Tartalomjegyzék

Tézisek **3**

Bevezetés **5**

1 A szórásprobléma tárgyalása **10**

1.1 A nukleáris szuszceptibilitástenzor 10

1.2 Az elektronikus szuszceptibilitástenzor 14

2 Hullámterjedési modellek **15**

2.1 A Blume–Kistner-elmélet 16

2.2 A Born–Wolf-féle mátrixmódszer 19

2.3 A BBL-formalizmus 22

3 A BBL-formalizmus alkalmazása a röntgenoptikában **27**

3.1 Az előreszórás tárgyalása — kapcsolat
a Blume–Kistner-féle elmélettel 29

3.2 A súroló beesés tárgyalása 31

3.2.1 A differenciális terjedési mátrix 32

3.2.2 A karakterisztikus mátrix és a reflektivitás 35

3.2.3 Numerikus számítások 38

3.2.4 A felületi érdesség 39

4 Opikai formalizmusunk alkalmazása a neutronreflektometriában 49

4.1 A neutronszórás tárgyalása 50

4.2 Optikai formulák 54

4.3 A külső mágneses tér hatása a reflektivitásra 56

4.4 A "négyestörés" jelensége 57

5 Mössbauer-mérések szinkrotronforrással 61

5.1 Az időspektrumok értelmezése 61

5.2 A kísérleti berendezés ismertetése 63

6 Alkalmazások — kísérletek 66

6.1 Előreszórás 66

6.2 Súroló beesés 68

6.2.1 ^{57}Fe/^{56}Fe izotóp periodikus rétegek optimalizálása 68

6.2.2 A totálreflexiós csúcs 77

6.2.3 Mintapreparáció — minősítés 78

6.2.4 Nukleáris Bragg-csúcs észlelése ^{57}Fe/^{56}Fe multirétegen 81

6.2.5 ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg *SMR* és neutronreflektometriai vizsgálata 84

6.2.6 Fe/FeSi multiréteg *SMR* mérése 87

Összefoglalás 94

Summary 96

A A BBL-formalizmus alapegyenletének levezetése 99

B A reflektivitásformula levezetése 102

C Kapcsolat a dinamikus elmélettel 105

Irodalomjegyzék 108

Tézisek

Deák László: "A szinkrotronsugárzás nukleáris rezonanciaszórása vékonyrétegeken, súroló beesésben"

témavezető: Nagy Dénes Lajos egyetemi tanár

1. Kidolgoztam a Mössbauer-reflektometria (*MR*) egy kiértékelési formalizmusát. Megmutattam, hogy ezen általános elmélet az előreszórás esetére a Blume–Kistner-féle formulákat adja vissza, míg súroló beeséses esetben egy rendkívül hatékony numerikus algoritmust eredményez.

   a) Igazoltam az Andrejeva-féle közelítést, megadtam annak érvényességi korlátait és megbecsültem hibáját.

   b) Igazoltam, hogy a dinamikus elmélet a súroló beeséses határesetben formalizmusunkkal ekvivalens eredményt ad.

   c) Másodrendben meghatároztam a rétegek felületi és felületközi érdességét leíró korrekciós faktorokat.

   d) Számítógépes programot készítettem, mely programmal hozzájárultam egy általános *MR* kiértékelő program elkészítéséhez.

2. Alkalmaztam az előző tézispontban szereplő optikai formalizmust a neutronreflektometriára, ezzel a polarizációfüggő neutronreflektometria legáltalánosabb eseteiben is (pl. külső mágneses térben elhelyezkedő nem párhuzamos mágneses momentumú rétegszerkezetekre) alkalmazható hatékony algoritmust adtam meg.

3. Elméletileg megjósoltam egy, az elektronikus és a nukleáris szórás interferenciájának következtében a szinkrotron Mössbauer-reflektometria (*SMR)* időintegrális reflektivitásspektrumain az elektronikus totálreflexió határszögénél megjelenő csúcs létét.

Rámutattunk e csúcs *SMR* mérésekben játszott gyakorlati szerepére és kvalitatív magyarázatot adtam a csúcs létére vonatkozóan.

4. Az izotóp periódikus multirétegekre jellemző nukleáris Bragg-csúcs észlelhetősége szempontjából optimális ^{56}Fe/^{57}Fe mintákat terveztem, mely mintákat MBE technika segítségével készítettünk el. Elsőként sikerült izotóp periódikus ^{56}Fe/^{57}Fe multirétegen *SMR* segítségével tiszta nukleáris Bragg-csúcsot kimutatnunk. Elvégeztem a neutronreflektometriai és az *SMR* spektrumok kiértékelését.

5. Antiferromágneses ^{57}Fe/FeSi multiréteget vizsgáltunk *SMR* segítségével. A kiértékelő programmal meghatároztam a hiperfinom mágneses terek irányát, és ennek alapján modellt alkottunk a multiréteg mágneses szerkezetére és a csatolásokra.

Bevezetés

A vékonyrétegek kutatása az anyagtudomány egyik fontos területe. Számos olyan módszert ismerünk, amely néhány nanométeres felbontással képes a felületközeli tartományok elemösszetételéről információt adni, míg a kémiai kötésekre érzékeny módszerek általában vagy csak felületi, vagy csak tömbi információkat nyújtanak. Ez utóbbi csoport egyik — kiváló energiafelbontású — képviselője a hagyományos Mössbauer–spektroszkópia (*MS*), melynek konverziós elektronok detektálásán alapuló változata (*CEMS*) mélységszelektívvé tehető ugyan (*DCEMS*), de e módszer felbontóképessége tipikusan $30 - 50$ nm. A vékonyréteg-technológia ugyanakkor közel atomi pontosságú felületekkel rendelkező rétegek, rétegszerkezetek előállítására is képes. Az ilyen anyagok tanulmányozása szempontjából fontos lehet egy, a kémiai kötésekre érzékeny, ugyanakkor nagyfelbontóképességű módszer.

A Mössbauer–spektroszkópia mélységszelektívvé tehető, ha a hagyományos transzmissziós geometriát — a forrás, a minta (abszorbens) és a detektor egy egyenesbe való elrendezését — felcseréljük a minta felületéről reflektált nyaláb észlelésén alapuló, ún. reflektometriai elrendezéssel. Ebben az esetben egy új paraméter jelenik meg, ti. a minta felülete és a beeső fotonnyaláb által bezárt szög, az ún. "súroló beesés szöge". Az elnevezést az indokolja, hogy ez a szög a gyakorlati esetetekben tipikusan $1 - 10$ mrad közötti értékeket vesz fel, azaz a bejövő nyaláb szinte súrolja a minta felületét. A reflektometriából tudjuk, hogy a totálreflexiós tartományt elhagyva a reflektált intenzitás gyorsan csökken. 14 keV körüli γ-sugárzás (^{57}Co Mössbauer-forrás) esetén szinte valamennyi anyagra a totálreflexió szöge $2 - 5$ mrad között van (pl. vas esetén 3.8 mrad),

így a 10 mrad-os beesési szögre már akár $4-5$ nagyságrendnyit is eshet a reflektivitás, ezért az is érthető, miért csak az $1-10$ mrad közötti szögtartomány érdekes a mérések és így az elmélet szempontjából is. A mélységszelektivitást kvalitatíve könnyen megérthetjük, hiszen a súroló beesés szögét változtatva a behatolási mélység is változik. A totálreflexió szögének közelében a behatolási mélység kicsi, csak a felületről kapunk információt. A beeső nyaláb felülettel bezárt szögét növelve egyre mélyebben fekvő tartományok tanulmányozhatók, így lépésről lépésre rekonstruálhatjuk a hiperfinom (*HF*) tereket a mélység függvényében. A Mössbauer–spektroszkópia ezen ága, amellyel mi is foglalkozni kívánunk a Mössbauer–reflektometria (*MR*). Az irodalomban használják még a *GIMS* (Grazing Incidence Mössbauer Spectroscopy) elnevezést is, amely jelenti azonban a spekulárisan reflektált fotonok mellett a konverziós elektronok (*TERCEMS*) és az inkoherens γ-fotonok, valamint a konverziós röntgen-fotonok detektálását is.

A *GIMS*-mérések esetén még egy problémával is szembe kell néznünk. Az előző bekezdésben említett felbontás csak akkor érhető el, ha a beesés szöge jól definiált, tehát megfelelően kollimált nyalábot kell használnunk. A kollimációs térszögveszteség miatt a hagyományos Mössbauer–forrásunk intenzitásának csak $10^{-5}-10^{-6}$ részét tudjuk kihasználni az ilyen mérésekben. E kísérlet rendkívül költséges, mivel csak nagyon intenzív, különleges források használhatók és egyetlen spektrum felvétele is több hónapba telhet, ugyanakkor a ^{57}Co felezési ideje csupán 270 nap.

A szinkrotronsugárzás forrásként való alkalmazása új távlatokat nyitott a Mössbauer–spektroszkópiában. Jelentősége nemcsak abból fakad, hogy intenzitása — a lézerforrásokat leszámítva — nagyságrendekkel nagyobb az egyéb használatos források intenzitásánál, hanem különleges tulajdonságai, mint polarizáltság, kollimáltság, kis nyalábméret, nagy longitudinális koherenciahossz, stb. további lehetőségeket adnak számunkra. Alig tíz évvel az ötlet 1974-es felvetése [1] után a hamburgi *DESY*-ben Gerdau és kutatócsoportja a gyakorlatban is bebizonyították a szinkrotronsugárzás Mössbauer-forrásként való alkalmazhatóságát [2]. Az akkori néhány mHz-es észlelési sebességgel szemben, mára már több–száz Hz/Γ_0-al detektálhatók a rezonáns fotonok Hamburgban

(Γ_0 a ^{57}Fe gerjesztett állapotának természetes vonalszélessége); de a nemrég beindított grenoble-i szinkrotronban, az *ESRF*-ben, már a kHz/Γ_0 körüli sebesség jellemző. Különösen nagy lépést jelentett a szinkrotronsugárzás használata az *MR*-ben, mely módszert szinkrotron Mössbauer–reflektomeriának (*SMR*) is nevez az irodalom.

Az utóbbi évek nemzetközi Mössbauer–konferenciáinak egyik legnagyobb érdeklődést kiváltó témája a szinkrotronsugárzás nukleáris rezonanciaszórása. A szinkrotronforrással egy csapásra lehetővé váltak korábban elképzelhetetlen alkalmazások, úgymint az általában kis effektív vastagságú biológiai minták *MS*-vizsgálata és megoldódott a *GIMS* forrásproblémája is. Az *MR*-spektrumok értelmezése azonban számos elméleti problémát is felvet.

A Mössbauer–kísérletek túlnyomó többségében polikristályos anyagokat vizsgálnak külső mágneses tér alkalmazása nélkül. Az ilyen esetekben a γ-sugarak polarizációja nem játszik szerepet, a Mössbauer–spektrum a rezonáns és nem rezonáns abszorpcióval írható le, a rezonanciaabszorpciós hatáskeresztmetszet a *HF* kölcsönhatások paramétereivel fejezhető ki. Ez a naiv megközelítés nyilvánvalóan hibás, ha a mérést egykristályon vagy textúrált mintán végezzük ill. külső mágneses tér van jelen. Ez utóbbi esetekben a rezonancia–hatáskeresztmetszet függ a polarizációtól, a teljes polarizációfüggő szórási problémát kell megoldani. A szórási problémaként való tárgyalás numerikus problémái a véletlenszerűen elhelyezkedő nagyszámú szórócentrum miatt lépnek fel. Ezek a problémák elkerűlhetővé válnak, ha a mikroszkópikus szóráselmélet helyett a klasszikus optikát alkalmazzuk. Mivel a szórócentrumok átlagos távolsága általában nagyobb, mint a szórt sugárzás hullámhossza, ezért semmiképpen nem triviális, hogy a kondenzált anyagokban a γ-sugarakra az ilyenfajta optikai tárgyalás alkalmazható. Lax azonban megmutatta, hogy skalárhullámok esetében egy közel egységnyi n törésmutató definiálható, amely egyszerűen kifejezhető az f koherens előreszórási amplitúdóval [3]. Az ily módon bevezetett törésmutatót használták fel Blume és Kistner az *MS* polarizációfüggő jelenségeinek tárgyalásakor. A Lax által bevezetett törésmutatót a polarizációfüggő esetre általánosították, elegáns optikai formalizmust vezettek le [4].

Súroló beesés esetén klasszikus optikai képünknek egy 3×3-as törésmutató felelne meg, a Blume és Kistner által használt 2×2-es törésmutatót nem tudjuk alkalmazni. Ezt a problémát látva nyilvánvaló, hogy az *MR* esetében különleges optikai modellre van szükség. A γ-fotonok rezonáns magokon való szóródását Afanaszjev és Kagan vizsgálták [14]. Eredményük értelmében a véletlenszerűen elhelyezkedő szórócentrumok rendszere helyettesíthető egy kontinuum, anizotrop dielektrikummal, mely dielektrikumot egy 3×3-as szuszceptibilitástenzorral jellemezhetünk. E szuszceptibilitástenzorból kiindulva M. Andrejeva és munkatársai egy elegáns anizotrop optikai modellt [15] alkalmazva, kidolgozták a súroló beeséses *MR* kiértékelésének klasszikus optikai elméletét [11, 12, 13]. Ez a módszer azonban — különösen a magasabb multipolaritású átmenetek, vagy textúrált minták esetében — bonyolulttá, numerikusan nehezen kezelhetővé válik, mivel a nukleáris áramsűrűség mátrixelemeinek közvetlen számításával bonyolult tenzorformalizmust eredményez.

A γ-fotonok szórásfolyamatát Hannon és munkatársai ugyancsak vizsgálták [17, 18, 19]. A γ-sugárzás kvantumelméletéből kiindulva a mössbaueroptika dinamikus elméletét származtatták le, mely formalizmus a Röntgen-diffrakció dinamikai elméletével analóg; annak polarizációfüggő általánosítása. Mivel a dinamikai elmélet a hullámamplitúdókra — az általában nagyszámú — rácssíkról–rácssíkra felírt egyenletrendszer megoldásával dolgozik, rendkívül lassú számítástechnikai algolritmusokat tesz csak lehetővé. Az ilyen programok csak szimulációra használhatók, velük az *MR* spektrumok illesztése nem lehetséges. A dinamikai elmélet súroló beeséses határeseteként a klasszikus optika vezethető le [18, 20]. Ezen az úton R. Röhlsberger fejlesztett ki klasszikus optikai kiértékelő programot [24]. A program azonban kényelmetlen, mivel a nem kovariáns formalizmus miatt a sajátpolarizációs irányok meghatározásával dolgozik. A sajátpolarizáció iránya azonban rétegenként más és más lehet.

A legjobb egykristály *channel cut* monokromátorok sávszélessége kb. 5 meV, mintegy 10^6-szor nagyobb, mint az ^{57}Fe 14.41 keV-os gerjesztett állapotának szélessége. Fontos lenne olyan monokromátorokat kifejleszteni, amelyek sávszélessége a *HF* felhasadások

(1 μeV) nagyságrendjében van. A *GIAR* (Garzing Incidence Antireflection) filmek mellett az izotóp periodikus multirétegek elvben szintén lehetőséget adnak e monokromátorok megvalósítására. Ilyen eszközt Csumakov és Szmirnov javasoltak [23], azonban az általuk tervezett ^{57}Fe/^{56}Fe izotóp–periodikus szerkezeteken a nukleáris Bargg-csúcsot — valószínűleg mintapreparációs okokból — nem sikerült kimutatni.

A dolgozat első fejezetében a nukleáris szórásproblémát tárgyaljuk, felírjuk a szuszceptibilitástenzort. A második fejezetben áttekintjük a jelenleg használatos optikai módszereket, majd a harmadik fejezetben ismertetjük saját optikai formuláinkat. A negyedik fejezetben megmutatjuk, hogy optikai eljárásunk a polarizációfüggő neutronreflektometriában is alkalmazható. Az ötödik fejezetben szinkrotronos mérésekkel foglalkozunk, megmutatjuk a hagyományos energia- és időspektrumok kapcsolatát. A hatodik fejezetben néhány mérésen keresztül demonstráljuk a kifejlesztett módszerek működőképességét.

1. fejezet

A szórásprobléma tárgyalása

1.1 A nukleáris szuszceptibilitástenzor

Tekintsük a magok és az elektromágneses tér együttesét, mint kölcsönható rendszert. Az elektromágneses (EM) teret mint perturbációt vesszük figyelembe a véletlenszerűen elhelyezkedő magok rendszerén. Egyszerűség kedvéért az ugyancsak jelenlévő elektronok hatásával most nem foglalkozunk, de a későbbiekben szerepükre még visszatérünk. A magok és az EM-tér közti kölcsönhatás Hamilton-operátorát, H-t a következő alakban írhatjuk fel:

$$H = -\frac{1}{c}\sum_i \mathbf{j}(\mathbf{r}_i)\cdot\mathbf{A}(\mathbf{r}_i), \tag{1.1}$$

ahol $\mathbf{j}(\mathbf{r}_i)$ az i-ik nukleon áramsűrűsége, $\mathbf{A}(\mathbf{r}_i)$ pedig az elektromágneses tér vektorpotenciálja az $\mathbf{r}_i$ pontban. A vektorpotenciál szokásos kifejtését használva:

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}_i) = \sum_{k,p}\left(\frac{2\pi\hbar c}{Vk}\right)^{1/2}\left\{c_{\mathbf{k},p}\hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{k},p}\exp\left(i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i\right) + \text{H.c.}\right\}. \tag{1.2}$$

Ebben a kifejezésben $c_{\mathbf{k},p}$ a foton abszorpcióoperátora, $\hat{\mathbf{u}}_{\mathbf{k},p}$ pedig a polarizációs bázisunk egységvektorait jelöli. Vezessük be a σ és π polarizációkat a szokásos módon. Abban az esetben, ha $\mathbf{E}$-nek csak a beesési síkra merőleges komponense van σ, ha csak azzal párhuzamos komponense van π polarizációról beszélünk. (E σ,π bázis azért célszerű, mert

— mint tudjuk — a szinkrotronsugárzás többnyire lineárisan poláros. Természetesen tetszőleges bázist használhatunk.)

Kezdetben tekintsünk egyetlen, az elektromágneses térrel kölcsönható magot. Vizsgáljuk a legegyszerűbb folyamatot, melynek során egy foton elnyelődésével a mag gerjesztődik. A mag I_g spin, ill. m_g mágneses kvantumszámokkal jellemzett állapotából az I_e, m_e állapotba megy át; eközben a tér a $\mathbf{k}$ impulzusú és p polarizációjú egyfotonállapotából, a vákuumállapotába kerül. Írjuk fel a Hamilton-operátor mátrixelemeit ezen átmenetre vonatkozóan! Az (1.1) és az (1.2) egyenleteket használva a mátrixelemek:

$$\begin{aligned} H^{\mathbf{k},p}_{m_g m_e} &= \left(\frac{2\pi\hbar c}{Vk}\right)^{1/2} \left\langle I_g m_g\, \mathbf{k}p \left| \sum_i \left(-\frac{1}{c}\right) \mathbf{j}\left(\mathbf{r}_i\right) \cdot \widehat{\mathbf{u}}^*_{\mathbf{k},p} c^\dagger_{\mathbf{k},p} \exp\left(-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i\right) \right| I_e m_e \right\rangle \\ &= -\frac{1}{c}\left(\frac{2\pi\hbar c}{Vk}\right)^{1/2} \widehat{\mathbf{u}}^*_{\mathbf{k},p} \cdot \mathbf{J}_{m_g m_e}(\mathbf{k}), \end{aligned} \tag{1.3}$$

ahol bevezettük a $\mathbf{k}$-reprezentációbeli $\mathbf{J}(\mathbf{k})$ áramsűrűségoperátort, melynek mátrixelemei a következők:

$$\mathbf{J}_{m_g m_e}\left(\mathbf{k}\right) = \left\langle I_g m_g \left| \sum_i \mathbf{j}\left(\mathbf{r}_i\right) \exp\left(-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_i\right) \right| I_e m_e \right\rangle . \tag{1.4}$$

Az (1.3) kifejezésben a Hamilton-operátor mátrixelemei előálltak az $\widehat{\mathbf{u}}^*_{\mathbf{k},p}$ (komplex konjugált) polarizációs vektorok és az áramsűrűségoperátor $\mathbf{J}_{m_g m_e}\left(\mathbf{k}\right)$ mátrixelemeinek skalárszorzataként.

Térjünk vissza a térben véletlenszerűen eloszló magok rendszeréhez! Az elektromágneses térben vett elsőrendű perturbációszámítást alkalmazva, felírhatjuk az áramsűrűség-mátrixelemek elsőrendű korrekcióit. Átlagolva a kvantumállapotokra és a magok eloszlását figyelembe véve a koordinátatérre azt kapjuk, hogy az áramsűrűség elsőrendű korrekciója lineáris kapcsolatban van az elektromos térerősséggel; célszerűen választva a mértéket (a skalárpotenciált zérusnak választva), magával a vektorpotenciállal [14]:

$$\left\langle \mathbf{J}^{(1)}\left(\mathbf{k}\right) \right\rangle = \sigma\left(\mathbf{k}\right)\, \mathbf{E}\left(\mathbf{k}\right) = \frac{i\omega}{c}\sigma\left(\mathbf{k}\right)\, \mathbf{A}\left(\mathbf{k}\right). \tag{1.5}$$

A $\sigma(\mathbf{k})$ arányossági tényező a vezetési tenzor (konkrét alakját lásd később), az (1.5) kifejezésben tehát a differenciális Ohm-törvényre ismerhetünk rá. Ezt az eredményt úgy is megfogalmazhatjuk, hogy a véletlenszerűen eloszló magok diszkrét rendszere a szórási folyamat szempontjából ekvivalens egy kontinuum eloszlású dielektrikummal, melynek elektromos szuszceptibilitását a következő alakban írhatjuk fel:

$$\chi(\mathbf{k}) = \frac{4\pi i}{\omega}\sigma(\mathbf{k}). \tag{1.6}$$

Meg kell jegyezzük, hogy a röntgentartományban az anyagok dielektromos állandója csak mintegy $10^{-5} - 10^{-6}$ -al különbözik 1-től, így célszerű az ε dielektromos tenzor helyett a $\chi = \varepsilon - 1$ összefüggéssel értelmezett szuszceptibilitástenzort használni (1 itt természetesen az egységtenzort jelenti).

A χ szuszceptibilitástenzort Afanaszjev és Kagan adták meg:

$$\chi(\mathbf{k}) = -\frac{4\pi}{c^2k^2}\frac{N}{2I_g+1}\sum_{m_e m_g}\frac{\mathbf{J}_{m_g m_e}(\mathbf{k}) \circ \mathbf{J}^*_{m_e m_g}(\mathbf{k})}{E_{\mathbf{k}} - E_{m_e m_g} + \frac{i\Gamma}{2}}. \tag{1.7}$$

N az egységtérfogatban lévő rezonáns magok száma, $E_{\mathbf{k}}$ a bejövő γ-fotonok energiája, $E_{m_e m_g} = E_{m_e} - E_{m_g}$ a nukleáris gerjesztett és alapállapotok energiájának különbsége, Γ a gerjesztett állapot természetes vonalszélessége [14]. A "$\circ$ " jellel a vektorok diadikus, vagy más szóval tenzorszorzatát jelöltük. A $\chi(\mathbf{k})$ szuszceptibilitástenzor a bejövő, nem perturbált hullám $\mathbf{k}$ hullámszámvektorától függ. Ha a magok térbeli elhelyezkedése szabályos, akkor az (1.5) egyenlet helyett a $\left\langle \mathbf{J}^{(1)}(\mathbf{k}) \right\rangle = \sum_{\mathbf{K}} \sigma(\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{K})\ \mathbf{E}(\mathbf{k}+\mathbf{K})$ kifejezés érvényes [14], ahol $(2\pi)^{-1}\mathbf{K}$ az adott szimmetriának megfelelő reciprokrács–vektor. A továbbiakban mi csak a véletlenszerű eloszlású szórócentrumok esetével foglalkozunk, a diffrakciós jelenségeket nem tárgyaljuk, azokat eleve elhanyagoljuk, csak az előreszórás és a súroló beesés eseteit tárgyaljuk.

Az (1.7) kifejezés lehetővé teszi, hogy a szórási folyamatot optikai jelenségként értelmezzük. Ezt a modellt először M. Andrejeva alkalmazta a súroló beeséses Mössbauer-spektroszkópia elméletében [12]. Az (1.7) kifejezést alapegyenletnek tekintve, $\mathbf{J}_{m_g m_e}$

mátrixelemek közvetlen számításával kapott χ szuszceptibilitástenzort egy anizotrop optikai formalizmusba [15] helyettesítette, s ily módon a szóráspróblémát reflektivitás-számítási feladatként oldotta meg, vékonyrétegek súroló beeséses spektrumainak számításakor.

A Hamilton-operátor (1.3) mátrixelemei, melyek a polarizációs vektorok és a $\mathbf{J}_{m_g m_e}$ áramsűrűség-mátrixelemek skalárszorzataként állnak elő, egyszerűbb transzformációs tulajdonságokkal rendelkeznek, mint $\mathbf{J}_{m_g m_e}$, ezért eltérően az Andrejeva-féle modelltől, a $\mathbf{J}_{m_g m_e}$ mennyiségek helyett az

$$f^{\mathbf{k},p\to\mathbf{k},p'} = -\frac{kV}{2\pi\,\hbar c}\frac{1}{2I_g+1}\sum_{m_e m_g}\frac{H^{\mathbf{k},p'}_{m_g m_e}H^{\mathbf{k},p}_{m_e m_g}}{E_{\mathbf{k}}-E_{m_e m_g}+\frac{i\Gamma}{2}} \tag{1.8}$$

koherens előreszórási amplitúdóval célszerű számolni [4, 25].

A következőkben meg fogjuk mutatni, hogy a dielektromos tenzor (szuszceptibilitástenzor) 3×3-as tulajdonságai az optikai elméletben nincsenek teljesen kihasználva. Mivel a szórási folyamat során fellépő $\mathbf{k}$-irányok vagy ekvivalensek (előreszórás esete), vagy közelítőleg megegyeznek (súroló beesés esete), a dielektromos tenzor releváns mátrixelemei kifejezhetők az előreszórási amplitúdó négy komponensével. Ez a tény biztosítja, hogy az általunk vázolt elmélet érvényes marad tetszőleges multipolaritású átmenetekre is.

Kifejezve a szuszceptibilitástenzort a perturbálatlan, vagyis a beeső hullám polarizációs vektorainak bázisán, azaz a $\mathcal{P} = (\widehat{\mathbf{e}}_{\sigma,\pi} = \widehat{\mathbf{u}}_{\sigma,\pi}\,,\ \widehat{\mathbf{e}}_3 = \mathbf{k}/\left|\mathbf{k}\right|)$ rendszerben, a szignifikáns mátrixelemek:

$$\chi_{pp'}\left(\mathbf{k}\right) = \frac{4\pi N}{k^2}f^{\mathbf{k},p\to\mathbf{k},p'} \quad p,\ p' = \sigma,\pi; \tag{1.9}$$

ahol σ és π a már bevezetett polarizációs bázison túl a koordinátarendszerünk első két tengelyét is jelöli (szignifikáns alatt azt értjük, hogy χ 9 komponense közül csak ez a négy jelenik meg a súroló beeséses esetben és az előreszórás esetén is; l. később a 3. fejezetben). Az (1.9) kifejezést úgy kaphatjuk meg, hogy (1.7)-et mindkét oldalról skalárisan szorozzuk az $\widehat{\mathbf{u}}$ polarizációs vektorokkal, majd felhasználjuk az (1.3) és az (1.8) egyenlőségeket. Ha a szuszceptibilitás– (dielektromos) tenzort az adott anyagra definiáltuk, az elektromágneses

hullámok terjedésének leírása pusztán optikai problémává válik. Mivel a nukleáris dielektrikum anizotrop, polarizációfüggő formalizmust kell alkalmaznunk.

1.2 Az elektronikus szuszceptibilitástenzor

Az előző pontban ismertetett elrendezésben természetesen a rezonáns járulékon túl az elektronok hatását is figyelembe kell vennünk. Ez a jól ismert Thomson-szórás, amely az (1.9) nukleáris szuszceptibilitáshoz egy izotrop, additív

$$\chi^{e}_{pp'} = \frac{4\pi N_e}{k^2}\left[-\left(Z+\Delta F_a\right) r_0 + \frac{i}{4\pi}\sigma_e k\right]\delta_{pp'} \tag{1.10}$$

tagot ad, ahol N_e az atomsűrűség, Z a rendszám, $r_0 = \frac{e^2}{mc^2}$ a klasszikus elektronsugár, σ_e a teljes abszorpciós hatáskeresztmetszet és ΔF_a az anomális szórási járulék [19].

Az (1.10) kifejezés a rezonanciától távoli tartományokban dominál, de mint a későbbiekben meg fogjuk mutatni, általában is különleges szerepet játszik (l. [DL2] és [7]). A számunkra érdekes esetekben, a rezonanciához közeli energiákra a $\chi^{e}_{pp'}$ mennyiséget energiafüggetlennek tekinthetjük. A továbbiakban az (1.10) szuszceptibilitást a χ szuszceptibilitástenzorba mindig beleértjük.

2. fejezet

Hullámterjedési modellek

Az 1.1. fejezetben beláttuk, hogy a magok és elektronok diszkrét rendszere a fotonok szórásának szempontjából helyettesíthető egy kontinuum, anizotrop dielektrikummal, amely az elektronikus szórási járulékot, mint izotrop additív tagot tartalmazza. Ez a tény lehetőséget ad arra, hogy a szórási problémát egyszerű optikai problémaként kezeljük és a Maxwell-egyenletekkel oldjuk meg. Szemléletesen ez azt jelenti, hogy olyan kényelmes fogalmakkal dolgozhatunk, mint beeső hullám, reflektált hullám, megtört hullám, stb. A súroló beesés esetében a mérések során detektált intenzitás a reflektált nyaláb intenzitása, míg előreszórás esetén az átbocsátott hullám intenzitását észlelhetjük. Optikai problémán ezért a továbbiakban a különböző rétegekre, rétegszerkezetekre vonatkozó reflektivitás ill. transzmittivitás számítását értjük. Ez a szemléletmód az előreszórásban jól ismert; a vastag minták polarizációs effektusait Blume és Kistner egy előreszórásra érvényes optikai formalizmussal vették figyelembe [4]. A vékonyrétegek reflektivitásának kiszámítására az optikában különböző mátrixmódszerek terjedtek el. Ezek célszerűségét az indokolja, hogy a különböző rétegekre definiált, ún. karakterisztikus mátrixok szorzataiként tetszőleges rétegszerkezetek karakterisztikus mátrixai állíthatók elő, melyek segítségével a reflektivitás- és transzmittivitás–számítások egyszerűen elvégezhetők bonyolult rétegszerkezetekre is. Izotrop esetben a Born–Wolf-formalizmus egy ilyen módszer [5], míg az anizotrop esetekre egy kevésbé ismert, de nagyon elegáns kovariáns módszert, a Borz-

dov, Barskovszki és Lavrukovics által közölt, BBL–formalizmust fogjuk ismertetni az alábbiakban [15].

2.1 A Blume–Kistner-elmélet

A hagyományos abszorpciós Mössbauer-spektroszkópia polarizációfüggő jelenségeit a Blume–Kistner-elmélet tárgyalja, ill. foglalja össze [4]. Vastag minták Mössbauer-spektrumainak kiértékelésekor a polarizációs jelenségek általában nem hanyagolhatók el, különösen nem, ha a forrás polarizált és az abszorbens egykristály vagy ha rá külső mágneses tér hat. Ennek szemléletes oka az, hogy a magok által elnyelt sugárzás újra emittálódik, közben polarizációs állapota megváltozhat. Az így kibocsátott sugárzás koherens a bejövő hullámmal, ezért a magok egy újabb rétegében a bejövő hullám már ez a módosult polarizációs állapotú nyaláb. Ez a többszörös szórási folyamat okozza a kettőstörést ill. a Faraday-rotációt a nukleáris rezonanciaabszorbció során.

