

文章编号: 1005-5630(2015)05-0461-05

基于 Mezei 算法的 FeCo-Si 中子多层膜极化镜优化设计

王俊杰, 张 众, 王占山

(同济大学 物理科学与工程学院 先进微结构材料教育部重点实验室, 上海 200092)

摘要: 多层膜极化镜是构成中子极化装置的核心元件, 为了实现中子多层膜极化镜的研制, 开展了中子多层膜极化镜的设计方法研究。首先阐述了中子多层膜极化镜的原理, 基于不同材料的光学特性, 提出了中子多层膜极化镜的材料选择方法; 其次, 介绍了 Mezei 设计方法, 并针对 Mezei 设计方法的缺陷, 分别通过引入新的膜层结构(亚帽层法)和新的设计参数(乘系数法), 对原设计方法进行了改进, 实现了上旋中子反射率和极化率较为理想的 $m=2$ 的中子极化超镜的设计。计算结果表明, 两种方法均可以提升上旋中子反射率, 但都会增加极化镜的膜层数, 其中帽层法增加的膜层数相对较少。

关键词: 中子极化超镜; 多层膜; 反射率; 极化率

中图分类号: 42.79.Wc, O 434.1 **文献标志码:** A **doi:** 10.3969/j.issn.1005-5630.2015.05.017

Optimized design of FeCo-Si neutron polarizing supermirrors based on Mezei method

WANG Junjie, ZHANG Zhong, WANG Zhanshan

(MOE Key Laboratory of Advanced Micro-structured Materials, School of Physics
Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract: Neutron polarizing supermirror (NPS) is a primary optical device for polarizing neutrons. In this paper, an optimized design method of NPS based on the famous Mezei design method, which has been widely applied in the design of neutron supermirrors is presented. Firstly, this paper introduces the principle of NPS, bringing up a method to choosing the material of layers in the NPS. Secondly, the Mezei method, which was brought up by Mezei in 1976 is introduced. Thirdly, two optimizing methods are presented for overcoming the shortages of Mezei method. Finally, the FeCo-Si neutron polarizing supermirrors are designed based on the optimized method for good reflectivity and polarization. The calculation results show that both methods can improve the reflectivity of the spin-up neutrons and the polarization.

Keywords: neutron polarizing supermirror; multilayer; reflectivity; polarization

收稿日期: 2015-02-11

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11075117)

作者简介: 王俊杰(1990—), 男, 硕士研究生, 主要从事中子多层膜极化镜的研究。E-mail: mariowjj@163.com

通信作者: 张 众(1977—), 男, 教授, 主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: zhangzhongcc@tongji.edu.cn

引 言

中子多层膜元件是中子光学系统中的关键元件之一^[1-3]。极化中子是开展研究磁结构和磁激发的优良探针,极化中子散射和衍射技术在磁性材料和超导材料精细结构研究方面具有独特的优势,从而得到了广泛应用。

实现中子极化的方法主要有三种^[4]: Heusler 合金,³He 旋转滤光镜和中子多层膜极化镜。Heusler 合金昂贵且在市场上难以得到,主要用于极化热中子束。³He 旋转滤光镜可以达到非常高的极化率,且对入射角没有要求,但由于其基于吸收原理,极化中子通量受到影响,同时由于³He 未来生产的不确定性^[5],难以获得广泛应用。虽然目前只适用于极化冷中子束,但是中子多层膜极化镜因其拥有中子强度损失小,易于制备等优点,广泛应用于极化中子束线。

中子多层膜极化镜分为两种:基于 Co 和 Ti 组合的反射式极化镜^[6]以及基于 Fe 和 Si 组合的透射式极化镜^[7]。前者的特点是超镜对下旋中子的散射长度密度(scatter length density, SLD)非常接近于 0,使超镜和真空对于下旋中子的折射率几乎相同,中子从真空入射到超镜,仅有上旋中子被反射,从而实现反射中子(上旋)的极化。后者的特点是超镜和基底(一般为薄 Si 晶片)对于下旋中子的折射率相同,中子先入射到基底,再入射到超镜,下旋中子基本不反射,从而实现透射中子束(下旋)的极化。由于基于 Co-Ti 的反射式极化镜需要在基底和超镜之间镀制钆(Gd)吸收层,以吸收未被反射的中子^[4,8],由于 Gd 材料价格昂贵,并且吸收中子后放热,可能导致超镜膜层破坏。基于 Fe-Si 多层膜的透射式中子极化镜对冷中子的吸收非常小^[9],应用过程中不改变中子束传输方向,因此在中子极化镜中得到了广泛应用。

