中国先进研究堆中子散射大科学装置

韩松柏^{①②}, 刘蕴韬^{①②}, 陈东风^{①②*}

① 中国原子能科学研究院核物理研究所中子散射实验室, 北京 102413;

② 中国核工业集团公司中子散射应用技术重点实验室, 北京 102413

* 联系人, E-mail: dongfeng@ciae.ac.cn

2014-11-17 收稿, 2014-12-19 接受, 2015-07-13 网络版发表

国家自然科学基金(11375271, 51327902)资助

摘要 作为与 X 射线相辅相成的表征手段, 借助中子独一无二优异特性的中子散射技术已被广泛应用于材料和物质的微观结构和动态研究之中. 中子散射大科学装置为众多学科及前沿交叉领域提供了先进的研究手段, 已经成为基础科学研究和工业无损分析的重要平台. 本文概述了中子探针的优异特性和国外主要中子散射大科学装置的发展现状, 着重介绍了中国先进研究堆(China Advanced Research Reactor)中子散射大科学装置的建设进展, 以及它们在不同领域的主要应用. 在中国先进研究堆中子散射一期工程建设过程中, 中国原子能科学研究院通过与北京大学、中国科学院物理研究所、中国科学院化学研究所、德国于力希研究所等合作, 共建造了 10 台设备, 包括: 高分辨中子粉末衍射谱仪、高强度中子粉末衍射谱仪、中子残余应力谱仪、中子四圆谱仪、中子织构谱仪、热中子三轴谱仪 I、热中子三轴谱仪 II、小角中子散射谱仪、中子反射谱仪、快速中子照相测试平台等. 到目前为止, 中国先进研究堆已运行 200 多个小时专门用于调试和优化这些中子散射谱仪, 我们已经获得一些非常好的实验结果. 作为国际上通量最高的反应堆中子源之一, 中国先进研究堆将为我国中子散射的发展和应用提供重要保障.

关键词

研究堆
科学装置
中子源
中子散射
中子照相

中子不带电、能量低、有磁矩、穿透性强、无破坏性, 对轻元素(如 H, C, N, O 等)灵敏, 可区分同位素(如 ^7Li , ^{11}B , ^{235}U 等)和近邻元素(如 Mn 和 Fe). 自 1936 年首次中子衍射实验成功进行以来, 中子散射技术不断发展和进步, 特别是 1994 年美国科学家沙尔(Clifford G. Shull)和加拿大科学家布罗克豪斯(Bertram N. Brockhouse)因开创性的中子散射实验技术荣获诺贝尔物理学奖. 目前, 中子散射技术应用范围不断扩大, 已广泛地应用于材料、物理、化学、生物、地质、能源、军工、医药和环保等众多研究领域. 中子散射技术的发展水平和应用程度也成为衡量一个国家科技综合实力的主要标志之一.

1 中子散射技术

材料是现代文明的支柱, 是保障社会发展的物质基础. 每一次材料领域的革新都改变了历史的进程, 推进了社会的进步. 新材料研究开发的能力是一个国家科学技术水平和生产力发展水平的重要标志, 是发展具有自主知识产权的材料与技术的关键. 材料的宏观性能与物质微观结构密切相关, 利用不同的表征手段透彻研究材料的宏观性能和微观结构之间的关系是非常必要的.

中子散射技术正是研究材料微观结构和观测材料内部动力学行为的有效手段. 中子作为独特探针的优势体现在: 中子作为原子核的组成成分之一, 不带电, 直接与原子核发生作用, 其相干散射长度与各

引用格式: 韩松柏, 刘蕴韬, 陈东风. 中国先进研究堆中子散射大科学装置. 科学通报, 2015, 60: 2068–2078

Han S B, Liu Y T, Chen D F. Large-scale scientific facility at China Advanced Research Reactor for neutron scattering (in Chinese). Chin Sci Bull, 2015, 60: 2068–2078, doi: 10.1360/N972014-01219

<https://engine.scichina.com/doi/10.1360/N972014-01219>

元素的原子序数无关,且各同位素因核结构不同而具有不同的相干散射长度.因此能区分同位素和邻近元素,且对轻元素(如氢元素)较为敏感;中子还具有磁矩,能够获得磁性材料的磁结构信息;中子具有极强的穿透能力,不仅能够开展大型工程部件深度无损检测测量,而且还可加载高低温、磁场、压力等极端样品环境,实现材料在极端条件下的原位实时测量;中子具有较宽的波长范围,其研究空间尺度范围涵盖埃、纳米、微米乃至毫米,研究对象小到原子、分子,大到病毒、细胞、工程部件等;冷、热中子的能量(几个毫电子伏到几百个毫电子伏)与原子、分子的热振动能量相当,是研究晶格动力学的最佳选择之一^[1~7].

随着中子散射方法的不断拓展和推进,中子散射已广泛地应用到物理、化学、材料、生物、地质、能源、医疗卫生和环境保护等众多研究领域.现今,中子散射大科学装置为众多学科及前沿交叉领域提供了先进的研究手段,已经成为基础科学研究和先进工业应用的重要平台.此外,在满足国防、军工、核能等领域国家重大需求方面,中子散射技术为新型材料研发、关键装备无损检测等也提供了不可替代的研究工具.

