



CSNS中子学校 – 2024

多物理谱仪 (MPI) 实验与方法

徐菊萍 陈怀灿 夏远光 殷雯*

多物理谱仪课题组

2024年11月22日

中国科学院高能物理研究所 东莞研究部

散裂中子源科学中心



中国科学院高能物理研究所
Institute of High Energy Physics
Chinese Academy of Sciences

谱仪成员

多物理谱仪负责人

殷雯 研究员

yinwen@ihep.ac.cn



徐菊萍 副研究员

xujuping@ihep.ac.cn



夏远光 高级工程师

xiayg@ihep.ac.cn



陈怀灿 副研究员

chenhuaican@ihep.ac.cn

报告提纲

□ 中子全散射技术

□ 多物理谱仪简介

□ 多物理谱仪在材料研究中的应用

□ 多物理谱仪实验操作

中子全散射技术

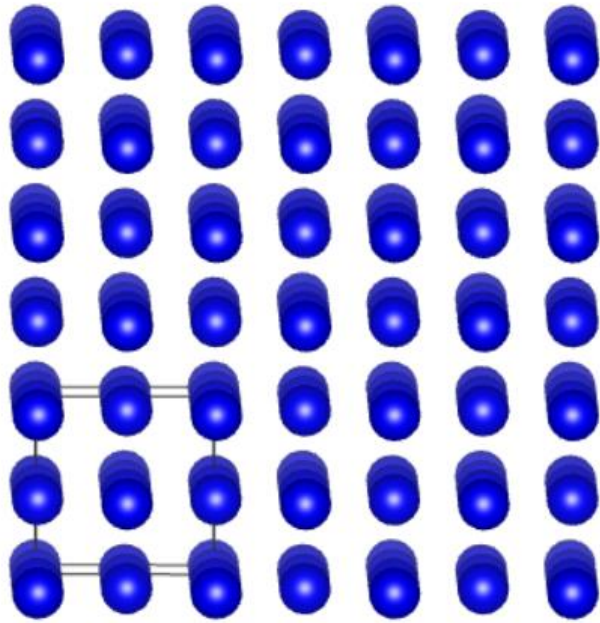
□ 中子全散射

Total scattering = Bragg scattering + Diffuse scattering

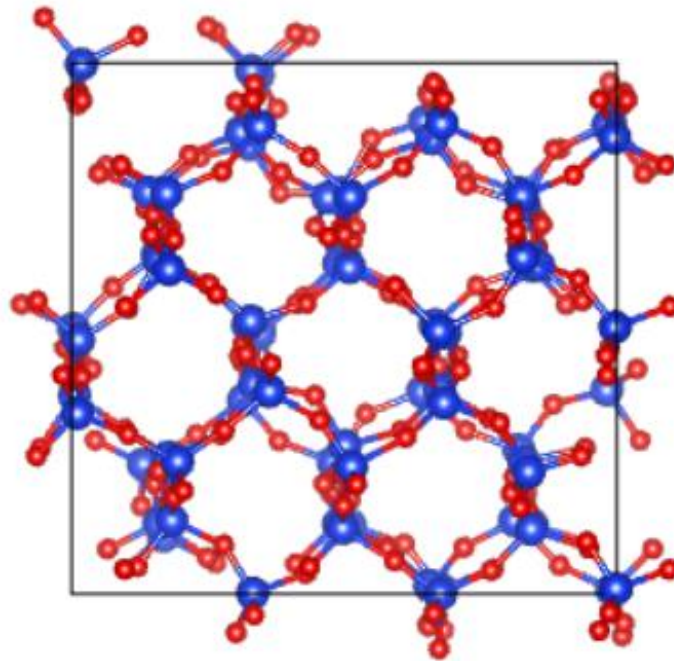
全散射

Bragg衍射

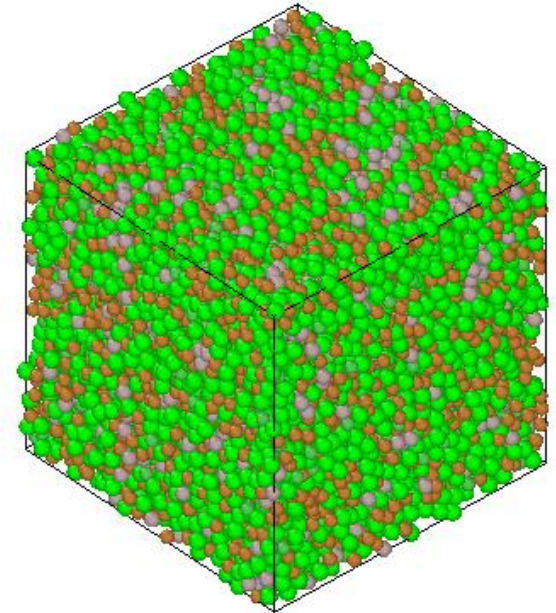
漫散射



长程有序



局域有序



无序

通过中子全散技术开展长程无序且中短程有序材料的结构研究

中子全散射技术

飞行时间法 (Time of Flight, TOF) 测量中子波长

物质波 $E = k_B T = \frac{h^2}{2m\lambda^2} = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (L, t) \rightarrow \lambda$

$$\vec{p} = \hbar \vec{k}$$

$$|\vec{k}| = \frac{2\pi}{\lambda}$$

动量守恒和能量守恒

动量转移: $\hbar \mathbf{Q} = \hbar(\mathbf{k}_0 - \mathbf{k})$

能量转移: $E_0 - E = \frac{\hbar^2 k_0^2}{2m} - \frac{\hbar^2 k^2}{2m} = \hbar \omega$

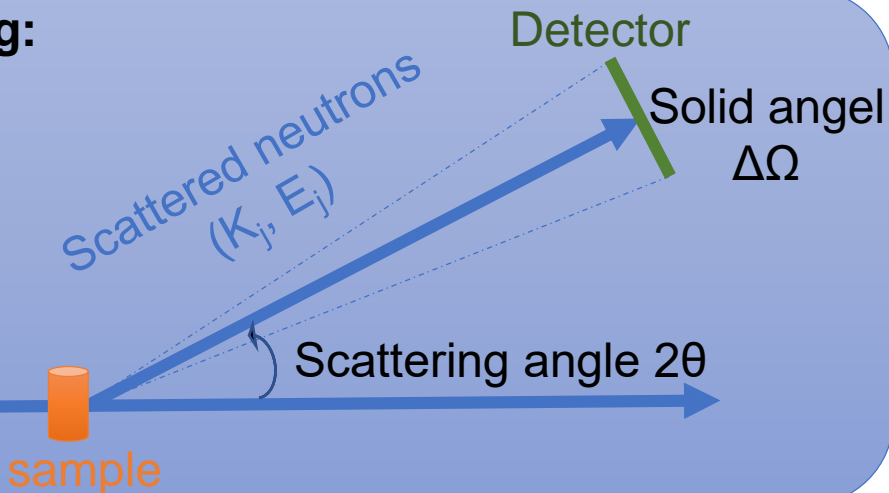
弹性散射: 当 $\omega = 0$ 时

非弹性散射: 当 $\omega \neq 0$ 时

Neutron Scattering:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{C}{\eta \phi N \Delta\Omega}$$

Incident neutrons
(K_i, E_i)



弹性相干散射截面:

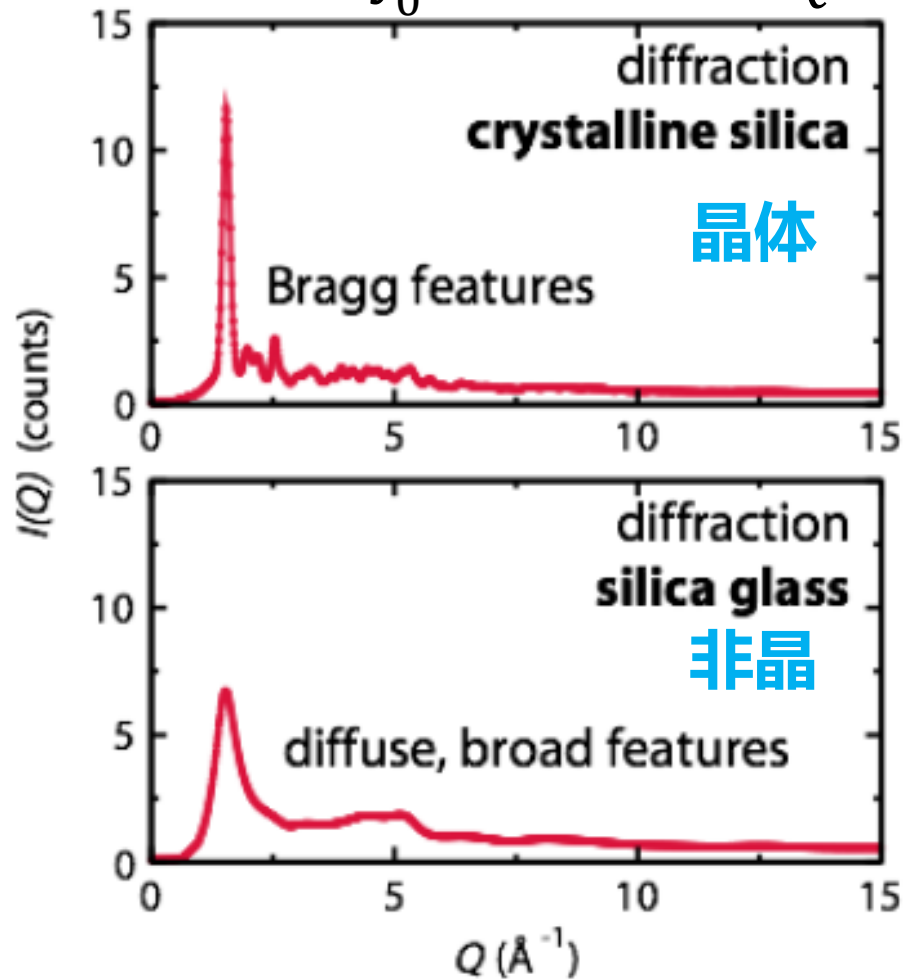
$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{c,el} = \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\tau} |F(\tau)|^2 \delta(\mathbf{Q} - \tau), \quad F(\tau) = \sum_{\mathbf{d}} \bar{b}_{\mathbf{d}} e^{-W_{\mathbf{d}}(\tau)} e^{i\tau \cdot \mathbf{d}}$$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{c,el} = \frac{1}{N_c} \left| \sum_{njk} [c_{jk} + P_{njk}] \langle \bar{b}_k \rangle e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{l}_n + \mathbf{d}_j)} \left[1 + i\mathbf{Q} \cdot \sum_{n'j'k'} \Delta P_{n'j'k'} \mathbf{u}_{njk} \right] \right|^2$$

