

中国先进研究堆中子散射谱仪建设现状和展望

陈东风，刘蕴韬，韩松柏

(中国原子能科学研究院核物理研究所，北京 102413)

摘要：中子具备不带电、穿透力强、可鉴别同位素、较之 X 射线对轻元素灵敏、具有磁矩等优点，因此中子散射技术作为一种独特的、从原子和分子尺度上研究物质结构和动态特性的表征手段，在多学科交叉领域发挥着不可替代的作用。中国先进研究堆(CARR)上的中子散射工程将充分利用该研究堆为中子散射工程提供的高通量、具有冷中子源、切向水平孔道等有利条件，预计一期将分别建造高分辨中子粉末衍射仪、中子反射谱仪、应力测量衍射谱仪、中子三轴谱仪、中子小角散射谱仪、中子四圆衍射仪、中子高强度粉末谱仪、中子织构测量仪、冷中子照相谱仪和热中子照相谱仪等 10 台谱仪及装置。瞄准世界先进水平，建立起研究手段配套、覆盖中子散射研究的主要领域、强调应用又具备必要的基础研究能力的中子散射设备，将为生命科学、材料科学、物理、化学、地矿、环境等各种学科及工程技术方面提供先进的中子散射技术。其最终目标是建立起符合我国国情、其综合研究能力与世界先进水平接轨的中子散射国家重点实验室，使之成为我国 21 世纪中子散射研究和应用的中心及人才培养基地，以期为我国国防工业和国民经济建设服务。

关键词：中子散射技术；中国先进研究堆；应用与研究

中图分类号：O571.5.44 文献标识码：A 文章编号：1674-3962(2009)12-0001-05

Progress of Neutron Scattering Project on CARR

CHEN Dongfeng, LIU Yuntao, HAN Songbai

(Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China)

Abstract: A new research reactor, China Advanced Research Reactor (CARR) at CIAE, will be applicable in 2010. It will meet the increasing demand of neutron scattering research in China. A brief introduction to the background and progress of the neutron scattering instruments to be installed at CARR and their potential applications in various fields has been given.

Key words: neutron scattering technology; China Advanced Research Reactor (CARR); application and research

1 前 言

中国原子能科学研究院建设的中国先进研究堆(CARR-China Advanced Research Reactor)的功率为 60 MW，热中子通量达 8×10^{14} n/(cm²·s)，主要技术指标和性能将达到国际先进水平。中子散射项目将利用 CARR 提供的单晶、粉末、应力、三轴、成像等诸多手段，瞄准能源、材料等领域国家的重大需求，开展中子散射实验方法学研究，探讨物质结构与性能的关系，深入研究诸如铁基超导、新型储氢、负热膨胀和多铁体系等基础前沿关键科学问题，开展工程材料的应力分析和材料缺陷的中子成像方法研究。研究内容涵盖物理、化学、材料和工程等领域，拟解决关键科学问题包括：

①中子散射关键技术方法研究；②新型功能材料结构和性质关系的中子散射研究；③工程部件宏观应力分布和中子成像的方法学研究等。

2 中子散射技术介绍

与 X 射线技术相辅相成，中子以其自身的特点在结构、成像等分析中发挥着独特的作用。中子为电中性，具有强穿透力和非破坏性，从而可以探测物质的内力场信息(如残余应力)，也利于在复杂和集成的特殊样品环境下进行实验研究；中子与原子核的作用并不随原子序数的增加而有规律地增大，从而可以通过中子散射或成像技术更好地分辨轻元素，或者相邻的元素；中子具有内禀的自旋使之可以准确地揭示其他手段难以给出的微观磁结构信息。现已建立的有关低能热中子的理论，为开展多学科理论预测、实验验证并完善理论提供了有效的途径。中子散射技术不仅可探索物质静态的微观结

收稿日期：2009-10-28

基金项目：国家重点基础研究发展计划(2010CB833101)资助

通信作者：陈东风，男，1968 年生，博士，研究员，博士生导师

构, 还可用于研究结构变化过程的动力学机制。因此, 中子散射已在物理、化学、材料、工程等研究领域发挥着X射线无法取代的作用, 成为物质科学的研究和新材料研发的重要手段。当前中子散射的研究热点主要集中在下述3个方面。

