

热中子散射工作的研究和发展

叶春堂

(中国原子能科学研究院 北京 102413)

摘要 本文简要介绍了中国原子能科学研究院的热中子散射工作的状况和发展,简要报导了热中子散射实验设备的概况和最近的工作进展.

关键词 热中子散射, 凝聚态物理, 材料科学.

1 引言

1958年,我国第一座研究性重水反应堆在中国原子能科学研究院建成.这座反应堆共有6个水平实验孔道和一个热柱.这些实验孔道于1958年9月投入使用.所有的孔道都用于低能中子截面测量和裂变物理实验.

1960年底,安装在3号水平孔道旁用作中子截面测量的一台弯晶谱仪被改装为中子粉末衍射仪,从而开始了该院最早的中子散射工作.70年代初,改装另一台晶体谱仪为铍过滤探测器谱仪,同时还新建了一台简易的旋转晶体飞行时间谱仪用来开展热中子非弹性散射工作.80年代初,核工业部和中国科学院合作,陆续用一批新设备更新和充实了原子能院的热中子散射设备,并于1988年10月建成了当时在亚洲处于领先水平的冷中子源.这样,经过几十年的发展,原子能院已经建成了一个初具规模的热中子散射实验室.这个实验室不仅在过去,而且在今后若干年内仍然是我国唯一的热中子散射实验基地.因此,这个实验室的设备从一开始就面向全国开放.从60年代以来,国内先后有20多个科研院所和高校的科研人员到这里来工作过.国际原子能机构也利用这里的条件举办过两期亚太地区中子散射培训班.

2 设备概述

2.1 重水反应堆

原子能院的重水反应堆于1958年6月13日首次达到临界,并于当年9月27日正式投入运行.该堆为水罐式堆芯,重水兼作慢化剂和冷

却剂,反射层为石墨.反应堆在运行了20年后于1979至1980年间进行了改建.改建后燃料元件排列更紧凑,燃料的 ^{235}U 浓度由2%提高到3%,堆功率也由原来的7MW提高到10MW,功率可增到15MW.堆芯最大热中子通量 $\sim 2.8 \times 10^{14} \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$,水平实验孔道内端靠近反射层处的最大热中子通量密度为 $3.2 \times 10^9 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kW}$,外端最大热中子通量密度为 $3.5 \times 10^5 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{kW}$.反应堆的1、3、4、5号四个水平孔道现在专供热中子散射实验用.其中4号水平孔道为冷中子源,引出的中子束长波份额相对较高,适合生物大分子和聚合物分子的结构研究.

2.2 冷中子源和中子导管

4号水平孔道的中子束在引出孔道前先通过一个直径110mm,厚50mm的液氢冷包.冷包容积由 $\text{A}_9\text{G}_3(\text{Al}-\text{Mg})$ 合金制成,液氢总量占冷包容积的80%.冷包放在4号水平孔道内端靠近石墨反射层处(距孔道外端3.5m),密封在防爆套内,通过一个热虹吸循环系统与孔道外的氮压缩机的冷凝器联通.冷源对3Å以上波长的中子平均增益 ≥ 10 .

从4号水平孔道引出的冷中子束由紧接孔道外端的中子导管传输到反应堆实验大厅外的中子小角度散射实验厅.导管总长32m,由27m弯曲导管加上5m直导管构成.导管末端引出束的面积为 $22 \times 52 \text{mm}^2$.在弯曲导管和直导管连接处,留有一个备用的中子束引出口.

