专题:关联电子材料与散射谱学

# 中国散裂中子源缪子谱仪及其应用展望\*

李强1)2) 李样1)2) 吕游1)2) 潘子文3) 鲍煜1)2)†

1) (中国科学院高能物理研究所, 北京 100049)

2) (散裂中子源科学中心, 东莞 523803)

3) (中国科学技术大学, 核探测与核电子学国家重点实验室, 合肥 230026)

(2024年7月5日收到; 2024年9月6日收到修改稿)

中国散裂中子源二期升级工程包含建设缪子实验终端和一条表面缪子束线,并规划未来建设负缪子束 线和衰变缪子束线.表面缪子束线预计2029年建成出束,有望成为我国首个人造缪子源实验平台.缪子自旋 弛豫/旋转/共振谱学和负缪子X射线分析谱学是缪子源平台最重要的应用技术,分别在材料磁性分析和元 素成分无损测量方面具有独特优势,在磁性、超导、新能源、科技考古等多学科领域取得了大量瞩目成果.本 文围绕中国散裂中子源缪子实验终端及其谱仪建设,分别介绍了缪子自旋弛豫/旋转/共振谱学和负缪子 X射线分析谱学的基本原理、特色优势,以及基于缪子实验终端的谱仪物理设计和应用展望;最后展望了该 缪子实验终端未来的缪子束线规划和更多样化的应用场景.

关键词:中国散裂中子源,缪子实验终端,缪子自旋弛豫/旋转/共振谱学,负缪子 X 射线分析谱学
PACS: 76.75.+i, 78.70.En, 14.60.Ef
DOI: 10.7498/aps.73.20240926

1 引 言

響子 (muon,  $\mu^-/\mu^+$ ) 是宇宙中的基本粒子之 一, 1936 年由 Neddermeyer 和 Anderson<sup>[1]</sup> 在利用 威尔逊云室观测宇宙射线时发现. 它与我们熟知的 电子一样, 带有一个单位负电荷或正电荷 (反缪 子), 自旋 1/2, 参与电磁和弱相互作用<sup>[2]</sup>. 通常称 带负电荷的缪子为负缪子, 带正电荷的缪子为正缪 子. 缪子质量 105.7 MeV/ $c^2$  (c 为光速, 1 MeV/ $c^2$  = 1.783×10<sup>30</sup> kg), 大约是电子质量的 207 倍, 因此其 有时候也被称为"重电子". 与电子不同的是, 缪子 不是稳定粒子, 它的自由态寿命约为 2.2 µs<sup>[3]</sup>. 以 µ<sup>+</sup> 为例, 符合粒子物理标准模型的缪子衰变方式和分 支比如下<sup>[4]</sup>:  $\begin{cases} \mu^+ \to e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_{\mu}, & \sim 100\%, \\ \mu^+ \to e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_{\mu} + \gamma, & (1.4 \pm 0.4) \times 10^{-2}, \\ \mu^+ \to e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_{\mu} + e^+ + e^-, & (3.4 \pm 0.4) \times 10^{-5}. \end{cases}$ (1)

除此之外,物理学家还预言了超出标准模型的 衰变过程如 $\mu \rightarrow e\gamma$ , $\mu \rightarrow eee \ \mu \mu N \rightarrow eN$ (缪子在 原子核附近变成电子)等<sup>[5-8]</sup>.缪子物理实验还包括 缪子反常磁矩和电偶极矩测量,它们都预示了超出 标准模型的新物理,是当前国际研究热点之一<sup>[9-13]</sup>. 除了前沿物理研究,缪子在凝聚态物理、材料科 学、化学、科技考古等多学科应用方面也很有价值. 目前国际上应用最广泛的缪子自旋弛豫/旋转/共振 (muon spin relaxation/rotation/resonance,  $\mu$ SR), 是利用极化  $\mu$ +衰变产生正电子的空间分布不对称 性,研究物质微观磁性和判断是否磁铁有序的技

<sup>\*</sup> 中国科学院基础前沿科学研究计划"从0到1"原始创新项目(批准号: ZDBS-LY-SLH009)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: yubao@ihep.ac.cn

<sup>© 2024</sup> 中国物理学会 Chinese Physical Society

术<sup>[14]</sup>. 缪子巨大的旋磁比 $\gamma_{\mu}/(2\pi) \approx 135.539 \text{ MHz/T}$ 使其在测量极弱磁性、超短程磁有序等方面具有不 可替代的优势.此外,缪子能够在样品块体中随机停 留, 使得 μSR 能测量磁体积分数. 几十年来 μSR 技术已被广泛应用于凝聚态物理、材料科学、化 学、生物大分子等领域的研究,尤其在磁性和超导 方面涌现出大量令人瞩目的成果<sup>[15-22]</sup>. μSR 技术 对于解释关联电子材料复杂的物理现象和机制有 重要作用,有力推动了凝聚态物理的发展<sup>[23]</sup>.μ-易 于被原子核束缚形成缪子原子,其能级跃迁辐射 的 X 射线能量远高于相对应的电子跃迁 X 射线, 这一现象最早由我国物理学家张文裕<sup>[24]</sup>于1949年 发现. 负缪子 X 射线分析谱学 (muon-induced Xray emission, MIXE) 相比于传统 X 射线荧光分 析 (XRF) 有对碳、氮、氧、锂等轻元素特别敏感的 独特优点,在地外样品、科技考古、锂离子电池、功 能材料等热门领域的元素成分无损测量方面发挥 了重要作用<sup>[25-31]</sup>. 缪子原子半径远小于普通原子, u-与氘氚形成束缚态原子可以大幅降低聚变反应温 度.因此μ-还可被用于氘氚聚变反应的催化研究<sup>[32]</sup>.

缪子的来源可以分为两类. 一类是天然的宇宙 射线缪子, 能量从 MeV 到 TeV 连续分布, 地表通 量约 104 m<sup>-2</sup>·min<sup>-1</sup>, 可被用于对小尺寸物体 (如核 材料)的散射成像和对大尺度物体(如火山、历史 遗址等)的透射成像研究[33]. 另一类是人造的加速 器缪子源,主要由高能质子(或电子)轰击靶产生π 介子束  $(\pi^0/\pi^+/\pi^-), \pi^\pm$ 在约 26 ns 时间内衰变产 生  $\mu^{\pm}$  束,  $\pi^{0}$  则衰变成两个  $\gamma$  光子. 全世界建成加 速器缪子源的有加拿大粒子加速器中心 TRIUMF、 瑞士保罗·谢勒研究所 PSI、英国中子与缪子源 ISIS、 日本强流质子加速器研究设施 J-PARC 和日本大 阪大学 MuSIC<sup>[34-38]</sup>. TRIUMF, MuSIC 和 PSI 是 连续缪子束, ISIS 和 J-PARC 是脉冲缪子束. 它们 均以 µSR 和 MIXE 技术应用为主, 其中 PSI 拥有 世界上最丰富的 µSR 谱仪样品环境和目前唯一可 用的慢缪子束.其他正在建设缪子源的机构有韩国 稀有同位素科学研究所和中国散裂中子源等[39,40]. 此外,中国科学院近代物理研究所的加速器驱动嬗 变研究装置 CiADS 和上海同步辐射光源的硬 X 射线自由电子激光装置 SHINE 也提出了建设缪 子源的计划[41,42].

我国过去没有建设缪子源的高功率质子加速 器条件, 缪子相关应用研究无法在国内开展. μSR

和 MIXE 谱仪用户只能申请在国际缪子源装置上 开展实验, 束流时间竞争非常激烈, 极大制约了 我国缪子应用研究领域的发展.中国散裂中子 源 (CSNS) 为我国建设缪子实验终端提供了首个 平台. 自 2008 年 CSNS 项目建议书提出发展缪子 科学以来,相关科研人员做了大量缪子源实验终端 设计和关键技术研究<sup>[43,44]</sup>. CSNS二期升级工程 (CSNS-II) 将缪子源实验终端纳入建设内容, 总体 规划了表面缪子束、负缪子束和衰变缪子束3条束 线 (其中表面缪子束线将在 CSNS-II 项目期间建 设), 重点开展基于 µSR 谱仪的材料微观磁性质研 究和基于 MIXE 谱仪的样品元素成分无损测量研 究,覆盖凝聚态物理、材料科学、科技考古、化学、 生物大分子等多个学科领域. 缪子物理实验、缪子 成像、缪子慢化、单粒子效应等探索性研究也将在 实验终端上开展.本文将重点介绍 µSR 和 MIXE 技术的基本原理、特色优势,以及基于 CSNS-II 的 谱仪物理设计和应用展望. CSNS-II 缪子谱仪将为 我国科学家和广大用户提供一个非常有国际竞争 力的实验平台.

