

CNIC-01980

CAEP-0246

# 中子三轴谱仪单色器装置分析

阳 剑 刘丽鹃 谢 雷

(中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 绵阳, 621900)

## 摘 要

作为中子三轴谱仪最核心的部件之一,单色器的性能好坏对最终的数据探测分析起着至关重要的作用,因此对目前国内和法国 ILL 研究所、LLB 实验室的部分三轴谱仪单色器参数指标进行了调研。由于谱仪所摆放的位置不同,开展实验研究所关注的波段也不尽一样,单色器的设计考虑各有特点,需要结合自身中子源的特点以及安放区域限制来进行选择。文章在介绍聚焦单色器原理的基础上,对典型的三轴谱仪单色器装置进行了分析,包括尺寸范围、晶体选择、研制能力等,对于中子三轴谱仪单色器的建造,在选型和物理参数指标上,提出初步的想法。

**关键词:**三轴谱仪 单色器

# Monochromator Equipment Analysis of Neutron Triple-Axis Spectrometer

*(In Chinese)*

YANG Jian LIU Lijuan XIE Lei

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

## ABSTRACT

Monochromator is one of the most important parts of neutron Triple-Axis Spectrometer (TAS), and its performance has an effect on data detecting and analyzing. We have investigated some monochromator parameters of neutron TAS in China, ILL and LLB. Because there is different location and focus on wavelength in experiment, appropriate neutron source and location limit should be taken into account in the design of monochromator. According to the basic principle of the focusing monochromator, investigation and analysis of typical monochromator in the world, including size, crystal, research capability, we can offer references on the type and parameters for the construction of triple-axis spectrometer monochromator.

**Key words:** Triple-Axis Spectrometer, Monochromator

# 引言

反应堆提供的慢中子通常都具有连续的能谱,这种中子源称为白光源。中子散射实验需要的是波长为 $\lambda$ ,带宽为 $\Delta\lambda$ 的单色中子。一般实验所用的波长 $\lambda$ 在 $0.1\sim 2$  nm, $\Delta\lambda/\lambda$ 为 $0.1\%\sim 30\%$ ,具体数值取决于实验的类别和要求<sup>[1]</sup>。对三轴谱仪来说,由白光中子源获取单能中子束最常用的方法是使用晶体单色器。

晶体单色器装置是中子三轴谱仪最重要的部件之一,作为“三轴”当中的第一轴,样品上能接收到的中子强度很大一部分因素取决于晶体单色器的性能好坏,对最终的数据探测分析起着至关重要的作用。本文对目前国内和法国 ILL 和 LLB 的部分三轴谱仪单色器装置进行了调研和分析,可为建造中子三轴谱仪单色器提供一定的借鉴。

## 1 晶体单色器

### 1.1 常用的晶体单色器

一个好的单色器应尽可能具备以下特点:

(1) 晶体原子的相干散射截面应远大于其吸收截面、非相干散射截面和非弹性散射截面。

(2) 晶胞体积越小,散射长度密度越大,所以单色器的晶胞不宜过大,并要有合适的晶面间距以适应不同波长和分辨率的需要。一般来说,谱仪不应采用晶格常数 $d$ 过大的单色器。对给定的波长, $d$ 大则 $\theta_M$ 小,从而不仅分辨率差,本底也会因散射束离入射束过近而增加; $\theta_M$ 小还会增大中子束投射在单色器上的面积。

(3) 金刚石型单晶结构是晶体单色器的理想结构,因为它的某些高次反射是禁止的,因而可以得到较纯的单色中子。

(4) 晶体单色器的尺寸一般应不小于 $5\text{ cm}\times 7\text{ cm}\times 0.2\text{ cm}$ ,这种大尺寸的单晶多为人工晶体。大多数的人工晶体嵌镶宽度过小,需要热压处理使嵌镶宽度增大到 $0.1^\circ\sim 0.5^\circ$ 才能与准直系统匹配,但热压后的嵌镶分布往往不均匀。

