

软X射线光子关联谱装置设计

屈斯诗^{1,2,4} 郭 智^{1,3} 邵仁忠^{1,3} 张祥志^{1,3} 刘海岗^{1,3} 于怀娜^{1,3}

1(中国科学院上海应用物理研究所 上海 201800)

2(中国科学院大学 北京 100049)

3(中国科学院上海高等研究院 上海 201210)

4(上海科技大学 上海 201210)

摘要 X射线光子关联谱技术(X-ray Photon Correlation Spectroscopy, XPCS)是一种利用相干X光散射的二次相干,研究凝聚态物质在小尺度范围弛豫动力学的新技术,对入射光的相干性有较高要求。上海同步辐射光源BL08U干涉光刻分支线站(X-ray Interference Lithograph, XIL)采用椭圆偏振波荡器作为光源,具有很好的相干性,光子通量高,适合铁电体、磁性材料中介观尺度电极性或磁性微区的动力学研究。由此设计一套基于软X射线的光子关联谱装置,采用软X射线为入射相干光,对二次相干光采集、转换、放大处理之后进行自相关运算。该装置测量的样品周期尺度范围为10~60 nm。该装置的研制设计为更好地分析材料动力学信息提供了一种技术途径,是硬X射线的有效补充。

关键词 软X射线, 光子关联谱, 强度关联, 动力学

中图分类号 O434.19, O4-34

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2019.hjs.42.040103

Design of soft X-ray photon correlation spectroscopy device

QU Sishi^{1,2,4} GUO Zhi^{1,3} TAI Renzhong^{1,3} ZHANG Xiangzhi^{1,3} LIU Haigang^{1,3} YU Huaina^{1,3}

1(Shanghai Institute of Applied Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

2(University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

3(Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201210, China)

4(ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China)

Abstract [Background] X-ray photon correlation spectroscopy (XPCS) is a new technique for studying the small-scale relaxation dynamics of condensed matter by using the second order coherence of coherent X-ray scattering. It requires high coherence of incident light. The X-ray interference lithograph (XIL) beamline (BL08U) of Shanghai Synchrotron Radiation Facility (SSRF) uses elliptical polarization oscillator as light source, which has good coherence and high photon flux. It is suitable for the dynamics study of mesoscopic scale electrodes or magnetic micro-regions in ferroelectric and magnetic materials. [Purpose] This study aims to design a set of photon correlation spectroscopy equipment based on soft X-ray. [Methods] Soft X-ray from XIL of SSRF is used as coherent incident

国家自然科学基金面上项目(No.11575284)、国家自然科学基金重点项目(No.51332002)、大科学装置科学研究联合基金重点项目(No.U1732268)、国家重点研发计划(No.2016YFB0700404)资助

第一作者: 屈斯诗, 女, 1995年出生, 2012年毕业于湖北科技学院, 现为硕士研究生, 研究领域为核能科学与工程

通信作者: 郭智, E-mail: guozhi@sinap.ac.cn; 邵仁忠, E-mail: tairenzhong@sinap.ac.cn

收稿日期: 2019-01-19, 修回日期: 2019-02-23

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.11575284), the Key Projects of National Natural Science Foundation of China (No.51332002), the Key Projects of the Joint Fund for Scientific Research of Large Scientific Installations (No.U1732268), National Key R&D Program (No.2016YFB0700404)

First author: QU Sishi, female, born in 1995, graduated from Hubei University of Science and Technology in 2012, master student, focusing on nuclear energy science and engineering

Corresponding author: GUO Zhi, E-mail: guozhi@sinap.ac.cn; TAI Renzhong, E-mail: tairenzhong@sinap.ac.cn

Received date: 2019-01-19, revised date: 2019-02-23

beam, and the secondary coherent light is collected, converted and amplified to perform autocorrelation operation. The effects of incident light energy and scattering angle on the scattering vector and period size of sample are discussed. **[Results]** When the spectral range is 90.5~93 eV and the hole diameter is 1 mm, the periodic scales of samples at different positions are 10~60 nm. The second-order correlation intensity function of detector arc region is deduced by using Gauss model, and it is used as a function of detection area, photon energy and time. The multiplicative noise of autocorrelation is suppressed by multilayer film polarization extinction. **[Conclusion]** The development of this device provides a technical approach for better analysis of material dynamics information, and is of great significance.

