

高压物理学报

CMRR中子科学平台的高压中子衍射技术及应用

房雷鸣 陈喜平 谢雷 贺端威 胡启威 李欣 江明全 孙光爱 陈波 彭述明 李昊 韩铁鑫

High Pressure Neutron Diffraction Technology and Applications at CMRR

FANG Leiming, CHEN Xiping, XIE Lei, HE Duanwei, HU Qiwei, LI Xin, JIANG Mingquan, SUN Guang' ai, CHEN Bo, PENG Shuming, LI Hao, HAN Tiexin

引用本文:

房雷鸣, 陈喜平, 谢雷, 等. CMRR中子科学平台的高压中子衍射技术及应用[J]. 高压物理学报, 2020, 34(5):050104. DOI: 10.11858/gywlb.20200588

FANG Leiming, CHEN Xiping, XIE Lei, et al. High Pressure Neutron Diffraction Technology and Applications at CMRR[J]. Chinese Journal of High Pressure Physics, 2020, 34(5):050104. DOI: 10.11858/gywlb.20200588

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.11858/gywlb.20200588>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

用于高压原位中子衍射的PCBN压腔

In-Situ High-Pressure Neutron Diffraction with Supported PCBN Anvils

高压物理学报. 2017, 31(6): 735 <https://doi.org/10.11858/gywlb.2017.06.008>

应用于高压科学研究的国产铰链式六面顶压机技术发展历程

Development of Domestic Hinge-Type Cubic Presses Based on High Pressure Scientific Research

高压物理学报. 2018, 32(1): 010105 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20170600>

CuS₂的高压拉曼光谱和X射线衍射

High Pressure Raman Spectroscopy and X-ray Diffraction of CuS₂

高压物理学报. 2020, 34(4): 040104 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20200509>

二次加压对六面顶压腔压力发生效率和压力密封性能的影响

Effect of Re-Compression on the Pressure-Generation Efficiency and Pressure-Seal Capability of Large Volume Cubic Press

高压物理学报. 2019, 33(2): 020105 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20190703>

相干衍射成像的相位复原及重建

Phase Retrieval and Reconstruction of Coherent Diffraction Imaging

高压物理学报. 2019, 33(3): 030105 <https://doi.org/10.11858/gywlb.20190761>

吉帕压力下原位中子衍射技术及其在铁中的应用

High Pressure *In-Situ* Neutron Diffraction under Gigapascal of Iron

高压物理学报. 2016, 30(1): 1 <https://doi.org/10.11858/gywlb.2016.01.001>

DOI: 10.11858/gywlxb.20200588

CMRR 中子科学平台的高压中子衍射技术及应用

房雷鸣¹, 陈喜平¹, 谢 雷¹, 贺端威², 胡启威¹, 李 欣², 江明全²,
孙光爱¹, 陈 波¹, 彭述明¹, 李 昊¹, 韩铁鑫¹

(1. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所中子物理学重点实验室, 四川 绵阳 621999;

2. 四川大学原子与分子物理研究所, 四川 成都 610065)

摘要: 中国绵阳研究堆 (CMRR) 建有一台专门的高压中子衍射谱仪 (凤凰), 用于高压科学研究。对聚焦单色器和导管升级后, 凤凰谱仪的束流通量大幅度提高。基于凤凰谱仪, 建立并发展了一系列高压中子技术, 包括: 气体压腔、活塞圆筒型压腔、紧固型压腔、标准巴黎-爱丁堡压机 (VX4 型)、带加热和水冷系统的两面顶压机 (HP3-1500)、及压机的调节与定位系统。通过对高温高压样品腔体组装的优化设计, 原位中子衍射的温度和压力最高达到 34 GPa 和 1 500 °C。建立的高压中子衍射技术已成功应用于高压溶解度测量、含能材料结构表征、高压聚合反应等方面的研究。

关键词: 高压; 中子衍射; 巴黎-爱丁堡压机; 大腔体

中图分类号: O521.3; O521.2; O571.56

文献标识码: A

高压能够有效地改变物质内部的原子间距和壳层状态, 诱导核外电子排布, 导致结构和物性变化, 从而形成新的物质形态或出现新的物理现象, 因此被视为未来最有可能取得重大科学突破的研究领域。高压科学的生存和发展强烈依赖于高压实验技术以及高压下物理量的原位测量。20 世纪 70 年代发展起来的金刚石对顶砧 (Diamond anvil cell, DAC) 技术与同步辐射 X 射线技术结合后, 可原位观测极高压条件下物质的结构及物性行为变化, 目前已经成为高压科学领域最重要的研究手段之一。但是 X 射线在探测轻原子、磁性材料、大块体材料等方面遇到了困难。中子在精确确定较轻原子位置方面具有优势, 能识别近邻原子、区分同位素, 并且具有磁矩, 可直接测定材料的磁结构。另外, 中子还具有很强的穿透力, 可穿透样品的各种环境容器, 如高/低温、高压、强磁场等, 使原位表征大块体材料成为可能。因此, 中子源与同步辐射光源互为补充, 为基础科学研究和新材料研发提供一种独特的手段。特别是近年来与大腔体静高压技术结合而发展起来的高压中子衍射技术, 在含能材料、含水矿物、超导、磁材料等方面研究发挥了重要的作用^[1-6]。

近年建成的中国绵阳研究堆 (CMRR) 是中国目前可进行中子散射研究的 3 个中子源之一。其中子科学平台包括冷、热两个大厅, 含一期投入使用的 8 台谱仪 (中子衍射、反射、小角、应力、冷三轴、照相等) 和在建的 8 台谱仪 (自旋回波、超小角、热三轴、工程应力、工程小角、广谱非弹等), 每年为用户提供 200 d 左右的束流时间^[7-12]。CMRR 建有一台专门的高压中子衍射谱仪 (凤凰), 用来开展中子高压科学研究。基于高压中子衍射谱仪 (凤凰), 已建立并发展了相关高压中子衍射技术, 并在多个研究领域得到应用。本文将简述国内外高压中子技术发展情况, 重点介绍凤凰谱仪高压中子衍射技术在近年来取得的一些进展及应用情况。

* 收稿日期: 2020-07-08; 修回日期: 2020-07-21

基金项目: 国家自然科学基金 (11427810); 国家重点研发计划 (2016YFA0401503); 科学挑战专题 (TZ2016001)

作者简介: 房雷鸣 (1980—), 男, 博士, 副研究员, 主要从事高压原位中子衍射研究。

E-mail: flmyaya2008@163.com

1 中子散射、中子源与高压研究现状

中子散射(Neutron scattering)技术起源于20世纪30年代,然而直到建立可产生高通量中子的中子源,中子散射技术才开始被广泛应用。高通量中子可由反应堆和散裂源两种类型的中子源产生。反应堆中子源(Reactor sources)通过核材料裂变反应产生中子,是一种产生稳定连续中子的中子源。因为反应堆中子源的单色性较好,所以多数反应堆的中子谱仪采用单色中子,即采用(单晶)单色器从白中子束中选出所需固定波长的单色中子。散裂中子源(Spallation sources)是基于加速器的脉冲中子源。由于使用的是脉冲中子,谱仪一般采用“飞行时间(Time-of-flight, ToF)”,即通过测量中子通过某一段路程所用的时间来标记每个中子的波长(能量)。中子源的快速发展使中子探针的功能变得日益强大,如今已成为物理学、化学、生物学、地学、工程材料学甚至考古学等众多领域中广泛使用的研究工具。美国橡树岭国家实验室的Clifford G. Shull和加拿大乔克河国家实验室的Bertram N. Brockhouse,因建立开创性的中子散射实验技术获得了1994年的诺贝尔物理学奖^[13]。相对于同步辐射技术,中子源通量要低很多,第三代同步辐射的通量比目前最强的中子源(美国SNS)高出约10个数量级。基于同步辐射的超高亮度,DAC技术可在极微小样品上(样品直径一般不超过50 μm ,厚度只有10 μm 左右)产生几百万个大气压(最高的压力记录是640 GPa^[14])。相对而言,中子源需要接近毫米量级的样品才能得到有效信号,从而对高压加载装置提出了挑战。所以20世纪80年代之前,高压中子衍射实验压力都不超过3 GPa,使用的装置包括气体压腔(Gas cells)、活塞圆筒压机(Piston cylinders)、紧固型压腔(Clamp cell,如McWhan压腔^[7])等。直到20世纪90年代,一种新的装置——巴黎-爱丁堡压机(Paris-Edinburgh press, PE压机)被发展起来。这种装置主要借鉴了苏联科学家L.G. Khvostantsev对Bridgman压机的改造^[15]。PE压机的压砧由位于中心的半球状凹坑及围绕中心的一个或两个环状凹槽组成,一般被称为凹曲面压砧(Toroidal anvil)。两个压砧对顶加压时,半球形凹坑合拢成一个近似于球状的样品空间,环状凹槽形成的空间则用于放置对样品形成围压的封垫(Gasket)。PE压机可在低于10 GPa的压力范围内获得高质量的中子衍射谱^[16-17]。通过使用烧结金刚石(Sintered diamond)代替WC(Tungsten carbide)压砧,同时减小样品体积,可获得20 GPa压力下的中子衍射谱,压力比McWhan压腔提高了整整10倍^[18]。因此,获得巨大成功的PE压机立即被广泛应用于中子散射设施。