2.3 双转子飞行时间中子谱仪

这台谱仪安装在1号水平孔道.入射中子束经过谱仪的转子系统和单色器后变成宽度~

40 μs , 重复频率 $\sim 400\text{Hz}$ 的单能中子脉冲束。中子能量在 5~200MeV 之间可调。散射中子由分布在 $-10^\circ \sim 80^\circ$ 散射角范围内的 54 只 He^3 管记录。样品位置的单能中子强度 $\sim 1000 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 。入射束能量分辨 $\sim (5 \sim 10)\%$ 。这台谱仪可用来研究声子谱和晶体场效应。

2.4 中子粉末衍射仪

这是一台中等分辨率的常规中子粉末衍射仪。PG(002)单色器, 入射波长 $\lambda = 1.18 \text{\AA}$ 。样品位置单色束强度 $\sim 10^6 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 。谱仪探测臂上装有 3 只 He^3 正比管。探测器之间相隔 10° , 2θ 测量范围 $\leq 130^\circ$ 。

2.5 中子四圆衍射仪

它和另一台三轴谱仪共用 5 号水平孔道。由于场地限制, 单色器的起飞角固定在 15° , 相应的 Ge(111) 或 Cu(220) 单色器分别给出 1.69\AA 或 0.66\AA 的单色中子。 $\lambda = 1.69 \text{\AA}$ 时, $\Delta\lambda / \lambda = 0.065$ 。测角范围: $43^\circ \leq 2\theta \leq 150^\circ$; $65^\circ \leq \omega < 136^\circ$; $0^\circ \leq \chi \leq 124^\circ$; $0^\circ \leq \varphi \leq 360^\circ$ 。样品位置的单色束强度 $\leq 10^6 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 。

2.6 中子三轴谱仪

这台谱仪和四圆衍射谱仪共用 5 号水平孔道。Ge(111) 和 Cu(111) 单色器在不同能区用作单色器, 可覆盖 $1.3 \sim 3.3 \text{\AA}$ 的入射能区。PG(111) 用作分析器。样品位置入射束强度 $\sim 10^6 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 。这台谱仪用作中子非弹性散射时, 由于水平孔道快中子本底较高, 光学声子测量较困难。

2.7 广角铍过滤探测器系统

该系统由 21 块 $100 \times 150 \times 10 \text{mm}^3$ 铍块和 29 只 $^{10}\text{BF}_3$ 正比管按聚焦几何组装, 用来记录经过铍过滤的、能量低于 5.2MeV 的中子。记录散射中子的张角范围达 30° , 该探测器系统可配合任何可调单能中子源进行中子非弹性散射实验。特别适合几百 MeV 以下能区元激发的研究。

2.8 中子小角度散射谱仪

这台谱仪安装在中子导管末端, 利用导管输出的冷中子束进行生物、聚合物大分子构形、金属缺陷和沉淀的形状研究。谱仪尚未最终建成, 预计 1995 年上半年安装完毕。谱仪的入射

中子由一台机械单色仪单色化, $\Delta\lambda / \lambda \sim 16\%$ 。散射中子由 64×64 单元 (单元尺寸 1cm^2) 的 He^3 二维位置灵敏探测器记录。

以上各谱仪的运行都由微机控制。各谱仪均配有液氮温度至室温的样品控温设备。三轴谱仪和四圆衍射仪还配有高温样品炉。

3 当前的工作进展^[1~7]

中子散射的研究领域很广, 到目前为止, 仅在凝聚态物理和材料科学方面开展了工作。以下将简述在这些方面取得的几项最新成果。

3.1 磁性材料的中子衍射研究

最近, 杨应昌、杨继廉等人用中子衍射系统地研究了 $\text{R}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_x$ 和 $\text{RTiFe}_{11}\text{N}_x$ 的晶体结构, 确定了氮原子在 $\text{Th}_2\text{Mn}_{17}$ 型菱方结构、 $\text{Th}_2\text{Ni}_{17}$ 型六角结构以及 ThMn_{17} 型四方结构中所占据的间隙位置。这项研究的结果不仅为计算这些氮化物的晶场系数及电子结构提供了可能, 而且, 他们的实验结果表明, 在这些化合物中, 氮只占据间隙位置。因此, 氮的加入增大了晶胞的体积, 从而增强了铁原子间的交换作用, 使居里温度升高; 另一方面, 氮的加入使铁原子 3d 正负能带电子数目差额扩大, 增大了铁的饱和磁矩; 此外, 由于氮原子对稀土晶位晶场的影响, 使稀土次晶格的磁晶各向异性发生了根本变化。原来具有面各向异性的离子在吸氮后成为轴向各向异性。这就使某些材料, 如 $\text{NdTiFe}_{11}\text{N}_x$, 在室温下具有较强的各向异性场, 有可能开发出比 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 的综合价值更高的新一代永磁材料。

