

CNIC-01868

CAEP-0180

# 中子反射实验技术

陈 波 黄朝强 李新喜

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳, 621900)

## 摘 要

从实验技术角度出发,介绍了中子反射谱仪的分类、基本结构、主要部件单元及其相应功能和参数、“PRN—2M”中子反射实验装置及其详细技术特点。结合在“PRN—2M”谱仪上开展的实际工作,详细介绍了中子反射基本实验方法、中子反射实验测量过程以及相关实验调节,包括实验模式选择、极化束光路调节、实验测量主要步骤等。可为开展中子反射实验和谱仪建设提供技术参考。

**关键词:** 中子反射术 实验技术 反射谱仪

# Experimental Technique of Neutron Reflection

*(In Chinese)*

CHEN Bo HUANG Chaoqiang LI Xixi

(Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang, 621900)

## ABSTRACT

It is presented that the classifications, structures and components of neutron reflectometer(NR), as well as functions and parameters of each components, detailed characters of NR facility "PRN—2M". Based on the practical experiments, the basic experimental techniques, the measurement and the related experimental settings are described, including the choice of experimental conditions, adjustments of polarized neutron beam line, basic experimental technique and approach of measurement. The above can be an instruction for NR experiments and a reference for NR construction.

**Key words:** Neutron reflectometry, Experiment technique, Reflectometer

## 引言

中子反射(Neutron Reflection, NR)是十分重要的散射技术之一,而中子掠入射镜反射(Specular Reflection, SR)已经成为研究物质开放或隐藏的界面结构(即通常的表面与界面结构)非常有效的手段<sup>[1]</sup>。中子作为表面和界面结构的探针,与传统的 X 射线探针相比较,具有其独特的优点。首先,中子由于没有电荷因而具有很强的穿透本领,许多固体材料对中子是“透明”的,这使得利用中子反射技术研究材料深层界面结构成为可能并特别有效。其次,中子散射长度(或截面)不随原子序数单调变化,因此中子可以区别邻近元素(如铁和锰就有很好的对比)和同位素(如氢原子和氘原子)散射,并对轻元素(如氢、碳、氮、氧等)灵敏(这对于有机材料的研究十分有利)。再者,中子具有磁矩而可以被具有磁矩的原子所散射,因而中子反射技术又适宜于研究磁性薄膜材料的表面与界面微观磁结构。此外,由于中子镜反射不依赖于界面处的周期有序结构,因此适合于诸如聚合物材料等无序界面的微观结构研究。

中子反射实验的主要目的是测量作为垂直于反射表面的散射矢量函数的镜反射率,确定垂直于材料表面的一维散射势(Scattering Potential, SP),由此可获取中子散射长度密度与深度的关系信息<sup>[2]</sup>。当材料已分层且其化学组分已确定时,SP 信息与材料的化学成分剖面(profile)及结构相关,中子反射实验可以获取分层介质各层的厚度、密度和界面粗糙度等典型参数。

中子在物质表面的反射作为一种实验技术和获取物质表面与界面微观结构信息的工具已有多年的历史。自 20 世纪 80 年代以来,随着强中子源的使用、薄膜及多层介质材料在基础研究和应用技术领域中重要性的增长以及由于粗糙度在表面与界面特性中的重要作用等,中子反射技术已成为探测表面与界面微观结构十分常用的方法,而中子镜反射作为一种非破坏性测量技术也大量地应用于表面、层状介质和界面研究中,如聚合物表面化学,金属、半导体、磁性和非磁性材料多层结构,薄膜物理和超导等<sup>[3~5]</sup>。近年来,中子反射技术在研究软物质问题(例如聚合物混合、液体表面结构等)方面的应用越来越广泛,特别是对于聚合物研究而言,中子反射技术有着极为独特的优势,因为氢的两种同位素——<sup>1</sup>H(质子)和<sup>2</sup>H(氘)的中子相干散射长度有很大的差异,这使得衬度变换(对比匹配)方法在聚合物体系中的选择性结构标识成为可能,即可以利用衬度变换的“氘化技术”标记某一特定的聚合物结构,从而可以更清晰、更准确地获取样品材料的有关结构信息。随着在反铁磁多层薄膜材料中巨磁阻特性的发现以及超薄薄膜介质中一些其他新的磁现象的发现,对于精确测量多层磁性介质材料每一层中以及层间界面处的磁矩方向及分布的需求变得越来越强烈。由于中子与磁性材料的磁矩之间存在较大的磁耦合作用,因此,中子反射技术是获取上述这些磁结构信息和测量磁性深度剖面分布的有力手段。

## 1 中子反射谱仪的分类

中子反射谱仪从实验模式上可分为两类,即常波长模式(constant wavelength mode, CW)和飞行时间模式(time-of-flight mode, TOF),两种模式采取了不同的获取样品材料表面与界面微观结构信息的方法。常波长模式是利用单色系统对中子束单色化后得到某一特定波长  $\lambda$  的中子束流,通过改变入射到样品表面的掠入射角  $\theta$ ,对样品材料进行  $\theta \sim 2\theta$  角度

扫描测量中子反射率曲线  $R[q(\theta)]$ 。常波长模式的特点是逐点测量(即测量的是非同一时间的反射强度,同一时间只测量反射率曲线的一个点),入射和反射中子的强度容易确定,扫描的分辨率由  $\Delta\theta$  及  $\Delta\lambda$  共同决定,分辨率随入射角以  $\Delta\theta\text{ctg}\theta$  方式变化。飞行时间模式是在实验过程当中保持中子束的掠入射角  $\theta$  不变,利用脉冲“白光”中子束中不同波长的中子在相同距离的情况下到达探测器的时间不同,测量反射中子的飞行时间谱,获得反射率随  $\lambda$  的变化,即反射率曲线  $R[q(\lambda)]$ 。飞行时间模式的特点是在实验过程中测量几何保持不变(包括样品方位和探测器位置等),适宜于液体样品界面的测量,并且由于样品表面上的中子束斑大小和照度不变,对于非均匀(指垂直于样品深度方向  $z$  的平面内)样品的测量是有利的。飞行时间模式能够同时测量全谱范围的反射率,在同一时间获得整个反射率曲线。通常在脉冲源(如散裂源或脉冲堆)上采用飞行时间模式,在稳态源上既可以采用常波长模式,也可以采用飞行时间模式,但飞行时间模式需使用斩波器(chopper)以使入射中子束脉冲化。

从散射几何上考虑,中子反射谱仪也可分为两类:水平散射几何与垂直散射几何。水平散射几何的样品表面(即反射面)是垂直安排的,入射及反射中子束在水平面内。常波长水平散射几何反射实验通过转动样品台改变掠入射角  $\theta$  的大小,探测器在水平面内扫描,容易进行高  $q$  范围测量,适于开展固体/固体及固体/气体的表面和界面研究。垂直散射几何的样品表面是水平安排的,中子散射平面在垂直面内。实验测量时,样品台和探测器可以在垂直面内移动,并需调整样品的高度和狭缝的相对位置。垂直散射几何反射实验除了适合于固/固及固/气样品外,也适于进行液体样品界面(气/液、液/液、液/固界面)的测量。垂直散射几何反射谱仪对样品台的防震要求比较严格,因为如果样品台在垂直方向有一微小振动会明显影响分辨率  $\Delta\theta$ ,并且对于由于振动而极易改变表面细微结构的液体样品材料会带来相当大的实验误差,因此,垂直散射几何反射谱仪须配备有相当好的防震设备。

根据中子束是否被极化,中子反射谱仪可分为极化中子反射和非极化中子反射两类。极化中子反射谱仪比非极化中子反射谱仪多了一个由极化器、自旋倒相器和极化分析器组成的中子极化和分析系统。中子具有磁矩,中子与磁性物质相互作用时,由极化中子反射实验所测得的反射率曲线既与磁性样品材料的结构有关,还与中子的自旋状态有关。通过分析入射和反射极化中子自旋状态以及极化中子反射率,可以研究与材料磁性(如磁化强度、磁矩取向分布、磁相变等)有关的表面和界面现象。