## 2 CSNS-II 缪子实验终端

CSNS 大科学装置整体布局如图 1 所示. 一期 建成了负氢离子源、直线加速器、快循环同步加速 器 (rapid cycling synchrotron, RCS)、中子靶站、 多台中子谱仪和白光中子实验终端<sup>[45,46]</sup>. 截至目 前, CSNS 完成了国内外用户实验 1500 余项, 在新 型超导、高强合金、新能源、先进功能材料等多个 重点领域取得了创新成果<sup>[47-49]</sup>. CSNS-II 于 2024 年 3 月启动, 建设周期 5 年 9 个月, 内容包括质子束 功率从目前 160 kW 提升至 500 kW; 新增 10 余台 中子谱仪; 建设高能质子束实验终端和缪子实验终 端 (muon station for science technology and industry, MELODY). CSNS-II 脉冲质子束的质子 能量 1.6 GeV, 脉冲频率 25 Hz, 并从 RCS 每秒引 出 1 个脉冲输运至缪子实验终端打靶产生缪子束.

MELODY 规划了 1 个靶站和 3 条缪子束线, 如图 2 所示. CSNS-II 将建设完成靶站、终端大 厅、表面缪子束线和 μSR 谱仪,同时开展负缪子束 线、衰变缪子束线和 MIXE 谱仪的物理设计与 关键技术研究.高能质子脉冲打靶后进入废束站, 会在靶体和废束站产生大量 π介子、中子、电子、伽



图 1 CSNS-II 科学装置总体概览 Fig. 1. General overview of the CSNS-II scientific facility.



图 2 CSNS-II 缪子实验终端的束线布局

Fig. 2. Layout diagram of the beam lines of the CSNS-II muon experiment terminal.

马等放射性粒子, 需要做好靶冷却和辐射屏蔽措施. 缪子靶站屏蔽主要由碳钢板和混凝土构成. 靶体采用 24 cm×24 cm×1.24 cm 厚铜以提高缪子产额和提升散热性能. 质子束流和靶平面夹角 7°可以使束线获得高缪子收集效率<sup>[50]</sup>. 根据  $\pi$  介子衰变位置不同, 一般将缪子束分为表面缪子( $\pi$ 介子衰变位置不同, 一般将缪子束分为表面缪子( $\pi$ 介子衰变位置不同, 一般将缪子束分为表面缪子( $\pi$ 介子衰变症置不同, 一般将缪子束分为表面缪子( $\pi$ 介子衰变症量、和量子)、衰变缪子( $\pi$ 介子飞出靶后在飞行过程中衰变,  $\mu^{\pm}$ )和云缪子( $\pi$ 介子在动量筛选器前衰变产生的缪子空间分布类似云状,  $\mu^{\pm}$ )<sup>[50,51]</sup>. 表面缪子束极化率接近 100%, 动量 29.8 MeV/*c*, 适用于  $\mu$ SR 技术研究; 衰变缪子束极化率约 70%—

80%, 动量通常 15—120 MeV/*c* 可调, 可用于密封 样品或厚样品内部的 μSR(μ<sup>+</sup>) 或 MIXE(μ<sup>-</sup>) 实 验. 云缪子极化率很低, 一般需要通过动量筛选从 极化缪子束中去除.

MELODY 的表面缪子束和负缪子束共用一 组 500 mm 孔径收集螺线管和一段束线,用于收集 并输运表面 μ<sup>+</sup> 和动量相近的衰变 μ<sup>-</sup> 至双向偏转 二极磁铁. μ<sup>+</sup> 和μ<sup>-</sup> 经过双向偏转二级磁铁后分别 向上和向下偏转 34°进入表面缪子束线和负缪子束 线.表面缪子束线的聚焦结构采用全螺线管磁铁的 技术方案,并且使用 3 个二极偏转磁铁过滤中性粒 子本底和优化束线空间布局,使用一个维恩过滤

表 1 经人工智能优化算法模拟得到的不同束斑下 SMT1 和 SMT2 实验终端的缪子束流强度 Table 1. Muon beam intensity of SMT1 and SMT2 under different beam spots simulated by using artificial intelligence optimization algorithm.

東斑尺寸/mm	10	20	30	50	100
SMT1终端流强/(µ·s <sup>-1</sup> )	$1.1 \times 10^{5}$	$7.3{ imes}10^5$	$2 \times 10^{6}$	$8.2 \times 10^{6}$	$1.6 \times 10^{7}$
$SMT2终端流强/(\mu \cdot s^{-1})$	$5.9{ imes}10^4$	$1.7{ imes}10^5$	$8.4{ imes}10^5$	$6.5{ imes}10^6$	$1.8 \times 10^{7}$

器 (surface muon Wien filter, SMWF) 筛选和去 除束流中的带电粒子本底 (主要是正电子).由于缪 子脉冲是时间间隔 409 ns 的双束团结构,冲击磁 铁 (surface muon kicker, SMK) 和切割磁铁 (surface muon septum, SMSP) 将其中一个束团偏转 15° 传输至表面缪实验终端 (surface muon terminal, SMT) SMT2,另一个束团经第 2个偏转磁铁传输 至 SMT1.两个实验终端的束斑大小均可通过准直 器组从直径  $\Phi$ 10 mm— $\Phi$ 100 mm 自由调节,束流 强度也随之变化,如表 1 所列. MELODY 的表面 缪子束极化率超过 95%,主要用于建设一台通用  $\mu$ SR 谱仪和一台特殊样品环境 (强场、高温、压力 或射频等)的  $\mu$ SR 谱仪.其中 SMT2 还将作为测 试束线用于缪子物理实验、成像、缪子慢化等多学 科的探索性研究.

负缪子束线通过3个聚焦螺线管从屏蔽墙中 引出,经扇形二极磁铁偏转至竖直方向,后经两个 聚焦螺线管传输至负缪子实验终端 (negative muon terminal, NMT). 一台 SMWF 在最后两个 聚焦螺线管之间用以去除π-介子、电子等本底.由 于与表面缪子束线共用收集螺线管和双向偏转二 极磁铁, μ<sup>-</sup> 动量被限制在 28 MeV/c 左右不可调 节,将主要用于建设一台通用 MIXE 谱仪. 衰变缪 子束通过一组三元四极磁铁收集 π+/π-粒子, 经扇 形二级磁铁偏转 30°筛选出不同动量 (最高至 220 MeV/c) 的  $\pi^+$  或  $\pi^-$  注入超导螺线管磁铁. 超 导螺线管长 7 m 可使 π<sup>+</sup> 或 π<sup>-</sup> 有足够时间衰变以 得到高流强 µ<sup>+</sup> 或 µ<sup>-</sup> 束. 3 台四极磁铁和 1 台二极 磁铁对μ+或μ-束流进行聚焦和偏转.1台冲击磁 铁和2台切割磁铁将束流脉冲的2个束团分别传 输至衰变缪实验终端 (decay muon terminal, DMT) DMT1 和 DMT2. 衰变缪子束将主要用于高穿透 需求样品的  $\mu$ SR( $\mu^+$ ) 和 MIXE( $\mu^-$ ) 实验,并可以 开展缪子成像、单粒子效应、探测器标定测试等多 学科应用研究. MELODY 建成后将有望是世界上 单脉冲强度最高的缪子源 (相比于 ISIS 的~3.3×  $10^3$  µ<sup>+</sup>/pulse 和 J-PARC 的 ~4.4×10<sup>4</sup> µ<sup>+</sup>/pulse), 这为开展缪子应用研究提供了有力的竞争条件,同时也为终端的 μSR 和 MIXE 谱仪建设带来挑战.