晶体结构与缺陷分析 利用中子衍射的特点, 与X射线手段相结合, 解析和确认新化合物的结构, 特别是揭示轻原子或者结构缺陷的特征, 进而了解材料结构与性能的关系, 开展新材料的筛选和设计合成, 以期发现具有良好光、电、磁和特殊功能的新材料。

物质动力学和磁学的研究 利用中子非弹性散射和磁散射, 研究高温超导机理、多铁性材料的晶格动力学、锂离子电池材料的导电机制、材料的复杂磁结构等前沿课题。中子散射已成为物质晶格、电荷、轨道、自旋等自由度相互作用关系研究的关键甚至唯一的手段。最近, 在新型铁基高温超导体的研究中, 有迹象表明, 这类材料的超导机制与传统的基于声子相互作用配对的机制并不相同, 而与铜氧化合物高温超导体相似。因此, LaFeAs(O, F) , $(\text{Ba, K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 等新型铁基高温超导体及相关化合物中声子、自旋波和自旋涨落的中子散射数据, 将为铁基超导体的超导机制提供有力的证据。

工程部件的无损探测研究 在核能开发等领域, 利用中子成像和应力分析对核电站燃料元件和包壳管进行无损检测, 不仅可以解决核电发展中的迫切需求, 而且完善起来的方法学也将成为反应堆工程和应用技术中不可替代的研究手段。此外, 对于在航天运载火箭、航天返回舱、飞机发动机叶片、飞机机翼、直升机旋翼、坦克复合装甲等诸多方面有重要应用的先进复合材料、结构材料和含能材料, 中子成像和应力分析对这些先进材料的无损检测具有X射线和超声检测不可替代的作用。

3 国内外研究现状和发展趋势

中子散射技术起步于上个世纪50年代。随着反应堆技术的发展, 目前世界上用于中子散射的反应堆约有50座, 其中欧洲23座, 美洲8座, 亚太地区16座, 俄罗斯3座。此外还有新一代的散裂中子源5个。欧美一直处于中子散射研究的领先地位, 日本也后起直追发展很快。20世纪60年代中期, 英、法、德联合在法国建立了57 MW的高通量研究堆ILL, 其通量达到 $1.2 \times 10^{15} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$, 专用于中子散射的实验研究, 为欧洲乃至世界的科技发展做出了巨大贡献。美国曾是世界上最先开展中子散射研究的国家之一, 美国的Shull与加拿大的Brockhouse由于开创了中子散射技术而获得1994年诺贝尔物理学奖。美国能源部DOE拨款14亿美元建造的功率达2 MW、世界最强的散裂中子源SNS (Spall-

ation Neutron Source), 已于2008年运行。日本由JAEA和KEK共同建造MW量级的散裂中子源J-PARC, 也在2008年运行。图1给出了目前国际上主要中子散射中心中子源的情况^[1]。经过几十年的发展, 随着新中子源的建立和相应谱仪技术的不断革新, 国际上中子散射技术和研究已进入了新的阶段, 正在开展更深入、更前沿的工作。中子散射技术随着这些大科学平台的建设和使用得到迅速发展, 不仅为基础科学和应用科学的交叉融合、相互促进提供了条件, 而且对提高国家整体科研实力产生影响, 已成为衡量国家综合国力的重要标志。

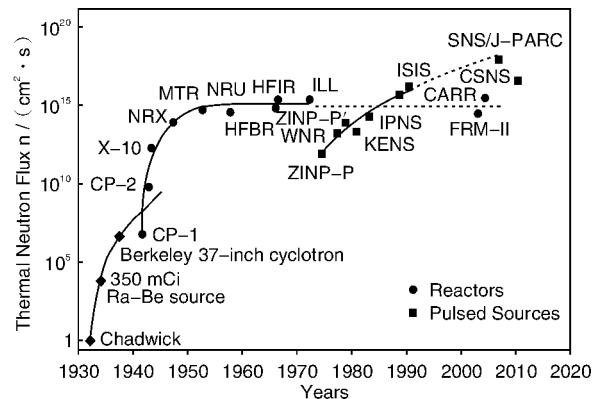


图1 目前国际上主要中子散射中心的中子源情况
Fig. 1 Neutron sources in world-famous neutron scattering centers