Key words Soft X-ray, Photon correlation spectroscopy, Intensity correlation, Dynamics

光子关联谱技术 (Photon Correlation Spectroscopy, PCS) 的入射光源分为可见光和 X 射线。可见光 PCS 常应用于颗粒扩散动力学。通过自行搭建的 He-Ne 激光光子关联谱装置, 本课题组首次观测到了 BaTiO₃ 等铁电体单晶中极化团簇在相变点附近的弛豫过程, 极化团簇弛豫时间 20~100 μ s^[1]。并得出 BaTiO₃ 单晶中极化团簇的临界温度 $T_c=399$ K。图 1 显示在 396~402 K 之间, 光强自相关函数 $g^{(2)}(\tau)$ 的数据点在小于 10^{-2} ms 区域出现涨落, 随温度上升涨落越来越剧烈, T_c 处达到极大值, 整体上表现为类似于 e 指数衰减的弛豫过程^[2]。

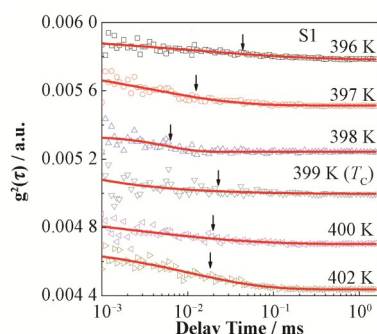


图1 BaTiO₃极化团簇长程涨落的光强自相关函数的PCS实验结果, 温度范围为396~402 K

Fig.1 The PCS experimental results of light intensity autocorrelation function for the long range fluctuation of polarization clusters of BaTiO₃, temperature range 396~402 K

X 射线光子关联谱技术 (X-ray Photon Correlation Spectroscopy, XPCS) 是一种利用相干 X 光散射的二次相干研究凝聚态物质在小尺度 (1~100 nm) 弛豫动力学的一种新技术。一般 XPCS 技术可以探测在散射矢量 q 从 10^{-4} ~ 10^{-1} nm⁻¹ 范围内低频 (10^7 ~ 10^{-3} Hz) 的动力学性能, 这取决于样品和散射的几何条件^[3]。XPCS 技术 (时间尺度 10^{-7} ~ 10^3 s) 是中子散射技术 (10^{-14} ~ 10^{-7} s) 的有效补充, 所用光源包括 X 射线激光、相干同步辐射 X 射线和 X 射线自由电子激光。X 射线激光 PCS 具有光源全相干、高简并度和单脉冲光子通量高等特点, 可应用于研究

偶极子 ps 量级弛豫过程, 但为单一能量。Namikawa^[4]用双脉冲软 X 射线激光的方法来研究 BaTiO₃ 中极化团簇中偶极矩的弛豫时间, 测量散斑强度的时间相关性, 研究了居里温度附近偶极矩弛豫时间的演化, 发现了最大弛豫时间 (约 90 ps) 出现在 T_c 以上 4.5 K 的地方, 在该温度团簇极化达到最大。同步辐射 XPCS 具有波长连续可调 (0.06~20 nm)、光子通量高等优势, 能够研究非透明材料更小尺度的动力学过程, 应用于磁畴、超导材料等的微观动力学过程研究。Chen 等^[5]在美国先进光源 (Advanced Light Source, ALS) 利用共振磁的 XPCS 观测钇镓钪三层薄膜为样品的磁场起伏, 发现在反铁磁畴动力学中表现出时间依赖性波动及与干扰行为相关的普遍特征。自由电子激光 XPCS 具有全相干、高脉冲光子通量 (10^{12} /pulse) 和能量可调等特点, 已在美国直线加速器相干光源 (Linac Coherent Light Source, LCLS)、欧洲 X 射线自由电子激光装置 (European X-ray Free Electron Laser, EXFEL) 等自由电子激光装置上开始尝试。Carnis 等^[6]在 LCLS 装置上论证了硬 X 射线自由电子激光可以探测在时间尺度为 s 到 ms 范围的软性物质的经典动力学。Chu 等^[7]第一次通过同步辐射 XPCS 实验论证了聚合物、混合物或胶体体系中微观结构运动的可行性; Shpyrko^[8]将光子相关技术与散斑结合开展了对铁磁材料中反铁磁畴临界波动的研究, 得出了反铁磁畴的空间结构、弛豫行为和温度之间的关系; Ehrburger-Dolle^[9]结合 XPCS 利用零差法和外差法分析了填充弹性体的损伤问题; Begam^[10]利用 XPCS 技术研究在高粘性的聚合物基体上的聚合物纳米胶体, 发现了在远高于基体温度 T_g 时经过聚合物纳米胶体的有效粘度剧烈减小。

XPCS 实验对入射光的相干性有较高要求, 目前国外同步辐射光源已开展 XPCS 实验, 如欧洲同步辐射光源 (European Synchrotron Radiation Facility, ESRF) ID10、德国电子同步加速器 (Deutsches Elektronen Synchrotron, DESY) I11 等, 大

部分线站以硬X射线作入射光源。上海同步辐射光源干涉光刻分支线站采用椭圆偏振波荡器作为光源^[11]，具有很好的相干性，相干度达94%，样品点相干长度达3.8 mm，远高于硬X射线光束线，接近全相干光，适合开展XPCS研究，波长尺度8~15 nm，对铁电体、磁性材料中介观尺度电极性或磁性微区的动力学研究非常合适，光子通量达 10^{13} s^{-1} 2.5%BW@92.5 eV，是硬X射线PCS的有效补充。

