

CSNS小角中子散射仪 (SANS) 年度运行总结

柯于斌，何春勇，蒋寒秋

张晟恺，杨华，郑海彪，耿艳胜

CSNS小角散射仪组
中科院高能所东莞分部

2020.10.22



提 纲

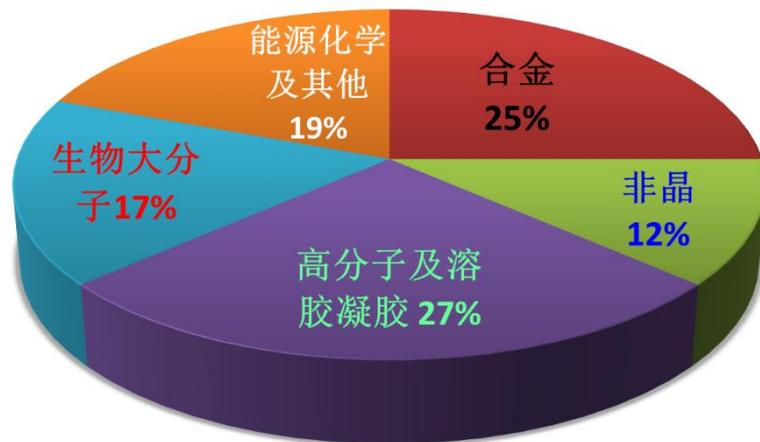
- 一、用户实验及问题总结
- 二、谱仪运行相关问题总结
- 三、谱仪检修升级和未来发展方向
- 四、总结

一、开放运行及用户实验

用户实验机时：3838h (靶站供束4667h)

开放共享率：82%，故障率 < 0.4%

2019-2020年度SANS
用户实验领域分布



两轮运行共完成来自国内外30余家研究单位的45位用户的53项实验课题

运行时间统计 (h)	2019.10	2019.11	2019.12	2020.01	2020.02	2020.03	2020.04	2020.05	2020.06	2020.07	合计
供束机时	312	432	511	304	0	395	496	546	579.7	262.3	3838
运行准备	1	0	0	0	0	1	2	1	0	0	5
机器研究	293	53	99	94	6	206	8.3	0.9	16.3	32	800.3
故障机时	1	9	0	0	0	2	3.5	0.3	0	0.7	16.2

用户实验成果产出

序号	论文题目	单位	用户	研究领域	投稿杂志	发表时间
1	Microscopic Structure-Property Relation of Metal-Organic Polyhedron Nanocomposites	华南理工	殷盼超	高分子聚合物	Angew. Chem. int. ed. (IF=12.959)	2019.9
2	Reentrant glass transition leading to ultrastable metallic glass	北科大	刘雄军	非晶合金	Materials Today (IF=26.416)	2019.9
3	Excellent long-term stable reactivity of nanoscale inhomogenous Fe-based metallic glass in purification of wastewater	南京理工	陈双琴	非晶合金 (环境)	Science China Materials (IF=6.098)	2019.11
4	Shining Emitter in Stable Host: Design Halide Perovskite Scintillators for X-ray Imaging from Commercial Concept	南京理工	曾海波	无机化学	ACS Nano (IF=14.588)	2019.11
5	In-situ observation of an unusual phase transformation pathway with Guinier-Preston zone-like precipitates in Zr-based bulk metallic glasses	南京理工	兰司	非晶合金	J. Alloys Compd. (IF=4.65)	2020.4
6	Daisy Chain Dendrimers: Integrated Mechanically Interlocked Molecules with Stimuli-Induced Dimension Modulation Feature	华东师大	杨海波	高分子聚合物	JACS (IF=14.612)	2020.4
7	Dynamic Artificial Light-Harvesting Systems Based on Rotaxane Dendrimers	华东师大	杨海波	高分子聚合物	Giant (预估IF>10.0)	2020.7
8	Investigation of pore structures in shallow Longmaxi shale, South China, via large-area electron imaging and neutron scattering techniques	应物所	张林娟	页岩油及页岩气	Energy & Fuels (IF=3.421)	2020.6
9	Tuning Magnetostriction of Fe-Ga Alloys via Stress Engineering	北航	柯于斌	合金	J. Alloys Compd. (IF=4.65)	2020.5
10	Deformation-enhanced hierarchical multiscale structure heterogeneity in a Pd-Si bulk metallic glass	南京理工	兰司	非晶合金	Acta Materialia (IF=7.656)	2020.9
11	Actinide separation inspired by self-assembled metal-polyphenolic nanocages	高能所	梅雷	有机化学	JACS (IF=14.612)	2020.9
12	Chain Conformation and Aggregation Structure Formation of a High Charge Mobility DPP-based Donor-acceptor Conjugated Polymer	化学所	刘国明	有机化学	Macromolecules (IF=5.918)	2020.10

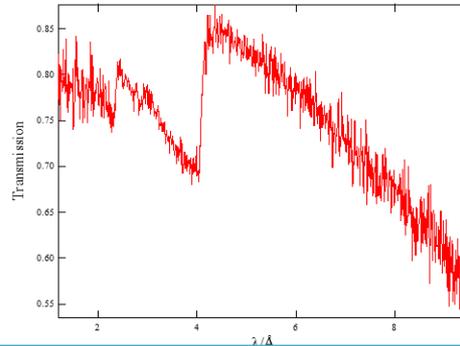
用户实验问题总结



应用领域一: 金属和合金材料 相分离研究 (晶态/玻璃态)

内容已删除

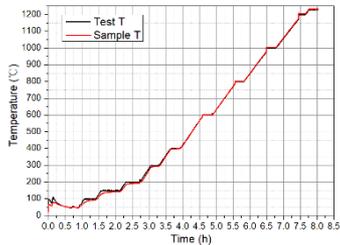
工业应用广泛，实验相对简单，数据处理比较复杂



短波数据不可用，可表征的最小尺寸变大
 $d = \lambda / (2 \sin \theta)$

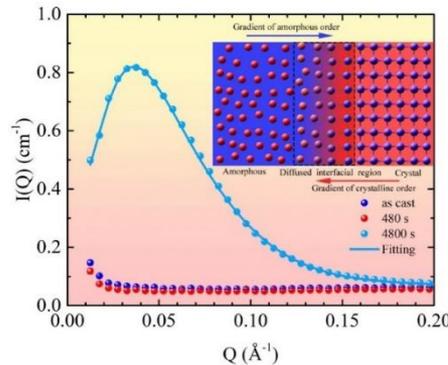
□ 晶态合金的问题：
Fe, Co, Ni, Cu等合金受bragg边的影响，
Qmax只能到0.2，而
1~2nm的析出相/晶粒
恰恰是TEM等常规手段
难以观测，且对性能起
着重要的调控作用

高温炉



WeiXiadong, et al. **J. Alloy. Comp.**, 819(2020),153049

➤ 解决方法：减小S-D以
增大Qmax;

