

多功能中子反射谱仪

詹晓芝¹ 肖松文¹ 吴岩延¹ 孙远¹ 韩庆夫¹ 周爱玉¹ 朱涛²

(1 中国科学院高能物理研究所东莞分部 523803; 2 中国科学院物理研究所 100190)

中国散裂中子源(CSNS)项目是我国“十二五”期间重点建设的大科学装置,列入国家中长期科学和技术发展规划,属于国际前沿的高科技多学科应用的大型研究平台。多功能反射谱仪(MR)是CSNS首批建设的三台谱仪之一,中子反射谱仪是通过分析来自样品的反射中子研究物质的表面和界面结构,主要应用领域包括:各种新兴薄膜材料的结构、磁性低维结构及表面磁性、聚合物膜及生物膜的结构和界面现象、液体物质及固液界面等。本文通过回顾反射技术的发展,阐述中子反射技术在薄膜材料表面和界面研究中的重要地位,并进一步介绍CSNS多功能反射谱仪的主要结构和特点。

1. 薄膜材料的研究意义

高度信息化时代的到来,促使各类功能元件不断地向小型化和集成化方向发展,以薄膜材料为代表的、不同于传统块状材料的新型材料成为实现元件和系统微型化的有效途径。薄膜材料是指采用特定制备技术(如溶胶-凝胶法、溅射法和分子束外延生长等),在特定衬底表面上沉积得到的、厚度为纳米量级的二维材料。由于薄膜材料在厚度方向上只有几个到数百个原子层,因此可以通过控制薄膜的生长工艺改变薄膜材料的生长条件,影响其结构、膜层厚度、界面粗糙度等性质,从而得到与块体材料迥异的特殊性能。目前得到广泛应用的薄膜材料主要有:超导薄膜、半导体薄膜、磁性薄膜、聚合物膜和生物膜等。以磁性薄膜为例,它在现代信息存储技术当中具有重要应用。磁存储是当前信息存储的关键技术,这主要是由于磁存储具有成本低,容量大,信息存储能耗低,记录状态稳定,可反复读写等半导体记录和光盘记录不具备的优点。自

IBM公司于1956年研制出第一个总容量为5MB、存储密度达 2kbit/in^2 的硬盘后,硬盘的容量和存储密度不断提升(图1),到2002年实验室所能得到的最高存储密度已经达到 100Gb/in^2 。在硬盘技术日新月异的背后,硬盘中读出磁头的技术改进功不可没,而读出磁头的改进则应归功于2007年诺贝尔物理学奖得主彼得·格林贝格和阿尔贝·费尔在磁性薄膜中发现的巨磁电阻效应。与传统的磁感应磁头和各向异性磁电阻磁头相比,使用巨磁电阻效应的读出磁头能够感应更小的外加磁场,具有更大的读出信号,使读出磁头的灵敏度和信噪比大大提升。因而,IBM在1994年发布了第一款装备GMR磁头的硬盘后,磁盘存储技术取得了飞跃式地发展,开始在个人电脑中普及,“飞入寻常百姓家”。这仅仅是磁性薄膜在现代生活中应用的一个例子,磁性薄膜在高性能传感器、新型存储技术等研究领域都是不可或缺的。

其他的薄膜材料在生活中同样具有重要作用,比如,在光伏技术中具有重要作用的半导体薄膜,

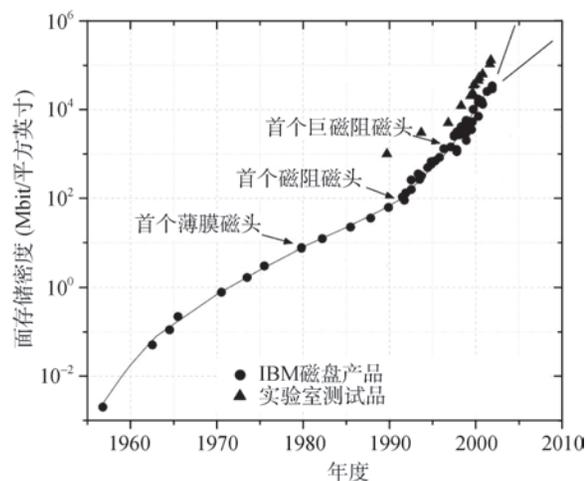


图1 硬盘存储密度随时间的关系(摘自文献)