散裂中子源的中子衍射谱仪一般采用能散(Energy-dispersive)的衍射模式,即固定 2θ 角的方法。开展高压研究比较著名的散裂中子源包括始于20世纪80年代的英国的ISIS和美国洛斯阿拉莫斯国家实验室的Lujan中心,以及2000年前后建成的日本东海的J-PARC和美国橡树岭国家实验室的SNS。PEARL谱仪从1996年开始运行,是ISIS专门用于高压研究的中子衍射谱仪。PEARL基于PE压机可获得0~23 GPa的压力,在高压技术和高压科学研究方面持续保持活跃并且成绩斐然。特别是,利用PE压机获得了1400 K和10 GPa的高温高压,突破了中子衍射只能开展常温高压的局限^[19-20]。Lujan的HIPPO谱仪发展了两面顶压机(TAP-98)、Moissanite(SiC)压腔、气体/液体压腔等多种中子高压技术,可开展低温高压、高温高压多种极端条件下的中子衍射实验^[21]。新一代散裂中子源J-PARC和SNS都有专门的且各具特色的高压衍射线站(谱仪),分别是PLANET和SNAP。PLANET特别建有六面顶压机(ATSUHIME)。与PE压机的单轴加压方式不同,ATSUHIME在3个垂直方向(Six-axis)对样品加压,可同时产生16 GPa和1000 $^{\circ}\text{C}$ 的压力温度范围^[22-23]。SNAP通过聚焦与准直、监视器、定位等谱仪部件的优化,利用SNS超高的中子通量,使其样品体积远远低于通常情况下中子衍射实验所需的样品体积,对于0.05 mm^3 大小的样品,SNAP仍然可以获得可全谱精修的衍射信号。利用定制的DAC,SNAP在43 GPa压力下获得了可进行全谱分析的中子衍射谱^[24],并在94 GPa压力下获得了具有一定强度的中子衍射谱^[25]。另外,刚刚建成的位于中国东莞的CSNS是中国唯一的散裂中子源。CSNS正在准备建设一条专门的高压线站(HPI),将放置一台定制的多面顶压机(True tri-axial loading multianvil press),用于开展高压下的中子衍射和中子照相。同时,正在建设的位于瑞典的欧洲散裂源(ESS),其瞬态亮度高于目前所有散裂中子源,平均亮度甚至高于稳态反应堆ILL的亮度,为中子高压技术带来了新希望^[26]。

基于反应堆中子源进行中子衍射实验始于 20 世纪 50 年代,目前世界上约有 48 台反应堆中子源^[27]。中国有两个新建的反应堆中子源,即中国原子能研究院的 CARR(北京)和中国工程物理研究院的 CMRR(绵阳)。反应堆中子源的中子衍射谱仪一般采用角散(Angle-dispersive)的衍射模式,即固定波长(λ)的方法。因为角散模式需要沿 2θ 扫描,因此高压装置须在 2θ 方向有较大的衍射窗口。受反应堆中子源中子通量(一般低于散裂中子源)及高压装置的制约,通常而言反应堆中子源上中子衍射的最高压力在 10 GPa 以下。开展高压研究比较著名的反应堆有法国的 ILL 和 LLB 反应堆、澳大利亚的 OPAL 反应堆和德国的 FRM II 反应堆。功率为 58 MW 的 ILL 反应堆于 1967 年投入使用,被认为是目前世界上在用的、功率最大的反应堆中子源。ILL 拥有齐全的高压环境装置,包括气体压腔、McWhan 压腔和 PE 压机,可获得 10 GPa 的压力。LLB 是中功率反应堆(14 MW),建有可开展高压实验的中子衍射谱仪(G6-1)。通过对中子束的高度聚焦,G6-1 利用宝石压砧(金刚石或蓝宝石压砧)获得了最高达 50 GPa 的压力(样品体积仅为 0.01 mm^3)^[28]。澳大利亚的 OPAL 是近年来新建的反应堆,有两条束线可进行高压研究,利用 PE 压机可获得 10 GPa 的压力。德国的 FRM II 在中子线站上正在安装一台用于高压照相和衍射的六面顶压机(SAPHiR)(<http://www.mlz-garching.de/saphir>),安装完成后将是欧洲中子线站上唯一的一台多面顶压机。位于中国绵阳的 CMRR 建有一台专门用于高压研究的高压中子衍射谱仪(凤凰),于 2013 年开始投入使用,通过优化中子束流、定制高压装置及调节与定位系统,目前可在最高 34 GPa、1500 °C 的高温高压下获得高质量中子衍射谱,在本文后部将予以详细介绍。

2 CMRR 高压中子衍射线站

2.1 凤凰谱仪

CMRR 的高压中子衍射谱仪(凤凰)包括中子闸门、聚焦导管、单色器、探测器及屏蔽,如图 1 所示。探测器由 7 个探测模块组成,每个模块由 10 支准直器和 10 支在垂直方向呈 45° 角放置的 ^3He 管阵列构成,7 个探测模块的运动由角度编码器控制。探测器采谱一般采用超级位置扫描模式(Superposition scanning mode),即每支 ^3He 管都测量一个全谱然后叠加起来。这种模式的优点是不需要每支 ^3He 管进行效率标定,而且如果某些 ^3He 管的信号异常,叠加时可以直接去掉而不会影响整体信号。通过研制新的垂直聚焦锗单晶单色器和具有可调狭缝的椭圆形聚焦导管,实现了中子束流强度的提高^[12]。垂直聚焦锗单晶单色器位于样品前端 2.5 m 处,由 13 片 Ge(511)单晶排列组成。单色器的起飞角为 93.8° ,选择的单一波长为 $1.59 \text{ \AA}$ 。新的中子导管采用椭圆形聚焦导管、锥形导管和可调狭缝三者组合方式,全长 583.5 cm。狭缝可在 1~7 cm 之间进行调节,不同尺寸的狭缝对应不同的束流强度和

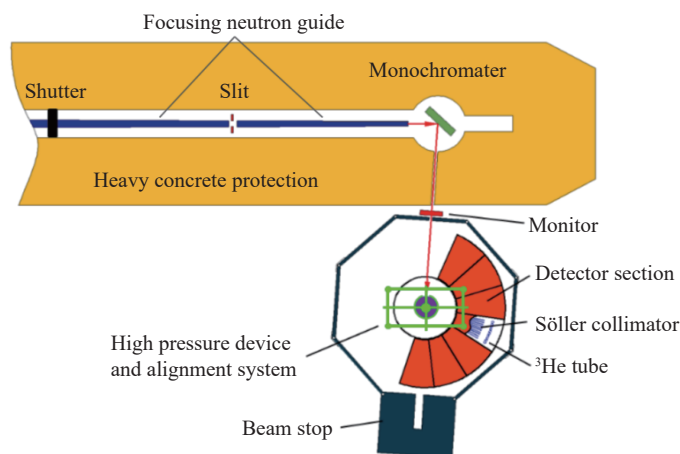


图 1 凤凰谱仪结构顶视图

Fig. 1 Top view of FENGHUANG diffractometer

最佳晶格分辨率($\Delta d/d$), 波长也会略有变化。谱仪的具体参数列于表 1。金箔活化法及标准样品的测试结果表明, 样品处最大中子束流强度为 $2.8 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。

表 1 凤凰谱仪主要的仪器参数

Table 1 Instrumental parameters of FENGHUANG diffractometer

Take-off-angle/(°)	Wavelength/Å	Scan angle range/(°)
93.8	1.5900–1.5925	–4–153
Maximum beam size/(mm × mm)	Flux at sample position/($10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$)	Minimum resolution/%
30 × 40	0.34–2.84	0.356–0.661