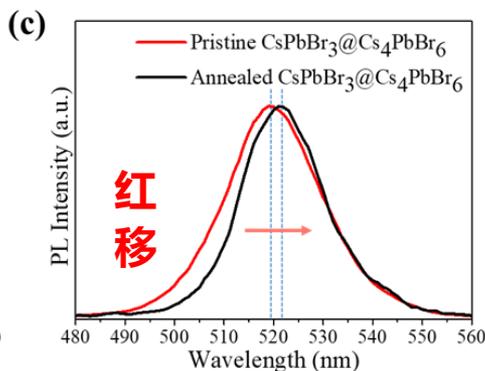
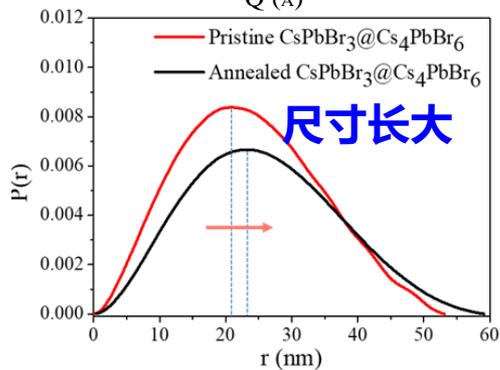
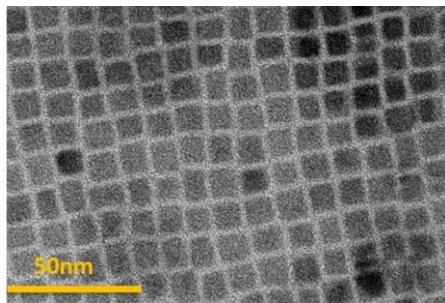
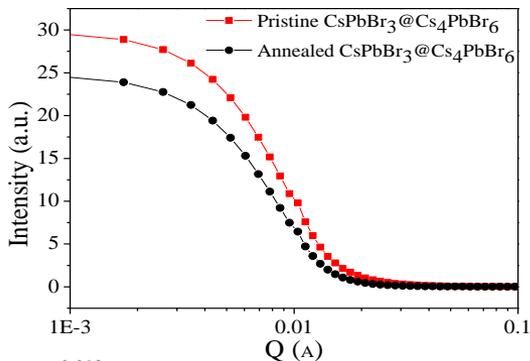


□ 非晶合金的问题：大多
数样品较小，部分样品
含B元素，信号较弱

应用领域二:先进功能材料内的纳米畴结构

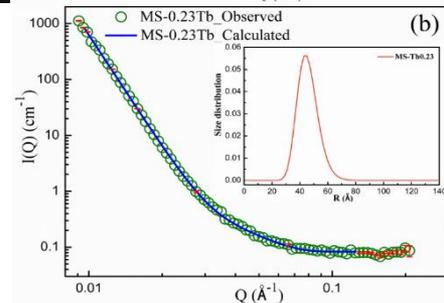
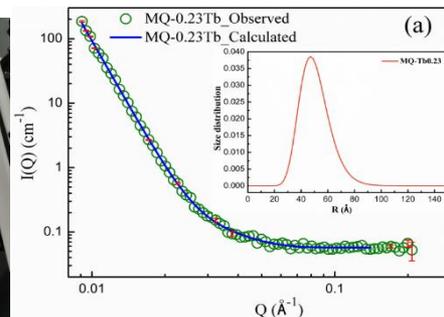
纳米尺度的晶粒/析出相/磁畴

卤化物钙钛矿纳米晶材料/光性能



Fei Cao, et al. ACS Nano 2020, 14, 5, 5183–5193

Fe-Ga磁致伸缩合金中纳米析出相的观测



内容已删除

Yubin Ke*, et al. *J. Alloys Compd.* 822(2020), 153687

内容已删除

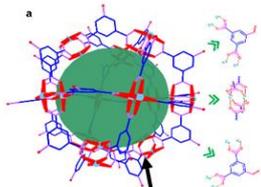
- 实验：需加载外场样品环境，原位观测纳米畴结构的动力学演变过程（温度、电/磁场、光）
- 用户：缺乏重点用户

应用领域三: 新型高分子聚合物结构研究

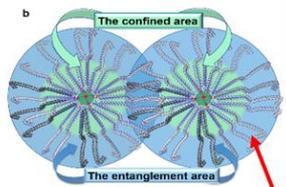


星形高分子, 维菊分子、水凝胶

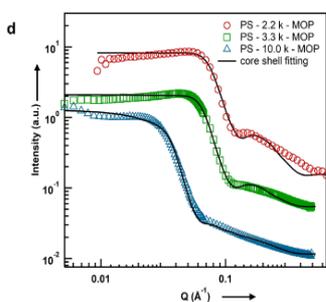
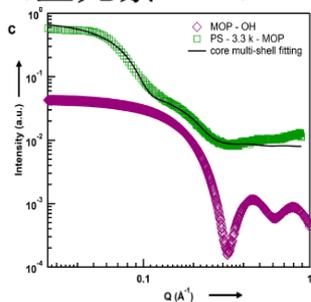
SANS-SAXS联合揭示
聚合物的核-壳结构



SAXS: 球形核结构
(重元素Cu²⁺)

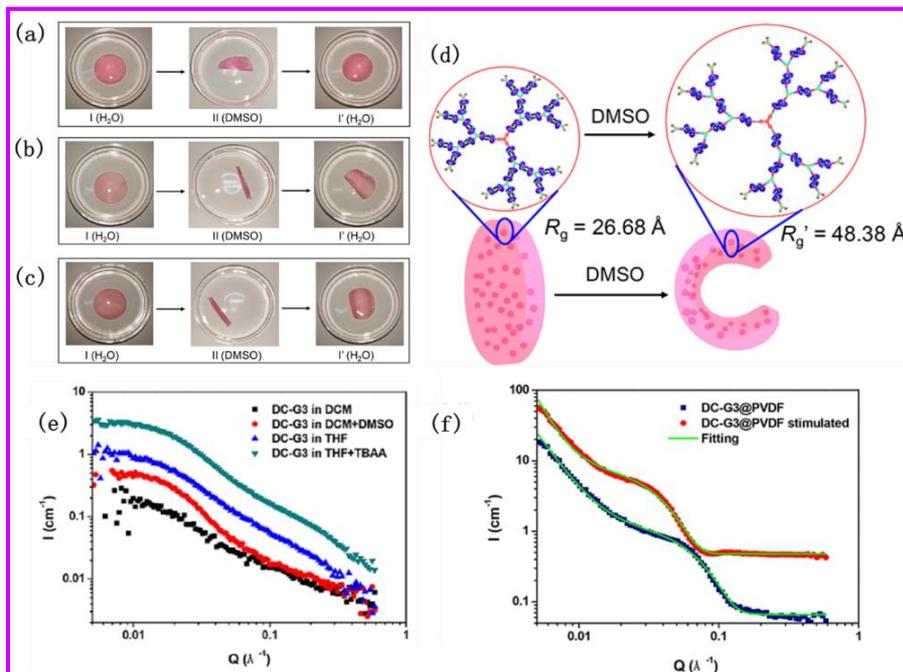


SANS: 壳层为毛刷高
分子链 (C, H元素)



Mingxin Zhang, et al. *Angew. Chem. Int. Ed.*, 58, 17412 (2019)