在新型电子器件和仿生元件中具有广泛前景的聚合物薄膜等。可见，薄膜材料是对现代生活具有重要作用的一类材料，也是未来材料科学发展的一个重要方向。

2. 薄膜结构的表征

由于薄膜材料在现代社会生活中具有重要作用，关于它形貌的表征，包括膜层厚度、界面粗糙度、薄膜组分等，就显得尤为重要。然而由于薄膜的二维属性，这些信息无法直观得到，需要借助特殊的实验测量方法来间接获得，反射技术就是其中重要的一种。反射现象是大自然中最常见的光学现象，并让我们的眼睛能够看到如此炫丽多彩的世界。以图2中具有光滑表面、厚度方向无限延伸的薄膜为例，光在空气中从左方以角度 θ_0 入射到薄膜表面后，其中一部分光透过表面以一定的角度 θ_1 进入薄膜内部，称为折射现象；而另一部分光则以角度 θ_0 反射到右方，称为镜面反射。其中，折射光和反射光的大小由薄膜的折射率决定，符合菲涅耳关系。

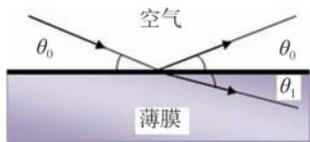


图2 无限厚薄膜的反射和折射现象

早在17世纪，牛顿就发现利用平行白光入射到薄膜样品表面后，由反射光所产生的干涉现象可以用于测量薄膜的厚度。其基本原理是光的干涉效应，如图3，在具有有限厚度的薄膜内，光束在界面上多次反射而产生相长干涉和相消干涉，从而出现干涉纹，其强度和宽度取决于所用薄膜材料的折射率及其厚度。利用此原理制作的迈克尔逊干涉仪可用于薄膜折射率和厚度的测量，具有简单易行的特点。

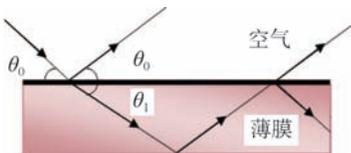


图3 有限厚薄膜的反射现象

然而，由于测量中使用可见光，无法用于测量非透明样品，且其所测样品厚度不能小于所用可见光波长的四分之一，所以此方法仅适用于较厚透明涂层的厚度测量。随着1895年德国物理学家伦琴发现X射线，具有一定穿透能力的高能射线（如X射线）开始进入科学家的视野。20世纪初阿瑟·康普顿的实验和詹姆斯的理论分析表明，X射线的反射过程遵循与光反射相似的规律，只是所对应的折射率不同，其折射率与样品单位体积内的电子密度有关。1954年，帕拉特第一次将X射线应用于反射技术当中，并逐渐成为研究薄膜样品的重要手段。X射线反射测量过程如图4所示，由射线源产生的X射线经过单色器后具有特定波长，通过狭缝以一定的角度入射到样品后反射进入探测器中，从而能够计算在该入射角下的样品反射率。图5为单层膜反射率曲线示意图，其中振荡峰的振幅与薄膜和衬底间材料的电子密度的差别有关，振荡峰的间距与薄膜厚度相关，而反射率强度的下降则能够反映界面粗糙度的信息。因此，关于X射线反射率曲线的进一步数据分析可以获得薄膜的厚度、粗糙度和组分等信息。与光反射技术相比，X射线反射技术在薄膜研究中展现出了巨大的优势。第一，X射线具有一定的穿透性，能够直接探测非透明薄膜样品及内部界面；第二，由于X射线反射与样品本身的电子密度