中子全散射技术

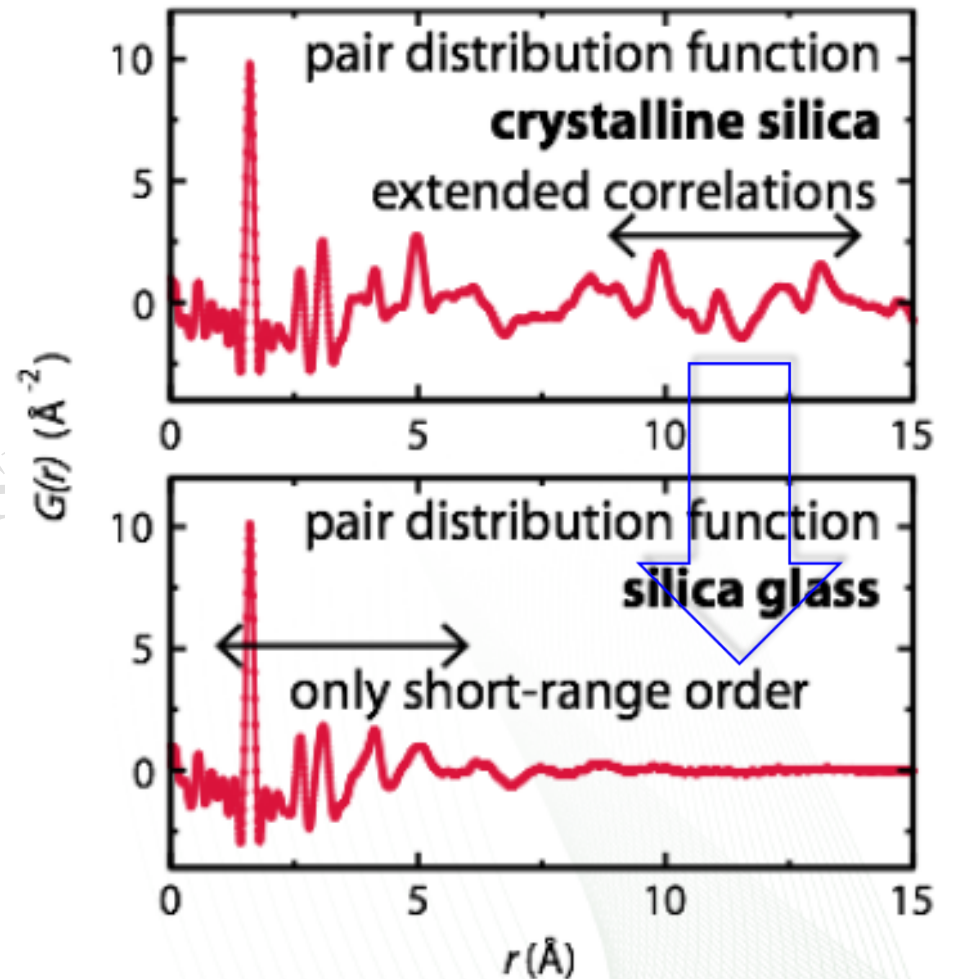
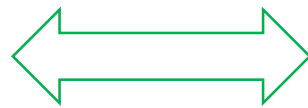
□ 典型的晶体和非晶体S_Q和G_r

$$S(Q) = \rho_0 \int_0^{\infty} 4\pi r^2 G(r) \frac{\sin Qr}{Qr} dr$$



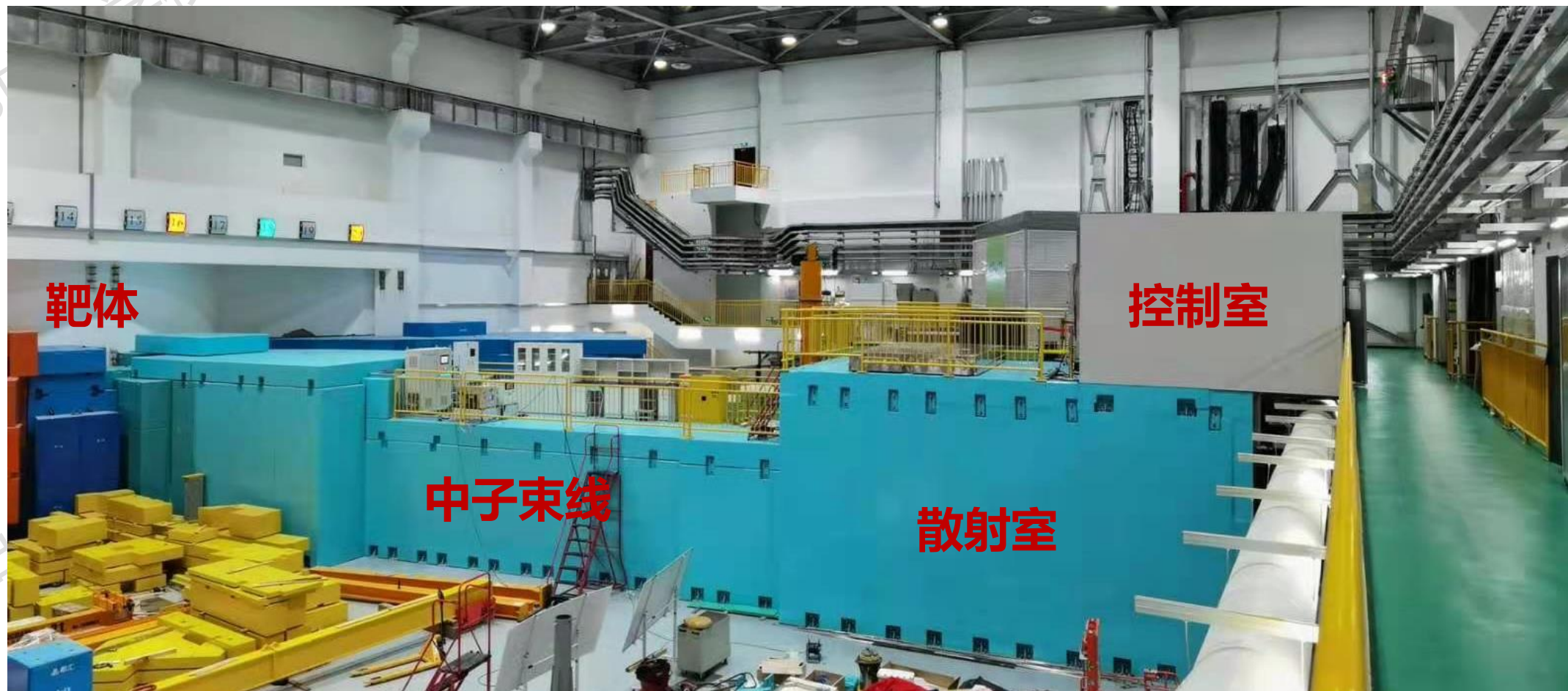
$$G(r) = \frac{1}{(2\pi)^3 \rho_0} \int_0^{\infty} 4\pi Q^2 S(Q) \frac{\sin Qr}{Qr} dQ$$

傅里叶变换



多物理谱仪简介

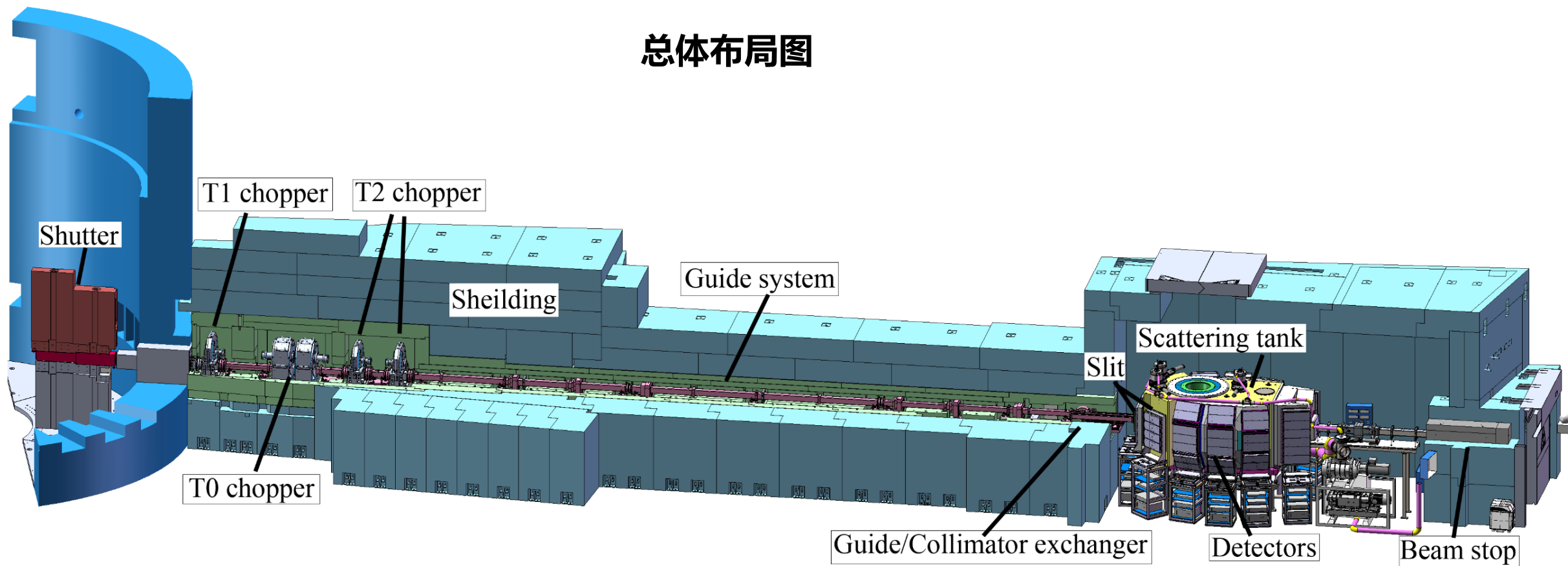
多物理谱仪 (Multi-Physic Instrument, MPI)