2.2 高压加载装置、调节与定位系统

凤凰谱仪上配有各种定制的气体压腔、活塞圆筒型压腔及紧固型压腔, 可分别获得 0.1、0.7 和 2 GPa 压力; 另外有可产生高压的标准 PE 压机(VX4 型)和 200 MPa 单缸柱塞泵(Floxlab BT)用于提供油压, 以及一台定制的带加热和水冷系统的两面顶压机(HP3-1 500), 如图 2 所示。HP3-1 500 压机主要包括主机、液压站、温度加载系统和控制系统。压机主体采用高强度合金钢加工, 活塞直径 110 mm, 最大行程 40 mm。活塞连接压力传感器, 在加载过程中实时测量活塞推力。压力传感器下表面连接加热电极, 并采用绝缘片与压机主体绝缘。电极侧面配置水冷铜管, 加温过程中可连接冷却水循环机为电极降温, 保证压机正常工作。液压站即压力加载系统由液压油箱、柱塞泵、增压器、压力变送器、高压油管及管接头、变频器、液压阀件等组成。温度加载系统采用直流开关电源(500 A/10 V), 通过电源、上下电极、压砧、加热组件构成加热回路对样品进行加热, 可采用恒功率、恒电压、恒电流 3 种控制模式。加热与加压由程序控制, 控制程序借鉴多面顶大腔体压机设计, 具有保持、跳步、手动/自动切换等功能。

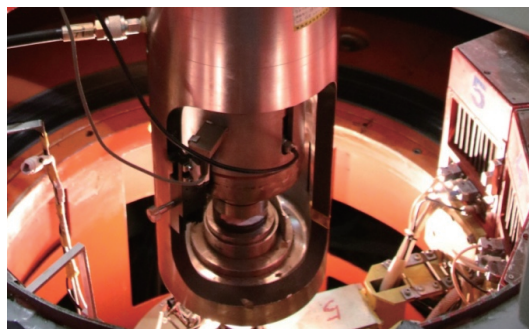


图 2 凤凰谱仪上配备的 HP3-1500 两面顶压机

Fig. 2 HP3-1500 high pressure device for FENGHUANG diffractometer

通常而言, 中子信号很弱, 无法使用类似同步辐射的透射成像法或信号测试法实现高压中子衍射样品的定位, 因此对大体积压机(300~1 000 mm)内部小样品(1~3 mm)的精确定位, 是取得有效中子衍射数据并确保所测结果准确性的关键。凤凰谱仪配备一套调节与定位系统, 用于调节 PE 压机和 HP3-1 500 压机, 以便精确地对高压腔内的样品进行定位^[29–30]。该调节与定位系统充分考虑了中子光路、谱仪特点及压机特点, 具备 X、Y、Z 方向平移以及 Z 方向旋转的四维调节功能。运动单元采用伺服电机减速机驱动滚珠丝杠传动, 沿线性滑轨方向做直线运动, 伺服电机均带刹车。这种运动单元有精度高、运动稳定性好的特点。为了监控压机(样品)的移动, 在竖直方向和水平方向布置摄像头和激光笔。因为衍射几何中心与谱仪的编码器中心重合, 所以竖直方向的激光笔放置在谱仪编码器中心。水平方向的激光束线经标定后完全与中子束方向重合, 且其高度和水平位置均在中子束斑中心。利用摄像头可远程清晰地显示激光光斑与标识线的相对位置。通过上位机控制多轴调节装置到达给定位置, 最终完成样品的定位。样品定位精度达到 0.02 mm, 满足高压实验要求。

3 凤凰谱仪的高压中子衍射技术

3.1 活塞圆筒型压腔高压实验

活塞圆筒型压腔是一种常用的中子衍射高压装置, 可用来进行固体加压和液体加压。圆筒一般采

用 TiZr 合金制作, 活塞则采用碳化钨(WC)。选择合适的 TiZr 合金配比(Ti 和 Zr 的摩尔分数分别为 67.7% 和 32.3%), 刚好保证无中子衍射峰产生。固体加压一般利用聚四氟乙烯或铝箔包裹样品, 以防止加压时样品粉末进入活塞与圆筒之间的空隙。液体样品腔要复杂得多, 主要是防止液体在加压过程中由活塞与圆筒之间的空隙流出。第 4 节介绍的高压溶解度和高压聚合实验分别用到了活塞圆筒型液体压腔和活塞圆筒型固体压腔。受限于 TiZr 合金材料的强度(常温下屈服强度为 545~700 MPa^[6]), 活塞圆筒型压腔的加载压力一般不超过 1 GPa。图 3 为活塞圆筒型固体压腔获得的不同压力下的中子衍射谱。该实验中, WC 活塞的直径为 15.27 mm; 样品为 NaCl, NaCl 周围用铝箔包裹, 上下各放置一个由铝箔压制的圆片, 以隔开圆筒和样品。从图 3 可以看出, 衍射峰大部分来自 NaCl 样品, 另外少部分低强度衍射峰来自 WC 和 Al。进入中子束流的 WC 和 Al 随着压力的增加而增多, 导致它们的衍射峰强度随压力略有增加。图 4 为不同加载压力下理论压力(F/S)和实测样品腔压力(根据 NaCl 晶格体积变化计算的压力的对比。对于活塞圆筒型压腔, 活塞下移过程中, 在活塞与圆筒之间的微小空隙中不可避免地会填入一些样品或传压介质的微小颗粒, 导致活塞与圆筒之间产生很大的摩擦力。摩擦力会抵消相当多的一部分压力, 致使样品腔的压力小于理论压力。随着压力的升高, 样品腔的压力接近理论压力。当压力继续升高到极限压力附近时(600 MPa 以上), TiZr 圆筒向外发生一定的屈服和塑性形变, 导致压力效率越来越低, 甚至可能发生圆筒破裂。

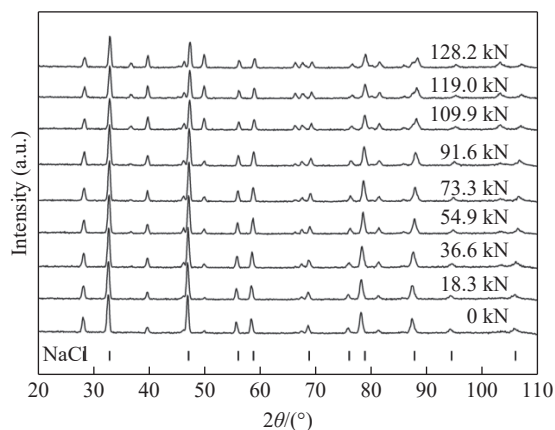


图 3 不同加载力下 NaCl 的中子衍射谱

Fig. 3 Neutron diffraction patterns of NaCl at different loading forces

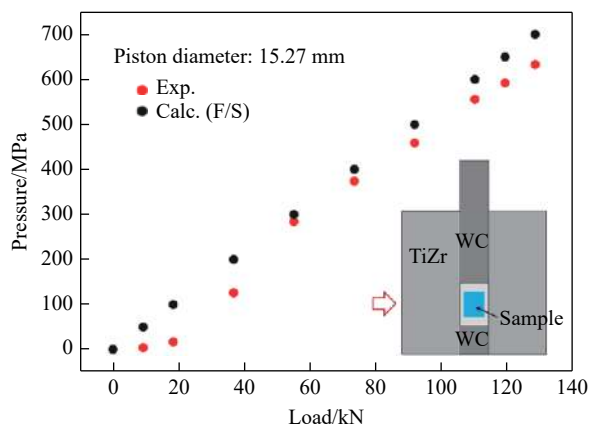


图 4 实验与计算的活塞圆筒压腔压力对比

Fig. 4 Pressures of piston cylinders cell in the experiment and calculation

3.2 WC 凹曲面压砧高压实验

利用 PE 压机及 WC 压砧, 一般最高可获得 10 GPa 的压力。WC 凹曲面压砧主要有单凹曲面(Single toroidal, ST)压砧和双凹曲面(Double toroidal, DT)压砧两种类型。样品放置在压砧中心的凹坑里, 被与压砧环状凹槽相匹配的 TiZr 封垫包围。WC 压砧和封垫如图 5(a)和图 5(b)所示。单凹曲面压砧和双凹曲面压砧凹坑合拢后加上封垫的厚度, 就是对应的样品体积, 分别为 96 和 34 mm³。压砧侧面及斜面一般包裹 1 mm 厚的锡片或者涂一层 Gd₂O₃(Gd₂O₃ 粉末与环氧树脂混合体), 用于屏蔽来自压砧材料的衍射峰。金属 Fe(纯度 99.99%, Alfa Aesar)作为样品和标压材料, 所获得的不同加载压力下的中子衍射谱如图 5(c)所示。根据文献[31–32]中报道的 Fe 的体弹模量, 利用三阶 Birch-Murnaghan 状态方程, 计算出不同负载下衍射峰对应的压力^[30]。结果显示, 负载 1000 kN 时单凹曲面和双凹曲面获得的压力分别为 9.7 和 10.7 GPa。谱图中除了样品的衍射峰外, 还有少量来自 WC 压砧材料和 WC 压砧的支撑钢环(Steel)。通过对中子束斑的进一步限束(减小光斑尺寸), 可减小 WC 衍射峰的强度。具体的实验过程在文献[30]中有详细的描述。实验过程中发现, 虽然单凹曲面压砧和双凹曲面压砧所产生的压力效率相当, 但是双凹曲面压砧对封垫的稳定性要好于单凹曲面压砧, 因此可承受更高的加载。然而双凹曲面压砧却存在样品体积小的缺点。