2 国际上中子散射大科学装置的发展现状

中子散射技术起步于20世纪50年代,经过几十年的发展,中子散射的重要性已经得到国际学术界的公认.据国际原子能机构统计(<http://nucleus.iaea.org/RRDB/RR/ReactorSearch.aspx>),目前世界上开展中子散射的反应堆有52座,正在运行的散裂中子源5个(美国SNS、英国ISIS、日本J-PARC、瑞士SINQ、美国LANSCE),在建散裂中子源2个(瑞典ESS、中国CSNS).

美国是世界上最早开展中子散射研究的国家之一,其中在国际上最具影响力的是分别隶属美国国家标准局(NIST)和Oak Ridge国家实验室的中子散射中心.NIST-NCNR自1969年开始利用中子从事材料科学的研究,迄今已经具有40多年的历史,目前被认为是投入产出比最高的中子散射中心之一.该中心建有25台中子设备,包括9台热中子谱仪,16台冷中子谱仪.每年有来自140多个大学,40多个企业和近40个政府机构超过2000名研究人员直接受益于在NIST的研究活动.由于用户需求不断增长,NIST建

造了第二个冷源和新的导管大厅.Oak Ridge国家实验室耗资14亿美元建成目前世界上最高通量的散裂中子源SNS,平均功率2 MW、质子束流达2 mA,初期将有工作频率为60 Hz的热中子源和冷中子源,共计可提供18条束线,建造24台谱仪.此外,该实验室基于HFIR研究堆建有15台中子散射设备.目前HFIR已经和SNS强强联合,合并为一个大的中子科学中心,资源共享,优势互补,共同为美国乃至世界的中子用户服务.

法国ILL中子散射中心是由法国、德国、英国、澳大利亚、捷克、俄罗斯、西班牙、瑞士、瑞典、匈牙利、比利时、波兰等12个国家联合建造运营的最优秀、最具代表性的中子研究中心.ILL中子通量达到 $1.2 \times 10^{15} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$,共建有一个热源,一个垂直冷源,一个水平冷源和一个反应堆大厅及2个导管大厅,共提供13个水平孔道,3个斜向孔道,5根热中子导管,8根冷中子导管,一根超冷中子垂直导管.目前,ILL共建有52台设备,其中包括衍射谱仪13台,大尺度结构(Large scale structures)研究用谱仪8台,飞行时间谱仪11台,三轴谱仪13台,此外还有用于核物理和粒子物理研究的7台设备.ILL每年有超过2000名学者来访问,开展实验多达750次,发表的文章被SCI检索的每年有600多篇,而其中刊登在*Nature*, *Science*, *PRL*等高影响因子的期刊有100篇以上.

在德国,建有慕尼黑的FRM II中子散射中心和柏林亥姆霍兹中心(前身为HMI柏林中子散射中心).FRM II的反应堆为20 MW,其重水慢化层处的未扰热中子通量达到了 $8 \times 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$.目前该研究堆的重要应用是开展中子散射方面的研究工作,同时也开展单晶硅辐照生产、中子医疗(快中子治癌)以及同位素生产等工作.其从事反应堆应用的科研人员共有240人,每年运行经费为5.5亿人民币.目前该中心围绕反应堆共有31台设备,其中热中子设备6台,冷中子设备25台.此外,由于对中子散射谱仪需求很高,又投入了9300万人民币建造第二个导管大厅,目前该导管大厅建造工作已完成.2012年为了进一步推动谱仪对科技的支撑作用,政府决定每年在投入约3亿人民币用于支撑利用中子散射谱仪开展相关科学研究.柏林亥姆霍兹研究中心的研究堆为10 MW,中子通量为 $2 \times 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$.虽然中子通量不高,但该中心在极端样品环境建设方面极具特色,在国际中子散射领域影响极大,尤其在磁性材料研究方面,处于

世界领先地位。

英国是最早开发中子散射的国家之一,英国散裂中子源ISIS属卢瑟福·阿普尔顿实验室RAL (Rutherford Appleton Laboratory),从20世纪80年代建成一直到2007年,ISIS一直是世界上亮度最高的散裂中子源。2008年ISIS通过升级改造,增强冷中子束流、拓宽光谱范围和提高分辨率,为开展软凝聚态物质、分子生物科学和先进材料的研究提供重要的工具。ISIS每年支持世界上大约1600名科学家开展物理、化学、材料科学、地质学、工程和生物学的研究,这些用户在近20台中子散射谱仪上开展700多个实验。

澳大利亚中子散射科学主要研究单位为布拉格研究所,其隶属于澳大利亚核科学和技术组织(ANSTO)。其OPAL研究堆功率20 MW,中子通量 $4 \times 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$ 。其应用用户来自科研、医药、环境、工业、安全、以及澳大利亚大学等多个领域。目前,该谱仪中心有14台中子谱仪已建成或者在建设中。OPAL具有进一步扩建的能力,目前正在制定第二个中子导管大厅的建设方案。