多物理谱仪是东莞理工学院、香港城市大学依托中国散裂中子源建设的中子全散射谱仪。

多物理谱仪简介

总体布局图



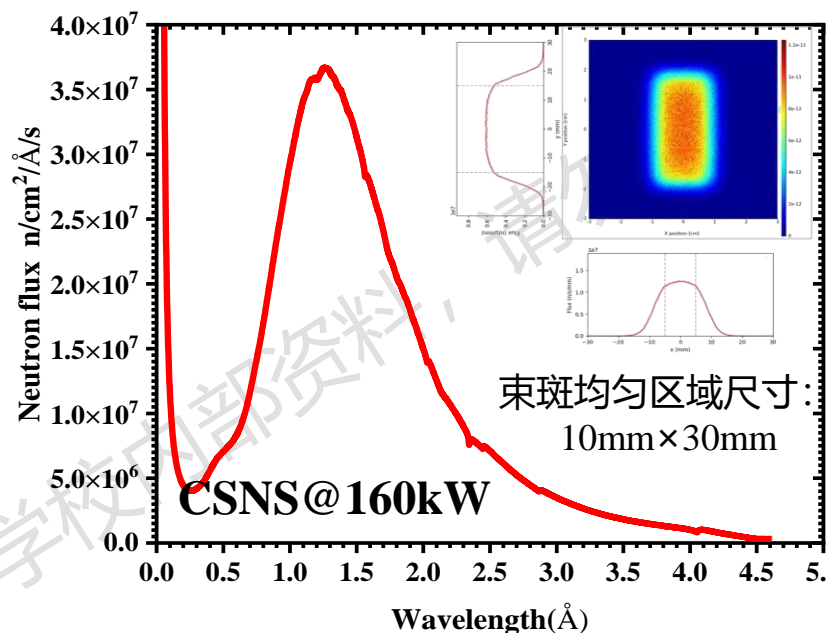
多物理谱仪主要技术参数为：

- ① 束线位置：中国散裂中子源谱仪大厅16号线； ② 慢化器类型：退耦合水慢化器； ③ 第一飞行距离： $L_1=30\text{ m}$ ； ④ 第二飞行距离： $L_2 = 1\sim 3\text{ m}$ ； ⑤ 波长范围： $0.1\sim 4.5\text{ \AA}$ ； ⑥ Q范围： $0.1\sim 50\text{ \AA}^{-1}$

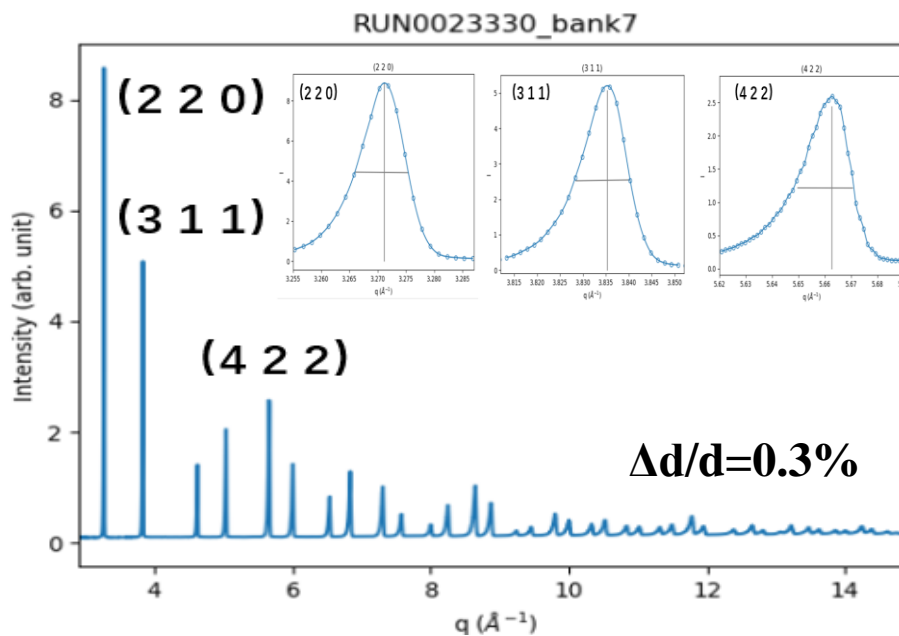
多物理谱仪简介

□ 谱仪性能

中子谱



NIST-Si 标样



□ 样品处中子通量： 4.9×10^7 n/s/cm²@160kW **(高中子通量)**

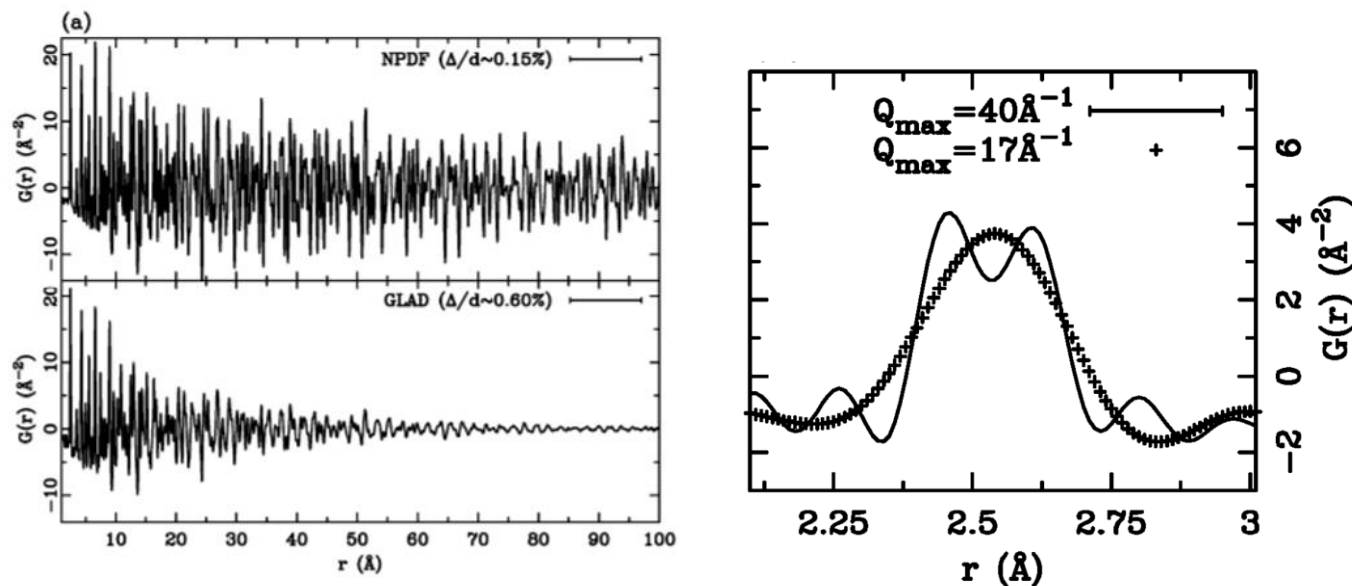
□ Q范围0.1~50 Å⁻¹，最佳分辨率 $dQ/Q < 0.4\%$ ，实空间分辨率0.1Å **(高实空间分辨率)**

高中子通量和空间分辨率为开展分钟级原位中子实验提供了研究平台

多物理谱仪简介

□ 谱仪性能

实空间分辨率可达0.1Å



NIMA,551 (2005) 88, J. Mater. Chem., 2009, 19, 5078–5088

- 相同 Q_{\max} 下, 高分辨谱仪能够在更高 r 上获得结构信息
- 原子尺度的空间分辨率由公式 $\Delta r = \pi/Q_{\max}$, $Q=4 \pi \sin\theta/\lambda$ 确定

