

台灣首座冷中子三軸散射儀－SIKA

The First Taiwanese Cold Neutron Triple-Axis Spectrometer－SIKA

吳浚銘、張烈錚

Chun-Ming Wu, Lieh-Jeng Chang

本文介紹台灣首座冷中子三軸散射儀－SIKA。中子三軸散射儀是中子非彈性散射領域中最普遍但最有用的研究工具，藉由對儀器中三軸的精確控制，它具有探測幾乎任何晶體空間群座標中的能量和動量轉換的能力。SIKA 適用於超導、磁性、低維度電子自旋、晶體場、低能量聲子色散關係、儲能材料等領域之研究。

We introduce the first Taiwanese cold neutron triple-axis spectroscopy-SIKA. Neutron triple-axis spectroscopy has been widely used in the researches of inelastic neutron scatterings, because of its versatile capabilities of probing the whole coordinates in the crystal momentum and energy space by means of precise controlling on the three axes of the instrument. SIKA can be applied on the researches such as superconductivity, magnetism, low dimensional electron spin, crystal electric field, low-energy phonon dispersion, and storage materials.

一、中子三軸散射儀簡介

伯特倫·布羅克豪斯 (Bertram Brockhous) 在 1955 年 1 月提出第一個中子三軸散射儀 (triple-axis spectroscopy) 的技術概念，並於次年在加拿大 NRX 反應爐所在地的喬克河國家實驗室 (Chalk River National Laboratories) 興建了世界第一座三軸散射儀，使中子散射技術在科學上的應用進入了一個新時代，例如可以用來直接觀測材料之激發能量，如聲子 (phonon) 與磁振子 (magnon) 等。由於中子三軸散射儀的出現，使得學術界在非彈性散射研究技術上有了長足的進步，伯特倫在 1994 年獲頒諾貝爾物理獎，以表揚他在此科學領域的卓越貢

獻。諾貝爾獎引言是這般講述的「中子三軸散射儀為凝態科學之中子散射技術與中子光譜儀發展提供了開拓性的貢獻。」

中子三軸散射儀是中子非彈性散射領域中最普遍但最有用的研究工具，藉由對儀器中三軸的精確控制，它幾乎具有探測任何晶體空間群座標中的能量和動量轉換的能力。圖 1 為三軸散射儀之基本架構圖。如圖中所示，負責探測能量和動量轉換的主要元件即為可以轉動的三根軸，分別為第一根軸的單色晶體 (monochromator)，第二根軸的樣品台與擔任第三軸的分析晶體 (analyzer)。