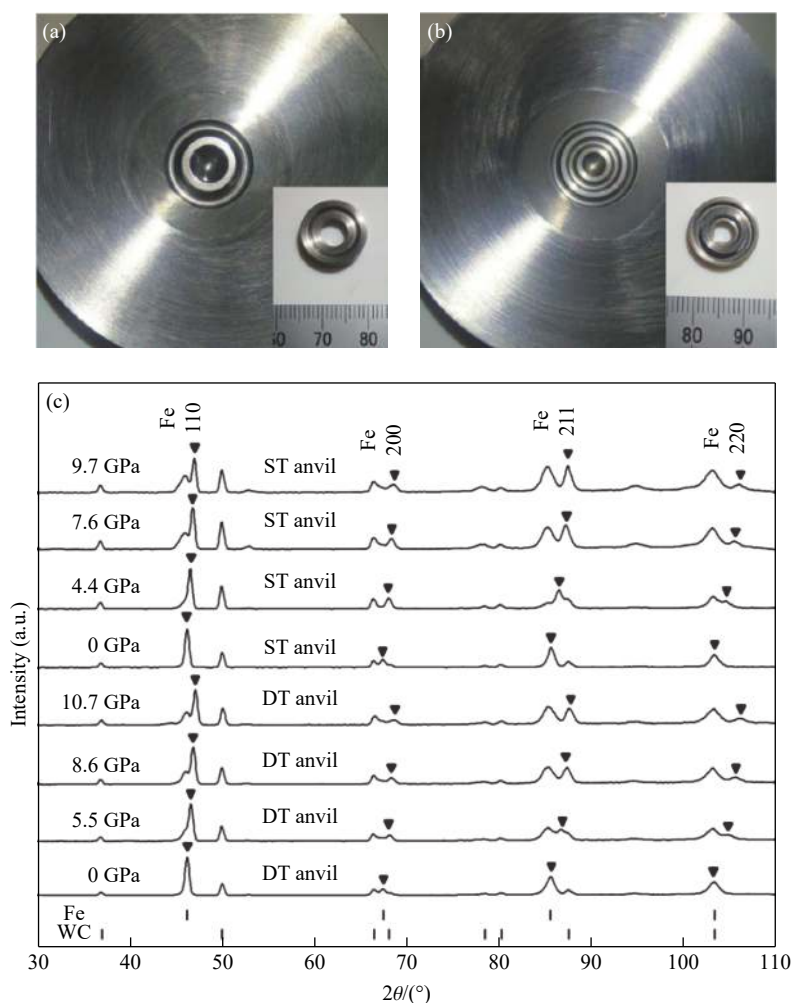


图 5 (a)WC 单凹曲面压砧及 TiZr 封垫, (b)WC 双凹曲面压砧及 TiZr 封垫, (c)单凹曲面和双凹曲面压砧在不同压力下获得的铁的中子衍射谱(修改于文献 [30])

Fig. 5 (a) ST WC anvil and gasket, (b) DT WC anvil and gasket, and (c) neutron diffraction patterns of Fe with ST and DT anvils at different loading forces (Modified for Ref. [30])

3.3 金刚石双凹曲面压砧高压实验

金刚石双凹曲面压砧使用的聚晶金刚石由高温高压烧结而成,其维氏硬度达到 69 GPa。压砧由中心向外分别为聚晶金刚石、硬质合金和高强度不锈钢。对于 PE 压机等单轴加载装置,由于对样品的侧向支撑能力(即围压)不足,导致高压下样品的流变非常严重,特别是较大尺寸的样品。这也是 PE 压机在毫米级样品上很难获得更高压力(25 GPa 以上)的主要原因。研究发现,在超过 10 GPa 的高压下,凹坑里的样品可以看成上、中、下 3 部分,中间部分的流变最严重。为了减少样品流变,我们创新性地将中间部分样品去掉,用一个金刚石单晶片代替^[33]。金刚石单晶的引入很好地阻止了样品的侧向流动,并对样品起到一定的增压作用,使样品的压力大大提高。使用的金刚石为单晶,不会产生衍射峰而对样品信号产生干扰。此外,样品周围的氧化镁传压介质对阻止样品发生流变也起到一定的作用。所使用的金刚石压砧及组装如图 6 所示。选择金属 Ni(纯度 99.99%, Alfa Aesar)作为样品和标压物质,利用 Ni 的三阶 Birch-Murnaghan 状态方程计算腔体压力^[31]。样品被金刚石单晶片分成上、下两部分,尺寸均为 $\varnothing 3.00 \text{ mm} \times 1.25 \text{ mm}$ 。在不同的加载压力下得到的 Ni 的中子衍射图谱如图 7 所示。除了样品 Ni 的衍射峰外,还有来自聚晶金刚石压砧和 MgO 传压介质的衍射峰。实验结果显示,在负载 1 500 kN 下, Ni 的压力达到 34 GPa。由于样品的流变被有效阻止,因此高压腔体的压力效率大幅度提高(1 500 kN

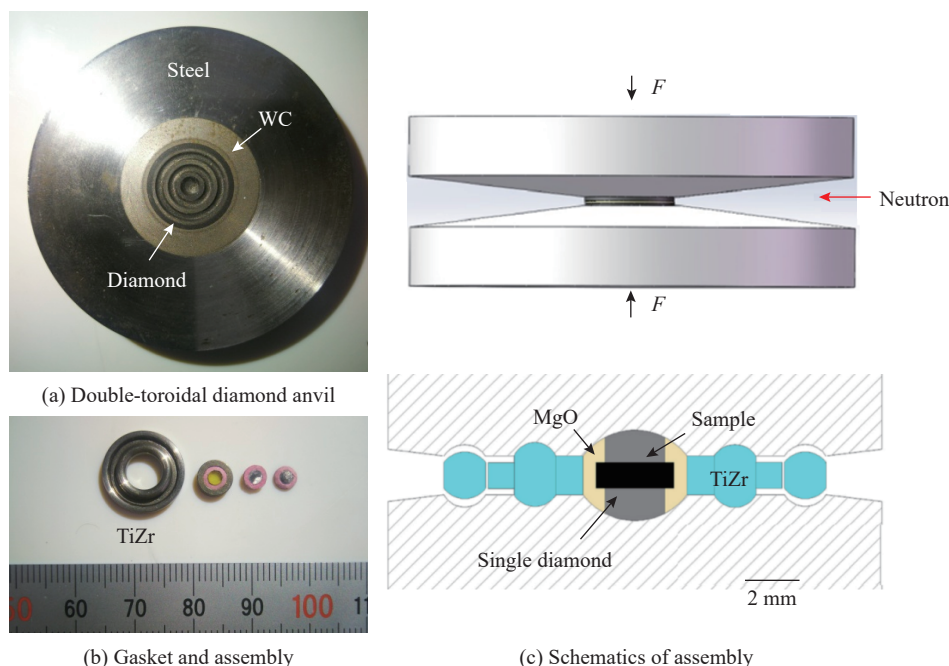


图 6 优化的金刚石双凹曲面组装实物图及示意图

Fig. 6 Modified DT assembly for the neutron diffraction experiments

负载下常规金刚石压砧一般可产生 20 GPa 左右的压力)^[34]。当然, 34 GPa 压力下 Ni 的衍射峰已经变得非常弱, 通过适当增加样品量和采谱时间, 可在一定程度上提高信号质量。另外, 氧化镁的压力远低于样品压力, 其原因在于高压下有部分氧化镁被挤到样品凹坑外面的密封区域, 对样品起到了密封作用。该工作为 PE 压机在毫米级样品上产生 30 GPa 以上的压力提供了新思路。