高中子通量和空间分辨率为开展分钟级原位中子实验提供了研究平台

多物理谱仪简介

□ 谱仪样品环境

常温自动换样装置



9mm样品盒，一次性安装22个样品。

多样品自动换样设备



百个批量化、多样品、快速换样的自动换样设备

多物理谱仪简介

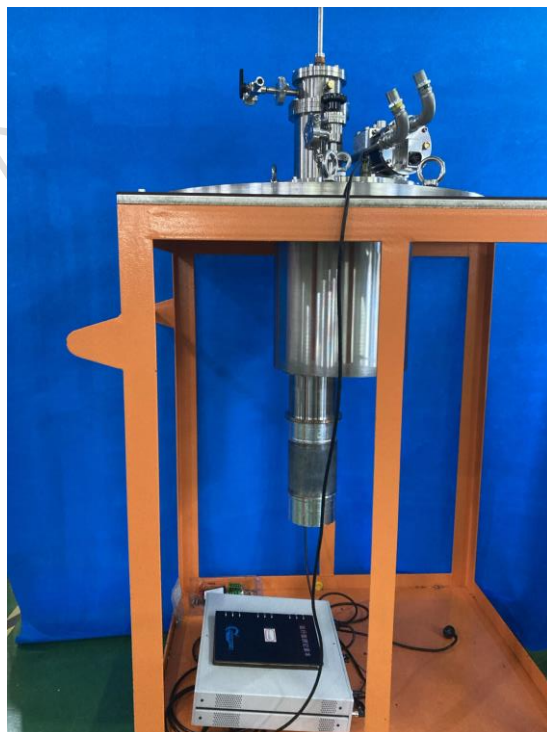
□ 谱仪样品环境-高低温

低温恒温器CCR05



20K-500K

低温恒温器CCR09



5K-700K

高温炉HOT04



RT-1473K

谱仪配备四台低温恒温器和一台高温炉，可与其他样品环境兼容使用，满足多场耦合中子原位测试表征。

多物理谱仪简介

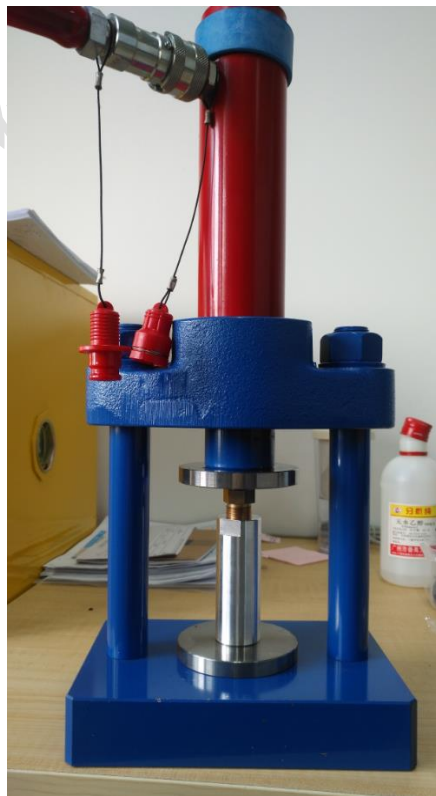
□ 谱仪样品环境-压力与气氛

气体面板



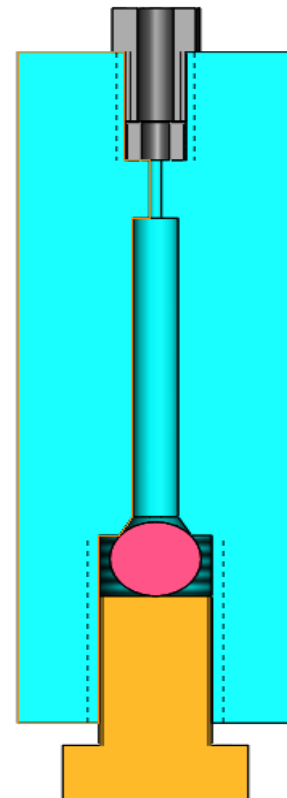
适用于高温路的气体插件

液压腔体CPC-05



最大压强可达0.8GPa, TiZr合金

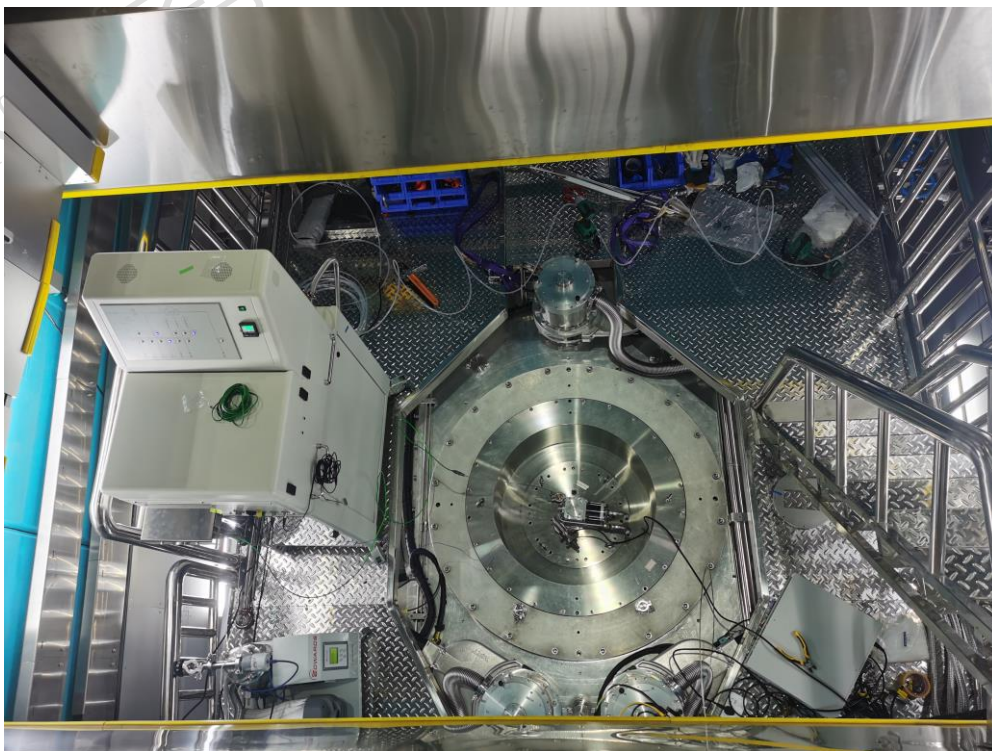
气压腔体



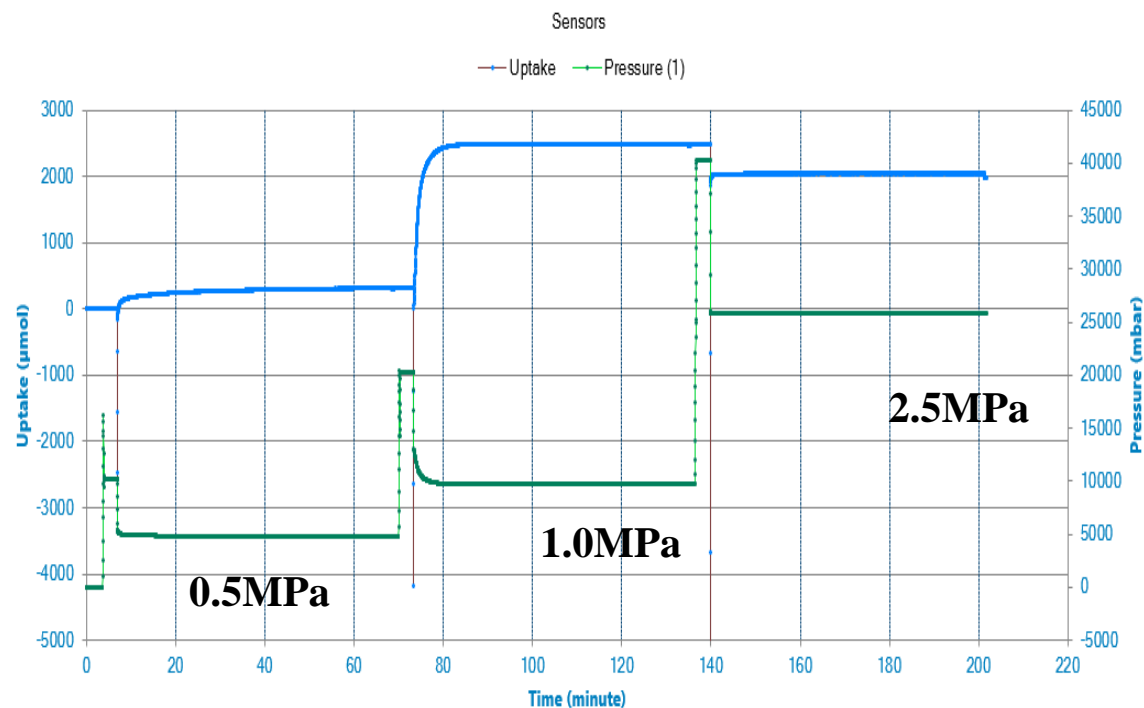
最大压强可达约200MPa, 可冲入He、CH4、CO2等 (除H2、O2外)