## 2 中子反射谱仪的基本结构与功能

中子反射谱仪是研究材料表面和界面微观结构的实验装置,其基本结构包括以下几个主要部分:准直系统、单色器或斩波器、监视器、极化器、自旋倒相器、样品台及样品环境设备、极化分析器、探测器、数据采集和处理系统等。常波长模式水平散射几何中子反射谱仪基本结构如图 1 所示。

中子反射谱仪的准直系统通常由两个准直器和一个偏转超镜及若干准直狭缝组成(在图 1 中未标出),偏转超镜位于单色器前,在偏转超镜前、后各有一个准直器。这样的准直系统除能减小中子束的发散度、提高中子束准直效果及实验分辨率外,还由于从堆内中子孔道同时被引出的快中子和  $\gamma$  射线经过偏转超镜时会被吸收或屏蔽掉,从而大大减少了快中子和  $\gamma$  射线的干扰以及实验本底。准直器通常由中子吸收材料做成的、宽度可调的平行狭缝组成,其作用是提供一个适当的中子发散度。中子束流的发散度和中子束流的强度是相互

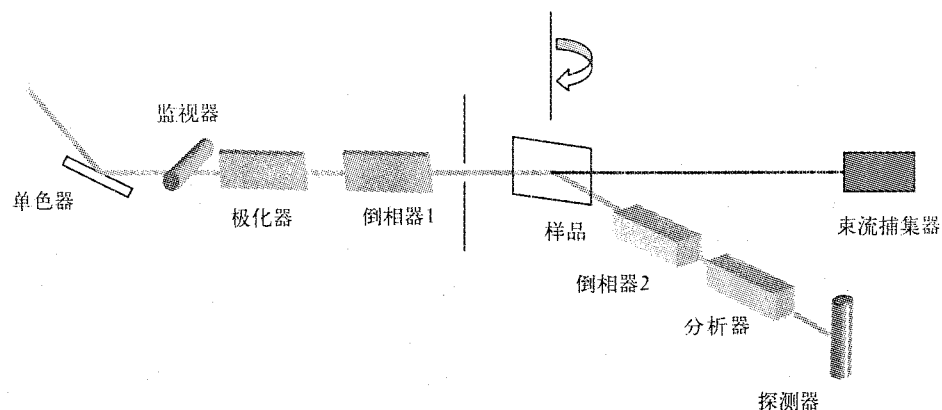


图1 中子反射谱仪基本结构示意图

关联的,要想得到较小的中子发散度,相应的就要牺牲中子束流强度,反之亦然。因此,准直器内准直狭缝的宽度通常是可调的,可根据实验要求(如测量精度、采谱时间等)选择适当的中子束流发散度。

单色器是常波长模式中子反射谱仪的重要部件之一,它的作用是使入射中子单色化,从而提供某一特定波长的中子束。单色器单色性能的好坏和单色化中子波长的范围直接影响到反射谱仪的测量精度。在反射谱仪中,主要使用晶体单色器和超镜(mirror)材料单色器。晶体和超镜材料单色器都是利用 Bragg 衍射原理实现中子单色化的。常见的用作单色器晶体的材料有热解石墨(pyrogenation graphite, PG)和锆单晶等。超镜单色器是一种多层介质单色器,它是将不同的超镜材料交替地镀在基底上,形成周期性多层薄膜层结构。由于这种结构的膜层厚度均匀性以及膜层间的粗糙度对单色器性能的影响很大,因此,制备这种单色器对镀膜工艺要求相当高。对于某一特定波长范围的中子来说,多层介质单色器在单色性能上稍逊于晶体单色器,但它也有其独特的优点:一是采用镀膜技术能让膜层达到相当的厚度,可以远大于晶体晶面间距,从而在相同角度调节范围的情况下,能够获取波长范围比晶体单色器大得多的单能中子;二是超镜单色器采用的镀层材料对中子的镜反射率很高,单色化后的中子束流强度损失可比晶体单色器小得多。

斩波器是飞行时间模式中子反射谱仪的一个部件,它取代图1中的单色器。它的主要作用是将连续的“白光”中子束流分割成一定频率的脉冲中子束,因此,斩波器主要是用于稳态源,对于脉冲中子源不需要这个部件。斩波器通常是由一个开有狭缝的圆盘和精密的驱动电机组成,狭缝由中子吸收材料做成,对驱动马达要求其性能稳定,转频精确度高,这样才能得到较好的脉冲中子束流。

监视器通常是单个 $^3\text{He}$ 型低效中子计数管,用于监视入射中子束流强度状况。

极化器是极化中子反射谱仪不可缺少的组成部分,它的主要作用是对中子束中不同自旋状态的中子进行选择,从而获得单一的相同自旋取向状态的中子束,将中子束“极化”。目前反射谱仪所用的极化器通常是由中子极化超镜材料(如 Co/Ti, CoFeV/TiZr 等)制成的。描述极化器极化效果的技术指标为反转比  $r$  或极化率  $P$ , 它们的定义分别为

$$r = \frac{I^+}{I^-} \quad (1)$$

$$P = \frac{r-1}{r+1} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-} \quad (2)$$

式中： $I^+$ ——通过极化器后自旋向上中子束强度；

$I^-$ ——通过极化器后自旋向下中子束强度。

自旋倒相器由环形或矩形线圈构成，主要作用是根据实验需要改变极化中子束的自旋状态取向以测量不同中子自旋取向的反射率曲线。自旋倒相器的主要技术指标是自旋倒相率  $f$ 。

样品台是放置实验样品材料的设备单元。由于中子光学实验对几何要求的严格性，通常中子反射谱仪的样品台单元都是放置在可自动控制的操作平台上，操作平台可精确地转动、平动和定位。对于垂直散射几何反射谱仪的样品台，还要求有非常好的防震装置，以保证反射谱仪具有相当高的实验精确度。此外，为便于研究磁性样品材料，样品台还要配备有能产生均匀磁场的电磁系统。根据所研究样品材料的实际需要，部分样品台还配备有高低温系统，用于研究一些对温度很敏感的样品材料或低温超导材料等。

极化分析器是放置在探测器前对反射中子束进行极化分析的设备，其基本结构与极化器相同。不同自旋状态的中子束经过极化分析器后变为相同自旋取向状态的中子束。因为极化后的入射中子束和磁性样品材料发生磁相互作用后，反射中子束中包含有两种自旋取向状态的中子，探测器测到的只是总的反射中子束流强度而不可能将具有不同自旋取向状态的中子区分开来，因此，研究磁性材料就需要用自旋倒相器和极化分析器的组合将携带有样品材料微观结构信息的反射中子束中两种自旋取向的中子区分开来，由探测器分别测量不同自旋取向的中子束强度。

探测器是用于测量和记录被样品反射的中子束流强度的部件。常用的探测器有 $^3\text{He}$ 计数管和二维位置灵敏探测器。单个的 $^3\text{He}$ 计数管探测器结构简单，造价低，但通常需要配备精密的自动转动装置，以便能达到相应的实验精确度。二维位敏探测器是由多个探测单元组成的中子探测器，探测器的气体灵敏区含有 $\text{BF}_3$ 或 $^3\text{He}$ 气体，灵敏区中间平面的正比导线夹在水平排列的阴极带和与之垂直排列的另一阴极带之间，形成阴极带—正比线（阳极线）—阴极带的三层平行排布，入射到探测器灵敏区的中子通过核反应产生离子，在正比线高电压电场的作用下进一步电离，电荷脉冲感应到正比线两侧的阴极带上并被收集和记录。常用的二维位敏探测器探测单元大多数为 $64 \times 64$ 个、单个探测单元面积为 $1.0 \text{ cm} \times 1.0 \text{ cm}$ ，或者为 $128 \times 128$ 个探测单元、单个单元面积为 $0.5 \text{ cm} \times 0.5 \text{ cm}$ ，后者的探测分辨率更高。二维位敏探测器具有分辨能力强、稳定性好等优点，而且探测覆盖面积大，在反射中子束流改变角度很小的情况下，一般不用移动探测器就可以达到足够的实验精度。另外，二维位敏探测器既可以用于镜面反射测量，也可以用于非镜面反射测量，因此，目前相当多的中子反射谱仪采用了二维位敏探测器。