3.4 高温高压中子衍射实验

高温高压中子衍射实验使用平底的 WC 单凹曲面压砧。为了保证上、下压砧绝缘, TiZr 合金被厚度为 1 mm 的叶蜡石隔开。利用外径为 4 mm、厚度为 2.5 mm 的石墨管或者直径为 4 mm、厚度为 0.05 mm 的铌片作为加热管对样品进行加热。加热管外面使用 ZrO_2 作为传压介质, 由于 ZrO_2 材料的热导率较低、绝热性好, 所以还兼具保温的作用。为了在垂直方向增加绝热效果, 加热管没有采用直通的方式, 而是在加热管的上、下采用导电性强的铜圈作为连接加热管和压砧的电极。铜圈内部放置 ZrO_2 或铬酸钼, 作为样品在垂直方向的绝热材料。MgO 作为样品并同时作为标压和标温物质, 尺寸为 $\phi 3.5 \text{ mm} \times 2.7 \text{ mm}$, 体积约为 26 mm^3 。压砧及组装如图 8 所示。利用 MgO 的状态方程计算出样品腔的压力, 同时利用 MgO 的高温状态方程计算样品腔的温度^[35-36]。传统的标温方法是利用放置在样品附近的热电偶进行温度测量。为了绝缘, 在热电偶丝外面套一个 Al_2O_3 陶瓷管。套有陶瓷管的热电偶一般要穿过封垫、加热管及传压介质到达样品。这种方法的缺点是破坏了组装的整体性而影响其稳定性, 另外水平方向放置的热电偶丝容易被挤断, 使测温失败。通过衍射峰计算晶格体积变化的方法, 可以非常好地避免热电偶易断且影响组装整体性和稳定性的问题。图 9 为不同压力温度下 MgO 的中子

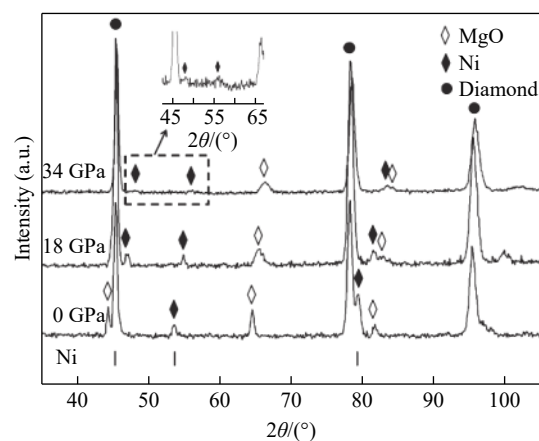


图 7 不同压力下 Ni 的高压中子衍射谱(MgO 和金刚石衍射峰分别来自传压介质和压砧)

Fig. 7 High pressure neutron diffraction patterns of pure metal Ni at different pressure (Peaks of MgO and diamond come from pressure transmitting medium and anvil, respectively.)

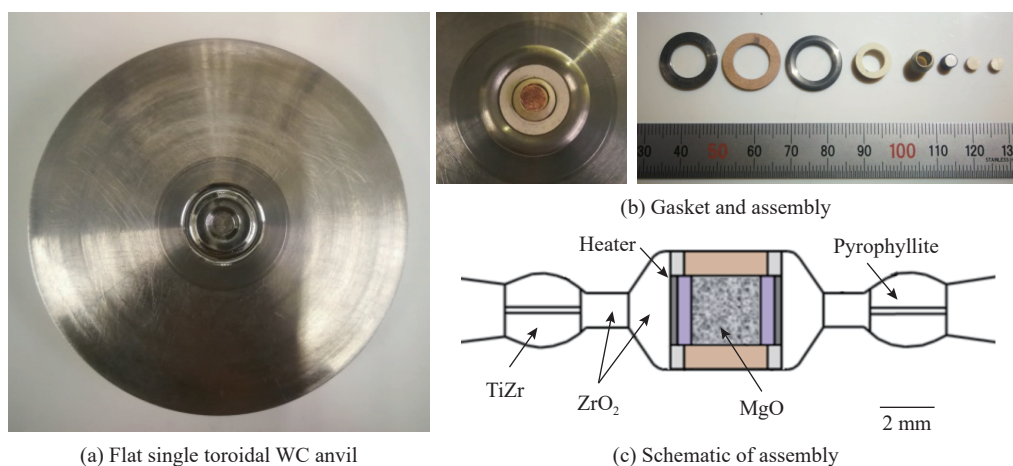


图 8 高温高压中子衍射实验组装

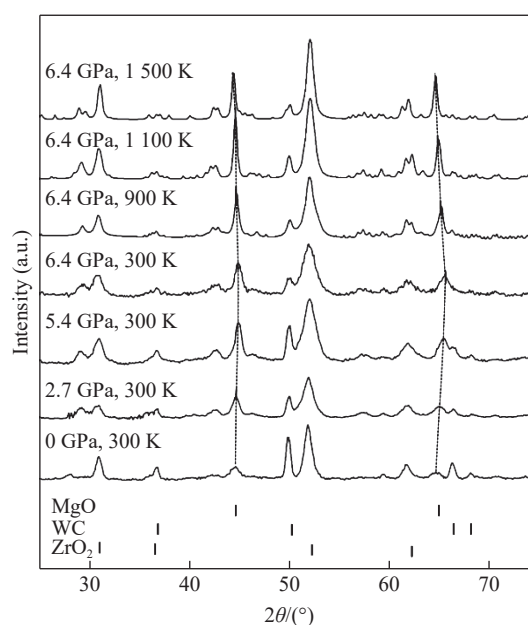
Fig. 8 Schematic of high pressure-high temperature assembly for neutron diffraction experiments

衍射谱, 衍射谱中除了有 MgO 的衍射峰外, 还有较多的来自 WC 压砧和 ZrO_2 传压介质的干扰峰。传压介质与封垫二者的相对高度影响二者压力的分配, 进而影响整个组装的稳定性、腔体压力发生效率和极限压力。根据加压过程中整个组装的流变特点, 通过优化传压介质与封垫的相对高度, 使压力提高到 11 GPa, 该压力下可同时达到 1500 °C 的温度^[37]。对于单轴加压的 PE 型压机, 样品腔在垂直方向的距离较小, 使得高温高压组装的保温能力有限, 在加热过程中热量很容易沿垂直方向由两个压砧向外散失。高压下组装越薄, 这种现象就越明显。解决组装在垂直方向热量散失严重的问题是提升 PE 型压机中样品温度范围的关键。另外, 选择具有良好的绝热效果、衍射峰少且中子透过性好的材料替代 ZrO_2 也非常必要。

4 CMRR 高压中子衍射技术应用

4.1 高压下溶解度测量

在地学、生物学、材料学、能源与环境科学等学科领域中, 理解 NaCl 等物质在水中的溶解度随压力的变化具有重要意义。一直以来, 固体溶解度随温度的变化被广泛研究, 但压力对固体溶解度影响的实验研究却相对较少, 主要受原位测量手段的限制^[38-40]。只有少数研究团队利用非常复杂的测量手段获得了超过 50 MPa 压力下 NaCl 的溶解度, 最高测量压力达到 300 MPa^[41]。利用中子具有强穿透性(可穿过用于加压的金属压腔及腔体内的液体)的特点, 我们发展了一套利用中子衍射原位测量高压下固体溶解度的方法, 并成功用于高压下 NaCl 溶解度的测量。利用中子衍射原位测量高压下溶解度的思路: 把 NaCl 晶体和标定物质(如 Fe)放入 NaCl 饱和溶液中, 为了降低 H 原子的非相干散射(Incoherent scattering)引起的本底, 使用重水(D_2O)配制 NaCl 饱和溶液, 然后利用液体压腔进行加压。加压过程中, 随着溶解度的增大, 饱和溶液变成非饱和溶液, 部分 NaCl 晶体发生溶解而导致 NaCl 晶体质量减少。利用中子衍射原位测量不同压力下

图 9 不同温度和压力下 MgO 的高温高压中子衍射谱 (ZrO₂ 和 WC 衍射峰分别来自传压介质和压砧)Fig. 9 Neutron diffraction patterns of MgO at different pressure and temperature (Peaks of ZrO_2 and WC come from pressure transmitting medium and anvil, respectively)

NaCl 晶体和 Fe 的衍射峰, 并计算出 NaCl 晶体和 Fe 相对质量的变化。因为整个过程中 Fe 的质量未发生变化, 所以可以通过 NaCl 晶体相对 Fe 的质量变化来计算不同压力下 NaCl 的溶解度。NaCl 晶体和 Fe 衍射峰的位置偏移可以用来计算腔体的压力。进行原位中子衍射的液体压腔及获得的中子衍射谱如图 10 所示, 详细实验过程参考文献 [42]。实验结果显示, 中子衍射原位测量获得的数据相比其他实验方法具有更高的可信度, 并且压力范围扩大到 600 MPa 以上(见图 11)。