Mezei 最早提出了中子超镜^[2]。继 Mezei 之后,几种中子超镜的设计方法先后被提出,如 Hayter-Mook(H&M)算法^[10]以及 RSD(real-structure model)算法^[11]等,H&M 算法是考虑到膜层结构实际不连续性的优化设计方法,RSD 算法基于薄膜实际结构和生长规律,采用几个不同周期膜系的堆叠来代替原有的非周期结构的设计方法。在这几个设计方法中,以 Mezei 的方法最为简单而有效,应用最为广泛。本文针对 Mezei 算法设计出的膜层结构($m=2$, m 为超镜反射临界角与 N_i 块材料的全反射临界角的比值)对其添加帽层并进行改进,分别通过引入新的膜层结构和设计参数,克服了 Mezei 方法原有的缺陷,改善了中子超镜的反射率和极化率设计曲线。

1 中子多层膜极化超镜原理

中子在某一膜层材料中的折射率为

$$n = 1 - \lambda 2N b_t / 2\pi \quad (1)$$

式中: λ 为中子波长(本文采用 $\lambda=0.48$ nm); N 为原子数密度; b_t 为膜层材料的总散射长度。对于非磁性材料,可将相干散射长度视为总散射长度,而磁性材料对于中子的折射率包括核相互作用和磁相互作用两部分,即:

$$n = 1 - \lambda 2N(b \pm p) / 2\pi \quad (2)$$

$$p = 2\mu m_n M / \hbar^2 N \quad (3)$$

式中: b 为磁性材料的相干散射长度; p 为磁散射长度; m_n 为中子的质量; μ 为中子对于磁性材料原子的磁矩; M 为材料的磁化强度; \hbar 为普朗克常量。因此,磁性材料的总散射长度为相干散射长度和磁散射长度的相干叠加,对于上旋中子 $b_t = b + p$,下旋中子 $b_t = b - p$ 。

中子多层膜极化镜正是基于在磁场条件下,上下旋中子在铁磁性材料中的折射率不同,通过选择另一种合适的非磁性材料,使其对某一自旋态中子的折射率与铁磁性材料一致,对这一自旋态中子的反射率接近 0;而对另一自旋态中子有一定的折射率差异,产生较大的反射,从而实现两种自旋态中子的分离,得到极化中子。

2 多层膜材料选择

常用的薄膜材料中,基于散射长度密度的选材图见图 1(横坐标按原子数序数从小到大排序)。在非

磁性材料的选择上,Al 和 Si 的散射长度密度最接近,然而 Al 的化学性质活泼并且容易结晶,这给薄膜在镀制工艺上造成了很大的不便,并且由于透射式极化镜的基底多采用双抛 Si 片,因此非磁性材料选择 Si。磁性材料中,Ni 对上下旋的散射长度密度差异小,不是合适的选择。 Fe^- 即铁对下旋中子的散射长度密度,与 Si 接近,而 Fe^+ 与 Si 相差很大,为相对理想的磁性材料。然而 Fe 和 Si 对下旋中子的散射长度密度并不完全匹配,为了匹配散射长度密度,可在 Fe 中掺 Co (Fe 与 Co 的原子数比为 89:11),使 FeCo 合金层和 Si 层对下旋中子的散射长度密度非常接近,消除下旋中子的反射,提高极化率。对于下旋中子 Si 的散射长度密度可表示为

$$SLD_{Si} = SLD_{Fe89Co11} = SLD_{Fe} * 89\% + SLD_{Co} * 11\% \quad (4)$$

为了去除极化率的震荡,便于观察比较,本文绘制的极化率曲线采用以下公式计算

$$Pol = \left(\frac{R_{up} - R_{down}}{R_{up} + R_{down}} \right) * R_{up} \quad (5)$$