我国的中子散射技术起步较早, 于上世纪50年代末就建造出我国第1台中子衍射谱仪——“跃进一号中子晶体谱仪”。上世纪80年代初, 中国原子能科学研究院与法国合作建立了依托15 MW重水研究堆(HWRR)的热中子散射实验室, 设计、建造了粉末中子衍射仪、中子三轴谱仪、四圆单晶中子衍射仪、小角中子散射谱仪、双转子中子飞行时间谱仪, 广角铍过滤探测器非弹性散射中子谱仪等6台中子散射谱仪, 在凝聚态物理、磁学和材料科学等方面取得了一批创新成果^[2-6]。但由于HWRR功率仍然偏低, 中子谱仪能力进一步提升受到限制, 使得在20世纪后期我国在这一领域的发展相对落后。目前HWRR已永久关闭, 正在退役处理过程中。

我国政府投资7.7亿建立的CARR即将于近期建成(图2), 为我国中子散射研究提供了一个赶上世界水平的契机。CARR是一座多用途、高通量、研究型反应堆, 将主要用于中子散射研究。与国际同类反应堆比较, CARR主要技术指标和性能已经达到了国际先进水平, 并位居前列。目前各谱仪建设实施顺利, 粉末、应力、单晶、三轴、成像5个工作站将陆续对国内外开放。依托CARR平台, 我们已经与美国、德国、瑞典等国际研究中心及与国内多家科研单位和高校建立了密切

的合作关系^[6]。



图2 中国先进研究堆外观示意图

Fig. 2 Outward appearance of China Advanced Research Reactor

4 中国先进研究堆上的中子散射工程^[8]

中国先进研究堆(CARR)将在近期运行。它的建成将为我国中子散射事业的发展和赶上世界先进水平奠定必要的基础。CARR是池内桶式反中子阱型高通量多用途研究堆，堆功率为60 MW，反射层处未扰热中子通量可高达 $8 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 。其主要目的是开展中子散射工作，同时可以进行同位素生产、中子单晶硅掺杂、中子活化分析等。CARR共有9个切向水平孔道，其中7个用于中子散射实验。CARR将安装有冷中子源，提供中子小角散射谱仪、中子反射谱仪等所需要的长波中子，以满足开展生物大分子、聚合物等结构及表面、界面物理方面研究的需要。冷中子源孔道可安装4根中子导管，将冷中子引入中子导管大厅。中子散射辅助设备还将包括高低温、高压和磁场等装置。本着循序渐进的原则，预计一期将建造10台谱仪，它们分别是高分辨中子粉末衍射仪、中子反射谱仪、应力测量衍射谱仪、中子三轴谱仪、中子小角散射谱仪、中子四圆衍射仪、中子高强度粉末谱仪、中子织构测量仪、冷中子照相谱仪和热中子照相谱仪。十一五期间，将争取在CARR建成的同时在反应堆旁和冷中子导管上先后安装这10台不同类型的中子谱仪，并争取在CARR正式投入运行后尽快完成谱仪的带束调整工作并正式投入使用。

基于即将建成的10台中子散射谱仪，本实验室将以中子束实验方法学和散射理论研究为基础，瞄准能源、材料和工业应用等方面前沿领域和国家重大需求，力争在高温超导材料、能源材料(储氢材料及燃料电池)、磁性材料(稀土永磁材料、局磁阻材料、多铁材料等)、纳米材料、软物质结构和动力学、生物大分子、大工程部件质量检测等领域的若干焦点问题有所突破，并在应力分析和中子成像方法等方面开展实验研

究。本实验室的研究方向和主要研究内容于下分述。

4.1 中子粉末衍射谱仪

中子粉末衍射仪是基于中子弹性相干散射研究多晶材料的静态结构。研究方向主要为材料的晶体结构和磁结构，辨认较轻原子和近邻原子的占位和占位数，测定磁性原子磁矩的大小和方向，晶态、非晶态结构及其相变的快速测定等。

4.1.1 晶体结构分析

对于新合成的化合物，首先通过X射线衍射方法确定晶体结构，如空间群、晶胞参数、重原子的原子坐标等。在此基础上，收集中子衍射数据，利用Rietveld精修和Fourier分析确定所有元素的准确位置和占有率，并解释结构的特点。特别是针对非公度相，研究结构中元素价态变化、空位等分布特征，揭示非公度结构的成因及结构和性能的关系。对于含有过渡金属离子的体系，测试电、磁性能。以晶体结构为基础，对于一些具有特定磁光电性质的体系，揭示结构与性能关联的深层次问题。据此，从新材料的研制出发，系统而深入研究蕴含在材料制备、结构、性质与功能中的基本科学问题。