A térben diszkréten elhelyezkedő szórócentrumok rendszerét M. Lax tanulmányozta [3]. Megmutatta, hogy abban az esetben, ha a szórócentrumok egyedi tulajdonságai nem változnak amiatt, hogy több szórócentrum is jelen van, ha pozíciójuk adiabatikus paraméterként kezelhető és a sebességük kicsi a hullám terjedési sebességéhez képest, továbbá ha a szóródó részecskék Schrödinger- vagy általában Laplace-egyenlettel írhatók le, a szórási folyamat szempontjából (a többszörös szórás esetét is beleértve) a szóró rendszer helyettesíthető egy homogén

$$n = 1 + \frac{2\pi N}{k^2} f^{\mathbf{k}\to\mathbf{k}} \tag{2.1}$$

törésmutatójú kontinuum–közeggel. A (2.1) kifejezésben N az egységtérfogatban lévő szórócentrumok száma, k a hullámszám és $f^{\mathbf{k}\to\mathbf{k}}$ a koherens előreszórási amplitúdó. Amennyiben a szóródó részecske hullámfüggvénye többkomponensű, akkor a kölcsönhatástól függően n tenzormennyiség lehet. Példának okáért egy mágneses mintán való neutronszórást vizsgálva a különböző módon polarizált neutronnyalábokra $f^{\mathbf{k}\to\mathbf{k}}$ is különböző,

ezért n célszerűen 2×2-es mátrixszal írható le.

Visszatérve eredeti problémánkhoz, Blume és Kistner a polarizácós állapot változásának az abszorbensben való követésére ugyancsak optikai eljárást alkalmaztak, mégpedig Lax [3] munkájára hivatkozva. A nukleáris szórás polarizációfüggése miatt a (2.1) törésmutatót, mint 2×2-es komplex mátrixot vezették be, az (1.8) koherens előreszórási amplitúdóval. Az abszorpciós Mössbauer-spektroszkópia kísérleti elrendezésének megfelelően a merőleges beesés esetére adták meg optikai formuláikat, tehát egy z-irányban terjedő hullámot vizsgáltak, melynek (a két független polarizáció miatt) kétkomponensű $|\psi(z)\rangle$ amplitúdója csak z-től függ. A hullámterjedést ekkor a

$$\left(\nabla^2 + n^2 k^2\right) |\psi(z)\rangle = 0 \tag{2.2}$$

egyenlet írja le (0 a kétkomponensű nullvektor), melynek megoldása

$$|\psi(z)\rangle = \exp(inkz)\,|\psi(0)\rangle \tag{2.3}$$

alakban írható fel (n a fentiekben bevezetett 2×2-es komplex törésmutató mátrixa). Az I intenzitást valamely z mélységben a

$$I(z) = \langle\psi(z)\,|\psi(z)\rangle = \langle\psi(0)|\exp\left(-in^{\dagger}kz\right)\exp(inkz)\,|\psi(0)\rangle \tag{2.4}$$

képlet alapján számítjuk. A részben polarizált hullámok tárgyalásához bevezetve a

$$\rho = \overline{|\psi(0)\rangle\langle\psi(0)|} \tag{2.5}$$

sűrűségmátrixot (felülvonással a polarizációs állapotokra való átlagolást jelöltük), az intenzitás kifejezését az

$$I(z) = \mathrm{Tr}\left[\exp(inkz)\,\rho\exp\left(-in^{\dagger}kz\right)\right] \tag{2.6}$$

alakra hozhatjuk. A (2.6) kifejezéssel tetszőleges polarizációs állapotú bejövő nyaláb tárgyalható.

Hogy a polarizációt is könnyen megkaphassuk a ρ sűrűségmátrixból, célszerű bevezetni a Poincaré-reprezentációt. Ehhez a (2.5) sűrűségmátrixot kifejtjük az egységmátrix és a három Pauli-mátrix segítségével:

$$\rho = \frac{1}{2}\left(1 + \mathbf{P}\cdot\sigma\right), \tag{2.7}$$

ahol $\sigma = (\sigma_\xi, \sigma_\eta, \sigma_\varsigma)$ a három Pauli-mátrixból képzett absztrakt vektor, mégpedig

$$\sigma_\xi = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_\eta = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_\varsigma = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \tag{2.8}$$

jelöléssel, továbbá $\mathbf{P} = (P_\xi, P_\eta, P_\varsigma)$ a kifejtési együtthatókból álló Poincaré-vektor

$$\mathbf{P} = \mathrm{Tr}\left(\sigma\rho\right), \tag{2.9}$$

amely szoros kapcsolatban áll a polarizációval. Könyen belátható pl., hogy ha a ρ sűrűségmátrixot cirkulárisan poláros bázison adjuk meg, $P_\xi = 1$ jelenti a balra, $P_\xi = -1$ pedig a jobbra cirkulárisan poláros hullámot, stb. Ha $|\mathbf{P}| = 0$, a nyaláb nempolarizált, míg $|\mathbf{P}| = 1$ estén teljesen polarizált. z mélységben a polarizációs állapot meghatározásához a (2.6)-hoz hasonló összefüggés származtatható [4]:

$$\mathbf{P}\left(z\right) I\left(z\right) = \mathrm{Tr}\left[\sigma \exp\left(inkz\right) \rho \exp\left(-in^\dagger kz\right)\right]. \tag{2.10}$$

A későbbiekban a Blume–Kistner-optikán a (2.6) és (2.10) kifejezéseket értjük.

2.2 A Born–Wolf-féle mátrixmódszer

Ahogyan azt a fentiekben már említettük, a nem előreszórási esetekben a Blume–Kistner-elmélet, pontosabban annak optikai része nem használható. Természetesen az (1.7) és az (1.9) kifejezések ekkor is lehetővé teszik, hogy a klasszikus optikát alkalmazzuk. Homogén rétegszerkezetek reflektivitásának, ill. transzmittivitásának meghatározására számos módszer létezik. Az egyik legegyszerűbb az ún. karakterisztikus mátrixok módszere, amely homogén és izotrop rétegszerkezetekre érvényes [5].

E formalizmus a (2.1) törésmutatóval használható, ha a polarizációs effektusokat elhanyagoljuk, vagy olyan geometriát választunk, amelyben a polarizáció nem játszik szerepet. Ilyen skalár-törésmutatóval számolhatunk például, ha a beeső nyaláb lineárisan poláros úgy, hogy az $\mathbf{E}$ elektromos térerősség merőleges a beesési síkra (σ polarizáció) és a minta ugyancsak a beesési síkra merőlegesen mágnesezett (egyéb *HF* terek pedig nem lépnek fel). Mindezen okokból most néhány szóban vázoljuk ezt az eljárást. A precíz levezetések az [5] munkában találhatók. Megjegyezzük még, hogy az anizotrop esetet tárgyaló 2.3 fejezetben bemutatandó módszernek a Born–Wolf-formalizmus speciális esete.

Tekintsünk egy izotrop, vonatkoztatási rendszerünk x- és y-irányában homogén, z-irányában azonban inhomogén rendszert, amelyben a töltéssűrűség mindenütt zéró. A Maxwell-egyenletek nyelvén fogalmazva az ε dielektromos állandó és a μ mágneses permeabilitás legyenek skalármenynyiségek (ε lehet komplex) és csak $\varepsilon = \varepsilon(z)$, ill. $\mu = \mu(z)$ függésük legyen. A Maxwell-egyenletekből közvetlenül kapjuk az $\mathbf{E}$ elektromos térerősségre vonatkozó egyenletet:

$$\nabla^2\mathbf{E} - \frac{\varepsilon\mu}{c^2}\ddot{\mathbf{E}} + \nabla \ln\mu \times \operatorname{rot}\mathbf{E} + \nabla\left(\mathbf{E}\cdot\nabla\ln\varepsilon\right) = 0. \tag{2.11}$$

(ugyanilyen összefüggést kapunk a $\mathbf{H}$ mágneses térerőre, $\mathbf{E} \to \mathbf{H}$ és $\varepsilon \to \mu$ helyettesítéssel). Mivel az izotropia esete áll fenn, a különböző polarizációjú hullámok külön–külön vizsgálhatóak.

Tekintsünk egy σ polarizációjú hullámot; a koordinátarendszerünk x-tengelye legyen **E-**vel párhuzamos. Az I. és a III. Maxwell-egyenletekből következően $\mathbf{E}_x(y,z)$, $\mathbf{H}_y(y,z)$ és $\mathbf{H}_z(y,z)$ térkomponensek léphetnek csak fel (az időfüggést nem jelöljük). E három térkomponens közül azonban csak kettő független egymástól, a III. Maxwell-egyenlet segítségével $\mathbf{H}_z$-t kifejezhetjük az $\mathbf{E}_x$ és a $\mathbf{H}_y$ vektorokkal. Homogén filmekre a (2.11) egyszerű hullámegyenletbe megy át. Az általános megoldások

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_x(z) &= A\cos(kz\,n\sin\theta) + B\sin(kz\,n\sin\theta), \\ \mathbf{H}_y(z) &= -i\sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}}\sin\theta\,\left[B\cos(kz\,n\sin\theta) - A\sin(kz\,n\sin\theta)\right], \end{aligned} \tag{2.12}$$

ahol $n^2 = \varepsilon\mu$, $k = \frac{\omega}{c}$ és θ a felülettől mért beesési szög (a mindkét tagban multiplikativ $\exp(ky\,n\sin\theta)$ y-függést nem írtuk ki). Az A és B állandók a $(z=0)$ határfeltételekből következően:

$$\begin{aligned} A &= \mathbf{E}_x(0) \\ B &= \frac{i}{\sin\theta}\sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}}\mathbf{H}_y(0). \end{aligned} \tag{2.13}$$

Vezessük be a $W(z) = \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x(z) \\ \mathbf{H}_y(z) \end{pmatrix}$ kétkomponensű oszlopvektorokat. Így a (2.12) és a (2.13) kifejezésekből kapjuk, hogy

$$W(0) = L\,W(z), \tag{2.14}$$

ahol

$$L = \begin{pmatrix} \cos(kz\,n\sin\theta) & -\dfrac{i}{p}\sin(kz\,n\sin\theta) \\ -ip\sin(kz\,n\sin\theta) & \cos(kz\,n\sin\theta) \end{pmatrix} \tag{2.15}$$

az ún. karakterisztikus mátrix és $p = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}}\sin\theta$.

Egy s rétegből álló szendvics-szerkezetet tekintve az L teljes karakterisztikus mátrixot

úgy kapjuk meg, hogy az egyes l rétegek $L_{(l)}$ karakterisztikus mátrixait az

$$L = L_{(1)}L_{(2)}...L_{(s)} \tag{2.16}$$

sorrend szerint összeszorozzuk. (Ez könnyen belátható (2.14) segítségével) A (2.16)-beli rétegsorszámozás úgy értendő, hogy a beeső nyaláb először az $l = 1$ réteget éri el. Az l-ik rétegre az $L_{(l)}$ karakterisztikus mátrixot (2.15) szerint adjuk meg, persze $n \to n_l$, $p \to p_l$, $\theta \to \theta_l$ és $z \to z_l$ rétegek szerinti helyettesítéssel, ahol z_l az l-ik réteg vastagsága.

Az L teljes karakterisztikus mátrix ismeretében a rétegszerkezet reflektivitása, ill. transzmittivitása kiszámítható. Legyen az s rétegből álló minta egy ε_s és μ_s anyagi állandókkal leírható hordozóra növesztve. A beeső nyaláb érkezzék egy ε_0 és μ_0-al definált 0. közegből. A (2.15) alatti módon bevezethetjük a $p_0 = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}}\sin\theta_0$ és a $p_s = \sqrt{\frac{\varepsilon_s}{\mu_s}}\sin\theta_s$ mennyiségeket. A θ_0 0-ik közegbéli beesési szög ismerétében a különböző rétegekre felírt $n_0\cos\theta_0 = n_l\cos\theta_l$, Snellius–Descartes-törvény használatával kapjuk az egyes θ_l szögeket.

Alkalmazzuk a (2.14) kifejezést a teljes (2.16) karakterisztikus mátrixszal, illesszük a határfeltételeket! A 0-ik közeg és az első réteg határán a $W^0 = \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x^0 \\ \mathbf{H}_y^0 \end{pmatrix}$ beeső és a $W^r = \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x^r \\ \mathbf{H}_y^r \end{pmatrix}$ reflektált hullámok szuperpozíciójaként $W^0 + W^r$, míg a hordozó és az N. réteg hatásán $W^t = \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x^t \\ \mathbf{H}_y^t \end{pmatrix}$ átbocsátott hullám jelenik meg. Fennáll továbbá a $\mathbf{H} = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu}}\mathbf{m} \times \mathbf{E}$ összefüggés, ahol $\mathbf{m}$ a terjedés irányú egységvektor. Így a (2.14) alkalmazásával kapjuk, hogy $W^0 + W^r = L\,W^t$, vagy komponensek szerint kifejezve:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{E}_x^0 + \mathbf{E}_x^r \\ p_0\,(\mathbf{E}_x^0 - \mathbf{E}_x^r) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} L_{11} & L_{12} \\ L_{21} & L_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{E}_x^t \\ p_s\mathbf{E}_x^t \end{pmatrix}.$$

Innen az $r^\sigma = \dfrac{\mathbf{E}_x^r}{\mathbf{E}_x^0}$ definícióval értelmezett, σ polarizációra vonatkozó komplex reflek-

tivitás:

$$r^{\sigma} = \frac{(L_{11} + L_{12}p_s)\, p_0 - (L_{21} + L_{22}p_s)}{(L_{11} + L_{12}p_s)\, p_0 + (L_{21} + L_{22}p_s)}. \tag{2.17}$$

Ugyanígy a $t^{\sigma} = \dfrac{\mathbf{E}_x^t}{\mathbf{E}_x^0}$ komplex transzmittivitás:

$$t^{\sigma} = \frac{2\, p_0}{(L_{11} + L_{12}p_s)\, p_0 + (L_{21} + L_{22}p_s)}. \tag{2.18}$$

A π hullámok esetén hasonló eredmények adódnak r^{π} és t^{π}-re, $p \to q = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}} \sin\theta$ helyettesítéssel. Az I^r reflektált intenzitás egy ρ sűrűségmátrixszal megadott nyalábra:

$$I^r = \mathrm{Tr}\left[R^{\dagger} R\, \rho\right], \tag{2.19}$$

ahol $R = \begin{pmatrix} r^{\sigma} & 0 \\ 0 & r^{\pi} \end{pmatrix}$.

2.3 A BBL-formalizmus

Az előző pontban ismertetett Born-Wolf-féle mátrixmódszeren úgy lépünk túl, hogy feltételezzük, hogy a réteges szerkezetű dielektrikumunk anizotrop, más szóval az ε és a μ tenzormennyiségek. A Maxwell-egyenletekben szereplő $\mathbf{E}$ elektromos és $\mathbf{H}$ mágneses térerősség helyett a rétegszimmetria miatt célszerű áttérni ezek tangenciális komponenseire, tehát a dielektrikum felületének normálisát $\widehat{\mathbf{q}}$-val jelölve a $\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}\,(\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r})$ és a $\mathbf{H}_t\,(\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r}) = -\widehat{\mathbf{q}} \times [\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{H}\,(\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r})]$ vektorokra (az argumentumokban jelöltük, hogy a vizsgált szimmetriának megfelelően csak a $\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r}$ skalárszorzattól függhetnek ezek a mennyiségek). Megjegyezzük, hogy a $\mathbf{H}_t$ valóban a vetületvektor, míg $\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}\,(\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r})$ szintén a $\widehat{\mathbf{q}}$-ra merőleges síkban fekvő, a vetülettel azonos hosszúságú, de hozzá képest 90°-kal elforgatott vektor. Az egyszerűség kedvéért azonban a továbbiakban $\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}\,(\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r})$-t tangenciális elektromos térerősségnek fogjuk nevezni. Könnyű megmutatni, hogy az új

változókkal a Maxwell-egyenletek a következő tömör alakra hozhatók:

$$(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\nabla)\begin{pmatrix}\mathbf{H}_t\,(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r})\\ \widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}\,(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r})\end{pmatrix}=ikM\,(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r})\begin{pmatrix}\mathbf{H}_t\,(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r})\\ \widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}\,(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r})\end{pmatrix}, \tag{2.20}$$

ahol M a differenciális terjedési mátrix, melynek blokkjaira ugyancsak bevezetjük az A, B, C és D mennyiségeket

$$M=\begin{pmatrix}A & B\\ C & D\end{pmatrix} \tag{2.21}$$

szerint, mégpedig az

$$A = (\widehat{\mathbf{q}}\cdot\varepsilon\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\widehat{q}^{\times}\varepsilon\widehat{\mathbf{q}}\circ\mathbf{a}-(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mu\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\mathbf{b}\circ\widehat{\mathbf{q}}\mu I, \tag{2.22a}$$

$$B = (\widehat{\mathbf{q}}\cdot\varepsilon\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,I\widetilde{\overline{\varepsilon}}I-(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mu\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\mathbf{b}\circ\mathbf{b}, \tag{2.22b}$$

$$C = -(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\varepsilon\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\mathbf{a}\circ\mathbf{a}-(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mu\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\widehat{q}^{\times}\widetilde{\overline{\mu}}\widehat{q}^{\times}, \tag{2.22c}$$

$$D = -(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\varepsilon\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,\mathbf{a}\circ\widehat{\mathbf{q}}\varepsilon\widehat{q}^{\times}-(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mu\widehat{\mathbf{q}})^{-1}\,I\mu\widehat{\mathbf{q}}\circ\mathbf{b}, \tag{2.22d}$$

definíciókkal [15] (l. az A. függeléket). A (2.22) kifejezésekben $\varepsilon=1+\chi$ a dielektromos tenzor, μ a permeabilitás tenzora, továbbá $\overline{\varepsilon}=\det(\varepsilon)\,\varepsilon^{-1}$ valamit $\overline{\mu}=\det(\mu)\,\mu^{-1}$ (a felülvonás jelölést bármely tenzorra hasonló értelemben használjuk). $v^{\times}$-el jelöltük egy tetszőleges $\mathbf{v}$ vektor duális tenzorát, amelyre egy ugyancsak tetszőleges $\mathbf{u}$ vektort tekintve, $v^{\times}\mathbf{u}\equiv\mathbf{v}\times\mathbf{u}$. A tenzorok feletti hullámos vonal a transzponálást jeleni. Bevezettük még az $I=-(\widehat{q}^{\times})^2$operátort, amely a minta felületének síkjába vetít; valamint két hasznos segédvektort, $\mathbf{b}:=I\,\mathbf{k}/k$ illetve $\mathbf{a}:=\mathbf{b}\times\widehat{\mathbf{q}}$ definícióval. Szemléletesen a $\mathbf{b}$ vektor a beeső hullám hullámszám-vektorának irányába mutató egységvektor síkbeli vetülete, míg $\mathbf{a}$ ennek 90°-al vett elforgatottja. Szigorú értelemben A, B, C és D 3 dimenziós tenzorok, amelyek azonban láthatóan csak az $\mathbf{a},\mathbf{b}$ síkban hatnak. Ebből következően a látszólag 6×6-os M-et elegendő 4×4-es mátrixokkal reprezentálni.

A (2.20) elsőrendű lineáris differenciálegyenlet, melynek megoldása a $\mathbf{H}_t$ és a $\widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}$ terek kapcsolatát adja meg azok két, $\widehat{\mathbf{q}}$-ra merőleges síkban felvett értékei között. Egy

d vastagságú homogén filmet tekintve — más szóval azt az esetet tárgyalva, amikor M független a $\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}$ skalárszorzattól — a (2.20) egyenlet megoldását könnyen megadhatjuk, és az nem más, mint a differenciális terjedési mátrix exponenciálisa. Ha a d vastagságú film felső lapjának (melyre a beeső hullám érkezik) egy pontja $\mathbf{r}_1$, alsó lapjának egy pontja $\mathbf{r}_2$, akkor a megoldás:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}_t\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}_2\right) \\ \widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}_2\right) \end{pmatrix} = L \begin{pmatrix} \mathbf{H}_t\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}_1\right) \\ \widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}_1\right) \end{pmatrix}, \tag{2.23}$$

ahol

$$L = \exp\left(ikdM\right), \tag{2.24}$$

az úgynevezett karakterisztikus mátrix, vagy más szóval integrális terjedési mátrix. Egy s rétegből álló szendvics-szerkezetet tekintve az L teljes karakterisztikus mátrixot úgy kapjuk meg, hogy az egyes l rétegek $L_{(l)}$ karakterisztikus mátrixait az

$$L = L_{(s)}...L_{(2)}L_{(1)} \tag{2.25}$$

sorrend szerint összeszorozzuk. A (2.25)-beli rétegsorszámozás úgy értendő, hogy a beeső nyaláb az $l = 1$ réteget éri el először.

A reflektometriában általában a leggyakoribb kérdés az, hogy a minta felületére beeső hullám a határfelületen hogyan viselkedik. Az elemi elektrodinamika-kurzusokon ezt a problémát a legegyszerűbb esetben szokás tárgyalni, két félvégtelen izotrop dielektrikum határfelületét tekintve. A megoldást ekkor a jól ismert Fresnel-féle formulák adják. Az általunk vizsgált bonyolultabb esetre, az anizotrop film esetére ebben a formalizmusban a reflektivitás ill. transzmittivitás egyszerűen megadható. Ehhez előbb az r planáris reflektivitás fogalmát vezetjük be. Legyenek $\mathbf{H}_t^0$, $\mathbf{H}_t^r$ és $\mathbf{H}_t^t$ a beeső, a visszavert és a megtört elektromágneses hullám mágneses térerősségvektorának a (2.20) egyenlet feletti módon bevezetett tangenciális komponensei. A planáris reflektivitást ekkor a beeső és a

visszavert tangenciális terek kapcsolataként vezetjük be:

$$\mathbf{H}_t^r = r\mathbf{H}_t^0, \tag{2.26}$$

melyre a következő kifejezés adódik (l. a B. függeléket):

$$r = \left[\left(\gamma^t, -I\right) L \begin{pmatrix} I \\ \gamma^r \end{pmatrix}\right]^{-1} \left[\left(-\gamma^t, I\right) L \begin{pmatrix} I \\ \gamma^0 \end{pmatrix}\right]. \tag{2.27}$$

Ugyanígy a

$$\mathbf{H}_t^t = t\mathbf{H}_t^0 \tag{2.28}$$

definícióval bevezetett transzmittivitás a

$$t = \left[\left(I, -\left(\gamma^r\right)^{-1}\right) L^{-1} \begin{pmatrix} I \\ \gamma^t \end{pmatrix}\right]^{-1} \left(I - \left(\gamma^r\right)^{-1} \gamma^0\right) \tag{2.29}$$

kifejezéssel számítható a B. függelékben elmondottak szerint. A (2.27) és (2.29) egyenlőségekben a γ^0, γ^r és γ^t tenzorok az impedanciatenzorok, amelyeket a beeső, a spekulárisan reflektált és a megtört hullámokra

$$\gamma^{0,r,t}\mathbf{H}_t^{0,r,t} = \hat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}^{0,r,t} \tag{2.30}$$

egyenlőséggel definiálunk, értelemszerűen. Láthatóan ezek a tenzorok a tangenciális elektromos és a tangenciális mágneses tereket kapcsolják össze, csak a $\hat{\mathbf{q}}$-ra merőleges $\mathbf{a}, \mathbf{b}$ síkban hatnak, ezért 2×2 mátrixokkal reprezentálhatók; inverzeiket is ezen 2×2 mátrixok inverzével értelmezzük (kvázi-inverz) [15].

Az elektromos térerősség vektorát a σ, π bázison kifejtve, bevezetjük a teljes komplex reflektivitás R mátrixát. R geometriai kapcsolatban van az r planáris reflektivitással [l.

a (B.7) kifejezést]:

$$\begin{aligned} R_{\sigma\sigma} &= -r_{22} & R_{\sigma\pi} &= -r_{21}\sin^{-1}\theta \\ R_{\pi\sigma} &= r_{12}\sin\theta & R_{\pi\pi} &= r_{11} \end{aligned} \quad . \tag{2.31}$$

R segítségével tetszőleges polarizációs állapotú bejövő sugárzás esetén megkaphatjuk a reflektált intenzitást a (2.5)-ben definiált ρ (ugyancsak σ, π bázison felírt) sűrűségmátrix használatával. A (2.6) és a (2.19) kifejezésekhez hasonlóan az I^r reflektált intenzitás az

$$I^r = \mathrm{Tr}\left[R^\dagger R\,\rho\right] \tag{2.32}$$

egyenlőség alapján kapható meg.

3. fejezet

A BBL-formalizmus alkalmazása a röntgenoptikában

A 2.3. fejezetben ismertetett kovariáns optikai formalizmust Andrejeva alkalmazta először a súroló beeséses Mössbauer-spektroszkópiában [12]. A bejövő hullám $\mathbf{k}$ vektorához képest tetszőleges irányú *HF* terek esetén a $\mathbf{J}_{m_g m_e}$ mátrixelemek irreducibilis tenzorokkal való kifejtésével egy meglehetősen bonyolult formalizmust származtatott [12]. Bizonyos bonyolultabb esetekben, mint például a magasabb vagy kevert multipolaritású átmeneteknél, textúrált anyagoknál, stb. ez a formalizmus zavarossá, numerikusan kezelhetetlenné válik. A szuszceptibilitástenzor kiszámítása után a BBL-optika kényelmes lehetőséget ad a réteges szerkezetű anyagokon történő nukleáris szórás tárgyalására mind a súroló beesés, mind az előreszórás esetében.

A magasabb multipolaritású átmenetek, a *HF* téreloszlás, a textúra, stb. miatt felmerülő numerikus problémákat a Blume–Kistner formalizmus alkalmazásával [4] Spiering már a 80-as évek közepén megoldotta [25]. Amint már az 1.1. fejezetben említettük, a $\mathbf{J}_{m_g m_e}$ bonyolult transzformációs tulajdonságú mennyiségek helyett érdemes inkább a Hamilton-operátor mátrixelemeivel, pontosabban az f koherens előreszórási amplitúdókkal számolni, s erre az (1.9) kifejezés adja a lehetőséget [DL3].

Ebben a fejezetben az általunk kidolgozott formalizmust ismertetjük, amely az Andre-

jeva-féléhez hasonlóan a BBL-formalizmus alkalmazásán alapul, azonban az (1.7) kifejezés helyett az elmondottak miatt az (1.9) összefüggéssel dolgozunk. Az előreszórás esetén optikai úton levezetjük a Blume–Kistner-féle formulákat. Célszerűségi szempontok miatt az optikai formalizmust a konkrét numerikus számításokhoz illeszkedő alakra hozzuk. Megadjuk az elmélet érvényességi határait is.

Térjünk vissza a (2.22) kifejezésekhez! A nukleáris szórást az $\varepsilon = I + \chi$ dielektromos tenzoron keresztül vesszük figyelembe [12, 14], a μ permeabilitástenzor érékére ezért az egységtenzort helyettesíthetjük (l. az 1.1. fejezetben):

$$A = \left[1 + (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \chi\, \widehat{\mathbf{q}})\right]^{-1} \widehat{q}^{\times} \chi\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}, \tag{3.1a}$$

$$B = \left[1 + (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \chi\, \widehat{\mathbf{q}})\right]^{-1} I\, \widetilde{(1+\chi)}\, I - \mathbf{b} \circ \mathbf{b}, \tag{3.1b}$$

$$C = -\left[1 + (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \chi\, \widehat{\mathbf{q}})\right]^{-1} \mathbf{a} \circ \mathbf{a} + I, \tag{3.1c}$$

$$D = -\left[1 + (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \chi\, \widehat{\mathbf{q}})\right]^{-1} \mathbf{a} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \chi \widehat{q}^{\times}. \tag{3.1d}$$

Mivel χ mátrixelemei nagyjából 10^{-5} nagyságrendűek, ezért a χ^2-tel arányos tagokat a χ-vel arányosakhoz képest elhanyagolva kapjuk:

$$A \approx \widehat{q}^{\times} \chi\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}, \tag{3.2a}$$

$$B \approx I - \widehat{q}^{\times} \chi \widehat{q}^{\times} - \mathbf{b} \circ \mathbf{b}, \tag{3.2b}$$

$$C \approx I - \left[1 - (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \chi\, \widehat{\mathbf{q}})\right] \mathbf{a} \circ \mathbf{a}, \tag{3.2c}$$

$$D \approx -\mathbf{a} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \chi \widehat{q}^{\times}. \tag{3.2d}$$

A továbbiakban célszerűségi okokból különféle koordinátarendszereket fogunk használni. A laboratóriumi rendszert, melyet $\mathcal{S}$-el jelölnünk, úgy rögzítjük, hogy az x, y és z-tengelyek rendre az $\mathbf{a}$, $\mathbf{b}$ és $\widehat{\mathbf{q}}$ vektorokkal legyenek párhuzamosak. Az $\mathcal{S}$ laborrendszer bevezetése után a (2.20) egyenlőségben a négykomponensű tangenciális térvektorhoz természetesen adódik az egyes komponensek értelmezése az eredeti kovariáns felírásnak megfelelően: $\left[\mathbf{H}_x, \mathbf{H}_y, (\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E})_x, (\widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E})_y\right]$. Az így rögzített sorrendet tekinthetjük a

négykomponensű vektorterünk bázisának $\mathcal{K} = (1, 2, 3, 4)$ jelöléssel. Kiderül azonban, hogy a konkrét számítások során a legegyszerűbb kifejezéseket a $\mathcal{K}$ rendszer permutációjával nyert $\mathcal{K}' = (2, 3, 4, 1)$ vonatkoztatási rendszerben kaphatjuk. $\mathcal{K}'$-ben tehát a térvektorunk $\left[\mathbf{H}_y, (\hat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E})_x, (\hat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E})_y, \mathbf{H}_x\right]$ sorrendet jelent. A $\mathcal{K}$-rendszerbeli M differenciális és L karakterisztikus mátrixokat a $\mathcal{K}'$ rendszerben rendre M' -vel ill. L'-vel jelöljük [DL3].

3.1 Az előreszórás tárgyalása — kapcsolat a Blume–Kistner-féle elmélettel

Mivel merőleges beesés esetén $\mathbf{a} = \mathbf{b} = \mathbf{0}$, ezért a (3.2) kifejezésekből következően a (2.21) differenciális terjedési mátrixra a $\mathcal{K}$ rendszerben a következő alakot kapjuk [DL3]:

$$M = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \varepsilon_{22} & -\varepsilon_{21} \\ 0 & 0 & -\varepsilon_{12} & \varepsilon_{11} \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.3}$$

A (2.28) egyenlőséggel definiált t transzmittivitás (2.29) szerint a (2.24) karakterisztikus mátrix segítségével fejezhető ki. Vákuumban lévő homogén film esetére a (2.29) és a (B.5) kifejezésekből kapjuk [15], hogy:

$$t = 2 \left[(I\,, I)\, L^{-1} \begin{pmatrix} I \\ I \end{pmatrix} \right]^{-1}. \tag{3.4}$$

A Blume–Kistner-féle optikai formulák [4] egyszerűen adódnak a (3.3) és a (3.4) kifejezésekből. A (3.3) differenciális terjedési mátrixból a (2.24) szabály szerint számolható a karakterisztikus mátrix. A mátrixexponenciális számításához felhasználjuk a következő

azonosságot (amely könnyen belátható az exponenciális sorbafejtésével):

$$\exp\begin{pmatrix} 0_2 & B \\ C & 0_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cosh(BC)^{1/2} & B(CB)^{-1/2}\sinh(CB)^{1/2} \\ C(BC)^{-1/2}\sinh(BC)^{1/2} & \cosh(CB)^{1/2} \end{pmatrix}, \tag{3.5}$$

ahol 0_2 a 2×2-es nullmátrix, B és C 2×2-es mátrixok. A (3.5) azonosságból $B = \begin{pmatrix} \varepsilon_{22} & -\varepsilon_{21} \\ -\varepsilon_{12} & \varepsilon_{11} \end{pmatrix} = I + \begin{pmatrix} \chi_{22} & -\chi_{21} \\ -\chi_{12} & \chi_{11} \end{pmatrix}$ és $C = I$ behelyettesítéssel a karakterisztikus mátrix

$$L = \begin{pmatrix} \cosh\left[ikd\,B^{1/2}\right] & B^{1/2}\sinh\left[ikd\,B^{1/2}\right] \\ B^{-1/2}\sinh\left[ikd\,B^{1/2}\right] & \cosh\left[ikd\,B^{1/2}\right] \end{pmatrix}, \tag{3.6}$$

így (3.4)-ből kapjuk, hogy [DL3]:

$$t = \left[\cosh\left(ikdB^{1/2}\right) - \frac{1}{2}\sinh\left(ikdB^{1/2}\right)\left(B^{1/2} + B^{-1/2}\right)\right]^{-1}. \tag{3.7}$$

Mivel a szuszceptibilitás kicsi, használhatjuk a $B^{1/2} + B^{-1/2} \approx 2I$ közelítést, amit a (3.7) kifejezésbe írva, a merőleges beesés esetére érvényes transzmittivitás közelítő alakját kapjuk:

$$t \approx \exp\left(ikd\,B^{1/2}\right). \tag{3.8}$$

Hogy (3.8) eredményünket a Blume és Kistner által használt optikai formulával összehasonlíthassuk, a transzmittivitás általunk használt $\mathbf{H}_t^t = t\mathbf{H}_t^0$ definiciója helyett térjünk át az elektromos téren keresztül $\mathbf{E}^t = t_E\,\mathbf{E}^0$ kifejezéssel értelmezett t_E transzmittivitásra [4]. Ha kifejezzük **H**-t **E**-vel, közvetlenül megkapjuk a Blume–Kistner-formulákat [4]:

$$t_E = -\widehat{q}^{\times} t\,\widehat{q}^{\times} \approx \exp(ikd\,n), \tag{3.9}$$

ahol $n = \sqrt{I+\chi}$. Az (1.9) és a (3.9) egyenlőségekből adódik a Lax-formula Blume és Kistner által általánosított alakja [3, 4, DL3]

$$n_{pp'} = \delta_{pp'} + \frac{2\pi N}{k^2} f^{\mathbf{k},p\to\mathbf{k},p'}, \tag{3.10}$$

ahol δ a Kronecker-féle szimbólum, $p, p^{'} = \sigma, \pi$.