表 1 给出了几种常用晶体单色器的有关参数<sup>[2]</sup>。铜的某些晶面间距较小,适合作为 $0.1$  nm 左右波长的单色器,但是铜的反射率不够理想。目前反射率最高的晶体单色器是取向石墨(热解石墨)。它实际上是一种只在 $C$ 轴方向具有长程有序的层状晶体。它的高反射率部分原因在于其 $a-b$ 平面的二维无序结构。对 $50$  meV 中子,取向石墨(002)的峰值反射率可达 $74\%$ ;而对同一能量中子,Ge 的峰值反射率为 $22\%$ <sup>[3]</sup>。此外,取向石墨的非相干散射本底也很低。不过由于晶格常数 $d$ 较大,它只适合于波长大于 $0.1$  nm 附近的低能区;而在更低能区,由于严重的次级污染,必须加过滤器。过滤器对单能中子的衰减使它在这一

表 1 几种常用的晶体单色器及其有关参数

晶体	结构	晶格常数/nm	晶胞体积/ $10^{-24}\text{ cm}^3$	常用反射面
PG	层状	$c=0.6708$	35.2	(002)
Cu	fcc	$a=0.3615$	47.2	(110) (002) (222)
Si	金刚石型	$a=0.5431$	160	(002) (111) (311)
Ge	金刚石型	$a=0.5658$	181	(111) (220) (311) (511)

能区的应用失去了优势。因此,它的工作能区较窄。锗和硅都适合作为热中子能区的单色器,这两种晶体都是金刚石型结构,( $hkl$ )全偶的晶面除  $h+k+l$  之和为 4 的倍数者外,均不产生 Bragg 反射,因而( $hkl$ )全奇的反射面的次级反射可得到抑制。

## 1.2 聚焦单色器

聚焦主要分为垂直聚焦、水平聚焦以及垂直-水平双向聚焦三种,考虑到实验测量需求,我们想主要采用垂直聚焦模式来提高样品处注量,所以现以垂直聚焦为例说明其基本工作原理。

一般来说,非弹性散射所感兴趣的被测量的量是  $k_0$  和  $k$ ,而它们与垂直准直系统之间的依赖关系是二级量,因此,允许采用垂直聚焦系统来增加中子信号,而不至于过分地影响分辨率。垂直聚焦单色器由多块晶体组成,每一块晶体都可以绕一个平行于晶体的散射表面的轴转动,这些晶体被安装在一个圆柱形的表面上,调整晶体晶面的方向,使得单色化后的中子最佳地聚焦在样品上。一般情况下,样品上中子注量率的增益在两倍以上。还有一些谱仪采用了水平聚焦系统,水平聚焦对分辨率的影响要大一些。

单色束的分辨率和束的垂直发散度无关,因此,为了获得较强的单色束,中子束的垂直发散度应适度放开。根据这一原则设计而成的垂直聚焦单色器可使单色束的强度增加 2~5 倍。图 1 是利用弯压的 Ge(511)堆叠晶片制成的垂直聚焦单色器。该单色器由 24 条宽 5 cm,高 1.5 cm 的条状堆叠片按垂直聚焦几何组合在一个凹面弧状金属底座架上,每一条堆叠片都可以沿水平方向和垂直方向单独调整倾斜度,从而将垂直发散的单色中子束聚焦到有一定长度的样品上。

垂直聚焦单色器对中子束的聚焦作用与凹面镜对光的会聚作用相仿,可用几何光学原理来描述<sup>[4]</sup>。设曲率半径为  $R$  的单色器与中子源的距离为  $L_0$ ,单色器的 Bragg 角为  $\theta_M$ ,单色器到源像的距离为  $L_i$ ,则

$$\frac{1}{L_0} + \frac{1}{L_i} = \frac{2\sin\theta_M}{R}$$

对一定的  $R$  和  $L_0$ ,  $L_i$  随  $\theta_M$  变化而变化。当单色器至样品的距离  $L_1 = L_i$  时,源像便聚焦在样品上。若此时源的高度及像的高度分别为  $h_s$  及  $h_i$ ,则

$$h_i = h_s \left( \frac{L_i}{L_0} \right)$$

$L_1$  通常小于  $L_0$ ,所以聚焦后  $h_i$  小于  $h_s$ 。这样,如果中子源的注量是均匀的,当样品的高度小于或等于源像的高度时,入射到样品上的中子注量便会因聚焦作用而增大。在  $L_1 \neq L_i$