4.1.2 磁结构分析

利用中子衍射研究永磁材料的磁化强度、磁有序和磁各向异性与磁结构和相组成的关系，探索建立提高材料的永磁性能的微观和宏观调控的模型和理论，寻找具有优异性能的永磁新相。研究不同温度和磁场条件下具有多种磁、电效应的 $R_5(S_{1-x}Ge_x)_4$ 和 $R_{1-x}(Sr, Ba, Ca)_xMnO_3$ 等材料的微观晶体结构、磁结构、磁致伸缩效应、巨磁热效应、巨磁阻效应及其变化规律。在晶体结构和磁结构基础上，结合磁相图定量分析各种相互作用和磁化机制及其变化规律，分析磁结构与各效应之间的内在联系，探索提高材料性能的途径，寻找有实际应用价值的新的磁性功能材料。

4.1.3 极端样品环境下材料结构分析

研究特殊环境(温度、压力、磁场、电场等)下，上述材料的物理和化学特性与其晶体结构、磁结构、相组成和电子结构的关系。重点研究磁相变化处运输、热学、力学等性能异常与磁结构的关系，获得多种磁效应之间的相互关联性，发现影响材料性能的关键机理，从而为认识和解决磁性材料应用的关键技术提供基本的理论指导。

4.2 中子三轴谱仪

中子三轴谱仪是利用中子弹性相干散射研究单晶样品的元激发，如声子、自旋波的色散。研究对象主要是高温超导体。研究强相关电子系统中电子的状态，晶格热震动，自旋相关，原子的转动及扩散过程等。近期

将主要开展的研究内容是深入探求强关联体系中电子电荷、轨道、自旋和晶格等自由度之间的相互作用，系统观察和理解新现象，推动建立新手段和新理论，预言可能的新发现和新应用。利用中子散射对原子核和自旋敏感的特点，辅助以样品环境(包括温度、磁场和电场、压力等)变化与控制手段，系统测量高温超导、多铁性、离子导电等典型材料体系中声子(反映原子间相互作用)、自旋波和自旋涨落(反映自旋间的相互作用)，结合理论分析，集中探讨强关联体系中原子和自旋微观运动与奇异量子现象之间的关系。研究对象主要包括新型铁基高温超导材料 LnFeAs(O, F) 和 $(\text{Ba, K})\text{Fe}_2\text{As}_2$ 、多铁材料 $(\text{Lu, A})\text{Fe}_2\text{O}_4$ 和 $\text{Cd}(\text{Cr, M})_2\text{S}_4$ 、锂离子电池材料 $\text{LiFe}_{1-x}\text{M}_x\text{PO}_4$ 及其他相关材料。利用固相反应、溶胶-凝胶等方法制备单相多晶样品，使用助熔剂法、浮驱法生长有代表性的典型样品的单晶，并利用化学分析、磁性电性测量、中子衍射等多种手段研究典型单晶样品中的声子、自旋波和自旋涨落。建立铁基超导体中自旋涨落与超导临界温度的关系，以及多铁材料中声子色散劈裂和软化与磁电耦合的关系。

4.3 中子四圆衍射仪

中子四圆衍射仪主要用于单晶样品的结构测定(包括氢原子定位)、漫散射(高温导致的无序，缺陷导致的无序及短程有序的磁结构等)、相变和无公度结构的研究。近期将主要选择重要的非线性光学晶体铌酸锂(LN)单晶开展研究，控制不同的配料和条件生长一系列LN晶体。利用中子衍射/漫散射研究铌酸锂晶体的缺陷结构，根据氧空位、铌空位、钛铁矿结构和锂空位等理论模型拟合实验结果，并根据实验数据和拟合情况，确定缺陷模型与晶体生长条件、组成及性能的关系，优化非化学计量比铌酸锂晶体的生长条件，为制备均一的高性能光学非线性(NLO)光学晶体提出最佳方案。