3.2 A súroló beesés tárgyalása

Súroló beesés esetén, mint már említettük, az 1–10 mrad szögtartomány érdekes számunkra. Ekkor a θ^2 nagyságrendben igaz, hogy

$$|\mathbf{a}| = |\mathbf{b}| = \cos\theta \approx 1, \tag{3.11}$$

ezért a (3.2) kifejezésekben további közelítéseket tehetünk. Kihasználva hogy $\hat{\mathbf{q}} \approx \mathbf{a} \times \mathbf{b}$, egyszerű átalakításokkal kapjuk, hogy

$$\begin{aligned}
A &\approx (\mathbf{a}\cdot\chi\,\hat{\mathbf{q}})\ \mathbf{b}\circ\mathbf{a} \underline{-\,(\mathbf{b}\cdot\chi\,\hat{\mathbf{q}})\,\mathbf{a}\circ\mathbf{a}}, && \text{(3.12a)}\\
B &\approx I - [1-(\mathbf{a}\cdot\chi\,\mathbf{a})]\,\mathbf{b}\circ\mathbf{b} \underline{+\,(\mathbf{b}\cdot\chi\,\mathbf{b})\,\mathbf{a}\circ\mathbf{a} - (\mathbf{b}\cdot\chi\,\mathbf{b})\,\mathbf{a}\circ\mathbf{b}}\\
&\quad \underline{-\,(\mathbf{a}\cdot\chi\,\mathbf{b})\,\mathbf{b}\circ\mathbf{a}}, && \text{(3.12b)}\\
C &\approx I - [1-(\hat{\mathbf{q}}\cdot\chi\,\hat{\mathbf{q}})]\,\mathbf{a}\circ\mathbf{a}, && \text{(3.12c)}\\
D &\approx (\hat{\mathbf{q}}\cdot\chi\,\mathbf{a})\ \mathbf{a}\circ\mathbf{b} \underline{-\,(\hat{\mathbf{q}}\cdot\chi\,\mathbf{b})\,\mathbf{a}\circ\mathbf{a}}, && \text{(3.12d)}
\end{aligned}$$

ahol aláhúzással jelöltük az Andrejeva által [13] intuitív módon elhagyott tagokat. A továbbiakban saját formalizmusunk keretében bizonyítani fogjuk, hogy a jelzett tagok valóban elhanyagolhatóak, sőt ezen elhanyagolás érvényességének korlátait is megadjuk [DL3].

A számunkra érdekes fizikai mennyiség az R reflektivitásmátrix, amely még egy réteg esetén is bonyolult módon függ a differenciális terjedési mátrixtól a (2.24) és a (2.27) kifejezések szerint. A (2.27) összefüggésben fellépő szögfüggő γ impedanciatenzorok miatt az L mátrix egyes mátrixelemeinek szerepe aszimmetrikus a θ beesési szögre nézve, ezért a (3.12) kifejezésekben bármely elhanyagolást csak nagyon körültekintően szabad megtenni. Hogy ezt a problémát megszüntessem, olyan reprezentációt próbáltam keresni, amelyben

ez az aszimmetria nem jelenik meg. Az impedanciatenzorok a legegyszerűbb alakot a vákuumban veszik fel, így azt az esetet választottam, amikor a rétegszerkezet vákuumban van. Ez a röntgenszórás hullámhossztartományában nem jelent különösebb megszorítást, hiszen a levegő itt a vákuummal azonos tulajdonságú, míg a hordozót egy elég vastag réteggel helyettesítve, az alsó féltér ugyancsak vákuumnak tekinthető.

Hogy a (2.31) kifejezésben a különböző nagyságrendű tagokat egymástól elkülöníthessük és korrekt közelítő formulákat írhassunk fel az R reflektivitásra a nukleáris szórás estében, célszerűnek tűnik egy

$$T = \begin{pmatrix} \sin^{-1}\theta & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \sin^{-1}\theta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \tag{3.13}$$

($\mathcal{K}'$-rendszerbéli) lineáris transzformációt alkalmazni, mellyel az R reflektivitás mátrixelemeinek explicit θ-függését megszüntethetjük [DL3]. Belátjuk, hogy a T transzformációt alkalmazva $L'_{(l)}$-re, az R reflektivitás csak az

$$L''_{(l)} = TL'_{(l)}T^{-1} \tag{3.14}$$

inegrális terjedési mátrix mátrixelemeitől függ. Természetesen $L''_{(l)}$ komponensei (mátrixelemei) függnek a θ beesési szögtől.

3.2.1 A differenciális terjedési mátrix

A (3.12) formulákkal tulajdonképpen a differenciális terjedési mátrix kovariáns alakját adtuk meg a $\mathcal{K}$ rendszerben. A kovariáns alakból a $\mathcal{K}'$ vonatkoztatási rendszerben az l-ik réteghez tartozó $M'_{(l)}$ differenciális terjedési mátrix azonnal felírható, így képezhetjük az

$M''_{(l)} = TM'_{(l)}T^{-1}$ képlet szerint T-vel transzformált mátrixot [DL3]:

$$M''_{(l)} = \sin\theta \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \frac{1}{\sin\theta} \begin{pmatrix} 0 & 0 & \chi_{(l)11} & \chi_{(l)13} \\ 0 & 0 & \chi_{(l)31} & \chi_{(l)33} \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} 0 & -\chi_{(l)12} & 0 & 0 \\ 0 & -\chi_{(l)32} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{(l)22}\sin\theta & -\chi_{(l)21} & -\chi_{(l)23} \end{pmatrix}. \tag{3.15}$$

A $\chi_{(l)ij}$ $(i,j = 1,2,3)$ mennyiségek az l-ik réteg szuszceptibilitástenzorának mátrixelemei, amelyek (3.11) érvényessége miatt jelennek meg, pl. $\chi_{11} = (\mathbf{a} \cdot \chi\, \mathbf{a})$ stb. A T hasonlósági transzformációval tulajdonképpen egy $\mathcal{K}''$ vonatkoztatási rendszert definiáltunk. Látni fogjuk, hogy az R reflektivitásmátrix csak L'' mátrixelemitől függ, így valamennyi mátrixelem szerepe szimmetrikus; ez az a reprezentáció, amelyben az elhanyagolásokat megtehetjük.

A (3.15) kifejezés három mátrix összege, melyek nagyságrendje sorrendben θ, χ/θ és χ. Andrejeva és munkatársai [13] munkájukban intuitív megfontolások alapján minden bizonyítás nélkül elhanyagolták a harmadik tagnak megfelelő — a (3.12) kifejezésekben aláhúzással jelölt — tagokat, amelyek kizárólag olyan mátrixelemeit tartalmazzák a χ tenzornak, amelyek az előreszórási amplitúdóval nem hozhatók kapcsolatba [l. még az (1.9) kifejezést]. Az általam bevezetett reprezentációban azonban rögtön látható, hogy a közelítés nyilvánvalóan akkor érvényes, ha χ kicsi θ-hoz és χ/θ-hoz képest. Mivel tipikusan $\chi \approx 10^{-5}$, ezért a

$$10^{-3} \leq \theta \leq 10^{-2} \tag{3.16}$$

intervallumra teljesül, hogy a harmadik tag az első kettő 1%-án belül maradjon, ez viszont éppen a súroló beeséses mérések tartománya $(1 - 10$ mrad). A (3.15) kifejezésből tisztán

látható, milyen feltételek teljesülése esetén marad érvényes az Andrejeva-közelítés az M differenciális terjedési mátrixra nézve. Vegyük észre, hogy a kapott (3.16) megszorítás nemcsak felső, hanem érdekes módon egy alsó korlátot is szolgáltat a θ szögre nézve, a közelítés érvényben maradásához [DL3]. Összefoglalva tehát a (2.20) alakja Andrejeva-közelítésben a $\mathcal{K}''$ rendszerben

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}W = ik \begin{pmatrix} 0 & I\sin\theta + \frac{\chi}{\sin\theta} \\ I\sin\theta & 0 \end{pmatrix} W, \tag{3.17}$$

ahol W a (2.20) egyenlőségnél definiált $\begin{pmatrix} \mathbf{H}_t\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}\right) \\ \widehat{\mathbf{q}}\times\mathbf{E}\left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\mathbf{r}\right) \end{pmatrix}$ vektor $\mathcal{K}''$-beli reprezentációja.

Visszatérve a kovariáns reprezentációra, a $\mathcal{K}$-rendszerben az l-ik réteg differenciális terjedési mátrixa

$$M_{(l)} = \begin{pmatrix} \left(\mathbf{a}\cdot\chi_{(l)}\widehat{\mathbf{q}}\right)\mathbf{b}\circ\mathbf{a} & I - \mathbf{b}\circ\mathbf{b}\left[1 - \left(\mathbf{a}\cdot\chi_{(l)}\mathbf{a}\right)\right] \\ I - \mathbf{a}\circ\mathbf{a}\left[1 - \left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\chi_{(l)}\widehat{\mathbf{q}}\right)\right] & \left(\widehat{\mathbf{q}}\cdot\chi_{(l)}\mathbf{a}\right)\mathbf{a}\circ\mathbf{b} \end{pmatrix} \tag{3.18}$$

1% pontossággal érvényes, ami (3.16) teljesülése esetén azonos az Andrejeva és munkatársai által javasolttal [13].

A súroló beeséses esetben közelítőleg teljesül a $\mathbf{k}\|\mathbf{b}$ kapcsolat**.** A két polarizációs vektort ezért úgy választhatjuk meg, hogy $\widehat{\mathbf{u}}_\sigma \approx \mathbf{a}$ és $\widehat{\mathbf{u}}_\pi \approx \widehat{\mathbf{q}}$. A polarizációs vektorok $\mathcal{P}$ vonatkoztatási rendszerében felírt (1.9) kifejezést az $\mathcal{S}$ rendszerbe traszformálva (ez egy 90°-os forgatás $\mathbf{a}$-val párhuzamos tengely körül) és behelyettesítve a (3.18) egyenletbe, a differenciális terjedési mátrix előreszórási amplitúdóval kifejezett alakját kapjuk [DL3]:

$$M_{(l)} \approx \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2} f_{(l)}^{\mathbf{k},\sigma\to\mathbf{k},\pi} & 0 & 0 & \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2} f_{(l)}^{\mathbf{k},\sigma\to\mathbf{k},\sigma} + \sin^2\theta \\ \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2} f_{(l)}^{\mathbf{k},\pi\to\mathbf{k},\pi} + \sin^2\theta & 0 & 0 & \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2} f_{(l)}^{\mathbf{k},\pi\to\mathbf{k},\sigma} \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \tag{3.19}$$

vagy $\mathcal{K}''$-ben felírva, ily módon a (3.15)-ben szereplő szuszceptibilitás—mátrixelemeket behelyettesítve, a harmadik tagot elhagyva kapjuk:

$$M''_{(l)} \approx \sin\theta \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \end{pmatrix} + \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2 \sin\theta} \begin{pmatrix} 0 & 0 & f_{(l)}^{\mathbf{k},\sigma\to\mathbf{k},\sigma} & f_{(l)}^{\mathbf{k},\sigma\to\mathbf{k},\pi} \\ 0 & 0 & f_{(l)}^{\mathbf{k},\pi\to\mathbf{k},\sigma} & f_{(l)}^{\mathbf{k},\pi\to\mathbf{k},\pi} \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.20}$$

A (3.19) és a (3.20) kifejezésekben $N_{(l)}$ az egységtérfogatban lévő szórócentrumok száma, $f_{(l)}^{\mathbf{k},p\to\mathbf{k},p'}$ pedig a koherens előreszórási amplitúdó az l-ik rétegben. A továbbiakban (3.20) [ill. (3.15)] egyenletből kiindulva egy nagyon gyors numerikus algoritmust vezetünk le.

3.2.2 A karakterisztikus mátrix és a reflektivitás

Az $M_{(l)}$ mátrixok exponenciális függvényének megfelelő pontosságú számítása meglehetősen számításidő-igényes, hiszen minden energiacsatornára, így Mössbauer-spektrumonként tipikusan 2^{10}-szer kell kiszámítani. A (3.19) mátrix tartalmaz $\sin^2\theta < 10^{-4}$, valamint ennél jóval nagyobb, 1 nagyságrendű számokat. Az ügyesen megválasztott $\mathcal{K}''$-ben a differenciális terjedési mátrix [(3.20) ill. (3.15 első két mátrixa] ezzel szemben csak azonos ($\theta \simeq \chi/\theta \simeq 10^{-2}$) nagyságrendű tagokból áll, maximálisan hordozva a fizikai rendszerre vonatkozó információkat.

Bevezetve az l-ik rétegre az $x_{(l)} = ikd_{(l)}\sin\theta$ és a $\phi_{(l)} = -4\pi N_{(l)} d_{(l)}^2 f_{(l)}$ mennyiségeket ($d_{(l)}$ a vastagság, $f_{(l)}$ pedig a szórási amplitúdó a szóban forgó rétegben), a (3.20) kifejezésből kapjuk az

$$\begin{aligned} L''_{(l)} &= \exp\left(ikd_{(l)} T M'_{(l)} T^{-1}\right) \\ &= \exp\begin{pmatrix} 0_2 & x_{(l)} I + \frac{1}{x_{(l)}}\phi_{(l)} \\ x_{(l)} I & 0_2 \end{pmatrix}, \end{aligned} \tag{3.21}$$

összefüggést.

Vegyük észre, hogy a (3.21)-beli exponenciális függvény kiszámítására a (3.5) azonosság alkalmazható, hiszen a főátlóban lévő 2×2-es blokkmátrixok a 2.1. alfejezetben tárgyalt Blume–Kistner-esethez hasonlóan zérómátrixok; ezért a probléma 2×2 mátrixexponenciálisok számítására vezethető vissza. Valóban, a (3.5) azonosságot használva, $B_{(l)} = x_{(l)} I + \frac{1}{x_{(l)}} \phi_{(l)}$ és $C_{(l)} = x_{(l)} I$ behelyettesítéssel a (3.21) karakterisztikus mátrixra az

$$L''_{(l)} = \begin{pmatrix} \cosh F_{(l)} & \frac{1}{x_{(l)}} F_{(l)} \sinh F_{(l)} \\ x_{(l)} F_{(l)}^{-1} \sinh F_{(l)} & \cosh F_{(l)} \end{pmatrix} \tag{3.22}$$

kifejezést kapjuk, ahol $F_{(l)} = \left(x_{(l)} B_{(l)} \right)^{1/2}$ [DL3]. Az eredményül kapott (3.22) kiválóan alkalmas numerikus számításokra, hiszen csak egy 2×2-es mátrixexponenciálist, az $\exp F_{(l)}$-t tartalmazza, amely azonban egzaktul kiszámolható.

A (2.27) kifejezésben szereplő L karakterisztikus mátrixot kifejezve a (3.14)-beli L''-vel, kapjuk:

$$r = \left(\left(\gamma^t, -I \right) V^{-1} T^{-1} L'' T V \begin{pmatrix} I \\ \gamma^r \end{pmatrix} \right)^{-1} \left(\left(-\gamma^t, I \right) V^{-1} T^{-1} L'' T V \begin{pmatrix} I \\ \gamma^0 \end{pmatrix} \right), \tag{3.23}$$

ahol T a (3.13)-ban bevezetett hasonlósági transzformáció, V a $\mathcal{K} \longrightarrow \mathcal{K}'$ áttérés mátrixa, $\gamma^{t,r,0}$ pedig az impedanciatenzorok az átbocsátott, a reflektált és a beeső sugárzásra, ahogy azt a (2.30)-ban bevezettük. Feltételezve, hogy a rétegünket mindkét felületén vákuum határolja (amit mindig feltételezhetünk, hiszen a hordozót helyettesíthetjük egy elegendően vastag réteggel), a γ tenzorok (B.4) és (B.5) szerint a következők [15]:

$$\gamma^0 = \gamma^t = -\gamma^r = \begin{pmatrix} \sin\theta & 0 \\ 0 & \sin^{-1}\theta \end{pmatrix} \tag{3.24}$$

Legyen V az $(1, 2, 3, 4)$ koordinátarendszerből a $(2, 3, 4, 1)$ rendszerbe való áttérés mátrixa,

azaz a $(\mathcal{K} \longrightarrow \mathcal{K}')$ transzformáció:

$$V = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{3.25}$$

Elvégezve a (3.23) kifejezésbeli mátrixműveleteket (3.24) és (3.25) behelyettesítésével

$$\begin{aligned} r &= -\begin{pmatrix} 0 & \sin^{-1}\theta \\ -1 & 0 \end{pmatrix}^{-1} \left(L''_{[11]} - L''_{[12]} - L''_{[21]} + L''_{[22]}\right)^{-1} \\ &\quad \times \left(L''_{[11]} + L''_{[12]} - L''_{[21]} - L''_{[22]}\right) \begin{pmatrix} 0 & \sin^{-1}\theta \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \end{aligned} \tag{3.26}$$

adódik a planáris reflektivitásra. A (2.31) és (3.26) kifejezésekből közvetlenül megkapjuk a σ, π bázison érvényes 2×2-es reflektivitásmátrixot:

$$R(\theta) = \left(L''_{[11]} - L''_{[12]} - L''_{[21]} + L''_{[22]}\right)^{-1} \left(L''_{[11]} + L''_{[12]} - L''_{[21]} - L''_{[22]}\right), \tag{3.27}$$

ahol az $L''_{[ab]}$-k $(a, b = 1, 2)$ a teljes karakterisztikus mátrix 2×2-es blokkmátrixai [DL3]. Emlékeztetőül megjegyezzük, hogy az egyes rétegek karakterisztikus mátrixait a (3.22) egyenlőség szerint számíthatjuk a (3.19) differenciális terjedési mátrixokból, majd ezeket (2.25) szerint összeszorozva megkapjuk a rétegszerkezet teljes karakterisztikus mátrixát, L''-t. Ezzel bebizonyítottuk, hogy az R reflektivitásmátrix csak az L'' teljes karakterisztikus mátrixtól függ.

Mivel a (3.27) kifejezés a komplex reflektivitás mátrixát adja, ezért egyaránt alkalmas a hagyományos források (ún. energiadomén) spektrumának és a szinkrotronos (ún. időmén) spektrumok számolására. Az itt bemutatott módszer felhasználásával számítógép-program készült, amellyel az energia- és időspektrumok egyaránt illeszthetőek [DL11]. A C. függelékben megmutatjuk, hogy formalizmusunk ekvivalens a dinamikus

elmélet súroló beeséses határesetére származtatott eredményével.

3.2.3 Numerikus számítások

Hogy módszerünket most már a gyakorlatban is áttekinthetővé tegyük, írjuk fel a (3.22) karakterisztikus mátrixot a fizikai paraméterekkel kifejezve:

$$L''_{(l)} = \begin{pmatrix} \cosh F_{(l)} & B_{(l)}^{1/2} \sinh F_{(l)} \\ B_{(l)}^{-1/2} \sinh F_{(l)} & \cosh F_{(l)} \end{pmatrix}, \tag{3.28}$$

ahol $F_{(l)} = kd_{(l)} \left(-I \sin^2 \theta - \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2} f_{(l)} \right)^{1/2}$ és $B_{(l)} = I + \frac{4\pi N_{(l)}}{k^2 \sin^2 \theta} f_{(l)}$. A rétegvastagság $d_{(l)}$, a koncentráció $N_{(l)}$, a hullámszám k (az ^{57}Fe Mössbauer-átmenete esetén $\lambda \approx 0.086$ nm, így $k = \frac{2\pi}{\lambda} \approx 73.06$ nm^{-1}), a θ szög valamint az $f_{(l)}$ koherens előreszórási amplitúdó ismeretében az l-ik rétegre a (3.28) karakterisztikus mátrix számolható. A (2.25) mátrixszorzások elvégzésével a teljes karakterisztikus mátrixot, L''-et kapjuk meg, melynek ismeretében (3.22) szerint a reflektivitás, ill. (2.32) alkalmazásával a reflektált intenzitást kaphatjuk meg. Az egyetlen nyitott kérdés a (3.28) kifejezésben a cosh, sinh (lényegében exp) és a négyzetgyök mátrix számítása, ami szerencsére a 2×2-es mátrixokra analitikusan megadható.

A Cayley–Hamilton-tétel értelmében a mátrixok kielégítik saját karakterisztikus egyenletüket, így könnyen belátható, hogy valamely tetszőleges 2×2-es G mátrixra teljesül:

$$G^{1/2} = \frac{G + I\sqrt{\det G}}{\sqrt{\operatorname{Tr} G + 2\sqrt{\det G}}}, \tag{3.29}$$

amennyiben a jobb oldal értelmes. Az is könnyen belátható, hogy a kifejezés akkor és csakis akkor nem értelmes, ha $G \sim I$, ekkor azonban

$$G^{1/2} = I \left(\det G \right)^{1/4} \tag{3.30}$$

alapján találhatunk olyan mátrixot, melynek négyzete éppen G.

Egy tetszőleges 2×2-es G mátrix exponenciális függvényét ugyancsak kifejezhetjük a G mátrix és annak skalárinvariánsai segítségével:

$$\exp G = \exp\left(\frac{1}{2}\operatorname{Tr} G\right)\left[I\cos\sqrt{\det \bar{G}} + \frac{\sin\sqrt{\det \bar{G}}}{\det \bar{G}}\bar{G}\right], \tag{3.31}$$

ahol $\bar{G} = G - \frac{1}{2} I \operatorname{Tr} G$ (l. [4]).

A (3.27) reflektivitás levezetésekor kihasználtuk, hogy rétegszerkezetünk vákuumban helyezkedik el. A hordozót "megfelelően" vastag s. rétegként kívántuk figyelembe venni. Hogy ez a képünk numerikusan ne okozzon problémát, szükségünk van a (3.28) karakterisztikus mátrix $d_{(s)} \to \infty$ határértékére, mely (3.29) és (3.31) segítségével felírható:

$$L''_{(s)}\left(d_{(s)} \to \infty\right) = \begin{pmatrix} I & pB_{(s)}^{1/2} \\ pB_{(s)}^{-1/2} & I \end{pmatrix}, \tag{3.32}$$

ahol $p = \operatorname{sign}\left[\operatorname{Re}\left(\operatorname{Tr} F_{(s)}\right)\right]$.

A fentiekben bemutatott algoritmus az itteni numerikus eljárásokat alkalmazva rendkívül hatékony számítógépes programok elkészítését teszi lehetővé. Az általunk készített program [DL11] egyedülálló módon, egyszeres pontosságú (8 byte) aritmetikával is képes a szinkrotronos spektrumok illesztésére, ami azt mutatja, hogy valóban sikerült a fizikai lényeget tükröző reprezentációt választanunk.

3.2.4 A felületi érdesség

Eddigi megfontolásaink során a rétegeket ideális rétegnek tekintettük, tökéletesen sík és párhuzamos határfelületekkel. Ennek értelmében a homogén réteghez rendelt χ tenzor ugrásszerűen változott a határfelület mentén. A valóságban ez a határfelület rendkívül bonyolult lehet. A következőkben egy közelítő módszert mutatunk be arra, hogyan lehetséges a durva felületek hatását figyelembe venni a spekulárisan reflektált nyalábok intenzitáshatásának számításakor.

Egy tetszőleges durva felületre beeső síkhullám a visszaverődés után általában nem marad tisztán spekuláris, mivel a durvaság sérti a felület transzlációs szimmetriáját, így diffúz szórás is fellép. A reflektometriában a spekulárisan reflektált intenzitást mérjük, mely a minta belső és külső határfelületeiről visszavert hullámok interferenciájának eredménye. A koherens tér terjedését a $\chi = \frac{4\pi N}{k^2} f$ tenzor segítségével, azaz lényegében az f koherens előreszórási együtthatóval írtuk le (l. az 1.1. és 1.2. fejezeteket), mely mennyiség az egyrészecske szórási amplitúdók átlaga. A korábban említett szimmetriasértés tehát nem jelentkezik a koherens tér szempontjából, hiszen a felület irányában (azaz x és y koordináták szerint) átlagolunk. Az átlagolást különböző magasságokban, vagyis tetszőleges $i = 1, ..., s$ felosztást tekintve a z_i és $z_i + \delta z_i$ közti tartományokra ($\delta z_i \to 0$) elvégezve más–más χ_i értékeket kapunk, a durva felületet ezért úgy vesszük figyelembe, hogy a szuszceptibilitást $\chi = \chi(z)$ folytonos függvénynek tekintjük. Úgy is fogalmazhatnánk, hogy a spekulárisan reflektált intenzitás mérésével nem különböztethető meg egymástól két olyan "határfelületi tartomány", melyek egyikében a felület érdes, másikában pedig a két szomszédos közeg folytonosan megy át egymásba. A következőkben az utóbbi esetet fogjuk vizsgálni.

A $\chi(z)$ függvény konkrét alakjára vonatkozóan csak feltevésekre támaszkodhatunk. Ha az l. határfelületet egy $z_l = z_l(x, y)$ felületfüggvénnyel írjuk le, akkor $\langle z_l \rangle$-ról mint a felület átlagos pozíciójáról, $d_l = \langle z_{l+1} \rangle - \langle z_l \rangle$-ról mint átlagos rétegvastagságról, $\Delta z_l = \sqrt{\left\langle (z_l - \langle z_l \rangle)^2 \right\rangle}$-ról pedig mint az l. "határfelületi tartomány" vastagságáról beszélhetünk. Rétegképünk fenntarthatósága miatt feltételezzük, hogy a "határfelületi tartomány" vastagsága jóval kisebb, mint a rétegek vastagsága, azaz

$$d_l \gg \Delta z_l. \tag{3.33}$$

Ideális rétegeink esetében a szuszceptibilitás deriváltja a homogén rétegeken belül 0, a határfelületen pedig arányos a $\delta(z - z_l)$ disztribúcióval. Reálisabb választás, ha a határfelületen a $\delta(z - z_l)$ disztribúció helyett egy σ szélességű eloszlásfüggvény szerinti átmenetet feltételezünk. Ezen eloszlásfüggvény alakja általában ismeretlen, közelítsük

ezért Gauss-függvénnyel. Legyen tehát valamely χ_1 és χ_2 szuszceptibilitású rétegek közötti keskeny átmeneti tartományban a szuszceptibilitás

$$\chi(z) = \chi_1 + \frac{\chi_2 - \chi_1}{\sqrt{\pi}} \operatorname{erf}\left(\frac{z}{\sqrt{2}\sigma}\right) \tag{3.34}$$

alakú, ahol az erf függvény a Gauss-függvény primitív függvénye, vagyis a hibafüggvény, továbbá az egyszerűség kedvéért koordinátarendszerünk kezdőpontját úgy választottuk, hogy $\langle z \rangle = 0$ teljesüljön. A (3.34) kifejezésben szereplő hosszúság dimenziójú σ mennyiség az eloszlás szélessége, ennek $1/\sqrt{2}$-szeresét (tehát az eloszlás félértékszélességét) a szakirodalom felületi érdességnek (*rms surface roughness*) nevezi.

Feladatunk tehát a (3.17) differenciálegyenlet megoldása abban az esetben, ha a (3.34) kifejezés következtében az egyenlet

$$M(z) = \begin{pmatrix} 0 & ik\sin\theta \cdot I + \frac{\chi(z)}{\sin\theta} \\ ik\sin\theta \cdot I & 0 \end{pmatrix} \tag{3.35}$$

együtthatómátrixa z-függő. Ezt a változó együtthatójú homogén lineáris mátrix-differenciálegyenletet csak közelítőleg tudjuk megoldani, ui. a szokásos $\exp\left[ik \int \mathrm{d}z M(z)\right]$ megoldás mátrixegyütthatók esetén nem érvényes.

A megoldást keressük a $-d \leq z \leq d$ tartományban, melyre

$$\chi(-d) \approx \chi_1 \tag{3.36a}$$

$$\chi(d) \approx \chi_2 \tag{3.36b}$$

összefüggések teljesülnek. Osszuk fel ezt a $2d$ vastagságú tartományt s részre, azaz vegyük a tetszőleges

$$z_1 = -d,\ z_2, ...,\ z_{s-1},\ z_s = d \tag{3.37}$$

felosztást. Ha a felosztás elég finom, akkor a kijelölt intervallumokon a (3.35) együttha-

tómátrix már konstansnak tekinthető, ezért a megoldás (2.24) és (2.25) értelmében

$$\begin{aligned} W(d) &\equiv W_s = \left(I^{(4)} + ikM_{s-1}\delta z_{s-1}\right)\left(I^{(4)} + ikM_{s-2}\delta z_{s-2}\right)\cdot ...\cdot\left(I^{(4)} + ikM_1\delta z_1\right)W_1 \\ &= L(2d)\,W(-d) \end{aligned} \tag{3.38}$$

alakban írható fel, ahol $W_i \equiv W(z_i)$, $M_i \equiv M(z_i)$, $\delta z_i = z_{i+1} - z_i$ (mindenütt $i = 1...s$), továbbá a (2.24) szerinti szorzótényezők exp függvényeit $\delta z_i \to 0$ miatt csak első rendig írtuk ki és bevezettük $I^{(4)}$ 4×4-es egységmátrixot. A mátrixszorzások elvégzése után a $2d$ vastagságú átmeneti réteg

$$L(2d) = I^{(4)} + ik\sum_{i=1}^{s-1} M_i\delta z_i + (ik)^2\sum_{i=2}^{s-1} M_i\delta z_i\sum_{j=1}^{i-1} M_j\delta z_j + ... + (ik)^{s-1} M_{s-1}\cdot ...\cdot M_1\delta z_{s-1}\cdot ...\cdot\delta z_1 \tag{3.39}$$

karakterisztikus mátrixát kapjuk. Végül az összegzésekről integrálokra térve át ($\delta z_i \to 0$), az

$$\begin{aligned} L(2d) &= I^{(4)} + ik\int_{-d}^{d} \mathrm{d}z\, M(z) + (ik)^2\int_{-d}^{d}\mathrm{d}z\int_{-d}^{z}\mathrm{d}z'\, M(z)\, M\left(z'\right) \\ &\quad + (ik)^3\int_{-d}^{d}\mathrm{d}z\int_{-d}^{z}\mathrm{d}z'\int_{-d}^{z'}\mathrm{d}z''\, M(z)\, M\left(z'\right) M\left(z''\right) + ... \qquad \text{(3.40a)} \\ &\equiv L^{(0)} + L^{(1)} + L^{(2)} + L^{(3)} + ... \qquad \text{(3.40b)} \end{aligned}$$

sort kapjuk, melyből tetszőleges rendig előállítható a keresett karakterisztikus mátrix.