多物理谱仪简介

□ 谱仪样品环境-气体吸附仪+低温样品环境CCR05+气压腔体原位测试



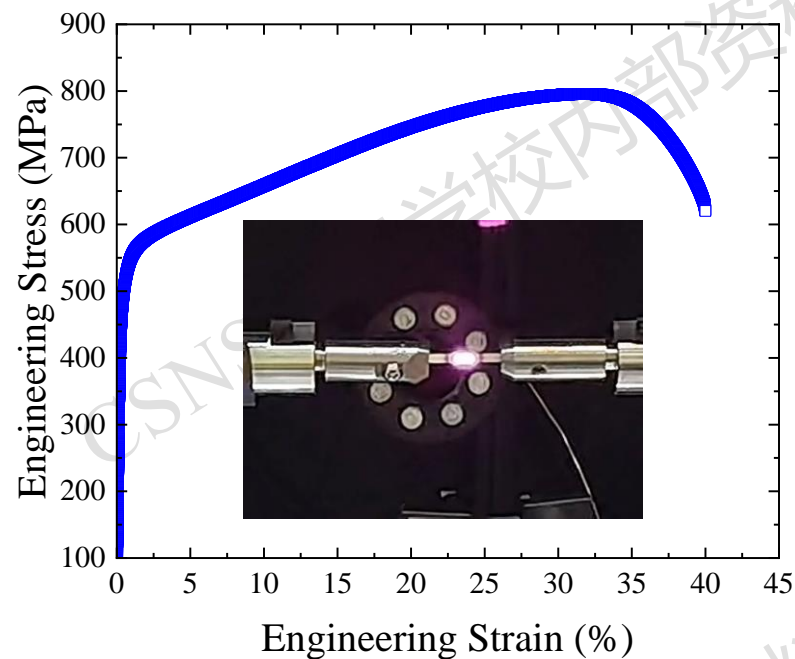
Pd的原位吸附D实验测试



完成200K条件，不同压力下Pd吸D的原位中子衍射测试。

多物理谱仪简介

□ 谱仪样品环境-卧式拉伸机



完成了0~30kN拉伸机激光加热调试与升级，温区RT-1300°C，并开展高温合金原位拉伸实验。¹⁵

多物理谱仪简介

□ 谱仪科学目标

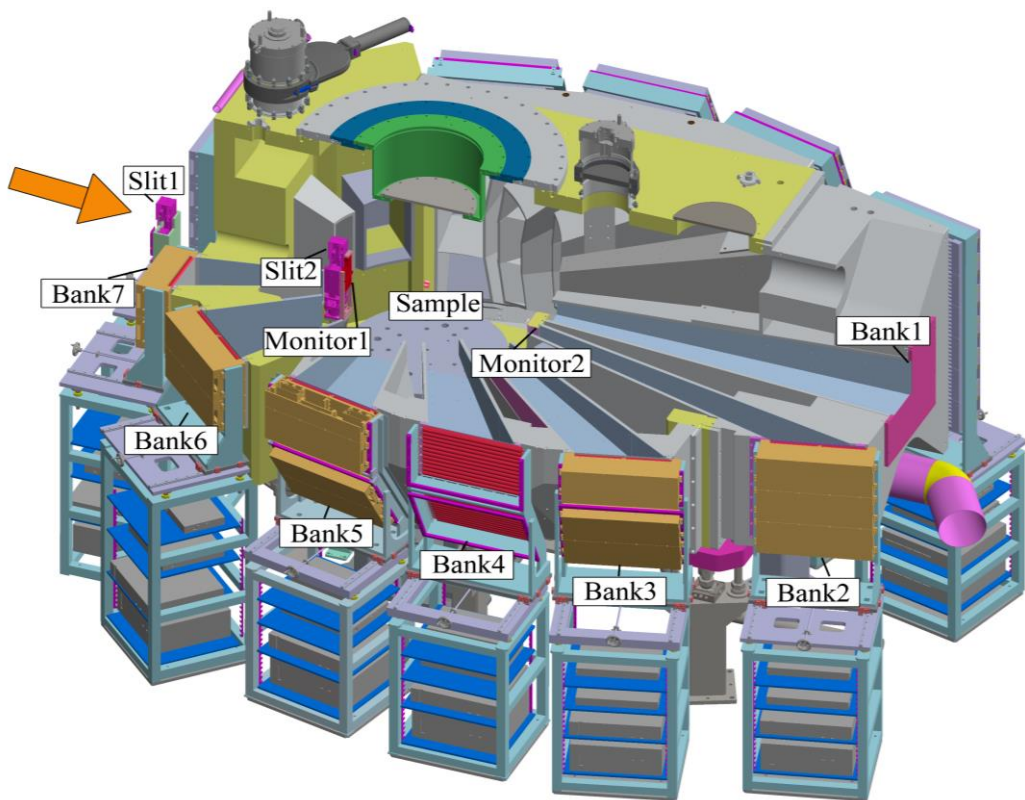
多物理谱仪可满足以下科学目标：（包括但不限于）

- 不同温度与压力下非晶合金、高熵合金等材料结构的原位研究；
- 不同环境下晶体材料原子局域分布或两体关联信息；
- 纳米结构测定与环境对纳米结构影响的原位研究；
- 液体的结构测定；
- 原位储放氢下，储氢材料的结构测定；
- 原位充放电与高、低温下电池结构变化。

多物理谱仪能为国内外中子散射用户提供一个研究多有序度材料的平台

多物理谱仪简介

- 多物理谱仪具有广角探测器分布，散射角 2θ 范围 $12.5-170^\circ$ ，动量转移 Q 范围 $0.45-60 \text{ \AA}^{-1}$
- 在 Q_{\max} 截断位置，bank5、bank6具有较高计数率

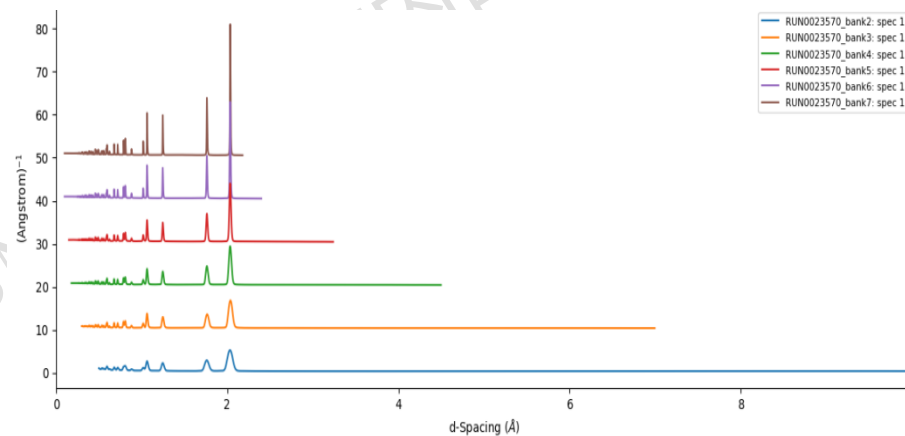
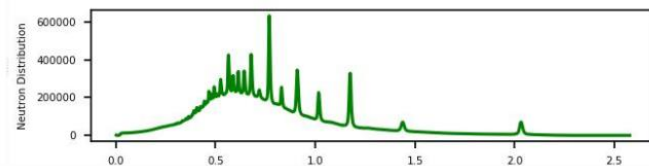
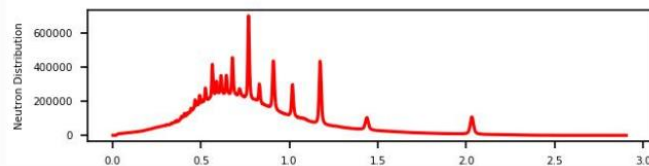
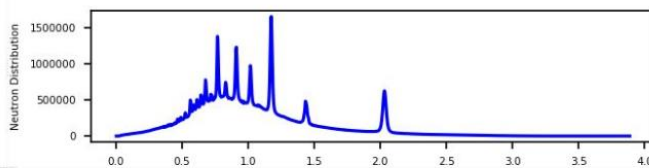
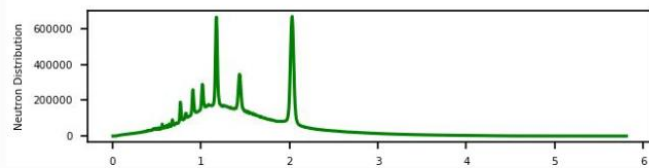
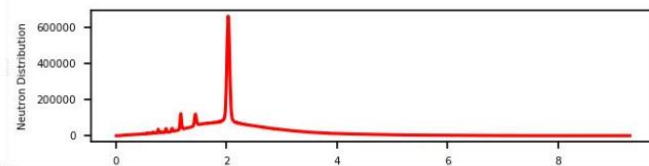
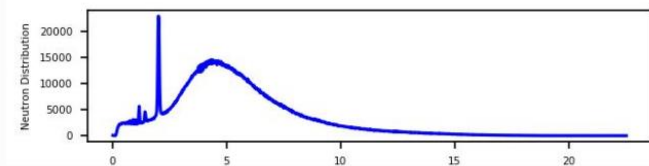


MPI探测器参数

Detector bank No.	Scattering angle 2θ (Degree)	^3He tube style	Number of ^3He tubes/modules p^1	Estimated Q range (\AA^{-1})
Bank01	2.9-5.04	0.5m \times 1/2 inch	-	0.1-2.7
Bank02	12.54-17.62	Type-1: 20 atm, 0.5m \times 1 inch	16/2	0.45-9
Bank03	31-42.25		32/4	1.1-22
Bank04	51.25-67.32		40/5	1.8-34
Bank05	81.55-105.18		64/8	2.7-49
Bank06	121.80-145.51	Type-2: 20 atm, 0.3m \times 1 inch	32/4	3.6-59
Bank07	157.47-170.00		64/8	4.1-62

多物理谱仪简介

➤ 根据分析目标选择不同 Bank 数据



可在线看到原始衍射图谱

数据收集快速，约0.3h一个衍射谱

多物理谱仪简介

□ 数据格式及分析程序

公式定义国际上不统一，MPI提供的S(q)、G(r)为**约化的**结构函数与对分布函数。

coherent scattering intensity (corrected)

scattering length (neutrons) or atomic form factor (x-rays)

$$S(Q) = \frac{I_{coh}(Q) - \sum c_i |b_i|^2}{|\sum c_i b_i|^2} + 1$$

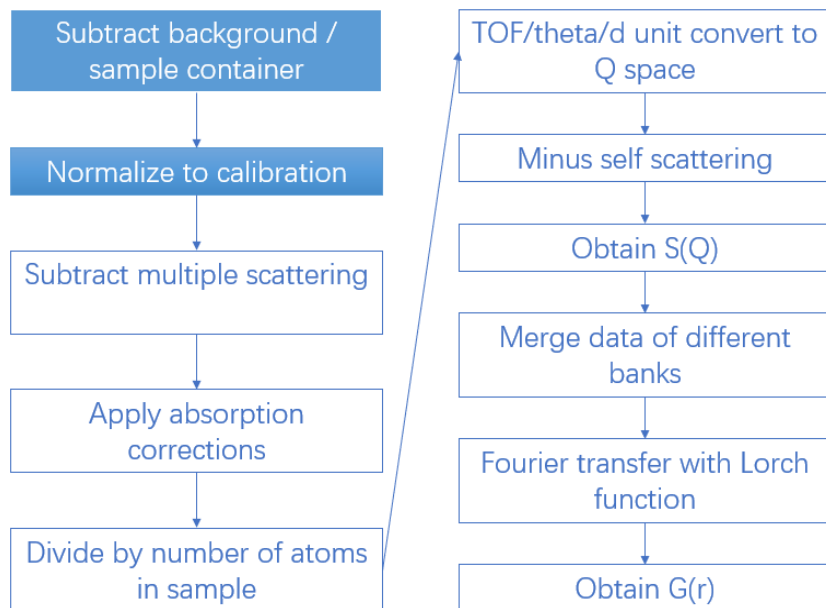
$$Q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda}$$

$$g(r) = \rho(r)/\rho_0 = 1 + \frac{1}{2\pi^2 \rho_0 r} \int_0^\infty Q[S(Q) - 1] \sin(Qr) dQ$$

$$g(r) - 1 = \frac{1}{2\pi \rho_0 r^3} \sum_{Q_{min}}^{Q_{max}} M(Q, Q_{max})(S(Q) - 1) [\sin(Qr) - Qr \cos(Qr)] \Big|_{leftbin}^{rightbin}$$

$$G(r) = 4\pi \rho_0 r [g(r) - 1]$$

数据归一化处理流程



MPI提供的文件

- BgForRef
 - Diffraction_result_fp
 - Diffraction_result_gsa
 - Diffraction_Si
 - Fullprof
 - PDF_result_dat
 - RT_Instrum
- 31_bank2_Sq.dat
31_bank3_Sq.dat
31_bank4_Sq.dat
31_bank5_Sq.dat
31_bank6_Sq.dat
31_bank7_Sq.dat
31_RUN23089_Gr_L0_28.dat
31_RUN23089_Gr_L0_31.5.dat
31_RUN23089_Gr_L0_35.dat
31_RUN23089_Gr_L0_40.dat
31_RUN23089_Gr_L1_28.dat
31_RUN23089_Gr_L1_31.5.dat
31_RUN23089_Gr_L1_35.dat
31_RUN23089_Gr_L1_40.dat
31_RUN23089_Sq_L0_28.dat
31_RUN23089_Sq_L0_31.5.dat
31_RUN23089_Sq_L0_35.dat
31_RUN23089_Sq_L0_40.dat
31_RUN23089_Sq_L1_28.dat