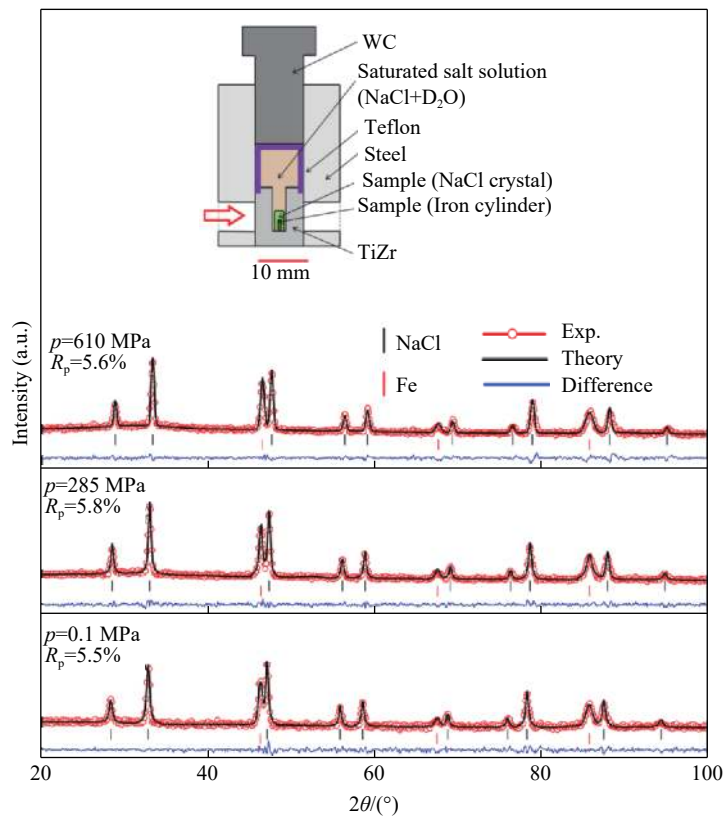


图 10 不同压力下 NaCl 的中子衍射谱(插图为高压下溶解度测量装置)^[42]

Fig. 10 Neutron diffraction patterns of NaCl at different loading forces (Inset is the piston-cylinder cell)^[42]

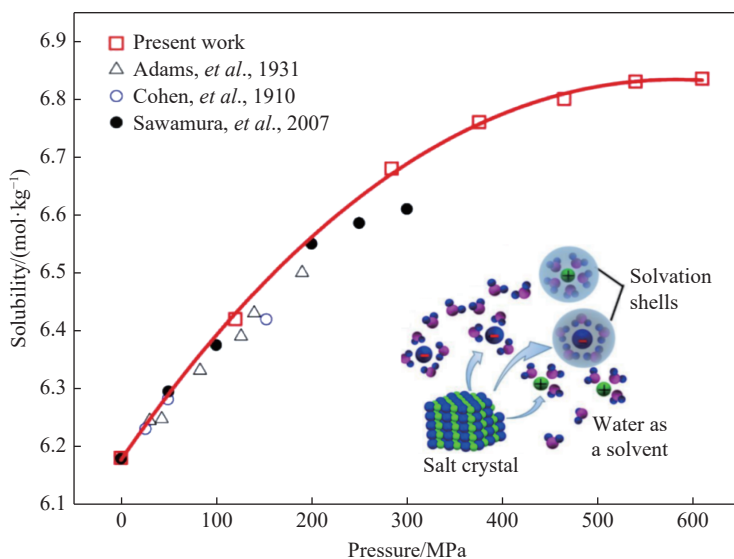


图 11 NaCl 的溶解度随压力的变化曲线^[42]

Fig. 11 Solubility of NaCl at different pressures^[42]

4.2 含能材料结构研究

基于中子的强穿透性及对 C、H、N、O 等轻元素的敏感性,利用中子衍射研究含能材料具有独特的优势。HMX 是一种具有高能量密度和良好爆炸性能的炸药^[43-45]。利用凤凰谱仪建立的高压中子衍射技术,李昊等^[46]原位观测了块体 HMX 基 PBX 炸药晶间应力随压力的演化过程。考虑到 H 原子的非相干散射会增加衍射峰的本底,实验中使用了 HMX 的氘代样品(HMX-d8),即用 H 的同位素 D 替代样品中的 H 原子。通过对不同压力下的衍射峰进行精修,获得了各个晶面在不同压力下的晶格参数。结果表明,在 380 MPa 时(110)面有一个非常明显的应变释放。(110)面反常的应力释放与晶体破碎有关,说明 HMX 晶体的破碎来源于晶体的(110)面。该实验使用的装置为活塞圆筒压腔,不同压力下获得的 HMX 的中子衍射谱如图 12 所示。

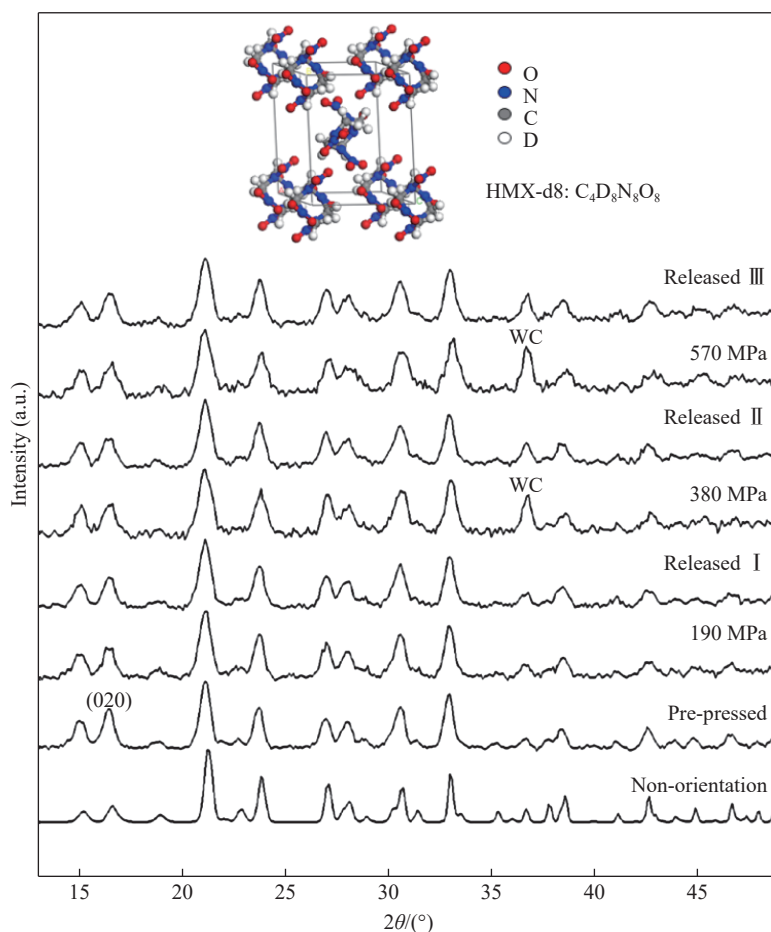


图 12 不同压力下 HMX 的中子衍射谱(修改于文献[46])

Fig. 12 Neutron diffraction patterns of HMX at different pressures (Modified for Ref.[46])

4.3 高压聚合反应

sp^3 杂化的碳骨架结构具有优异的机械、光学等性能。然而受限于实验方法,除金刚石等少数材料外,目前具有规整结构的复杂 sp^3 碳基材料的合成仍是一个难题。其中,高压聚合(Pressure-induced polymerization, PIP),即对不饱和分子如芳香族类分子施加极端压力,是一种有希望制备 sp^3 杂化碳基材料的方法^[47-48]。相比单纯的 C_6H_6 分子,一半 C_6H_6 分子被 C_6F_6 替代的 $C_6H_6-C_6F_6$ 共晶,因 C_6H_6 与 C_6F_6 之间强烈的静电吸引,被认为是研究 $\pi-\pi$ 键的理想对象^[49]。Wang 等^[50]利用中子衍射对不同压力下的各相进行测量并进行结构精修,研究发现聚合成 H-F 层状类石墨烯结构的 Diels-Alder 反应是 $C_6H_6-C_6F_6$ 共晶聚合反应的关键。该工作的高压中子衍射实验分别在 CMRR 的凤凰谱仪、ISIS 的 PEARL 谱仪和

J-PARC 的 PLANET 谱仪上进行。CMRR 凤凰谱仪的高压中子衍射实验结果主要用来解析 VI 相, 如图 13 所示。 C_6H_6 - C_6F_6 共晶的实验结果表明, 通过调控芳香化合物的取代基, 可以得到多样的 sp^3 杂化的碳骨架结构。这为芳香化合物的压力诱导聚合提供了新思路。