3.2 高 T_c 超导材料的结构和晶格动力学研究

原子能院用中子散射研究超导材料的目的是探索高 T_c 超导现象的微观机制。在结构上, 重点在研究和氧占位、氧缺位有关的机制问题, 因为中子对氧灵敏。在晶格动力学方面, 主要探索与晶格振动有关的现象。尽管高 T_c 超导材料的同位素效应不明显, 但声子究竟在高 T_c 超导机制中起什么作用, 仍然是值得探索的。

高之爽等用中子衍射方法系统地观察了 YBCO 在真空状态下的氧离子扩散现象。他们发

现，无论在室温还是在液氮温区，处在真空状态下的 YBCO 中的氮原子都要向外扩散。这种扩散增加了氧原子的欠缺，导致 T_c 下降。 T_c 在真空中随时间的变化呈阻尼振荡形式。引起这种振荡的根本原因和氧扩散过程中铜的价态变化有关。换句话说，这种现象是 Cu^{3+} 和 Cu^{2+} 之间的动力学平衡过程的反映。

阮景辉等最近用中子非弹性散射方法观察了不同氧含量的 YBCO ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$) 在 150MeV 能区以下的元激发。对 $\delta = 0.2$ 的四方相样品(半导体)，在 60~150MeV 观察到较强的高频模。当温度升高到 466K 时(Neel 点 ~ 410K)，这个高频模并未消失或减弱。同样的现象对 $\delta = 0.97$ 的正交相($T_c = 91\text{K}$)超导样品并未观察到。中子非弹性散射谱的这一明显差异(图 1)看来不可能来自声子，很可能归因于短程关联的局部反铁磁模。

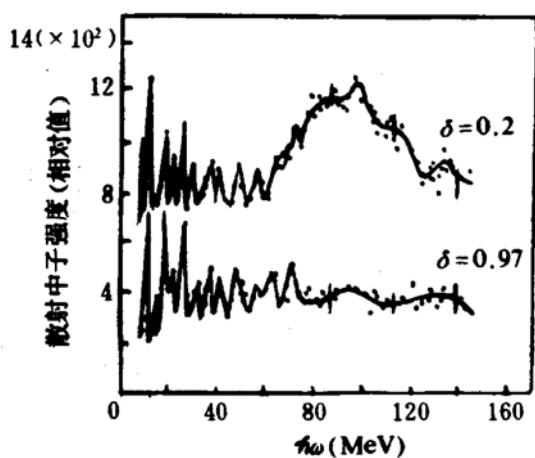


图 1 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+\delta}$ 的热中子非弹性散射谱

3.3 相变机制研究

勾成等最近对 LiTaO_3 的铁电-顺电相变过程进行了研究。他们在室温到 800°C 的温区内，测量了沿 A 及 Σ 方向的声学色散支和沿 Σ 方向的一支光学色散支。实验中没有观察到表征位移相变的软声子，从而不支持某些实验所认为的位移相变机制，认为是一种有序-无序相变。

李际周等最近用中子非弹性散射方法研究 NiTi 和 NiTiCu 的声子谱，发现当样品由奥氏体

相向马氏体相过渡时，伴随声子谱变化现象(图 2)，马氏体相的声子谱明显硬于奥氏体相。这是一个十分有趣的结果，它和马氏体相变起因于弹性形变的软声子触发的观点是相悖的。