数据采集和处理系统包括与探测器相连的前置放大器、甄别器等电子学器件以及计算机等，其作用为自动控制相关仪器和部件、设置实验测量参数、监视数据采集过程、储存原始测量数据等。对于 TOF 模式，还需在数据采集系统中配置时间分析器。

### 3 “RPN—2M”实验装置简介

“RPN—2M”中子反射谱仪是俄罗斯科学院圣彼得堡核物理研究所的中子反射实验装

置,安装在功率为 16 MW 的 WWR—M 反应堆 N-13 热中子水平实验孔道上,它兼有两种实验测量模式(即常波长模式和飞行时间模式),是一台水平散射几何极化中子反射谱仪。该谱仪主要由堆内准直器、监视器、极化器、斩波器、Cd 狭缝(3 个)、双镜单色器、自旋倒相器(2 个)、样品台单元、极化分析器及探测器系统等构成,谱仪的主要结构示意图见图 2。

堆内准直器安放在反应堆孔道内,由三部分组成(即一个偏转超镜和两个准直器),中子束经其准直后,水平面内的角发散约为 2 mrad。

监视器为低效的中子计数管(CHM—13 型),水平放置,监测从堆内引出的中子束强度变化。

极化器是一个长度为 1 260 mm、宽度为 1 mm、高为 35 mm 的直通道,内表面是  $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{40}$  超镜材料(mirror)涂层,底层是中子吸收材料  $\text{Ti}_{85}\text{Gd}_{15}$ ,镜面反射的平整度角发散不超过 0.1 mrad。极化器安有能产生均匀磁场(约 500 Oe)的永磁体。磁场方向平行于极化器镜面,主要作用是将极化器镜面内表面铁磁性材料磁化,产生对不同自旋状态的中子的附加磁相互作用势,从而分离出相同自旋状态的中子束。极化器出口处的中子最小波长可通过极化器的旋转来改变。由于极化器的旋转也改变了中子束在极化器通道内的反射次数,因而也改变了出口处中子束的极化率。图 3 给出了应用自旋倒相器 1 和极化分析器测量的极化率  $P = P_p P_a$  数据,其中  $P_p$  为极化器的极化率, $P_a$  为分析器的极化率。由图 3 可以看到,当波长大于 0.3 nm 时,极化器的极化率下降。

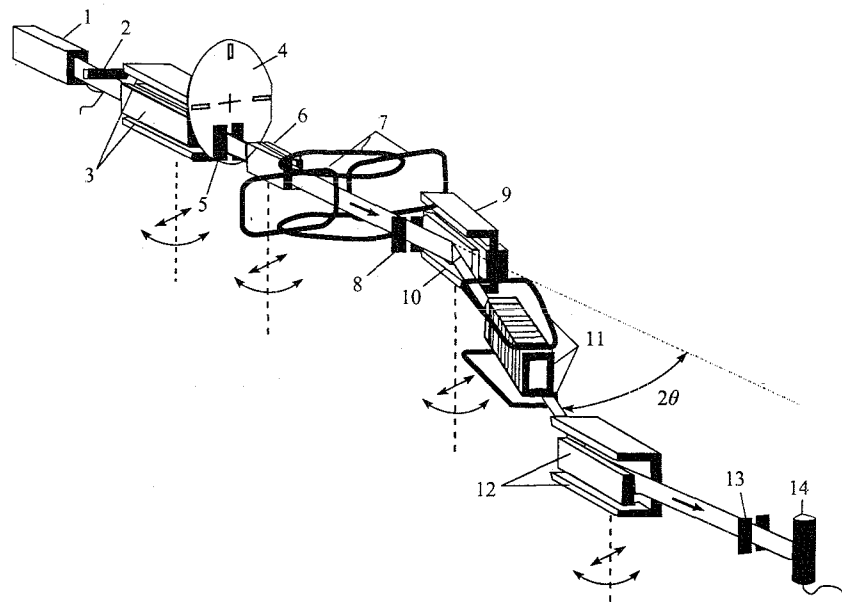


图 2 RPN—2M 谱仪结构示意图

- 1—堆内准直器;2—监视器;3—极化器;4—斩波器;5—狭缝 1;6—双镜单色器;  
7—自旋倒相器 1;8—狭缝 2;9—样品台单元;10—样品;11—自旋倒相器 2;  
12—极化分析器;13—狭缝 3;14—探测器

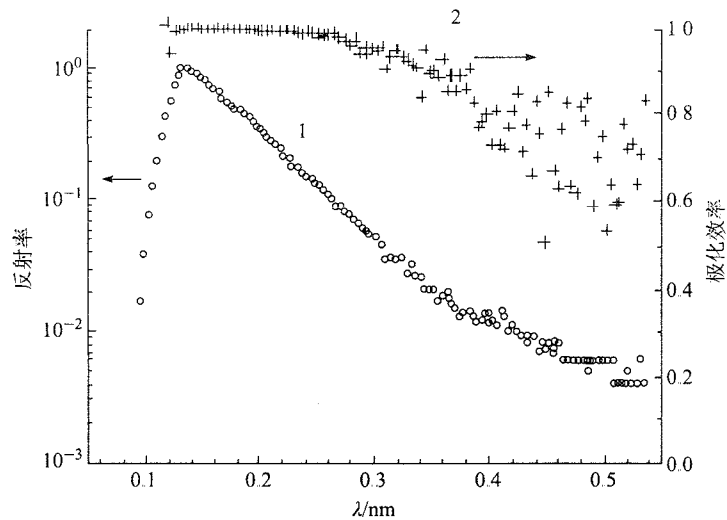


图3 极化器极化率测量结果  
1—反射率;2—极化效率

斩波器是由 Ti 材料做成的直径为 500 mm 的圆盘,由电动马达驱动。圆盘的工作部分由厚 2 mm 的中子吸收材料 Cd 薄片做成,薄片上开有尺寸为 2 mm×40 mm 的四个狭缝。圆盘的转速为 1 500 r/min,相应的斩波频率为 100 Hz。

狭缝 1 和 2 用中子吸收材料镉制成,狭缝大小为 0.15 mm×25 mm,两狭缝间的距离为 1 260 mm,相应的角发散为 0.2 mrad。

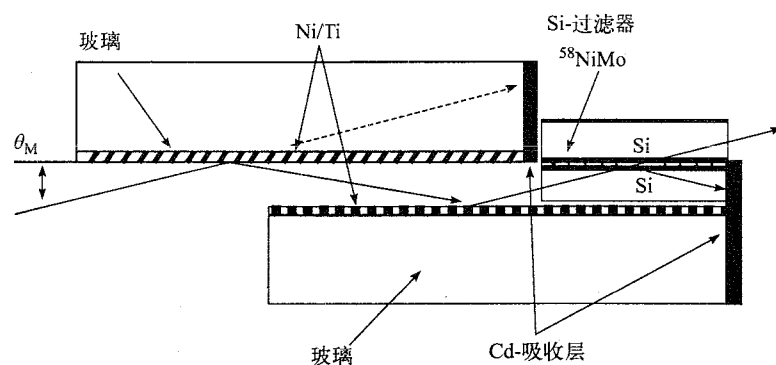


图4 双镜单色器结构示意图

RPN—2M 反射谱仪使用的单色器是双镜单色器。双镜单色器由两个相互平行的镜面单色器组成,镜面单色器尺寸为 5 mm×40 mm×210 mm,两镜面通过 0.4 mm 厚的镉片刚性连接。镜面单色器具有周期性的多层薄膜结构,薄膜介质由具有明显的中子光学对比度的材料 Ni/Ti 交替构成。单色器出口部分是由两个厚度为 0.38 mm 的 Si 片固定在一起的过滤器,过滤器固定在下方的镜面单色器上。过滤器中下方的 Si 片表面镀有非磁性<sup>58</sup>NiMo 材料层(其临界波长为  $\lambda_{c\perp} = 55.6$  nm),而上面的 Si 片未镀任何材料,主要用于消除中子折