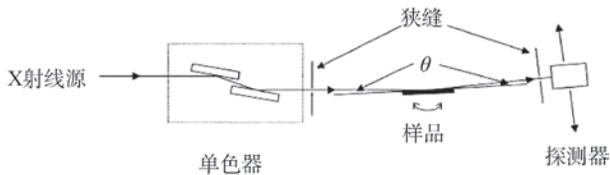


图4 X射线反射测量简图

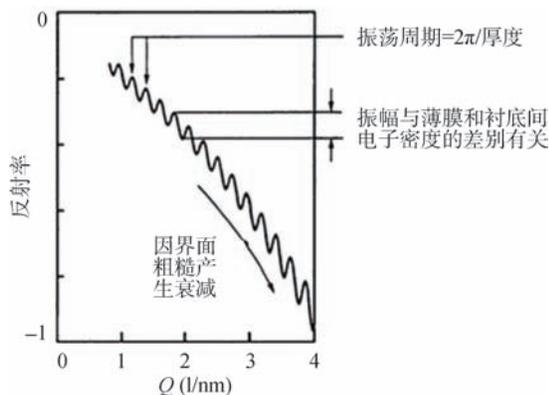


图5 单层膜X射线反射率曲线示意图

相关，可以分辨垂直于薄膜表面方向的样品组成的变化；第三，一般情况下厚度在 2 ~ 200nm 内的薄膜样品都适合于 X 射线反射技术，探测精度为 0.1nm。

3. 中子反射技术

尽管目前 X 射线反射技术得到广泛地应用，但是由于 X 射线本身的限制使得该技术依然存在一些应用局限。比如，样品对 X 射线的折射率与样品的电子密度相关，元素对 X 射线的散射能力随着元素原子序数的增加而增加（图 6），所以对于同位素、甚至邻近元素的分辩比较困难。由于 X 射线反射技术存在一定的局限性，20 世纪 70 年代发展起来的中子反射技术开始受到了人们的关注，并最终成为与 X 射线反射技术互为补充的薄膜样品探测重要技术。

1931 年，瓦尔特·博特等人发现粒子轰击 Be 核时能够产生不受电场影响的“未知”射线。随后，詹姆斯·查德威克通过分析该射线与 H、Li、Be 等轻原子核碰撞过程中的能量、动量守恒关系时发现，该射线呈电中性，且质量与质子相近，证实这些射线就是中子。他的这一重大发现使他获得 1935 年的诺贝尔物理学奖。1946 年，费米和辛证实中子镜面反射遵循与光反射相同的规律，区别在于其折射率由原子核对中子的散射能力、样品密度和中子波长等决定。习惯上常用散射长度的大小来表示各元素原子核对中子散射能力的强弱，散射长度取值的正负则取决于原子核对中子的散射势是排斥势还是吸引势。在 20 世纪 80 年代开始，中子反射技术开始被广泛地应用于物质表面和界面现象的研究当中。

中子反射技术测量反射率的过程与 X 射线反射技术类似，特定波长的中子以一定的角度入射到样品表面，在镜面反射方向由探测器记录反射中子强度，并通过改变中子波长（称为飞行时间模式）或者改变中子入射角度（称为固定波长模式）来进行测量。与 X 射线反射技术相比，中子反射技术具有以下四个优点。第一，中子具有电中性的特点，因此具有比 X 射线更强的穿透本领，能够应用于深层界面现象的研究中。一些常用于制备薄膜的基底材料和盛装液体或软物质的容器，如硅、石英等，都

可以被中子所穿透且衰减较少，有利于薄膜样品、固-液界面和软物质等的研究。第二，中子具有磁矩，通过极化装置可以产生极化中子，能够进行极化中子反射实验。极化中子不仅受到原子核的作用，同时还受到样品原子磁矩的影响，利用这一点可以研究薄膜样品的磁性。第三，各元素的中子散射长度随着原子序数的增加具有不规则的特点，这一点与 X 射线大为不同（图 6）。因此，中子具有对轻元素（如 H、C、N 等元素）灵敏的特点，适合于有机材料的研究；而且中子能分辨近邻元素，如 Fe 和 Mn 元素，而 X 射线则很难做到。此外，中子对氢原子和氘原子的散射长度具有很大差别，分别为 $-0.374 \times 10^{-12} \text{cm}$ 和 $0.667 \times 10^{-12} \text{cm}$ ，这一点对于软物质的研究具有重要意义。以蛋白质为例，其中的氢原子数目占原子数目的三分之一以上，对于生物功能的形成具有关键作用，然而由于 X 射线对氢原子不灵敏故而难以测定其准确位置。而人们利用中子对氢和氘散射长度存在差别的特点发明了氢-氘置换技术，实现中子对氢原子的识别和定位，并能将其与氮原子、碳原子或氧原子区分开来，大大推进了软物质的研究进展。第四，低破坏性。中子反射测量中所用中子能量多为毫电子伏特量级，较 X 射线反射测量中所用射线的能量低了几个数量级，且没有电离属性，对样品的破坏性小。这对于生物活体样品的研究尤为重要。

