

用于凝聚态物质研究的旋转 晶体中子飞行时间谱仪

李竹起 阮景辉 吴善令 杨同华 何 敏
陆 挺 成之绪 陈桂英 叶春堂

(中国科学院原子能研究所)

1980年2月8日收到

提 要

本文介绍了我所自行设计和制造的一台旋转晶体中子飞行时间谱仪。该仪器对凝聚态物质的各种动力学研究是一个有效的工具。我们通过选取适当的锗单晶(111)平面旋转轴的办法消除了仪器单色束中多晶面反射的“污染”(contamination)。该谱仪的入射初始中子能量范围可为10—100meV, 对应的初始中子能量分辨率为2.5—7.2%。本文根据Brockhouse理论^[1,2]对散射中子的分辨率作了详细的理论计算, 并将计算结果与实测结果进行了对比。介绍了标准钚样品的非弹性散射中子谱的测量结果并与国外几个同类型谱仪的基本特性作了比较。

一、引 言

十多年来, 利用热中子非弹性散射技术对凝聚态物质的动力学问题进行了广泛的研究, 它是研究固态物质晶格振动(声子色散关系和态密度)的一个十分有效的手段。非弹性散射中子能谱通常是用飞行时间方法或晶体衍射分析方法测定的。不管哪一种方法, 都要求初始中子束为单能的。前者, 通常采用机械转子, 旋转晶体或者是两种转子的联合装置, 这种谱仪叫做飞行时间谱仪。后者则要求有2:1传动的双臂结构, 通常称为三轴谱仪。

1958年和1961年Brockhouse首先发表了关于旋转晶体飞行时间谱仪的基本原理的报告^[1,2], 并在加拿大的Chalk River NRU反应堆旁建起了第一台谱仪。此后, Gläser^[3]和Harling^[4]又报道了他们建造的旋转晶体谱仪的结构及其在非弹性中子散射实验中的应用。O'Connor^[5], Meister^[6]发表了有关谱仪的理论和实验方面的文章, 因而, 旋转晶体飞行时间谱仪在热中子非弹性散射实验中作为一种标准仪器已广泛地被使用了。

在使用旋转单晶作单色器时, 初始单色中子束中往往夹杂着“污染”, 这些“污染”主要来自级次、多晶面反射和本底。为了准确地进行测量, 消除这些“污染”是十分必要的。为此, 国外一般采用位相转子、过滤器等办法。这些办法都不同程度地要损失中子束的强度。我们这台谱仪的单色器采用了锗单晶体[Ge(111)], 为了消除“污染”, 我们选取适当的锗单晶(111)平面的旋转轴的办法。实践证明这个办法是有效的, 它即简化了仪器装置

又不致降低初始中子束的强度。

我们这台谱仪,在入射初始中子束的能量范围为 10—100meV 时,对应的初始中子能量分辨率为 2.5—7.2%。

二、谱仪的结构和性能

1. 概述

谱仪的简图示于图 1。从反应堆发出的多色中子束通过嵌入堆屏蔽体内的第一准直器(它的水平发散角为 $20'$)，入射到单色器上。单色器是一块旋转的锺单晶,它由圆筒形的迴转屏蔽体包围着。为了减少漫散射本底,筒内壁又安装了一个用镉皮做的套筒,其中盛有 2cm 厚的碳化硼。为了减少“0”束的剂量,在圆筒屏蔽物的最外层装有 5cm 厚的铅,并在中间安装了一块厚度为 10cm 的铁块。圆筒屏蔽物入口为扁平扇形,张角为 71° 。因此,入射中子的最低能量为 6meV。第二准直器的发散角为 $30'$,插入圆筒形屏蔽物中并同圆筒一起转动。根据布拉格公式,旋转晶体产生的单色束的波长可由第二准直器相对于“0”束的位置来确定。圆筒形屏蔽物由底座上的止推轴承支撑着,因此,它可携带第二准直器自由转动。转动角度可由转角指示器读出,精确度为 $5'$ 。由旋转单色器产生的单能脉冲中子束通过第二准直器入射到样品上,在样品中进行能量交换,散射中子在散射室中飞行,由计数管组收集。