## 3 缪子自旋弛豫/旋转/共振谱仪 (μSR)

μ<sup>+</sup> 衰变产物正电子的动能从零到最大值 52.82 MeV 连续分布,平均动能 36.9 MeV. 衰变符 合弱相互作用宇称不守恒,即正电子出射角度分布 不是各向同性的,其与正电子动能的关系由 Michel 公式描述<sup>[52]</sup>:

$$\mathrm{d}\Gamma = \frac{1}{4\pi\tau_{\mu}} 2\varepsilon^{2} \left(3 - 2\varepsilon\right) \left[1 + \frac{2\varepsilon - 1}{3 - 2\varepsilon} \mathrm{cos}\theta\right] \mathrm{d}\varepsilon \mathrm{d}\Omega, \quad (2)$$

式中 $\varepsilon = E_{e^+}/E_{e^+,max}$ ,即正电子动能与最大动能的 比值;  $\theta$  是正电子出射角度与缪子极化方向的夹角; d $\Omega$  是空间立体角元. Michel 公式揭示了正电子动 能越大,沿缪子自旋方向出射的概率越大. 其中  $\alpha(\varepsilon) = (2\varepsilon - 1)/(3 - 2\varepsilon)$ 被称为非对称因子 (asymmetry, A), 是  $\mu$ SR 技术的关键参数. 大量缪子衰 变的全部能量正电子的平均A值为 1/3,即正电子 总体上沿着缪子自旋方向出射.

与所有自旋粒子一样, 缪子自旋磁矩在磁场作 用下发生拉莫进动 (即缪子自旋方向绕着磁场为中 心轴旋转), 进动角速度  $\omega = \gamma_{\mu}B$ . 式中 *B* 是缪子所 在位置磁场强度,  $\gamma_{\mu} = g_{\mu} \frac{e}{2m_{\mu}} = 851.615$  MHz/T. 缪子自旋进动角速度与所处位置的磁场强度成正 比, 即可以反映磁场大小.

缪子非对称衰变和磁场下的自旋拉莫进动是 μSR 技术的物理基础.μ<sup>+</sup>注入样品约 10 ps 内完 成电离、激发等能损过程达到热平衡态.整个热化 过程缪子动量方向可能经过上百次变化,但极化方 向不会受到影响.

#### **3.1** μSR 技术基本原理

以 μ<sup>+</sup> 注入样品时刻为起点 (连续束由缪子探测器测得,脉冲束由加速器提供), *t* 时刻位于某空间立体角的正电子探测器测到的正电子计数为

$$N(t) = N_0 \exp(-t/\tau_{\mu}) \left[1 + AP(t)\right] + B, \quad (3)$$

式中N<sub>0</sub>是初始时刻的有效计数,A是(2)式所述 的非对称因子, B是探测器本底. 考虑正电子探测 效率、空间几何效率等实际因素, A值一般小于平 均值 1/3. 与 (2) 式不同, 由于样品磁场引起的缪 子自旋方向变化, P(t)是时间关联的极化函数. 实 验上通过沿μ+初始自旋方向前后放置两组对称探 测器阵列,测量其上正电子计数率之差(除以两探 测器阵列计数率之和)获得非对称因子参数A.探 测器阵列覆盖的θ角越大, A值越小, 但可以提高 正电子计数效率.适当减少低能量正电子计数,可 以有效提高 A 值. 一次 µSR 实验一般累积上百万 个衰变事件. 图 3 和图 4(a) 给出了磁场 µSR 技术 基本原理及正电子计数随衰变时间变化的情况 [53]; 消除指数衰减项并归一化到 A, 得到极化函数 P(t) 如图 4(b) 所示. P(t) 正是反映样品磁性信息 的所在: P(t)振荡周期反映 Bu磁场强度;振幅衰 减反映场强展宽分布;振荡中心轴偏移还可以反映 磁场空间占比或磁场方向等.



图 3 µSR 技术基本原理<sup>[53]</sup>

Fig. 3. Schematic diagram of the basic principles of the  $\mu {\rm SR}$  technology  $^{[53]}.$ 

最简单的一类情况是强耦合磁性单晶, 缪子在 样品内不同位置的自旋行为一致, 极化函数 *P*(*t*) 满足如下公式:

$$P(t) = \cos^2\theta + \sin^2\theta\cos\left(\gamma_{\mu}B_{\mu}t\right) \tag{4}$$

式中,  $\theta$ 是样品内部磁场方向与缪子初始极化方向 的夹角.  $\theta = \pi/2$ 时, 则 P(t)是以 A 为振幅 (这里 A归一化为 1), 以 0 为中心轴的余弦振荡.  $\theta \neq \pi/2$  时,则P(t)是以 $\cos^2\theta$ 为中心轴的余弦振荡.例如, 反铁磁 Li<sub>2</sub>CuO<sub>2</sub>样品中,缪子自旋极化平行于  $\alpha$ 晶轴,测得A振荡曲线如图 5 所示<sup>[54]</sup>.3个振荡频 率分别对应3种晶格点位的磁场强度.将自旋极化 调整为垂直于  $\alpha$  晶轴则振荡消失,即此时 $\theta = 0$ .



图 4 (a) 正电子计数随 μ<sup>+</sup> 衰变时间变化的原始谱; (b) 消除指数衰减项并归一化到 *A* 的极化函数谱<sup>[53]</sup>

Fig. 4. (a) Original spectrum of positron counts measured by the detector as a function of  $\mu^+$  decay time; (b) the polarization function removed the exponential decay term and normalized to asymmetry A<sup>[53]</sup>.

对于内部磁场强度一致、方向随机的多晶样品,极化函数 P(t) 变成:

$$P(t) = 1/3 + 2/3\cos(\gamma_{\mu}B_{\mu}t), \qquad (5)$$

式中 1/3 可以理解为各向同性磁场在缪子自旋极 化方向的投影分量, 2/3 为在垂直自旋极化方向平 面上的投影分量.若磁场强度略有展宽,则不同位 置的缪子自旋进动角速度不再完全一致.自旋极化 度随衰变时间逐渐减弱直至消失,即*P*(*t*)呈现去 极化过程.因为实际情况下磁场强度不可能完全一 致,所以*P*(*t*)大多数时候被称为"去极化函数".以 高斯展宽为例,*P*(*t*)可以表示为

 $P(t) = 1/3 + 2/3\cos(\gamma_{\mu}\langle B_{\mu}\rangle t) \exp\left[-\sigma^{2}t^{2}/2\right], \quad (6)$ 其中  $\langle B_{\mu}\rangle$  是平均磁场强度,  $\sigma$  是与高斯展宽程度关

联的去极化率参数.如铁基高温超导体 LaFeAsO 中 超导和磁性相互竞争,因为有序磁矩很小(<0.3μ<sub>B</sub>) 导致很多技术手段无法测量.μSR 实验在其"1111" 体系中测到了有序磁耦合,在确定磁性方面发挥了 重要作用(图 6)<sup>[55]</sup>.



图 5 (a) 缪子自旋极化方向平行于反铁磁样品 Li<sub>2</sub>CuO<sub>2</sub> 测得的 μSR 谱; (b) 对 μSR 谱快速傅里叶变换, 3 个振荡频 率清晰可见<sup>[54]</sup>

Fig. 5. (a)  $\mu$ SR signal (here called "Asymmetry") measured in the antiferromagnetic state of Li<sub>2</sub>CuO<sub>2</sub> with the initial muon polarization is along the *a*-axis; (b) in the fast Fourier transform of the  $\mu$ SR signal, three spontaneous frequencies are seen<sup>[54]</sup>.



图 6 铁基高温超导体多晶样品 LaFeAsO 的 μSR 谱, 在 145 K 和 100 K 低温下分别表现出顺磁态和反铁磁态<sup>[5]</sup>

Fig. 6.  $\mu$ SR signals recorded in a polycrystalline sample of LaFeAsO in the paramagnetic state (145 K) and in the antiferromagnetic state (100 K)<sup>[55]</sup>.

更进一步,对于磁场强度和方向都随机分布的 情况 (如大多数顺磁态样品,任意方向平均磁场为 零), *P*(*t*)可以表示为 (7) 式或 (8) 式:

$$P^{G}(t) = 1/3 + 2/3 \left(1 - \sigma^{2} t^{2}\right) \exp\left[-\sigma^{2} t^{2}/2\right],$$
 (7)

$$P^{\rm L}(t) = 1/3 + 2/3 \left(1 - at\right) e^{-at}, \qquad (8)$$

式中,  $P^{G}(t)$ 和  $P^{L}(t)$ 分别为服从高斯分布和洛伦 兹分布的去极化函数,  $\sigma \pi a$ 是与展宽程度关联的 去极化率参数. 它们随衰变时间变化的  $\mu$ SR 谱如 图 7 所示<sup>[53]</sup>.