式中 R_{up} 和 R_{down} 分别为反射镜对上旋中子和下旋中子的反射率。

3 中子超薄膜层设计

3.1 Mezei 算法

Mezei 最早提出了中子超反射镜,他采用 $1/\sqrt[4]{k}$ 方法 (k 为膜对的序数) 设计并制备出了具有 37 个膜对的 Fe/Ag 中子极化超反射镜^[2],入射中子的波长为 0.67 nm。Mezei 算法设计的膜系结构,其第 k 个膜对的厚度

$$d_k = \frac{d_c}{\sqrt[4]{k}} \quad (6)$$

$$d_c = 1/2 \sqrt{\pi/\Delta\rho} \quad (7)$$

式中: d_c 为在全反射角位置产生 Bragg 峰的面间距; $\Delta\rho$ 为两种材料(本文是 FeCo 和 Si)的相干散射长度密度差。

使用 Mezei 算法设计,周期数 $N=38$, $m=2$ 的膜系结构,其上下旋中子的反射率以及极化率示于图 2,假设多层膜的膜层材料对中子无吸收,且具有理想光滑的表界面。在 $m=1$ 附近,反射率曲线出现明显的下降,这是由 Mezei 算法固有的缺陷造成的。为弥补这一缺陷,可在超镜的表面镀上一层厚的单层膜作为“帽层(capping layer)”,利用全反射原理,保证入射角小于于此帽层全反射临界角的入射中子被反射^[12]。

本文所有计算曲线均添加了 40 nm 的 FeCo 单层膜作为帽层,在顶部添加了 2 nm 的 Si 氧化保护层。为了防止因计算间隔过大导致的突变点,本文所有计算使用的步长均为 0.002° 。

添加帽层后,掠入射角在 $0.57^\circ \sim 0.59^\circ$ 范围,上旋中子的反射率并不理想。在以往的关于中子极化镜或者中子超镜的文章中,还没有人提出把这个“凹谷”去掉。为消除这个缺陷,使上旋中子反射率达到接近于 100%,本文介绍了两种解决方案。

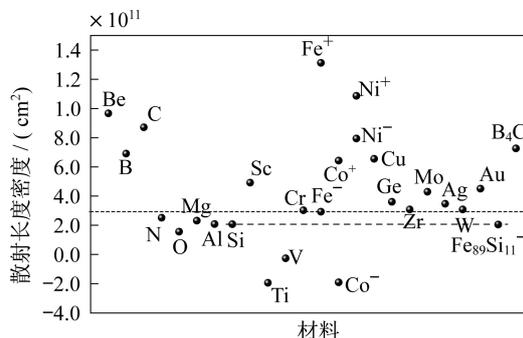


图 1 基于散射长度密度的选材图

Fig. 1 The scatter length density of various material

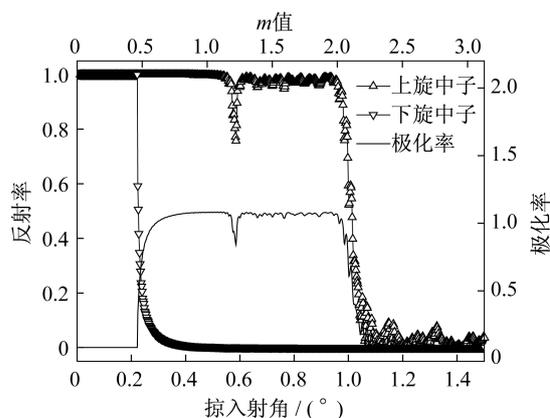


图 2 Mezei 算法设计的 FeCo-Si 极化超反射镜反射率和极化率的计算曲线

Fig. 2 Calculated reflectivity and polarization curves of FeCo-Si polarizing supermirror designed by Mezei

3.2 亚帽层法

多层膜可以看作是一维晶体。考虑到在晶面间距为 $D/2$ 的平行晶面,当入射光波在相邻平行晶面的反射光程差是波长的整数倍时,就会发生干涉相长,根据 Bragg 定律有

$$D * \sin\theta = k * \lambda \tag{8}$$

式中: D 为周期厚度; θ 为掠入射角; λ 为入射中子的波长。

基于这个原理,我们在超镜和帽层之间,添加一个具有适当周期厚度的膜对,使其对于入射中子,在入射角角度为 0.57° 至 0.59° 时具有较高的反射率。根据图 2 的设计结果,使用式(8),可以计算出,对于波长为 0.48 nm 的入射中子,峰值反射率出现在 $\theta=0.58^\circ$ 所对应的周期厚度为 47.4 nm 。