1 X射线光子关联谱装置设计原理

光子关联谱技术的基本原理是一束相干光从无序系统中散射形成散斑，当这种无序的空间排列随时间变化时散斑的图样也会发生变化，散斑的强度起伏可以提供相应的动力学信息，由此可通过散射光子之间的时间相关性来探讨被测物质的动力学特性。X射线光子关联谱技术是将入射光设置为X射线，如图2所示，通过与研究材料内部粒子的布朗运动、电极性或磁性微区的周期涨落等相互作用，发生弹性散射，散射光信号经由探测器采集以散斑的形式体现，对固定散射矢量处的强度涨落进行关联运算，可得到研究对象的弛豫时间等微观动力学信息。

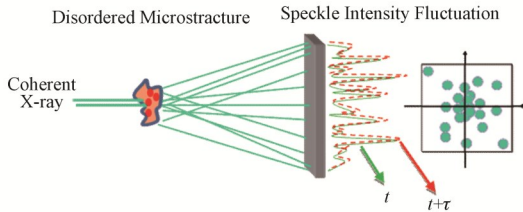


图2 XPCS基本原理示意图
Fig.2 Schematic diagram of basic principles of XPCS

为了便于数据的处理和分析，需要进行光信号与电信号的转换，通过电场强度的自相关分析光强的自相关函数^[12]。

已知强度谱 $I(\omega)$ 是电场 $E(\omega)$ 的平方：

$$I(\omega) = |E(\omega)|^2 = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E^*(t) E(t') e^{-i\omega(t-t')} dt dt' \\ = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E^*(t) E(t+\tau) e^{i\omega\tau} dt d\tau \quad (1)$$

$E^*(t) E(t+\tau)$ 的平均值与 t 独立，所以在有限时间间隔内的电场相关函数可被定义为：

$$\langle E^*(t) E(t+\tau) \rangle = \frac{1}{T} \int_{-T/2}^{T/2} E^* E(t+\tau) d\tau \quad (2)$$

其中： T 是非常大的有限时间。将式(2)代入式(1)并由维纳—辛钦定理可得：

$$I(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \langle E^*(t) E(t+\tau) \rangle e^{i\omega\tau} d\tau \quad (3)$$

利用傅里叶变换函数可得：

$$F(\omega) = \frac{|E(\omega)|^2}{\int_{-\infty}^{\infty} |E(\omega)|^2 d\omega} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} g^{(1)}(\tau) e^{i\omega\tau} d\tau \quad (4)$$

这也定义了一阶归一化函数：

$$g^{(1)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t) E(t+\tau) \rangle}{\langle E^*(t) E(t) \rangle} \quad (5)$$

该一阶归一化函数 $g^{(1)}(\tau)$ 为电场强度函数，通常一阶相干是指电场中的干涉效应，而光强涨落谱依赖于散射光的二阶相干性：

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle I(t) I(t+\tau) \rangle}{\langle I(t) \rangle^2} \quad (6)$$

其中利用高斯随机变量的分解规则可知：

$$\langle I(t) \rangle = \langle I \rangle \quad (7)$$

$$\langle I(t) I(t+\tau) \rangle = \langle I \rangle^2 [1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2] \quad (8)$$

将式(7)与式(8)代入式(6)中可得：

$$g^{(2)}(\tau) = 1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2 \quad (9)$$

其中：相干因子 β 为当延迟时间为0时的二阶函数的强度截距，其值在0~1之间变化， $g^{(1)}(\tau)$ 为上述归一化的一阶函数。

若考虑到背底噪音，则光强自相关函数与电场自相关函数满足以下关系：

$$g^{(2)}(\tau) = \gamma (1 + \beta |g^{(1)}(\tau)|^2) \quad (10)$$

其中： γ 为基线常量(背底噪音)，相干因子 β 反映了大于一个相干体积的衍射区域散射引起的拖尾现象。可以把 β 看成是衍射体积中相干体积的数目， β 通常由入射光的截面特性和探测器所能接收到的散射矢量范围所决定，其值在0.5~0.9。根据二阶相干函数即光强自相关函数 $g^{(2)}(\tau)$ 与时间进行相关分析，可以得到样品平衡临界涨落、无序系统中的非平衡动力学或相变附近的动力学信息。

上海同步辐射光源软X射线光刻分支(X-ray Interference Lithograph, XIL)线站狭缝处光源的相干长度为0.2 mm，样品点相干长度达3.8 mm，狭缝边缘处与狭缝中心的相干系数是0.98，可以近似看作是完全相干光^[13]。图3为XIL光束线站总图，其中XPCS实验装置预计安装在虚线位置，实体图如图3所示。

2 X射线光子关联谱装置系统构成

在XIL线站搭建的软X射线光子关联谱的装置构成如图4所示。相干X射线入射到样品上，动态散射光信号经由固定角度的微通道板

(Microchannel Plate, MCP)探测器采集,并进行光电转换,通过外连放大器放大电信号,转换器转换输出脉冲的型号使之与数字关联仪的输入信号匹配,数字关联仪用来进行自相关运算得到散射光强自相关函数,最后数据处理之后可从散射光强自相关函数得到样品的相应动力学信息。具体可分为二次相干光信号的采集、信号的转换、放大与关联运算处理两个部分。