维菊链树状分子在刺激后枝杈的构象发生折叠, 从而导致整体可控可逆的尺寸变化



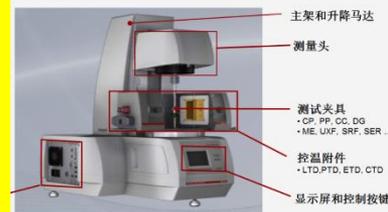
Wei-Jian Li, et al. *J. Am. Chem. Soc.* 2020, 142, 18, 8473–8482

大多需要对样品进行氘代;

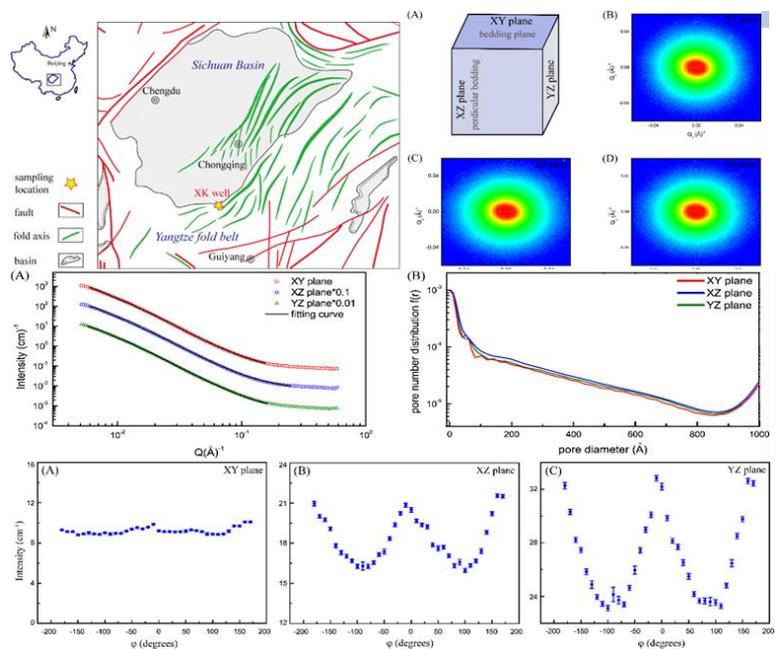
1. 氘代溶剂进行contrast match(√)

2. 对高分子本身进行氘代contrast selection/labeling

流变仪

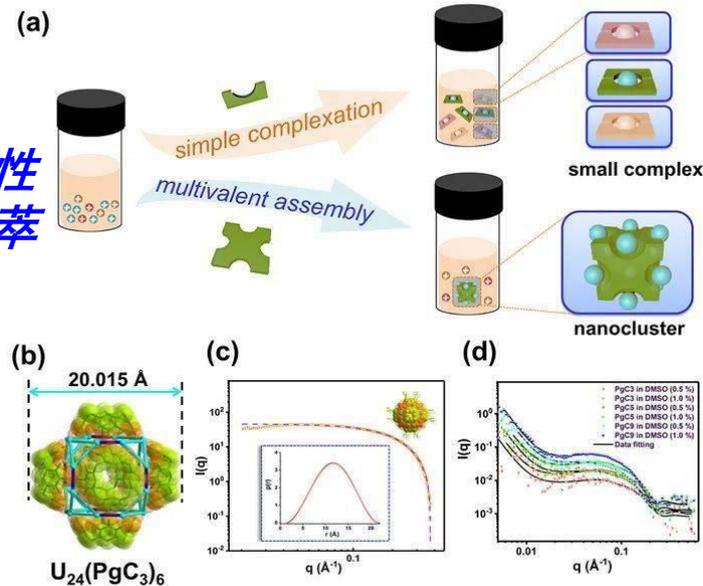


► 新能源: 页岩气/油



铜系核素选择性分离的“纳米萃取”新策略

► 放射性化学



Lei Mei, et al., J. Am. Chem. Soc., 2020, 142, 39, 16538–16545

Yu Wang, et al., Energy & Fuels, 34(2020): 7974-7984

- 实验设计: 目前的研究大多采用不同油田/深度的样品简单的测试; 进一步研究相对较为复杂: 原位加压+通气模拟页岩储存条件
- 样品制备: 样品较厚时, 需要考虑多重散射(Multiple scattering); 样品透过率需控制在~90%

内容已删除

存在的问题

样品制备：样品量相对较小+合成氘代蛋白：成本昂贵，实验准备周期长

数据分析：蛋白质结构分析时需结合其他手段，比如计算机模拟蛋白质结构等

二、谱仪运行相关问题总结

1. 实验设计/样品制备及安装

部分用户在实验设计上经验不足。为了氘代而做氘代，降低了衬度。

盲目氘代：将溶质氘代，而H₂O作为溶剂，增加了实验成本和非相干散射本底。

In H₂O:
I(0)/bkg ~ 4

In D₂O:
I(0)/bkg ~ 60

样品安装及固定

- 实现了样品架更换前的定位准直：效率较低，建议简化操作(模块化)；更换时形成标准化流程和有效的check方法；
- Kapton 胶带背底散射问题：固定样品的胶带富氢，在样品散射强度弱时，胶带的散射贡献不可忽略，甚至会影响小尺度析出相的辨认——设计AI样品盒用于固定样品
- 部分样品体系稳定性差，在长时间实验中溶质有析出沉淀的可能性——**需要rotating sample holder以防止沉降的发生**；

Rotating sample rack
(0-130rpm) @ ISIS



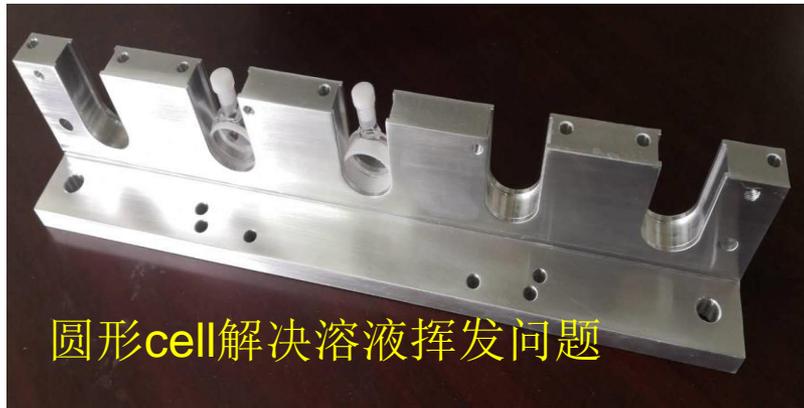
二、谱仪运行相关问题总结

2. 液态样品实验存在的问题

(1) 普遍信号很弱，受背底影响较大，浓度的选择上也需要经验的积累甚至是试测。（机器研究时间用于试测）

(2) 溶液样品在长时间原位（高温）实验时，低沸点溶剂易于挥发；方形样品皿边缘溶液与比色皿内角接触形成弯月面而爬升外溢

✓ 解决方法：改进密封方法、采用圆形cell



圆形cell解决溶液挥发问题

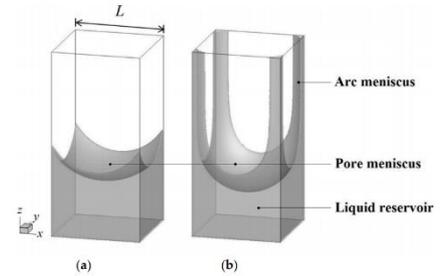


Figure 1. Schematic representation of the two liquid configurations in a square tube: (a) pore meniscus when the contact angle is larger than the critical contact angle, $\theta \geq \theta_c$; and (b) co-occurrence of pore and corner arc menisci when the contact angle is smaller than the critical contact angle, $\theta < \theta_c$.