日本高能所(KEK)在1980年建成的4 $\mu\text{A}/500 \text{ MeV}$ 质子散裂中子源是世界上最早使用的散裂中子源,目前这座中子源已经退役,取而代之的是1 MW,330 μA 的质子加速器中子源J-PARC,目前已经有十几台谱仪投入使用。此外,日本原子能研究所(JAERI)JRM-3反应堆中子源上共建成谱仪33台,其中热中子设备14台,冷中子设备19台,分别由日本原子能研究所和各大学、研究所联合运行和管理。

此外,韩国和一些发展中国家,如印度、巴西、南非、印尼、孟加拉等国,也都建立了低通量反应堆开展中子散射研究。

3 中国先进研究堆中子散射大科学装置

中国先进研究堆(图1)是一座具有世界先进水平的研究型反应堆,功率为60 MW,其重水反射层内设计最大未扰热中子注量率达 $8 \times 10^{14} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$,在同类中子束流研究堆中其主要技术指标位居亚洲第一、全球第三。该反应堆设置有9条中子束水平孔道和26个垂直辐照孔道,并配有冷中子源,冷源表面的冷中子注量率预计可达 $2.5 \times 10^{13} \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$,为我国中子散射技术的应用奠定了良好基础。中国先进研究堆是面向21世纪科学技术发展需要而研发的一座高性能、多用途、安全可靠的核反应堆装置,并配套相关实验

图1 (网络版彩色)中国先进研究堆外貌

Figure 1 (Color online) The outside view of China Advanced Research Reactor

终端。可开展中子散射实验、反应堆材料及核燃料考验、中子活化分析等,也可开展核物理与核化学等基础科学研究,同时可应用于放射性同位素生产及单晶硅中子掺杂等。

2010年5月13日16点58分,中国先进研究堆实现首次临界,2012年3月13日实现满功率运行72 h,达到了工程验收指标。该反应堆的建成将为我国核科学研究及核技术开发应用提供一个重要的科学实验平台,是我国核科学技术研究能力的重要标志。目前,依托中国先进研究堆建设的中子散射大科学装置已经完成一期建设,粉末谱仪(2台)、应力谱仪、织构谱仪、四圆谱仪、热中子三轴谱仪(2台)、小角谱仪和反射谱仪等9台中子散射谱仪和中子照相测试平台已经建造完成(图2),调试工作进展顺利并成功获得首批实验结果^[8,9]。

中子散射谱仪常被分为弹性散射谱仪和非弹性中子散射谱仪两大类。中子弹性散射不涉及中子能量交换,常用于确定物质在各种尺度上的微观结构。中子弹性谱仪包括中子粉末衍射仪、中子单晶衍射仪、小角散射谱仪和中子反射谱仪等,以及针对特殊工业应用的残余应力谱仪和织构谱仪。非弹性散射是指散射前后中子能量有变化的散射过程。对非弹性散射,中子和原子、分子一次碰撞中能量的变化就是原子、分子从中子吸收或交付给中子的能量,所以只要分析散射中子的能谱就能获知原子、分子的能谱。中子非弹性散射实验研究内容包括晶格振动、磁矩扰动、分子的振动、转动、扭曲等现象。中子非弹性散射谱仪主要包括三轴谱仪、飞行时间谱仪。处于扩散运动中的原子、分子在对中子散射时,由于多普勒效应,弹性散射中子的能量会产生微小的变化,形成准弹性散射。因此,准弹性散射可以

图2 (网络版彩色)中国先进研究堆中子谱仪布局

Figure 2 (Color online) The layout of neutron scattering instruments in China Advanced Research Reactor

用来研究原子、分子的扩散运动. 测量准弹性散射要求谱仪有较高的分辨率, 通常要用背散射谱仪、自旋回声(spinecho)谱仪或高分辨飞行时间谱仪^[1]. 下面针对中子散射的不同应用领域, 详细介绍中国先进研究堆已建成谱仪的情况.

3.1 中子衍射

中子衍射是研究凝聚态物质中原子空间排列结构的重要实验手段, 用于确定材料的空间群、晶格常数、原子位置和占位率等结构及磁结构信息, 在中子散射技术中应用最广泛, 用户也最多. 中子衍射的优势体现在: 中子对轻元素和同位素敏感, 能够精确测定材料中轻原子的位置, 具有分辨原子序数相近的原子和同位素的本领; 中子有磁矩, 能够直接测定材料中的微观磁结构; 中子的散射长度不随散射角的增大而衰减, 可以在大散射角范围收集衍射数据; 中子穿透力强, 吸收修正小, 可以使用较大样品, 提高统计性, 有利于获得更高精度的结果. 正是这些特点, 使中子衍射与X射线衍射互相补充和配合, 提供了更完整的材料结构信息. 因此, 中子衍射技术在物理、化学、生物、材料科学等研究领域中得到了广泛的应用^[10].