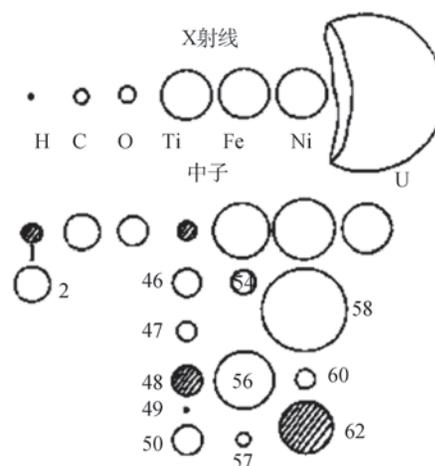


图 6 某些原子的 X 射线和中子散射长度示意，图中半径的大小表示各原子散射长度的大小，白圈和黑圈分别表示散射长度为正值和负值，不同的数字表示元素的各个同位素

4. CSNS 多功能中子反射谱仪

由于中子的独特属性，使得目前中子反射技术日益成为薄膜材料的重要研究手段。目前，世界上已有各种类型的中子反射谱仪十几台，可分为基于反应堆及基于散裂源两大类。典型的反应堆反射谱仪如法国 ILL 的 ADAM，美国 NIST 的 D17，及澳大利亚 ANSTO 的 Platypus 等。散裂中子源的反射谱仪主要分布在英国和美国。

中子反射谱仪有水平和垂直两种样品几何安置方

式，前者可以用于液体样品的测量，后者有利于样品环境的设置。目前在我国以磁性薄膜为主的固体薄膜方面的科研用户非常多，将 CSNS 一期的反射仪设计为一台多功能用途的反射仪，即以磁性薄膜为主，并考虑到多样化的薄膜研究需求，因此，CSNS 反射仪采用垂直样品几何。作为一种多功能反射仪，其设计的主要功能有：1) 固体薄膜的中子反射研究；2) 磁性薄膜的极化中子反射研究；3) 非镜面反射特性研究；4) 软物质薄膜的反射研究；5) 原位薄膜材料的生长及其中子反射研究。

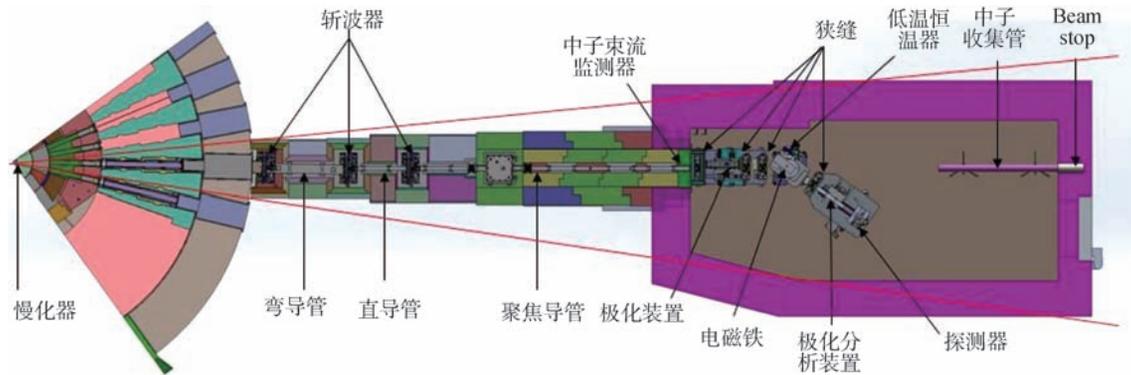


图 7 MR 示意图

图 7 为 CSNS 反射谱仪的示意图。它由斩波器系统、导管系统、狭缝系统、极化系统、样品环境和探测器等几大部分组成。其中，斩波器系统由三个转盘式斩波器组成，通过控制涂有中子吸收材料转盘的转动相位，保证从脉冲中子束中截取所需波段范围的中子束；导管系统由直导管、多层弯导管、聚焦导管等组成，利用中子导管内表面超镜涂层的全反射现象传输反射实验所需的中子；狭缝系统包括样品前的三个四刀狭缝和样品后的一个四刀狭缝组成，通过设定狭缝水平和垂直方向开口大小（图 8），能够控制入射中子光束的宽度、高度及分辨率；极化系统适用于中子极化反射测量，采用单片的 Fe/Si 极化超镜作为极化装置和极化分析装置，分别用于产生入射所用的极化中子和分析反射中子极化方向；样品环境包括磁场环境和温度环境，二者可以单独使用或配合同时使用，满足多样化的测量需求；束流监测器安置于中子导管出口处，测量入射中子强度随时间的变化，减小中子束入射强度变化引起的系统误差；