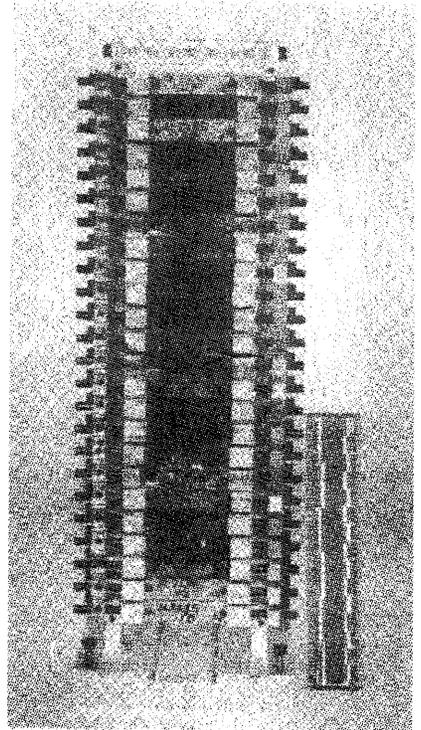


图 1 Ge 聚焦单色器

的情况下,样品上的中子束将会出现如图 2 所示的欠焦或散焦的情况。令  $h_M$  为单色器的高度,则样品处的束高  $H$  为:

$$H = \begin{cases} h_M - (h_M - h_i) \left( \frac{L_1}{L_i} \right), L_1 \geq L_i \\ h_i + (h_M - h_i) \left( \frac{L_1 - L_i}{L_i} \right), L_1 \leq L_i \end{cases}$$

对平板单色器,  $L_i = \infty$ , 从而样品处的束高  $H'$  为:

$$H' = h_M + h_s \left( \frac{L_1}{L_0} \right)$$

对于均匀的中子束,注量与束高成反比。因而相对于平板单色器,聚焦单色器的中子注量增益  $P = H'/H$ 。在完全聚焦的情况下的最大增益

$$P_{\max} = \frac{H'}{H} = \frac{h_M + h_s \left( \frac{L_1}{L_0} \right)}{h_s \left( \frac{L_1}{L_0} \right)}$$

如果  $h_M = h_s, L_1/L_0 = 1/2$ , 则注量增益约为 3; 当  $h_M > h_s$  时, 还可以更大。

### 1.3 磁单色器

由于中子具有磁矩, 因此它在样品上的散射不仅是原子核的位置和运动的反映, 也是样品磁特性的反映。采用极化中子可以把由磁性来源引起的散射从由原子核的位置与运动产生的散射中区分出来。在散射中作为中子自旋翻转的函数的散射率可以被测量出来, 而这样的中子自旋翻转只可能由磁性相互作用所产生。对于这样的测量, 必须具备产生极化中子并且使其自旋翻转的技术。

产生极化中子可以采用磁单色器晶体来实现, 中子在这种晶体上的散射与中子磁矩的方向密切相关, 同时与单色器和样品之间的磁场有关, 或者是与样品与分析器之间的磁场有关。三种最广泛的用作这种目的的材料是  $\text{CoFe}$ 、 $^{57}\text{Fe}$  和 Heusler (锰 18%~26%, 铝 10%~25%, 铜 50%~72%) 单晶, 前两种材料多用在中子波长为 0.05~0.15 nm 的情况; 后一种材料多用在中子波长为 0.1~0.4 nm 的情况<sup>[5]</sup>。对于中子波长比 0.4 nm 还要长的情况, 例如对于一些冷中子设备, 可以用极化超镜装置来产生极化中子, 超镜是一种重叠的双层结构, 每层大约几个纳米, 磁性和非磁性材料交替放置, 一般情况下上述极化中子装置的效率可达 98% 或者更好。

## 2 国内外典型谱仪单色器装置及分析

### 2.1 国内的三轴谱仪

截至目前, 我国在中子非弹性散射领域的研究工作开展得还很少, 仅在中国原子能科学研究院的重水反应堆的 5 号水平孔道旁安放了一台三轴谱仪, 如图 3 所示, 它是由法国 CEA-Saclay 的 LLB 专家负责设计, 且重要部件和整个控制系统均从法国获取。目前单色器为 18.5 cm × 9.7 cm × 1.2 cm 的 Ge 单晶 (是由三块拼起来的), 提供的波长范围为