射部分。双镜单色器的结构如图 4 所示。当白光中子束以一定的掠入射角  $\theta_M$  入射到单色器镜面上时,一阶 Bragg 反射条件为  $\lambda = 2d \sin \theta_M$ , 其中  $\lambda$  是中子波长,  $d$  是反射镜面多层膜结构的周期(即单个膜层厚度), 于是反射中子为满足 Bragg 条件的单色中子, 而透射中子被玻璃边缘的镅片吸收, 这样就使入射中子束单色化。入射中子束在双镜单色器单元内经过两次反射后到达过滤器, 对于波长  $\lambda > \lambda_{\phi_{\perp}} \cdot \theta_M$  的中子, 在过滤器 Si- $^{58}\text{NiMo}$  界面将发生全反射, 被下 Si 片右侧边缘的镅层吸收掉, 而对于波长  $\lambda < \lambda_{\phi_{\perp}} \cdot \theta_M$  的单色化中子在 Si- $^{58}\text{NiMo}$  界面处几乎无反射地通过过滤器在上 Si 片边缘透射出来, 这样, 中子谱的长波部分就被滤掉了。在图 5 中给出了采用飞行时间模式测量的无双镜单色器以及分别带和不带过滤器的双镜单色器的中子谱, 可以看到, 过滤器的使用有效地降低了长波中子的贡献。带有过滤器的双镜单色器安装在一个可绕垂直轴转动的可调平台上, 通过转动单色器改变掠入射角  $\theta_M$ , 从而十分容易地使工作波长在 0.1~0.3 nm 范围内变化, 而中子束仅平行移动  $1.2 \times 10^{-4}$  mm, 远小于样品前狭缝 2 的宽度, 因此, 在常波长模式下进行调整不需要改变装置的几何布置。但是, 双镜单色器仅用于常波长实验模式, 如果采用飞行时间模式, 此部件应移离中子束。双镜单色器是目前中子反射谱仪很有前途的单色器, 与晶体单色器相比较, 镜面单色器有其独特的优点:

- (1) 中子束流强度损失小, 镜面单色器的镜反射率接近 1;
- (2) 二阶 Bragg 反射峰强度不到一阶峰的 1%;
- (3) 可用于冷中子的单色化, 而晶体单色器则比较困难。

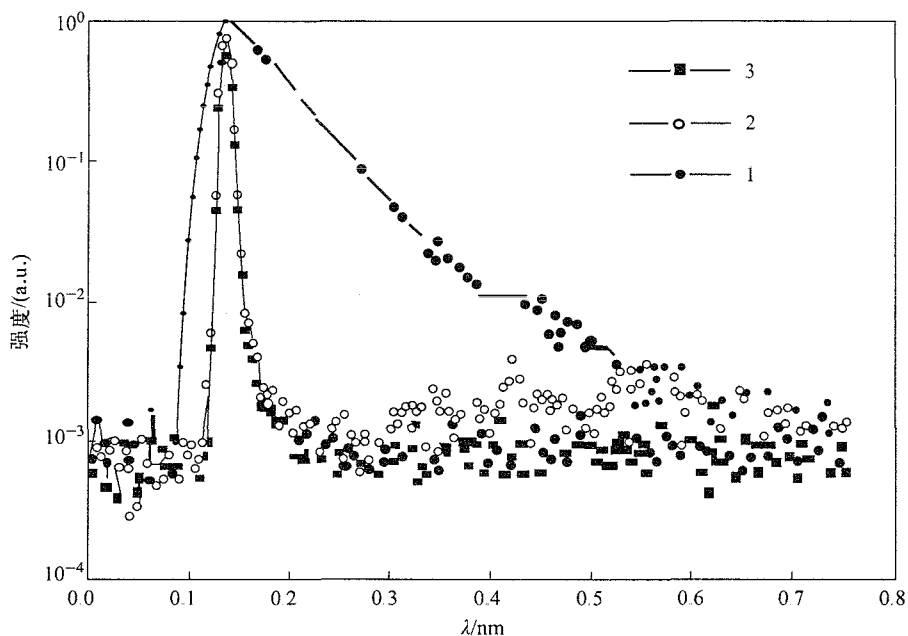


图 5 双镜单色器中子谱测量结果

1—无双镜单色器的中子谱; 2—通过无过滤器的双镜单色器后的中子谱;  
3—通过有过滤器的双镜单色器后的中子谱

自旋倒相器 1 是 RPN—2M 反射谱仪中的第一个倒相器,它是 Korneev 型自旋倒相器,由四组线圈组成,通过在中子束流方向上磁场的改变将中子自旋取向反转。这种倒相器的工作区域较窄,用于窄中子束的自旋状态取向反转。自旋倒相器 1 的自旋倒相率  $f_1$  与波长  $\lambda$  和  $\Delta x$ (束宽)的函数关系可通过在样品处放一个极化分析器由实验得到,其表达式如下:

$$f_1 = 1 - \lambda(0.015 \times \Delta x^2 + 0.007) \times 10^{-2} \quad (3)$$

由实验测得的此自旋倒相器的平均倒相率  $\langle f_1 \rangle$  为  $0.998 \pm 0.002$ 。

样品台单元包括一个由计算机控制的可调整的平台以及平台上安放的两极相距 130 mm 的电磁铁。电磁铁可以在样品区域产生高达 500 Oe 的均匀磁场用于样品材料的磁化。可调的样品平台有两种独立的由计算机控制的运动,即平动和绕垂直轴的转动。平台的平动由步进电机实现,并由双标尺(即粗读和精读)转换器读出。平台平动的最小步长为  $1/128$  mm,平动的总区间为 100 mm,转动的最小步长为  $(1/32)'$ ,转动的角区间为  $128'$ 。

自旋倒相器 2 是该谱仪使用的第二个自旋倒相器,它是 RF(Radio Frequency)型自旋倒相器,安放在样品台单元与极化分析器之间。自旋倒相器 2 由相互垂直的导向磁场和振荡磁场组成,通过这样一个复合磁场将通过的中子束自旋取向反转。RF 型自旋倒相器与 Korneev 型自旋倒相器不同,它可用于宽束中子的自旋状态取向反转。通过极化器后的极化中子束经过两个自旋倒相器(此时样品应移开),再经过极化分析器镜面反射,最后由探测器测量其强度,这样就可以由实验测量确定自旋倒相率。自旋倒相器 1 和 2 的自旋倒相率计算公式如下:

$$f_1 = \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{I_{\text{on,on}} - I_{\text{on,off}}}{I_{\text{off,off}} - I_{\text{off,on}}} \right] \quad (4)$$

$$f_2 = \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{I_{\text{on,on}} - I_{\text{off,on}}}{I_{\text{off,off}} - I_{\text{on,off}}} \right] \quad (5)$$

式中:  $I_{\text{on,off}}$  为表示自旋倒相器 1 处于开通状态而自旋倒相器 2 处于关闭状态时探测器测得的中子束强度,其他各量以此类推。由实验测得的自旋倒相器 2 的平均倒相率  $\langle f_2 \rangle$  为  $0.997 \pm 0.002$ 。