(i) 高分辨中子粉末衍射谱仪. 该谱仪(图3)完全由中国原子能科学研究院科研人员自主研发建造, 研究领域主要是晶体结构的测定, 其高分辨率的特点使得开展单胞体积较大和对称性较低的结构研究, 以及确定未知新结构成为可能, 将会为我国的材料研究领域提供一个强有力的测量工具. 此外, 得益于CARR堆的高通量, 谱仪还会在结构相变、磁相变, 以及部分工业应用(如晶粒大小、缺陷、应变测量等)

图3 (网络版彩色)中国先进研究堆高分辨中子粉末衍射谱仪

Figure 3 (Color online) High resolution neutron powder diffractometer at CARR

方面发挥重要作用. 图4为该谱仪测量TiO₂标准样品的中子衍射谱图. 谱仪的主要指标: 单色器: 垂直聚焦Ge(115), 起飞角120°; 中子波长: 1.887 Å; 分辨率($\Delta d/d$): 0.2%; 探测器: 64路³He正比计数管.

(ii) 高强度中子粉末衍射谱仪. 该谱仪(图5)是由北京大学和中国原子能科学研究院共同研制的、具有世界先进水平的中子谱仪. 该谱仪不仅能够满足样品对较高分辨水平要求, 同时在探测效率方面更具有独特的优势. 这主要归功于双聚焦硅单色器、旋转震荡准直器以及位置灵敏探测器阵列等中子光学和探测技术的应用. 双聚焦单晶硅单色器能够显著提高样品处中子通量; 旋转震荡准直器能够有效屏蔽外界干扰, 提高信噪比; 位置灵敏探测器阵列能有效提高探测效率和保持较高水平分辨率. 其主要应用领域包括: 晶态、非晶态材料结构快速测定; 材料结构和相变研究; 磁结构和磁相变研究; 快速实时测量研究相变、化学反应和动力学; 特殊

图4 TiO_2 标准样品中子衍射图谱

Figure 4 Diffraction pattern of standard sample of TiO_2

图5 (网络版彩色)中国先进研究堆高强度中子粉末衍射谱仪

Figure 5 (Color online) High intensity neutron powder diffractometer at CARR

环境(温度、压力、磁场、电场等)材料结构与相变研究等。目前,该谱仪已成功获得Ni标准样品的中子衍射图谱(图5),标志着该谱仪已初步具备开展材料结构快速测定的能力。其主要参数:单色器:双聚焦单晶硅单色器 $\text{Si}(511)$; 中子波长: 1.478 (最佳), 2.316, 1.762, 1.171和1.075 Å; 分辨率($\Delta d/d$): 2×10^{-3} (样品与探测间距离1.60 m)/ 4.5×10^{-3} (样品与探测间距离1.05 m); 样品量: 0.5~1.5 g; 测量时间: 1~2 min (2θ : $25^\circ \sim 105^\circ$)。

(iii) 中子四圆衍射仪。单晶衍射结构分析作为一种可精确测定分子三维空间结构的物理方法,是现代化学研究中的重要技术手段之一,被日益广泛地应用于化学、材料科学和生命科学等领域的研究,并对以上学科的发展起着重要的推动作用。中子四圆衍射仪是利用中子探索与单晶结构相关课题的有力工具。它与X射线的研究具有互补性,可以确定出重元素化合物中含有的轻元素的位置,以及区分

出原子序数相近的元素,甚至同位素。除了通常测量常规晶体材料的布拉格衍射来确定它们的晶体结构和磁有序外,还可借助于易用的软件对无公度相、准晶材料和漫散射进行详细研究。

中国先进研究堆旁的中子四圆衍射仪(图6)是为中德两国合作建设,其Cu(220)单色器、样品台及控制系统和探测器由德国于利希研究中心(Juelich Research Center)引进,其单色器屏蔽体、准直器及准直器平移装置、单色器姿态调整装置、狭缝系统、监视器及核电子学系统、探测器的核电子学系统、中子捕集器等均由原子能院自主设计、建造。该谱仪已经顺利完成带束调试,通过对标准样品NaCl和Si单晶的测量和比较,其数据质量已可媲美国外同类谱仪。其主要参数:单色器: Cu(220); 中子波长: 0.87 Å; 准直器: 15', 30'和Open; 探测器: ^3He 管; 欧拉环内径: 40 cm。

图6 (网络版彩色)中国先进研究堆中子四圆衍射仪

Figure 6 (Color online) Four-circle neutron diffractometer at CARR

3.2 工业应用

在现代化高端化制造过程中,工程构件的设计、制造和应用都是以构件的尺寸精度、应力状态和材料微结构的精确控制为根本前提.借助中子散射和吸收的特性,不仅可以测量结构材料深部的“应力场”以及材料加工工程中形成的“织构”,还可以获取结构材料在制造或者服役过程中产生的缺陷信息.中国原子能科学研究院基于中国先进研究堆中子散射大科学装置,现已建立完备的中子束无损检测技术方法体系,着重开展三维、无损、深度的应力测量、体织构测试以及部件内部结构的宏观成像分析,以满足我国在核电、航空、新能源、石化等领域的重大需求,将为我国航空航天、高铁及核工业等领域结构与功能材料的自主设计、开发及发挥现有材料的性能潜力提供理论依据和技术支持.