4.4 中子残余应力和织构谱仪

中子残余应力谱仪主要用于解决材料科学与工程应用中材料的应力测定，可用于研究焊接、铸造和锻造、表面喷丸硬化、轧制变形加工中材料所产生的应力分布。织构衍射谱仪用于材料压力加工和热处理过程中产生的织构进行极图测定和ODF(Orientation Distribution Function)分析。研究的对象包括合金、陶瓷、半导体等。中子应力谱仪的重要作用还包括：研究中子应力三维无损深度测量技术及有限元模拟方法；研究材料宏观、微观应力与工程部件使用过程中材料损伤的相关联性，准确预估服役安全及使用寿命；通过核电工业等材料各种应力(宏观与相间应力)的测量，直接服务于材

料设计，为材料处理工艺的制定提供指导；建立中子残余应力谱仪拉伸、压缩和控温等测量环境并完善有效的测量数据的分析处理方法。

4.5 中子照相

中子照相原理是利用中子束穿过物体时在强度上的衰减变化，对被测物体进行透视成像，从而反映样品内部材料的空间分布、密度、各种缺陷等综合信息。中子照相作为一种无损检测技术，目前在航天、航空、军工、核工业、建筑、考古、生物学、汽车工业、医学、材料学、电子元器件、石油、化工、冶金工业、能源存储等领域中有着广泛的需求和应用。

4.5.1 核反应堆燃料元件的中子成像检测方法研究

由于使用过的核燃料棒含有锕系元素等裂变产物，有强放射性，需建立强辐射环境下有效可靠的中子成像方法。通过典型试样，利用中子照相术建立如下实验方法：①检测核燃料元件结构的完整性；②缺陷、燃料颗粒的分布；③是否存在有害的中子吸收剂；④热堆锆合金包壳表面的氢浓度分布；⑤快堆不锈钢包壳与水冷管的缺陷和腐蚀情况等。为核燃料元件的检测打下基础。

4.5.2 快速实时成像技术与两相流的中子成像研究

借助于快速实时中子成像技术可实现两相流流形的可视化，并可测量其空洞比例、相间相对速度、界面浓度、连续相的速度场和湍流强度等关键参数。本研究将发展每秒1 000帧级的快速实时成像技术，研究降低辐射噪声、统计涨落噪声、读出噪声和像增强器噪声的方法，并建立两相流实验装置，研究两相流参数的定量测量方法，开展典型两相流的实验研究。

4.5.3 先进材料中子成像无损检测的原理和方法研究

先进材料指在航天、航空、核工业及先进制造业中使用的新型复合材料、结构材料、含能材料等，中子成像可用于检测储氢材料中氢的分布、飞机发动机叶片冷却通道内的铸造型芯残留、机翼蜂巢结构的缺陷及腐蚀情况、用于核废料处理的硼合金不锈钢的缺陷等等。本研究将探索典型材料中孔隙、裂缝、夹层、脱胶、含氢、密度不均匀等各种缺陷的成像规律，提高缺陷的探测灵敏度和判定能力。

4.5.4 非平行束情况下中子断层成像图像重建的理论、方法与技术研究

目前国际上的中子断层成像一般采用成熟的平行束算法，但在有些实际情况下中子束在穿透样品的过程中对于理想平行束会有一定偏离，从而引起图像重建的质量下降。本项目将对非平行束情况下中子断层成像图像重建进行研究，以提高中子断层成像的图像质量。

4.5.5 中子照相装置

利用编码中子源进行中子相衬成像的研究。中子相

衬成像具有边缘增强效应，但通常采用的针孔法中子相衬成像的成像效果受到中子注量率过低的限制。编码中子源由按一定规则排列的大量针孔组成，可大大提高可用的中子注量率。将编码中子源用于中子相衬成像是我们在国际上首次提出的设想，为此需研究相应的理论、方法与技术，并将其付诸实施。

4.6 中子小角散射谱仪

中子小角散射是研究1~500 nm尺度材料结构性质的强有力工具。中子小角散射可广泛用于生物大分子、复杂流体和凝胶体、聚合物、磁性及其他新型材料的研究。主要研究内容包括：①溶液中蛋白质分子和DNA的结构性质，以及其随温度、pH等的变化规律；②聚合物，例如溶液中星形聚合物的结构形貌、共混聚合物的相分离；③药物载体，例如树枝状聚合物的结构形状；④复杂流体，例如自组装、胶体形貌和相互作用；⑤磁性材料的磁畴和磁性不均匀性；⑥合金等功能材料中的缺陷，相分离过程。