图 7 顺磁态磁场分布服从 (a) 高斯 "Kubo-Toyabe"公式 和 (b) 洛伦兹 "Kubo-Toyabe"公式的缪子去极化函数<sup>[53]</sup> Fig. 7. Time evolution of the muon polarization P(t) in a system where the magnetic moments are randomly oriented. The field distribution produces the so-called (a) Gaussian and (b) Lorentzian "Kubo-Toyabe" function<sup>[53]</sup>.

(7) 式和 (8) 式就是著名的"Kubo-Toyabe"公 式,可以被理解为无数组磁场强度相同、方向随机 的 *P*(*t*) 函数叠加的结果.利用去极化函数公式拟 合实验测量数据,可以定性或定量地分析样品内部 磁性状态和分布等信息.更多去极化函数公式还包 括介于高斯和洛伦兹分布之间的情况以及考虑磁 场涨落的情况等<sup>[53]</sup>.

## 3.2 µSR 技术应用

μSR 谱学和实验技术被广泛应用于磁性、超导、半导体、新能源等多学科研究领域,其中磁性和超导两类用户量超过 80%.近几年 μSR 用户量仍在快速增长.在磁性方面,缪子对磁场高灵敏性可使其测量极弱磁性、局域磁性、超短程磁相互作用、不同磁相竞争和共存等各类磁性质和行为; μSR 可测量的自旋涨落频率范围覆盖 10<sup>5</sup>—10<sup>12</sup> Hz,是研究自旋玻璃、量子自旋液体等磁阻挫体系的有力手段;对于强关联电子体系的巨磁阻材料, μSR 可

以给出重要的自旋动力学信息,其中一个最重要发现就是导电铁磁性和绝缘铁磁性共存,证实了巨磁阻材料可以被用于自旋电子学器件(图 8(a))<sup>[19]</sup>.

在超导方面,超导和磁性的微观相互作用是凝 聚态理论和实验的核心问题.越来越多的证据表明 超导可以与铁磁或反铁磁性共存,但目前没有统一 的理论去解释.μSR可以测量超导样品中的弱磁 相、超导相和磁相占比等(图 8(b))<sup>[56]</sup>.零场μSR技 术通过测量库伯对十分微弱的自发局部磁有序来 研究超导体内部的时间反演对称性破缺 (图 8(c))<sup>[57]</sup>. 时间反演对称性破缺的超导态非常稀少,利用μSR 技术成功发现这一现象的非常规超导体还有钙钛 矿 Sr<sub>2</sub>RuO<sub>4</sub>、非中心对称 LaNiC<sub>2</sub>、方钴矿 PrOs<sub>4</sub>Sb<sub>12</sub> 和 PrPt<sub>4</sub>Ge<sub>12</sub>等<sup>[23]</sup>.外加横向磁场 (垂直于缪子自 旋极化方向)的μSR 技术是研究超导体内部磁场 分布的常用方法,可以测量超导体的磁场穿透深 度、超流密度、奈特位移,从而给出超导配对对称 性的重要信息<sup>[58]</sup>.



图 8 (a) ZF- $\mu$ SR 揭示了巨磁阻 La<sub>0.67</sub>Ca<sub>0.33</sub>MnO<sub>3</sub> 中缪子自旋涨落存在快慢两个成分,即存在两个空间分离区域具有非常不同的 Mn 离子自旋动力学; (b)  $\mu$ SR 实验观察到超导体 UCoGe ( $T_{SC} = 0.8$  K) 在 T = 3 K 以下出现长程磁有序,与超导电性共存<sup>[56]</sup>; (c) 非中心对称金属间超导体 LaNiC 的  $\mu$ SR 实验发现了超导性与自发磁性出现的温度一致,意味着超导状态下时间反演对称性 被打破<sup>[57]</sup>

Fig. 8. (a) Two components of fast and slow muon spin fluctuation in  $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$  were revealed by ZF- $\mu$ SR, i.e., there are two separated regions with very different Mn spin kinetics; (b) in  $\mu$ SR experiments, it was observed that the superconductor UCoGe ( $T_{SC} = 0.8$  K) exhibited a long-range magnetic order below T = 3 K, which coexisted with superconductivity; (c) the  $\mu$ SR experiments of the non-centrally symmetric intermetallic superconductor LaNiC found that the occurrence of superconductivity coincided well with the appearance of spontaneous magnetism, which means that the time reversal symmetry was broken in its superconducting state<sup>[57]</sup>. 其他方面, μSR 技术还可用于研究半导体载流 子特性和稀磁半导体; 锂离子电池、太阳能电池等 新能源; 量子扩散、离子迁移等输运过程; 化学反 应动力学和氢同位素等. Yokoyama 等<sup>[59]</sup>利用 μSR 谱测量了光激发锗半导体内部载流子寿命和迁移 率的温度依赖性, 这是太阳能电池效率的关键品质 因数, 而传统测量技术一般只能提供体积平均寿命.

μSR 技术相比核磁共振 (NMR)、电子自旋共振 (EPR) 和中子散射技术等有独具特色之处.

1) 缪子是纯磁性探针,无电四极矩影响,数据 分析相对简单清晰.

 可以测量任意磁性和磁场分布,尤其中子散 射技术难以测量的超短程磁有序和磁体积分数等.

3) 具有超高灵敏度, 静态磁矩测量下限 0.001 μ<sub>B</sub>, 甚至可测量核磁矩.

4) 可测量的磁性动态涨落频率范围弥补中子 散射和核磁共振的间隙,具有很好的互补作用,如 图 9 所示.

5) 对样品形态 (块材、粉末、液态、气态等) 和 成分无特殊要求.



图 9 不同实验技术可测量的磁性涨落频率范围,  $\tau_c = 1/\nu_c$  是与磁涨落频率相关的特征涨落时间

Fig. 9. Dynamical ranges accessible to different techniques, the  $\tau_c = 1/\nu_c$  is the characteristic fluctuation time associated with the magnetic fluctuations.

### 3.3 MELODY 终端 µSR 谱仪

世界上总共有 5 家缪子源装置的几十台 μSR 谱仪,可以分为连续束谱仪和脉冲束谱仪两类.连 续束谱仪探测器结构简单,时间分辨率高.为了避 免衰变事例堆积和正电子本底,一般计数率不超 过 10<sup>4</sup> s<sup>-1</sup>,衰变时间窗不超过 10 μs.脉冲束上,一 个脉冲有大量缪子同时进入样品.脉冲束谱仪探测 器需要高度阵列化以避免正电子事例堆积,因此相 对复杂.脉冲宽度一般在十几至上百纳秒,导致谱 仪时间分辨较差.但其计数率没有限制,可以达到 10<sup>5</sup> s<sup>-1</sup>以上水平.脉冲束谱仪基本没有正电子本 底,衰变时间窗可以达到 30 μs 以上.MELODY 缪子束流与 ISIS 和 J-PARC 相比,具有重复频率 低和单脉冲强度高的特点.μSR 谱仪必须设计超过 同类谱仪数倍的探测器通道数以探测每个脉冲 的大量缪子衰变事件,以达到同等计数率水平.如 图 10 所示, CSNS-II 表面缪子束μSR 谱仪主要包 括低温恒温器、真空样品室、磁场设备和探测器阵 列系统<sup>[60]</sup>.



图 10 MELODY 表面缪子束 μSR 谱仪结构<sup>[60]</sup> Fig. 10. Structure of the μSR spectrometer on the surface muon line of the MELODY<sup>[60]</sup>.

绝大多数 μSR 实验需要表征样品磁性在低温 环境下的行为. 超导和量子磁性材料一般要求温度 低于 4 K; 多铁、稀磁半导体等功能材料需要 2— 300 K 的变温条件; 电池类材料一般要求温度达 到 600 K 以上. 因此, 我们使用一台低温恒温器提 供 2—300 K 温度环境, 并设计了极低温插件接口 保留扩展至 300 mK 以下的能力. 样品杆将样品送 至低温恒温器尾部工作区, 并处于真空样品室中 心. 尾部特殊设计了直径 50 mm 的多层镀铝聚酯 薄膜窗, 以确保 μ<sup>+</sup> 可以穿透窗进入样品. 闭循环制 冷机 (CCR) 通常可以覆盖 10—600 K 的温度范 围. 谱仪真空样品室预留了 CCR 接口, 设计了低 温恒温器和 CCR 交替运行模式. 真空样品室采用 六通结构, 上游端口与束流管道相连, 下游端口采 用 fly-past 结构使没有打在样品上的 μ<sup>+</sup> 在远处衰 变以降低本底.其他端口连接低温恒温器、真空设 备和预留连接 CCR 等样品环境.缪子束方向管道 被设计成喇叭口,以保证 99% 的μ<sup>+</sup>通过.