在 FeCo 和 Si 的厚度比为 1:1,即 γ 值为 0.5 时,上旋中子的反射率并不理想。为此,添加完“亚帽层”后,我们将 9 个不同 γ 值(FeCo 层厚度占周期厚度的比值)时的上旋中子反射率做了对比,结果示于图 3。结果表明,在 γ 值为 0.6,即 Si 层的厚度为 18.96 nm ,FeCo 层的厚度为 28.44 nm 时,反射率最佳。优化结果示于图 4。

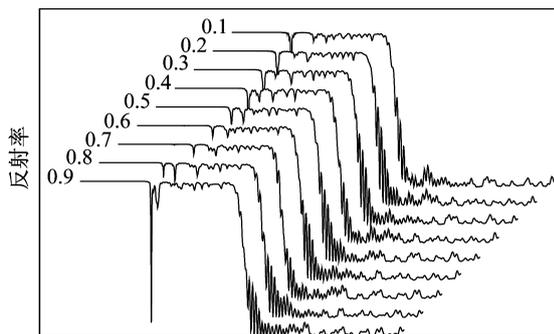


图 3 不同 γ 值对应的反射率计算曲线
Fig. 3 Calculated reflectivity curves with variable γ

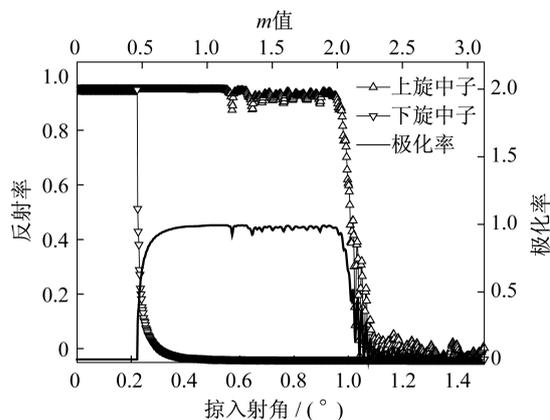


图 4 优化后的反射率和极化率计算曲线
Fig. 4 Calculated reflectivity and polarization after optimization

3.3 乘系数法

根据 Bragg 定律(见式(8)),干涉相长的条件是:当入射中子波长一定时,膜厚与掠入射角的正弦成反比。为了将 0.57° 至 0.59° 的缺陷去除,我们设计了另一种方法:根据 Mezei 算法的原理,以不同角度入射的相同波长的中子,在极化镜内部的不同膜层处满足 Bragg 定律,从而得到反射。因此,Mezei 算法设计得到的极化镜结构所产生的反射率“凹谷”是由于缺乏相应厚度的膜层造成的。另外,由于“凹谷”出现在小角度区域,可以知道缺少的是较厚的膜层,因此如果将 Mezei 算法所得的极化镜膜层的厚度膜厚都乘以大于 1 的系数,使得膜系结构整体变厚,从而使得在小角度范围也可以满足 Bragg 定律,实现反射率曲线的整体“左移”,可消除添加帽层后在 0.57° 至 0.59° 处的反射率下降。

以膜对数 $N=45$ 为例,膜系结构乘以系数前后的上旋中子反射率对比示于图 5。 $D * 1.03$ 表示将膜系结构的每层厚度均乘以 1.03。在乘数系数 1.15 以内,随着乘数系数的增加,上旋中子的反射率逐渐完善。优化后的结果示于图 6。

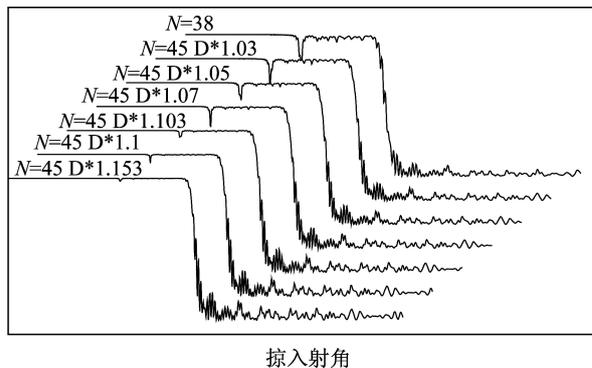


图 5 不同乘数系数对应的反射率计算曲线
Fig. 5 Calculated reflectivity curves with variable multiplier factor

4 结 论

本文基于 Mezei 算法设计出的膜层结构($m=2$),对其添加帽层(40 nm FeCo+2 nm Si 保护层)并进行优化,通过亚帽层法和乘系数法,对其上旋中子反射率和极化率进行优化。通过计算和分析发现,在亚帽层法中,所添加膜层的 γ 值为 0.6 时,达到最优效果;在乘系数中,在一定范围内系数越大,上旋中子的反射率相对越理想。