探测器为多功能反射谱仪数据获取系统的主体部分，预采用 CSNS 探测器系统自主研发的二维 ^3He 正比多丝室位置灵敏探测器。

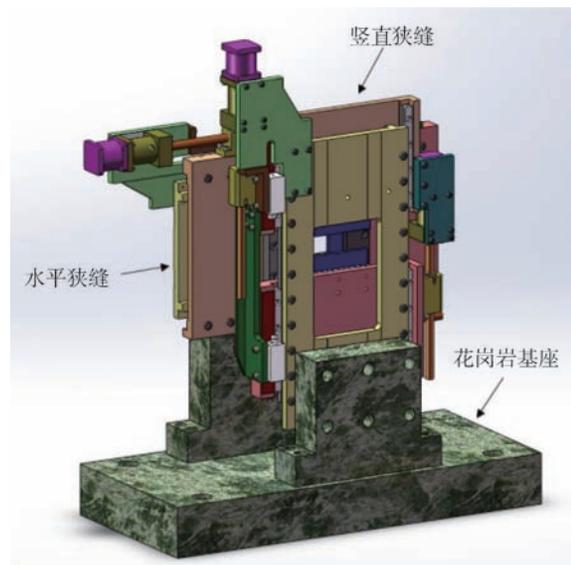


图 8 四刀狭缝

新书介绍

《量子场论导论》

——一本推荐给研究生的好教材



中国科学院高能物理研究所黄涛研究员撰写的《量子场论导论》由北京大学出版社作为《中外物理学精品书系》出版，已于2015年底与读者见面。量子场论是描述高速微观粒子现象和规律的基本理论，它的基础是量子力学和相对论。量子电动力学是最早发

展和最成功的量子场论，已经经受了60多年实验的验证，为电磁相互作用的基本理论。由于粒子物理实验的飞速发展和理论的深入研究进一步推动了量子场论的发展，特别是20世纪60年代以后，非Abel规范场论和标准模型理论（电、弱统一模型和量子色动力学）的发展极大地丰富了量子场论的基础和内容。量子场论从建立至今已有60多年历史，作者根据国

内研究生情况以及研究工作的需要撰写了这本中文专业书籍，其内容包括量子场论基础及近代发展。作为量子场论入门，它具有以下几个特点：（1）第一章简要地叙述了量子场论的建立和发展历史，有助于初学者掌握量子场论的发展线索；（2）系统地介绍了量子场论基础及发展，全书内容着重叙述物理图像和相关的科学问题，同时给出必要的数学推导；（3）它涵盖的内容既可适用于理论物理专业学生，也可选择有关章节适用于非理论物理专业学生。

黄涛教授，1963年毕业于北京大学物理系，长期从事量子场论和粒子物理理论研究，发表了一系列在国际上有重要影响的学术论文，具有较高的学术造诣。此书是他继《量子色动力学引论》出版后又一本力作。相信此书的出版对国内理论物理领域的研究生提供了很好的教材和参考书，对刚进入研究领域的博士生、青年教师和青年科研人员也具有重要的参考价值。

多功能反射谱仪所具有的最主要的操作模式为：

1) 非极化高强度反射模式。对于非磁性薄膜的表征可以采用非极化反射模式，高通量模式下，使用聚焦导管的延长部分增加入射中子通量，适合超薄膜和有机聚合物薄膜测量。此模式下也可将样品水平放置，通过调节入射角的大小，得到样品特别是软物质样品的表面及不同深度的结构信息。2) 非极化高分辨模式下。将聚焦导管的延长部分移出入射光束，可用于非镜面反射和结构比较复杂的薄膜。3) 极化反射模式。极化反射模式主要用于磁性薄膜的表征，可得到磁性薄膜样品深度方向上的磁矩的大小和方向信息。

CSNS反射谱仪另一个显著特点则是多样性的样品测量环境。反射实验中为了观察到单层膜或者界面的结构特性，我们需要花很长的数据采集时间。另一方面，普通的薄膜样品通常需要覆以一层保护层，这

就使得我们没法研究无覆盖的薄膜表面或者单层膜的特性。目前，在同步辐射设备上普遍开始考虑薄膜的原位生长及测量，而中子反射由于中子通量的限制，基本无法开展薄膜的原位生长的研究。随着中子光学技术的发展，中子谱仪的有效使用通量的增加，数据采集时间将大幅减小，因而创新的样品环境是提升谱仪特性的主要手段。

5. 结论

综上所述，由于中子的电中性和具有磁矩等独特优点，中子反射技术能够与X射线反射技术互为补充，日渐成为薄膜表面和界面研究的重要手段。CSNS多功能反射谱仪结合我国科研需要，在样品环境的设计上加以创新，并以此为根据进行合理的物理设计，可以相信它建成后能够成为我国各类功能薄膜研究的重要手段。