研究溶液挥发问题

(3) 有机有毒溶剂的挥发：抽风管道改装+样品处加装万向抽风罩

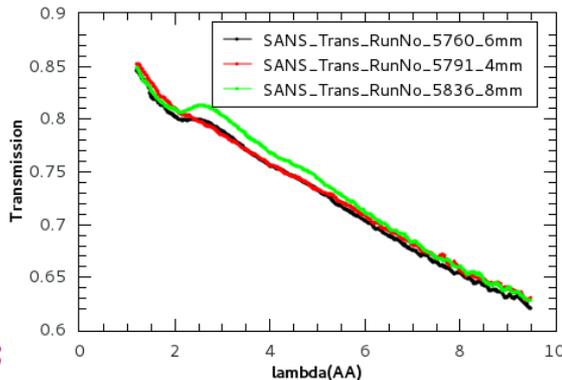


3. 实验测试状态

透过率异常

问题1: 100kW大光阑下**透过率异常**;

- ✓ **原因分析:** GEM电子学饱和
- ✓ **解决方法:** 在**GEM**前增加孔径为 $\Phi 4\text{mm}$ 的中子吸收挡板进行物理限束+电子学升级

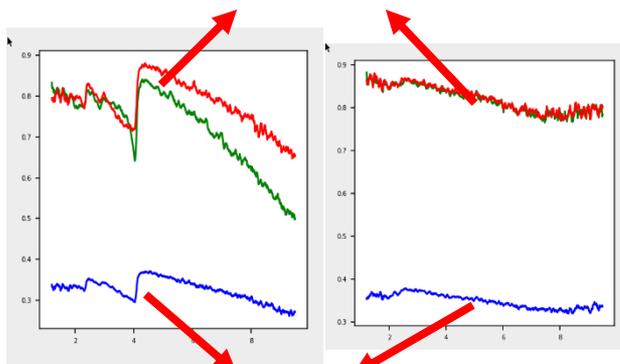


问题2: 升高压后首次测试透过率异常;

- ✓ **原因分析:** GEM 监视器在不同阈值下皆需要一定时间 (几十分钟@5, 80秒@100) 才能达到稳定读数
- ✓ **解决方法:** 在测试前设置220秒的等待时间来解



问题3: 用户同一系列样品透过率偏差较大



样品架9号位置样品透过率

标样
空束
用户样品1
用户样品2 没有动作

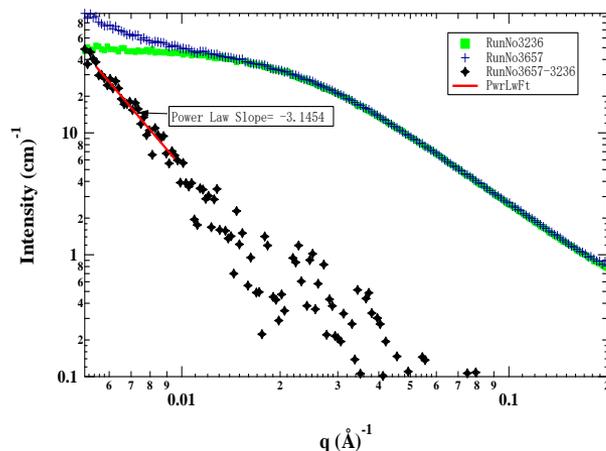
- ✓ **原因分析:** 校准出现问题, 样品中心和束流中心不重合
- ✓ **解决方法:** 样品架重新校准; 安排了部分重新测试

二、谱仪运行相关问题总结

状态判断方法

(1) 标样比对：添加根据每次实验时测量的标样和刻度标样的 **scaling factor** 来标定实验数据绝对散射强度的功能，从而规约由每次测量条件的细微变化而对数据强度产生的影响

(2) 空束散射背底比对：确认背底水平发现解决了**背底异常**（样品架传输线阻挡、位置不正、屏蔽板尺寸影响）——样品架更换时按标准化操作流程，并形成自己的**check**的方法

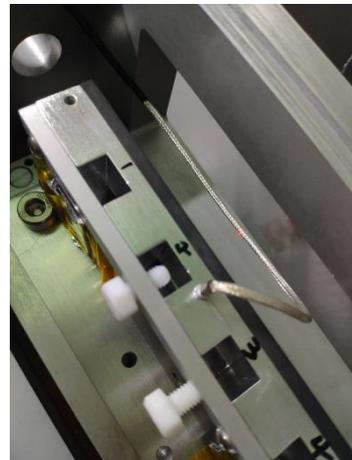


标准样品（BP_63.5K_3#）散射曲线和标准曲线在低 q 处不重合，在排除其他因素后发现水域装置温度探头线没有固定，掉在了束流中心，产生了次级信号。

BP62.5k	trans	3639
Position 1	scat	3657
EB	trans	3640
Position 2	scat	3658

解决方法：安装高精度摄像头，对测试样品状态进行监控

水浴装置温度探头线处于束线中



4. 实验设置、数据显示和传输:

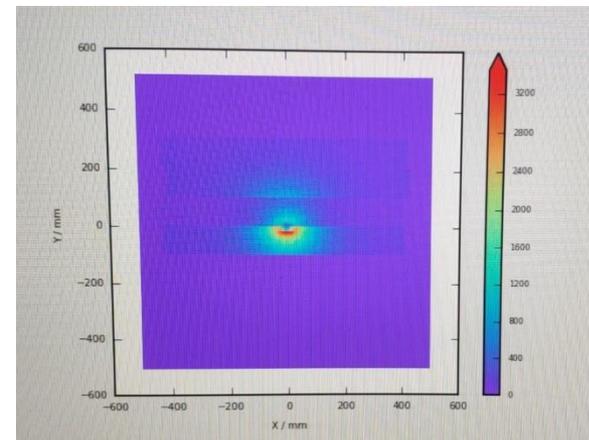
实验控制界面

- 提交实验时控制界面反应迟钝或卡死:

解决方法: 可通过重启**gnome**界面恢复。已设置定期清理系统内存文件避免卡死。

- 在实验进入running状态前Abort出现主控逻辑和报警逻辑混乱（表现为run#错乱）、在线转发模块挂掉和离线转存不完整(多次出现)

计划解决方法: 调试控制和DAQ的逻辑，确保任何谱仪操作动作情况下，尤其是在起始阶段立即执行abort时，控制程序走完一个短时完整流程，预计额外增加时间小于5s。



由于控制和实验逻辑混乱导致硬件配置错误造成主探若干模块没有数据

数据上传故障

小角上传的run号	小角现场当前实验run	粉末上传的run号	粉末现场当前实验run	小角delta run	粉末delta run
8508	8509	6675	6675	1	0
反射上传的run号	反射当前run号				