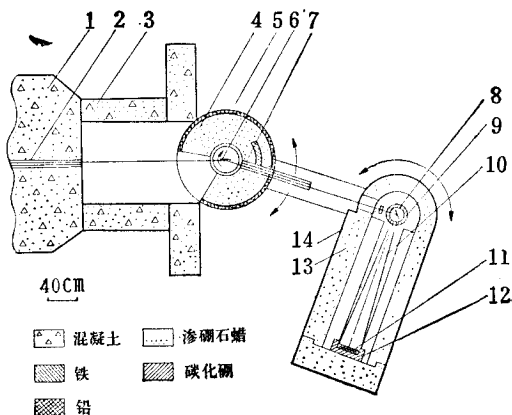


图 1 旋转晶体飞行时间谱仪简图

- 1——堆本体; 2——第一准直器; 3——屏蔽体;
4——迴转圆筒屏蔽体; 5——转角指示器; 6——单色器; 7——第二准直器; 8——样品; 9——屏蔽室; 10——镉通道; 11——BF₃ 计数管; 12——碳化硼盒; 13——散射室; 14——监视器

2. 旋转单色器部分

选择一个好的单色器,无论是对静止的晶体谱仪还是对旋转晶体谱仪来说都是十分重要的。一般来说,它应具备以下条件:(1) 峰值反射率高;(2) $0.1—0.5^\circ$ 的嵌镶度;(3) 非相干散射截面和吸收截面要低;(4) 合适的反射平面和相匹配的面间距 d ;(5) 在高速旋转时,应有足够的强度。大多数实验室用的旋转单晶为铝、铜,但它们的反射率不高,而且还有多晶面反射,这样势必要附加装置(如相位转子等)。目前反射效率最高的单色器是热解石墨(简称 PG),但它的制备工艺复杂,价格昂贵。

我们选用的是热压锺单晶,几何尺寸为 $\phi 60\text{mm}$,厚 5mm。热压的目的是为了增大锺单晶的嵌镶(经过热压,嵌镶度由 $6'$ 增至 $24'$),从而大大提高它的积分反射率。对于锺单晶,从结构因子计算来看,二级反射为零。如果我们做“向下散射”实验,初始中子能量选在堆谱峰值附近,那么即使存在三级反射时,其能量 $9E_0$ 已落在麦克斯韦谱的末端,强度

是相当低的,从而避免了级次“污染”。

此外,还有不希望单色束中出现多晶面反射。如何消除这部分“污染”呢?我们没有采用加斩波器(chopper)的办法,而是选用适当的(111)平面旋转轴的办法避开多晶面

反射的,关于这方面的实验结果示于图2中。

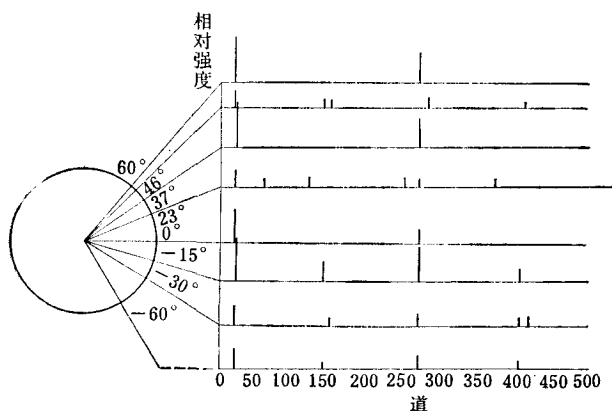


图2 旋转锆单晶脉冲中子束多晶面反射实验测量结果

$E_0 = 52\text{meV}$ 下,旋转单色器以7050rpm的转速顺时针方向旋转,每周期给出两束中子束,起始信号(T_0)的周期为4.260ms时,对单色束作了飞行时间谱测量。多道时间分析器选用400道,道宽为 $10\mu\text{s}$,测量结果示于图3中。