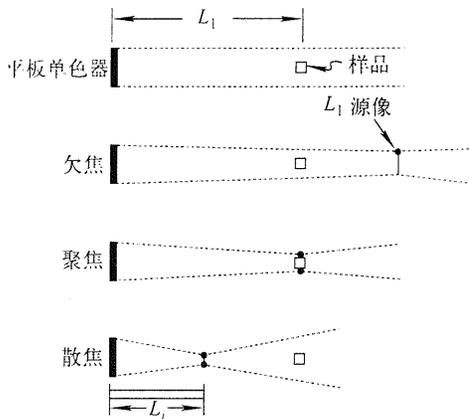


图 2 不同聚焦程度的中子束

0.13~0.33 nm, 相应的能量范围为 7.5 ~ 48.4 meV。单色器台可在一平移台上沿主束方向平移,同时可绕其垂直轴运动,并且与小鼓的转动同步,以保证单色中子束能通过准直器 C。单色器台可同时装上 4 块单晶,为变换单色器提供了方便。

这台三轴谱仪是在 20 世纪 80 年代设计完成的,且并未经过升级改造,在做中子非弹性散射实验时,显现出一定的问题,其中包括需要改善单色器,扩大入射中子能量范围。如果能利用 Cu (111)做单色器,则波长范围可达 0.085~0.209 nm,相应的能量范围为 18.7~113.2 meV,有了这两种单色器,基本上充分利用了可用的堆谱范围。

### 2.2 法国 ILL 的 IN12

当前国际上众多的中子散射技术研究机构当中,不论是谱仪规模还是科研实力,法国 ILL 研究所毫无疑问是中子散射领域的领军力量,仅三轴谱仪就配备有 7 台之多。图 4 为 IN12 结构示意图。表 2 为该谱仪单色器的相关参数<sup>[6]</sup>。

表 2 IN12 单色器有关参数

单晶	PG(002)
晶格间距	$d=0.3355 \text{ nm}$
波长	$0.23 \text{ nm} < \lambda < 0.6 \text{ nm}$
入射能量	$2.3 \text{ meV} < E_i < 14 \text{ meV}$
波矢	$10.5 \text{ nm}^{-1} < k_i < 26 \text{ nm}^{-1}$

单色器的尺寸为 12 cm × 8 cm (高 × 宽),可变垂直聚焦。这台三轴谱仪安装在导管大厅的冷中子导管 H142 上,后面接有其他谱仪,可以开展的主要是低能量晶格振动和磁激发的高分辨研究。它在低动量转移方面用处相当大,甚至在软物质物理学研究领域可与飞行时间谱仪相媲美。

### 2.3 法国 LLB 的 4F2

法国另一个谱仪比较多的核反应堆中子散射基地是 Orphee 堆,它属于 Saclay 核研究中心的 LLB 实验室,共拥有 5 台三轴谱仪,4F2 就是其中之一,如图 5 所示。在这一设计中,单色器(1号)是平板的热解石墨,尺寸为 11 cm × 8.5 cm (高 × 宽),镶嵌角为 0.4°;单色器(2号)是可弯曲且垂直聚焦在样品上的热解石墨,尺寸和镶嵌角的指标与前面单色器一样。谱仪允许的入射中子波长为 0.2 nm < λ < 0.63 nm,通过双单色器聚焦后,在样品处的

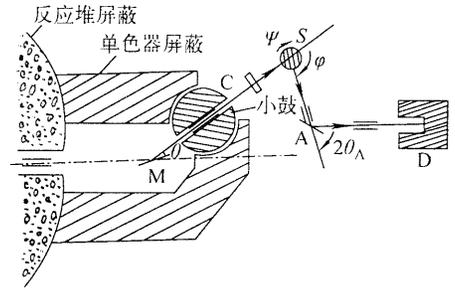


图 3 中国原子能科学研究所的三轴谱仪结构示意图

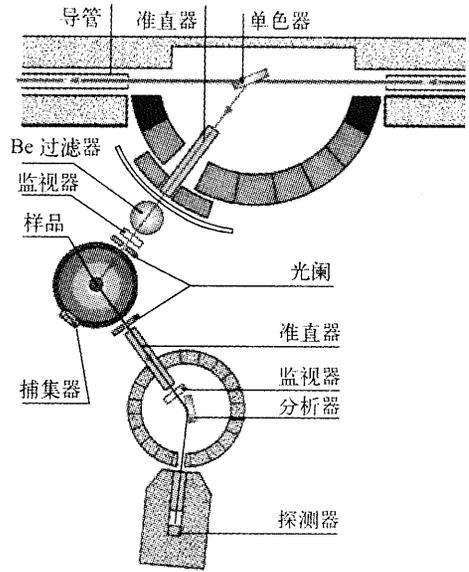


图 4 IN12 结构示意图

中子注量可达  $3.5 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$  (当  $\lambda$  约为 0.4 nm 时)。