Határozzuk meg $L(2d)$-t a (3.40a) kifejezés szerint másodrendig, vagyis az evidens

$$L^{(0)} = I^{(4)} \tag{3.41}$$

tag mellé határozzuk meg $L^{(1)}$ és $L^{(2)}$ mátrixokat. Számításaink során feltételezzük, hogy

az átmeneti rétegre a (3.36a) és (3.36b) kifejezésekkel összhangban

$$\exp\left(-\frac{d^2}{2\sigma^2}\right) \approx 0 \tag{3.42}$$

teljesül. A (3.35) és (3.34) kifejezéseket behelyettesítve, felhasználva (3.42)-t, parciálisan integrálva kapjuk, hogy

$$\begin{aligned} L^{(1)} &= ik\int_{-d}^{d} \mathrm{d}z\, M(z) = ik \begin{pmatrix} 0 & 2d\sin\theta\cdot I + \int_{-d}^{d} \mathrm{d}z \frac{\chi(z)}{\sin\theta} \\ 2d\sin\theta\cdot I & 0 \end{pmatrix} \\ &= (2ikd) \begin{pmatrix} 0 & \sin\theta\cdot I + \frac{1}{\sin\theta}\frac{\chi_1+\chi_2}{2} \\ \sin\theta\cdot I & 0 \end{pmatrix}, \end{aligned} \tag{3.43}$$

valamint hasonlóan kifejezve a másodrendű tagot is:

$$\begin{aligned} L^{(2)} &= (ik)^2 \int_{-d}^{d} \mathrm{d}z \int_{-d}^{z} \mathrm{d}z'\, M(z)\, M(z') \\ &= (ik)^2 \int_{-d}^{d} \mathrm{d}z \int_{-d}^{z} \mathrm{d}z' \begin{pmatrix} I\sin^2\theta + \chi(z) & 0 \\ 0 & I\sin^2\theta + \chi(z') \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

melyből az integrálok elvégzése után

$$L^{(2)} = \frac{(2ikd)^2}{2!}\left[\begin{pmatrix} I\sin^2\theta & 0 \\ 0 & I\sin^2\theta \end{pmatrix} + \frac{1}{4}\begin{pmatrix} a\chi_1 + b\chi_2 & 0 \\ 0 & b\chi_1 + a\chi_2 \end{pmatrix}\right] \tag{3.44}$$

adódik, ahol $a = \left[1 + \left(\frac{\sigma}{d}\right)^2\right]$ ill. $b = \left[3 - \left(\frac{\sigma}{d}\right)^2\right]$. Láthatjuk, hogy az elsőrendű tag egyszerűen azt jelenti, hogy az átmeneti tartomány szuszceptibilitását a két szomszédos réteg szuszceptibilitásának számtani közepével vesszük figyelembe.

A (3.40b) sor azonban $2kd$ hatványai szerint halad. Mivel d-t úgy választottuk, hogy rá (3.42) teljesüljön, ezért a sor rendkívül lassan konvergál, továbbá tartalmazza a számunkra érdektelen d paramétert. Mivel σ függvényében szeretnénk megoldást

találni, valamint a gyorsabb konvergencia és a kényelmesebb formalizmus kedvéért a következőkben a szakirodalomban már ismert eljárást [27] fogjuk követni.

Tekintsük az ideális rétegek esetét ($\sigma = 0$). Ekkor a két réteget leíró teljes karakterisztikus mátrix:

$$L_{(2)} L_{(1)}.$$

Ha a határfelület-menti d vastagságú sávokat eltávolítjuk és az érdes határtartomány $L(2d)$ karakterisztikus mátrixával helyettesítjük, akkor a teljes karakterisztikus mátrix

$$L_{(2)} L_{(2)}^{-1}(d)\, L(2d)\, L_{(1)}^{-1}(d)\, L_{(1)} \equiv L_{(2)} L^{cor} L_{(1)} \tag{3.45}$$

alkban írható fel, ahol bevezettük L^{cor} korrekciós mátrixot, továbbá a χ_1 és χ_2 szuszceptibilitású, d vastagságú rétegek eltávolítását rendre $L_1^{-1}(d)$ és $L_2^{-1}(d)$ inverzmátrixokkal vettük figyelembe. Módszerünk tehát az, hogy $L(2d)$ helyett L^{cor} mátrixot fogjuk használni.

Határozzuk meg az $L^{cor} = L_{(2)}^{-1}(d)\, L(2d)\, L_{(1)}^{-1}(d)$ mátrixot másodrendben. Ehhez az $L_{(j)}^{-1}(d)$ $(j = 1, 2)$ mátrixokat kell — ugyancsak másodrendben — sorbafejtenünk. A (2.24) kifejezés szerint

$$\begin{aligned} L_{(j)}^{-1}(d) &= \exp\left[-ikd \begin{pmatrix} 0 & I\sin\theta + \frac{\chi_j}{\sin\theta} \\ I\sin\theta & 0 \end{pmatrix}\right] \\ &= I^{(4)} + (-ikd) \begin{pmatrix} 0 & I\sin\theta + \frac{\chi_j}{\sin\theta} \\ I\sin\theta & 0 \end{pmatrix} \\ &\quad + \frac{(-ikd)^2}{2!} \begin{pmatrix} I\sin^2\theta + \chi_j & 0 \\ 0 & I\sin^2\theta + \chi_j \end{pmatrix} + \ldots \end{aligned} \tag{3.46}$$

További számításaink kedvéért írjuk át (3.46) kifejezést

$$L_{(j)}^{-1}(d) = I^{(4)} + l_j + \ldots \tag{3.47}$$

alakra, ahol bevezettük az

$$l_j = \begin{pmatrix} \frac{F_j}{2} & \frac{F_j}{(-ikd)\sin\theta} \\ (-ikd)\sin\theta & \frac{F_j}{2} \end{pmatrix} \tag{3.48}$$

mátrixot

$$F_j = (-ikd)^2 \left(I \sin^2\theta + \chi_j \right) \tag{3.49}$$

jelöléssel ($j = 1, 2$). Hasonló módon a fentiekben már másodrendig kiszámolt $L(2d)$ mátrixra

$$L(2d) = I^{(4)} + l_r + ..., \tag{3.50}$$

ahol tehát

$$l_r = \begin{pmatrix} \frac{F_I}{2} & \frac{F_{12}}{(2ikd)\sin\theta} \\ (2ikd)\sin\theta & \frac{F_{II}}{2} \end{pmatrix}, \tag{3.51}$$

és

$$F_I = (2ikd)^2 \left\{ I \sin^2\theta + \left[1 + \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] \frac{\chi_1}{4} + \left[3 - \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] \frac{\chi_2}{4} \right\} \tag{3.52a}$$

$$F_{II} = (2ikd)^2 \left\{ I \sin^2\theta + \left[3 - \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] \frac{\chi_1}{4} + \left[1 + \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] \frac{\chi_2}{4} \right\} \tag{3.52b}$$

$$F_{12} = (2ikd)^2 \left\{ I \sin^2\theta + \frac{\chi_1 + \chi_2}{2} \right\}. \tag{3.52c}$$

A (3.49) és (3.52) kifejezésekből következik, hogy

$$\frac{1}{2} F_{12} = F_1 + F_{2,} \tag{3.53}$$

valamint

$$F_I = \left[1 + \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] F_1 + \left[3 - \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] F_2 \tag{3.54a}$$

$$F_{II} = \left[3 - \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] F_1 + \left[1 + \left(\frac{\sigma}{d} \right)^2 \right] F_2. \tag{3.54b}$$

A (3.45), (3.47) és (3.50) kifejezésekből

$$L^{cor} = I^{(4)} + l_1 + l_2 + l_r + l_2 l_r + l_r l_1 + l_2 l_1 + ..., \tag{3.55}$$

ennek másodrendű kiszámításához az $l_2 l_r$, $l_r l_1$ és $l_2 l_1$ mátrixszorzatokat kell meghatároznunk. Mivel a (3.44) kifejezés értelmében F_1, F_2, F_{12}, F_I és F_{II} másodrendű, a (3.43) egyenlőség szerint $kd\sin\theta$ pedig elsőrendű mennyiségek, ezért a másodrendig kiírt szorzatmátrixok:

$$l_2 l_r \approx \begin{pmatrix} -2F_2 & 0 \\ 0 & -F_{12}/2 \end{pmatrix} \tag{3.56a}$$

$$l_r l_1 \approx \begin{pmatrix} -F_{12}/2 & 0 \\ 0 & -2F_1 \end{pmatrix} \tag{3.56b}$$

$$l_2 l_1 \approx \begin{pmatrix} F_2 & 0 \\ 0 & F_1 \end{pmatrix}. \tag{3.56c}$$

A keresett L^{cor} korrekciós mátrixot tehát másodrendben megkapjuk, ha a (3.55) kifejezésbe behelyettesítjük a (3.48) és a (3.51) mátrixokat, valamint ezek (3.56) szorzatait, továbbá felhasználjuk a (3.53) és a (3.54) kifejezéseket. Ennek értelmében:

$$L^{cor} = \begin{pmatrix} I + \frac{1}{2}(ik\sigma)^2(\chi_1 - \chi_2) & 0 \\ 0 & I - \frac{1}{2}(ik\sigma)^2(\chi_1 - \chi_2) \end{pmatrix} + ... \tag{3.57}$$

Ezzel meghatároztuk két rétegből álló optikai rendszerünk karakterisztikus mátrixát, miközben a határfelület érdességét másodrendben figyelembe vettük. Az önkényesen választott d paraméter kiesett a kapott (3.57) formulából.

Multirétegek esetében tetszőleges két szomszédos réteg között lehetséges egy átmenti tartomány. Az átmeneti rétegek vastagsága rétegről–rétegre változhat, ezért a (2.25)

kifejezés helyett

$$L = \left(L_{(s)} L_{(s)}^{cor}\right) \cdot \ldots \cdot \left(L_{(1)} L_{(1)}^{cor}\right) \tag{3.58}$$

szerint kell számolnunk az L teljes karakterisztikus mátrixot, ahol $L_{(j)}^{cor}$ $(j = 1...s)$ a j. réteg korrekciós mátrixa, melyet (3.57) kifejezés szerint értelmezhetünk $\sigma \to \sigma_j$, $\chi_1 \to \chi_{j-1}$ és $\chi_2 \to \chi_j$ helyettesítésekkel, azaz

$$L_{(j)}^{cor} \approx \begin{pmatrix} I + \frac{1}{2}\left(ik\sigma_j\right)^2 (\chi_{j-1} - \chi_j) & 0 \\ 0 & I - \frac{1}{2}\left(ik\sigma_j\right)^2 (\chi_{j-1} - \chi_j) \end{pmatrix}. \tag{3.59}$$

A másodrendű közelítés keretein belül programozástechnikai okokból célszerű formuláinkat átalakítani, ui. $L_{(j)}^{cor}$ nemcsak a j., hanem a szomszédos $j-1$. réteg szuszceptibilitásmátrixától is függ. Vegyük észre, hogy (3.59) mátrix-mátrixelemeire másodrendben

$$I + \frac{1}{2}\left(ik\sigma_j\right)^2 (\chi_{j-1} - \chi_j) \approx \left(I + \frac{\left(k\sigma_j\right)^2}{2}\chi_j\right)\left(I - \frac{\left(k\sigma_j\right)^2}{2}\chi_{j-1}\right) \tag{3.60a}$$

$$I - \frac{1}{2}\left(ik\sigma_j\right)^2 (\chi_{j-1} - \chi_j) \approx \left(I - \frac{\left(k\sigma_j\right)^2}{2}\chi_j\right)\left(I + \frac{\left(k\sigma_j\right)^2}{2}\chi_{j-1}\right) \tag{3.60b}$$

összefüggések teljesülnek, ezért

$$L_{(j)}^{cor} \approx \begin{pmatrix} I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_j & 0 \\ 0 & I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_j \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_{j-1} & 0 \\ 0 & I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_{j-1} \end{pmatrix} \tag{3.61}$$

szorzat alakra hozható. Ugyanígy a $j+1$. korrekciós mátrix:

$$\begin{aligned} L_{(j+1)}^{cor} \approx & \begin{pmatrix} I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_{j+1} & 0 \\ 0 & I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_{j+1} \end{pmatrix} \\ & \cdot \begin{pmatrix} I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_j & 0 \\ 0 & I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_j \end{pmatrix}. \end{aligned} \tag{3.62}$$

A (3.61) kifejezés szorzatának második szorzótényezőjét és a (3.62) mátrixszorzat első szorzótényezőjét a j. réteg karakterisztikus mátrixához csatolva kapjuk a keresett korrigált karakterisztikus mátrixot:

$$L_{(j)} \rightarrow \begin{pmatrix} I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_j & 0 \\ 0 & I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_{j+1}\right)^2 \chi_j \end{pmatrix} L_{(j)} \cdot \begin{pmatrix} I + \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_j & 0 \\ 0 & I - \frac{1}{2}\left(k\sigma_j\right)^2 \chi_j \end{pmatrix}, \tag{3.63}$$

ahol $L_{(j)}$ az ideálisan sík j. réteg karakterisztikus mátrixa. Felhasználva, hogy $L_{(j)}$ 2×2-es blokkmátrixai kommutálnak χ_j-vel, kapjuk az

$$L_{(j)} \rightarrow \begin{pmatrix} L_{(j)[11]}\left[I + \frac{1}{2}k^2\left(\sigma_j^2 - \sigma_{j+1}^2\right)\chi_j\right] & L_{(j)[12]}\left[I - \frac{1}{2}k^2\left(\sigma_j^2 + \sigma_{j+1}^2\right)\chi_j\right] \\ L_{(j)[21]}\left[I + \frac{1}{2}k^2\left(\sigma_j^2 + \sigma_{j+1}^2\right)\chi_j\right] & L_{(j)[22]}\left[I - \frac{1}{2}k^2\left(\sigma_j^2 - \sigma_{j+1}^2\right)\chi_j\right] \end{pmatrix}, \tag{3.64}$$

helyettesítést, ahol az alsó indexben szereplő szögletes zárójelek a szóban forgó 4×4-es mátrix megfelelő 2×2-es blokkjait jelölik.

Ezzel megmutattuk, hogy multirétegek felületi érdessége közelítőleg úgy vehető figyelembe, hogy a réteg karakterisztikus mátrixát a (3.64) kifejezés szerint módosítjuk, majd a teljes karakterisztikus mátrixot (2.25) értelmében határozzuk meg. Megjegyezzük még, hogy magasabb rendben számolva (azaz a harmadrendű közelítéstől kezdődően) a (3.58) kifejezés adja a rendszer teljes karakterisztikus mátrixát, mely esetben (3.55) sorfejtés szerint az L^{cor} mátrixot pontosabban meghatározva, az L teljes karakterisztikus mátrixra is pontosabb eredményt kaphatunk. Bár a sorfejtés konvergenciakritériumait nem vizsgáltuk, megjegyezzük hogy a másodrendű korrekció mértéke a szokásos gyakorlati esetekben, azaz $k = 73\text{nm}^{-1}$, valamint $0.1\text{nm} \leq \sigma \leq 1\text{nm}$ felületi érdességet és $\|\chi\| \approx 10^{-5}$ feltételezve, kb. $10^{-3} \leq \left\|\left(k\sigma\right)^2 \chi\right\| \leq 10^{-1}$ tartományban van. A felső érték eléri a 10%-ot, ami mindenképpen azt jelzi, hogy érdemes lenne magasabbrendű közelítést alkalmazni.

4. fejezet

Opikai formalizmusunk alkalmazása a neutronreflektometriában

Az előző fejezetben megmutattuk, milyen módon célszerű alkalmazni a BBL-optikát multirétegek súroló beeséses nukleáris rezonanciaszórás-spektrumainak számítására. Mint tudjuk, elméletünk kidolgozását a nukleáris szórás anizotropiája tette szükségessé, hiszen az izotrop esetekre a Born–Wolf-féle mátrixmódszer is megfelelő. A neutronreflektometriában hasonló helyzettel találkozhatunk, hiszen bizonyos esetekben a szórás ugyancsak anizotrop lehet (pl. ha a minta belső mágneses tere nem párhuzamos a neutronnyaláb polarizációjával, l. később). Felmerül tehát a kérdés, hogy az általunk az előző fejezetben kidolgozott optikai formalizmus és a belőle levezetett algoritmus alkalmazható-e a neutronszórás esetében is. Hogy a kérdést megválaszolhassuk, tegyünk egy kis kitérőt dolgozatunk eredeti témájától, a fotonok nukleáris rezonanciaszórásának vizsgálatától. Az alábbiakban megmutatjuk, hogy módszerünk — lényegében változtatás nélkül — a neutronreflektometriában is alkalmazható.

4.1 A neutronszórás tárgyalása

Tekintsük először azt az esetet, amikor egyetlen neutron hat kölcsön az atommaggal. Induljunk ki a spinfüggő Schrödinger-egyenletből:

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} I\Delta + V(\mathbf{r})\right] \Psi_1(\mathbf{r}) = E\,\Psi_1(\mathbf{r}), \tag{4.1}$$

ahol $\Psi_1(\mathbf{r})$ a neutron kvantummechanikai állapotához rendelt kétkomponensű spinor, I a spinortéren értelmezett egységoperátor, a $V(\mathbf{r}) = V_p(\mathbf{r}) + V_m(\mathbf{r})$ potenciál a $V_p(\mathbf{r})$ izotrop nukleáris Fermi-féle pszeudopotenciál és a $V_m(\mathbf{r})$ polarizációfüggő mágneses potenciálok összege, nevezetesen

$$V_p(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b\delta(\mathbf{r})\, I, \tag{4.2}$$

ahol m a neutron tömege, b a maghoz tartozó nukleáris szórási hossz a laboratóriumi rendszerben, továbbá

$$V_m(\mathbf{r}) = -\mu_m \cdot [\mathbf{B}(\mathbf{r}) + \mathbf{B}_{ext}], \tag{4.3}$$

ahol $\mu_m = g\mu_N\sigma$ a neutron mágneses momentumához rendelt operátor, $g = -1.9132$, μ_N=5.050 $\times$ 10^{-27}Am^2, σ a Pauli-operátor, $\mathbf{B}$ az atomi mágneses tér, $\mathbf{B}_{ext}$ pedig az esetleges külső (homogén) mágneses tér. A (4.1), (4.2) és (4.3) kifejezésekből $k^2 = \frac{2m}{\hbar^2}E$ bevezetésével kapjuk a

$$\left[\left(\Delta + k^2\right) I + \frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N\sigma \cdot \mathbf{B}_{ext} + \frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N\sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) - 4\pi b I\delta(\mathbf{r})\right] \Psi_1(\mathbf{r}) = \mathbf{0} \tag{4.4}$$

inhomogén lineáris differenciálegyenlet, melynek inhomogén része a V_p Fermi-potenciálból és a V_m mágneses potenciál helyfüggő részéből, vagyis az atomi mágneses momentumból eredő mágneses térből adódik.

A megoldandó feladat a fenti egyszerű szórásprobléma általánosítása, sok szórócentrum figyelembe vételével. A megoldást Lax gondolatmenete alapján adjuk meg: felhasználjuk azt a tételt, amelyben megmutatta, hogy a véletlenszerűen elhelyezkedő diszkrét szórócentrumok rendszere a koherens tér szempontjából helyettesíthető az adott

térfogatot kitöltő homogén közeggel, mely közeget annak n törésmutatójával definiálhatjuk, és ez a törésmutató az eredeti egyrészecskeszórás f koherens előreszórási amplitúdójával és a szórócentrumok N koncentrációjával adható meg: $n = 1 + \frac{2\pi N}{k^2} f$ [3]. Matematikailag mindezt úgy is megfogalmazhatjuk, hogy a koherens tér leírásához a (4.4) inhomogén egyenlet helyett egyszerű hullámegyenlettel dolgozhatunk.

Foglalkozzunk először a (4.4) egyrészecske-szórásprobléma megoldásával. Válasszunk az egyszerűség kedvéért a spinortérhez olyan bázist, amelyen a homogén egyenlet mátrixai diagonálisak, azaz diagonizáljuk a $\frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N \sigma \cdot \mathbf{B}_{ext}$ mátrixot. A megoldandó egyenlet az új bázison ekkor:

$$\begin{pmatrix} \Delta + k_+^2 & 0 \\ 0 & \Delta + k_-^2 \end{pmatrix} \Psi_1^{'}(\mathbf{r}) = \hat{U}^{'}(\mathbf{r}) \Psi_1^{'}(\mathbf{r}), \tag{4.5}$$

ahol $k_\pm^2 = k^2 \pm \frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N |\mathbf{B}_{ext}|$ és $\hat{U}^{'}(\mathbf{r})$ az

$$\hat{U}(\mathbf{r}) = \begin{pmatrix} U_{++} & U_{+-} \\ U_{-+} & U_{--} \end{pmatrix} = \frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N \sigma \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) - 4\pi b I \delta(\mathbf{r})$$

inhomogén potenciál az új "vesszős" koordinátarendszerben kifejezve. A (4.5) egyenlet megoldásait a jól ismert Green-függvényes technika segítségével állíthatjuk elő:

$$\Psi_1^{'}(\mathbf{r}) = \phi^0 + \int_{\Omega} d^3\mathbf{r}^{'} \hat{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \hat{U}(\mathbf{r}') \Psi_1^{'}(\mathbf{r}'), \tag{4.6}$$

ahol $\phi^0 = \begin{pmatrix} \exp i\mathbf{k}_+\mathbf{r} & 0 \\ 0 & \exp i\mathbf{k}_-\mathbf{r} \end{pmatrix} \phi$, ϕ tetszőleges konstans spinor, továbbá

$$\hat{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \begin{pmatrix} G_+(\mathbf{r} - \mathbf{r}') & 0 \\ 0 & G_-(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \end{pmatrix} \tag{4.7}$$

a Green-függvény, melynek $G_\pm(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = -\frac{1}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \exp ik_\pm |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$ komponensei kielégítik

a

$$\begin{pmatrix} \Delta + k_+^2 & 0 \\ 0 & \Delta + k_-^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} G_+ (\mathbf{r}) \\ G_- (\mathbf{r}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \delta (\mathbf{r}) \\ \delta (\mathbf{r}) \end{pmatrix}$$

differenciálegyenletet. Az Ω integrálási tartományt a kölcsönhatás hatósugara definiálja. Alkalmazva az első Born-közelítést, a szórócentrumtól távoli megoldás az $|\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \approx r - \frac{\mathbf{r}\mathbf{r}'}{r}$ közelítéssel:

$$\Psi_1^{'} (\mathbf{r}) = \phi^0 + \frac{1}{r} \begin{pmatrix} \exp ik_+ r & 0 \\ 0 & \exp ik_- r \end{pmatrix} f^{'} (\mathbf{K}_{++}, \mathbf{K}_{+-}, \mathbf{K}_{-+}, \mathbf{K}_{--})\, \phi, \tag{4.8}$$

ahol

$$f^{'} (\mathbf{K}_{++}, \mathbf{K}_{+-}, \mathbf{K}_{-+}, \mathbf{K}_{--}) = -\frac{1}{4\pi} \int\limits_{\Omega} d^3\mathbf{r}^{'} \begin{pmatrix} U_{++} (\mathbf{r}') \exp i\mathbf{K}_{++}\mathbf{r}' & U_{+-} (\mathbf{r}') \exp i\mathbf{K}_{+-}\mathbf{r}' \\ U_{-+} (\mathbf{r}') \exp i\mathbf{K}_{-+}\mathbf{r}' & U_{--} (\mathbf{r}') \exp i\mathbf{K}_{--}\mathbf{r}' \end{pmatrix}, \tag{4.9}$$

a szórási amplitúdó ugyancsak a vesszős koordinátarendszerben, továbbá

$$\mathbf{K}_{\mu\nu} = \mathbf{k}_\nu - k_\mu \frac{\mathbf{r}}{r}$$

$(\mu, \nu = +, -)$ a szórási hullámvektorok. A (4.8) értelmében tehát a szórócentrumtól távoli megoldás a skaláresethez hasonlóan most is a bejövő síkhullám és egy kifutó gömbhullám szuperpozíciója.

Térjünk most át a többcentrumú szórás estére! Kiindulási egyenletünk most a

$$\begin{pmatrix} \Delta + k_+^2 & 0 \\ 0 & \Delta + k_-^2 \end{pmatrix} \Psi^{'} (\mathbf{r}; \mathbf{r}_1, .., \mathbf{r}_n) = \sum_j \hat{U}^{'} (\mathbf{r} - \mathbf{r}_j)\, \Psi^{'} (\mathbf{r}; \mathbf{r}_1, .., \mathbf{r}_n), \tag{4.10}$$

ahol az egy szórócentrumra utaló indexet elhagytuk az állapotfüggvényről, az $\hat{U}$ inhomogén potenciált pedig a korábbi "egyrészecske-potenciál" eltolásaival vettük fel. Alkalmazzuk a már említett Lax-féle eljárást, melynek értelmében a szórócentrumok koordinátáira és egyéb paramétereire való átlagolással kapott $\left\langle \Psi^{'} \right\rangle$ koherens tér kielégíti

a

$$\left[\begin{pmatrix} \Delta + k_+^2 & 0 \\ 0 & \Delta + k_-^2 \end{pmatrix} + 4\pi N \bar{f}' \left(\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0}\right)\right] \left\langle \Psi' \left(\mathbf{r}\right)\right\rangle = \mathbf{0}, \tag{4.11}$$

egyenletet, ahol N a szórócentrumok sűrűsége és $\bar{f}' \left(\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0}\right)$ a koherens előreszórási amplitúdó a (4.9) szerinti értelemben [3]. Térjünk vissza az eredeti koordinátarendszerünkbe, felhasználva hogy a (4.9) kifejezésben az integrál és a koordinátatranszformáció felcserélhető a $(\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0})$ argumentum esetén, így a koherens tér egyenlete az eredeti rendszerben

$$\left[\left(\Delta + k^2\right) I + \frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N \sigma \cdot \mathbf{B}_{ext} + 4\pi N \bar{f}\right] \Psi \left(\mathbf{r}\right) = \mathbf{0}, \tag{4.12}$$

ahol az $\bar{f}$ koherens előreszórási amplitúdó $(\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0},\mathbf{0})$ argumentumát és a szórócentrumokra való átlagolást már nem írtuk ki.

Határozzuk meg az $\bar{f}$ koherens előreszórási amplitúdót az

$$\bar{f} = -\frac{1}{4\pi} \int\limits_{\Omega} d^3\mathbf{r}\ \hat{U}\left(\mathbf{r}\right). \tag{4.13}$$

képlet segítségével [l. a (4.9) kifejezést]. Felhasználva a (4.2), (4.3) és (4.13) egyenlőségeket kapjuk a koherens előreszórási amplitúdót:

$$\bar{f} = -\sum_l \left(\alpha_l b_l I - \beta_l \frac{m}{2\pi\hbar^2} g\mu_N \sigma \cdot \left\langle \mathbf{B}_l \right\rangle \Omega\right), \tag{4.14}$$

ahol megengedtünk különböző típusú szórócentrumokat is, így α_l az l-ik típusú nukleáris, β_l az l-ik típusú mágneses szórócentrumok relatív koncentrációja, $\left\langle \mathbf{B}_l \right\rangle = \frac{1}{\Omega} \int\limits_{\Omega} d^3\mathbf{r}\ \mathbf{B}_l\left(\mathbf{r}\right)$ az l-ik típusú atom átlagos mágneses tere a hatástérfogatban. Ennek alapján a (4.12) kifejezésbe behelyettesítve, $N\Omega = 1$ választással kapjuk:

$$\left[\left(\Delta + k^2\right) I + k^2 \chi\right] \Psi \left(\mathbf{r}\right) = \mathbf{0}, \tag{4.15}$$

ahol

$$\chi = \frac{1}{k^2}\left[\frac{2m}{\hbar^2} g\mu_N \sigma \cdot \left(\mathbf{B}_{ext} + \sum_l \beta_l \langle \mathbf{B}_l \rangle\right) - 4\pi N \sum_l \alpha_l b_l I\right]. \tag{4.16}$$

Vegyük észre, hogy külső tér hiánya estén az *SMR*-nél kapott

$$\chi = \frac{4\pi N}{k^2}\bar{f} \tag{4.17}$$

összefüggés érvényes [l. az (1.9) és (1.10) kifejezéseket]. Láthatjuk, hogy a (4.16) kifejezés zárójeles tényezőjéből $4\pi N$-et kiemelve, formálisan a teljes mágneses tagot — tehát a külső homogén mágneses térhez tartozó tagot is — beleolvaszthatjuk $\bar{f}$-be. Fizikailag ez azt jelenti, hogy a szórócentrumokat körülvevő diszjunkt Ω tartományokban a $\mathbf{B}_{ext}$ járulékát az "egyrészecske-potenciál"-okhoz rendelhetjük. Ekkor a szórócentrumok összessége kiadja a teljes térben a homogén külső teret és így a (4.7) alkalmazása helyett változatlan formában alkalmazhatnánk Lax elméletét [3].

4.2 Optikai formulák

A (4.15) háromdimenziós hullámegyenlet értelmezi a közeg törésmutatóját, hiszen rögtön látni fogjuk, hogy a most bevezetett χ mennyiség teljesen azonos szerepet tölt be a korábban az *SMR*-rel foglalkozó fejezetekben használt szuszceptibilitástenzorral. Tekintsünk most egy homogén réteget, melyet a fent bevezetett χ mennyiséggel írhatunk le. A (4.15) egyenlőségből egy egydimenziós hullámegyenletet kapunk (mutasson a z tengely a réteg normálisának irányába):

$$\Psi''(z) + \left[Ik_z^2 + k^2\chi\right]\Psi(z) = \mathbf{0}, \tag{4.18}$$

ahol $k_z = k\sin\theta$ a vákuumbéli beeső nyaláb hullámszámvektorának z irányú komponense, θ a beesés szöge, így

$$\Psi''(z) + k^2\sin\theta\left[I\sin\theta + \frac{\chi}{\sin\theta}\right]\Psi(z) = \mathbf{0}. \tag{4.19}$$

Vezessük be az $(ik\sin\theta)\ \Phi'(z) := \Psi''(z)$ képlet segítségével a Φ új ismeretlen függvényt. Ekkor a (4.19) másodrendű differenciálegyenlet helyett a

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\begin{pmatrix}\Phi\\ \Psi\end{pmatrix} = ik\begin{pmatrix}0 & I\sin\theta+\frac{\chi}{\sin\theta}\\ I\sin\theta & 0\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\Phi\\ \Psi\end{pmatrix}. \tag{4.20}$$

elsőrendű differenciálegyenletrendszert kapjuk. A (4.20) egyenlőség alakilag pontosan megegyezik a 3. fejezetben levezetett (3.17) kifejezéssel.

Hogy a neutronreflektometriában szokásos jelöléseket használjuk, helyettesítsük be a $Q = 2k\sin\theta$ impulzustranszfer (ill. a szórási vektor abszulút értéke) és a

$$K = k^2\chi = \frac{2m}{\hbar^2}g\mu_N\sigma\cdot\left(\mathbf{B}_{ext}+\sum_l \beta_l\left\langle\mathbf{B}_l\right\rangle\right) - 4\pi N\sum_l \alpha_l b_l I \tag{4.21}$$

szórásihossz-sűrűségeket, melyek segítségével (4.20) új alakja

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\begin{pmatrix}\Phi\\ \Psi\end{pmatrix} = i\begin{pmatrix}0 & \frac{Q}{2}I+\frac{2K}{Q}\\ \frac{Q}{2}I & 0\end{pmatrix}\begin{pmatrix}\Phi\\ \Psi\end{pmatrix}. \tag{4.22}$$

A Pauli-mátrixokat behelyettesítve a (4.21) egyenlőségbe a

$$K = \frac{2m}{\hbar^2}g\mu_N\begin{pmatrix}B_x & B_y-iB_z\\ B_y+iB_z & -B_x\end{pmatrix} - 4\pi N\sum_l \alpha_l b_l I, \tag{4.23}$$

egyszerű kifejezést kapjuk, ahol B_x, B_y, B_z a $\mathbf{B} = \mathbf{B}_{ext} + \sum_l \beta_l \left\langle\mathbf{B}_l\right\rangle$ vektor komponensei.

Ezzel megmutattuk, hogy korábban vázolt reflektometriai formalizmusunk alkalmazható a neutronreflektometriában is. A K és Q mennyiségekkel tetszőleges homogén rétegre felírhatjuk a rétegbéli differenciális terjedési mátrixot, melyből a 3.2.3. alfejezetben leírtak szerint megkaphatjuk a réteg karakterisztikus mátrixát. Több réteg esetében a (2.25) kifejezés segítségével a teljes karakterisztikus mátrixot állíthatjuk elő, melyből a reflektivitásmátrix és a reflektált intenzitás már számolható a (3.27) és a (2.32) kifejezések segítségével.

4.3 A külső mágneses tér hatása a reflektivitásra

Emlékezzünk arra, hogy optikai módszerünk jelen egyszerű alakjában akkor érvényes, ha a beeső nyaláb vákuumból érkezik a rétegszerkezet felületére. A neutronreflektometria gyakorlati megvalósítása során a depolarizáció kiküszöbölése céljából egy ún. vezető vagy "guiding" mágneses teret alkalmaznak. A (4.23) kifejezés szerint ez azt jelenti, hogy a nyaláb egy anizotrop optikai közegből érkezik a minta felületére, így ennek hatását figyelembe kell vennünk.