极化分析器的镜面材料是 FeCo/TiZr 超镜,放置在可产生 400 Oe 磁场的永磁体中,其基本工作原理与极化器相同。极化分析器及永磁体安放在一个由计算机控制的可调平台上,可调平台有两种独立的由计算机控制的运动,即平动和绕垂直轴的转动。平台平动的最小步长为 0.25 mm,平动的总范围为 50 mm,转动的最小步长为  $(1/32)'$ ,转动的角范围为  $128'$ 。分析器的极化率  $P_p$  随中子波长变化的实验测量结果(掠入射角为 4.6 mrad)如图 6 所示,图中  $P_p$  为极化器的极化率。

探测器是单个氦计数管,型号为 CHM—17,其直径为 17 mm,外面以镉和含硼聚乙烯材料作为屏蔽,探测器前有一个由镉材料制成的可移动狭缝。探测器由步进电机驱动,它在水平面内的角位置由双标尺转换器读出。探测器移动的最小步长为  $0.0098'$ ,可移动的角范围为  $120'$ 。

散射矢量分辨率  $\Delta q/q$  是中子反射谱仪重要的技术指标之一,其计算公式如下

$$\Delta q/q = [(\Delta\lambda/\lambda)^2 + (\Delta\theta/\theta)^2]^{1/2} \quad (6)$$

其中波长分辨率  $\Delta\lambda/\lambda$  反映了谱仪单色性的好坏,角度分辨率  $\Delta\theta/\theta$  反映了谱仪准直性的好坏。在飞行时间模式下,绝对波长分辨率  $\Delta\lambda$ (波长半高宽 FWHM)由中子脉冲时间和中子

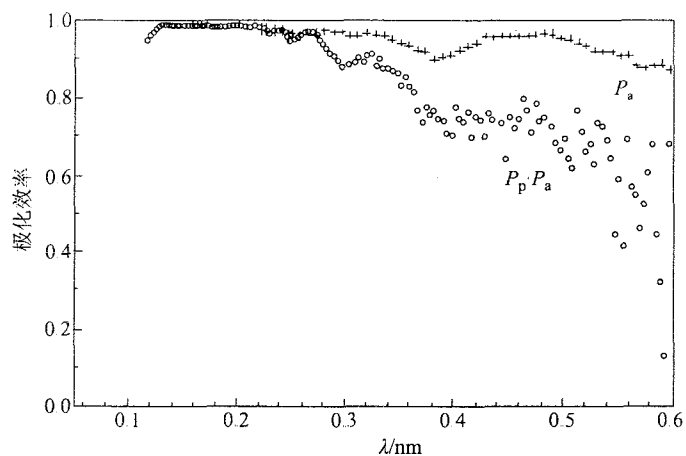


图 6 分析器极化率实验测量结果

飞行距离以及时间的不确定性决定,而中子脉冲时间由斩波器的转速和狭缝宽度确定。绝对角度分辨率  $\Delta\theta$  由入射中子束的发散度和样品表面曲率决定,而由狭缝 1 和 2 确定的入射束发散度对  $\Delta\theta$  有主要贡献。在常波长和飞行时间两种模式下 RPN-2M 中子反射谱仪的散射矢量分辨率曲线见图 7 和图 8。在图 7 中,  $\Delta\theta=0.32$  mrad; 在图 8 中,  $\Delta\theta=0.22$  mrad 及  $\Delta\lambda=0.01$  nm。为了更直观地比较在常波长和飞行时间这两种模式下不同分辨率对中子反射率测量精确度的影响,实验测量了两种模式下玻璃基底上  $\text{Co}_{68}\text{Fe}_{31}\text{V}$  单层膜样品材料的自旋向上极化中子反射率,如图 9 所示,其中常波长模式的入射中子波长为  $\lambda=0.137$  nm,飞行时间模式的中子掠入射角为  $\theta=4.2$  mrad。结果表明,与理论计算的分辨率曲线比较,该谱仪在常波长模式下的散射矢量分辨率较飞行时间模式差,难以获取更为细致的反射信息。为了提高谱仪的散射矢量分辨率,需要采用具有更好波长分辨率  $\Delta\lambda/\lambda$  的单色器以及改进入射束的准直性  $\Delta\theta/\theta$ 。

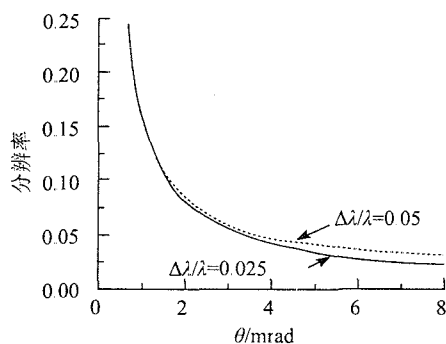


图 7 常波长模式下散射矢量分辨率曲线

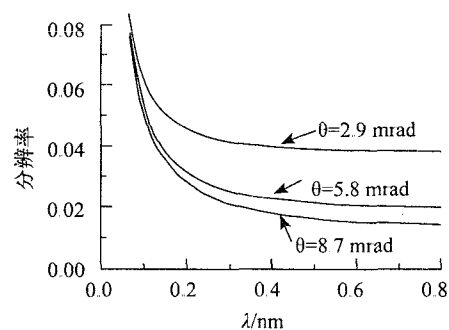


图 8 飞行时间模式下散射矢量分辨率曲线

中子反射谱仪 RPN-2M 的主要技术参数如下:

- (1) 散射矢量范围:  $0.061 \sim 1.1 \text{ nm}^{-1}$  (常波长模式),  $0.045 \sim 1.37 \text{ nm}^{-1}$  (TOF 模式);
- (2) 双镜单色器波长分辨率:  $0.05$  (在波长  $\lambda=0.137$  nm 处);
- (3) 斩波器转速:  $1500 \text{ r/min}$ ;

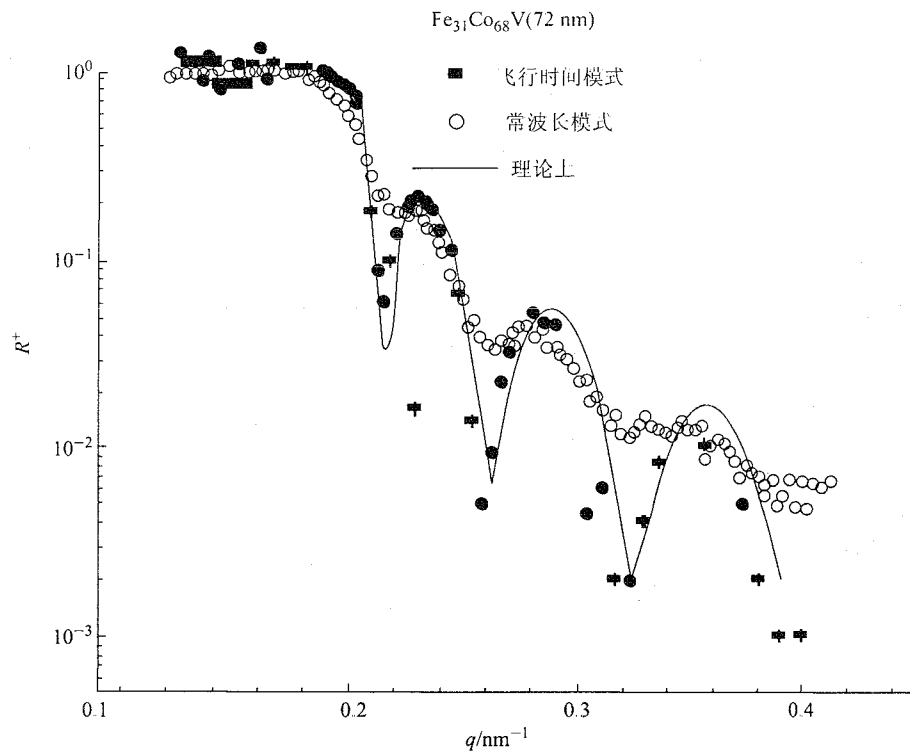


图9 两种实验模式的极化中子反射率

- (4) 斩波器狭缝宽度:2.0 mm;
- (5) 脉冲中子束频率:100 Hz;
- (6) Korneev 自旋倒相器平均倒相率:0.998±0.002;
- (7) RF 自旋倒相器平均倒相率:0.997±0.002;
- (8) 入射束准直狭缝宽度:0.15 mm;
- (9) 入射束准直狭缝距离:1 260 mm;
- (10) 样品磁化磁场:最大 500 Oe;
- (11) 探测器:CHM—17 型<sup>3</sup>He 计数管;
- (12) 探测器效率:75%;
- (13) 探测器最小移动步长:0.009 8';
- (14) 探测器可移动角范围:120'。