从图3中可以看出,除了单色束强度峰之外,两侧没有出现多晶面反射,级次淹没于本底之中,本底与单色束强度相比远远小于1%。

图4是旋转晶体单色器的机械装置简图。锆单晶用环氧树脂粘在铝制的晶体台上,为了减少高速旋转时空气的阻力,在锆单晶外面罩上一个厚度为0.6—0.8mm的薄壁铝筒。在 $\phi 104\text{mm}$ 铝制晶体台的外缘对称的 180° 方向上各开一个 $0.2 \times 2\text{mm}$ 的小槽,小槽内填充硬磁材料 $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$,在它对面的固定装置上安装了一个磁头,高速旋转的磁场在磁头里的线圈中产生感应电流。因此,每当载有磁性材料的小槽转过磁头所在的位置时,在磁头的线圈中便产生一个脉冲电压信号,我们把它作为起始信号。为了保证散射中子谱不受转速的影响,可以在 90° 的范围内左右移动磁头进行调节,使之对准某一能量的布拉格衍射位置。标尺的精确度为 $30'$ 。

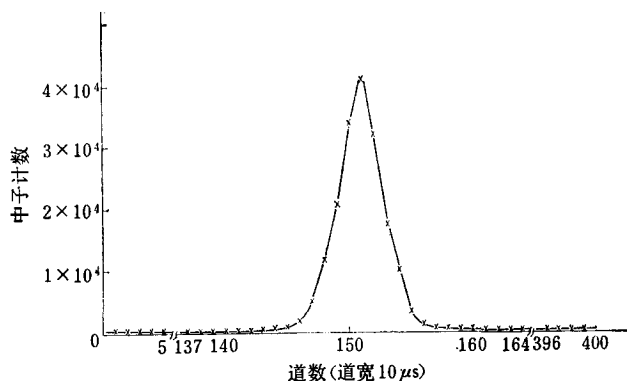


图3 在探测器位置处测得的锆单晶($E_0 = 52\text{meV}$)脉冲中子束的时间分布 T_0 信号周期4150 μs

马达与旋转轴是通过上、下法兰盘与中间夹有5mm厚的硬橡皮连接起来的。这种方法允许马达轴与旋转轴之间对中心有一点微小的偏离,同时也避免马达的震动直接传给

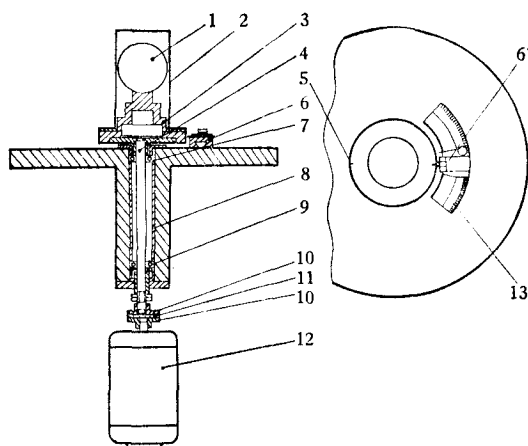


图4 旋转单色器机械装置简图

- 1——锆单晶； 2——铝筒； 3——晶体台； 4——旋转轴； 5——小槽；
6——磁头； 7——轴承； 8——套筒； 9——轴承； 10——上、下法兰；
11——橡皮； 12——直流电机； 13——游标尺