藉由布拉格散射原理，單色晶體用來定義出入射中子束之動量方向與大小，並篩選出所需入射能

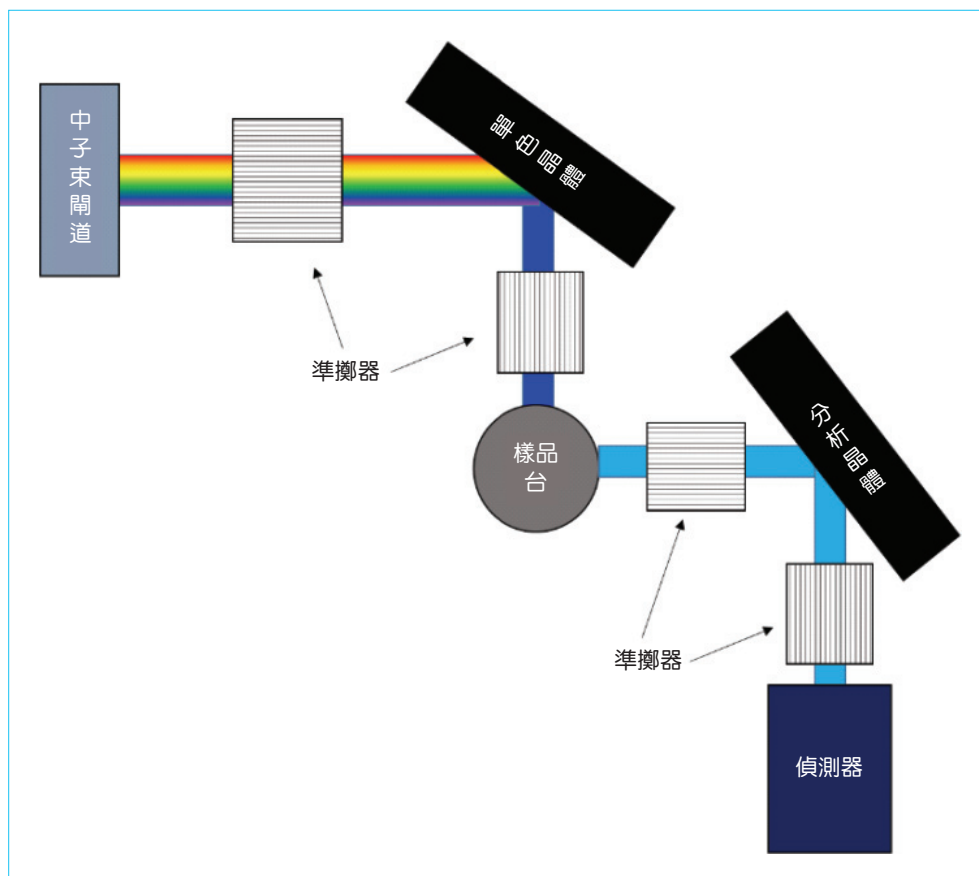


圖 1. 三軸散射儀之基本架構圖。

量之中子束。而分析晶體也以同樣的原理分析經過樣品散射後的中子訊號來構成，以動量跟能量為座標之色散關係圖，用以描述材料內散射中子之動量變化或能量變化。

中子三軸散射儀通常是屬於大型的中子能譜儀，主要是因其具有大型的單色晶體防護圍體，用以屏蔽週遭的環境與偵測器，使儀器具有最低的輻射或噪訊背景值。為了在實驗時移動樣品台，分析晶體與偵測器，此部分通常裝設有氣墊 (air pads)，以方便在光學地板 (dancing floor) 上滑動。

目前世界上主要擁有中子三軸散射儀的中子設施有美國 National Institute of Standards and Technology (NIST) 與 Oak Ridge National Laboratory (ORNL)、德國 Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz (FRM II) 與 Am Helmholtz-Zentrum Berlin für Materialien und Energie (HZB)、瑞士 Paul Scherrer Institute (PSI)、法國 Institut Laue-Langevin

(ILL) 與 LLB、澳洲 Australian Nuclear Science and Technology Organisation (ANSTO)，以及日本 Japan Research Reactor No.3 Modified (JRR-3M) 等，每年都產生豐碩的研究成果。

台灣在沒有自有中子源的情況下，依台澳中子束應用雙邊協定，在澳洲 ANSTO 的 OPAL 反應爐上建置首座完全由台灣自行設計與完成之冷中子三軸散射儀—SIKA。我們將以 SIKA 為例，來介紹中子三軸散射儀之實體結構與其科學應用。

二、SIKA 計畫的緣起

SIKA 計畫最早可以追溯至 2002 年當行政院終止「第二代台灣研究用反應爐」(即俗稱的 TRR-II) 興建計畫後，行政院國家科學委員 (為科技部前身) 為提供台灣國內學研界世界一流的中子實驗設施，隨即於 2003 年開始尋求中子源的替代方案。

在經過兩年的評估之後，於 2005 年在台灣與澳洲簽定中子束應用研究雙邊協議。在此台澳協議下，由國科會委任中央大學與在澳洲雪梨近郊的澳洲核子與科學技術組織 (Australian Nuclear Science and Technology Organization, ANSTO) 簽定服務契約 (Service Agreement) 後，即開始了台灣第一座冷中子三軸散射儀—SIKA 的興建計畫。

SIKA 計畫之設計與建造階段是委由當時中央大學中子束應用研究中心李文献教授負責。在 2012 年 10 月 SIKA 完成了建置工程與冷中子試車成功後，於 2013 年國家同步輻射研究中心奉國科會交辦之指示，承接後續之熱中子試車與後續的運轉及維護工作、協助國內各領域研究團隊前往澳洲 ANSTO 及世界其他中子設施進行中子散射實驗，並執行用戶培育及中子束應用研究推廣業務。此協議的進行讓台灣與國際的用戶群能利用 SIKA 進行頂尖的中子研究，並藉此增進與全世界中子設施的合作，以及參與國際中子研究機構組織的機會。SIKA 於 2015 年上半年已順利地取得運轉執照，2015 年的下半年將正式開放研究使用，以服務台灣的用戶，期待在不久的將來能成功地提升台灣中子研究團隊的研究能量。

三、SIKA之儀器特色

SIKA 三軸中子譜儀使用了非彈性中子散射技術來測量材料中的激發能量。這個技術建構了晶體材料在動力學特性上更深入的資料。測量激發光譜的理論分析提供了原子與原子間相互作用的資料，像是原子間電子自旋 (spin) 作用力，或是磁離子磁矩之間的相互作用。