Térjünk rá tehát a matematikai leírásra! Kvantálási tengelynek válasszuk a "guiding"-tér irányát, a spinortér bázisai legyenek a "quiding"-tér sajátpolarizációs vektorai. A külső "guiding"-térből származó anizotrop közeg figyelembe vételére a B. függelékben megismert impedanciatenzoros módszert alkalmazzuk. Vezessük be a γ impedanciatenzort a következő módon

$$\gamma^{0,r,t}\Psi^{0,r,t} := \Phi^{0,r,t}, \tag{4.24}$$

ahol a $0, r$ és t felső indexek rendre a beeső, a reflektált és a megtört hullámokat jelölik [l. még a (2.30) definíciót]. A B. függelékben vázolt eljárást követve a (4.22) kifejezésből most is közvetlenül megkapható a (B.3) összefüggés, melyből $A = D = 0$, $B = \frac{Q}{2}I + \frac{2K}{Q}$ és $C = \frac{Q}{2}I$ helyettesítéssel a neutronreflektometriára érvényes impedanciatenzor:

$$\gamma := \gamma^0 = -\gamma^r = \gamma^t = \sqrt{I + \frac{4K}{Q^2}}, \tag{4.25}$$

ahol K a "guiding"-térhez tartozó szórásihossz-sűrűség, valamint bevezettük a γ jelölést is. A (4.21) és (4.23) kifejezésekből

$$\gamma\left(Q\right) = \begin{pmatrix} \sqrt{1 + \frac{8m}{\hbar^2 Q^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right|} & 0 \\ 0 & \sqrt{1 - \frac{8m}{\hbar^2 Q^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right|} \end{pmatrix}. \tag{4.26}$$

Ugyancsak a függelék szerinti eljárást követve kapjuk kifejezésünket a 2×2-es

$$R = \left[\left(L_{[11]} - \gamma L_{[21]}\right)\gamma - L_{[12]} + \gamma L_{[22]}\right]^{-1} \left[\left(L_{[11]} - \gamma L_{[21]}\right)\gamma + L_{[12]} - \gamma L_{[22]}\right] \qquad (4.27)$$

reflektivitásmátrixra, mely kifejezés a γ tenzoron keresztül figyelembe veszi a "guiding"-tér hatását is. Ne feledjük el, hogy γ és L a vákuumbéli Q-tól függ, mely mennyiséget a "guiding"-térbeli $Q_{\pm} = 2k \sin\theta_{\pm}$ mennyiségből számolhatjuk vissza, a törési törvény alapján

$$Q_{\pm}^2 = Q^2 \pm \frac{8m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \qquad (4.28)$$

[l. (4.23), (4.18) kifejezéseket, valamint K és Q mennyiségek definícióit a (4.21) egyenlőségnél]. Hangsúlyoznunk kell, hogy az anizotrop közegben a kettőstörés miatt a két különböző polarizációhoz két különböző beesési szög (és két különböző visszaverődési szög) tartozik, melyeket a '+' és a '−' jelöléssel különböztettünk meg, mely nyalábok akár külön-külön is detektálhatóak.

A reflektált intenzitást — a bejövő nyalábra értelmezett $\rho = \overline{|\Psi\rangle\langle\Psi|}$ sűrűségmátrix segítségével (ahol felülvonás a bejövő polarizációra való átlagolást jelenti) — a már jólismert módon adhatjuk meg, ui.

$$I^r = \mathrm{Tr}\left(R^{\dagger} R \rho\right), \qquad (4.29)$$

mely képletben a két különböző polarizációhoz tartozó nyalábot összegeztük.

4.4 A "négyestörés" jelensége

A külső mágneses tér hatásait a neutronreflektometriában Pleshanov [28] és tőle függetlenül Fermon [30] vizsgálták először. Mivel az anizotrop optikai közegben egy adott hullámszámvektorral terjedő hullám két sajátpolarizációs irányához álltalában két különböző energia tartozik Pleshanov feltételezte, hogy a nyaláb a következő anizotrop réteget elérve négy, a reflektált nyaláb pedig három különböző irányba terjedő hullámba

törik. A szokásos egydimenziós hullámegyenlet helyett egy ún. bienergia-kifejezésen alapuló formalizmust dolgozott ki, két féltér esetére. Szeretnénk rámutatni, hogy a fentiekben bemutatott számítás e módszer általánosításának is tekinthető, mivel tetszőleges (nem csak a z-tengelyre merőleges) mágneses terekre érvényes és a ρ sűrűségmátrixokon keresztül általános polarizációs állapotok leírására alkalmas.

Az anizotrop közegben adott hullámszámvektorral (v. impulzussal) rendelkező neutron állapotfüggvényét tekintsük a közeg sajátpolarizációs bázisán. A két spinorkomponens hullámterjedése két — álltalában egymástól eltérő — törésmutató segítségével írható le. Ha hipotetikusan feltételezzük, hogy a nyaláb a vákuumból került az anizotrop közegbe, akkor Fresnel-törvényéből következik, hogy a vákuumban két különböző hullámszámvektorral rendelkező nyalábnak kellett lennie, a két eltérő törésmutató miatt. A határfeltételek értelmében a hullámszámvektor határfelületi komponense folytonosan megy át két közeg határán, ezért a vákuumban a két beeső nyaláb hullámhossza — a vákuumbéli

$$E = \hbar^2 k^2 / 2m \tag{4.30}$$

diszperziós reláció következtében így E energiája is — különböző. Kiindulásunknak megfelelően e két nyaláb a "guiding"-térben egyesül, tehát azonossá válik a hullámszámvektoruk, majd a következő anizotrop rétegben négy részre válik; mivel mindkét vákuumbéli nyaláb kettőstörést szenved (a következő rétegben már különbözik a sajátpolarizációs rendszer a "guiding" teres tartományétól). A valóságban tehát nem négyestörésről, hanem két kettőstörésről kell beszélnünk, ui. a vákuumban definiált két nyaláb energiája, és így frekvenciája különböző volt. E nyalábok intenzitása inkoherensen összegezhető, vagy máshogy fogalmazva közöttük interferencia nem lehetséges.

Mindezekből láthatjuk, hogy a Pleshanov-féle kép formalizmusunk egy speciális esete, hiszen arról van pusztán szó hogy két inkoherens nyalábot kell összegeznünk, azzal a megszorítással, hogy a "guiding"-térben a két ellentétes polarizációjú nyaláb hullámszámvektora egybeessék. Pleshanov állításával szemben a legáltalánosabb eset is leírható egydimenziós hullámegyenlet segítségével. Formalizmusunk reflektált intenzitása Plesha-

nov modelljére vonatkozóan

$$I^r = \mathrm{Tr}\left(R_1^\dagger R_1 \rho_1\right) + \mathrm{Tr}\left(R_2^\dagger R_2 \rho_2\right), \tag{4.31}$$

ahol az "1" és "2" indexek különböztetik meg a két inkoherens nyalábot, melyeket $Q_{(1)}$ ill. $Q_{(2)}$ menynyiségekkel paraméterezhetünk, azaz $R_1 = R_1\left(Q_{(1)}\right)$ valamint $R_2 = R_2\left(Q_{(2)}\right)$. Ekkor a (4.28) kifejezéshez hasonlóan a

$$Q^2_{(1)\pm} = Q^2_{(1)} \pm \frac{8m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \tag{4.32a}$$

$$Q^2_{(2)\pm} = Q^2_{(2)} \pm \frac{8m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \tag{4.32b}$$

$$Q_{(1)+} = Q_{(2)-} \equiv Q_{in} \tag{4.32c}$$

összefüggések figyelembe vételével

$$Q^2_{(1)} = Q^2_{in} - \frac{8m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \tag{4.33a}$$

$$Q^2_{(2)} = Q^2_{in} + \frac{8m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \tag{4.33b}$$

$$Q^2_{(1)-} = Q^2_{in} - \frac{16m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right| \tag{4.33c}$$

$$Q^2_{(2)+} = Q^2_{in} + \frac{16m}{\hbar^2} g\mu_N \left|\mathbf{B}_{ext}\right|, \tag{4.33d}$$

ahol a "guiding"-térben mért Q_{in} segítségével fejeztük ki $Q^2_{(1)}$, $Q^2_{(2)}$, $Q^2_{(1)-}$ és $Q^2_{(2)+}$ menynyiségeket. Precesszáló spineket tekintve tehát négy beeső és négy visszavert nyalábunk van a "guiding"-térben, mégpedig úgy, hogy közülük kettő — két inkoherens és ortogonális polarizációjú — nyaláb egybeesik. A Pleshanov által vizsgált elrendezés ennek azon speciális esete, amikor

$$\rho_1 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \text{ és } \rho_2 = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \tag{4.34}$$

azaz a beeső hullám csak a két egybeeső inkoherens nyaláb szuperpozíciója. Miközben

Pleshanov precesszióról beszélt, tulajdonképpen két inkoherens, teljesen polarizált nyalábot írt le.

Ha a nyalábdivergenciát ill. a monokromátor véges sávszélességét figyelembe vesszük akkor a reflektált intenzitás legáltalánosabb kifejezése

$$I^r = \frac{1}{2\Delta Q} \int_{Q_{in}-\Delta Q}^{Q_{in}+\Delta Q} p\left(Q\right) \mathrm{Tr}\left[R^{\dagger}\left(Q\right) R\left(Q\right) \rho\left(Q\right)\right] \mathrm{d}Q, \tag{4.35}$$

ahol tetszőleges $p(Q)$ eloszlást is figyelembe vehetünk. Innen látható, hogy a Pleshanov-féle modell az a speciális eset, amikor $p\left(Q\right) \sim \delta\left(Q - Q_{(1)}\right) + \delta\left(Q - Q_{(2)}\right)$ és a sűrűségmátrixok a (4.34) kifejezés szerinti értékekkel arányosak.

5. fejezet

Mössbauer-mérések szinkrotronforrással

Az előzőekben ismertetett elméleti módszerek alkalmazásaként néhány kísérleti eredményt is szeretnénk bemutatni. Amint azt a bevezetőben már említettük, súroló beeséses mérésekhez — a kollimációs térszögveszteségek elkerülése végett — szinkrotronforrásokat célszerű alkalmazni (ui. a szinkrotronnyaláb eleve jól kollimált). A szinkrotronok Mössbauer-forrásként való alkalmazása persze nem azt jelenti, hogy (pl. ^{57}Co, ^{119}Sn stb.) radioaktív forrásunkat egyszerűen szinkrotronnyalábbal helyettesítjük és minden egyéb változatlan marad, hanem szemléletet kell váltanunk; mint látni fogjuk energiaspektrumok helyett időspektrumokban kell gondolkoznunk.

5.1 Az időspektrumok értelmezése

A szinkrotronsugárzás keV-os energia-sávszélessége nagyságrendekkel nagyobb, mint a *HF* kölcsönhatások tipikusan μeV tartománya. Másodsorban a szinkrotronsugárzás impulzusokban emittálódik; ezen impulzusok időben sokkal rövidebbek, mint az ^{57}Fe ill. ^{119}Sn Mössbauer-izotópok nukleáris gerjesztett állapotainak élettartama. Szemléletesen fogalmazva a beérkező impulzus gerjeszti a magokat, majd a magok alapállapotba ke-

rülnek fotonkibocsájtás útján. A megfigyelő a különböző rezonancia-energiákhoz tartozó szórási járulékok koherens szuperpozícióját észleli, amelyek a *HF* kölcsönhatásokat tükröző jellegzetes lebegésben, az ún. *quantum beat*-ekben nyilvánulnak meg [22].

Az általunk eddig tanulmányozott esetekben monokromatikus hullámokkal dolgoztunk, azaz $\mathbf{E} = \mathbf{E}(\omega)$ függést tételeztünk fel a terekre, ami a hagyományos források alkalmazása esetén járható út. Ugyanígy a reflektivitás és a transzmittivitás is ω-függőek, tehát $R = R(\theta, \omega)$ és $t_E = t_E(\omega)$. Használjuk most az $R(\theta, \omega)$ és a $t_E(\omega)$ mennyiségekre az $S(\omega)$ (szórási mátrix) közös jelölést, a szórt (reflektált ill. átbocsátott) nyalábok amplitúdóit pedig jelöljük s indexszel. Ily módon az impulzusra adott válasz

$$\mathbf{E}^s(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{\omega_0-\Omega}^{\omega_0+\Omega} \exp(i\omega t) S(\omega) \, \mathrm{d}\omega \mathbf{E}^0 = S(t) \mathbf{E}^0 \tag{5.1}$$

alakba írható, ahol ω_0 a rezonanciafrekvencia, 2Ω pedig a teljes frekvenciatartomány, amely jóval nagyobb kell legyen, mint a legnagyobb mintabéli *HF* felhasadás. A mintára a nyaláb különféle monokromátorokon keresztül érkezik (l. a kísérleti berendezés leírását), így sávszélessége (az eredeti keV-vel szemben) meV nagyságrendű; persze az $\mathbf{E}^0$ bejövő amplitúdó még így is konstansnak vehető a *HF* felhasadások tartományában és az $\Omega \to \infty$ limeszt használhatjuk a konkrét számításoknál. Az (5.1) kifejezésben bevezettük az $S(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{\omega_0-\Omega}^{\omega_0+\Omega} \exp(i\omega t) S(\omega) \, \mathrm{d}\omega$ időfüggő szórási mátrixot, vagyis az időfüggő $R(\theta, t)$ reflektivitást és a $t_E(t)$ transzmittivitást. Az idő- és energiareprezentációkat nem különböztetjük meg a jelölésekben, ezt a mennyiségek argumentuma egyértelművé teszi. Az időfüggő intenzitásokat a (2.6) és a (3.9) kifejezésekből kapjuk, $R(\theta, t)$ és $t_E(t)$ behelyettesítésével.

Összességében elmondhatjuk, hogy kiértékelési szempontból a hagyományos forrással mért Mössbauer spektrumok és a szinkrotronforrással felvett spektrumok együtt tárgyalhatók. A kapcsolat a két módszer között az (5.1) Fourier-transzformáció, legalábbis a merőleges (Blume–Kistner) és a súroló beesés esetén [21].

5.2 A kísérleti berendezés ismertetése

Kísérleteinket kezdetben a hamburgi *DESY DORIS* nevű tárológyűrűjének $F4$-es nyalábjánál a *HASYLAB*-ban (Hamburg Synchrotron radiation Laboratory) végeztük, majd később lehetőségünk volt a grenoble-i *ESRF*-ben, az ID18-as nyalábjánál is mérni. A következőkben a hamburgi berendezés leírását ismertetjük, mely lényegében megegyezik a grenoble-i mérési elrendezéssel is (a pontos leírást l. [29]).

A tárológyűrű 4.5 GeV-es pozitronokkal volt töltve, a nyaláb árama $50 - 100$ mA között változott. Az impulzusok 192 ns időközzel követték egymást, szélességük kb. 200 ps volt. A monokromátorok az ^{57}Fe 14.413 keV-es átmenetére voltak hangolva. A mérőberendezés sematikus rajza az 5.1 ábrán látható. A nyaláb 22 m távolság befutása után éri el a mérőeszközt. A nyaláb mentén haladva röviden ismertetjük az ábrán látható berendezéseket. Belépéskor a nyaláb szélessége 25 mm, magassága 4 mm és az intenzitás merőlegesen Gauss-eloszlást mutat. A belépő nyaláb függőleges pozícióját egy helyzetérzékeny monitor méri ± 0.1 mm pontossággal. Az elektronikus monokromátor két $\mathrm{Si}(1,1,1)$ kristályból áll, amelyeket egymástól függetlenül mozgathatóan, két Huber 410 típusú, egyciklusú goniométerre építettek rá, biztosítva így az energia állíthatóságát 6 keV-től 30 keV-ig terjedően. A kristályok hőmérsékletstabilitásáról Peltier-elemek gondoskodnak, amelyek egy vízhűtéses rendszerben helyezkednek el. A monokromátoroknak esetleg az első kristályon keletkező hő miatt bekövetkező elhangolódását piezomozgatókkal kompenzálhatjuk. Az elektronikus monokromátort He gázba zárták, így kerülve el az ózonképződés hatására fellépő korróziót és biztosítva a minimális abszorpciót.

Az energiakalibrációhoz két Ar-nal töltött ionizációs kamra áll rendelkezésre, amelyek között egy különféle abszorbensekkel ellátott, forgatható kerék található. A fotonok energiáját a fotoabszorpciós hatáskeresztmetszet, ezen abszorbensek K ill. L éleinél fellépő, karakterisztikus megváltozásából határozzuk meg. Az ^{57}Fe izotóp 14.413 keV-es átmenete esetén az Au L_1 éle használható, amely csak 60 eV-tal van a rezonancia alatt. A kimenő nyaláb alakját a soronkövetkező résekkel lehet módosítani.

A berendezés következő eleme a sávszélesség további csökkentésére szolgáló *nested channel cut,* nagyfelbontású monokromátor. Ezt az egységet két, függetlenül is forgatható egykristályból alakították ki; sávszélessége kb. 5 meV. Innen a nyaláb újabb résen keresztül a mintához, majd végül egy *APD* detektorba érkezik.

Az itt vázolt elrendezés jel/zaj viszonya kb. 10^7, időfelbontása ~ 1.3 ns. A prompt jel detektorba érkezését követően kb. 10 ns múlva a háttér megfelelően alacsony szintre csökken, de a gyakran megjelenő mellék-impulzusok miatt a gyakorlatban 20 ns alatt nem lehet mérni.

5.1. ábra: A súroló beeséses nukleáris rezonanciaszórás-kísérletek elrendezése a HASYLAB–ban

6. fejezet

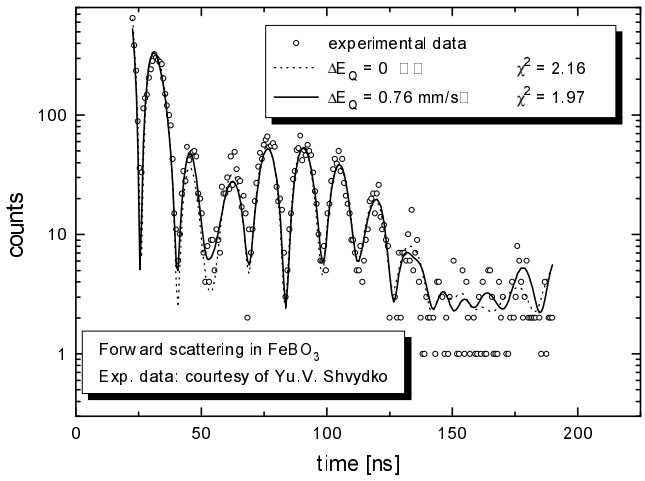
Alkalmazások — kísérletek

Az előző fejezetben megismerkedtünk a szinktotronforrásokra való áttérés elméleti vonatkozásaival, valamint a hamburgi *DESY*-ben megvalósított kísérleti összeállítással. Az elméleti eredményeink ismertetése és az egyéb módszerek áttekintése után elérkeztünk a kiértékelések terén végzett programfejlesztő munkánk, valamint kísérleti munkánk bemutatásához.

A szinkrotronos Mössbauer-mérések kiértékelésére a Hannon és Trammell által származtatott dinamikus elmélet terjedt el [17, 18]. Ez a megkízelötés azonban csak lassú számítógép-programokat tesz lehetővé, miközben a mért spektrumok szimulációjához optikai módszerrel néhány másodperc is elegendő, igaz a diffrakció [14] számítása ily módon nem lehetséges.

6.1 Előreszórás

Az előreszórással az alkalmazások terén csak érintőlegesen foglalkoztunk. A fentiekben említett lassú kiértékelési eljárások miatt a 2.1 és a 3.1 fejezetek szerinti optikai formalizmus használatán alapuló, a mainzi egyetemen Spiering és munkatársai által kifejlesztett, *MOSFUN* nevű általános Mössbauer-spektrum kiértékelő programot alkalmassá tettük időspektrumok kiértékelésére. Mivel ilyen jellegű saját mérésünk nem



6.1. ábra: Az $FeBO_3$ előreszórásban mért szinkrotron Mössbauer–spektruma. (A mérést Ju. V. Svigyko végezte Hamburgban).

volt, Ju.V. Svigyko bocsájtott rendelkezésünkre egy általa mért és már kiértékelt $FeBO_3$ időspektrumot. A 6.1 ábrán látható spektrumot két különböző modellel illesztettük, aszerint hogy kvadrupólus kölcsönhatást is megengedtünk, vagy nem. Az elméleti görbék láthatóan jól illeszkednek, és a kapott eredmények jó közelítéssel megegyeznek a szerző adataival (magánközlés). Az illesztésre kapott paramétereket az alábbi táblázatban foglaltuk össze.

paraméter	1. modell $EFG = 0$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}$	2. modell $V_{zz} > 0$, $V_{zz} \parallel \mathbf{k}$, $\mathbf{B} \perp \mathbf{k}$
effektív vastagság	90.23	92.33
mágneses tér $\mathbf{B}$ (T)	32.2	32.0
$\mathbf{B}$ és $\hat{\mathbf{u}}_\sigma$ szöge	14°	17.4°
kvadrupólus felhasadás (mm/s)	—	0.76
EFG aszimmetria paramétere η	—	0

A pontosabb kiértékeléshez sajnos a mérés statisztikája nem elegendően jó, azonban a kiértékelő program alkalmasságát ez az eredmény is demonstrálja.

6.2 Súroló beesés

Súroló beeséses geometriában két optikai modellt ismertettünk, ti. a 2.2 és a 3. fejezetekben; az utóbbit mint saját formalizmust közöltük [DL3]. A Born–Wolf-féle mátrixmódszer felhasználásával egy, elsősorban rétegoptimalizációs célokra felhasználható program készült [8, DL1, DL2]. A súroló beeséses idő- ill. energiaspektrumok illesztésére a 3. fejezetben levezetett optikai formulák használatával készült másik programcsomagunk, H. Spieringgel együttműködésben, amely ugyancsak a *MOSFUN* nevű mainzi programcsomag részeként működik [DL3]. A már említetett *MOSFUN* nevű Mössbauer-spektroszkópiai kiértékelő program vastagsági effektusokkal számoló változatát, a *THEORY5*-öt módosítottuk. A *THEORY5* program a vastagsági effektusokat a Blume és Kistner által kifejlesztett [4] optikai formalizmus segítségével veszi figyelembe, felhasználva H. Spiering általánosító elméleti eredményeit [25]. Blume és Kistner optikai formuláit felváltottuk a súroló beeséses esetre vonatkozó eredményünkkel (l. a 3. fejezetben), így alkalmassá tettük a *MOSFUN*-t az *MR*-spektumok kiértékelésére. Az így kapott program gyorsabb minden előző *MR*-kiértékelő programnál és illesztésekre is használható [DL11].

Megjegyezzük még, hogy jelen dolgozat összes elméleti eredménye a programcsomagba beépítésre került, így röntgenreflektometriai, neutronreflektometriai és *SMR*-spektrumok illesztésére egyaránt használható, méghozzá az érdességi hatások figyelembe vételével.

6.2.1 ^{57}Fe/^{56}Fe izotóp periodikus rétegek optimalizálása

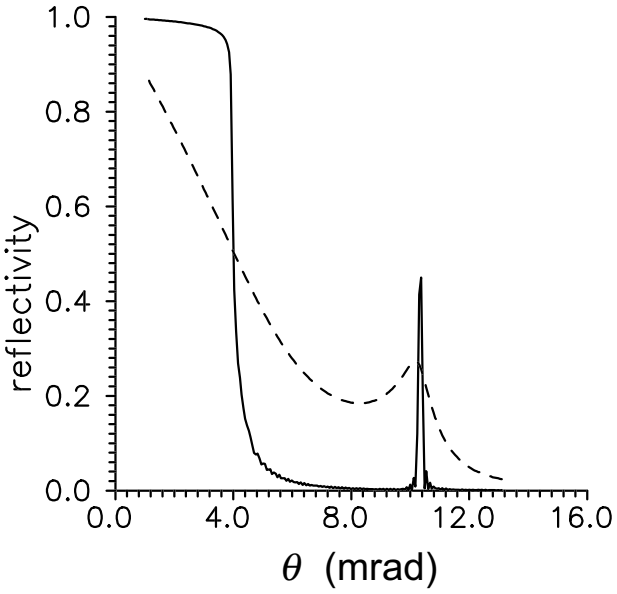
Az *SMR* módszert a *HF* terek irányára való érzékenysége mellett mélységszelektivitása is érdekessé teszi. Ahhoz, hogy a gyakorlatban is bizonyítható legyen a mélységfelbontás, olyan mintákat kellett tervezni, amelyekben a mélységfüggés a legegyszerűbb módon jelentkezik. Ilyen anyagok az ^{57}Fe/^{56}Fe izotóp periodikus rétegek, amelyekben a különböző

rezonáns rétegekből jövő hullámok interferenciájaként megjelenő, jellegénél fogva könnyen észlelhető nukleáris Bragg-csúcs hordozza a mélységi információt. A 6.2 ábrán egy 67 rétegpárból álló ^{57}Fe/^{56}Fe rendszer $R(\theta, \omega)$ reflektivitását számoltuk ki két különböző energiánál, a rezonancián és attól kicsit távolabb. (az ^{56}Fe vastagsága 3 nm, az ^{57}Fe-é pedig 1.5 nm, a teljes periódus vastagsága 4.5 nm) A vízszintes tengelyen a θ beesési szög látható. A rezonanciaenergiától távolodva a Bragg-csúcs lassan eltűnik, hiszen az elektronikus szórás a rendszámtól függ, ezért az itt definiált szerkezet az elektronikus szórás szempontjából egyetlen homogén rétegnek tekinthető. A most elmondottakból következik, hogy a ^{57}Fe/^{56}Fe periodikus rétegszerkezetek μeV-os monokromátorok lehetnek, hiszen e rendszert tükörként használva, a nukleáris Bragg-szög környékén már csak a rezonanciához közeli energiákra nézve van jelentős reflektivitás.

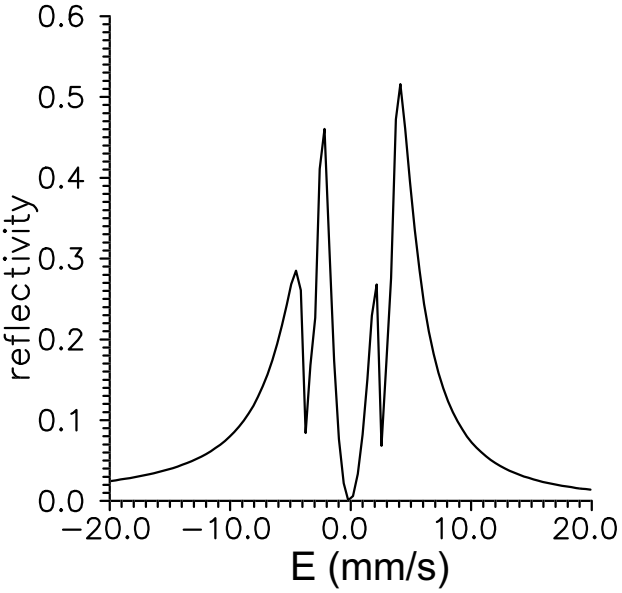
A bevezetőben már említett [17, 18] dinamikus elméletet felhasználva, a μeV-os monokromátorok ^{57}Fe/^{56}Fe multirétegekkel történő megvalósíthatóságát Szmirnov és Csumakov tanulmányozták [23], az optimális rétegszerkezet meghatározása céljából. Optimumként az előbb ismertetett szerkezetet közölték, mivel abban a Bragg-csúcs helyén az elektronikus reflektivitás már elegendően kicsi. Hogy a két módszert összevethessük, mi is ezt a szerkezetet tanulmányoztuk.

A tulajdonképpeni teljes információt hordozó $I^r(\theta, \omega)$ kétváltozós függvénynek a 6.2 ábrán, a konstans energiákhoz tartozó, paraméterezett alakját láttuk. A Mössbauer-spektrumnak megfelelő energiaspektrum a 6.3 ábrán látható, ahol a rögzített beesési szög mellett az energiafüggést ábrázoltuk. Számításaink eredményeképpen a 10.3 mrad-nál lévő Bragg-csúcs félértékszélességére kb. 1 mrad értéket kaptunk, ami közel azonos a Csumakovék által közölt eredménnyel [23]. A 6.4 ábrán a kétváltozós függvényt ábrázoljuk. A komplex reflektivitás Fourier-transzformációjával megkapjuk az időfüggő reflektivitást és így az időfüggő intenzitást is. A 6.4 ábrához tartozó időfüggő reflektált intenzitást a 6.5 ábrán mutatjuk be.

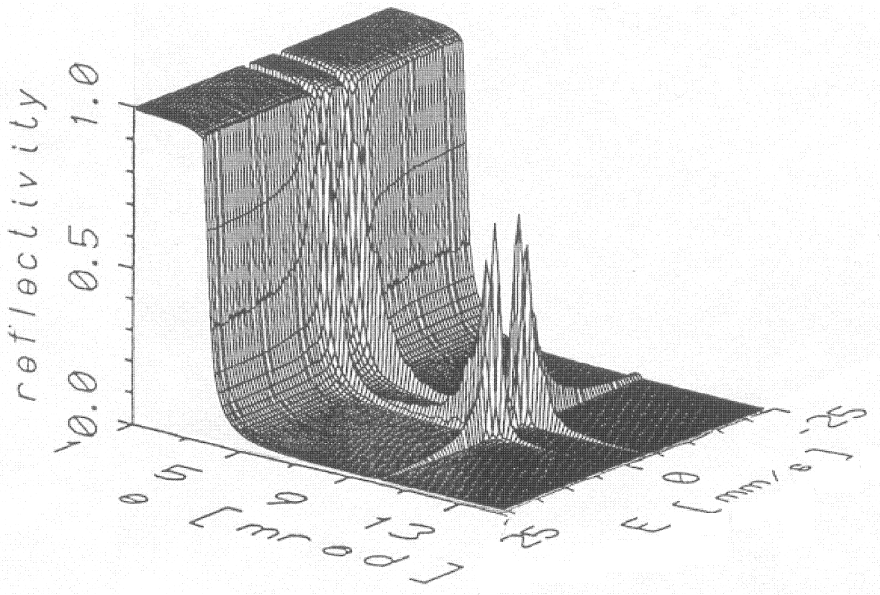
Térjünk rá a minta optimalizálásának problémájára! Ez elsősorban azt jelenti, hogy



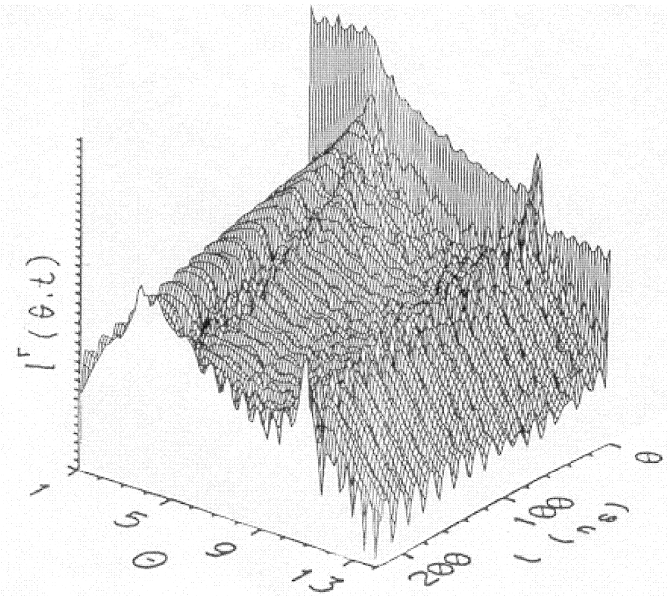
6.2. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe periodikus multiréteg reflektivitásának elméleti görbéje. A szaggatott vonal a rezonanciaenergián (3.072 mm/s), a folytonos vonal tőle távoli (5 mm/s) értékre vonatkozik



6.3. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe tükör energiaspektruma a Bragg–pozícióban



6.4. ábra: Az ^{57}Fe/^{56}Fe tükör reflektivitása az E energia és a θ beesési szög függvényében. (-25 mm/s$\leq E \leq 25$ mm/s)



6.5. ábra: Időfüggő reflektált intenzitás. 0 ns $\leq t \leq$ 200 ns

a rétegpáron belül milyen értéket adjunk a

$$\beta = \frac{d_{57}}{d_{57} + d_{56}} \tag{6.1}$$

relatív vastagság paraméternek, ahol d_{57} az ^{57}Fe, d_{56} pedig az ^{56}Fe vastagsága. Ennek meghatározásához a

$$\int_{-\hbar\Omega}^{\hbar\Omega} \mathrm{d}E \int_{\theta_{\mathrm{Bragg}}-\delta}^{\theta_{\mathrm{Bragg}}+\delta} \mathrm{Tr}\left[R^{\dagger}(\theta, E)\, R(\theta, E)\, \rho\right] \mathrm{d}\theta = \max \tag{6.2}$$

kifejezést tűnik célszerűnek használni, ahol $\delta = 2$ mrad, a Bragg-csúcsot épp közrefogó tartományt rögzít, Ω pedig az (5.1) kifejezésben szereplő sávszélesség. Az eredményt a 6.6 ábrán mutatjuk be. Az optimumot $\beta = 0.5$, tehát az $1:1$ arányú felosztás adja [DL1]. Ez az eredmény eltér a [23] eredménytől, ahol $\beta \approx 0.33$ esetén találtak optimumot. Az eltérés oka a két modell közötti különbség. A nyalábdivergenciát Csumakovék Lorentz-eloszlással, míg mi Gauss-eloszlással vettük figyelembe. Hasonló eltérést okozhatott az, hogy mi nem hanyagoltuk el az elektronikus szórást, viszont nem vettük figyelembe a felületi érdességet.