- **2019年第二轮2次:** abort后监视器标识符未上传，数据未重建

解决方法: 手动调整数据重建代码，绕开标识符进行数据重建；后续完善上传标识符的脚本，增加数据上传监测系统解决问题。

- **2020年第一轮1次:** （新数据格式添加按事例储存)对数据量大的事例模式文件过大，会由于服务器内存不够出现数据混乱；

解决方法: 后续增加数据检测机制，如果事例量超过1亿就不使用事例模式。

在线数据界面

(1) 在线界面“假死”

➤ 在线系统故障SANSonline (pilot) 崩溃退出

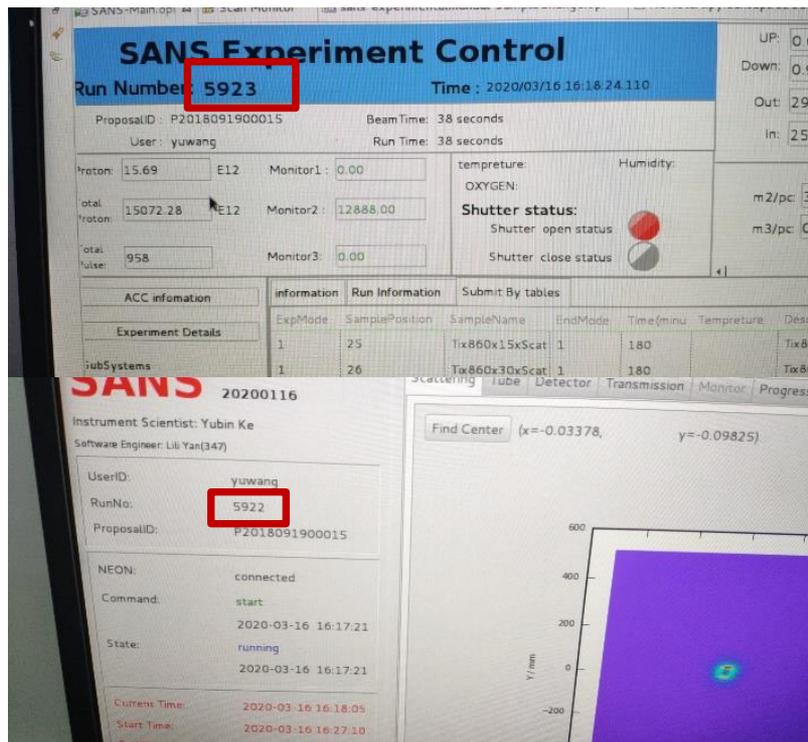
长时间运行后**打开的文件描述符数量超限导致**——程序监视pilot打开文件描述符数，在达到一定阈值时（最大值80%），**cockpit控制程序重启pilot**（报警反馈；

➤ 本地电脑死机无法发送在线**ready**信号——修改为**直接从服务器获取ready**信号，不受本地机状态影响（本地报警）；

(2) 在线数据系统run#与实验控制系统不匹配:

在线分析程序**抓取run #比控制发的快**，导致在线数据系统显示的run号比控制界面滞后——**设置0.2s延迟读取**。

希望在线数据显示界面时间更新，并且增加显示当前run的样品名称或description



5. 离线数据处理

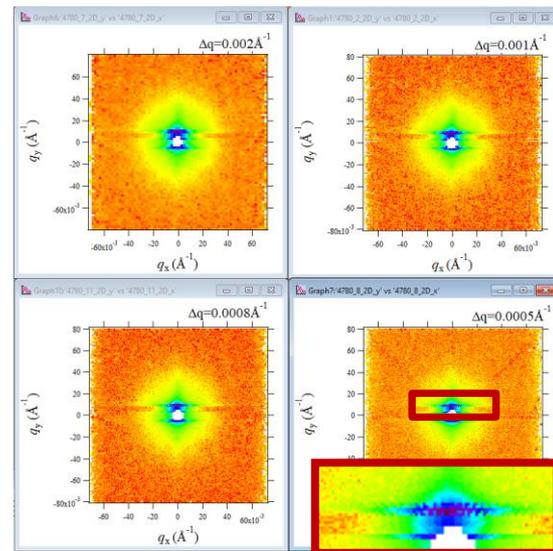
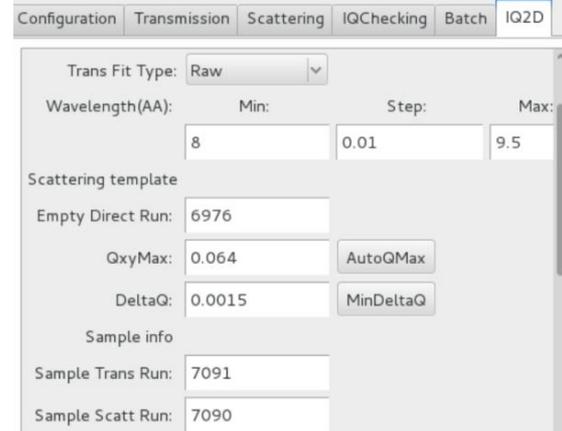
➤ SANSoffline功能逐步完善（已解决）

- ✓ 输出增加一列数据归约所用所有参数和文件设置文件，便于对数据处理过程的复查；
- ✓ 增加2D数据的批量处理选项；
- ✓ 根据设置的q-range中的 q_{max} 对应的中子波长以及探测器像素大小自动计算不产生“零点”的最小 Δq

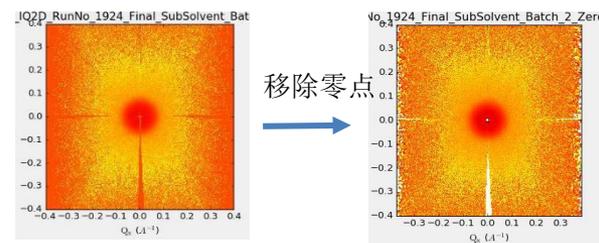
进一步提升2D数据质量需要提升探测器分辨率？

➤ 未来改进计划

- 批量数据处理进程中需要Abort功能，目前通过关闭软件停止进程，会丢失所有输入的参数；
- 使用excel表格批量提交实验参数进行数据处理（更高效、减少出错可能性）；
- SANSoffline中增加数据按时间切割功能（目前：需要使用额外的script处理，切分效率较低，很难现场根据数据来调整实验方案）；
- 希望添加可选择一定角度范围进行数据处理的选项（各向异性样品和磁性样品样品核磁分离）



由于 Δq 设置过小的artificial effect

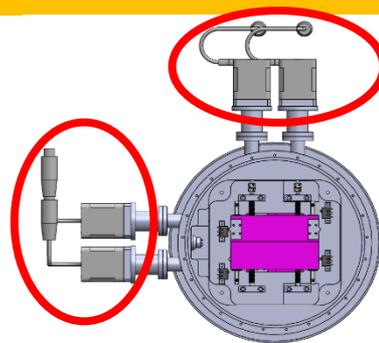


三、谱仪维护升级和未来发展方向



1. 准直光路部件优化及升级

➤ 四刀光阑A1升级：更换4个带编码器反馈电机，并将四刀光阑控制柜硬件整合至谱仪统一控制柜。



➤ A2光阑电机升级及控制更新 (+位置反馈)