磁场设备提供 3 种类型的磁场环境:外加纵向场(LF,平行于缪子束初始极化方向)、外加横向场(TF,垂直于缪子束初始极化方向)和零场(ZF,抵偿地磁场和环境磁场的影响).由于缪子对磁场的高灵敏性,ZF 是 μSR 实验的基本需求.LF 常被用于区分样品内的静态磁性和动态涨落磁性,通常需要较高场强.我们设计了LF 工作范围 0—5000 G,基本达到非超导磁铁上限.TF 常被用于测量磁场空间分布、转变温度,以及超导样品的奈特位移、伦敦穿透深度和超导态相干长度等.受限于CSNS-II 缪子脉冲宽度(~130 ns),TF 场强不需要太高.我们设计了TF 工作范围 0—400 G,这与国际同类谱仪相当.

在真空样品室和磁场设备的空间约束下, 谱 仪探测器阵列的θ角范围为11°-40°(前向)和 140°-169°(后向). 考虑空间限制和探测器阵列高 通道数需求,我们采用8 mm×8 mm×40 mm 塑料 闪烁体搭配 6 mm×6 mm 硅光电倍增管 (silicon photomultiplier, SiPM)作为谱仪探测器单元,布 置了前向和后向各 1512 个单元的球壳型探测器阵 列以覆盖全部可能的立体角. 每个探测器单元都指 向样品中心,以有效抑制正电子散射和螺旋运动造 成的多重计数. 电子学时间数字转换器 (timer digital converter, TDC) 接收加速器脉冲信号作为 起始时间,多通道探测器单元信号经前端电子学 (front-end electronics, FEE) 定时处理进入 TDC 作为终止时间. 基于现场可编程门阵列 (FPGA) 的多通道 TDC 将每个缪子衰变时间处理成可记录 的数字信息.以 20 mm 束斑为例, MELODY 表面 缪子束的 µSR 谱仪计数率大约为 80 Million/h, 固 有非对称因子 A 达到 0.3 以上. 这是衡量 µSR 谱 仪性能的两个重要指标. 受脉冲频率限制, 计数率 仅达到同类谱仪的较低水平. A 得益于探测器阵列 θ角范围,达到国际目前最好水平.

MELODY 表面缪子束 μSR 谱仪预计 2029 年 完成建设并向用户开放. 它拥有目前世界上最高的 单脉冲强度和最多通道的探测器阵列, 在获得充足 计数率的同时还可以满足用户小束斑、高 A、弱弛 豫测量等需求. 其将与世界上其他 μSR 谱仪一起 为磁性、超导、新能源、先进功能材料等多学科研 究提供支持.

## 4 负缪子 X 射线分析谱仪 (MIXE)

#### 4.1 MIXE 技术基本原理

MIXE 是 MELODY 负缪子束重要应用之一. μ<sup>-</sup>容易被原子俘获形成缪子原子. 俘获过程一般 发生在 10<sup>-9</sup> s以内,并发射俄歇电子. Fermi 和 Teller<sup>[61]</sup> 最早使用经典方法分析了缪子原子辐射 X 射线过程, 双元素体系中俘获概率与原子系数成 正比. 被俘获的μ<sup>-</sup> 通常先进入主量子数  $n_{\mu} \approx 14$ 的 轨道, 随后在 10<sup>-13</sup> s内发生级联跃迁至最低能级  $n_{\mu} = 1$ , 放出能量几keV 至几MeV 的μ-X 射线<sup>[62,63]</sup>. 因为 μ 静止质量约为电子的 207 倍, 根据玻尔模 型可知 μ-X 射线能量是电子 X 射线的 207 倍. 这 一特征使得 MIXE 相对于传统 X 射线荧光分析 (XRF) 具有对轻元素敏感的最大优势.

图 11 是各种元素的缪子原子 K<sub>α</sub> 能量, 即发 生 2p →1s 能级跃迁放出的 X 射线能量. 即使轻 元素 Li, Be, C, N, O 等, 其外层跃迁能级也在几 十 keV, 即为硬 X 射线而非普通原子的可见光至 紫外线, 因而比较容易穿透样品被 X/γ 射线探测 器探测到. 由于 μ-X 射线能量与俘获原子相关, 原 理类似于传统 XRF 技术, 因此可用于样品元素成 分检测和定量分析. 它相对于 XRF 和其他分析技 术的主要优势在于对轻元素非常敏感, 尤其是 Li, Be, C, N, O 等特征 X 射线能量太低很难被 XRF 检测的成分. μ<sup>-</sup> 最终衰变, 或被原子核俘获放出中 子和γ 射线.



图 11 元素周期表中各元素 μ-X 射线的 K<sub>α</sub>射线能量

Fig. 11.  ${\rm K}_{\alpha}$  energies of the  $\mu\text{-}{\rm X}\text{-}{\rm rays}$  for each element in the periodic table.

#### 4.2 MIXE 技术应用

MIXE 技术最有特色的用途是地外样品分析 和文物无损检测. 最近发表的日本"隼鸟2号"采集 的小行星"龙宫"样品和陨石样品的元素成分对比 分析,综合利用了 MIXE、同步辐射 XRF 和电子 探针技术<sup>[64]</sup>.如图 12 所示,μ-X 射线谱中的碳 氧元素特征峰清晰可见,这在 XRF 谱中很难被 检测到.2021 年日本大阪大学使用 XRF 确认了一 个江户时代末期的文物药瓶是含铅的玻璃材质,



图 12 J-PARC 利用 MIXE 技术无损检测 "龙宫" 小行星样品 (红色线) 和 Orgueil 陨石样品 (蓝色线) 的 μ-X 射线谱<sup>[64]</sup> Fig. 12. The μ-X-ray spectra of the "Long Gong" asteroid sample (red line) and the Orgueil meteorite sample (blue line) were measured on the J-PARC μ<sup>-</sup> beam line by using the MIXE technology<sup>[64]</sup>.



图 13 (a) MIXE 和 XRF 技术研究文物药瓶元素成分优势互补, MIXE 谱清晰检测到了汞和氯成分的存在, 而 XRF 谱检测到了 铅、硅成分<sup>[65]</sup>; (b) J-PARC 利用 MIXE 技术测量锂金属在锂离子电池阳极沉积的实验示意图, 他们调节缪子能量对样品进行深度分析, 观察到了锂金属层的存在<sup>[31]</sup>

Fig. 13. (a) MIXE and XRF techniques were used to study the elemental composition of an antiquities vial, and the presence of Hg and Cl elements was detected by the MIXE, while Pb and Si elements were detected by the XRF<sup>[65]</sup>; (b) J-PARC measured the deposition of Li metal at the anode of Li-ion batteries using the MIXE technique, and they adjusted the muon energy to perform a depth analysis of the sample and observed the presence of a Li metal layer<sup>[31]</sup>.

但 XRF 的 X 射线能量较低, 仅限于容器表面分 析. 随后他们在不开封药瓶的情况下, 在 J-PARC 上使用 MIXE 确定了玻璃药瓶中的药剂成分含有 汞和氯 (图 13(a))<sup>[65]</sup>. XRF 和 MIXE 技术联合确认 了铅、硅和氧来自瓶身, 汞和氯来自里面的药剂, 这 与日本药典考证结果一致. 近年来该技术也向锂电 池、功能材料和原子化学等领域发展<sup>[66-68]</sup>. J-PARC 利用 MIXE 测量到了锂离子电池中锂金属在阳极 的沉积 (图 13(b))<sup>[31]</sup>. 意大利研究人员和英国 ISIS 缪子源合作发展了一套 $\gamma$ , n,  $\mu$ <sup>-</sup>联合无损分析技 术,辅以拉曼光谱和扫描电子显微镜综合研究了石 陨石的物理和化学特性<sup>[69]</sup>. MIXE 与其他技术联 合互补共同促成了很多重要成果的产出,它在 J-PARC 和 ISIS 的脉冲缪子源上已成为一种常规实 验方法<sup>[70,71]</sup>. 相对于其他一些技术, MIXE 的特点 如下.1) 可测量的元素范围广,从Li到U,可以同 时甄别多种元素. 2) 样品尺寸限制较小, 可测量不 同厚度或不同大小的样品.3) 可对样品深度扫描, 加速器负缪子束动量可调 (10-120 MeV/c), 可测 量样品内不同深度的元素分布.4)无损分析,可实 现样品非破坏性分析,且基本没有剩余辐射.