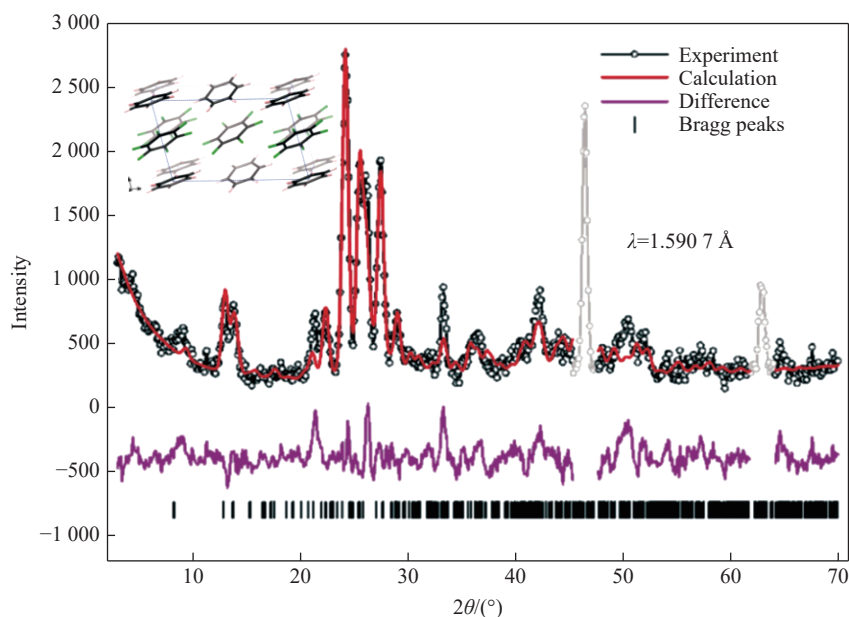


图 13 VI 相 C_6H_6 - C_6F_6 共晶的高压中子衍射谱(修改于文献 [50])

Fig. 13 High pressure neutron diffraction patterns of C_6H_6 - C_6F_6 cocrystal (Modified for Ref.[50])

5 结束语

凤凰谱仪是 CMRR 反应堆中子源上的专用高压中子衍射谱仪。通过对谱仪单色器和中子导管的升级, 样品处的中子束流强度达到 $2.8 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$ 。目前凤凰谱仪上配有多种定制的气体压腔、活塞圆筒压腔及紧固型压腔, 可分别获得 0.1、0.7 和 2 GPa 的压力, 另外还有可产生高压的标准 PE 压机 (VX4 型) 和定制的两面顶压机 (HP3-1500), 以及可对样品高精度定位的压机调节与定位系统。通过高压组装设计, 在毫米级样品上实现中子衍射的压力突破 30 GPa, 高于常规 PE 型压机 20 GPa 的最高压力。另外, 设计的高温高压组装可以实现 11 GPa、1500 °C 的温度压力, 并在该温度压力下获得了有效的样品中子衍射信号。基于凤凰谱仪建立起来的一系列高压中子衍射技术可用于其他中子源, 并为用户开展中子高压研究提供支持。目前已在可燃冰结构表征、新材料结构相变、状态方程测量、高压下溶解度测量、含能材料结构演化、高压聚合反应等方面开展应用。另外, 在 CMRR 中子科学平台上建立了基于国产六面顶压机的 6-8 型超高压大腔体压机和超高压声速测量技术, 压力可达 22 GPa 以上, 同时温度可达 2200 °C 以上, 实现了与国外多面顶压机同等的压力温度范围, 在该国产六面顶压机上实现了 20 GPa 以上的弹性波测量。大腔体压机、超高压声速测量技术以及高压中子衍射技术的结合, 可实现高压下材料调制、高压下弹性波速测量、高压下密度/晶格体积测量三者的综合研究能力。

对于后期中子高压技术的发展方向主要有以下两方面考虑:

- (1) 利用中子 K-B(Kirkpatrick-Baez)超镜对中子束进一步聚焦, 将光斑尺寸由原来的毫米级控制到亚毫米级, 同时采用近年来发展的超高硬度金刚石制作高硬度压砧, 以期最终实现 50 GPa 以上的压力;
- (2) 通过设计新型加载方式(2-6 型、2-8 型), 选取对中子友好且性能优秀的加热、传压、密封和保温材料, 发展具有较好静水压性、较大体积样品、可获得接近多面顶大腔体压机高温高压范围的新型高压中子衍射技术。

在发展高压中子衍射技术及相关实验过程中,得到了中国工程物理研究院核物理与化学研究所中子科学团队的同事们,北京高压科学研究中心的李阔研究员,中国科学院物理研究所的于晓辉研究员,四川大学的彭放教授、雷力研究员,中国工程物理研究院流体物理研究所的毕延研究员、徐济安研究员,中国科学院高能物理研究所散裂中子源科学中心袁宝等的帮助,在此表示诚挚的感谢!

参考文献:

- [1] KISI E H, HOWARD C J. Applications of neutron powder diffraction [M]. Oxford: Oxford University Press, 2008.
- [2] LIEBERMANN R C. Multi-anvil, high pressure apparatus: a half-century of development and progress [J]. [High Pressure Research](#), 2011, 31(4): 493–532.
- [3] GUTHRIE M. Future directions in high-pressure neutron diffraction [J]. [Journal of Physics: Condensed Matter](#), 2015, 27(15): 153201.
- [4] KLOTZ S, BESSON J M, HAMEL G, et al. High pressure neutron diffraction using the Paris-Edinburgh cell: experimental possibilities and future prospects [J]. [High Pressure Research](#), 1996, 14(4/5/6): 249–255.
- [5] LE GODEC Y, DOVE M T, REDFERN S A T, et al. Recent developments using the Paris-Edinburgh cell for neutron diffraction at high pressure and high temperature and some applications [J]. [High Pressure Research](#), 2003, 23(3): 281–287.
- [6] KLOTZ S. Techniques in high pressure neutron scattering [M]. Boca Raton, FL: CRC Press, Taylor and Francis, 2013.
- [7] MCWHAN D B, BLOCH D, PARISOT G. Apparatus for neutron diffraction at high pressure [J]. [Review of Scientific Instruments](#), 1974, 45(5): 643–646.
- [8] 彭放, 贺端威. 应用于高压科学研究的国产铰链式六面顶压机技术发展历程 [J]. [高压物理学报](#), 2018, 32(1): 010105.
PENG F, HE D W. Development of domestic hinge-type cubic presses based on high pressure scientific research [J]. [Chinese Journal of High Pressure Physics](#), 2018, 32(1): 010105.
- [9] SUN G G, ZHANG C S, CHEN B, et al. A new operating neutron scattering facility CMRR in China [J]. [Neutron News](#), 2016, 27(4): 21–26.
- [10] PENG M, SUN L W, CHEN L, et al. A new small-angle neutron scattering spectrometer at China Mianyang research reactor [J]. [Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A](#), 2016, 810: 63–67.
- [11] LI J, WANG H, SUN G G, et al. Neutron diffractometer RSND for residual stress analysis at CAEP [J]. [Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A](#), 2015, 783: 76–79.
- [12] XIE L, CHEN X P, FANG L M, et al. Fenghuang: high-intensity multi-section neutron powder diffractometer at CMRR [J]. [Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A](#), 2019, 915: 31–35.
- [13] SHULL C G, STRAUSSER W A, WOLLAN E O. Neutron diffraction by paramagnetic and antiferromagnetic substances [J]. [Physical Review](#), 1951, 83(2): 333–345.
- [14] DUBROVINSKY L, DUBROVINSKAIA N, PRAKAPENKA V B, et al. Implementation of micro-ball nanodiamond anvils for high-pressure studies above 6 Mbar [J]. [Nature Communications](#), 2012, 3: 1163.
- [15] KHVOSTANTSEV L G, SLESAREV V N, BRAZHKIN V V. Toroid type high-pressure device: history and prospects [J]. [High Pressure Research](#), 2004, 24(3): 371–383.
- [16] BESSON J M, NERMES R J, HAMEL G, et al. Neutron powder diffraction above 10 GPa [J]. [Physica B: Condensed Matter](#), 1992, 180/181: 907–910.
- [17] BESSON J M, WEILL G, HAMEL G, et al. Equation of state of lithium deuteride from neutron diffraction under high pressure [J]. [Physical Review B](#), 1992, 45(6): 2613–2619.
- [18] KLOTZ S, BESSON J M, HAMEL G, et al. Neutron powder diffraction at pressures beyond 25 GPa [J]. [Applied Physics Letters](#), 1995, 66(14): 1735–1737.
- [19] ZHAO Y S, VON DREELE R B, MORGAN J G. A high P-T cell assembly for neutron diffraction up to 10 GPa and 1500 K [J]. [High Pressure Research](#), 1999, 16(3): 161–177.
- [20] BULL C L, FUNNELL N P, TUCKER M G, et al. PEARL: the high pressure neutron powder diffractometer at ISIS [J]. [High Pressure Research](#), 2016, 36(4): 493–511.