A szinkrotronos méréseknél azonban a (6.2) kifejezés helyett a

$$D(\theta) = \int_{t_1}^{t_2} \mathrm{Tr}\left[R^{\dagger}(\theta, t)\, R(\theta, t)\, \rho\right] \mathrm{d}t, \tag{6.3}$$

a mérésben valóban megjelenő ún. rezonáns reflektivitás maximalizálásával optimalizálhatunk, ahol t_1 és t_2 a kísérlet időintervallum határai; példáinkban — hacsak másképp nem állitjuk — $t_1 = 12$ ns és $t_2 = 175$ ns. A 6.7 ábra a Bragg-csúcs környékét ábrázolja, a β paraméter függvényében. A β kis értékeire a csúcs keskeny és gyenge, nagy β értékekre a maximum helyett minimumokat kapunk a Bragg-pozícióban. Ez utóbbi jelenség a t_1 alsó levágással van kapcsolatban. A Bragg-irányban a bomlás folyamata felgyorsul, ez az ún. *speedup* jelenség, aminek következtében a t_1-nél kisebb időcsatornák járuléka — amit

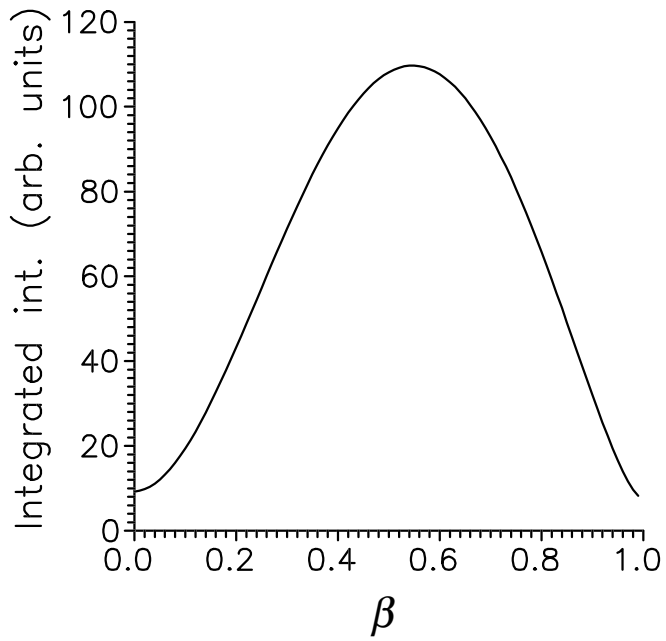
nem tudunk mérni — egyre nagyobb, amint a Bragg-szöget megközelítjük. A Bragg-csúcs helyén tehát azért látunk minimumot, mert t_1-nél korábban ilyenkor a magok nagyobb részben bomlanak el, mint egyéb szögek esetén. Mindezeket figyelembe véve $\beta \approx 0.4$ értéket javasoltunk optimumként [DL2].

A *speedup* hatását t_1 függvényében a 6.8 ábra mutatja. t_1-et csökkentve a Bragg-csúcsnál egyébként tapasztalható intenzitásveszteség csökken, majd eltűnik.

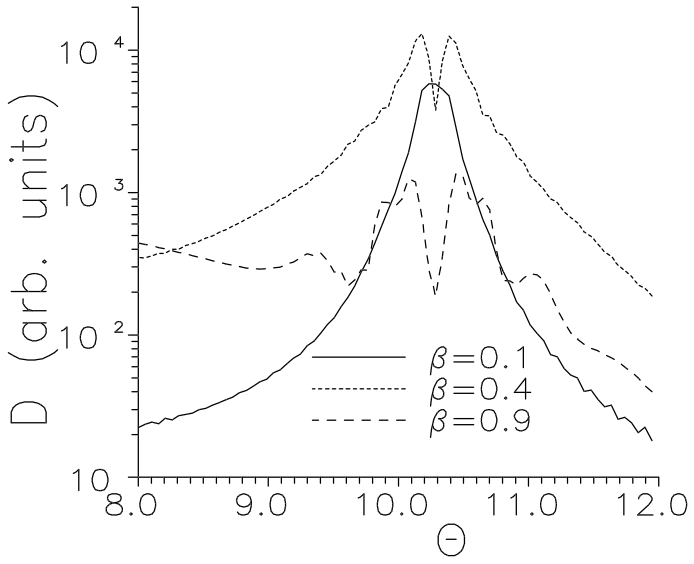
A 6.8 ábrán azonban még egy ennél is érdekesebb dolgot fedezhetünk fel. A Bragg-csúcs mellett a $\theta \approx 3.8$ mrad totálreflexiós szögnél egy másik csúcs is megjelenik. Ennek a csúcsnak a létét elméletileg mi jósoltuk meg először és javasoltuk használatát a súroló beeséses mérésekben, viszonylag nagy intenzitása miatt [DL2]. Megjegyezzük, hogy a mintapreparációs problémák, mint laterális inhomogenitás, interdiffúzió, felületi durvaság, stb. következtében a Bragg-csúcs a valóságban elmosódhat, jóval kisebb intenzitású lehet, mint az a 6.8 ábrán látható. Ezzel szemben a totálreflexiós csúcs kevésbé érzékeny és mindig — nem periodikus minták esetében is — jelen van. A totálreflexiós csúcsot Baron és munkatársai nem sokkal később sikeresen meg is mérték [7], természetesen saját mérésinkben is kimutattuk (l. 6.12b ábra ill. [DL7])

Visszatérve az optimalizáció problémájára, a rétegpárok P számának hatását szintén megvizsgáltuk. A 6.9 ábrán a rezonánsan reflektált intenzitást a Bragg-csúcs környékén számoltuk különböző periódusszámok mellett, az optimálisnak tekintett $\beta = 0.4$ paraméterrel. Megállapíthatjuk, hogy a P túl nagy értékeinél a *speedup* hatása erősebben jelentkezik, az optimális érték valahol $P = 20$ és $P = 30$ között van.

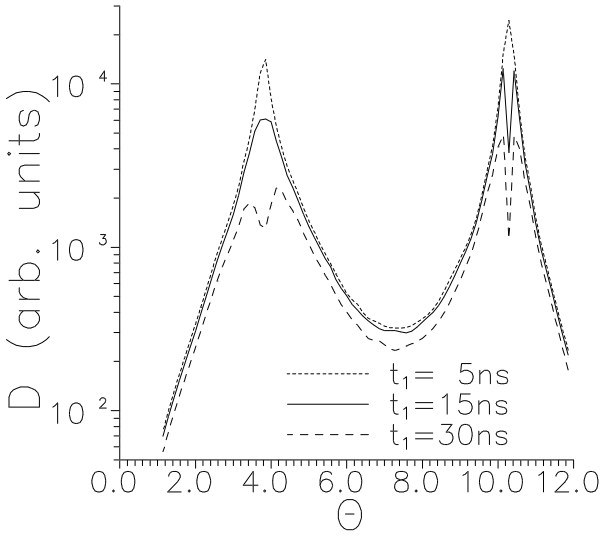
Végezetül megvizsgáltuk, mennyire érzékeny a módszer az egzakt periodicitástól való esetleges eltérésre, ami a preparáció során bekövetkezhet. Az előzőekben használt rétegszerkezetekre számoltunk, azaz $d_{57} + d_{56} = 4.5$ nm, $\beta = 0.4$. Összesen $P = 10$ rétegpárral dolgoztunk. A 6.10 ábrán három különböző szerkezetre vonatkozó számítások eredményét ábrázoltuk, egy szabályos periodikus és két másik, a rétegvastagságokban statisztikusan 0.3 nm szélességű eloszlással megszórt esetre vonatkozóan. Megállapítható, hogy mind a totálreflexiós csúcs, mind a Bragg-csúcs érzékeny a rétegvastagságok szabálytalanságá-



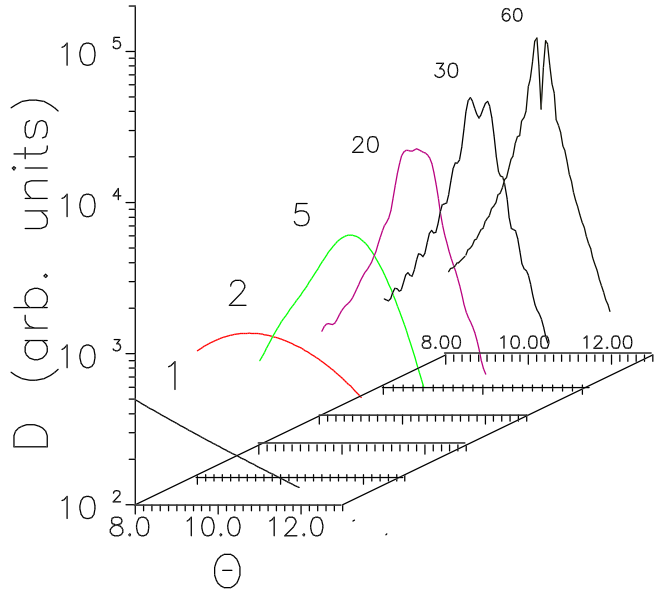
6.6. ábra: A relatív vastagságok optimalizálása



6.7. ábra: Rezonáns reflektivitásgörbe a Bragg–csúcs környékén.

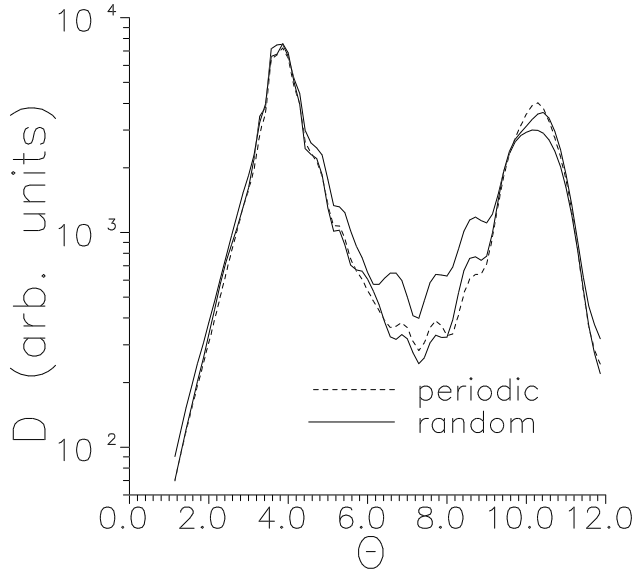


6.8. ábra: A D rezonánsan reflektált intenzitás néhány különböző alsó levágási idő mellett. $\beta = 0.4$



6.9. ábra: A D rezonáns reflektált intenzitás a P perióduszám függvényében. ($\beta = 0.4$)

ra. A Bragg-csúcs kissé kiszélesedett és intenzitása csökkent; ugyanakkor a totálreflexiós csúcs kis szögek felöli oldala alig érzékeny a változásra, a nagyobb szögek felé eső oldalánál azonban látható a torzulás. Mint tudjuk, a behatolási mélység a totálreflexiós szög közelében erősen lecsökken, így kvalitatíve is érthetőek az előzőekben elmondottak [DL2].



6.10. ábra: A D rezonáns reflektált intenzitás $P = 10$ rétegpárra, szabályos periodicitással (szaggatott vonal) és két statisztikusan változó vastagságú esetre számítva. ($\beta = 0.4$)

6.2.2 A totálreflexiós csúcs

A 6.8 ábrán a rezonánsan reflektált intenzitás $D(\theta)$ függvényén egy csúcs jelent meg a totálreflexió szögénél, s a számítások szerint ez a csúcs bármely rezonáns magot tartalmazó, réteges szerkezetű minta $D(\theta)$ spektrumában jelen van [DL2].

Hogy e jelenséget megértsük, térjünk vissza az (5.1) összefüggéshez, amely szerint az $R(\theta, t)$ időfüggő reflektivitást Fourier-transzformációval kapjuk az $R(\theta, E)$ energiafüggő reflektivitásból. Ha rezonás magok nincsenek jelen, akkor csak az elektronikus szórás jelentkezik (l. 1.1.2 fejezet) és ahogy már említettük, a szuszceptibilitás ilyenkor közelítőleg energiafüggetlen a monokromátorok által átengedett energiasávon belül, ezért a reflektált intenzitás

$$I^r(\theta, t) \sim \delta(t),$$

ahol δ a szokásos Dirac-féle delta "függvény", szavakban elmondva a szórás prompt. Ha rezonáns magok is vannak jelen, akkor az (1.9) kifejezés következtében a szuszceptibilitás, és így $R(\theta, E)$ is, valóban energiafüggő, s $t = 0$-tól különböző időcsatornákban is kapunk intenzitást (ún. késleltetett fotonok). Az elektronikus szórás mindig jelen van, hiszen elektronok mindig vannak a rendszerben, így hatásuk az időspektrumokban nem hanyagolható el. A totálreflexiós csúcs léte sokak számára éppen azért volt meglepő, hiszen ebben a képben gondolkodva azt hitték, hogy a prompt jellegű elektronikus szórás után az időcsatornákban csak a nukleáris szórás hatása érvényesülhet, tehát az elektronikus szórás által meghatározott totálreflexió szögének az időfüggő reflektált intenzitás spektrumában nem lehet semmi szerepe. Ez az elképzelés azonban nem igaz. A rezonáns magok és az elektronok rendszere nem különíthető el a szórás szempontjából.

Legyen $R_e(\theta)$ az elektronikus reflektivitás (mivel nem függ az energiától, ezért az energiafüggést nem is jelöltük), $R(\theta, E)$ pedig a teljes (az elektronikus és a nukleáris szórást magábanfoglaló) reflektivitás. Ekkor $R(\theta, E) = R_e(\theta) + R(\theta, E) - R_e(\theta)$ és így az (5.1) összefüggés értelmében

$$R(\theta, t) = \delta(t) I_2 + \mathcal{F}\left[R(\theta, E) - R_e(\theta)\right], \tag{6.4}$$

ahol I_2 a 2×2-es egységmátrix és $\mathcal{F}$ a Fourier-transzformáció. A prompt jel tehát az együttes rendszerben is megjelenik, viszont a $t > 0$ időtartományban a második tag adja meg az $R(\theta, t)$ reflektivitást. Mivel a Fourier-transzformáció a normát megőrzi, ezért a $D(\theta)$ integrált rezonáns intenzitás olyan θ szögek esetében ad maximumot, amelyekre nézve az $R(\theta, E) - R_e(\theta)$ különbség integráljának normája maximális (l. még (6.3)-t is). Tekintsünk vissza a 6.2 ábrára! A tisztán elektronikus szóráshoz tartozó reflektivtásgörbe lényegében megegyezik az ott látható 5 mm/s energiánál számolt görbével, csak ezen természetesen egyáltalán nincs Bragg-csúcs. A különbség tehát a Bragg-csúcson és a totálreflexió szögénél lesz a legnagyobb, így e két szögpozícióban csúcsot várunk az időintegrális reflektált intenzitás spektrumán. A csúcs létének okát így érzékeltettük. Ezen a magyarázaton lényegesen túlmutató értelmezés még nem született [7, DL10].

6.2.3 Mintapreparáció — minősítés

Az 6.2.1 szakaszban a rendelkezésünkre álló eszközökkel megterveztük a szerintünk optimális szerkezetű ^{57}Fe/^{56}Fe tükröt. Az optimalizációt a Bragg-csúcs észlelhetősége szempontjából hajtottuk végre. A minták készítésénél a következő fontos szempontok merülnek fel:

1. a felületnek síknak és simának kell lennie,
2. a határfelületeknek élesen el kell különülniük, ezért olyan módszer kell, amely minimális interdiffúziót okoz,
3. a határfelületek párhuzamosak kell legyenek,
4. laterálisan homogén mintára van szükség és
5. kristályos α-Fe-ra van szükségünk.

E követelményeknek a molekulasugaras epitaxia módszer (*MBE*) felel meg leginkább, mivel az ilyen módon készült minták *CEMS*-mérései bizonyítják, hogy a preparált anyagban az Fe kristályos szerkezetű, és van remény a határozottan elkülönülő felületekkel

rendelkező rétegek létrehozására. Mintánkat J. Korecki készítette a krakkói Bányászati és Kohászati Egyetemen, *MBE* technikával. A hordozó — amely hatással van a kialakuló felület durvaságára és laterális homogenitására — úsztatott üveg volt.

Az 6.2.1 szakaszban végzett optimálás eredménye alapján $P = 30$ rétegpárból álló, $d_{57}+d_{56} = 4.5$ nm összvastagságú és $\beta = 0.5$ relatív vastagságú mintát akartunk készíteni, melynek felületére 9 nm Al került volna [A (6.3) kifejezéssel csak jóval később kezdtünk el számításokat végezni, így az ott kapott $\beta = 0.4$ eredményt a minta készítésekor még nem ismertük]. Ez utóbbi az Fe rétegeket védte volna az oxidációtól. Sajnos a berendezés a 15. rétegpár készítése után meghibásodott, ezért csak 15 és fél periódus készült el és az Auger-elektron spektroszkópiai (*AES)* mérések szerint az Al-réteg felvitele nem sikerült homogén módon — a minta egyes részeit egyáltalán nem fedte Al. A mintakészítés közben az egyes rétegek vastagsága egy kvarcoszcillátor frekvenciájának elhangolódásával volt mérhető, mely mérésben a kalibráció pontos ismerete jelentett bizonytalansági tényezőt. Az alábbi vastagságokat e mérésből ismerjük:

21.75/27.64//22.22/22.15//22.22/22.80//22.80/22.22//23.45/22.13//
23.48/21.88//21.95/22.13//22.80/22.63//22.56/22.60//22.75/22.90//
22.50/22.50//22.73/22.15//22.36/22.15//22.73/21.88//22.33/22.91//22.50,

ahol a vastagságértékeket 0.1 nm egységekben adtuk meg. A bal első szám az úsztatott üvegen lévő ^{57}Fe vastagsága, ezt az ^{56}Fe vastagság követei. Soronként haladva a rétegrendszer vastagságai értelemszerűen kiolvashatóak. Később kiderült, hogy a kalibráció valóban hibás volt, és a 2.25 nm kért rétegvastagság helyett kb. 2.7 nm az átlagos vastagságérték (neutronreflektometriai és röntgenreflektometriai mérések l. később).

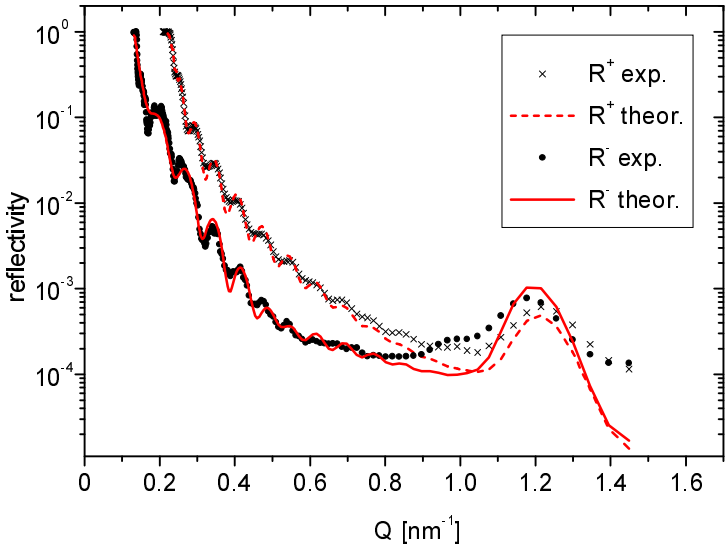
A felsorolt szigorú feltételek miatt a minták minősítésére különösen nagy gondot fordítottunk. A preparáció során *in situ CEMS*-mérés bizonyította hogy α-vas keletkezett. A *CEMS*-méréseket a minták elkészülte, majd Budapestre történt szállítása után újra elvégeztük, a spektrum ekkor is az α-vas jelenlétét igazolta. A Rossendorfi Kutatócentrumban *AES*-mérésekkel vizsgáltuk a minta oxidációját, melyek eredménye szerint a külső felület 6 nm-es mélységig oxidálódott, pontosabban a felületen tapasztalható 50%-

os oxigéntartalom a 6 nm-es mélységben már közel 0%-ra csökkent. Hasonló módon, a hordozó határánál a mintabeli 0%-os értékről, 50%-osra nőtt az oxigéntartalom. A teljes rétegvastagságokat a hamburgi egyetemen röntgenreflektometriával kontrolláltuk (l. 6.11 ábra). A felület durvaságára *STM* (Scanning Tunnel Microscopy) méréssel $R_q \approx 1$ nm-t kaptunk, ami még éppen megfelelő simaságot jelent. A görbületi sugarat profilometriai mérésekből határoztuk meg. Az eredményül adódott 66 m-es görbületi sugár a Bragg-csúcs észlelhetőségét megnehezíti, hiszen a felületről szóródó nyalábok a szögfelbontást rontják.

Mindezen eredmények alapján remélhettük, hogy az *MBE* preparációs eljárással az előzőekben felsorolt szigorú követelményeknek eleget tevő minták készültek Krakkóban.

6.2.4 Nukleáris Bragg-csúcs észlelése ^{57}Fe/^{56}Fe multirétegen

1993 novemberében kaptunk mérési időt Hamburgban, az $F4$-es nyalábnál. A várt siker ekkor elmaradt, a Bragg-csúcsot nem észleltük. A sikertelen próbálkozás után neutronreflektometriával is ellenőriztük első mintánk alkalmasságát. A dubnai *EAI*-ban, az *IBR*-2 impulzusreaktor melletti *SZPN* kisszögű polarizált neutronspektrométeren V. Paszjuk és munkatársai észlelték a Bragg-csúcsot, így bebizonyosodott, hogy az *MBE* preparációs eljárással a legfontosabb probléma, az interdiffúzió valóban elkerülhető volt. Valóban, a 6.11 ábrán jól látható egy Bragg-csúcs kb. $Q = 1.2$ nm^{-1} impulzusváltozás értéknél.



6.11. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg illesztett neutronreflektometriai spektruma a belső mágneses térrel párhuzamos (R^+) ill. antiparallel (R^-) neutronpolarizációk esetén.

Szilágyi Edit a *KFKI RMKI*-ban Rutherford-visszaszórási (*RBS)* mérésekkel megállapította, hogy mintáinkban a vas laterális inhomogenitása legalább 15% (az Al-é ezt jóval meghaladja), mely érték messze elmarad a még elfogadható 1%-os mértéktől. Méréseink alapján kiválasztottuk a legjobb mintát, amely a fentiekben megadott minta

volt (időközben további minták is készültek). Az újabb hamburgi szinkrotronos mérésekhez kiválasztottuk a felület leghomogénebb tartományát, rések segítségével az inhomogén tartományokat kizártuk a mérésből, forgatással a legmegfelelőbb irányt választottuk ki.

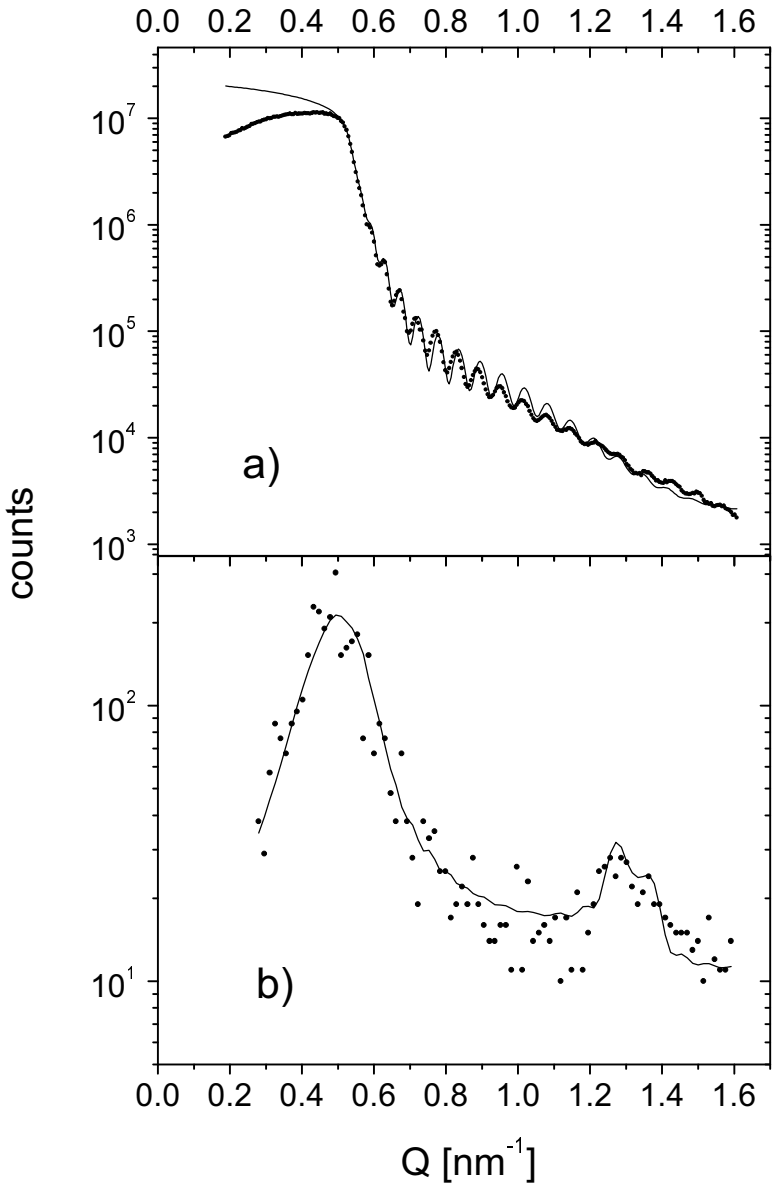
Körülbelül 10 órás mérést követően a $D(\theta)$ időintegrált rezonáns intenzitás mért spektrumán megjelent a keresett Bragg-csúcs (6.12b ábra), míg a 6.12a ábra értelmében a prompt jel mérésével kapott elektronikusan reflektált spektrumon nem észlelhető csúcs. Kijelenthetjük tehát, hogy tiszta nukleáris Bragg-reflexiót észleltünk. Hogy a neutronreflektometriai méréssel (6.11 ábra) könnyebben összevethessük *SMR* eredményeinket, a 6.12 ábrákon a korábban szokásos változónk a "súroló beesés szöge" θ helyett, áttértünk a $Q = 2k \sin\theta$ impulzusváltozás függvényében történő ábrázolásra. Összevetve e két ábrát látható, hogy a Bragg-csúcs a neutronreflektomeriai méréssel is összhangban kb. $Q = 1.25$ nm^{-1} értéknél jelenik meg. Megjegyezzük. hogy a neutronreflektometriai és az *SMR* törésmutatók különböznek, ezért a Bragg-csúcsok különböz eltérő Q értékeknél jelentkezhetnek.

A 6.12b ábrán $Q = 0.56$ nm^{-1} értéknél látható egy másik csúcs is. Ennek magyarázatát rögtön megértjük, ha a 6.12a ábrára tekintünk, hiszen a csúcs éppen a kritikus szögnél található. Valóban, Q-ról az eredeti θ változóra visszatérve ($k \approx 0.068$ nm) kapjuk, hogy a csúcs $\theta = 3.8$ mrad szögnél, tehát éppen a vas kritikus szögénél jelentkezik, így nem kétséges, hogy a korábban említett totálreflexiós csúcsot látjuk. Az elméleti görbék akkor illeszkedtek legjobban kísérleti spektrumainkhoz, ha

$$\text{úsztatottüveg}/^{57}\text{Fe}(4.6\text{ nm})/[^{56}\text{Fe}(2.9\text{ nm})/^{57}\text{Fe}(2.3\text{ nm})] \times 15/\text{Al}(5.7\text{ nm})$$

szerkezetet feltételezünk modellszámításaink során.

Összefoglalva elmondhatjuk, hogy először sikerült ^{57}Fe/^{56}Fe multirétegen *MR* segítségével tiszta nukleáris Bragg-csúcsot megfigyelni [DL7]. Az *MBE* alkalmazásával az interdiffúzió elkerülhető, azonban a laterális inhomogenitás problémája ezen módszer alkalmazása mellett is felmerülő kérdés. Megjegyezzük még, hogy a kis intenzitás miatt, sem az $I^r(\theta_{\text{Bragg}}, t)$, sem az $I^r(\theta_{\text{kritikus szög}}, t)$ időspektrumokat nem tudtuk felvenni.



6.12. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg röntgenreflektometriai és *SMR* mérése. Az a) ábrán az elektronikusan reflektált R_e intenzitást, míg a b) ábrán az időintegrált rezonáns D intenzitást ($t_1 = 17$ ns, $t_2 = 146$ ns) ábrázoltuk $Q = 2k \sin\theta$ függvényében.

6.2.5 ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg *SMR* és neutronreflektometriai vizsgálata

Eddig bemutatott kísérleti munkánk legfőbb problémája a Hamburgban elérhető alacsony beütésszám volt. A grenoblei *ESRF*-ben elérhető intenzitás csaknem két nagyságrenddel nagyobb, mint az Hamburgban az $F4$-nél volt (ahol spektrumainkat 8–10 órai mérés után kaptuk), így a korábbiaknál lényegesen jobb statisztikájú spektrumok már néhány perc alatt felvehetőek. Az *ESRF*-béli mérési lehetőség új utat nyitott számunkra, hiszen többé már nem a módszer alkalmazhatóságát kell bizonyítanunk, hanem e hatékony vékonyrétegvizsgálati módszer előnyeit a konkrét gyakorlati esetekben alkalmazhatjuk.

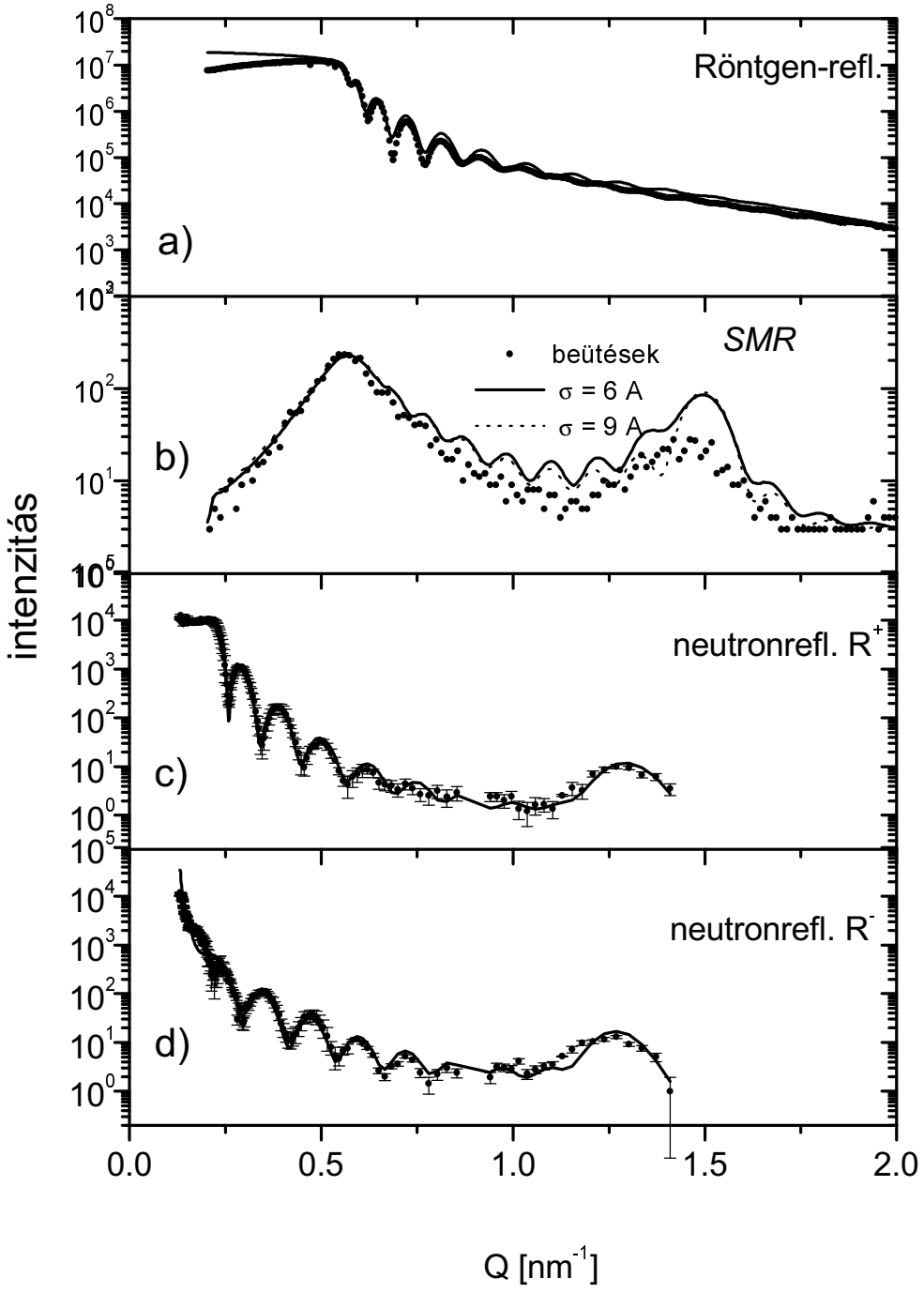
A grenoblei mérésekhez *Zerodur* /$[^{57}\mathrm{Fe(2.33nm)}/^{nat}\mathrm{Fe(2.33nm)}]_{10}$ multiréteg mintánkat Leuvenben, szintén *MBE* technikával készítették. A *Zerodur* hordozó felületi érdessége garantáltan nem haladja meg a 0.2 nm-t, görbületi sugara közel 1 km és $13.5 \times 13.5 \times 5$ mm-es méretben szállították. A rezonáns vasrétegben az ^{57}Fe koncentrációja kb. 95% volt.