## 4.3 MELODY 终端 MIXE 谱仪

MIXE 谱仪通常使用能量分辨率高达 0.1%(半 高全宽 7.4 keV@ 6.0 MeV)<sup>[72]</sup>的高纯锗探测器, 其对 X, γ射线探测效率可以达到 50% 以上. 图 14 是 J-PARC, ISIS, PSI 和 MuSIC 的负缪子实验终 端 MIXE 谱仪, 它们都采用了高纯锗作为其探测 器阵列<sup>[30,73-75]</sup>. 连续束缪子源的 µ-X 射线事例堆积 比例非常低, 仅需少量几台高纯锗探测器近距离放 置在样品周围既可得到高达 10<sup>3</sup>—10<sup>4</sup> s<sup>-1</sup> 的计数 率,且具有比脉冲束谱仪更好的信噪比. PSI 最近 几年在该领域发展非常活跃,他们把 MIXE 定位 为低风险、高影响力的应用技术.脉冲束缪子源的 束团宽度一般在100 ns 量级, 远小于高纯锗的死 时间 (µs 量级), 因此探测器在一个脉冲内只能有 效探测一个 X 射线光子. 束团内 μ<sup>-</sup> 事例一般大于 10<sup>3</sup> pulse<sup>-1</sup>, 且一个 µ<sup>-</sup> 打在样品上可产生多达 15个光子,很容易造成探测器事例堆积问题.所 以, 束流脉冲的重复频率和探测器单元数决定了 u-X 射线的计数率, 且一般很难超过连续束谱仪. 为了提高脉冲束 MIXE 谱仪计数率, J-PARC 的 D2终端已升级到9个高纯锗探测器且增大了探测



图 14 (a) J-PARC, (b) ISIS, (c) PSI和 (d) MuSIC 负缪子束线上的基于高纯锗探测器阵列的 MIXE 谱仪<sup>[30,73-75]</sup> Fig. 14. MIXE spectrometer based on high-purity germanium detector array on the µ<sup>-</sup> beam line of (a) J-PARC, (b) ISIS, (c) PSI and (d) MuSIC<sup>[30,73-75]</sup>.

立体角. ISIS 则通过在样品上下游使用不同能量分 辨率的探测器组合, 以及调整探测器到样品的距离 来提高计数率和避免事例堆积.

MELODY 负缪子束流的脉冲重复频率只有 1 Hz, 单脉冲流强在 20 mm 束斑下约 10<sup>4</sup> pulse<sup>-1</sup>, 且束斑可调. 要达到与 J-PARC(25 Hz)或 ISIS (40 Hz) 接近的 MIXE 实验效率, 需要超过 100 个 高纯锗探测器单元.目前清华大学团队正在针对脉 冲束缪子源 MIXE 实验的瞬时高计数率情况, 研 发分块式读出的高纯锗探测器,有望提高 MELODY 的 MIXE 谱仪计数率. 此外, 碲化镉和碲锌镉探测 器也可用于 µ-X 射线探测. 相比高纯锗它们的能 量分辨略差,但对 10-100 keV 的硬 X 射线探测 效率高, 目可以制作成像素型或条型的二维空间分 辨结构.结合缪子束在样品中注入深度可调的特 点, 碲化镉探测器可以实现对样品元素分布的三维 分析. J-PARC 研究人员使用双面碲化镉条型探 测器对多层样品进行了 µ-X 射线成像分析, 实现 样品元素三维分布测量;后续他们使用编码掩模 成像方法将位置分辨率从 5 mm 提高到 2 mm<sup>[76]</sup>. MELODY 团队计划开展基于像素型碲锌镉探测 器的面向轻元素样品 MIXE 实验研究.

## 5 总结与展望

CSNS-II 建设我国首个缪子源 MELODY,将 实现国内缪子实验平台"从 0 到 1"的突破,解决国 内用户对缪子束流的迫切需求.μSR 和中子相关谱 仪在凝聚态物质的磁性测量方面形成重要互补; MIXE 和中子共振分析、中子俘获 X 射线分析等技 术在元素成分测量和无损检测方面互补; MELODY 缪子束线和 CSNS 大气中子谱仪、反角白光中子 束、伴生质子束共同提供综合辐照实验平台,填补 我国辐照效应领域的缪子源空白.MELODY 和 CSNS 中子相关终端将共同服务于广大用户需求, 支撑重要科研成果产出,使这一国家重大科技基础 设施可以更全面地服务国家重大需求和多学科领 域的应用研究.

MELODY 表面缪子束线实验终端 SMT2,除 了建设复杂样品环境 (高压、激光、射频等) μSR 谱 仪满足用户特殊条件需求外,还将作为测试束线开 展缪子物理实验、缪子慢化等探索实验研究.国际 上一直致力于在缪子源上寻找超出标准模型的新 物理过程,因为缪子物理过程不涉及强相互作用, 理论预言清晰且精度高.MELODY团队正在开展 正反缪子素转换(正缪子素 μ<sup>+</sup>e<sup>-</sup>转化成反缪子素 μ<sup>-</sup>e<sup>+</sup>)过程的寻找实验研究,测试束可用于实验方 法和探测器设施的检验.理论上,足够的实验时间 可以将国际当前测量精度推进至更高水平.随着 MELODY工程建设,基于摩擦冷却的缪子慢化技 术也正在展开,并致力于建设面向用户的慢缪子束 实验终端.慢化后的缪子通过电场加速使其能量从 几个 eV 至几十 keV 可调,可用于样品表面/界面、 薄膜和低维材料的μSR 或 MIXE 技术分析.

MELODY 负缪子束线除建设 MIXE 谱仪外, 还可以开展缪子单粒子效应、缪子催化等实验研究. 纳米级静态随机存储器 (static random access memory, SRAM) 是诸多电子系统核心部件, 是对 辐射最敏感的器件之一. 近几年研究人员利用动 量 13—40 MeV/*c* 的缪子束对不同尺寸的 SRAM 研究了单粒子翻转截面随器件尺寸、工作电压、缪 子种类 ( $\mu$ <sup>+</sup> 与 $\mu$ <sup>-</sup>)、缪子能量的变化关系.  $\mu$ <sup>-</sup> 特有 的俘获反应使单粒子效应翻转截面高于其他粒子, 其作用机制与中子和其他带电粒子有本质区别<sup>[77]</sup>.

未来衰变缪子束的缪子能量范围 15—120 MeV 可调, µ<sup>+</sup> 或µ<sup>-</sup> 可选, 主要用于建设 µSR 和 MIXE 谱仪用于对容器密封样品和样品不同深度进行测 量分析, 同时还可以兼顾缪子成像、探测器测试、 单粒子效应等开放性实验研究. 束流缪子成像与宇 宙线缪子成像相比具有流强高、成像时间短、束流 能量单色性好、能量可控等优势, 其相比 X 射线成 像具有更好的穿透性, 相比中子成像具有更好的位 置分辨, 因此具有很好的发掘潜力. 成像技术和 MIXE 技术结合还可以提供被检测物更丰富的元 素分布信息. 除此之外, MELODY 还将鼓励用户 开展更多的应用探索和创新研究, 例如最近提出的 基于负缪子寿命谱的元素无损分析方法<sup>[78]</sup>、缪子 能量损失成像等. 研究团队和用户将共同促进我国 缪子科学的长足发展.