多物理谱仪简介

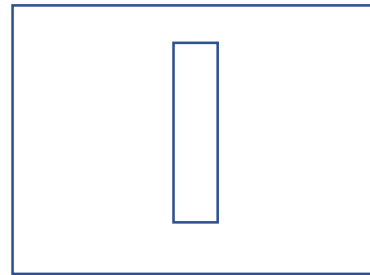
数据格式及分析程序

谱仪在每一轮实验前对各样品环境完成刻度实验

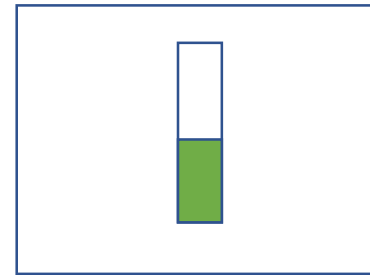
$$I = \frac{(S - S_B) - \alpha(C - C_B)}{V - V_B}$$



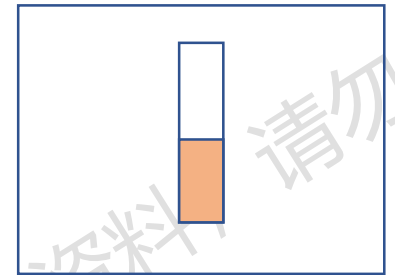
Background



Background+
Sample can



Background+
Sample can+
Vanadium tube



Background+
Sample can+
sample

MPI

RZERA

Diffraction PDF

Sample Run:

Instru Folder:

Batch Reduction:

Experimental Configure

Offset Correction:

Offset Folder:

Wave Start (Å): Wave End (Å):

Normalization by Photon Charge:

Vanadium and Hold Scale

Use Van: Use Hold:

Van Run: nxs:

Hold Run: nxs:

Van-Hold: Sample-Hold:

Choose Bank and Set Rebin

Start (Å)	End (Å)	Number
<input type="checkbox"/> Bank2		
<input type="checkbox"/> Bank3		
<input type="checkbox"/> Bank4		
<input type="checkbox"/> Bank5		
<input type="checkbox"/> Bank6		
<input type="checkbox"/> Bank7		

d Rebin Mode:

Reduction: ALL

Save Configure: ALL

Load Configure: ALL

Filter:

Plot Save Delete

Mantid Workbench

File View Interfaces Help

Workspaces

Algorithms

Execute

Arithmetic

CorrectionFunctions

Crystal

DataHandling

Diagnostics

Diffraction

Events

Examples

ILL

IS

Inelastic

MDAlgorithms

Music

Optimization

PythonAlgorithms

Reflectometry

SANS

SINO

Sample

Simulation

Transforms

Utility

Workflow

Plot

Save

Delete

Status: Idle. Last job completed successfully at Thu Aug 17 17:04:26 2023 in 8.060s

Editor: IPython

充分沟通根据需求进行数据规约处理

多物理谱仪简介

□ 数据格式及分析程序

➤ 中子衍射数据分析

GSASII

<https://subversion.xray.aps.anl.gov/trac/pyGSAS/wiki/InstallWindows>

Z-Code <https://z-code-software.com/>

Fullprof <https://www.ill.eu/sites/fullprof/>

➤ PDF 数据分析

PDFGUI or DiffPy <https://www.diffpy.org/index.html>

RMCProfile <http://www.rmcprofile.org>

PDF Rietveld

PDFgui 

C. L. Farrow, P. Juhás, J. W. Liu, D. Bryndin, E. S. Božin, J. Bloch, Th. Proffen and S. J. L. Billinge, PDFit2 and PDFgui: computer programs for studying nanostructures in crystals, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 335219 (2007)

RMC
PROFILE

支持多种国际通用精修软件，提供多样化数据格式，满足用户不同数据分析需求。

多物理谱仪简介

衍射数据精修

提供NIST标准样品刻度数据：

Si-640f、LaB₆、mica

[GSAS-II Tutorial Index \(advancedphotonsource.github.io\)](https://advancedphotonsource.github.io)

List of GSAS-II tutorials

A list of available tutorials appears below. Each tutorial is a web page that can be opened using the link below, but most tutorials also need to have example data files downloaded. This can also be done with links included below, but it can be easier to access tutorials using **Help/Tutorials** menu item. When this menu entry is used from inside GSAS-II (unless "browse tutorial on web" is selected), the data files are downloaded to a local directory and GSAS-II will start from that directory for most file open commands. Most older tutorials have also been recorded as videos of the computer screen along with narration. Where videos are available, links are provided below.



Getting started

- [Starting GSAS-II](#) [link: [video](#), no exercise files].

An introduction to GSAS-II with starting instructions and a brief description of the displays.

Rietveld refinement

- [CW Neutron Powder fit for Yttrium-Iron Garnet](#) [links: [video](#), [Exercise files](#)].

This shows a simple Rietveld refinement with constraints from CW neutron powder diffraction data.

- [Fitting laboratory X-ray powder data for fluoroapatite](#) [links: [video](#), [Exercise files](#)].

This shows a simple Rietveld refinement with CuK α lab Bragg-Brentano powder data.

- [Combined X-ray/CW-neutron refinement of PbSO₄](#) [links: [video](#), [Exercise files](#)].

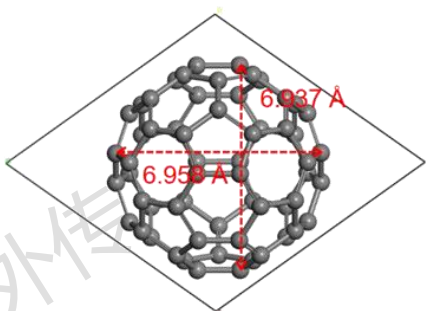
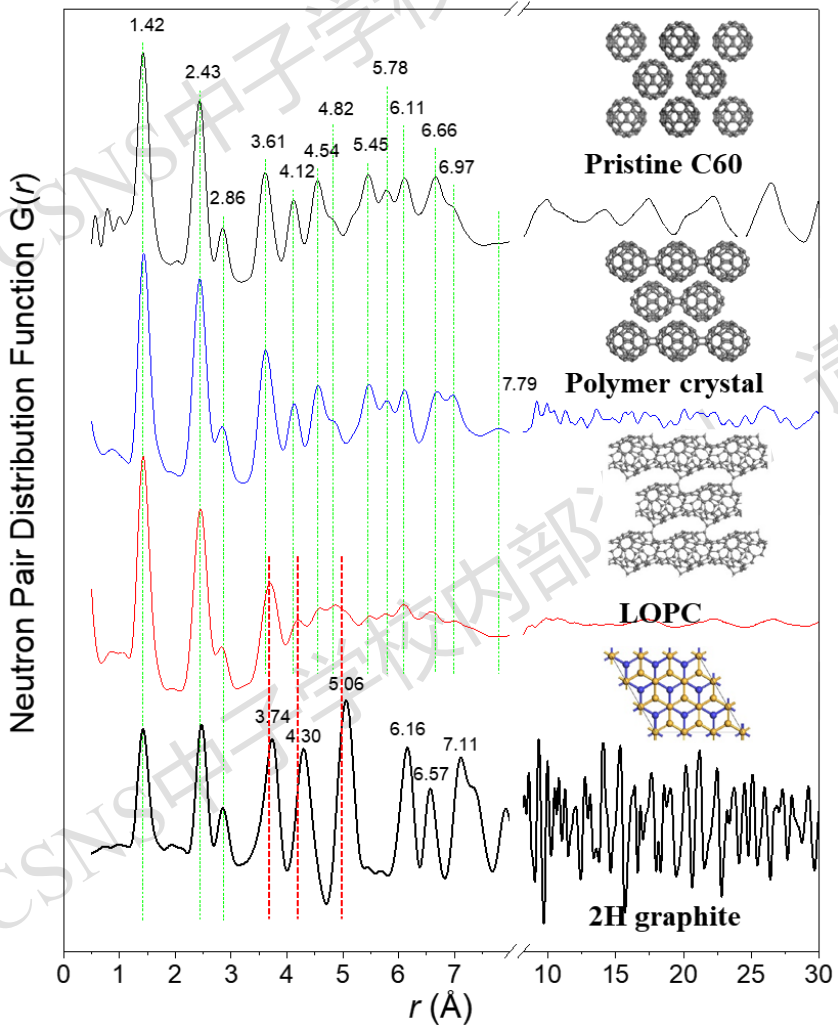
This shows Rietveld refinement of a structure with room temperature lab CuK α data and low temperature CW neutron data; use is made of the lattice parameter offsets to account for thermal expansion.

- [Combined X-ray/TOF-neutron Rietveld refinement](#) [links: [video](#), [Exercise files](#)].

This shows Rietveld refinement with high resolution synchrotron powder data and neutron TOF data

多物理谱仪在材料研究中的应用

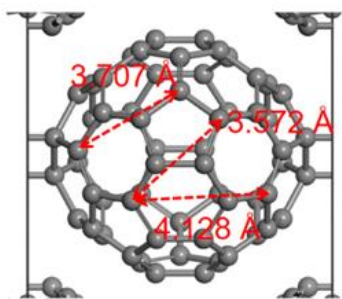
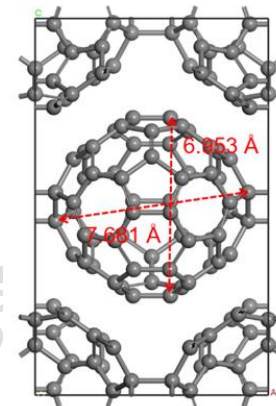
新型碳材料晶体结构确定 (中科大朱彦武团队)



