T. YAMADA, Y. YODA, J. ODEURS – Phys. Rev. B 67(2003) 104423