锆单晶。马达的最高转速可为 7500rpm。马达轴承的温度可用热敏电阻电桥监视。

3. 分析器部分

散射实验是在样品、探测器和散射中子飞行路程完全屏蔽的散射室内进行的。为了减少入射束在散射室内的漫散射，在样品周围加了一个小的屏蔽室（见图1中9）。样品到探测器之间的距离为 2m，探测器是由 10 支 BF_3 计数管紧密装配而成的。每支计数管的尺寸为 $\phi 2.5\text{cm} \times 25\text{cm}$ ，充 600mm Hg 的气压， ^{10}B 的浓度为 80%。10 支计数管垂直竖立排成双行，每支的高压端用一根铜导线互相连接起来。输出的信号通过前级放大器、主放大器，再经过成形输入多道时间分析器。多道时间分析器是用来储存并分析飞行时间数据的。

旋转晶体飞行时间谱仪的电子学线路如图5所示。

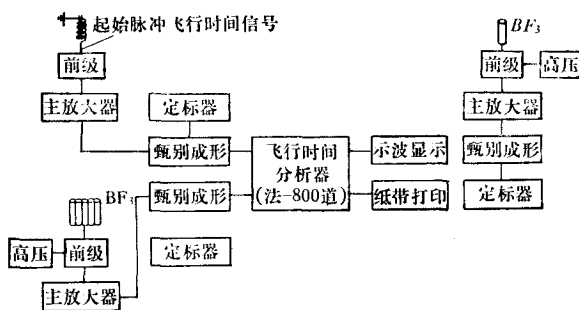


图5 旋转晶体飞行时间谱仪电子学线路图

由于多道时间分析器的限制，我们用一台定标器监视入射中子束通量的变化，用另一台定标器监视旋转晶体转速变化。为保证长时间测量数据可靠，我们用定标器监视计数

管组的计数率。在同一时间间隔内,定标器给出的计数与多道时间分析器给出的积分计数相同。

4. 分辨率和强度

旋转晶体飞行时间谱仪的分辨率已由 Brockhouse^[2] 作过理论计算。对谱仪分辨率有影响的主要因素有:单色器晶体的尺寸和它的嵌镶结构、准直器的发散角、转子转速、初始中子的能量发散、多普勒效应、样品尺寸和测定方位、飞行距离的不确定性以及分析器的道宽等等。其中晶体的嵌镶和准直器的发散角及转速对脉冲时间宽度的影响由下面公式给出:

$$\Delta t_{\omega}^2 = (\Delta \theta_c^2 + \Delta \theta_M^2) / \omega^2, \quad (1)$$

式中的 $\Delta \theta_c$ 是准直器的发散角, $\Delta \theta_M$ 是晶体嵌镶, ω 是旋转角速度。我们谱仪的结果为

$$\Delta t_{\omega}^2 = 137 \mu s^2.$$

由初始中子束的能量发散带来的时间发散为

$$\Delta t_{E_0} = (0.7 \Delta \theta_c \cot \theta_B / v_0) [L_0 + L_1 (v_0 / v_1)^3], \quad (2)$$

式中的 θ_B 是布拉格角, L_0 和 L_1 分别为单色器晶体到样品和样品到探测器之间的距离, v_0 和 v_1 分别为入射到样品上和从样品散射出的中子速度。我们谱仪的结果为

$$\Delta t_{E_0}^2 = 876 \mu s^2.$$

关于晶体的多普勒效应,我们选顺时针旋转,这样可以产生聚焦的效果。经过计算表明,当初始中子能量为 52 meV 时,多普勒效应对中子脉冲时间宽度的贡献很小(只有 0.05 μs)。

由飞行距离不确定性引起的时间宽度为

$$\Delta t_L = \frac{x_c}{v_0} + \frac{x_T}{v_0} + \frac{x_{\text{det}}}{v_1} - \frac{x_T \sin\left(\frac{\pi}{4} - \phi\right)}{v_1}, \quad (3)$$