(i) 中子残余应力谱仪. 残余应力是指材料在加工过程中由于不均匀的应力场、应变场、温度场和组织不均匀性,在变形后的变形体内保留下来的应力.它是直接影响工程材料和部件疲劳、应力腐蚀、微动磨损等使用效能的关键因素,工程关键部件的使用寿命、抗疲劳可靠性或使用精度都与残余应力密切相关.残余应力测量可以研究焊接技术、铸造和锻造成形工艺,喷丸、表面硬化等表面变形工艺,应力腐蚀裂纹等,还可研究材料内部宏观、微观应力与工程部件使用过程中材料损伤的相关性,准确预估服役安全及使用寿命.

中子衍射法测量残余应力的基本原理是通过中子衍射测量晶体结构面间距的变化来获取晶格应变,进一步分析计算得到材料宏观应力值^[11].中子衍射在国际上已被广泛用于大型关键部件的残余应力测试分析,是目前为止唯一可实现三维、无损、深度残余应力测量的技术方法.其主要优势有以下几个方面:中子不带电,穿透能力强,适合较大体积工程部件内部残余应力的测量;无损测量,能多次重复测量同一样品,并可检测现实环境中加载条件下残余应力演化;空间分辨易调整,适合解决工程部件不同应力梯度分布问题;可测定多相材料中单个相的应力;可同时研究晶间应力和织构在应力腐蚀裂纹中的作用,深入了解应力腐蚀裂纹内在机理问题.该谱仪(图7)的主要技术指标^[12]:单色器:双聚焦单晶硅单色器 Si(311), Cu(220);中子波长范围: 0.9~2.7 Å;

图7 (网络版彩色)中国先进研究堆中子残余应力谱仪

Figure 7 (Color online) Residual stress neutron diffractometer at CARR

最佳分辨($\Delta d/d$): 2×10^{-3} ,并能根据实验需要做相应的调整;取样体积:最小可达 $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$;样品处中子通量: $2.7 \times 10^7 \text{ n}/(\text{cm}^2 \text{ s})$.

(ii) 中子织构谱仪. 多晶材料由于受到外界条件或不同加工工艺的影响,材料中的各晶粒会沿着某些方向排列,呈现出或多或少的统计不均匀分布.这种组织结构及规则聚集排列状态类似于天然纤维或织物的结构和纹理,故称之为织构.通过测量工程材料在加工过程中其织构的形成和变化规律,为改善核工业、航空、航天、汽车以及军工等领域所用材料的处理工艺、部件加工流程提供重要的理论依据.比如,研究制备加工、使用条件等因素对锆合金包壳材料(核燃料元件包壳和堆芯的其他结构材料)织构的影响,进而探索织构的形成对其力学性能、辐照性能及吸氢特性的影响,改善和提高锆合金包壳材料的综合性能,适应新一代反应堆的发展要求.利用中子的深穿透性和非破坏性,还可开展考古和地质领域材料织构的研究工作,通过研究得到样品的历史信息,如地壳深处矿物的形成机理、古代化石的形成过程等.

中子织构衍射仪通过转动欧拉测角头改变样品取向,通过分析不同样品取向探测器衍射信号强弱变化得出晶粒取向分布情况,即(hkl)面的织构极图.其主要用于汽车、轮船等工业、核工业、航空航天及军用先进材料和部件的织构测量,通过织构研究对材料及部件在服役过程中的性能进行评估,同时为材料制备工艺的优化提供指导.该装置(图8)为我国第一台专用于织构测量的中子谱仪^[13],其主要参数:单色器: Cu(111), 起飞角 42° ;中子波长: 1.48 Å;

图8 (网络版彩色)中国先进研究堆中子织构衍射仪
Figure 8 (Color online) Neutron texture diffractometer at CARR

探测器: 二维位置灵敏探测器; 样品处中子强度: 10^7 n/(cm² s).

利用同一个热轧Zr-4合金标准样品, 分别在美国 Los Alamos 国家实验室的HIPPO谱仪、澳大利亚 Ansto 中心的Kowar谱仪以及原子能院织构谱仪上进行测量, 测得的织构极图如图9所示. 数据分析表明

原子能院织构谱仪的性能已达到国际一流同类谱仪的水平.

(iii) 中子照相装置. 中子照相(neutron imaging)技术是通过分析中子束穿过样品引起的强度变化, 来获取样品内部结构的可视化图像的方法. 中子照相与X射线和Gamma射线成像一样, 属于材料无损检测和无损评价学科领域, 但相比之下, 中子成像具有穿透性强、成像直观、适用样品范围广等突出的优势. 中子照相作为一种无损检测手段, 能够获取许多其他射线照相方法无法得到的信息, 目前在航天、航空、军工、核工业、石油、化工、能源存储、汽车工业、电子元器件、材料学、冶金工业、医学、建筑、考古、生物学等领域中有着广泛的需求和应用^[14].