SMR és röntgenreflektometriai méréseink a grenoblei *ESRF*-ben, az ID18-as nyalábnál, a neutronreflektometriai mérések ugyancsak a dubnai *EAI*-ban, az *IBR*-2 impulzusreaktor melletti *SZPN* kisszögű polarizált neutronspektrométeren történtek. A szinkrotronos mérések a 6.13a és 6.13b, az neutronos mérések pedig a 6.13c és 6.13d ábrákon láthatóak a megfelelő illesztett görbékkel együtt, melyeket saját kiértékelő programom segítségével készítettem el. A 6.13a ábra röntgenreflektometriai kiértékelésének végeredményeként megállapítható volt, hogy a vasrétegek teljes rétegvastagsága 46.6 nm, ami a tervekkel teljesen megegyezik. Ugyancsak megállapítottam, hogy a felületen egy 3 nm vastag szennyezőréteg alakult ki, továbbá a minta laterális inhomogenitása kb. 15%, ezért az oszcillációk amplitúdója lecsökkent. A laterális inhomogenitást Gauss-eloszlással vettem figyelembe. Leolvasható továbbá, hogy a totálreflexió határszöge 3.67 mrad ($Q = 0.54\,\mathrm{nm}^{-1}$), a Bragg-csúcs pozíciója 10.123 mrad ($Q = 1.48\,\mathrm{nm}^{-1}$). A röntgenreflektometriai eredmények felhasználásával értékeltem ki az *SMR* időintegrális reflektált intenzitás spektrumot (6.13b ábra), mely kiértékelés az ^{57}Fe és ^{nat}Fe rétegek vastagságát

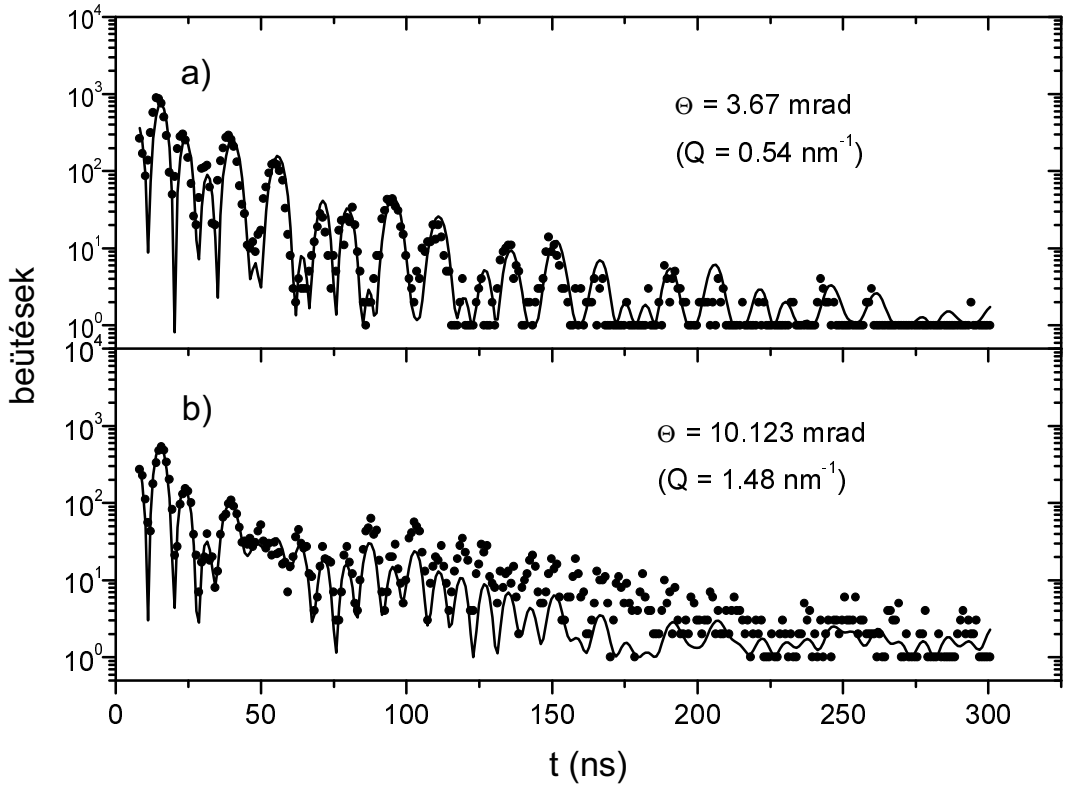
külön-külön is megadta. Az illeszkedés akkor volt a legjobb (és a röntgenreflektometriai eredménynek nem ellentmondó), ha a két izotópra azonos rétegvastagságokat feltételeztem. E két méréssel megállapíthattuk, hogy valóban a tervezett $[^{57}\mathrm{Fe}(2.33\mathrm{nm})/^{nat}\mathrm{Fe}(2.33\mathrm{nm})]_{10}$ multiréteg készült el az *MBE* preparáció során, azonban a felületen egy nemrezonanáns (^{57}Fe-et nem tartalmazó) 3 nm vastag szennyezőréteg alakult ki. A 6.13b ábra elméleti görbéje a Bragg-csúcs környékén már nem illeszkedik tökéletesen, ugyanis az *SMR*-spektrumok kiértékelése során a laterális inhomogenitást nem tudtam figyelembe venni.

A neutronreflektometria spektrumokat 0.05 T külső mágneses térben Nagy Dénes Lajos és Valeria Pasyuk–Lauter mérték meg. Az R^+ ill. R^- spektrumok a neutronpolarizáció és a rétegmágnesezettség egyállású ill. ellentétes állású orientációja esetén lettek felvéve. A kiértékeléseim a vasrétegek összvastagságára 48 nm-t adtak, ami 1.4 nm-el nagyobb a röntgenreflektometria alapján kapott értéknél. A Bragg-csúcs ennek megfelelően az R^+ spektrumon $Q = 1.35\,\mathrm{nm}^{-1}$ értéknél (az R^- spektrumon ennél valamivel kisebb Q-nál) található. Ugyanígy a felületi szennyezőréteg vastagságára 5.7 nm adódott, ami ugyancsak nagyobb a röntgenreflektometriai értéknél. Az eltérést a minta laterális inhomogenitásával magyarázhatjuk.

Az *ESRF*-ben lehetőségünk volt az *SMR* időspektrumok mérésére is, mely spektrumokat $\theta = 3.67\,\mathrm{mrad}$-nál ($Q = 0.54\,\mathrm{nm}^{-1}$), a totálreflexió határszögénél és $\theta = 10.123\,\mathrm{mrad}$-nál ($Q = 1.48\,\mathrm{nm}^{-1}$), a Bragg-pozícióban vettünk fel (6.14 ábra). Az illesztésekhez felhasználtam a röntgenreflektometriai és az *SMR* időintegrális reflektált intenzitás spektrumok kiértékeléséből nyert adatokat. A *HF* mágneses térre 33.75 T adódott, mely érték elfogadhatóan egyezik az α-vasra szobahőmérsékleten jellemző értékkel. A 6.14.a ábra elméleti görbéje jól illeszkedik, hiszen a kis beesési szög miatt e spektrum inkább csak a felületi információkat tartalmazza. Ezzel ellentétben a 6.14b ábrán az illeszkedés korántsem tökéletes, hiszen a Bragg-szögnél a behatolási mélység nagyságrendekkel nagyobb, valamint a rosszabb illeszkedést a 6.13b ábra is előrevetíti.



6.13. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg Röntgen–, szinkrotron- és neutroreflektometriai mérése. Az a) ábrán az elektronikusan reflektált intenzitást R_e-t, a b) ábrán az időintegrált rezonáns intenzitást D-t ($t_1 = 10$ ns, $t_2 = 300$ ns), a c) és d) ábrákon a reflektált neutronnyaláb intenzitását ábrázoltuk $Q = 2k \sin\theta$ függvényében.



6.14. ábra: ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteg illesztett *SMR* időspektrumai

6.2.6 Fe/FeSi multiréteg *SMR* mérése

Bár a mágneses vékonyrétegszerkezetek vizsgálata e dolgozat tárgyát nem képezi, az *SMR* időspektrumok kiértékelésére kifejlesztett elméletünk és programjaink bemutatásához most egy ilyen problémát vázolnunk. Ferromágneses (FM) rétegeket egymástól fémes, ugyanakkor nemmágneses rétegekkel elválasztva rendkívül érdekes tulajdonságú rétegszerkezeteket nyerhetünk, ti. az ilyen szerkezetekre jellemző az ún. óriás mágneses ellenállásváltozás (*giant magnetoresistance*) és a rétegközi antiferromágneses (AF) csatolás. Az egyik ilyen rendszer a Fe/FeSi multiréteg, melynek *SMR* vizsgálatát fogjuk a továbbiakban bemutatni.

Zerodur /[^{57}Fe(2.55nm)/^{nat}FeSi(1.57nm)]$_{10}$ mintánkat Vértesy Gábor *MBE* techni-

kával Leuvenben készítette. A vasrétegben az ^{57}Fe 95%-os koncentrációban volt jelen. *CEMS* méréseink mutatták, hogy a vasrétegek α-vas fázisban vannak, továbbá kimutathatóak voltak az 1 ill. 2 Si szomszédatommal rendelkező ^{57}Fe atomok is. A minta mágneses szerkezetét szobahőmérsékletű *SMOKE* (*surface magneto-optical Kerr effect*) mérésekkel vizsgáltuk, mely mérések azt mutatták, hogy a rétegszerkezet teljesen kompenzált *AF* állapotban van [DL8].

SMR méréseinket a grenoblei *ESRF*-ben, az ID18-as nyalábnál [29] végeztük. A 6.15 ábrán láthatjuk a röntgenreflektometriai (vagy prompt) spektrumot, valamint az időintegrált rezonáns intenzitásspektrumokat, mely utóbbiakat a H_{ext} külső mágneses tér három különböző értéke mellett vettük fel, rendre 0.05 T, 0.4 T és 0.95 T értékeknél. A B_{ext} külső mágneses tér vektora valamennyi esetben merőleges volt a beesési síkra. Időspektrumokat 0.05 T (l. a 6.16 ábrán) és 0.4 T (l. a 6.17 ábrán) külső mágneses térben öt különböző θ beesési szög értéknél mértünk, ezek rendre 2.3 mrad, 2.9 mrad, 3.49 mrad (totálreflexiós szög), 6.28 mrad (*AF* Bragg-csúcs) és 11.7 mrad (strukturális Bragg-csúcs). A röntgenreflektometriai spektrumon azonosítható kb. $\theta = 3.49$ mrad beesési szögnél a totálreflexiós szög, majd θ növekedésével az intenzitás gyorsan csökken, miközben láthatjuk a teljes vastagság által meghatározott ún. Kiessig-oszcillációt is. A periodikus szerkezet következtében $\theta = 11.7$ mrad beesési szögnél felfedezhetjük a strukturális Bragg-csúcsot. Az időintegrált rezonáns intenzitás spektrumokon az *AF* szerkezet következtében perióduskettőződés lép fel, ezért $\theta = 6.28$ mrad beesési szögnél megjelenik az *AF* Bragg-csúcs, továbbá jól felismerhető a totálreflexiós csúcs is. A külső mágneses tér növekedésével az *AF* Bragg-csúcs relatív intenzitása csökken, sőt $B_{ext} = 0.95$ T estén már el is tűnik.

Az *SMR* időspektrumok kiértékeléséhez először a röntgenreflektometriai mérést kell illeszteni, mely illesztés információt ad a rétegek elemi összetételéről és vastagságáról. Az elemösszetétel és a geometriai vastagságok ismeretében már feldolgozhatóak az időspektrumok, melyek a *HF* terekre vonatkozó információkat is tartalmazzák. Az időspektrumokat több különböző θ beesési szögre vesszük fel, mely spektrumokból ugyanazon in-

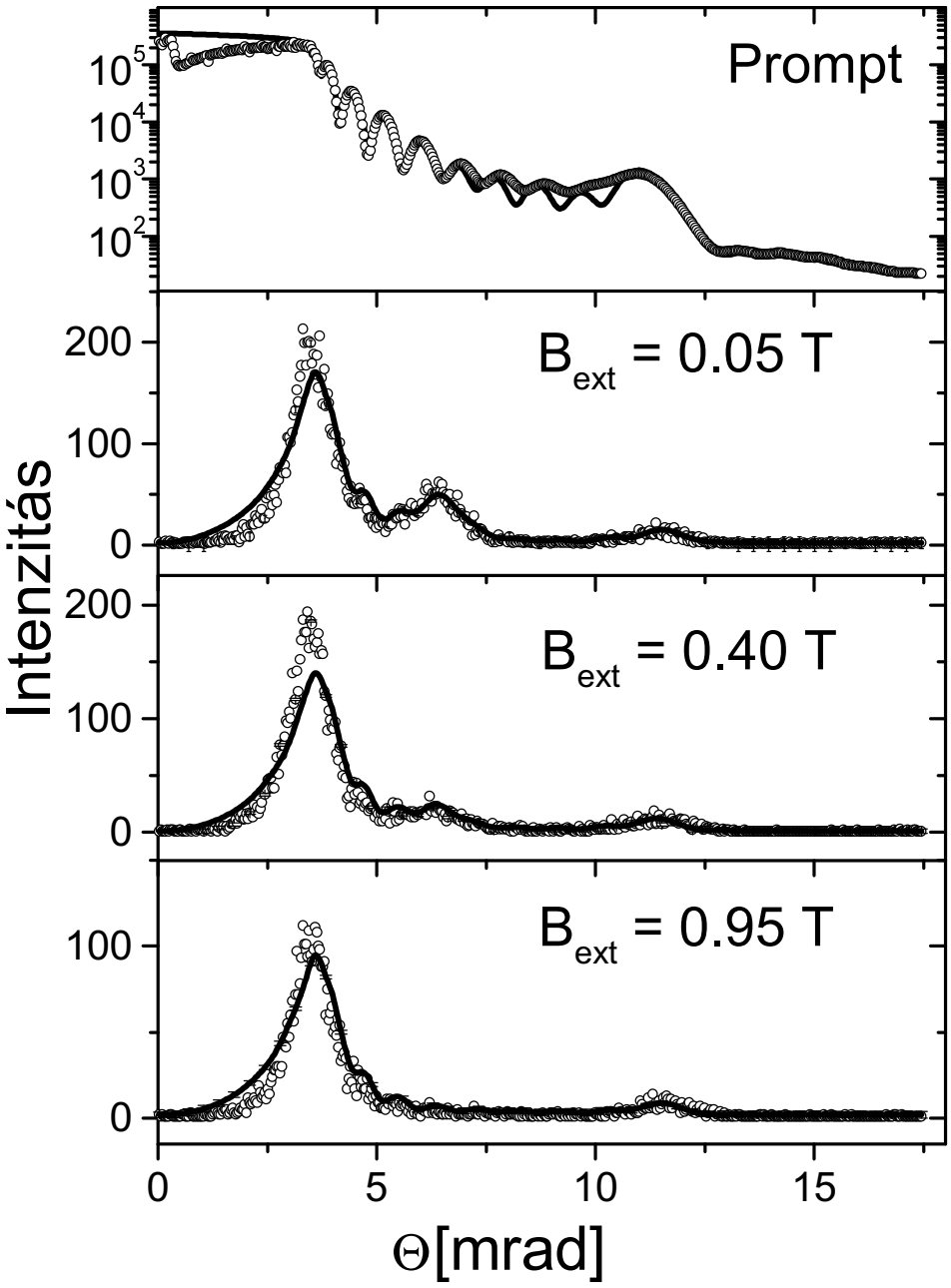
formációk nyerhetők ki, azzal a megszorítással, hogy a behatolási mélység a beesési szög növekedésével növekszik, ezért a totálreflexiós szög tartományába eső kisszögű mérések inkább csak a felületi, míg a nagyobb szögűek már az alsóbb rétegek fizikai tulajdonságaira is érzékenyek. Tapasztalataim azt mutatták, hogy *AF* periodikus multirétegek esetében az *AF* Bragg-csúcsnál felvett spektrum a legérzékenyebb a *HF* mágneses tér irányára, ezért technikailag úgy jártam el, hogy ezt az időspektrumot illesztettem, a többit pedig szimuláltam. Az időintegrált rezonáns intenzitásspektrumok számítása rendkívül időigényes, hiszen ezekhez több-száz időspektum meghatározása szükséges, így e spektrumokat szintén csak szimuláltam, ellenőrizve az időspektumokból nyert paraméterek helyességét. Meg kell jegyezzük, hogy a korrekt eljárás a szimultán kiértékelés módszere volna, mely esetben az illesztést az összes mért spektrumon egyidejűleg végeznénk. Egy ilyen program azóta már el is készült [DL11], tesztelése folyamatban van.

A *HF* mágneses terek nagyságát *CEMS* méréssel határoztuk meg [DL8], így az időspektrumokból csak a *HF* mágneses terek irányát kellett meghatározni. A paraméterek számának minimalizálása érdekében egzakt periodikus szerkezetet feltételeztünk. Mivel a *SMOKE* mérések *AF* szerkezetet mutattak, első naiv elképzelésünk az volt, hogy az *AF* szimmetriának megfelelően a *HF* mágneses tér merőleges a külső mágneses térre. A 6.16 ábrán a vékony folytonos vonallal jelzett modellszámítások azonban azt jelzik, hogy ez a kép nem felel meg a valóságnak, az elméleti görbék nem illeszkednek a mért spektrumokra.

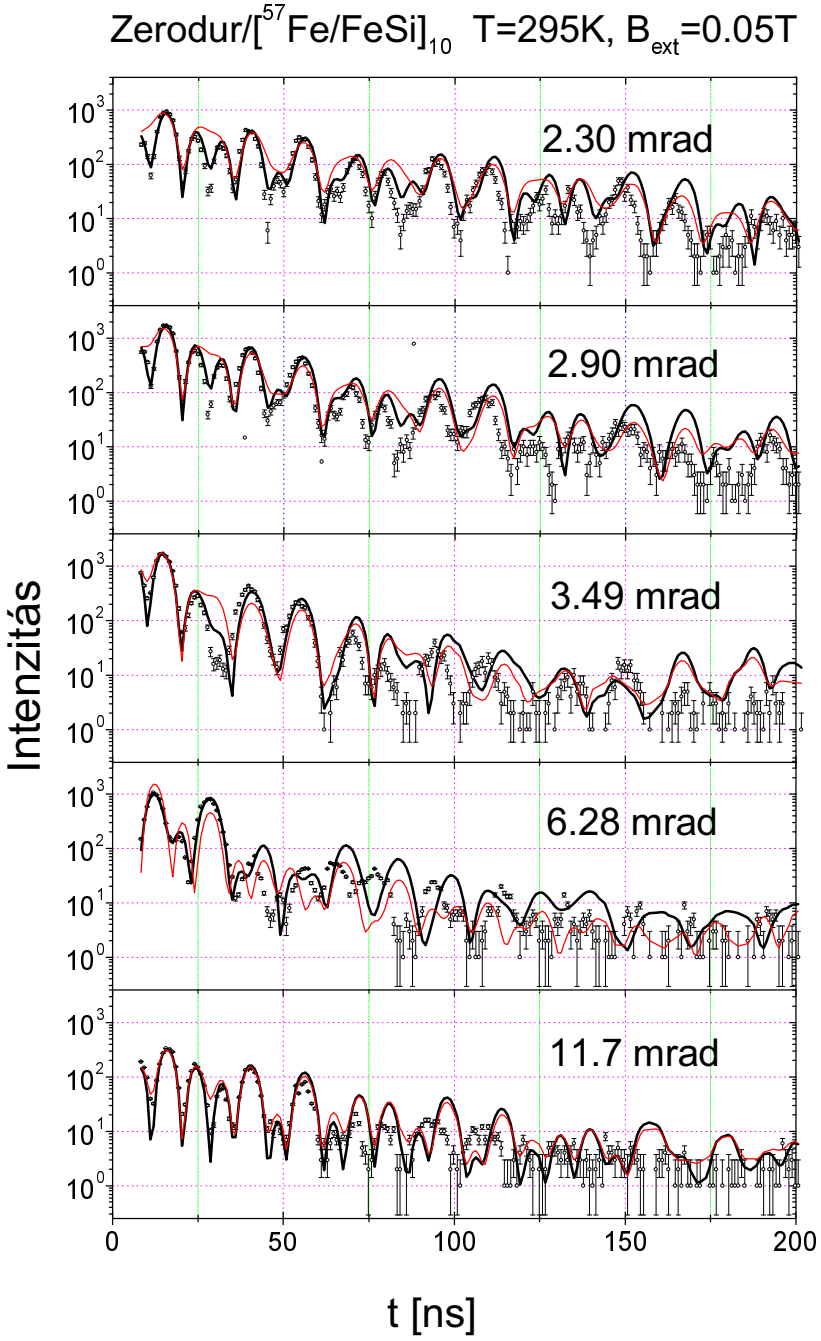
Kohlhepp és munkatársai rámutattak azonban, hogy Fe/FeSi multirétegek esetében a legalsó, a hordozóhoz közeli, rétegek között *FM* csatolás is lehetséges [31], ezért úgy gondoltuk, hogy az *AF* csatolt rétegek mágneses momentumai kihajolhatnak a külső mágneses térre merőleges irányból, biztosítva így a teljes rendszer kompenzálatlanságát a *SMOKE* méréseknek megfelelően [DL8, DL9]. Bevezettük tehát a "8AF–2FM" modellt, melynek értelmében a hordozó irányából számolt első két mágneses réteg között *FM* csatolást feltételezünk, így ezek mágneses momentumai párhuzamosak, míg a fennmaradó 8 mágneses réteg egymással *AF* csatolt, mágneses momentumai kihajlanak a külső térre

merőleges irányból.

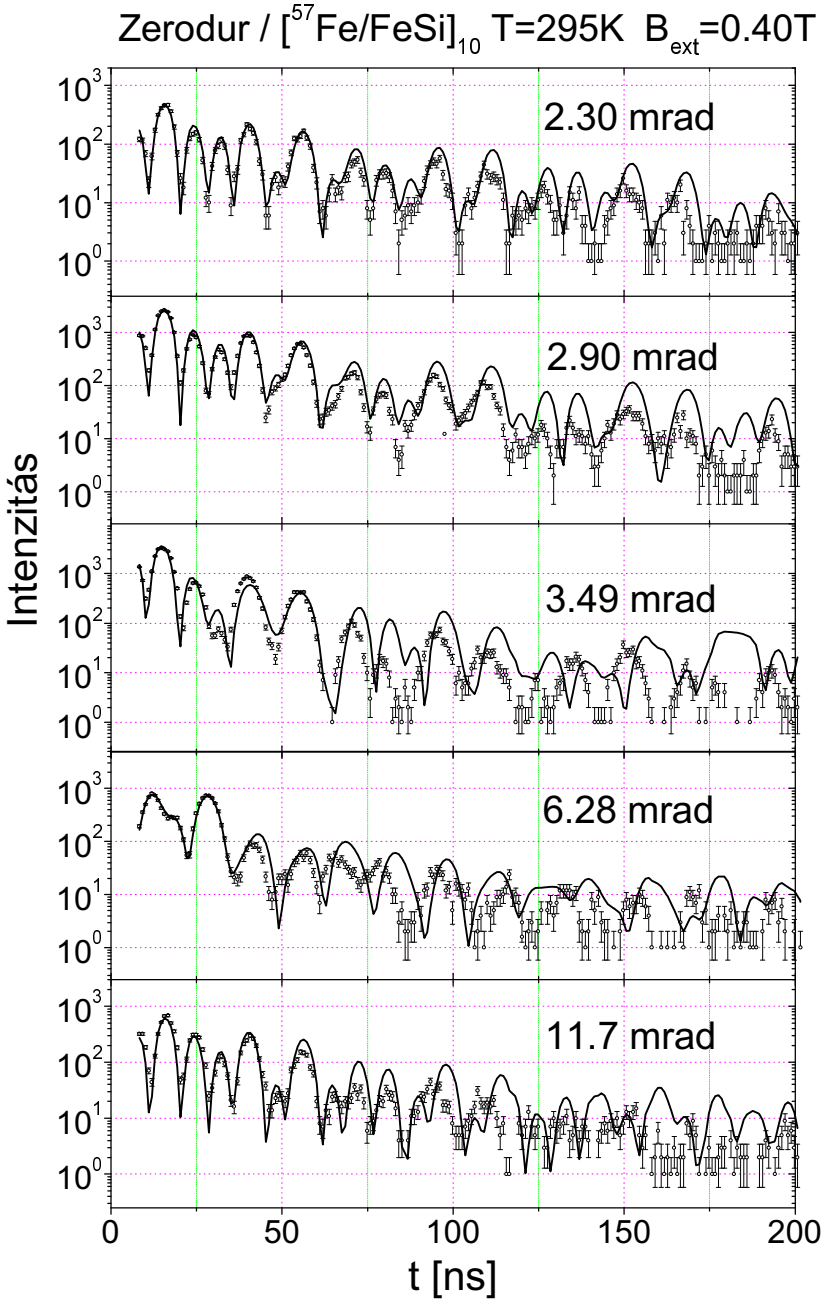
Feladatunk tehát a kihajlás szögének meghatározása volt. Az illesztések alapján azt kaptuk, hogy a $B_{ext} = 0.05\,\mathrm{T}$ külső térhez tartozó időspektrumok akkor illeszkednek a legjobban, ha a nyolc AF csatolt rétegben periodikusan $\varphi\,(AF1) = 62^{\circ}\,(\pm 2^{\circ})$ ill. $\varphi\,(AF2) = 242^{\circ}\,(\pm 2^{\circ})$ momentumkihajlást tételezünk fel, abban a koordinátarendszerben, melyben a beesési síkra merőleges külső mágneses térhez $\varphi = 90^{\circ}$ tartozik. Az ily módon számolt időspektrumokat a 6.16 ábrán folytonos vastag vonal jelzi, továbbá a 6.15 ábrán a $B_{ext} = 0.05\,\mathrm{T}$ külső térhez tartozó időintegrális rezonáns intenzitásspektrumok elméleti görbéjét ugyancsak ezzel a modellel számoltuk. A $B_{ext} = 0.4\,\mathrm{T}$ külső térben a HF mágnes tér orientációja megvátozik, a fenti "8AF–2FM" modell szerint kiértékelve a 6.15 ábrán kirajzolt időspektrumokat, $\varphi\,(AF1) = 75^{\circ}\,(\pm 2^{\circ})$ és $\varphi\,(AF2) = 249^{\circ}\,(\pm 2^{\circ})$ értékek adódnak, mely szögértékekkel a 6.15 ábra $B_{ext} = 0.4\,\mathrm{T}$ térhez tartozó elméleti időintegrális görbéjét szimuláltuk. Sajnos $B_{ext} = 0.95\,\mathrm{T}$ küső térben már nem volt módunk időspektrumokat felvenni, azonban az időintegrális reflektált intenzitásspektrumot megmértük, mely spektrumon nem látható AF Bragg-csúcs. A 6.15 ábra megfelelő elméleti görbéjét ezért a tiszta FM modell értelmében szimuláltam, feltételezve hogy valamennyi réteg mágneses momentuma a külső tér irányába állt be.



6.15. ábra: ^{57}Fe/FeSi multiréteg röntgenreflektometriai (prompt) és *SMR* időintegrális reflektivitásspektrumai. Folytonos görbével a 8AF–2FM modellel illesztett elméleti spektrumot ábrázoltuk.



6.16. ábra: ^{57}Fe/FeSi multiréteg *SMR* időspektrumai $B_{ext} = 0.05$ T külső mágneses térben, különböző beesési szögek esetén. Folytonos vékony vonallal a tiszta AF modell, folytonos vastag vonallal a 8AF–2FM modellel illesztett elméleti spektrumokat ábrázoltuk.



6.17. ábra: ^{57}Fe/FeSi multiréteg *SMR* időspektrumai $B_{ext} = 0.4$ T külső mágneses térben, különböző beesési szögek esetén. Folytonos vonallal a 8AF–2FM modellel illesztett elméleti spektrumokat ábrázoltuk.

Összefoglalás

Ebben a dolgozatban a Mössbauer-reflektometria kiértékelési problémáival foglalkoztunk. Fő feladatunknak tűztünk ki az anizotrop optika alapelveinek alkalmazását a súroló beeséses nukleáris rezonanciaszórás esetére, abból a célból, hogy számítógépprogramot fejlesszünk ki az ezen feltételek melletti időspektrumok leírására. Kidolgoztunk egy elméletet, amellyel a spekulárisan reflektált γ-sugarakkal végzett Mössbauer-spektroszkópia mind hagyományos, mind szinkrotonforrással felvett spektrumai egyaránt kiértékelhetőek [DL3]. Ezt az elméletet olyan alakra hoztuk, hogy a formulák numerikusan is a legegyszerűbbekké váljanak. A szuszceptibilitástenzor Afanaszjev és Kagan által megadott alakjából [14] kiindulva egy kovariáns anizotrop optikai formalizmust alkalmaztunk, melyet Borzdov és munkatársai közöltek [15]. A traszmissziós és a súroló beeséses geometriában a szuszceptibilitást a koherens előreszórási amplitúdóval fejeztük ki. A merőleges beesés esetén a Blume–Kistner-formulát, a súroló beesés esetén az Andrejeva-féle közelítést precízen bebizonyitottuk, az utóbbi esetben megadva érvényességi tartományát és megbecsülve hibáját is. A súroló beesés esetén az integrális terjedési mátrixot 2×2-es mátrixexponenciálisokkal fejeztük ki, mely kifejezés tetszőleges multipolaritás esetén is érvényes és így numerikusan rendkívül kényelmes. Ezen eljárás gyors gyakorlati illesztésre ad lehetőséget mind az energia-, mind az időfüggő Mössbauer-spektroszkópiában.

Megmutattuk, hogy az *SMR*-spektrumok éppen a gyakorlatilag érdekes 1 mrad$\leq \theta \leq$ 10 mrad tartományban fejezhetőek ki a koherens előreszórási amplitúdóval, továbbá az Andrejeva-féle közelítés is ebben a szögtartományban érvényes. Kidolgoztuk optikai

elméletünk módosított változatát, melynek segítségével a felületi érdességi effektusok hatása másodrendben figyelembe vehető.

Rámutattunk, hogy optikai formalizmusunk a polarizációfüggő neutronreflektometriában a legáltalánosabb esetekben is alkalmazható. Értelmeztük a "négyestörés" jelenségét.

A fentiek értelmében illesztőprogramot fejlesztettünk ki, mely alkalmas röntgenreflektometriai, polarizációfüggő neutronreflektometriai, valamint *SMR* idődifferenciális és időintegrális reflektált intenzitásspektrumok illesztésére [DL11].