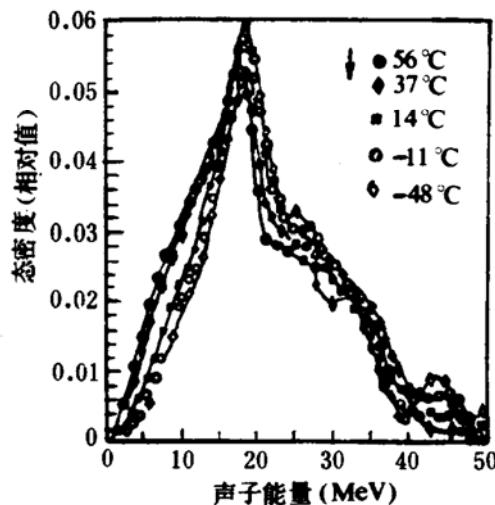


图 2 $\text{Ni}_{40.5}\text{Ti}_{40.5}\text{Cu}_{10}$ 的广义声子谱。测量由 56°C 开始，按 37°C, 14°C, -11°C, -48°C 顺序改变温度。马氏体相变点为 24°C

3.4 其它

除以上结果外，在 $\alpha\text{-LiIO}_3$ 的外场衍射研究、石油泥岩孔隙尺寸分布的研究，以及嵌银晶体的反射强度理论计算方面，最近都获得了一些有意义的研究结果，限于篇幅，不再列举。

4 结束语

热中子散射的应用领域很广泛，我们欢迎有关的科研人员到原子能院来，充分利用这里的设备开展中子散射研究。目前，原子能研究院打算进一步改善这里的设备条件，争取把这个国内唯一的热中子散射实验室办成开放的国家实验室。

参 考 文 献

- 1 叶春堂，核技术，1993，16(8)：505
- 2 Yang Yingchang, et al. Science in China (series B), 1991, 34 (11) : 1290
(下转 30 页)

7 近期工作展望

CENDL-2 已经产生了很好的国际影响和一定的经济效益。为进一步扩大影响,产生更大的经济效益,在继续对 CENDL-2 的改进和扩充工作的同时,还要加强 CENDL-2 的宏观检验工作。

目前,核数据领域的国际合作已成为趋势,应该以国内需要为基础,积极参加各种形式的国际合作,以提高水平、锻炼队伍、获得资助和

扩大影响。

CNDC 愿意进一步加强核数据服务工作,为国内广大用户提供优质服务。

参 考 文 献

- 1 Cai Dunjiu, et al. Progress of Nuclear Data Work of CNDC, proc. Symposium on Fast Neutron Physics, Beijing, 9-133 Sept. 1991, 324

Recent Progress of Nuclear Data Research in CNDC

Zhang Jingshang Zhao Zhixiang

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Abstract The activity and progress on nuclear data research of Chinese Nuclear Data Center (CNDC) in recent two years are introduced.

Key Words nuclear data, neutron data, EXFOR file.

(上接 33 页)

- | | |
|-------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------|
| 3 Yang Jilian, et al. Acta Metall. Sinica (English Ed.), Series B, 1993, 6(5) : 345 | 6 Gou Cheng, et al. J. Phys., Condens. Matter, 1993, 5 : 2707 |
| 4 Gao Zishuang, et al. Physica C, 1992, 203 : 45 | 7 Hu Huachen. J. Appl. Cryst., 1992, 25 : 731 |
| 5 阮景辉等. 物理学报, 1993, 42(7) : 1121 | |

Thermal Neutron Scattering Research in CIAE

Ye Chuntang

(China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413)

Abstract The development and current situation of the thermal neutron scattering research in CIAE are reviewed. The brief descriptions on the experimental equipments and the main progresses made recently are given.

Key Words thermal neutron scattering, condensed matter physics, materials science.