由於 SIKA 裝配有大反射面積 $230 \times 252 \text{ mm}^2$ 之石墨單色晶體，能提供高強度冷中子束 (低能量)，因而可以得到高解析度中子能量的變化，例如原子晶格的振盪激發 (聲子)、電子自旋體系內的集體激發 (磁振子)、離子電場中磁性離子的激發 (晶場分裂)、分子晶體中的原子擴散或旋轉運動。與美國 NIST 的熱中子三軸散射儀 BT7 一樣，SIKA 配備有 13 根 $20 \times 150 \text{ mm}^2$ 之石墨分析體，多種氦-3 單偵測器 (^3He single detector) 模組，位置

敏感型多偵測器 (PSD)。可獨立運作的分析晶體，搭配多元化的偵測器配置，讓 SIKA 除了可以執行傳統三軸散射儀的所有模式之外，其多模式運作功能，可指定多個 QE 範圍作連續掃描，或是加速實驗速度的聚焦掃描等先進非彈性三軸散射儀操作模式。

四、SIKA的結構配置

SIKA 為世界最先進之冷中子三軸散射儀，其建置於 ANSTO 之 OPAL 中子反應爐的 CG4 導管上，因此擁有高強度之中子通量。SIKA 的結構剖圖，如圖 2 所示。由中子束射線方向來看第一能譜儀的結構；SIKA 配備濾除快中子之藍寶石過濾晶體，能控制中子束大小的虛擬光源，全電腦控制之準擲選擇器，全自動隨不同能量而調控大小之單色晶體前閘道，與最重要具有雙聚焦功能的高指向性單色晶體。

在樣品桌的設計上，SIKA 擁有 7 個可動軸之樣品台設計，可提供樣品作 X-Y 傾角 (tilting)，X-Y 位移 (translation)，高度 (Z 軸)，超過 360 之旋轉角度 (ω) 與超過 ± 110 。散射角度 (2θ) 之控制條件。SIKA 的第二能譜儀內部結構如圖 3 所示。

為了配合各式各樣的研究需求，SIKA 配置了傳統三軸散射儀之單偵測器 (single detector)，負責接收經過分析晶體後的中子訊號，以執行傳統的非彈性散射實驗。而繞射偵測器 (diffraction detector) 則可以執行一般繞射儀之實驗外，並擁有較單偵測器之彈性模式 (elastic mode) 高出 1 個數量級之訊號強度，可以大大地減少掃描時間或實驗樣品的量。

另外，藉由 13 根分析晶體與位置敏感型偵測器的配置，SIKA 可以達成各種不同的分光或聚焦模式，可以執行 Flat mode，monochromatic point to point mode，multiplexing 或是 focusing mode 等不同操作模式，來搭配不同的實驗需求而作設定。