基于中国先进研究堆, 中国原子能科学研究院建立了压水堆核燃料元件间接中子照相测试平台, 图10(a)为模拟压水堆核燃料元件的二维及三维成像

图9 (网络版彩色)国际上不同织构衍射仪测得的锆-4合金织构极图. (a) CARR-TD 中国; (b) HIPPO 美国; (c) Kowari 澳大利亚
Figure 9 (Color online) Pole figures of Zr-4 alloys measured at different neutron texture diffractometers in the world. (a) CARR-TD China; (b) HIPPO US; (c) Kowari Australia

数据^[15,16]. 为了充分利用高通量中子源的优势, 原子能院设计了中子快速成像探测系统, 建成了快速中子照相测试装置. 该装置首次应用SCMOS技术于中子照相领域, 最高分辨为 2560×2160 , 最高成像速率为1000 fps, 用MTF方法测得成像探测系统空间分辨可达0.34 mm. 该装置已成功应用于动态气液两相流的测量(图10(b)). 利用装置同时开展了锂离子电池、燃料电池、火药、颗粒材料、矿石、植物、昆虫等样品的研究工作. 原子能院在中子照相领域已获得8项发明专利授权, 并领衔编制了我国第一个中子照相国家标准.

3.3 软物质研究

与X射线具有相同波长的中子的能量要比X射线小得多(仅为二十万分之一), 因此中子技术能够避免X射线对于物质产生的热效应和分解效应. 由于中子对元素不同同位素的散射截面各不相同, 对于有机分子可以利用氘代(Deuterium Labeled)技术来标示出我们想要测试的部分, 通过中子散射可以在倒易空间(q -space)测量出单分子、单体或者单分子的一部分在其他分子的影响下的结构、变形及分子形态及其变化, 这是其他任何测试手段所做不到的直接测试方法^[17-19]. 为满足国内生命科学、高分子科学等领域的广大需求, 中国科学院化学研究所与中国原子能科学研究院在国家科技部、中国科学院、中国核工业集团公司的共同支持下合作建造了小角中子散射谱仪和反射谱仪.

(i) 30 m小角中子散射谱仪. 小角中子散射可作在软物质及溶液中0.1到100 nm的分子大小、形貌及结构的测试及表征, 包括单分子或单分子的一部分的大小及形貌的表征, 为高分子、生物、化学及材料研究中自纳米到微米级表征的重要手段. 中国先进研究堆小角中子散射谱仪的主要应用领域包括: 聚合物科学研究、生物大分子结构研究、复杂流体和凝胶体研究、磁性和超导材料研究、核能领域的一些材料及溶液的研究. 该谱仪(图11)性能参数^[20]: 波长: $4 \sim 20 \text{ \AA}$; 分辨率($\Delta\lambda/\lambda$): $10\% \sim 22\%$ (FWHM); 样品尺寸: 直径 $5 \sim 25 \text{ mm}$; Q 范围: $0.0008 \sim 0.6 \text{ \AA}^{-1}$; 测量尺度: $10 \sim 5000 \text{ \AA}$; 源与样品距离为: $4 \sim 16 \text{ m}$; 样品到探测器距离: $1 \sim 15 \text{ m}$ 连续可调.

(ii) 中子反射谱仪. 中子反射为表面或界面表征上与小角中子散射相对应的手段. 可以在 $0.1 \sim 100 \text{ nm}$ 范围内测表面层的垂直方向的结构及分布. 中子反射率曲线是由样品中该尺度范围薄膜或界面层的折射系数(即或中子散射长度密度)的不均匀决定. 因此分析反射率曲线, 可以获得这一尺度薄膜或界面结构信息, 包括薄膜层厚度、界面粗糙度和成分密度等. 中子反射可广泛用于软物质、硬物质薄膜和界面方面研究, 尤其适合聚合物薄膜、生物薄膜、磁性薄膜等研究. 例如在磷脂生物膜结构及其与蛋白质等的相互作用、表面活性剂薄膜、光敏薄膜、聚合物界面扩散、聚物薄膜相分离、磁性多层膜、磁性单层膜、交换作用界面等方面研究中, 中子反射发挥着独特重要的作用.

图10 (网络版彩色)中子照相图像。(a) 模拟压水堆核燃料元件;(b) 动态气液两相流

Figure 10 (Color online) Neutron imaging results. (a) Hybrid nuclear fuel elements of PWR; (b) dynamic two-phase flow of air and fluid

图 11 (网络版彩色)中国先进研究堆中子小角散射谱仪
Figure 11 (Color online) Small angle neutron scattering instrument at CARR

中国先进研究堆中子反射谱仪侧重满足软物质薄膜材料研究需求,水平样品几何设计使得该谱仪除了能研究众多固体界面或薄膜结构以外,还可实现自由液体表面及Langmuir-Blodgett薄膜等方面研究.该谱仪(图12)性能参数^[21]:散射几何:水平样品散射几何;中子波长: $\lambda = 4.75 \text{ \AA}$; Q范围: $0.003 \sim 0.4 \text{ \AA}^{-1}$; Q分辨($\Delta Q/Q$): $0.02 \sim 0.05$, 随狭缝的宽度改变而改变.

3.4 非弹性中子散射

中子三轴谱仪是反应堆中子源上最典型的非弹性散射谱仪^[22],它利用中子的能量与晶格振动能量相当、波长与晶胞常数相匹配的特点,通过在动量和能量空间自由组合地扫描,来观测固体及液体中原子的振动状态(声子、磁子、状态密度)、扩散系数等重要信息,它在材料科学的基础研究和凝聚态物理的研究方面具有重要的应用.