Az *SMR* alkalmazhatóságát modellszámításokkal ellenőriztük, melyek során egy, az elektronikus és a nukleáris szórás interferenciájaként a kritikus szögnél megjelenő csúcsot találtunk [DL2]. Később — tőlünk függetlenül — ugyanezt a csúcsot egy amerikai–orosz kutatócsoport kísérletileg is észlelte [7] és ma már széles körben használják az *SMR*-ben. A csúcs létének következtében a kritikus szög környékén *SMR* mérés mindig lehetséges [DL10].

Számítógépprogramunk segítségével optimális ^{57}Fe/^{56}Fe multiréteget terveztünk μeV-os sávszélességű monokromátor létrehozása céljából [DL1]. Mintáinkat az *MBE*-módszer segítségével készítettük el és azokat *in situ* és hagyományos *CEMS*, Auger-elektronspektroszkópia, pásztázó alagútmikroszkópia, rötgenreflektrometria, neutronreflektometria és Rutherford-visszaszórás kísérletekkel minősítettük. 1995 augusztusában a *HASYLAB*-ban sikerült megtalálni a tiszta nukleáris Bragg-csúcsot, amit ily módon elsőként észleltünk *SMR* segítségével ^{57}Fe/^{56}Fe multirétegen [DL7].

Kiértékelő programunkkal sikeresen illesztettünk előreszórásban felvett $FeBO_3$ időspektrumot. *MBE* technikával $[^{57}\mathrm{Fe}(2.55\mathrm{nm})/^{nat}\mathrm{FeSi}(1.57\mathrm{nm})]_{10}$ *AF* multiréteget növesztettünk és a grenoblei *ESRF*-ben felvettük az *SMR* időspektrumokat, különböző beesési szögek mellett és a külső mágneses tér két különböző értéke esetén; továbbá megmértük az időintegrális reflektált intenzitásspektrumokat. Meghatároztuk a hiperfinom mágneses terek orientációját, így demonstráltuk, hogy kiértékelési módszerünk valóban működik [DL8, DL9].

Summary

The main objective of our research activity has been to apply the basic principles of anisotropic optics to Mössbauer reflectometry (*MR*), *i.e.* to the case of grazing incidence nuclear resonant scattering (*NRS*) of γ-rays, in order to develop a generalized computer program to describe time domain spectra under such conditions. We established a working theory of Mössbauer spectroscopy by specularly reflected γ-rays both for the conventional source and for the synchrotron radiation experiment and, at the same time, we derived the corresponding formulae in a numerically tractable form [DL3]. Starting from the nucleon current density expression of the susceptibility tensor of Afanas'ev and Kagan [14] we used a covariant formalism of anisotropic optics [15]. Both in the transmission and in the grazing incidence geometry the susceptibility was expressed in terms of the coherent forward scattering amplitude. The Blume–Kistner formula of the perpendicular transmissivity [4] and the Andreeva approximation for the grazing incidence reflectivity [13] have been re-derived in a rigorous manner. In the grazing incidence case a concise 2×2 block-matrix exponential expression for the characteristic matrix was obtained for transitions of arbitrary multipolarity and in a numerically convenient way. This latter allows for fast numerical calculation and practical fitting of Mössbauer spectra both in energy and in time domain [DL3].

We have shown that *MR* spectra just in the region of practical interest (1 mrad $\lessapprox \Theta \lessapprox$ 10 mrad) can be expressed in terms of the coherent forward scattering length and that, therefore, a fast numerical algorithm exists which allows for fitting of the whole two-dimensional spectrum adjusting a few parameters of a model set for the layered structure

[DL3]. We established a modified version of our optical formalism in order to take into account the surface roughness effects in second order. We developed the corresponding fitting program [DL11].

Applying our optical approach, we worked out a general formalism for polarization dependent neutron reflectometry. We gave an interpretation of the 'fourfold refraction'.

We performed calculations for nuclear resonant thin films to estimate the capabilities of *MR*. A remarkable interference between the prompt electronic and the delayed nuclear scattering at the critical angle of electronic total reflection was found and turned out to be most suitable for reflectometry measurements [DL2]. This interference ensures that a time domain *MR*, *i.e.* synchrotron Mössbauer reflectometry (*SMR)* experiment shall always be possible around the critical angle of electronic total reflection [DL10]. Later on, independent of our results, this interference peak was also experimentally observed by an American-Russian research group at Stanford [7] and has been, since than, widely used in all *SMR* experiments.

It has previously been suggested [32] that nuclear resonant mirrors can be prepared using the technique of molecular beam epitaxy (*MBE*). Our calculations utilizing the technique of characteristic matrices showed that optimized ^{56}Fe/^{57}Fe resonant mirrors are good candidates of μeV monochromators if roughness effects and interdiffusion can be suppressed [DL1]. Using the *MBE* method we prepared several ^{56}Fe/^{57}Fe multilayers on float glass substrates at the AGH Cracow. These samples have been characterized by Auger electron spectroscopy (*AES*), *in situ* and conventional conversion electron Mössbauer spectroscopy, x-ray reflectometry, surface profilometry, scanning tunnel microscopy, neutron reflectometry and Rutherford backscattering (*RBS*) experiments. In August 1995 in HASYLAB we found the nuclear Bragg peak. Even so, by *SMR* this was the first successful observation of a pure nuclear Bragg reflection of synchrotron radiation from an isotopically periodic artificial ^{56}Fe/^{57}Fe multilayer [DL7].

Using the *MBE* method, we prepared an *AF* $[^{57}\mathrm{Fe}(2.55\mathrm{nm})/^{nat}\mathrm{FeSi}(1.57\mathrm{nm})]_{10}$ multilayer. The time differential and time integral *SMR* spectra were measured at ESRF

(European Synchrotron Radiation Facility), Grenoble by different grazing angles and in different external magnetic fields . The orientation of the hyperfine fields were fitted by our computer program [DL8, DL9], so the capability of the program was also demonstrated.

A. Függelék

A BBL-formalizmus alapegyenletének levezetése

Ebben a részben a 2.3 fejezetben felírt (2.20), ill. (2.22) kifejezéseket származtatjuk le. Induljunk ki az I. és a III. Maxwell-egyenletekből, a 2.2 fejezetben (2.11) feletti feltételekkel, annyiban általánosítva, hogy most a közeg anizotrop. Vizsgáljuk eleve a monokromatikus esetet:

$$\begin{aligned} \operatorname{rot} \mathbf{H} &= -ik\varepsilon\, \mathbf{E} \\ \operatorname{rot} \mathbf{E} &= ik\mu\, \mathbf{H}. \end{aligned}$$

A rétegszimmetriának megfelelően keressük a

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}(\mathbf{r}) \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{H}^0(\hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r}) \\ \mathbf{E}^0(\hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r}) \end{pmatrix} \exp\left[i\left(k\mathbf{b} \cdot \mathbf{r}\right)\right] \tag{A.1}$$

alakú megoldásokat, ahol a $\mathbf{H}^0$ és az $\mathbf{E}^0$ csak a $z = \hat{\mathbf{q}} \cdot \mathbf{r}$ mennyiségtől függnek. A felső indexet a továbbiakban elhagyjuk, azaz $\mathbf{H}^0$ és $\mathbf{E}^0$ helyett a $\mathbf{H}(z)$ és $\mathbf{E}(z)$ jelölést használjuk. Az (A.1) alakú megoldások esetén a Maxwell-egyenletek rot operátorára

teljesül, hogy

$$\mathrm{rot} = \widehat{q}^{\times} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z} + ik\, b^{\times},$$

így a Maxwell-egyenleteket mátrix alakba rendezve kapjuk:

$$\begin{pmatrix} \widehat{q}^{\times} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z} + ik\, b^{\times} & 0 \\ 0 & \widehat{q}^{\times} \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z} + ik\, b^{\times} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{H}(z) \\ \mathbf{E}(z) \end{pmatrix} = ik \begin{pmatrix} -\varepsilon\, \mathbf{E}(z) \\ \mu\, \mathbf{H}(z) \end{pmatrix}. \tag{A.2}$$

Mindkét oldalt $\begin{pmatrix} -\widehat{q}^{\times} & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$–val balról szorozva, az egyenletet átrendezve kapjuk, hogy:

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z} \begin{pmatrix} \mathbf{H}_t(z) \\ \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z) \end{pmatrix} = ik \begin{pmatrix} \widehat{q}^{\times} b^{\times} & \widehat{q}^{\times} \varepsilon \\ \mu & -b^{\times} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{H}(z) \\ \mathbf{E}(z) \end{pmatrix}, \tag{A.3}$$

ahol a bal oldalon már áttértünk a 2.3 fejezetben bevezetett új változókra, a tangenciális terekre. A jobb oldal rendezéséhez a $\begin{pmatrix} \mathbf{H}(z) \\ \mathbf{E}(z) \end{pmatrix}$-t kell kifejeznünk a $\begin{pmatrix} \mathbf{H}_t(z) \\ \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z) \end{pmatrix}$ tangenciális terekkel. Ehhez szorozzuk skalárisan $\widehat{\mathbf{q}}$-val (A.2) komponenseit. Így kapjuk, hogy

$$\mathbf{a} \cdot \mathbf{H}(z) = \widehat{\mathbf{q}} \cdot \varepsilon\, \mathbf{E}(z) \tag{A.4a}$$

$$\mathbf{a} \cdot \mathbf{E}(z) = -\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mu\, \mathbf{H}(z). \tag{A.4b}$$

Az $\mathbf{a}, \mathbf{b}$ és $\widehat{\mathbf{q}}$ vektorok ortogonalitását, valamint az (A.4) összefüggéseket használva könnyen belátható, hogy

$$\widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}\, \widehat{q}^{\times}\, \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z) = \widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \mu\, \mathbf{H}(z) \tag{A.5a}$$

$$\widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}\, \mathbf{H}_t(z) = \widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \varepsilon\, \mathbf{E}(z), \tag{A.5b}$$

továbbá az (A.5) kifejezésekből

$$-\widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \varepsilon \left(\widehat{q}^{\times}\right)^2 \mathbf{E}(z) = \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}\, \mathbf{H}_t(z) - (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \varepsilon \widehat{\mathbf{q}}) \left(\mathbf{E}(z) + \widehat{q}^{\times}\, \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z)\right) \quad \text{(A.6a)}$$

$$\widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \mu\, \mathbf{H}_t(z) = \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}\, \widehat{q}^{\times}\, \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z) - (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mu \widehat{\mathbf{q}}) \left(\mathbf{H}(z) - \mathbf{H}_t(z)\right). \quad \text{(A.6b)}$$

Rendezve az (A.6a) és (A.6b) egyenleteket $\mathbf{E}(z)$ és $\mathbf{H}(z)$-re, megkapjuk a keresett összefüggést:

$$\begin{pmatrix} \mathbf{H}(z) \\ \mathbf{E}(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I - (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mu \widehat{\mathbf{q}})^{-1}\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \mu & (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \mu \widehat{\mathbf{q}})^{-1}\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a}\, \widehat{q}^{\times} \\ (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \varepsilon \widehat{\mathbf{q}})^{-1}\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \mathbf{a} & -\widehat{q}^{\times} + (\widehat{\mathbf{q}} \cdot \varepsilon \widehat{\mathbf{q}})^{-1}\, \widehat{\mathbf{q}} \circ \widehat{\mathbf{q}}\, \varepsilon\, \widehat{q}^{\times} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{H}_t(z) \\ \widehat{\mathbf{q}} \times \mathbf{E}(z) \end{pmatrix}. \quad \text{(A.7)}$$

Az (A.7) kifejezés (A.3)-ba való behelyettesítésével, a mátrixszorzások elvégzése után azonnal adódnak a keresett (2.20) és a (2.22) egyenlőségek.

B. Függelék

A reflektivitásformula levezetése

A (2.27) és a (2.29) formulák levezetéséhez a (2.20) és a (2.30) kifejezésből indulunk ki. A rétegbeli γ impedanciatenzor definicióját behelyettesítve a BBL-formalizmus alapegyenletébe

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\begin{pmatrix}\mathbf{H}_t(z)\\ \gamma\,\mathbf{H}_t(z)\end{pmatrix} = ikM(z)\begin{pmatrix}\mathbf{H}_t(z)\\ \gamma\,\mathbf{H}_t(z)\end{pmatrix} \tag{B.1}$$

adódik, melyből a $\gamma = \gamma(z)$ tenzorra a $\mathbf{H}_t$ deriváltjait kiküszöbölve a következő differenciálegyenletet kapjuk:

$$\frac{1}{ik}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\gamma + \gamma A + \gamma B\gamma - C + D\gamma = 0, \tag{B.2}$$

ahol az A, B, C és D jelölés a differenciális terjedési mátrix 2×2-es blokkjait jelenti a (2.22) definíció szerint, a z-függést pedig sem γ-ra, sem a blokkmátrixokra nem írtuk ki.

Homogén rétegszerkezetek esetén, amikor az M mátrix független a z-től, tekinthetjük az ugyancsak z-független γ megoldásokat, azaz

$$\gamma A + \gamma B\gamma - C + D\gamma = 0 \tag{B.3}$$

lép a (B.2) helyére. A (B.3) egyenlet például iterációval oldható meg. Ehhez előbb oldjuk meg az izotrop esetre vonatkozó egyenletet. Izotrop esetben a (2.22a) és a (2.22d) miatt

$A = 0$ és $D = 0$, ezért (B.3) megoldása:

$$\gamma = B^{-1} \left(BC\right)^{1/2}, \tag{B.4}$$

továbbá a (2.22b) és (2.22c) kifejezésekből $B = \varepsilon I - \mathbf{b} \circ \mathbf{b}$ és $C = I - \frac{1}{\varepsilon}\mathbf{a} \circ \mathbf{a}$ miatt kapjuk, hogy

$$\gamma^0 = -\gamma^r = \begin{pmatrix} \frac{1}{\varepsilon}\left(\varepsilon - \cos^2\theta\right)^{1/2} & 0 \\ 0 & \left(\varepsilon - \cos^2\theta\right)^{-1/2} \end{pmatrix}.$$

Vákuumban $\varepsilon = 1$, ezért

$$\gamma^0 = -\gamma^r = \begin{pmatrix} \sin\theta & 0 \\ 0 & \sin^{-1}\theta \end{pmatrix}. \tag{B.5}$$

Az anizotrop esetben a (B.4) megoldást, mint iterációs kezdőértéket használhatjuk (B.3)-ban.

Tekintsük a 2.2 fejezetbeli, a reflektivitás számításánál ismertetett elrendezést, tehát egy félvégtelen 0. közeg és egy ugyancsak félvégtelen hordozó közé beékelt, homogén rétegekből álló rétegszerkezetet, melynek (2.25) teljes karakterisztikus mátrixa ismert. A 0. közegben ekkor egy beeső és egy visszavert hullám szuperpozíciója, a hordozóban pedig egy átbocsátott hullám van a határfelületen. A (2.23), (2.26), (2.28) és a (2.30) alapján ezért

$$\begin{pmatrix} t\,\mathbf{H}_t^0 \\ \gamma^t\, t\,\mathbf{H}_t^0 \end{pmatrix} = L \begin{pmatrix} \mathbf{H}_t^0 + r\,\mathbf{H}_t^0 \\ \gamma^0\,\mathbf{H}_t^0 + \gamma^r\, r\,\mathbf{H}_t^0 \end{pmatrix} \tag{B.6}$$

alakba írhatjuk a határfeltételeket. (B.6)-ból a (2.27) reflektivitás- és a (2.29) transzmittivitásképleteket egyszerű algebrai átalakításokkal megkaphatjuk.

A σ, π bázisra való áttéréshez tekintsünk egy bejövő σ és egy π hullámot az $\mathcal{S}$ laborrendszerben (l. a 3. fejezetben leírt definíciót). Mivel a tangenciális tereket vizsgáljuk $\mathcal{S}$-ben, ezért csak az x és y koordinátákat kell használnunk. A bejövő π hullámra $\mathbf{H}_t^0 = \mathbf{H}^0$,

így azt az $\mathcal{S}$-ben $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$, a $\mathcal{P}$ (σ, π) bázison $\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}$ oszlopvektorokkal adhatjuk meg. A σ hullám esetében a $\mathcal{P}$ rendszerben $\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}$, az $\mathcal{S}$-ben $\mathbf{H}^0 = \mathbf{m}^0 \times \mathbf{E}^0$ következtében $\begin{pmatrix} 0 \\ -\sin\theta \end{pmatrix}$ a reprezentáns oszlopvektorok. Ennek alapján a beeső hullámokra az $\mathcal{S} \to \mathcal{P}$ transzformációt az

$$O = \begin{pmatrix} 0 & -\frac{1}{\sin\theta} \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$

mátrixszal végezhetjük el. A reflektált σ hullámok az $\mathcal{S}$-ben azonban $\begin{pmatrix} 0 \\ +\sin\theta \end{pmatrix}$ alakba írhatók $(\theta \to -\theta)$, ezért a $\mathcal{P} \to \mathcal{S}$ mátrixát a reflektált nyalábra O^{-1} helyett az

$$\overline{O} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ \sin\theta & 0 \end{pmatrix}$$

mátrixszal adhatjuk meg. A σ, π bázisra vonatkozó R reflektivitás tehát:

$$R = O\, r\, \overline{O}, \tag{B.7}$$

ami éppen a (2.31) kifejezést adja.

C. Függelék

Kapcsolat a dinamikus elmélettel

A bevezetőben már említettük, hogy a Mössbauer-optika dinamikus elméletét Hannon és munkatársai dolgozták ki [17, 18, 19]. A dinamikus elmélet súroló beeséses határeseteként a klasszikus optika vezethető le [18, 20]; ily módon R. Röhlsberger fejlesztett ki klasszikus optikai kiértékelő programot [24]. A program azonban kényelmetlen, mivel a nem kovariáns formalizmus miatt a sajátpolarizációs irányok meghatározásával dolgozik, mely irányok rétegenként változhatnak. Az alábbiakban megmutatjuk, hogy optikai formuláink a dinamikus elméletből is levezethetőek.

Mátrix alakba írva a dinamikus elmélet súroló beesésű határesetére kidolgozott alapegyenleteit (l. a [19] közlemény A3 formuláját), kapjuk hogy

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\begin{pmatrix} T \\ R \end{pmatrix} = i\begin{pmatrix} g_0 I + G & G \\ -G & -g_0 I - G \end{pmatrix}\begin{pmatrix} T \\ R \end{pmatrix}, \tag{C.1}$$

ahol z a réteg felületére merőleges koordináta, $g_0 = k\sin\theta$, I a 2×2-es egységmátrix és $G = (4\pi N/2k\sin\theta)f$ (szokásos mennyiségeinkkel kifejezve: N a szórócentrumok sűrűsége, f pedig a 2×2-es koherens előreszórási amplitúdó). $T(z)$ és $R(z)$ a minta z mélységében a felülről ($z' < z$) ill. az alulról ($z' > z$) beeső hullámok amplitúdói (a pontos definíciót l. [18, 19]).

Vezessük be formálisan a $\chi = (4\pi N/k^2)f$ mennyiséget, melynek a (C.1) egyenlőségbe

való behelyettesítésével kapjuk, hogy

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\begin{pmatrix} T \\ R \end{pmatrix} = ikM^H \begin{pmatrix} T \\ R \end{pmatrix}, \tag{C.2}$$

ahol

$$M^H = \begin{pmatrix} I\sin\theta + \frac{\chi}{2\sin\theta} & \frac{\chi}{2\sin\theta} \\ -\frac{\chi}{2\sin\theta} & -I\sin\theta - \frac{\chi}{2\sin\theta} \end{pmatrix} \tag{C.3}$$

a differenciális terjedési mátrix [DL3, 15] (a felső H index a Hannon–Trammell-féle elméletre utal). A (C.2) kifejezés ezzel az általunk is használt jelöléseket tartalmazza [DL3]. A (C.2) differenciálegyenlet azonos típusú a (3.17) differenciálegyenlettel, így megoldása is hasonlóan egyszerűen írható fel. Tetszőleges multiréteget $d_{(1)}, d_{(2)}...d_{(s)}$ rétegvastagságokkal és $M^H_{(1)}, M^H_{(2)}...M^H_{(s)}$ differenciális terjedési mátrixokkal [melyeket az l. rétegre a (C.3) kifejezés szerint $\chi \to \chi_{(l)}$ helyettesítéssel értelmezhetünk] tekintve, a megoldás a karakterisztikus mátrixok

$$L^H = L^H_{(s)} \cdot ... \cdot L^H_{(2)} \cdot L^H_{(1)} \tag{C.4}$$

szorzataként írható fel [a (2.25) kifejezéssel azonos módon], ahol tehát

$$L^H_{(l)} = \exp\left(ikd_{(l)}M^H_{(l)}\right) \tag{C.5}$$

az l. réteg karakterisztikus mátrixa [l. (3.21)]. A 2×2-es R^H reflektivitásmátrix pedig

$$R^H = -\left(L^H_{[22]}\right)^{-1}\left(L^H_{[21]}\right) \tag{C.6}$$

alakú [24], ahol $L^H_{[22]}$ és $L^H_{[21]}$ a teljes 4×4-es L^H karakterisztikus mátrix [22] és [21] 2×2-es almátrixai. Meg kell jegyeznünk, hogy azon speciális esetekben, amikor a rétegek $\chi_{(l)}$ tenzoraihoz létezik közös sajátvektorrendszer, a karakterisztikus mátrixok módszerének alkalmazása nem szükséges, és egy egyszerű rekurzív módszer is használható [18, 19].

Az e dolgozatban alkalmazott megközelítés a (3.17) differenciálegyenletre vezetett, melynek együtthatómátrixa, azaz az l. réteg differenciális terjedési mátrixa

$$M_l = \begin{pmatrix} 0 & I\sin\theta + \frac{\chi_l}{\sin\theta} \\ I\sin\theta & 0 \end{pmatrix} \tag{C.7}$$

volt, így az l. réteg karakterisztikus mátrixa

$$L_l = \exp\left(ikd_l M_l\right) \tag{C.8}$$

[l. (3.21)]. A reflektivitásmátrixra a (3.27) kifejezést kaptuk, melyet most a jobb áttekinthetőség végett vesszők nélkül újra felírunk:

$$R = \left(L_{[11]} - L_{[12]} - L_{[21]} + L_{[22]}\right)^{-1}\left(L_{[11]} + L_{[12]} - L_{[21]} - L_{[22]}\right), \tag{C.9}$$

ahol ugyanúgy $L_{[ij]}$-k $(i,j=1,2)$ a 4×4-es teljes $L = L_N \cdot ... \cdot L_2 \cdot L_1$ karakterisztikus mátrix 2×2-es blokkjai [DL3].

A két elmélet kapcsolata a (C.7) és a (C.3) kifejezések közti $M = CM^H C^{-1}$ transzformációval adható meg, ahol

$$C = \frac{1}{\sqrt{2}}\begin{pmatrix} I & -I \\ I & I \end{pmatrix}. \tag{C.10}$$

A mátrixexponenciálisok definíciójából következik, hogy a karakterisztikus mátrixok ugyancsak a C mátrix segítségével transzformálódnak, azaz $L^H = C^{-1}LC$, így tehát a (C.6) egyenlőségben L^H-t L-el kifejezve, megkapjuk a (C.9) kifejezést, ill fordítva. Ezzel megmutattuk, hogy az SMR két független elmélete ekvivalens. Első ránézésre a reflektivitás (C.6) formulája egyszerűbb a (C.9) kifejezésnél, azonban a karakterisztikus mátrixok számítása, ahogy ezt a 3.2.3. alfejezetben bemutattuk, a mi formalizmusunkkal sokkal kedvezőbb.

Irodalomjegyzék

[DL1] **L. Deák**, L. Bottyán, D.L. Nagy: "Calculation of Grazing Angle Incidence Scattering Spectra of Nuclear Resonant Multilayers", *Condensed Matter Studies by Nuclear Methods (Proc. XXVIII. Zakopane School of Physics, Zakopane, 1993),* szerk.*: E.A. Görlich, K. Tomala*, Institute of Nuclear Physics, Kraków, 1993, 269. old.

[DL2] **L. Deák**, L. Bottyán, D.L. Nagy: "Calculation of nuclear resonant scattering spectra of magnetic multilayers", *Hyp. Int.* **92**, (1994) 1083.

[DL3] **L. Deák**, L. Bottyán, D. L. Nagy, H. Spiering: "Coherent forward scattering amplitude in transmission and grazing incidence Mössbauer Spectroscopy", *Phys. Rev. B.* **53**, 6158 (1996)

[DL4] D.L. Nagy, L. Bottyán, **L. Deák**, E. Gerdau, V.N. Gittsovich, J. Korecki, O. Leupold, H. Reuther, V.G. Semenov, E. Szilágyi: "Synchrotron Mössbauer Reflectometry: Feasibility of Depth Selective Phase Analysis of Thin Films and Multilayers", *Condensed Matter Studies by Nuclear Methods (Proc. XXXII. Zakopane School of Physics, Zakopane, 1997),* szerk.*: E.A. Görlich, K. Tomala*, Institute of Nuclear Physics, Kraków, 1997, 17. old.

[DL5] E. Szilágyi, L. Bottyán, **L. Deák**, E. Gerdau, V.N. Gittsovich, A. Gróf, E. Kótai, O. Leupold, D.L Nagy, V.G. Semenov, "Corrosion Depth Profiles by Rutherford Backscattering Spectrometry and Synchrotron X-ray Reflectometry", *Materials Science Forum* Vols. **248–249**, 365 (1997)

[DL6] D.L. Nagy, L. Bottyán, **L. Deák**, E. Szilágyi, "Synchrotron Mössbauer Reflectometry", *Balkan Physics Letter* **5** (4), 240 (1997)

[DL7] **L. Deák**, G. Bayreuter, L. Bottyán, E. Gerdau, J. Korecki, E.I. Kornilov, H.J. Lauter, O. Leupold, D.L. Nagy, A.V. Petrenko, V.V. Pasyuk–Lauter, H. Reuther, E. Richter, R. Röhlsberger, E. Szilágyi: "Pure Nuclear Bragg Reflection of a periodic ^{56}Fe/^{57}Fe multilayer", *J. Appl. Phys* **85**, 1 (1999)

[DL8] L. Bottyán, J. Dekoster, **L. Deák**, A.Q.R. Baron, S. Degroote, R. Moons, D.L. Nagy, G. Vértesy, G. Langouche, H. Spiering, "Layer Magnetization Canting in ^{57}Fe/FeSi multilayer Observed by Synchrotron Mössbauer Reflectometry", *Hyp. Int.* **113**, 295 (1998).

[DL9] J. Dekoster, R. Moons, S. Degroote, L. Bottyán, **L. Deák**, D.L. Nagy, A.Q.R. Baron, G. Langouche, "Synchrotron Mössbauer Reflectometry observations in Fe/FeSi multilayers", *Hyp. Int.*, nyomdában

[DL10] D.L. Nagy, L. Bottyán, **L. Deák**, J. Dekoster, G. Langouche, V.G. Semenov, H. Spiering, E. Szilágyi, "Synchrotron Mössbauer Reflectometry in Materials Science", *Mössbauer Spectroscopy in Materials Science*, szerk.: M. Miglieniri és D. Petridis, Kluwer Academic Publishers, 323 (1999)

[DL11] H. Spiering, **L. Deák**, L. Bottyán, "EFFINO", *Nuclear resonant scattering*, szerk.: E. Gerdau és H. de Waard, Balzer Science Publisher, nyomdában

[1] S. L. Ruby. *J. de Phys.*, **35,** C6-209 (1974).

[2] E. Gerdau, R. Rüffer, H. Winkler, W. Tolksdorf, C. P. Klages, and J. P. Hannon, *Phys. Rev. Lett.*, **54**, 835 (1985).

[3] M. Lax, *Rev. Mod. Phys.* **23**, 287 (1951).

[4] M. Blume and O. C. Kistner, *Phys. Rev.* **171**, 417 (1968)

[5] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics.*
Pergamon Press, New York, 7. edition, 1978.

[6] J. C. Frost, B. C. C. Cowie, S. N. Chapman, and J. F. Marshall,
Appl. Phys. Lett. **47**, 581 (1985).

[7] A. Q. R. Baron, J. Arthur, S. L. Ruby, A. I. Chumakov, G. V. Smirnov,
and G. S. Brown, *Phys. Rev. B* **50**, 10355 (1994)

[8] D. L. Nagy and V. V. Pasyuk, *Hyp. Int.* **71**, 1349 (1992)

[9] S. M. Irkaev, M. A. Andreeva, V. G. Semenov, G. N. Beloserskii,
and O. V. Grishin, *Nucl. Instrum. Methods* **B74**, 545 (1993).

[10] S. M. Irkaev, M. A. Andreeva, V. G. Semenov, G. N. Beloserskii,
and O. V. Grishin, *Nucl. Instrum. Methods* **B74**, 554 (1993).

[11] M. A. Andreeva, S. M. Irkaev, and V. G. Semenov,
Sov. Phys.–JETP **78**, 965 (1994).

[12] M. A. Andreeva and R. N. Kuz'min, *Messbauerovskaya Gamma-Optika*
(Moscow University, 1982).

[13] M. A. Andreeva and K. Rosete, Poverkhnost' **9**, 145 (1986);
Vestnik Mosk. Univ., Ser. 3. Fiz. Astron. **27**, 57 (1986).

[14] A. M. Afanas'ev and Yu. Kagan, *Sov. Phys.–JETP* **21**, 215 (1965).

[15] G. M. Borzdov, L. M. Barskovskii, and V. I. Lavrukovich,
Zh. Prikl. Spektrosk. **25**, 526 (1976).

[16] F. I. Fedorov, *Teoria Girotropii* (Nauka i Technika, Minsk, 1976).

[17] J. P. Hannon and G. T. Trammell, *Phys. Rev.* **169**, 315 (1968).

[18] J. P. Hannon and G. T. Trammell, *Phys. Rev.* **186**, 306 (1969).

[19] J. P. Hannon, N. V. Hung, G. T. Trammell, E. Gerdau, M. Mueller, R. Rüffer, and H. Winkler, *Phys. Rev. B* **32**, 5068 (1984).

[20] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Mueller, E. Gerdau, R. Rüffer, and H. Winkler, *Phys. Rev. B* **32**, 6363 (1985).

[21] J. P. Hannon, G. T. Trammell, M. Mueller, E. Gerdau, R. Rüffer, and H. Winkler, *Phys. Rev. B* **32**, 6374 (1985).

[22] G. T. Trammell and J. P. Hannon, *Phys. Rev. B* **18**, 165 (1979)

[23] A. I. Chumakov and G. V. Smirnov, *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **53**, 258 (1991)

[24] R. Röhlsberger. *Grazing Incidence Optics for Nuclear Resonant Filtering of Synchrotron Radiation*, Ph.D. thesis, University Hamburg, 1994.

[25] H. Spiering, *Hyp. Int.* **24–26**, 737 (1985).

[26] J. P. Biersack, L. G. Haggurard, *Nucl. Instrum. Methods* **174,** 257 (1980)

[27] B. Pardo, L. Nevot, and J-M Andre, SPIE Vol. **984** (*X-Ray Multilayers for Diffractometers, Monochromators, and Spectrometers*), 166 (1988)

[28] N. K. Pleshanov, *Z. Phys.* **B94**, 233 (1994)

[29] R. Rüffer, A.I: Chumakov, *Hyp. Int.* **97–98** (1996) 589.

[30] C. Fermon, *Physica* **B213&214**, 910. (1995)

[31] J. Kohlhepp, M. Valkier, A. van der Graaf, F.J.A. den Broeder, *Phys. Rev. B* **55**, 696 (1997)

[32] G. Bayreuther, magánközlés (1992).

Köszönetnyilvánítás

Dolgozatom befejeztével szeretnék köszönetet mondani mindazoknak, akik munkájukkal, hasznos tanácsaikkal segítettek célom elérésében. Elsőként mondok köszönetet témavezetőmnek, Nagy Dénes Lajosnak, a munkámhoz szükséges feltételek biztosításáért és a szakmai irányításért.

Hálás vagyok Bottyán Lászlónak, legközvetlenebb kollégámnak, az évek során tanúsított támogatásáért és gyakori őszinte kritikáiért.

Több hetes intenzív konzultációkra volt lehetőségem Mainzban, Hartmut Spieringgel, amiért ezúton mondok köszönetet. Diszkusszióink során számos elméleti problémára derült fény, közös munkánkra a mai napig szívesen gondolok vissza.

A hamburgi szinkrotronos kísérletek során nagyon sok támogatást, közvetlen segítséget kaptunk prof. Gerdautól és kutatócsoportjának szinte valamennyi tagjától. Különösen sokat segített Olaf Leupold, aki a szűkre szabott mérési időnk jobb kihasználása érdekében szinte a nap 24 órájában állt rendelkezésünkre.