#### 4 基本实验方法

中子反射实验主要是测量极化或非极化中子经样品材料反射后的反射中子强度随散射矢量的变化,从而得到反射率  $R$  与散射矢量  $q$  的关系,这个变化关系的图形表示被称为中子反射率曲线  $R(q)$ 。也就是说,中子反射实验的目的就是要获得反射率曲线的实验测量结果。中子反射率曲线  $R(q)$  是垂直于样品表面的一维散射势的相关势参数的直接反映,它携带有关样品材料的结构信息。为了获得好的实验结果,在基本实验方法上通常需要考虑以下几个主要方面。

#### 4.1 样品及样品环境要求

中子反射实验对样品没有特别的限制,对于几乎所有类型的样品都可以采用中子反射进行测量,包括固态的晶体与非晶体材料、聚合物、液体、软物质等。但是对于液体样品材料,在实验散射几何及实验测量模式的选择上应有所考虑(参见 4.2 和 4.3 节)。中子反射实验是测量样品材料表面或界面的微观结构信息,对用作样品的材料表面有一个基本要求,即样品表面从宏观上来看是足够平整且无曲率的,因为如果样品表面不是这样,那么当中子掠入射角  $\theta$  非常小时,由于样品表面所引起的镜反射偏离非常大(约  $1/\sin\theta$ ),由此带来相当大的误差,无法由反射实验测量获得准确的样品材料结构信息。

为了研究样品材料在某些特殊环境下的结构与性能,需要提供相应的样品环境条件,如高低温环境、均匀磁场环境等。中子反射实验样品的环境条件范围比较广,主要是根据所研究样品材料的具体需要来选择相应的实验环境。常用的实验样品环境设备有高低温装置、电磁场装置等。如果样品是易挥发或者是易氧化的样品表面,需要特制的样品容器,对这些特殊环境条件下的样品容器一般要求应具有一定的机械强度、良好的导热性和耐高低温、无磁屏蔽作用、中子吸收少和散射本底小等性能。

#### 4.2 实验散射几何的选择

实验散射几何的选择主要取决于所研究的样品材料的具体形态。由于气体/液体、液体/液体、液体/固体等样品表面和界面的特殊性,在进行实验测量时,样品表面需要保持水平,否则就会改变样品表面的细微结构。对于这类样品就需要选择垂直散射几何实验模式,因为垂直散射几何的样品表面是水平安置的,并且垂直散射几何谱仪配备有良好的防震设备,能够很好地保证样品的表面的细微结构不被破坏。对于几乎不受重力和振动影响的样品表面和界面(如气体/固体、固体/固体界面)实验测量,一般情况下可选择水平散射几何实验模式,因为水平散射几何样品台及探测器系统更易于调节。

#### 4.3 实验测量模式的选择

实验测量模式有常波长模式和飞行时间模式两种,这两种实验测量模式各有其特点。通常可根据具体的研究内容和目的选择不同的实验测量模式,但在下述情况下一般要选择飞行时间实验测量模式:

(1) 动态样品材料(即实验样品材料表面结构是随时间变化的)的测量。因为常波长模式是逐点测量,即测量的是非同一时间  $t_i$  的不同掠入射角  $\theta_i(t_i)$  的反射强度,同一时间只测量反射率曲线上的一个点,这样获得的反射率曲线  $R[q(\theta_i)]$  是不同时间测量数据点的组合,而飞行时间模式能够同时测量全谱范围  $\lambda_i(t)$  的反射强度,在同一时间  $t$  获得整个反射率曲线  $R[q(\lambda_i)]$ ,从而可以得到在测量时间内样品材料结构参数的时间平均值。

(2) 非均匀表面或界面样品材料的测量。由于常波长模式实验测量需改变中子束的掠入射角,从而改变中子束在样品表面的束斑面积和位置,这样得到的反射率数据是与表面或界面位置相关的不同中子束斑面积内的平均反射率,而在飞行时间模式下样品表面上的中子束斑大小、位置和照度均不改变,这对于准确获取非均匀表面或界面样品材料的结构信息是有利的。

(3) 液态样品材料的测量。在飞行时间模式下,实验的几何安排和布局(如样品方位和探测器位置等)在整个测量过程中是不改变的,这有利于液体表面和界面结构的测量。

一般说来,在达到相同的实验精度要求条件下,飞行时间模式通常比常波长模式需要更

长的实验测量时间。

#### 4.4 中子束极化选择及测量

用于中子反射实验的中子束,可以是极化(即单一的相同中子自旋取向状态)的,也可以是非极化的。是否将入射中子束极化取决于是否想通过实验获得所研究的磁性样品材料的磁结构信息。要测量磁性样品材料的磁结构参数,无论是在实验设备还是在实验方法上,都要复杂得多。前述的样品环境要求、实验散射几何、实验测量模式以及中子束极化的选择是既相互独立又相互联系的,在进行实验之前应根据样品材料的具体情况以及所要研究的内容和目的进行复合选择,如图 10 所示。

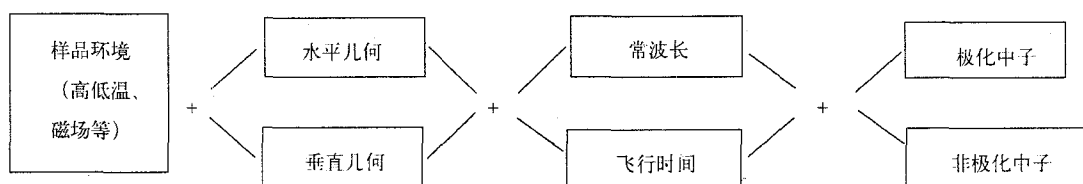


图 10 基本实验方法选择示意图

为了获得磁性样品材料的磁结构参数,需要使用由极化器、自旋倒相器和极化分析器组成的中子极化和分析系统测量极化中子的反射率曲线。根据入射和反射极化中子自旋状态的不同组合,通常需要测量的极化中子反射强度有四种情况,即与自旋向上入射中子相应的自旋向上反射中子强度( $I_{++}$ )和自旋向下反射中子强度( $I_{+-}$ )以及自旋向下入射中子相应的自旋向上反射中子强度( $I_{-+}$ )和自旋向下反射中子强度( $I_{--}$ )。现以  $I_{++}$  的测量为例,通过图 11 所示的流程图说明两个自旋倒相器的组合情况,图中 P 是极化器、 $F_1$  是第一个自旋倒相器、S 是样品、 $F_2$  是第二个自旋倒相器、A 是极化分析器、D 是探测器,“ $\uparrow$ ”和“ $\downarrow$ ”分别表示中子自旋向上和自旋向下状态,流程图中的极化器和极化分析器始终处于工作状态。由图 11 可以看到,非极化的入射中子束(包含有两种自旋取向状态“ $\uparrow$ ”和“ $\downarrow$ ”)经过极化器后成为单一自旋取向状态“ $\uparrow$ ”的中子束,然后经过处于关闭状态的自旋倒相器 1 后,中子自旋取向状态未发生变化,仍是自旋向上“ $\uparrow$ ”。再经过磁性样品材料反射,由于极化中子与样品的磁相互作用,反射中子束中含有两种自旋取向“ $\uparrow$ ”和“ $\downarrow$ ”的中子,这样的反射中子经过自旋倒相器 2(处于关闭状态)后“ $\uparrow$ ”和“ $\downarrow$ ”两种状态的自旋取向不会反转,它们通过极化分析器后仅有单一自旋取向状态“ $\uparrow$ ”的中子被反射出来,最后到达探测器被记录下来,即为  $I_{++}$ 。