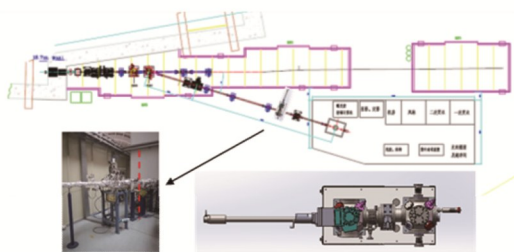


图3 XIL光束线站总图
Fig.3 Layout of XIL beam line

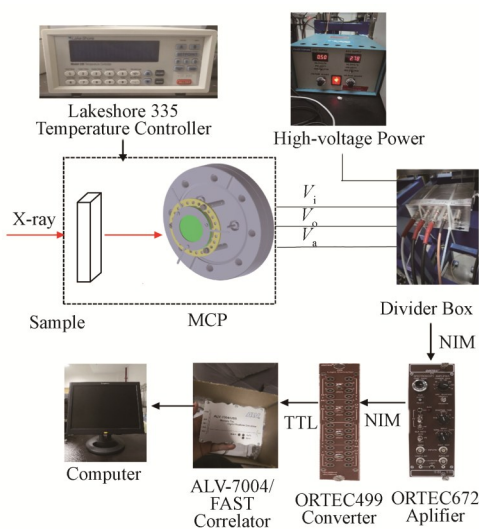


图4 XPCS信号采集、放大和关联运算系统示意图
Fig.4 The schematic diagram of XPCS signal acquisition, amplification and correlation operation

2.1 二次相干光信号的采集

图5(a)为软XPCS装置腔体图,软X射线如图5(a)所示垂直实验腔中心入射。为了保证实验的真空环境,在进样前先打开分子泵和离子泵抽真空,进样腔内真空度约为 1.33×10^{-4} Pa,实验腔内真空度约为 6.65×10^{-8} Pa,进样腔和实验腔由闸板阀控制连通和隔断,样品准备好后放入进样腔,操纵磁力杆将样品传递到实验腔,关闭闸板阀,待真空抽至 1×10^{-7} Pa以上可开启光子光闸和实验腔体进出光路真空阀门,进行实验。图5(b)为实验腔内部图,MCP探测器垂直入射光放置,直径为33 mm,样品与MCP中

心的垂直距离为27.68 mm。MCP探测器前设计一个可替换弧形开孔挡板,挡板材料为厚度0.2 mm的Kapton膜,利用不同弧径选择探测器的接收范围,图示中弧形开孔直径为1 mm。样品台可通过附近的接线端子用来连接电机控制旋转角度。另外还有接线端子连接温控仪,Lakeshore 335温控仪为双通道温度控制器,总功率75 W,双通道加热器功率可设为50 W和25 W、或75 W和1 W,可实现从室温到500 K左右的温控要求。

相干X射线入射方式有透射和反射两种模式,如图6所示。透射模式时软X光垂直入射样品;反射模式时通过样品台旋转电机调节入射角。

2.2 信号的转换、放大和关联运算

样品散射后的动态散射光信号由MCP探测器(型号 tectra MCP33-Z-R-A-F)采集,MCP体积小、重量轻、分辨力好且噪声低(约在 10^{-16} A量级),符合装置的设计要求。MCP的工作原理基于光电效应,如图7所示,在MCP片前极板和后极板之间加电压,造成的电势梯度形成电场,当入射光子通过输入端进入MCP时,与MCP内壁发生撞击产生次级电子,这些次级电子被通道内的电场加速再次与内壁相撞,再次产生并发射次级电子,入射光子不断地在微通道板内部撞击加速,直到输出端,因此MCP探测器不但具有传输带电粒子的作用,同时还有增强放大电信号的功能。

MCP探测器通过恒流高压电源提供高压,分压盒有4个输入端,一个输出端,其中一个输入端与高压电源连接,另外三个输入端分别与MCP的三个接线端相连,为三个极板提供输入电压。MCP前极板 V_i 所需电压为-2 700 V,后极板 V_o 所需电压为-200 V,阳极板 V_a 需要-50 V的电压。

分压盒的输出端连接ORTEC 672放大器的输入端,经由MCP探测器采集的散射光信号模式为核仪表组件(Nuclear Instrument Module, NIM),量级为毫伏通过放大器放大至伏。

ORTEC 672放大器适合各种类型探测器的高性能能谱分析,输入信号为NIM,输出电压范围为0~+10 V,输出脉冲型号为NIM。

ORTEC 499转换器实现NIM/TTL(Transistor-Transistor Logic,晶体管-晶体管逻辑电路)两种脉冲信号的相互转换,当输入信号为TTL时输出的NIM脉冲最低电压为800 mV;当输入NIM信号时其输出TTL脉冲的电压最低为+2 V。