(i) 热中子三轴谱仪I. 热中子三轴谱仪I和前

图 12 (网络版彩色)中国先进研究堆中子反射谱仪
Figure 12 (Color online) Neutron reflectometer at CARR

面提到的中子织构、四圆谱仪相同,是从德国于利希研究院合作引进.它通过同时测量中子与物质内部相互作用产生的动量和能量交换,有效地研究物质内部的自旋、电荷和轨道等自由度之间的相互作用或耦合所产生的关联效应、元激发色散关系等谱学特性.该谱仪(图13)性能参数如下,该谱仪已成功测得铜单晶声子色散曲线,如图14所示:单色器:双聚焦热解石墨 PG(002), Cu(200);入射角度: 26.8° , 41.4° 和 74.3° ;入射能量: 5, 14, 17, 34, 50和117 meV;分析器:双聚焦热解石墨PG (002), $0^\circ < 2\theta_A < 150^\circ$;样品台: $0^\circ < 2\theta_S < 110^\circ$;准直器: $20'$, $40'$ 和 $60'$;过滤器:蓝宝石(Sapphire), 热解石墨(PG), 金属铈(Erbium).

(ii) 热中子三轴谱仪II. 除热中子三轴谱仪之外,中国科学院物理研究所立足于国内凝聚态物理研究的迅猛发展和强大应用需求,与原子能院合作开发建造以高通量、高分辨率、强磁场为特征的第二台热中子三轴谱仪^[23](图15).其突出特点在于入射中子能量采用连续可调方式,使测量的适用性更强,可测试范围更广,同时采用速度选择器可有效降低散射背底,提高测试精度.

4 展望

为了充分利用高通量中子源大科学装置,中国先进研究堆除了现已建成的“一期”9台谱仪和中子照相测试平台,目前正在建造“二期”5台设备,分别为:中国人民大学与中国原子能科学研究院合建的冷中子三轴谱仪和中子广谱谱仪(国家自然科学基金委员会资助,计划2017年建成),中南大学与中国原子能

图 13 (网络版彩色)热中子三轴谱仪 I
Figure 13 (Color online) Thermal neutron triple-axis spectrometer I at CARR

图 14 (网络版彩色)中国先进研究堆热中子三轴谱仪 I 测得铜单晶声子色散曲线

Figure 14 (Color online) The phonon dispersion curve of copper single crystal measured by the thermal neutron triple-axis spectrometer I at CARR

图 15 (网络版彩色)中国先进研究堆热中子三轴谱仪 II

Figure 15 (Color online) Thermal neutron triple-axis spectrometer II at CARR

科学研究院合建的工程应用中子谱仪(国家自然科学基金委员会资助, 计划2018年建成), 冷中子照相装置^[24]和热中子照相装置(计划2017年建成). 此外, 目前已完成第三期谱仪的规划, 将建设冷中子衍射谱仪、极化反射谱仪、工业应用小角谱仪(40m)、多功能飞行时间谱仪等四台谱仪, 满足不断增长的用户需求.

在国内外广大用户的支持下, 不断进步和完善的中国先进研究堆中子散射大科学装置, 作为一个开放、共享、合作、共赢的综合性大科学平台, 将为我国材料、物理、化学、生物、医药、能源和工业等众多领域的发展提供重要的研究工具, 将极大推动我国的科学创新和新技术革命.

参考文献

- 1 Ye C T, Liu Y T. Neutron scattering and its applications (in Chinese). Physics, 2006, 35: 961–968 [叶春堂, 刘蕴韬. 中子散射技术及其应用. 物理, 2006, 35: 961–968]
- 2 Ding D Z, Ye C T, Zhao Z X. Neutron Physics-principle, Method and Application (in Chinese). Beijing: Atomic Energy Press, 2011 [丁大钊, 叶春堂, 赵志祥. 中子物理学—原理、方法与应用. 北京: 原子能出版社, 2011]
- 3 Squires G L. Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering. Cambridge: Cambridge University Press, 1978
- 4 Lovesey S W. Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter, Vol 1: Nuclear Scattering, Vol 2: Polarization Effects and Magnetic Scattering. Oxford: Oxford University Press, 1984
- 5 David L P, Kurt S, John M, et al. Methods of Experimental Physics, Vol 23, Part A. New York: Academic Press, 1986
- 6 Dobrzynski L, Blinowski K, Cooper M. Neutrons and Solid State Physics (Ellis Horwood Series in Physics and Its Applications). Upper Saddle River: Pearson Education, 1994
- 7 Rinaldi R, Liang L, Schober H. Neutron Applications in Earth, Energy, and Environmental Sciences. New York: Springer-Verlag, 2009
- 8 Chen D F, Liu Y T, Han S B. Progress of neutron scattering project on CARR (in Chinese). Mater China, 2009, 28: 1–5 [陈东风, 刘蕴韬, 韩松柏. 中国先进研究堆中子散射谱仪建设现状和展望. 中国材料进展, 2009, 28: 1–5]
- 9 Liu Y T, Chen D F. The neutron scattering platform of China's Advanced Research Reactor (in Chinese). Physics, 2013, 42: 534–543 [刘蕴韬, 陈东风. 中国先进研究堆中子散射科学平台介绍. 物理, 2013, 42: 534–543]