式中 x_c , x_T 分别为在入射中子束的方向上晶体和样品的有效厚度。 x_{det} 是探测器的厚度,(3) 式中的第四项是散射中子束中,由于样品的倾斜引起的路程不确定性的贡献,

$$x_T \sin\left(\frac{\pi}{4} - \phi\right)$$

中的 ϕ 是入射中子与出射中子方向之间的夹角。根据我们谱仪的计算结果为

$$\Delta t_L^2 = 625 \mu s^2.$$

时间分析器的道宽,我们选定 10 μs 。假定分辨率的诸因素是互不相关的,那么总的脉冲时间宽度可等于各项脉冲时间宽度的总和,所以

$$\Delta t^2 = \Delta t_{\omega}^2 + \Delta t_{E_0}^2 + \Delta t_L^2 + \Delta t_{\text{ch}}^2. \quad (4)$$

因此,根据(4)式计算出我们谱仪的结果为 $\Delta t = 41.7 \mu s$, 我们实际测量得到

$\Delta t = 38 \mu s$, 两者在 92% 之内符合。

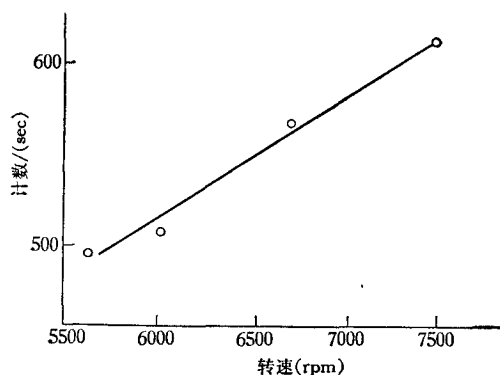


图 6 旋转锗单晶脉冲中子流强随转速变化实验测量曲线

当堆功率为 3000kW, $E_0 = 52\text{meV}$, 转速为 7050rpm 时, 我们实际测得样品位置单色中子束的强度 (经过探测器效率修正后的强度) $I_0 = 2.3 \times 10^5 \text{n/min}$, 并测量了不同转速下的中子流强的变化. 实验结果表明, 把 5600rpm 中子流强定为 1, 那么转速为 7480 rpm 时, 中子流强为 1.24 (见图 6).

三、钒样品非弹性散射中子谱测量

我们选定入射中子能量 $E_0 = 52 \text{meV}$, 测量了金属钒的散射中子谱. 样品的几何尺寸为 $8 \times 7 \times 0.3 \text{cm}^3$, 纯度为 $99.0 \pm 0.5\%$, 样品的平面与入射中子束方向成 45° 角, 样品中心与探测器之间的距离为 1.99m, 样品的透射率为 78%. 探测器本底计数为每支计数管每分钟 0.06 个中子. 效应本底比为 30:1.

实验测量安排为有样品时测效应, 无样品时测本底. 有样品本底测量了 110 小时, 无样品本底测量了 60 小时, 本底随时间的分布基本上是常数. 数据记录和存储用的多道时间分析器是 800 道, 道宽选为 $10\mu\text{s}$. 实验测量结果见图 7.