ORTEC 672放大器的输出端与ORTEC 499转换器的NIM信号输入端相连,输出端信号为TTL,从NIM到TTL的最大工作频率是60 MHz,输出为

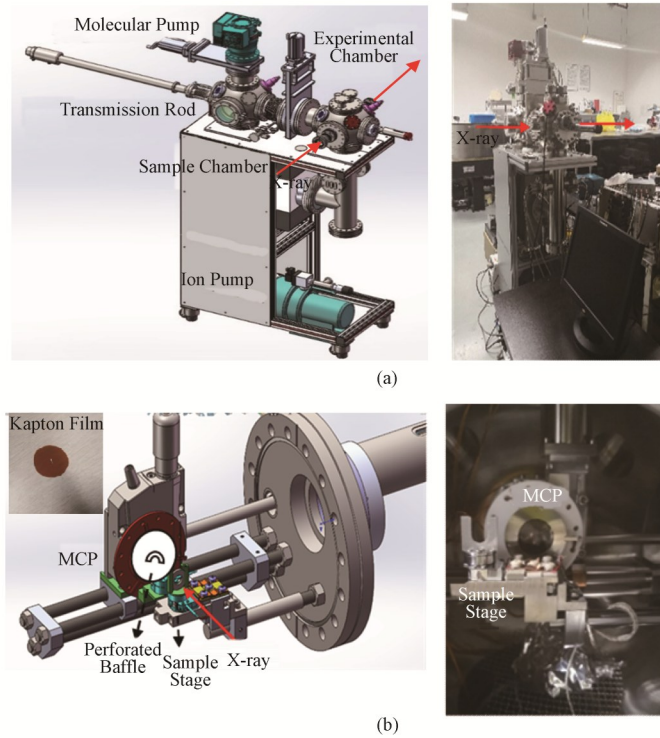


图5 XPCS样品台和数据采集系统 (a) XPCS装置总图,(b) XPCS装置实验腔内部图

Fig.5 Sample stage and data acquisition system of XPCS

(a) General drawing of XPCS device, (b) Internal cavity of XPCS device chamber

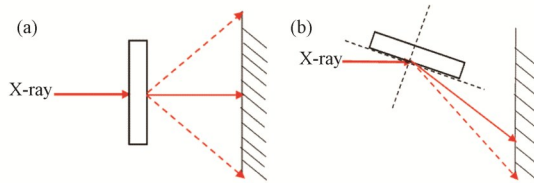


图6 X射线的两种入射方式 (a) 透射式,(b) 反射式

Fig.6 Two incidence modes of X-ray
(a) Transmission-type, (b) Reflection-type

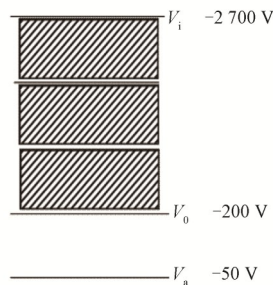


图7 MCP接线原理图

Fig.7 Wiring schematic diagram of MCP

直流耦合,输出阻抗为50 W。

数字关联仪 ALV-7004/FAST 输入信号为 TTL/LVTTL,输入脉冲电压为+2~+5 V,输出通道4×16/8,可对同一种输入信号进行多通道的自相关运算,

最小采样间隔3.125 ns。

3 X射线光子关联谱装置的讨论

3.1 影响散射矢量的因素

根据散射矢量 q 与散射角 θ 、入射波长 λ 之间的关系式 $q = 4\pi \sin(\frac{\theta}{2})/\lambda$, 样品周期尺寸 D 与散射矢量 q 的关系式 $D = \frac{2\pi}{q}$, 可知影响散射矢量和周期尺寸的因素主要为入射波长 λ 和散射角 θ 。利用 Kapton 膜选择散射矢量,通过变换小孔的位置和孔径选择采集信号的散射角。

图8(a)绘制了当X射线反射式入射时,若光能量为92.5 eV,且假定偏转角为34.9 mrad时,散射矢量与样品周期尺寸随探测器上不同位置的变化图,此时样品周期尺寸的范围为11~53 nm。图8(b)为入射光能谱,中心能量92.5 eV,图8(c)为样品周期尺寸随接收孔径位置(和中心点 $q=0$ 距离)和入射光能量的变化,能量范围为图8(b)半高宽范围90.5~93 eV,接收孔直径1 mm,此时的样品周期尺寸范围为10~60 nm。