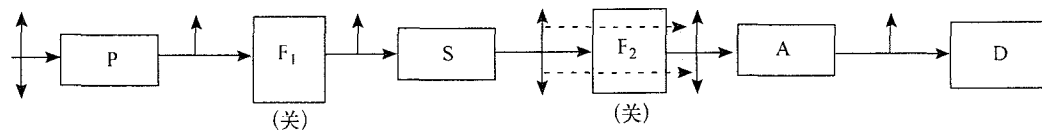


图 11  $I_{++}$  测量流程示意图

图 12~14 分别是测量  $I_{+-}$ ,  $I_{-+}$  和  $I_{--}$  的流程示意图,其中的符号“+”和“-”分别对应双自旋倒相器的“关”和“开”两种状态。对这三个流程图的理解可参见对图 11 的说明,以此

类推,不再一一赘述。

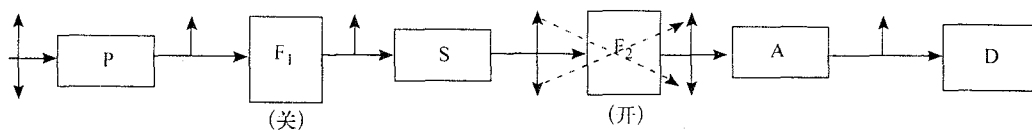


图 12  $I_+$  测量流程示意图

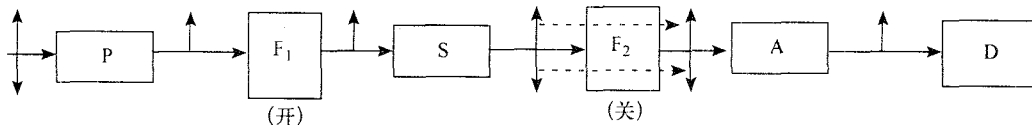


图 13  $I_+$  测量流程示意图

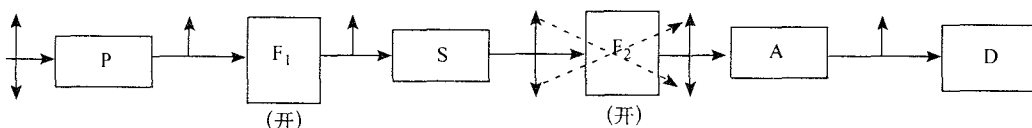


图 14  $I_-$  测量流程示意图

实验测量直接得到的是反射中子束强度  $I_R$  与掠入射角  $\theta$  (常波长实验模式) 或反射中子束强度  $I_R$  与入射中子波长  $\lambda$  (飞行时间实验模式) 的关系数据。反射率是反射中子束强度与入射中子束强度的比值,因此在实验过程中还需要测出入射中子束强度  $I_0$ ,然后由公式  $R(q) = \frac{I_R}{I_0}$  得到反射率  $R$ ,相应的散射矢量由公式  $q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$  给出。注意,用于计算反射率  $R$  的中子束强度  $I_R$  和  $I_0$  需用束流监视器的计数和测量时间进行归一化处理。

#### 4.5 实验本底的测量与扣除

在中子反射实验中,探测器探测到的中子计数除包括由样品表面与界面本身反射出的反射中子外,还包括探测器周围环境的漫散中子和探测器及其电子线路噪声,这些构成了实验测量本底计数。要得到纯的样品反射强度数据,本底的测量和扣除是十分重要的。通常情况下,如果使用的探测器是单计数管,由于探测器窗口较小,本底环境较弱,本底可以忽略不计。但在下列情况时,本底对实验测量结果影响较大,应考虑扣除相应的实验测量本底:

(1) 在采用具有较大面积探测窗口的二维探测器时,二维探测器束流采集窗口有一个很大的角收集范围,探测到的束流强度包括较多的周围环境中漫散中子和非镜面散射中子部分;

(2) 在高  $q$  区测量时,反射率非常低,大部分中子束流穿过样品表层到达基底,由于在那里形成非相干散射和多重衍射作为本底贡献,导致探测器测量的实验本底增大。在上述两种情况下,在进行实验数据处理时将本底扣除。扣除实验本底的反射率计算公式如下

$$R(q) = \frac{I_R(q) - I_{Bg, R}}{I_0(q) - I_{Bg}} = \frac{[I_R(q) - I_{Bg, R}] \cdot t}{[I_0(q) - I_{Bg}] \cdot t_R} \quad (7)$$

式中： $I_0$ ——入射中子束强度；

$I_{Bg}$ ——测量入射中子束强度时的本底强度；

$I_R$ ——反射中子束强度；

$I_{Bg, R}$ ——测量反射中子束强度时的本底强度；

$t$ ——入射中子束强度的测量时间；

$t_R$ ——反射中子束强度的测量时间。

#### 4.6 实验数据采集参数的设置

为了获得可信的、具有统计意义的实验数据，在样品材料的中子反射实验测量开始前，需要设定相应的实验数据采集参数，主要包括测量控制程序软件参数的设定和样品实验环境参数的设置，其中数据采集步时间(step time)和数据采集步长(step size)参数的设置比较重要。通常采用对所需要的数据采集区间快速预扫描的方法选择确定数据采集参数的设置。作为惯例，在每一个测量点至少应当有 1 000 个计数以保证较好的统计性，这样，如果在某一入射角束强度为每秒 200 个计数，那么对此入射角数据采集的步时间应当设置为 5 s。以这种方式对整个测量区间进行扫描并将它划分为有固定步时间的区间间隔。数据采集步长的大小应当根据在反射率曲线上观察到的细节而选择确定。如果反射率曲线上没有“穗边”(fringe)，即是非振荡的，则数据采集步长可选择得相当大： $2\theta$  步长可以是  $0.02^\circ \sim 0.03^\circ$ 。但是在全反射临界角附近，数据采集步长通常选择得相当小(譬如在  $0.002^\circ \sim 0.006^\circ$ )，因为这里的反射强度迅速下降，这就可以保证精确测定全反射临界角从而能够研究材料的平均散射长度密度。如果在反射率曲线上可以观察到“穗边”，那么数据采集步长的选择可根据“穗边”的振荡周期而定。为了较好地描述“穗边”，数据采集步长通常选为“穗边”振荡周期的十分之一。一般说来，数据采集步长选择得越小，越能够获得更细致的反射率曲线，但相应的数据采集时间更长，需要更多的实验测量时间。

## 5 实验测量步骤

以俄罗斯科学院圣彼得堡核物理研究所的中子反射谱仪 RPN-2M 作为实际测量装置，简要介绍中子反射实验测量的基本步骤。

### 5.1 调整相关部件单元

根据所要测量的实验样品的相关要求，选择确定需要的样品环境条件、采用的实验测量模式和极化方式。如果样品需要磁化，就要调整样品台单元处的磁场装置。如果采用常波长实验测量模式，就将单色器移入中子束线上，并关闭斩波器；如果采用飞行时间实验测量模式，将斩波器打开，移开单色器。如果进行极化中子反射实验，就需要调整由极化器、自旋倒相器和极化分析器组成的中子极化和分析系统，而对于非极化中子反射实验则需将此系统移离中子束。