➤ A3光阑实现自动切换

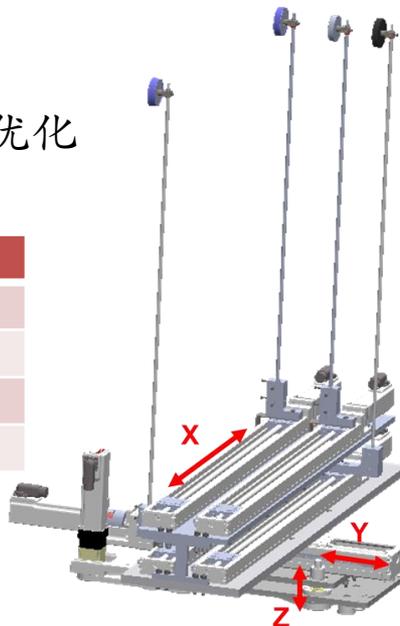
➤ Beamstop升级



增加beamstop Z向位移调节。在不同光阑尺寸下

测试空束背底形状和计数率对beamstop位置进行优化

	material	Size/mm	X/mm	Z/mm①	Y to det/mm
Beamstop1	2mmCd+6mmB4C	φ27	538	3.7	330
Beamstop2	10mmB4C+4mmCd	φ30.5	544.5	2	248
Beamstop3	6mmB4C+4mmCd	φ32.3	521.3	1/1.7③	175
Beamstop4	2mmCd+6mmB4C	φ40.8	550④	2④	110



2. 相关部件维护升级

- ✓ 增加泵组上方手拉葫芦，方便吊装；
- ✓ 增设电磁阀控制泵组阀门的供气，实现远程启停泵组阀门功能；
- ✓ 泵组冷却水路改造
- ✓ 散射室内温升问题：冷水机/空调

散射室空调



手拉葫芦吊装

远程切换和启停

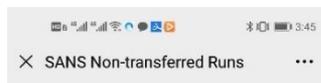


水管改造
(过滤/减压)

气管改造

3. 实验控制软件升级 (控制组)

- ✓ 散射和透过率测试模式的自动切换 (GEM的升降高压、运动和实验run的连锁)
- ✓ 主探升高压、monitor控制程序整合
- ✓ 批量提交实验测试run: Table input
- ✓ 数据传输的监测
- 下一步希望实现A1四刀和A3光阑和实验控制run的整合 (实验提交界面输入几何配置)



SANS Non-transferred Runs



测试自动手动切换

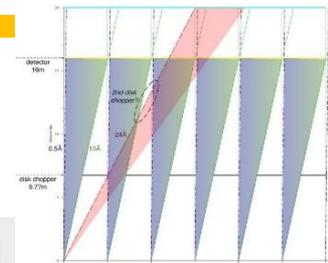


高压和运动连锁

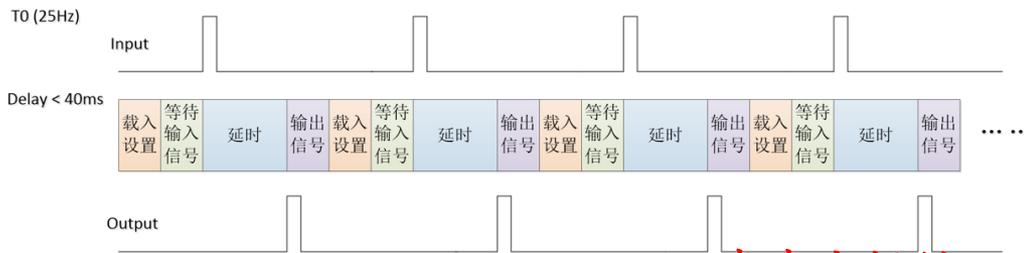
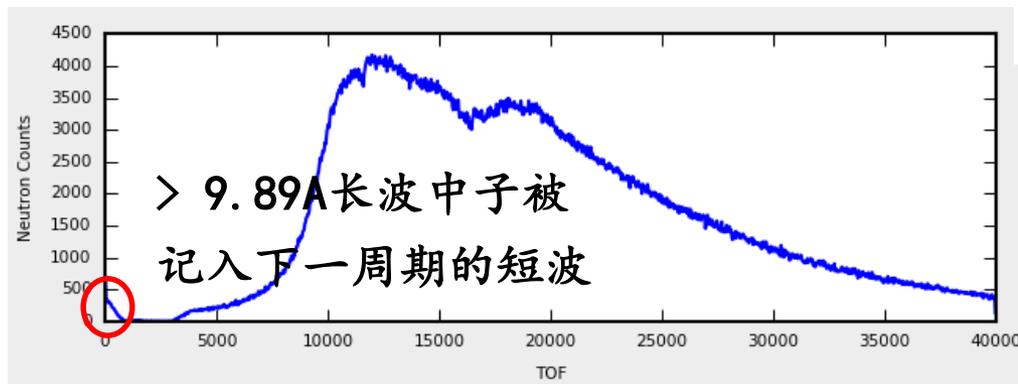
4. T_0 延迟功能

◆ 为什么要做延迟?

- >9.89A后, 长波中子与下一个脉冲短波叠加问题
- 闪频技术



内容已删除



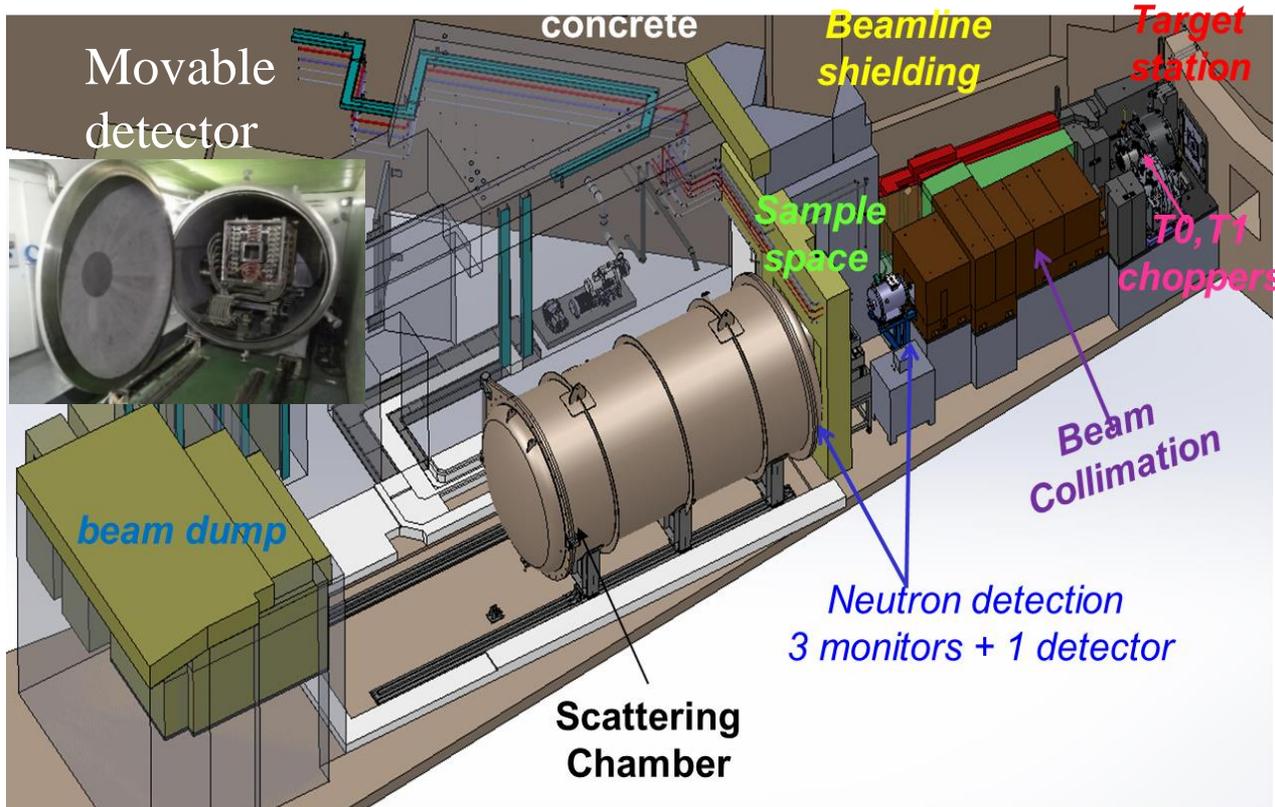
◆ 怎么做?