在不考虑背底噪音的情况下,利用具有代表性光束一高斯分布型的动态光散射来讨论弧形小孔与

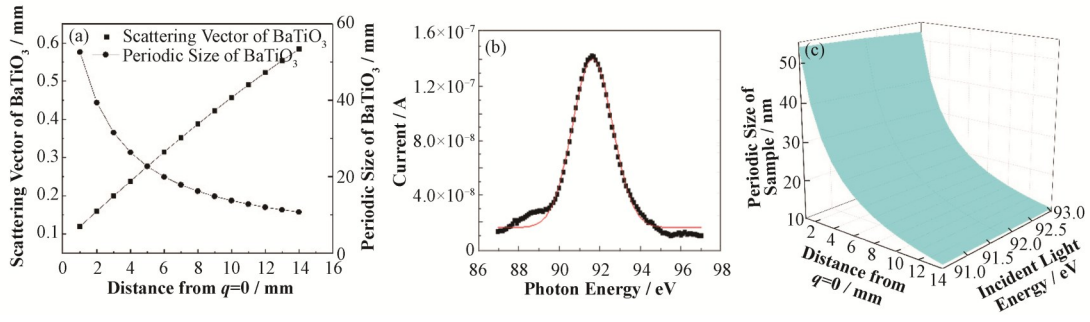


图8 不同入射X光能量与不同位置对散射矢量及样品周期尺寸的影响

(a) 入射光能量为92.5 eV时散射矢量与样品周期尺寸随探测器上不同位置的变化, (b) 光子能量为92.5 eV时单色仪测定的能谱, (c) 样品周期尺寸随接收孔径位置(和中心点 $q=0$ 距离)和入射光能量的变化, 能量范围90.5~93 eV, 接收孔直径1 mm

Fig.8 The effect of different incident X-ray energy and location on scattering vector and periodic size of sample

(a) The variation of scattering vector and sample periodic size with different positions on the detector when the incident light energy is 92.5 eV, (b) Spectrum determined by monochromator when photon energy is 92.5 eV, (c) The periodic size of the sample varies with the position of the receiving aperture (distance from the center point $q=0$) and the energy of incident light. The energy range is 90.5~93 eV, and the receiving pinhole diameter is 1 mm

强度相关函数的联系。此时散射粒子在空间上类似于具有二维高斯强度分布的随机相位源^[14]。

二维高斯强度分布:

$$u_s(x, y) = u_0 \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{R^2}\right] \exp[i\theta(x, y)] \quad (11)$$

傅里叶转换后:

$$u_f(q_x, q_y) = u_0 \iint \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{R^2} + i\theta(x, y) - iq_x x - iq_y y\right] dx dy \quad (12)$$

在远场进行空间振幅相关运算:

$$\begin{aligned} [u_f(q_x, q_y) u_f^*(q_x + \delta q_x, q_y + \delta q_y)] &= u_0^2 \iiint \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{R^2} - iq_x x - iq_y y\right] \times \exp\left[-\frac{x'^2 + y'^2}{R^2} + \right. \\ &\quad \left. i(q_x + \delta q_x)x' + i(q_y + \delta q_y)y'\right] \times \langle \exp[i\theta(x, y) - i\theta(x', y')] \rangle dx dy dx' dy' \\ &= u_0^2 \iiint \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{R^2} - \frac{x'^2 + y'^2}{R^2}\right] \times \exp[-iq_x x - iq_y y + i(q_x + \delta q_x)x' + \\ &\quad i(q_y + \delta q_y)y'] \times \delta(x - x') \delta(y - y') dx dx' dy dy' \\ &= u_0^2 \iint \exp\left[-\frac{x^2 + y^2}{R^2} - \frac{x'^2 + y'^2}{R^2}\right] \times \exp[-i\delta q_x x - i\delta q_y y] dx dy \end{aligned} \quad (13)$$

在极坐标系中, 如图9所示。

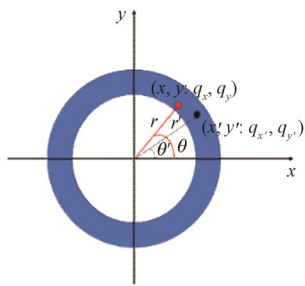


图9 弧形圆孔极坐标示意图

Fig.9 Polar coordinate sketch of arc circular hole

$$x = r \cos \theta \quad (14)$$

$$y = r \sin \theta \quad (15)$$

则式(13)为:

$$[u_f(q_x, q_y) u_f^*(q_x + \delta q_x, q_y + \delta q_y)] =$$

$$u_0^2 \iint \exp\left[-\frac{r^2 + r'^2}{R^2}\right] \times \exp[-i\delta q_x r \cos \theta - i\delta q_y r \sin \theta] r dr d\theta \quad (16)$$

当 $\delta q_x = \delta q_y = 0$ 时, 上述积分等于平均强度, 即:

$$\langle I_f \rangle = u_0^2 \iint r \exp\left[-\frac{r^2 + r'^2}{R^2}\right] dr d\theta \quad (17)$$

将空间振幅相关推广至时空相关后的强度相关函数为:

$$\begin{aligned} G_u(\delta q_x, \delta q_y, \tau) &= \langle u_f(q_x, q_y, t) u_f^*(q_x + \delta q_x, q_y + \delta q_y, t + \tau) \rangle \\ &= \langle I_f \rangle \iint \exp(-i\delta q_x \cos \theta - i\delta q_y \sin \theta) r dr d\theta \chi(t) \end{aligned} \quad (18)$$