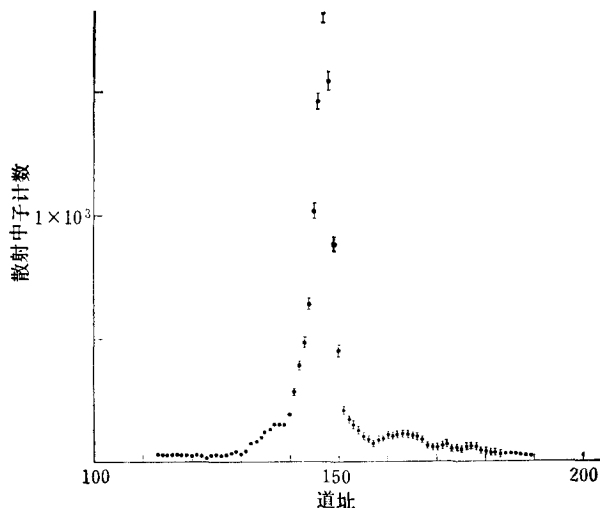


图7 钒样品散射中子飞行时间谱 测量时间 110 小时, 道宽 $10\mu\text{s}$

按照 Abel^[8] 的数据处理方法, 我们计算了钒的双微分散射截面. 从处理结果看, 在能量转移为 20, 25, 28 meV 处分别有峰存在 (见图 8), 它反映了钒样品的晶格振动声子谱的特征. 1976 年在法国 Grenoble 高通量堆上使用 IN-4 旋转晶体飞行时间谱仪测量了钒样品的声子谱, 它测出了三个峰^[9]. 我们的结果与他们的结果比较, 三个峰位符合得很好. 1959 年 Singh et al.^[10] 使用非中心最近邻和中心次近邻相互作用模型计算, 钒的声子谱也有三个峰存在. 因此我们测量的结果与理论模型的计算结果也是符合的.

这里说明一下, 我们的钒样品测量结果只处理到双微分散射截面, 没有对仪器的分辨率进行修正. 如果要精确地计算声子态密度, 可按 Marshall^[11] 的单声子非相干散射截面公式计算.

此外, 在这台谱仪上, 我们对 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 晶体进行了准弹性和非弹性中子散射实验. 在

表 1 与国外同类型谱仪主要性能指标比较¹⁾

序 号 No.	著 者	源 通 量 (n/cm ² · sec)	中子束面积 (cm ²)	初级中子能量 E ₀ (meV)	能量分辨率 $\Delta E_0/E_0$ (%)	样品位置 中子流强 (n/min)	样品位置 中子流强 (n/cm ² · min)	晶体转速 (rpm)
1	Gläser	5.6×10^{13}	4×5	40	6.0	4.8×10^5	2.3×10^4	14000
2	Meister	2×10^{13}	4.5×8	60	2.1	4.5×10^5	1.2×10^4	6000
3	Brockhouse	2×10^{14}	2.5×5	44	1.0	2.5×10^5	2.0×10^4	8000
4	Hialing		2.5×10	300	4.4	12.0×10^5	4.6×10^4	12000
5	4# 谱 仪	2.7×10^{13}	3.5×4.5	52	5.1	2.3×10^5	1.0×10^4	7000

序 号 No.	探测器位置 脉冲宽度 (μs)	分辨率 $\Delta t_0/t_0$ (%)	能量转移 ε (meV)	分辨率 $\Delta \varepsilon/\varepsilon$ (%)	钚样品厚 (cm)	散 射 角 (°)	信号/本底	单 色 器
1	40	5.7	15	20	0.200	135	20	Al(111)
2	34	3.8	35	14				Al(111)
3	22	2.0	19	10				Al(111)
4	13.3	6.6	275	6.8	0.225	90	17.5	Cu(220)
5	38	5.9	25	12.9	0.424	90	30	Ge(111)

1) 引自 IDO-17134 (1966).

90° 散射角位置上测到一个能量转移为 12 meV 的非弹性散射峰。关于 α -LiIO₃ 单晶的内部离子扩散运动及非弹性散射的实验研究工作正在进行中。

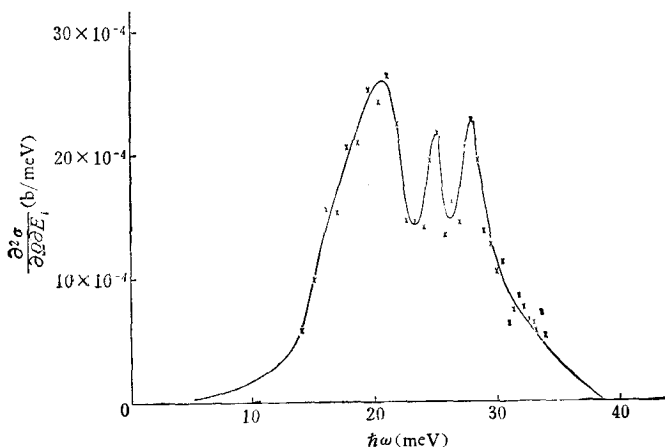


图8 钒的双微分截面测量结果 90°散射, $E_0 = 52\text{meV}$

四、讨 论

本文简单地描述了我们自己设计制造的一台旋转晶体飞行时间谱仪,与国外同类型谱仪相比(见表1),我们的谱仪较为简单和经济。实验结果表明,这台谱仪是可用的。钒的总散射截面只有 5.13 b,而非相干非弹性散射截面很小。因此,在反应堆功率如此之低(3000kW),中子通量很小的情况下,钒的非弹性散射中子双微分截面的实验测量工作是十分艰难的。因此,提高反应堆中子通量是非常想往的。