- T_0 信号在质子打靶后延迟一段时间[1 μ s, 40 ms) 给出触发信号;
- 探测器, 监视器等测量时间 (由 T_0 信号触发) 延迟, 按照飞行时间需要做修正—后端数据处理统一修正 (在线/离线)

李嘉杰提供

T1斩波器设置: 1.11A~11.0 A; detector位置无交叠中子波长范围: 0~9.89A; 9.89~11.0 A会作为下一周期短波记录下来

delay 1.11A \implies 主探实际探测无交叠范围: 1.11~11.0 A



谱仪特点

- 通用性小角散射仪
- 短直束线、探测器可移动——较宽的Q值范围；
- 能量分辨的SANS

未来发展方向

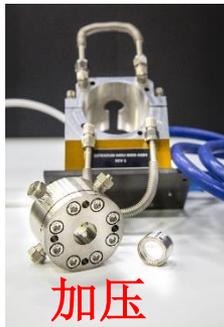
1. SANS技术的推广和用户培养
(内部和用户的支持)

- SANS技术和谱仪应用/功能的宣传
- 基础知识及实验操作技能的培训 (用户)
- 数据分析拟合的培训/合作 (用户)

2. 完善配套实验条件

原位实验样品环境的开发

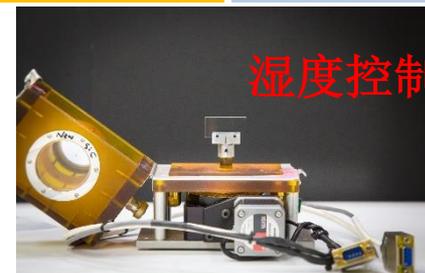
拉伸+加热



加压

力

湿度/气氛



湿度控制

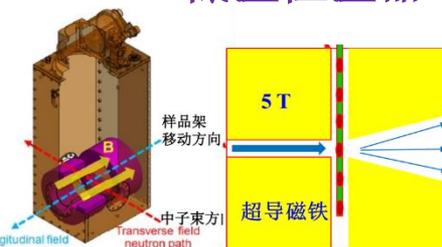


磁

5T+低温恒温器

光 电

热



低温



高温

用户实验室及相关配套技术

- 生物/化学实验室条件的完善;
- 配套实验技术:
样品氙代技术,
SAXS,
TEM, SEM, AFM

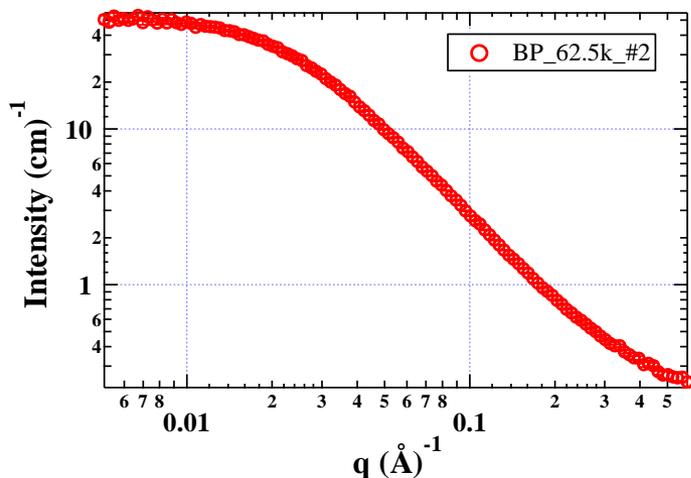
Gel or Polymer Melt



3. 提升谱仪自身性能

SANS谱仪性能的突破

Q_{min} 突破性进展达到 0.005 \AA^{-1} , 拓展覆盖的尺度范围 (优化光路和调整中子波段)



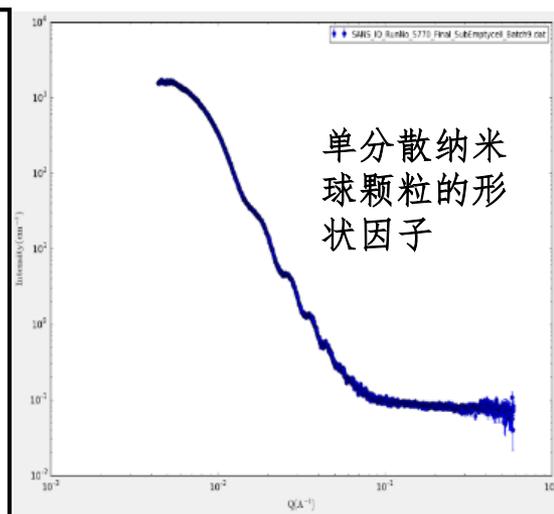
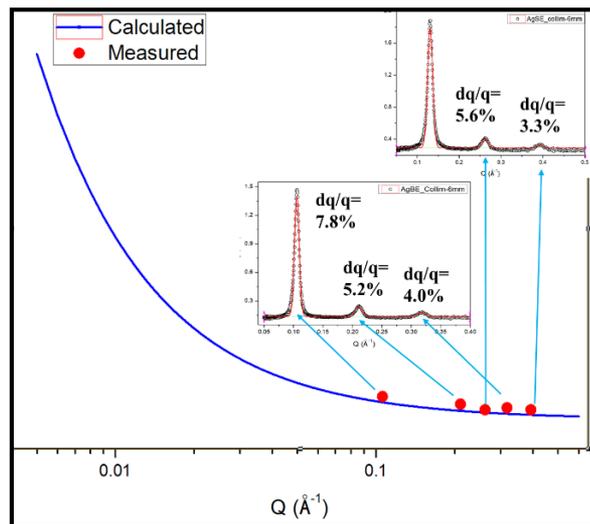
- Q-resolution有了一定提升 (优化光路、主探升高压)