通常情况下,一台标准的三轴谱仪只有一种单色器晶体,且整台谱仪必须随着入射能量的改变而相应移动。如果入射中子的能量较宽时,谱仪的移动将会需要大面积的坚固地面区域,这种要求往往会导致与临近谱仪的需求冲突。解决方法之一是用双晶单色器来产生某一固定方向的能量不同的单色束。采用双晶单色器的谱仪,其优点是更有效地消除本底和提高分辨,不足之处在于其追加的反射和中子飞行路径的增大会导致强度的降低。

到目前为止,已对国际上十几个国家的近 50 台三轴谱仪单色器进行过不同程度的调研,这里暂不全数列出。由于谱仪所摆放的位置不同,以及开展实验研究所关注的波段也不尽相同,因此单色器的设计考虑各有特点,需要结合自身中子源的特点以及安放区域限制来进行选择。

### 3 对三轴谱仪单色器的考虑

从 20 世纪 70 年代以来,为了满足非弹性散射实验的高强度要求,聚焦单色器技术取代了平板单色器,在三轴谱仪中得到了越来越多的应用。但作为三轴谱仪的核心部件之一,直到目前为止,我们调查发现聚焦单色器仍属于不定型产品。需要根据所在谱仪的特点进行专门设计加工,因此定制时要提供必要的参数。一般会包括:(1) 单晶类型和嵌镶分布的大小;(2) 使用单一晶面或多晶面;(3) 单晶的条数及每条的长、宽、厚度;(4) 单色器的曲率半径;(5) 是否需要附加调整装置、焦距是否可调等。基于以上的考虑,我们提出以下几点建议作为参考。

#### 3.1 尺寸范围

为了在样品处得到尽量高的束流强度,这台谱仪应该安放在导管的第一节点处,同时使用聚焦单色器。单色器安装位置如图 6 所示。只有尽可能多接受入射中子打到单色器上,才有可能使样品台上接收到更高注量的中子,因此聚焦单色器的尺寸最好大于等于冷中子导管的束流截面积。具体数值需要视单晶片生产商可提供的样品程度而定。谱仪设计时可以考虑把最好的单晶片安在中间位置,而相对较差的放在顶端和底部。这样安排单色器主要是考虑到使束流能垂直弯曲聚焦在样品上。弯曲度的控制取决于入射束的波长以及单色器与样品间的距离。