我们的谱仪在提高单色束强度方面尚有潜力,如增加单色器的可使用面积。在提高探测器效率方面,可把 BF₃ 计数管改为 He³ 计数管。在反应堆改建后,可将中子的通量提高数倍,这样将会缩短我们的实验周期。

利用旋转晶体飞行时间谱仪,可以为凝聚态物质的动力学研究提供有力的情报。它可测定金属或合金中的声子谱、缺陷和定域模、散射律等。同时,在液态物质的分子扩散运动和分子转动能级的研究也可以发挥作用。我们的谱仪与目前世界上先进的谱仪相比,在自动控制、数据自动处理等方面还有很大的差距。

这台谱仪的机械装置部分是由我所实验工厂吴润、赵士吾、马连江、李仲芳等同志设计的,陈荣范、焦传荣协助安装调整并改进了晶体台。电子学仪器是我所十三室齐仲诚、蔡镛镛、刘德润同志制作的。组内一些同志参加了安装和钒样品测量工作,在此一并表示感谢。

参 考 文 献

- [1] B. N. Brockhouse, *Bull. Am. Phys. Soc.*, **3**(1958), 233.
- [2] B. N. Brockhouse, "Methods of Neutron Spectrometry" in *inelastic scattering of neutrons in solids and liquids* (IAEA Vienna 1961), p. 134.

- [3] W. Gläser, "A. Rotating Crystal Spectrometry" in Proc. symp. neutron time-of-flight methods. (Saclay. France. July 1961), p. 301—308.
- [4] O. K. Harling, *The review of scientific instruments*, **37**(6) (1966), 697.
- [5] D. A. O'Connor, *Nucl. Instr. Methods*, **8**(1960), 244.
- [6] H. Meister, *Kerntechnik isotopentechnik und chemie.*, **10**(3) (1968), 145.
- [7] 安万寿等, 物理学报, **17**(1961), 222.
- [8] W. Abel, KFK-2189, (1976).
- [9] P. Schweiß, KFK-2054, p. 11.
- [10] D. N. Singh and W. A. Bowers, *Phys. Rev.*, **116**(1—3) (1959), 279.
- [11] W. Marshall and S. W. Lovesey, "Theory of thermal neutron scattering" (1971), p. 87.

A ROTATING CRYSTAL NEUTRON TIME-OF-FLIGHT SPECTROMETER FOR CONDENSED MATTER INVESTIGATION

LI ZHU-QI RUAN JING-HUI WU SHAN-LING

YANG TONG-HUA HE MIN LU TING

CHENG ZHI-XU CHEN GUI-YING YE CHUN-TANG

(Institute of Atomic Energy, Academia Sinica)

ABSTRACT

A rotating single crystal thermal neutron time of flight spectrometer was constructed in IAE for the study of various dynamic process in condensed matter. The surplus reflections from undesired crystallographic planes in the rotating monochromator (Ge) is eliminated by carefully choosing a proper orientation of the rotating axis in the (III) plane. The range of incident initial neutron energy is from 10 meV to 100 meV; The corresponding energy resolution is 2.5 to 7.2% with intensities adequate for inelastic scattering studies. Based on the work of Brockhouse et al.^[1,2], we have calculated a theoretical value of the resolution for neutrons scattered from the sample and compared it with measured results. Inelastic neutron scattering spectra from vanadium sample is presented and comparison with other spectrometers of similar type is given.