- [21] ZHAO Y S, ZHANG J Z, XU H W, et al. High-pressure neutron diffraction studies at LANSCE [J]. *Applied Physics A*, 2010, 99(3): 585–599.
- [22] HATTORI T, SANO-FURUKAWA A, ARIMA H, et al. Design and performance of high-pressure PLANET beamline at pulsed neutron source at J-PARC [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2015, 780: 55–67.
- [23] SANO-FURUKAWA A, HATTORI T, ARIMA H, et al. Six-axis multi-anvil press for high-pressure, high-temperature neutron diffraction experiments [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2014, 85(11): 113905.
- [24] GUTHRIE M, BOEHLER R, TULK C A, et al. Neutron diffraction observations of interstitial protons in dense ice [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of American*, 2013, 110(26): 10552–10556.
- [25] BOEHLER R, GUTHRIE M, MOLAISON J J, et al. Large-volume diamond cells for neutron diffraction above 90 GPa [J]. *High Pressure Research*, 2013, 33(3): 546–554.
- [26] ANDERSEN K H, ARGYRIOU D N, JACKSON A J, et al. The instrument suite of the European Spallation Source [J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 2020, 957: 163402.
- [27] GUTHRIE M. Experimental methods in the physical sciences [J]. *Experimental Methods in the Physical Sciences*, 2017, 49: 637–681.
- [28] GONCHARENKO I N, MIREBEAU I, OCHIAI A. Magnetic neutron diffraction under pressures up to 43 GPa: study of the EuX and GdX compounds [J]. *Hyperfine Interactions*, 2000, 128(1/2/3): 225–244.
- [29] 惠博, 贺端威, 陆裕平, 等. 用于原位中子散射的液压对顶砧系统 [J]. *高压物理学报*, 2013, 27(4): 517–522.
HUI B, HE D W, LU Y P, et al. A hydraulic opposite anvil system for high-pressure *in-situ* neutron diffraction [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2013, 27(4): 517–522.
- [30] 史钰, 陈喜平, 谢雷, 等. 基于巴黎-爱丁堡压机的高压中子衍射技术 [J]. *物理学报*, 2019, 68(11): 116101.
SHI Y, CHEN X P, XIE L, et al. High-pressure neutron diffraction techniques based on Paris-Edinburgh press [J]. *Acta Physica Sinica*, 2019, 68(11): 116101.
- [31] MAO H K, BASSETT W A, TAKAHASHI T. Effect of pressure on crystal structure and lattice parameters of iron up to 300 kbar [J]. *Journal of Applied Physics*, 1967, 38(1): 272–276.
- [32] 房雷鸣, 陈喜平, 谢雷, 等. 吉帕压力下原位中子衍射技术及其在铁中的应用 [J]. *高压物理学报*, 2016, 30(1): 1–6.
FANG L M, CHEN X P, XIE L, et al. High pressure *in-situ* neutron diffraction under gigapascal of iron [J]. *Chinese Journal of High Pressure Physics*, 2016, 30(1): 1–6.
- [33] HU Q W, FANG L M, LI Q, et al. Enhancing the pressure limitation in large-volume Bridgman-anvil cell used for *in-situ* neutron diffraction [J]. *High Pressure Research*, 2019, 39(4): 655–665.
- [34] DEWAELE A, TORRENT M, LOUBEYRE P, et al. Compression curves of transition metals in the Mbar range: experiments and projector augmented-wave calculations [J]. *Physical Review B*, 2008, 78(10): 104102.
- [35] TANGE Y, NISHIHARA Y, TSUCHIYA T. Unified analyses for P - V - T equation of state of MgO: a solution for pressure-scale problems in high P - T experiments [J]. *Journal of Geophysical Research*, 2009, 114(B3): B03208.
- [36] MARTÍNEZ-GARCÍA D, LE GODEC Y, MÉZOUAR M, et al. Equations of state of MgO at high pressure and temperature [J]. *High Pressure Research*, 2000, 18(1/2/3/4/5/6): 339–344.
- [37] 江明全, 李欣, 房雷鸣, 等. 基于 PE 型压机中子衍射高温高压组装的优化设计与实验验证 [J]. *物理学报*, 2020, 69(22).
JIANG M Q, LI X, FANG L M, et al. Optimal design and experimental verification of high temperature and high pressure assembly of neutron diffraction based on PE type press [J]. *Acta Physica Sinica*, 2020, 69(22).
- [38] LUDL A A, BOVE L E, SAITTA A M, et al. Structural characterization of eutectic aqueous NaCl solutions under variable temperature and pressure conditions [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2015, 17(21): 14054–14063.
- [39] GIBSON R E. The calculation of the solubility of certain salts in water at high pressures from data obtained at low pressures [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 1934, 56(4): 865–870.
- [40] TROPPER P, MANNING C E. The solubility of fluorite in H_2O and H_2O -NaCl at high pressure and temperature [J]. *Chemical Geology*, 2007, 242(3/4): 299–306.
- [41] SUZUKI Y, SAWADA T, MIYASHITA S, et al. *In situ* measurements of the solubility of crystals under high pressure by an interferometric method [J]. *Review of Scientific Instruments*, 1998, 69(7): 2720–2724.
- [42] CHEN J, HU Q W, FANG L M, et al. *In situ* high-pressure measurement of crystal solubility by using neutron diffraction [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2018, 89(5): 053906.

- [43] PALMER S J P, FIELD J E, HUNTLEY J M. Deformation, strengths and strains to failure of polymer bonded explosives [J]. *Proceedings of the Royal Society A*, 1993, 440(1909): 399–419.
- [44] PALMER S J P, FIELD J E. The deformation and fracture of β -HMX [J]. *Proceedings of the Royal Society A*, 1982, 383(1785): 399–407.
- [45] GALLAGHER H G, MILLER J C, SHEEN D B, et al. Mechanical properties of β -HMX [J]. *Chemistry Central Journal*, 2015, 9: 22.
- [46] LI H, LI Y, BAI L F, et al. Acceleration of δ - to β -HMX- D_8 phase retransformation with D_2O and intergranular strain evolution in a HMX-based polymer-bonded explosive [J]. *The Journal of Physical Chemistry C*, 2019, 123(12): 6958–6964.
- [47] FITZGIBBONS T C, GUTHRIE M, XU E, et al. Benzene-derived carbon nanothreads [J]. *Nature Materials*, 2015, 14(1): 43–47.
- [48] LI X, WANG T, DUAN P, et al. Carbon nitride nanothread crystals derived from pyridine [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2018, 140(15): 4969–4972.
- [49] WILLIAMS J H, COCKCROFT J K, FITCH A N. Structure of the lowest temperature phase of the solid benzene-hexafluorobenzene adduct [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 1992, 31(12): 1655–1657.
- [50] WANG Y J, DONG X, TANG X Y, et al. Pressure-induced Diels-Alder reactions in C_6H_6 - C_6F_6 cocrystal towards graphane structure [J]. *Angewandte Chemie International Edition*, 2019, 58(5): 1468–1473.

High Pressure Neutron Diffraction Technology and Applications at CMRR

FANG Leiming¹, CHEN Xiping¹, XIE Lei¹, HE Duanwei², HU Qiwei¹, LI Xin², JIANG Mingquan²,
SUN Guang'ai¹, CHEN Bo¹, PENG Shuming¹, LI Hao¹, HAN Tiexin¹

(1. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, Sichuan, China;

2. Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, Sichuan, China)

Abstract: FENGHUANG diffractometer at CMRR is a neutron diffractometer dedicated for high pressure experiments. After updating the neutron guide and monochromator, now the neutron flux at the sample position can get increased up to $2.84 \times 10^6 \text{ ns}^{-1} \cdot \text{cm}^{-2}$. Based on the FENGHUANG diffractometer, comprehensive high pressure devices and techniques have been developed, such as gas cells, piston cylinders cell, clamp cell, PE press (VX4), opposite anvil press (HP3-1500) along with sample heating and cooling system, and the alignment system for high pressure devices. Moreover, with the modified high pressure and high temperature cell assemblies, the pressure can be up to 34 GPa while the temperature reaches 1500 °C at maximum in the angle-dispersive neutron diffraction. Recently, some scientific research have been performed, like the solubility of NaCl at high pressure, the intergranular strain evolution of HMX, and the pressure-induced polymerization. All these experimental experiences from FENGHUANG diffractometer could not only help to promote the development of high pressure techniques on neutron scattering facilities, but also contribute to the users for their high pressure studies.

Keywords: high pressure; neutron diffraction; Paris-Edinburgh press; large-volume