4.7 中子反射仪

中子反射可用于薄膜(1~500 nm)及表面界面性质的研究，包括生物膜、聚合物薄膜、磁性薄膜、固体和自由液体表面及界面的成分和结构。通过附加各种样品环境，原位观测样品在不同条件下的性质；结合反差变化，中子束极化等技术，在生命科学、软物质和磁性材料等前沿热门研究领域获知独特重要的信息。主要研究内容包括：①生物膜的结构成分，例如蛋白质酶在生物膜中的分布及生物膜的厚度，及其随温度、湿度、pH的变化；②聚合物薄膜间的扩散性质；功能聚合物的性能分析，例如光敏感聚合物薄膜的结构成分；③表面界面性质的研究，例如分子水平上研究表面活性，亲水或疏水材料表面的结构和性质；④磁性多层膜和磁性超薄膜的结构和磁性。

5 结语

为了充分利用CARR提供的中子束，我们希望在2020年以前进一步扩大CARR上的中子散射设备，根据第1阶段的经验及国际发展的趋势增建一批高需求的通用谱仪及几台具有特殊用途的高精度谱仪，如背散射谱仪、自旋回波谱仪等。我们的最终目标是建立起符合我国国情、其综合研究能力与世界先进水平接轨的中子散射国家重点实验室，使之成为我国本世纪中子散射研究和应用及人才培养基地。并且将通过对外开放，争取在亚洲地区形成一个国际性的研究中心。

参考文献 References

- [1] Skold K, Prica D L. *Neutron Scattering* [M]. London: Academic Press, 1986.
- [2] Yang Y C. Magnetic and Crystallographic Properties of Novel Fe-Rich Rare-Earth Nitrides of the Type RTiFe₁₁N_{1-δ} [J]. *J Appl Phys*, 1991, 70(10): 6 001~6 003.
- [3] Lin Q. Study of Acoustic Activity of NaBrO₃ [J]. *Phys Rev Lett*, 1987, 58: 2 095~2 098.
- [4] Cheng Z H. Structure, Exchange Interactions, and Magnetic Phase Transition of Er₂Fe_{17-x}Al_x Intermetallic Compounds [J]. *Phys Rev B*, 1998, 57(22): 14 299~14 309.
- [5] Yang J B. Magnetic Properties and Magnetic Domain Structures of NdFe_{10.5}Mo_{1.5} and NdFe_{10.5}Mo_{1.5}N_x [J]. *Appl Phys Lett*, 1997, 71(22): 3 290~3 293.
- [6] Chen D F. Neutron Diffraction Studies of Ho₂Fe₉Ga_{8-x}Al_x ($x = 2, 4$) at 50 K and 300 K [J]. *J Phys: Condens Matter*, 1998, 10(2): 255~260.
- [7] Chen D F. Development of Neutron Scattering on 60 MW Research Reactor in CIAE [J]. *Physica B*, 2006, 966: 385~386.
- [8] Chen Dongfeng(陈东风). 中国先进研究堆(CARR)上的中子散射工程[J]. *Nuclear Technology*(核技术), 2005, 128, 2: 135~138.

勘误

本刊2009年第9~10期合刊，错放了“高性能金属永磁材料的探索和研究进展”一文通信作者的照片，特此更正，并附上作者李卫教授的简介，谨致我们最真诚的歉意。

李卫教授简介

1957年生，1982年毕业于山东大学物理系，现为钢铁研究总院教授级高级工程师。长期在金属永磁材料领域从事新材料合成、关键技术基础理论和产业化等工程技术研究与创新。1989年在担任国家七五重点科技攻关项目“高性能钕铁硼永磁材料的研究”专题组组长时间，研制出具有国际领先水平的高性能永磁体，磁能积达到49兆高奥，使我国成为世界上能获得这种高性能磁体的少数几个国家之一，该成果获国务院三部委颁发的国家七五科技重大成果奖，被评为我国1989年冶金十大科技成就之一。近十年来，又主持了3项高性能稀土永磁材料和产业化关键技术等国家863重大和国家重点基金项目。获国家科技进步一等奖1项(1989年)、国家科技进步二等奖2项(1999年, 2008年)、国家发明三等奖1项(1991年)，获国家发明专利9项，发表SCI和EI论文96篇，出版专著和参编著作4部。1992年起享受政府特殊津贴。1996年获“国家有突出贡献中青年专家”，2000年获“全国劳动模范”称号。



李 卫 教授