### 5.2 扫描检测探测器

在对样品进行正式测量之前需要检查探测器是否处于正常工作状态，此时应将极化器、样品台、极化分析器等设备移开。检测的方法为：开启探测器移动装置，先逆时针转动探测



器,然后顺时针转动探测器进行扫描,找到转动过程中两次最大的中子束流强度  $I_{\max}$ ,参照监视器的计数情况,检测探测器是否工作正常。

### 5.3 调整实验样品位置

在中子反射实验中,实验样品位置的正确调整是至关重要的一个环节,它将直接影响到测量结果的准确性。样品位置调整方法如下。

首先将样品表面向中子束线方向平移(平移方向与样品表面法线方向一致),当移动到使探测器测量的中子束强度变为原来入射束强度  $I_0$  的一半时(即  $I = I_0/2$ ),停止样品的平移,设此时的位置为  $x_1$ ,如图 15(a)所示。在  $x_1$  处分别沿顺时针和逆时针两个方向转动样品,由于样品表面与入射中子束的夹角不同,它对入射中子束的阻挡也不一样,会使探测器测量的中子束强度发生变化,如图 15(b)所示。找到样品转动过程中最大的中子束强度  $I_{\max}$  对应的样品角位置  $\theta_1$ ,此角度位置表明样品表面与入射中子束平行。然后在固定的角度位置  $\theta_1$  处再次沿样品表面法线方向(即与中子束线垂直方向)平移样品,使探测器测量的中子束强度为  $I_0/2$ ,此时样品对应的位置为  $x_2$ ,则样品在  $(x_2, \theta_1)$  位置处表明样品反射表面处于入射中子束的中心,且与入射中子束平行,如图 15(c)所示。将  $(x_2, \theta_1)$  设置为样品的零点位置,即  $(x_2 \rightarrow 0, \theta_1 \rightarrow 0)$ ,以此点作为实验测量参数(譬如中子掠入射角  $\theta$ )的参考点。再在  $(x_2 \rightarrow 0, \theta_1 \rightarrow 0)$  处将样品表面相对于中子束转动一角度  $\theta_0$ (探测器相应地转动  $2\theta_0$  角度),并沿样品表面法线方向前后平移样品,使得入射中子束斑在样品表面移动。当中子束斑逐渐移出样品表面两边边缘时,探测器测量的中子束强度就会下降,如图 15(d)所示。找到样品平移过程中探测器测量的中子束强度曲线平台的中心点  $x_3$ (相应的强度变化曲线通常都会由数据采集系统软件自动给出),此位置表明入射中子束在样品表面的中心。至此,实验样品的位置调整完毕。

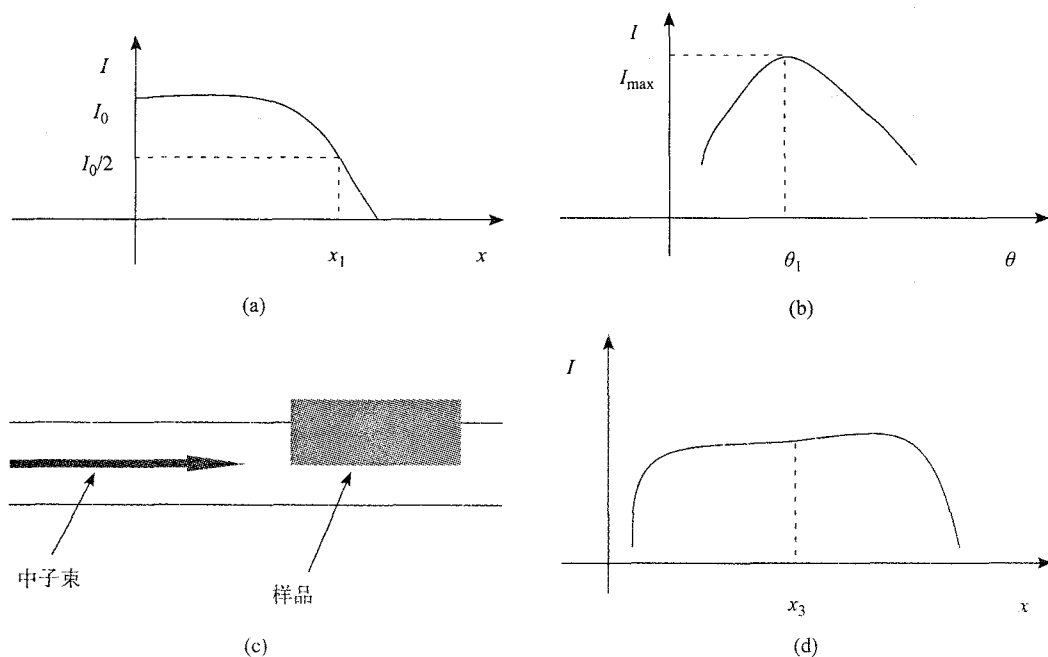


图 15 样品位置调整示意图

#### 5.4 设置中子入射角

对于常波长实验模式,需要选择所测量的中子束起始和中止入射角,即测量的入射角范围通常应当跨过全反射临界角 $\theta_c$ 。对于飞行时间实验模式,需要选择一个固定的掠入射角。

#### 5.5 调整探测器位置

在中子镜反射实验中,要求探测器角度位置与入射中子束夹角为 $2\theta$ ( $\theta$ 是中子束在样品表面的掠入射角),在此角度处探测器测到的中子束强度最大。因此,通过转动探测器测量中子束强度(需在探测器前加一准直狭缝),确定束流“小—最大—小”的强度变化与探测器角位置关系(如图 16 所示),得到束流强度最大位置处的探测器角度坐标 $\omega_m$ ,此即为探测器的正确位置( $\omega_m=2\theta$ )。在常波长实验测量模式下,探测器角位置 $\omega$ 与中子入射角 $\theta$ 联动,而在飞行时间实验测量模式下则保持不变。

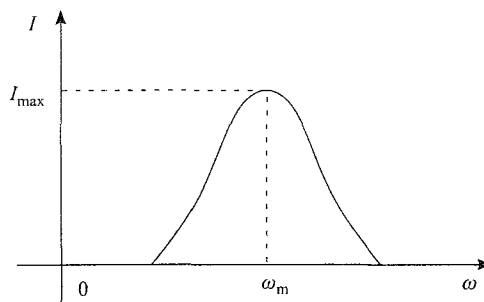


图 16 探测器位置调整示意图

#### 5.6 采集、记录实验谱数据

按照实验数据采集参数设置的要求(参见 4.6 节)进行相关参数设置,开始测量反射中子束和入射中子束强度。测量结束后,将测量数据存入计算机或其他存储介质,即获取了中子束强度等原始实验谱数据。

### 致 谢

感谢俄罗斯科学院圣彼得堡核物理研究所中子反射研究组 N. K. Pleshanov 教授和 V. G. Syromyatnikov 博士给予的指导和有益的讨论以及该研究组提供的实验条件与帮助。

### 参 考 文 献

- 1 Zhou X L, Chen S H. Theory foundation of X-ray and neutron reflectometry. Phys. Rep., 1995, 257: 223
- 2 A. van der Lee. Grazing incidence specular reflectivity: theory, experiment and applications. Solid State Sciences, 2000, 2: 257
- 3 Majkrzak C F, Berk N F, et al. First-principles determination of hybrid bilayer membrane structure by phase-sensitive neutron reflectometry. Biophysical Journal, 2000, 79: 3330
- 4 Aksenov V L, Nikiteko Yu V, et al. Polarized neutron reflectometry studies of depth magnetization distribution in Fe/V layered structure. J. Magn. Magn. Mate., 2003, 258~259: 332
- 5 Kepa H, Majkrzak C F, et al. Polarized neutron reflectivity studies of magnetic semiconductor superlattices. Physica B, 2003, 355: 44