#### 参考文献

- [1] Neddermeyer S H, Anderson C D 1937 Phys. Rev. 51 884
- [2] Conversi M, Pancini E, Piccioni O 1947 Phys. Rev. 71 209
- [3] Meyer S L, Anderson E W, Bleser E, Lederman I M, Rosen J L, Rothberg J, Wang I T 1963 *Phys. Rev.* 132 2693
- [4] Tang J, Li L, Yuan Y 2021 *Physics* 50 239 (in Chinese) [唐健, 李亮, 袁野 2021 物理 50 239]

- [5] Baldini A M, Bao Y, Baracchini E, et al. 2016 Eur. Phys. J. C 76 434
- [6] Bellgardt U, Otter G, Eichler R, et al. 1988 Nucl. Phys. B 299 1
- [7] Bertl W, Engfer R, Hermes E A, Kurz G, Kozlowski T, Kuth J, Otter G, Rosenbaum F, Ryskulov N M, van der Schaaf A, Wintz P, Zychor I (The SINDRUM II Collaboration) 2006 *Eur. Phys. J. C* 47 337
- [8] Hincks E P, Pontecorvo B 1948 Phys. Rev. 73 257
- [9] Aoyama T, Asmussen N, Benayoun M, et al. 2020 *Phys. Rep.* 887 1
- [10] Abe M, Bae S, Beer G, et al. 2019 Prog. Theor. Exp. Phys. 2019 053C02
- [11] Bennett G W, Bousquet B, Brown H N, et al. 2009 Phys. Rev. D 80 52008
- [12] Bennett G W, Bousquet B, Brown H N, et al. 2006 Phys. Rev. D 73 72003
- [13] Abi B, Albahri T, Al-Kilani S, et al. 2021 Phys. Rev. Lett. 126 141801
- [14] Hillier A D, Blundell S J, McKenzie I, Umegaki I, Shu L, Wright J A, Prokscha T, Bert F, Shimomura K, Berlie A, Alberto H, Watanabe I 2022 Nat. Rev. Methods Primers 2 4
- [15] Tan C, Ding Z F, Zhang J, Zhu Z H, Bernal O O, Ho P C, Hillier A D, Koda A, Luetkens H, Morris G D, MacLaughlin D E, Shu L 2020 *Phys. Rev. B* 101 195108
- [16] Shu L, MacLaughlin D E, Varma C M, Bernal O O, Ho P C, Fukuda R H, Shen X P, Maple M B 2014 *Phys. Rev. Lett.* 113 166401
- [17] Gheidi S, Akintola K, Akella K S, Côté A M, Dunsiger S R, Broholm C, Fuhrman W T, Saha S R, Paglione J, Sonier J E 2019 Phys. Rev. Lett. 123 197203
- [18] Tan C, Ying T P, Ding Z F, Zhang J, MacLaughlin D E, Bernal O O, Ho P C, Huang K, Watanabe I, Li S Y, Shu L 2018 Phys. Rev. B 97 174524
- [19] Heffner R H, Sonier J E, MacLaughlin D E, Nieuwenhuys G J, Ehlers G, Mezei F, Cheong S W, Gardner J S, Röder H 2000 Phys. Rev. Lett. 85 3285
- [20] Li Y, Adroja D, Biswas P K, Baker P J, Zhang Q, Liu J, Tsirlin A A, Gegenwart P, Zhang Q 2016 Phys. Rev. Lett. 117 97201
- [21] Khasanov R, Evtushinsky D V, Amato A, et al. 2009 Phys. Rev. Lett. 102 187005
- [22] Hillier A D, Quintanilla J, Mazidian B, Annett J F, Cywinski R 2012 Phys Rev Lett 109 97001
- [23] Shu L, Ni X J, Pan Z W 2021 *Physics* **50** 257 (in Chinese) [殳 蕾, 倪晓杰, 潘子文 2021 物理 **50** 257]
- [24] Chang W Y 1949 Rev. Mod. Phys. 21 166
- [25] Terada K, Ninomiya K, Osawa T, Tachibana S, Miyake Y, Kubo M K, Kawamura N, Higemoto W, Tsuchiyama A, Ebihara M, Uesugi M 2014 *Sci. Rep.* 4 5072
- [26] Terada K, Sato A, Ninomiya K, Kawashima Y, Shimomura K, Yoshida G, Kawai Y, Osawa T, Tachibana S 2017 Sci. Rep. 7 15478
- [27] Clemenza M, Bonesini M, Carpinelli M, et al. 2019 J. Radioanal. Nucl. Chem. 322 1357
- [28] Hampshire B V, Butcher K, Ishida K, Green G, Paul D M, Hillier A D 2019 *Heritage* 2 400
- [29] Green G A, Ishida K, Hampshire B V, Butcher K, Pollard A M, Hillier A D 2021 J. Archaeol. Sci. 134 105470
- [30] Cataldo M, Clemenza M, Ishida K, Hillier A D 2022 Appl. Sci. 12 4237
- [31] Umegaki I, Higuchi Y, Kondo Y, Ninomiya K, Takeshita S, Tampo M, Nakano H, Oka H, Sugiyama J, Kubo M K,

Miyake Y 2020 Anal. Chem. 92 8194

- [32] Breunlich W H, Kammel P, Cohen J S, Leon M 1989 Annu. Rev. Nucl. Part. Sci. 39 311
- [33] Morishima K, Kuno M, Nishio A, et al. 2017 Nature 552 386
- [34] Shimomura K, Koda A, Pant A D, et al. 2024 Interactions 245 31
- [35] Daum M 1982 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 192 137
- [36] Thomason J W G 2019 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 917 61
- [37] Cook S, D'Arcy R, Edmonds A, et al. 2017 Phys. Rev. Accel. Beams 20 30101
- [38] Beveridge J L, Doornbos J, Garner D M 1986 Hyperfine Interact. 32 907
- [39] Bao Y, Chen J, Chen C, et al. 2023 J. Phys. Conf. Ser. 2462 12034
- [40] Kim J C, Jeong J Y, Pak K, Kim Y H, Park J, Lee J H, Kim Y K 2023 Nucl. Eng. Technol. 55 3692
- [41] Cai H J, He Y, Liu S, Jia H, Qin Y, Wang Z, Wang F, Zhao L, Pu N, Niu J, Chen L, Sun Z, Zhao H, Zhan W 2024 *Phys. Rev. Accel. Beams* 27 23403
- [42] Lü M, Wang J, Siang Khaw K 2023 arXiv: 2307.01455 [physics. acc-ph]
- [43] Tang J Y, Zhou L P, Hong Y 2020 *Physics* 49 645 (in Chinese) [唐靖宇, 周路平, 洪杨 2020 物理 49 645]
- [44] Tang J Y, Fu S N, Jing H T, Tang H Q, Wei J, Xia H H 2010 Chinese Physics C 34 121
- [45] Chen H, Wang X L 2016 Nat. Mater. 15 689
- [46] Fu S N, Chen H S, Chen Y B, Ma L, Wang F W 2018 J. Phys. Conf. Ser. 1021 12002
- [47] Gao Z R, Yu H, Chen F J, et al. 2024 Nature 628 99
- [48] Ren Q, Qi J, Yu D, Zhang Z, Song R, Song W, Yuan B, Wang T, Ren W, Zhang Z, Tong X, Li B 2022 Nat. Commun. 13 2293
- [49] Pan F, Ni K, Xu T, Chen H, Wang Y, Gong K, Liu C, Li X, Lin M L, Li S, Wang X, Yan W, Yin W, Tan P H, Sun L, Yu D, Ruoff R S, Zhu Y 2023 *Nature* 614 95
- [50] Liu L, Vassilopoulos N, Bao Y, Zhang G, Chen C, Tan Z, He N 2023 J. Phys. Conf. Ser. 2462 012020
- [51] Liu L, Yu Q, Wang Z, Ell J, Huang M X, Ritchie R O 2020 *Science* 368 1347
- [52] L Michel 1950 Proc. Phys. Soc. A 63 514
- [53] Amato A, Morenzoni E 2024 Introduction to Muon Spin Spectroscopy (Vol. 1) (Cham: Springer Cham) pp66–131
- [54] Staub U, Roessli B, Amato A 2000 Physica B Condens. Matter 289–290 299
- [55] Luetkens H, Klauss H H, Kraken M, et al. 2009 Nat. Mater. 8 305
- [56] de Visser A, Huy N T, Gasparini A, de Nijs D E, Andreica D, Baines C, Amato A 2009 Phys. Rev. Lett. 102 167003
- [57] Hillier A D, Quintanilla J, Cywinski R 2009 Phys. Rev. Lett. 102 117007
- [58] Sonier J E, Brewer J H, Kiefl R F 2000 Rev. Mod. Phys. 72 769
- [59] Yokoyama K, Lord J S, Mengyan P W, Goeks M R, Lichti R L 2019 Appl. Phys. Lett. 115 112101
- [60] Li Q, Pan Z, Bao Y, Yang T, Cheng H, Li Y, Hu H, Liang H, Ye B 2023 J. Phys. Conf. Ser. 2462 012022
- [61] Fermi E, Teller E 1947 *Phys. Rev.* **72** 399
- [62] Mukhopadhyay N C 1977 *Phys. Rep.* **30** 1
- [63] Borie E, Rinker G A 1982 Rev. Mod. Phys. 54 67
- [64] Nakamura T, Matsumoto M, Amano K, et al. 2023 Science 379 eabn8671
- [65] Shimada-Takaura K, Ninomiya K, Sato A, Ueda N, Tampo