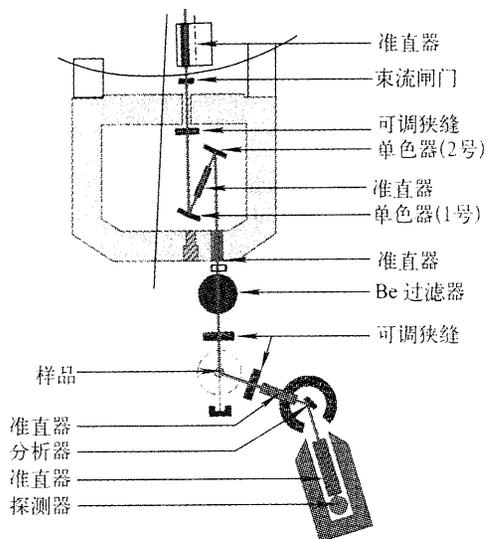


图 5 4F2 结构示意图

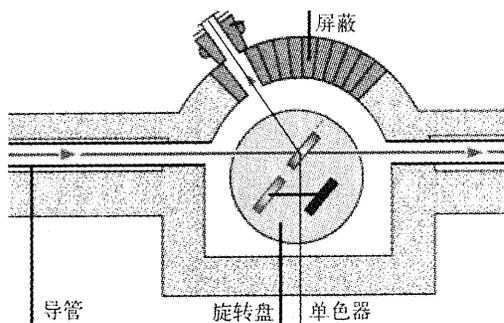


图 6 单色器框架图

### 3.2 晶体选择

使用垂直聚焦单色器,虽然发散度可能会较大,但是可以为样品处提供较高通量,这一点正是三轴谱仪最注重的。

通常绝大多数的单色器是由许多片的热解石墨叠加而成。目前的工艺水平已有明显改善,厂商可生产出不同标准的产品。最常用的是由 Advanced Ceramics 公司出品的 ZYA 型,镶嵌角  $0.4^\circ$ ,厚度 2 mm。这种型号的产品性能极好,没经过反射的中子都可以直穿单色器,使得沿中子导管下方安放的设备可以充分利用,然而如果晶体尺寸大的话,这种材料会十分昂贵,同时热解石墨虽然具有较高的中子反射率,但是分辨率较差而且存在次级反射的不足,需要在后面添加过滤器来消除该影响。

美国密苏里州立大学的 Popovici's 研究小组和捷克的 Mikula's 研究小组一同研制出了一种新型的衍生材料——弯曲的完美硅单晶,它具有金刚石型结构,偶结构因子为零而不会产生次级反射,而且材料本身的造价比较便宜,但是由于其结构特点会使得机械部分的造价成本很高。

通常,实验上对中子能量范围的需求很宽,可能需要多个不同的单色器配合才能达到理想效果。根据调研冷中子三轴谱仪工作波长范围多选为 0.2~0.6 nm,采用热解石墨垂直聚焦与完美硅单晶双聚焦单色器组合易于实现。调节单色器的水平和垂直弧度、单色器与样品间的距离,同时结合考虑发散产生的影响,以适应不同实验样品的需要。此外,当前磁性材料的结构研究越来越受到关注,这要求必须产生有极化中子,因此在单晶组合的选择上还可以考虑加入 Heusler 可变垂直聚焦晶体以满足极化分析的需要。

### 3.3 研制能力

目前我国在中子非弹性散射领域的研究工作开展得还较少,仅中国原子能科学研究院拥有一台三轴谱仪。这台谱仪是由法国设计,重要部件和整个控制系统均由法国提供。从国际上看,中子三轴谱仪已是中子散射实验室的必需设备,不少国家都具备制造加工聚焦单色器和机械定位的技术,但仅有少数国家加工的精度较高,如法国、德国、捷克、瑞士等国在聚焦单色器、机械部件定位装置的技术方面优势明显,可以满足高精度测量要求。由于国内尚无整体自主研制和精加工制造的能力,而聚焦单色器造价昂贵,研制时间长、难度大,为避免设计失误,采取从国外具有长期生产经验的公司购进较为稳妥,比如美国 Advanced Ceramics公司、法国 AZS 公司等。

## 4 结 论

本研究工作对常用晶体单色器和磁单色器的特点;聚焦单色器的工作原理,聚焦单色器和平板单色器的注量增益进行了探讨;比较了国际上已建成的典型中子三轴谱仪的单色器基本选型和主要技术指标情况,对其设计及应用进行了分析。对于中子三轴谱仪单色器的建造,在选型和物理参数指标上,提出初步的想法。

为了获得尽可能高的入射中子注量,单色器晶体尺寸设计时可以考虑其面积至少大于中子导管的横截面积;根据实验波长范围的需求,单色器晶体可采用热解石墨垂直聚焦与完美硅单晶双聚焦的组合;另外通过调研以及与中国科学院和澳大利亚、德国、匈牙利、法国等国内外专家的技术交流,发现单色器的制造主要来自法国、捷克、美国等少数几个研发技术经验已趋于成熟的国家,因此对于这样一个整台谱仪的核心部件,可以直接购进。

## 参 考 文 献

- 1 丁大钊,叶春堂,等. 中子物理学(第二版). 北京:原子能出版社,2005.
- 2 Freud A. In treatise on materials science and technology. 1979.
- 3 Vogt T. Nucl. Instr. Meth. , 1994.
- 4 Rist T. Nucl. Instr. Meth. , 1970.
- 5 Magerl, Wagner. Proceedings of Workshop on Focusing Bragg Optics. Nucl. Instrum. Methods, 1994.
- 6 <http://www.ill.fr/>.