- 10 Kisi E H, Howard C J. Applications of Neutron Powder Diffraction. Oxford: Oxford University Press, 2008
- 11 Hutchings M T, Withers P J, Holden T M, et al. Introduction to the Characterization of Residual Stress by Neutron Diffraction, Boca Raton: CRC Press/Taylor & Francis, 2005
- 12 Li J H, Gao J B, Li J Z, et al. Design and application of neutron residual stress diffractometer for China Advanced Research Reactor (in Chinese). Atom Energy Sci Technol, 2010, 44: 484–488 [李峻宏, 高建波, 李际周, 等. CARR 中子残余应力谱仪的设计与应用. 原子能科学技术, 2010, 44: 484–488]
- 13 Li M J, Liu Y T, Liu X L, et al. Neutron texture diffractometer at China Advanced Research Reactor. Mater Sci Forum, 2014, 777: 71–77
- 14 Perfect E, Cheng C L, Lehmann P. Neutron Imaging and Applications: A Reference for the Imaging Community. New York: Springer-Verlag, 2009
- 15 Wei G H, Han S B, He L F, et al. Non-destructive testing dummy nuclear fuel rods by neutron radiography (in Chinese). Nucl Tech, 2013, 36: 070204 [魏国海, 韩松柏, 贺林峰, 等. 核燃料元件模拟件的中子照相无损检测. 核技术, 2013, 36: 070204]
- 16 Wei G H, Han S B, Chen D F, et al. Preliminary study on indirect neutron radiography method at CARR (in Chinese). Atom Energy Sci Technol, 2014, 48: 201–207 [魏国海, 韩松柏, 陈东风, 等. 中国先进研究堆间接中子照相方法的初步研究. 原子能科学技术, 2014, 48: 201–207]
- 17 Wilson C C. Single Crystal Neutron Diffraction from Molecular Materials. Singapore: World Scientific, 2000
- 18 de Bergevin F, Sentenac A, Daillant J, et al. X-ray and Neutron Reflectivity: Principles and Applications. Berlin: Springer Verlag, 1999
- 19 Roe R J. Methods of X-ray and Neutron Scattering in Polymer Science. Oxford: Oxford University Press, 2000
- 20 Zhang H X, Cheng H, Yuan G C, et al. Thirty meters small angle neutron scattering instrument at China Advanced Research Reactor. Nucl. Instrum Methods Phys Res, Sect A, 2014, 735: 490–495
- 21 Yuan G C, Zhang H X, Cheng H, et al. A neutron reflectometer with horizontal sample geometry at CARR. Nucl Instrum Methods Phys Res, Sect A, 2011, 656: 65–68
- 22 Shirane G, Shapiro S M, Tranquada J M. Neutron Scattering with a Triple-Axis Spectrometer. Cambridge: Cambridge University Press, 2006
- 23 Dai P C, Li S L. The principle technology and applications of the neutron triple-axis spectrometer (in Chinese). Physics, 2011, 40: 33–39 [李世亮, 戴鹏程. 中子三轴谱仪的原理、技术与应用. 物理, 2011, 40: 33–39]
- 24 Han S B, Wu M M, Wang H L, et al. Design of cold neutron imaging facility at China Advanced Research Reactor. Phys Proced, 2013, 43: 73–78

Large-scale scientific facility at China Advanced Research Reactor for neutron scattering

HAN SongBai^{1,2}, LIU YunTao^{1,2} & CHEN DongFeng^{1,2}

¹Neutron Scattering Laboratory, Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

²China National Nuclear Corporation Key Laboratory of Neutron Scattering, Beijing 102413, China

As a complementary role to X-rays, neutrons provide a unique, non-destructive method. Neutron scattering techniques have been widely applied to the determination of the structural details and the dynamics of atomic arrangements in materials and matters. Large-scale scientific facility of neutron scattering has played an important role in basic research and industry. This paper reviews the outstanding characteristics of neutron probe, the development status of neutron scattering facilities abroad, and especially the progress of the first phase of Neutron Scattering Project at China Advanced Research Reactor (CARR). By now, ten instruments, including a High Resolution Powder Diffractometer (HRPD), a High Intensity Powder Diffractometer (HIPD), a Residual Stress Diffractometer (RSD), a texture diffractometer (TD), a four circle diffractometer (FC), two Triple Axis Spectrometers (TAS), a reflectometer (RF), a Small Angle Neutron Scattering instrument (SANS) and a High Frame-rate Neutron Imaging Test Station (HFNIT) have been constructed in cooperation with Peking University, Institute of Chemistry of Chinese Academy of Sciences (CAS), Institute of Physics of CAS, Juelich Center in Germany and the partner from Sweden. The construction of them has been completed and they are under commissioning. CARR has run more than 200 hours for adjusting and optimizing the instruments and some promising experimental results have been attained. As one of the most powerful high-flux reactor neutron sources in the world, CARR will ensure the development and application of neutron scattering in China.

China Advanced Research Reactor, neutron source, large-scale scientific facility, neutron scattering, neutron imaging

doi: 10.1360/N972014-01219