其中: $\chi(t)$ 为归一化的时间相关函数, 则:

$$\chi(t) = \frac{G_u(t)}{\langle I_f \rangle} \quad (19)$$

包含空间相关性的 Siegert 关系为：

$$\begin{aligned}
 G_I(\delta q_x, \delta q_y, t) &= G_u(0, 0, 0)^2 + |G_u(\delta q_x, \delta q_y, t)|^2 \\
 &= \langle I_f \rangle^2 \{ (\iint \text{drd}\theta)^2 + \\
 &\quad [\iint \exp(-i\delta q_x \cos\theta - i\delta q_y \sin\theta) r \text{drd}\theta]^2 \} |\chi(t)|^2 \\
 &= \langle I_f \rangle^2 \{ (r\theta + C)^2 + [\iint \exp(-i\delta q_x \cos\theta - \\
 &\quad i\delta q_y \sin\theta) r \text{drd}\theta]^2 \} |\chi(t)|^2 \\
 &= \langle I_f \rangle^2 (r\theta + C)^2 \{ 1 + \\
 &\quad \frac{[\iint \exp(-i\delta q_x \cos\theta - i\delta q_y \sin\theta) r \text{drd}\theta]^2}{(r\theta + C)^2} \} |\chi(t)|^2
 \end{aligned} \quad (20)$$

对 δq_x 和 δq_y 积分：

$$\iint \left\{ \frac{[\iint \exp(-i\delta q_x \cos\theta - i\delta q_y \sin\theta) r \text{drd}\theta]^2}{(r\theta + C)^2} \right\} \text{d}q_x \text{d}q_y \quad (21)$$

二阶相关函数为：

$$G_2(t) = \langle I \rangle^2 \{ 1 + \beta |\chi(t)|^2 \} \quad (22)$$

其中：

$$\langle I \rangle^2 = \langle I_f \rangle^2 (r\theta + C)^2 \quad (23)$$

$\beta =$

$$\iint \left\{ \frac{[\iint \exp(-i\delta q_x \cos\theta - i\delta q_y \sin\theta) r \text{drd}\theta]^2}{(r\theta + C)^2} \right\} \text{d}q_x \text{d}q_y \quad (24)$$

式中： r 、 θ 分别为极坐标中的极径与极角； C 为常数。相干因子 β 与接受范围及散射矢量有关。

由关系式：

$$g_2(t) = \frac{G_2(t)}{\langle I \rangle^2} \quad (25)$$

综合式(22)可得归一化的二阶强度相关函数为：

$$g_2(t) = 1 + \beta |\chi(t)|^2 \quad (26)$$

式(26)表明当探测区域为弧形时，二阶相关函数 $g_2(t)$ 与一阶自相关函数 $\chi(t)$ 的函数关系。

3.2 噪音抑制

该装置系统使用单探测器，信号作自相关运算，因此被探测器采集的噪声信号属于乘性噪声，如何有效的抑制噪声是十分重要的问题。设 $X(t)$ 为探测器总的输出信号，其中应该包含团簇的信号 $S(t)$ 和本身的暗电流噪声 $N(t)$ ，即：

$$X(t) = S(t) + N(t) \quad (27)$$

关联仪输出的自相关函数为：

$$\begin{aligned}
 R_{XX}(t_1, t_2) &= E[X(t_1)X(t_2)] = R_{SS}(t_1, t_2) + \\
 &\quad R_{SN}(t_1, t_2) + R_{NS}(t_1, t_2) + R_{NN}(t_1, t_2) \\
 &= R_{SS}(t_1, t_2) + R_{NN}(t_1, t_2)
 \end{aligned} \quad (28)$$

一般对噪声的抑制可采用增大入射光强和偏振片消光的方法。上海同步辐射光源椭圆极化波荡器可辐射完全线偏振光，因此不需要通过起偏器获取线偏振光，用多层膜可实现偏振消光和抑制噪声，如图10所示，在样品台下游转台用于固定多层膜。偏振消光的原理为当以入射光 I_0 为轴旋转检偏器的方位角 α ，利用MCP探测器探测通过多层膜之后的出射光强。在多层膜的方位角 α 旋转 360° 的过程中出现出射光强 $I=0$ 和 I 极大的两个不同位置，当 $I=0$ 时实现了消光需求。

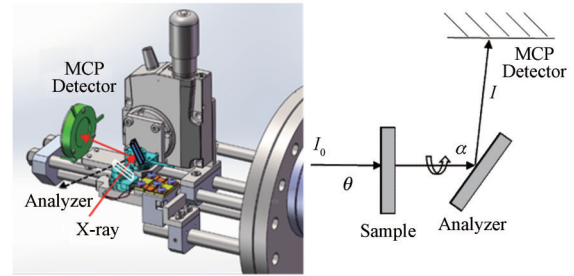


图10 偏振装置及其消光原理示意图
Fig.10 Schematic diagram of polarization device and its extinction principle