SANS设计指标: $0.01 \sim 1 \text{ \AA}^{-1}$

$0.005 \sim 0.65 \text{ \AA}^{-1}$ (1.4 \AA^{-1} @14m)

国际散裂中子源上SANS谱仪的性能对比

Source	Instrument	λ range	Q-range	Length	flux
ISIS	SANS2d	2~14Å@10Hz	0.002~3Å ⁻¹	19+12m	>10 ⁶ cm ⁻² s ⁻¹
	LOQ	2.2 - 10.0 Å@25 Hz, 2.2 - 6.7 Å or 6.3 - 10.0 Å @ 50 Hz	0.006 - 0.24; 0.15 - 1.4 Å ⁻¹	11.2+4m	2x10 ⁵ cm ⁻² s ⁻¹
SNS	EQ-SANS	3 - 4.3 Å@60Hz	0.002~1.4	14m+9m	~ 10 ⁷ - 10 ⁹ n/cm ² /s
J-PARC	TAIKAN	0.7~8 Å (+polarized)	0.005~15	13+5m	
CSNS		1.2~9.5Å	0.005~0.65	12+4m	5x10 ⁶ cm ⁻² s ⁻¹

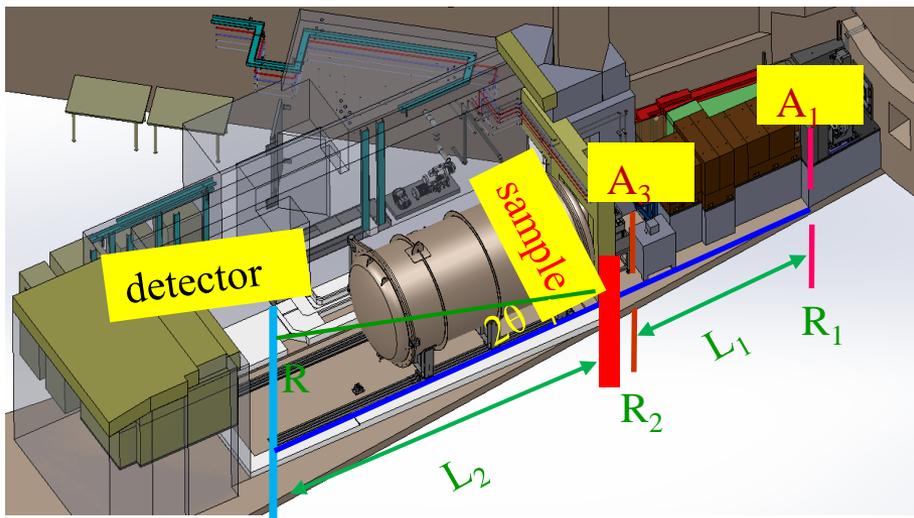


3. 提升谱仪自身性能



宽Q值范围

◆ Large flight length



$$Q_{\min} = \left(\frac{2\pi}{\lambda L_2} \right) \left(\frac{L_2}{L_1} R_1 + \frac{L_1 + L_2}{L_1} R_2 + \frac{\Delta y_3}{2} + 2A\lambda^2 \left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda} \right) \right)$$

◆ Long wavelength

extend λ to 9~12 Å

Q_{\min}

Q_{\max}

S-D_2m: 1.4 Å⁻¹ ;

◆ Small angles 减小 θ

1. Good collimation

增加样品-探测器距离
总长: 16 m — 18 m

2. Good resolution

提高探测器的位置分辨率
14mm — 10 — 8mm

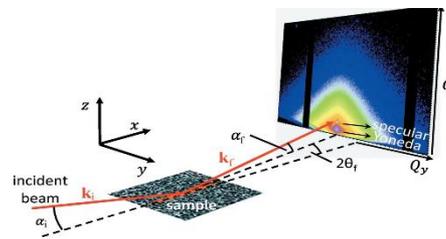
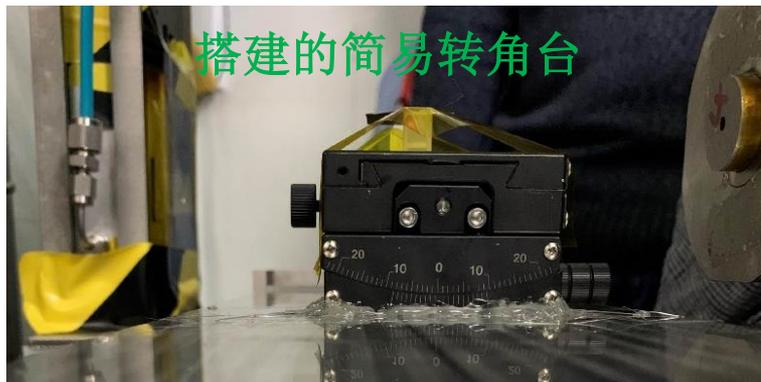
内容已删除

$$Q_{\min} = 0.003 \text{ \AA}^{-1} @ 18 \text{ m} @ 11 \text{ \AA}$$

➤ 由于长度限制, 可调节的余量非常有限, 0.003/4 Å⁻¹将是极限 (利用长波中子)

4. 开展新型实验方法研究

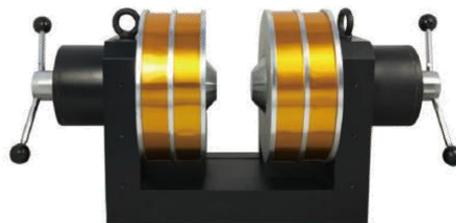
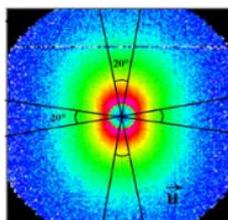
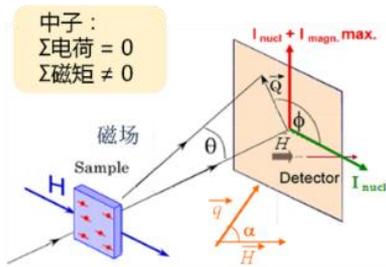
◆ 进行了GISANS的测试性实验



内容已删除

内容已删除

◆ 原位磁场加载下SANS新实验方法研究



四、总结



- 过去的一年SNS实现了稳定高效的运行和较高的用户实验共享率，谱仪应用领域逐渐扩展，并有了大量高影响力的用户成果产出。
- 谱仪运行和用户实验过程中和专业组一起在样品制备、实验状态、实验设置、数据显示和传输、数据处理等方面发现和解决了一系列的技术问题，积累了宝贵的经验；通过维护升级也使得谱仪性能有了突破。
- 未来将从加强用户培养、完善配套实验条件、提升谱仪自身性能和新型实验方法研究几个发展方向来推进SANS@CSNS的工作。

- 感谢SANS组和所有相关系统同事付出和努力；
- 感谢大家的聆听和支持！
- 未来谱仪的优化、稳定运行和用户成果的产出还需要大家携手合作，一起努力！



细节决定成败！

合作共赢，互相成就！

未来可能是一群不同领域的、志同道合的人彼此成就的时代