M, Takeshita S, Umegaki I, Miyake Y, Takahashi K 2021J.  $Nat.\ Med.\ 75\ 532$ 

- [66] Brown K L, Stockdale C P J, Luo H, Zhao X, Li J F, Viehland D, Xu G, Gehring P M, Ishida K, Hillier A D, Stock C 2018 J. Phys. : Condens. Matter 30 125703
- [67] Ninomiya K, Kajino M, Nambu A, Inagaki M, Kudo T, Sato A, Terada K, Shinohara A, Tomono D, Kawashima Y, Sakai Y, Takayama T 2022 Bull. Chem. Soc. Jpn. 95 1769
- [68] Aramini M, Milanese C, Hillier A D, Girella A, Horstmann C, Klassen T, Ishida K, Dornheim M, Pistidda C 2020 Nanomaterials 10 1260
- [69] Rossini R, Di Martino D, Agoro T, et al. 2023 J. Anal. At. Spectrom. 38 293
- [70] Ninomiya K, Nagatomo T, Kubo K M, Strasser P, Kawamura N, Shimomura K, Miyake Y, Saito T, Higemoto W 2010 J. Phys. Conf. Ser. 225 12040
- [71] Hillier A D, Paul D McK, Ishida K 2016 Microchem. J. 125 203

- [72] Mizuno R, Niikura M, Saito T Y, et al. 2024 Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A 1060 169029
- [73] Terada K, Ninomiya K, Sato A, Tomono D, Kawashima Y, Inagaki M, Nambu A, Kudo T, Osawa T, Kubo M K 2024 J. Anal. Sci. Technol. 15 28
- [74] Osawa T, Nagasawa S, Ninomiya K, et al. 2023 ACS Earth Space Chem. 7 699
- [75] Gerchow L, Biswas S, Janka G, Vigo C, Knecht A, Vogiatzi S M, Ritjoho N, Prokscha T, Luetkens H, Amato A 2023 *Rev. Sci. Instrum.* 94 045106
- [76] Sugiyama J, Umegaki I, Nozaki H, Higemoto W, Hamada K, Takeshita S, Koda A, Shimomura K, Ninomiya K, Kubo M K 2018 Phys. Rev. Lett. 121 87202
- [77] Kato T, Tampo M, Takeshita S, Tanaka H, Matsuyama H, Hashimoto M, Miyake Y 2021 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* 68 1436
- [78] Ninomiya K, Kubo M K, Inagaki M, et al. 2024 J. Radioanal. Nucl. Chem. 333 3445

## SPECIAL TOPIC—Correlated electron materials and scattering spectroscopy

## Muon spectrometers on China Spallation Neutron Source and its application prospects<sup>\*</sup>

Li Qiang  $^{(1)2)}$  Li Yang  $^{(1)2)}$  Lü You  $^{(1)2)}$  Pan Zi-Wen  $^{3)}$  Bao Yu  $^{(1)2)\dagger}$ 

1) (Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

2) (Spallation Neutron Source Science Center, Dongguan 523803, China)

3) (State Key Laboratory of Particle Detection and Electronics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

( Received 5 July 2024; revised manuscript received 6 September 2024 )

#### Abstract

The China Spallation Neutron Source Phase-II Project (CSNS-II) includes the construction of a muon source, namely "Muon station for sciEnce technoLOgy and inDustrY" (MELODY). A muon target station and a surface muon beam line will be completed as scheduled in 2029, making MELODY the first Chinese muon facility. This beam line mainly focuses on the application of muon spin relaxation/rotation/resonance ( $\mu$ SR) spectroscopy. The MELODY also reserves the tunnels for building a negative muon beam line and a decay muon beam line in the future, thereby further expanding the research field to muon-induced X-ray emission (MIXE) elemental analysis and  $\mu$ SR measurements in thick cells, respectively. The two types of material characterization technologies keep their uniqueness in multi-disciplinary researches, and also provide complementary insights for other techniques, such as neutron scattering, nuclear magnetic resonance, and X-ray fluorescence analysis.

The  $\mu$ SR spectroscopy is a mature technology for injecting highly spin polarized muon beams into various types of materials. The subsequent precession and relaxation of muon spin in its surrounding atomic environment reflect the static and dynamical properties of the material of interest, which are then measured by detecting the asymmetric emission of positrons from the decay of those muons, with an average lifetime of approximately 2.2  $\mu$ s. This enables  $\mu$ SR to develop into a powerful quantum magnetic probe for investigating materials related to magnetism, superconductivity, and molecular dynamics. The combination of a positive muon and an electron is known as muonium, which is a unique and sensitive probe in studying semiconductors,

new energy materials, free radical chemistry, etc. As the production of muon beams strongly relies on proton accelerator, only five muon facilities in the world are available for  $\mu$ SR experiments. This limits the large-scale application of muon related sciences. Especially, Chinese researchers face fierce competition and can only apply for precious and limited muon beam time from international muon sources to characterize the key properties of their materials.

The construction of the MELODY muon facility at CSNS-II aims to provide intense and pulsed muon beams for Chinese and international users to conduct their  $\mu$ SR measurements with high quality data in a low repetition rate operation mode. To achieve this goal, as shown in Fig. 1, the  $\mu$ SR spectrometer is designed with 1) over 3000 detector units to obtain a sufficient counting rate of 80 Million/h to significantly suppress statistical fluctuations in a short measuring time, 2) a high asymmetry of 0.3 to greatly amplify  $\mu$ SR signals so as to further reduce statistical fluctuations, and 3) extendable low temperature devices to cover most  $\mu$ SR applications and also fulfill experiments with extreme condition requirements.

The MIXE elemental analysis is a type of particle induced X-ray emission (PIXE) technology. Due to the heavier mass of negative muon, the energy of muonic X-ray is around 207 higher than that of X-ray or electron induced fluorescence X-ray. Thus, the MIXE technology is more sensitive to materials with low atomic numbers, and thick samples can be effectively studied without scratching their surfaces. Due to these advantages, the MIXE has been successfully applied to the elemental analysis of cultural heritages, meteorites, Li-ion batteries, etc. MELODY reserves tunnels for negative muon extractions and transport to a MIXE terminal. The MELODY research team is developing a new detection technology with high energy resolution and high counting capability to shorten the measuring time to an acceptable amount based on the 1-Hz repetition rate of muon pulses.

The  $\mu$ SR spectroscopy and MIXE are the two most important application fields of accelerator muon beams. The MELODY muon facility aims to develop promote these technologies in China by and constructing dedicated muon beam lines in CSNS-II and in the future. In this overview, we introduce the principles and advantages of the  $\mu$ SR and MIXE technologies, as well as the physical design and application prospects of the  $\mu SR$ and MIXE spectrometers based on the CSNS-II muon source. Finally, discussions and expectations are made regarding the future upgrade of the CSNS-II muon source's muon beamline and its broader applications.



Keywords: China Spallation Neutron Source (CSNS), muon experimental terminal, muon spin relaxation/ rotation/resonance spectroscopy, muon-induced X-ray emission

**PACS:** 76.75.+i, 78.70.En, 14.60.Ef

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240926

**CSTR:** 32037.14.aps.73.20240926

<sup>\*</sup> Project supported by the Basic Frontier Scientific Research Program of the Chinese Academy of Sciences "From 0 to 1" Original Innovation Programm (Grant No. ZDBS-LY-SLH009).

 $<sup>\</sup>dagger$  Corresponding author. E-mail: <code>yubao@ihep.ac.cn</code>





Institute of Physics, CAS

### 中国散裂中子源缪子谱仪及其应用展望

李强 李样 吕游 潘子文 鲍煜

Muon spectrometers on China Spallation Neutron Source and its application prospects Li Qiang Li Yang Lü You Pan Zi-Wen Bao Yu 引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 73, 197602 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240926 在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.73.20240926 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

#### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

基于中国散裂中子源反角白光中子束线的天然锂中子全截面测量

Measurement of total neutron cross section of natural lithium at China Spallation Neutron Source Back-n facility 物理学报. 2022, 71(5): 052901 https://doi.org/10.7498/aps.71.20211646