4 结语

本文设计一套基于上海光源软X射线的光子关联谱装置，对该装置实验原理、所选仪器及系统流程进行了介绍，针对实验条件进行分析与计算并得到以下结论：

1) 软X射线PCS实验中影响样品散射矢量、周期尺寸的因素为入射光能量与散射角通过理论计算得到在能谱范围(90.5~93 eV)，接收孔直径1 mm时不同位置的样品尺度范围，为10~60 nm。为研究样品提供了尺度区间，如铁电体中的极性区域、铁磁体中的磁性微区等材料中的弛豫过程。

2) 利用高斯模型推导了探测器弧形范围内二阶相关强度函数与探测器探测范围、光子能量及时间的函数关系，为后续实验数据处理提供了一种新的可能性方法。

3) 考虑自相关的乘性噪声，采用多层膜偏振消光进行抑制，为未来优化系统结构及噪声处理提供参考。

参考文献

- 1 Zhang M, Guo Z, Tai R, et al. Observation of dual

- relaxation dynamics of polarization clusters in barium titanate by photon correlation spectroscopy[J]. Japanese Journal of Applied Physics, 2015, **54**(4): 042401. DOI: 10.7567/JJAP.54.042401.
- 2 张明俊, 郭智, 邵仁忠, 等. 铁电体中极化团簇长程涨落的光子关联谱实验研究[J]. 物理学报, 2015, **64**(14): 147801. DOI: 10.7498/aps.64.147801.
ZHANG Mingjun, GUO Zhi, TAI Renzhong, *et al.* The study on photon correlation spectra of long-range fluctuations of polarized clusters in ferroelectrics[J]. Acta Physica Sinica, 2015, **64**(14): 147801. DOI: 10.7498/aps.64.147801.
- 3 Grübel G, Madsen A, Robert A. X-ray photon correlation spectroscopy (XPCS) [M]. Berlin: Springer Netherland, 2008: 954–955. DOI: 10.1107/S1600577514018232.
- 4 Namikawa K, Kishimoto M, Nasu K, *et al.* Direct observation of the critical relaxation of polarization clusters in BaTiO₃ using a pulsed X-ray laser technique [J]. Physical Review Letters, 2009, **103**(19): 179401. DOI: 10.1103/PhysRevLett.103.197401.
- 5 Chen S W, Guo H, Seu K A, *et al.* Jamming behavior of domains in a spiral antiferromagnetic system[J]. Physical Review Letters, 2013, **110**(21): 217201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.217201.
- 6 Carnis J, Cha W, James W, *et al.* Demonstration of feasibility of X-ray free electron laser studies of dynamics of nanoparticles in entangled polymer melts[J]. Scientific Report, 2014, **4**(6017): 1–8. DOI: 10.1038/srep06017.
- 7 Chu B, Ying Q C, Yeh F J, *et al.* An X-ray photon correlation experiment[J]. Langmuir, 1995, **11**(5): 1419–1421. DOI: 10.1021/la00005a001.
- 8 Shpyrko O G, Isaacs E D, Logan J M, *et al.* Direct measurement of antiferromagnetic domain fluctuations[J]. Nature, 2007, **447**(7140): 68 – 71. DOI: 10.1038/nature05776.
- 9 Ehrburger-Dolle F, Morfin I, Bley F, *et al.* XPCS investigation of the dynamics of filler particles in stretched filled elastomers[J]. Macromolecules, 2012, **45**(21): 8691–8701. DOI: 10.1021/ma3013674.
- 10 Begam N, Chandran S, Sprung M, *et al.* Anomalous viscosity reduction and hydrodynamic interactions of polymeric nanocolloids in polymers[J]. Macromolecules, 2015, **48**(18): 1 – 20. DOI: 10.1021/acs. macromol. 5b00759.
- 11 Yang S M, Wang L S, Zhao J, *et al.* Developments at SSRF in soft X-ray interference lithography[J]. Nuclear Science and Techniques, 2015, **26**(1): 010101. DOI: 10.13538/j.1001-8042/nst.26.010101.
- 12 Mark Sutton. A review of X-ray intensity fluctuation spectroscopy[J]. Comptes Rendus Physique, 2008, **9**(5–6): 658–660. DOI: 10.1016/j.crhy.2007.04.008.
- 13 孟祥雨, 郭春磊, 王勇, 等. 同步辐射光束线中部分相干光的传播研究[J]. 光学学报, 2013, **33**(7): 0734001. DOI: 10.3788/AOS201333.0734001.
MENG Xiangyu, GUO Chunlei, WANG Yong, *et al.* Research on partially coherent light propagation in synchrotron beamlines[J]. Acta Optica Sinica, 2013, **33**(7): 0734001. DOI: 10.3788/AOS201333.0734001.
- 14 Ziya Akcasu, Klaus Achatzel, Rainer Peters, *et al.* Dynamic scattering from multicomponent polymer mixtures in solution and in bulk[M]. New York: Oxford University Press, 1993: 104–105.