两种方法使用相同膜对数 N 所能达到的 m 值的对比见图 7(乘系数法以系数 1.15 为例)。结果表明,为达到相同的 m 值,乘系数法需要更多膜对,且随着 m 值或者乘系数系数的增加,所需膜对数大大增加。因此,亚帽层法为最佳方法。

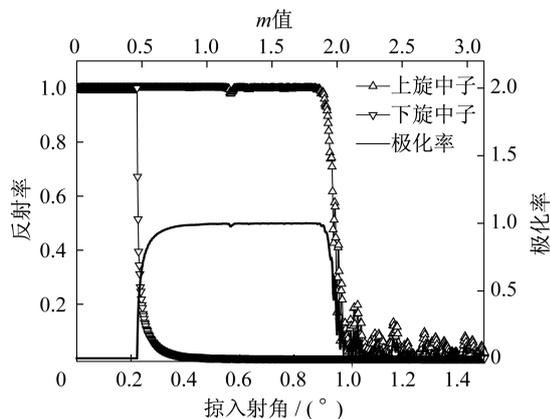


图 6 优化后的反射率和极化率计算曲线

Fig. 6 Calculated reflectivity and polarization after optimization

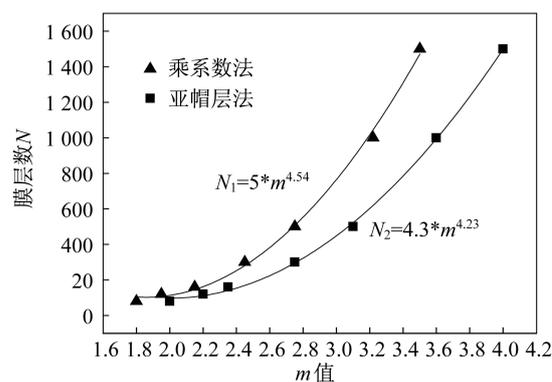


图 7 两种方法膜对数 N 与 m 值的对比

Fig. 7 Comparison of both methods for the number of layers and the value m

参考文献:

- [1] SCHOENBORN B P, Caspar D L D, Kammerer O F. A novel neutron monochromator[J]. Journal of Applied Crystallography, 1974, 7 (5): 508-510.
- [2] MEZEI F. Novel polarized neutron devices: supermirror and spin component amplifier[J]. Communications on Physics, 1976, 1(3): 81-85.
- [3] MEZEI F, Dagleish P A. Corrigendum and first experimental evidence on neutron supermirrors[J]. Communications on Physics, 1977, 2(2): 41-43.
- [4] KRIST T, TEICHERT A, KOVACS-MEIEI R, et al. Neutron supermirror development[M]. New York: Springer, 2007: 335-370.
- [5] ZHANG Z, LIANG Y, LI W B, et al. Stress evolution in B_4C and Cr mono-layer and B_4C/Cr multilayer films with variable layer thicknesses for neutron detectors[J]. Thin Solid Films, 2013, 531: 302-305.
- [6] MAAZA M, Spigel M, Sella C, et al. Thermal stability of Co-Ti multilayered neutron polarizers[J]. Solid State Communications, 1999, 112(3): 177-181.
- [7] Høghøj P, Anderson I, Siebrecht R, et al. Neutron polarizing Fe/Si mirrors at ILL[J]. Physica B: Condensed Matter, 1999, 267: 355-359.
- [8] Schärpf O. Comparison of theoretical and experimental behaviour of supermirrors and discussion of limitations[J]. Physica B: Condensed Matter, 1989, 156: 631-638.
- [9] STAHN J, CLEMENS D. A remanent Fe/Si supermirror transmission polarizer[J]. Applied Physics A, 2002, 74(1): 1532-1534.
- [10] HAYTER J B, MOOK H A. Discrete thin-film multilayer design for X-ray and neutron supermirrors[J]. Journal of Applied Crystallography, 1989, 22(1): 35-41.
- [11] PKESHANOV N K. Algorithm for the real-structure design of neutron supermirrors[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, 2004, 524(1/2/3): 273-286.
- [12] 张众, 王占山, 吴永荣, 等. 中子超镜的优化设计[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(1): 84-88.

(编辑:程爱婕)