C60笼状结构拉伸



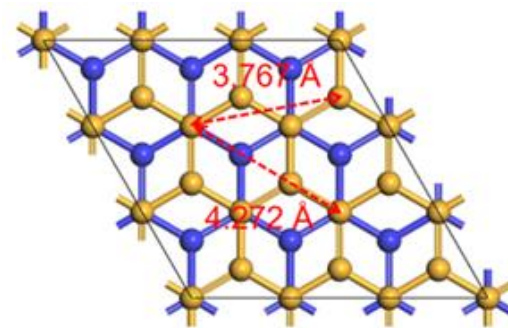
Transformation



笼状分子趋于扁平



Similar fine structure

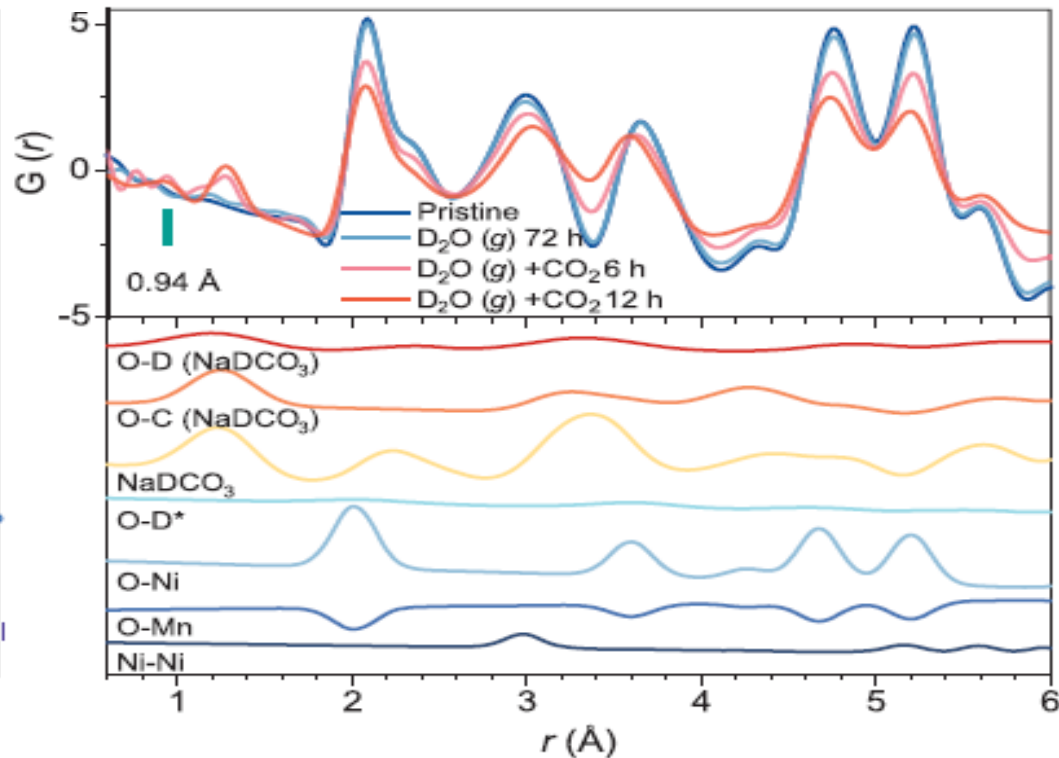
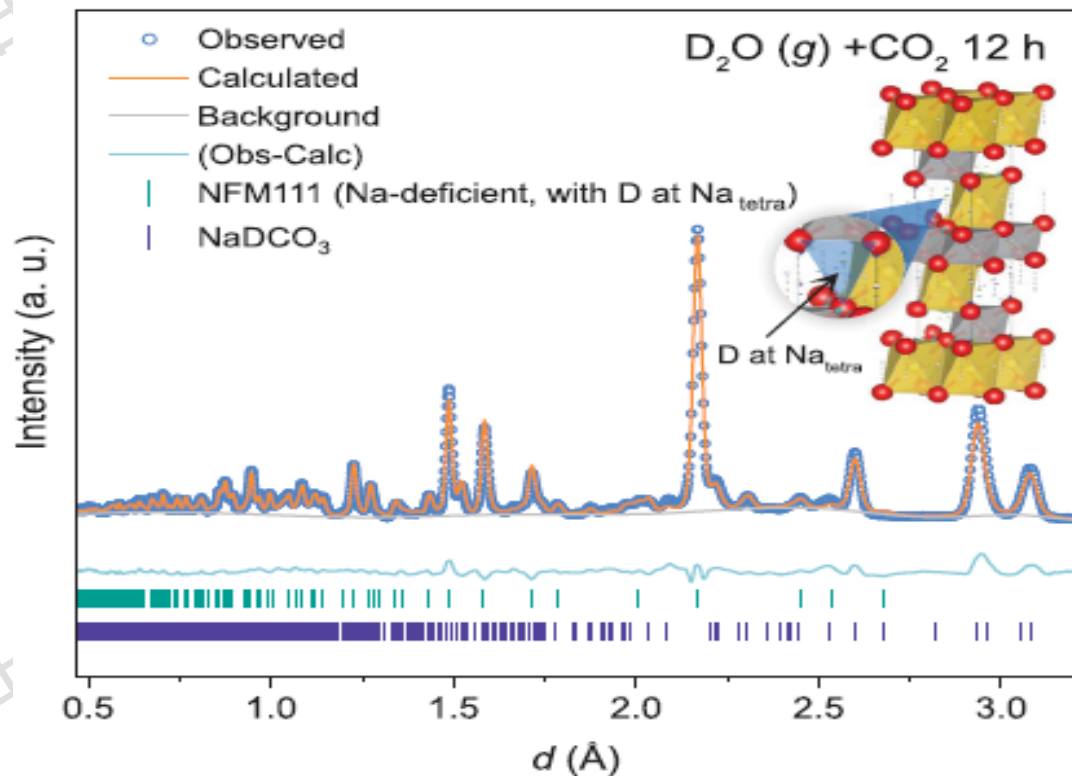


Nature 2023, 614, 95

MPI中子全散射技术精确揭示了新型碳材料的短程有序和中程有序结构。

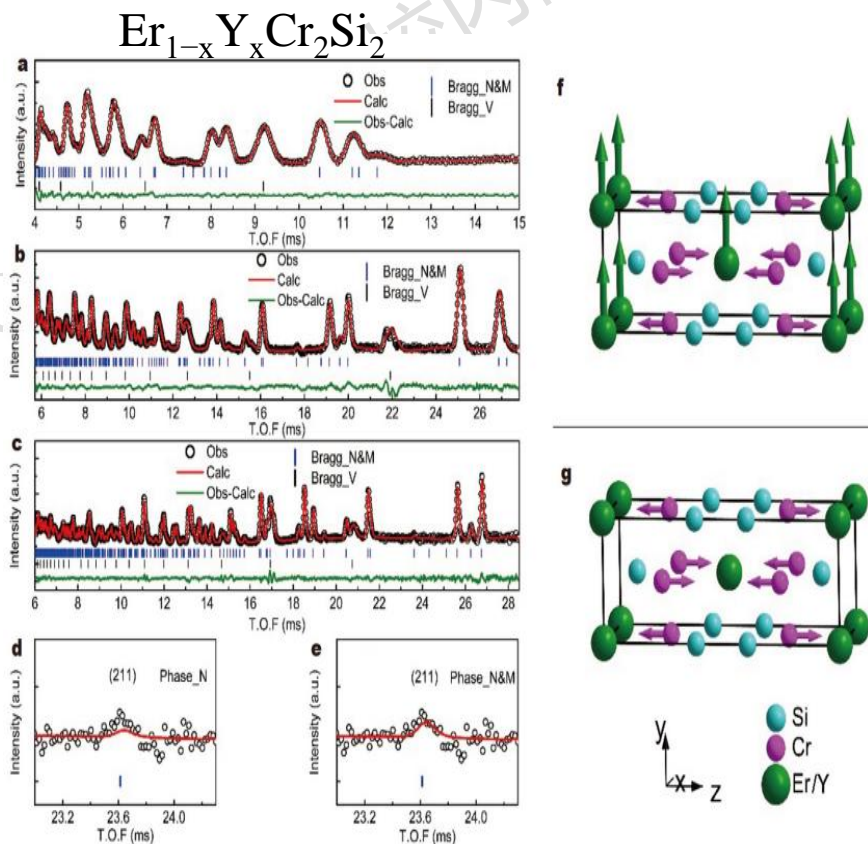
多物理谱仪在材料研究中的应用

钠 (Na) 层状氧化物 (NLOs) 的空气敏感性机理 (物理所胡永盛团队)



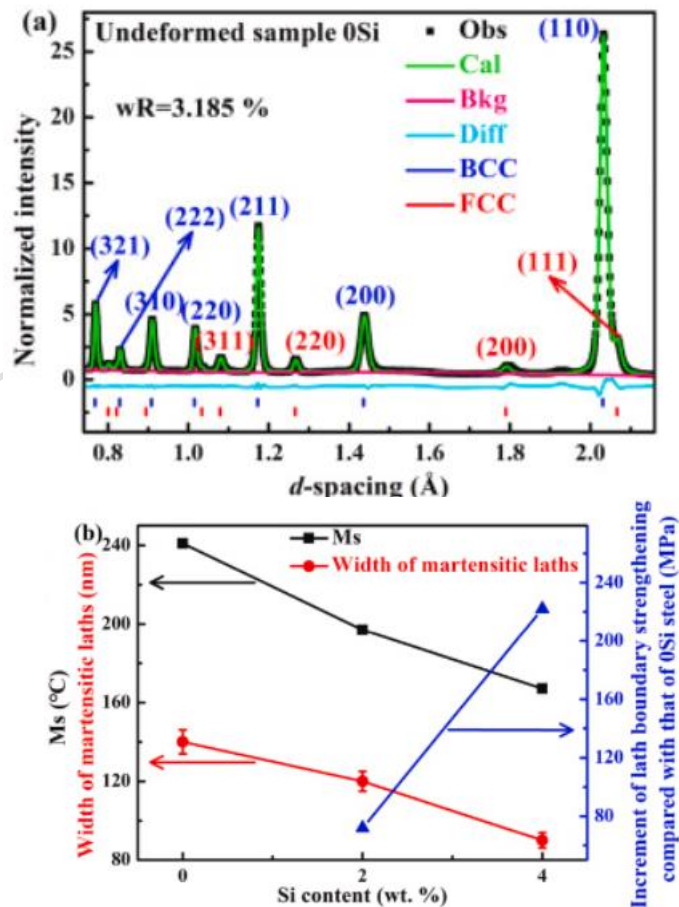
水与二氧化碳共同作用下，来自水的H⁺ (D) 与NLO中Na层的Na⁺交换导致酸解的发生

多物理谱仪在材料研究中的应用



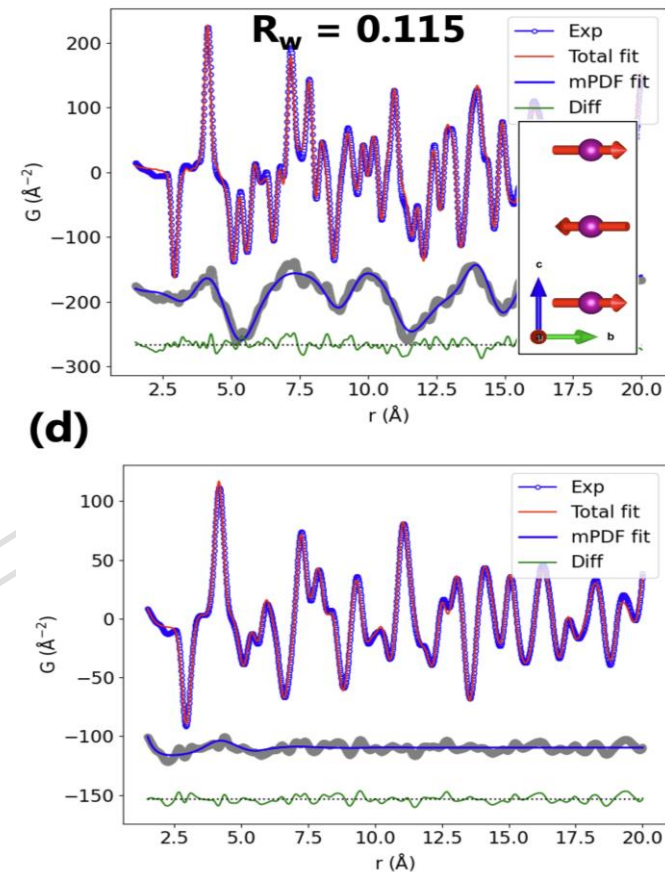
低场磁热效应稀土材料铁磁/反铁磁序

Science China Materials (2023)
66, 2039–2050



Si对热轧中锰钢中马氏体变形行为的影响,通过MWH法计算位错密度

Chenghao Song, et al, Materials Science & Engineering A 869 (2023) 144825



磁对分布函数 (mPDF) 方法在实际空间中揭示亚纳米尺度的短程磁相关性

Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 1069 (2024) 169967

多物理谱仪实验操作

实验操作

用户装样



用户样品装样信息表

样品编号	自动换样编号	样品盒信息			样品信息										
					化学式	粉末	板材			圆柱					
		类型	样品盒内径 (m)	样品盒外径			样品盒深度	同位素替代信息	装样后深度 (mm)	样品深度 (m)	样品质量 (g)	样品长 (m)	宽 (m)	高 (mm)	直径 (m)

样品形貌：块材、粉末、液体

样品量： $h \leq 3\text{cm}$

根据样品分析及环境选择对应型号样品盒：

- 样品环境：高温盒、低温盒
- 样品盒内径：9mm 6mm 环形
- 样品盒材质：VNi盒、V盒、ZrTi盒

多物理谱仪实验操作

□ 实验操作

用户装样



换样操作

真空腔充放气



样品环境等配置



多物理谱仪实验操作

实验操作



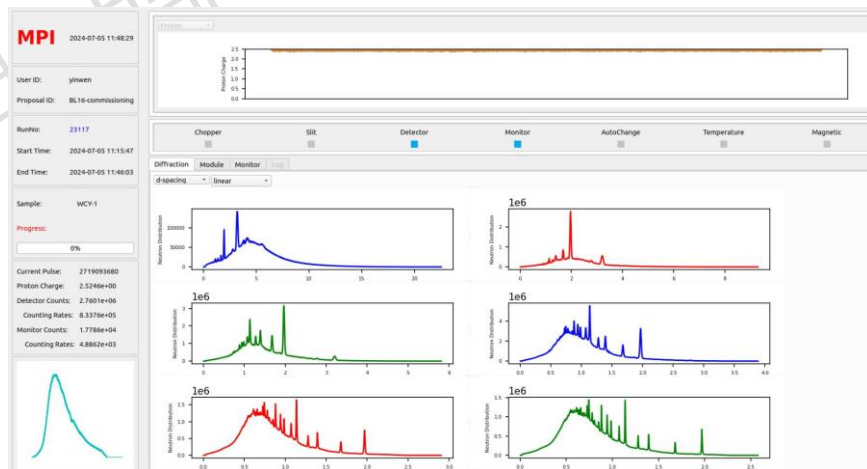
流程自动化控制

衍射：数据收集快速，约0.1-2h

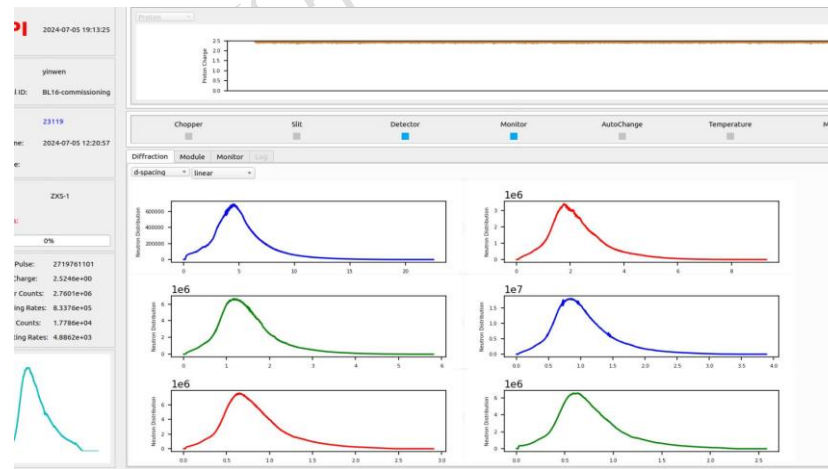
可在线看到衍射图谱

全散射：需要2-10h

进行离线数据处理后得到PDF谱



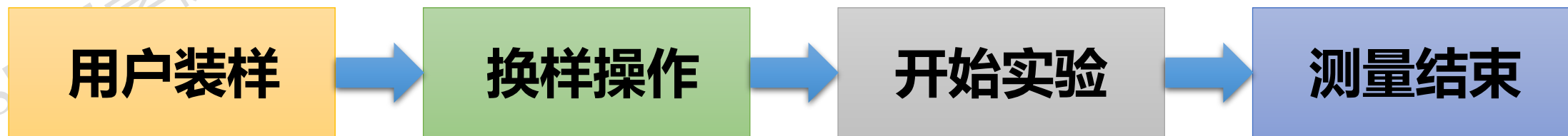
晶体



非晶

多物理谱仪实验操作

□ 实验操作



样品剂量测量

样品距离30cm位置剂量率
达安全标准后取出样品

用户样品储存

剂量较高时暂存
剂量达标后样品寄回用户

文章发表

谱仪负责人：殷雯 研究员 E-mail: yinwen@ihep.ac.cn

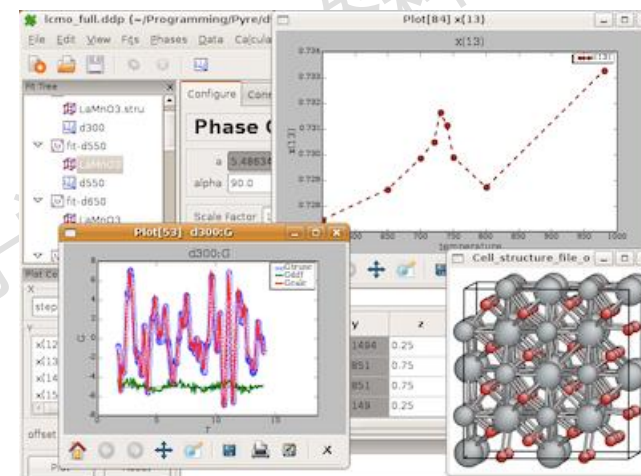
Citing: Nuclear Inst. and Methods in Physics Research, A 1013 (2021) 165642

数据规约处理

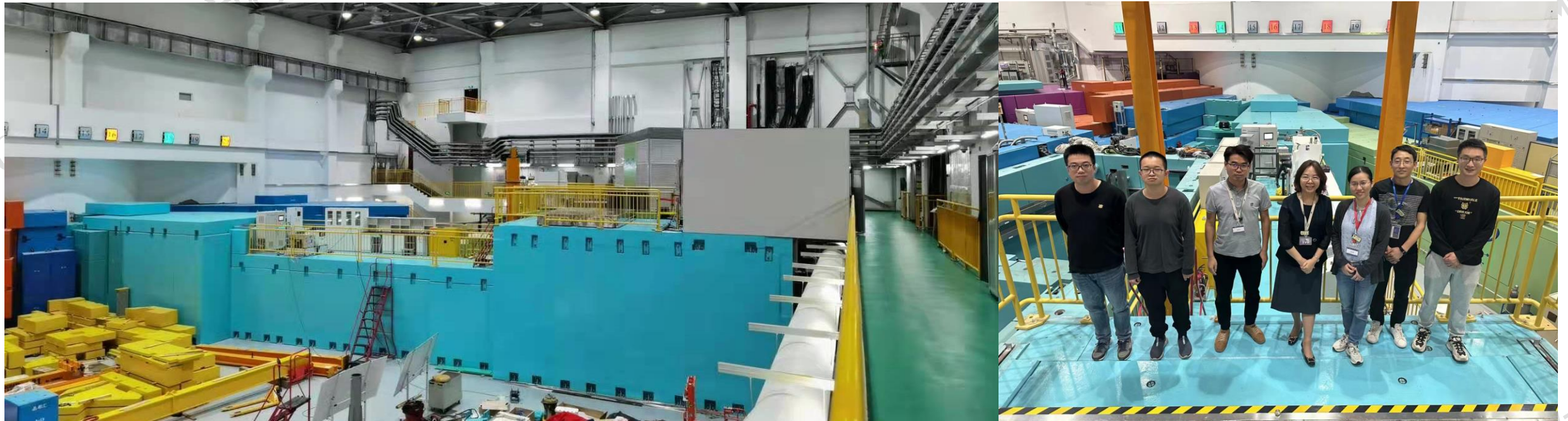
即将开放用户规约平台
支持特殊样品灵活规约

数据分析

NPD: 选择合适的bank精修
n-PDF: 根据研究目标做合适的数据处理与分析



学校内部资料, 请勿外传



Thank you!

CSNS中子学位论文

学校内部资料, 请勿外传