五、SIKA的性能

SIKA 擁有 53 平方公尺之大面積之光學地

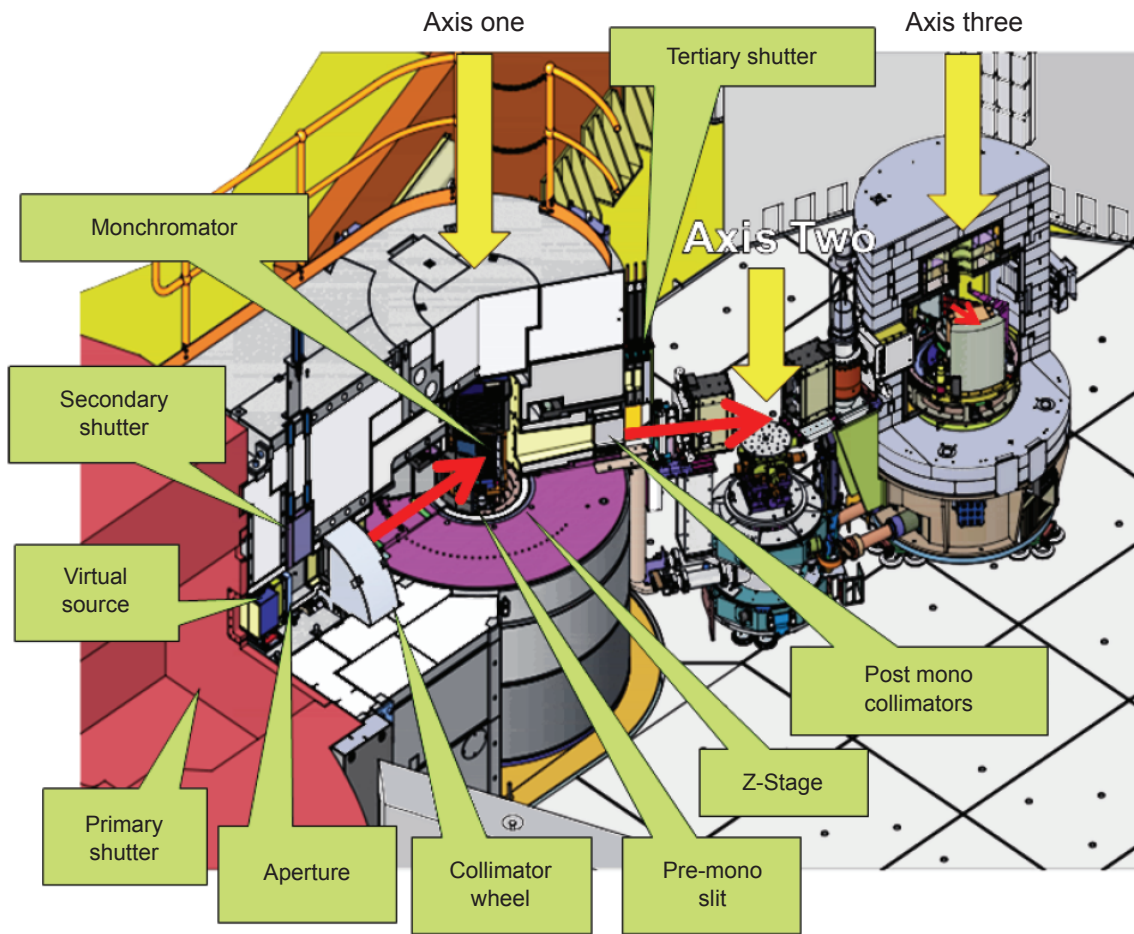


圖 2. SIKA 結構剖圖。

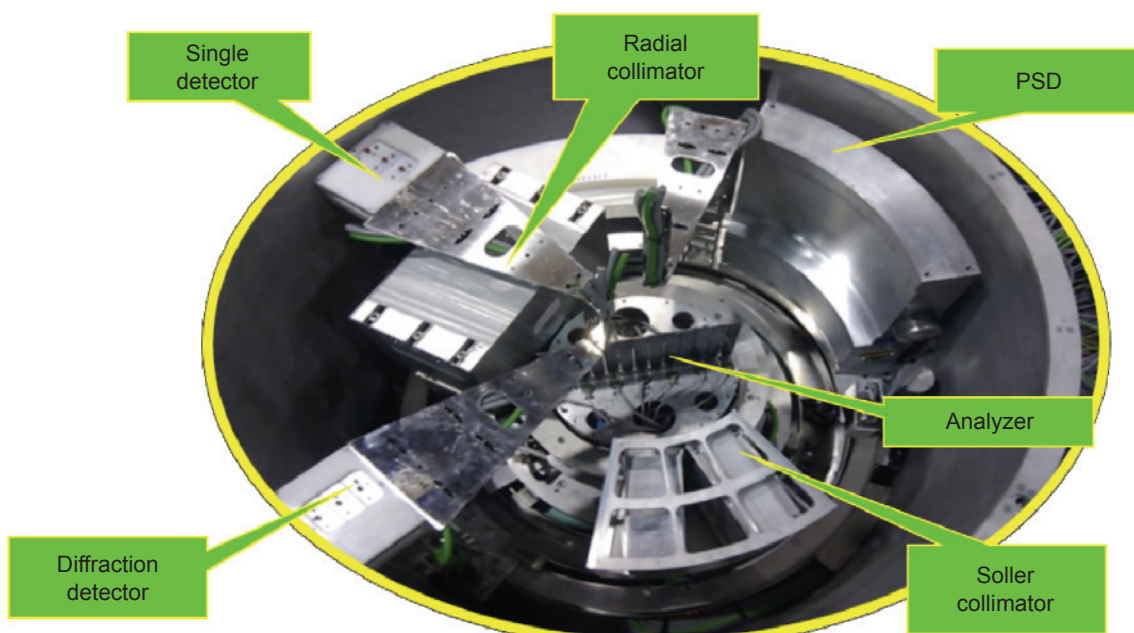


圖 3. SIKA 之第二能譜儀內部結構由分析晶體，準擲器與各種中子偵測器所構成。

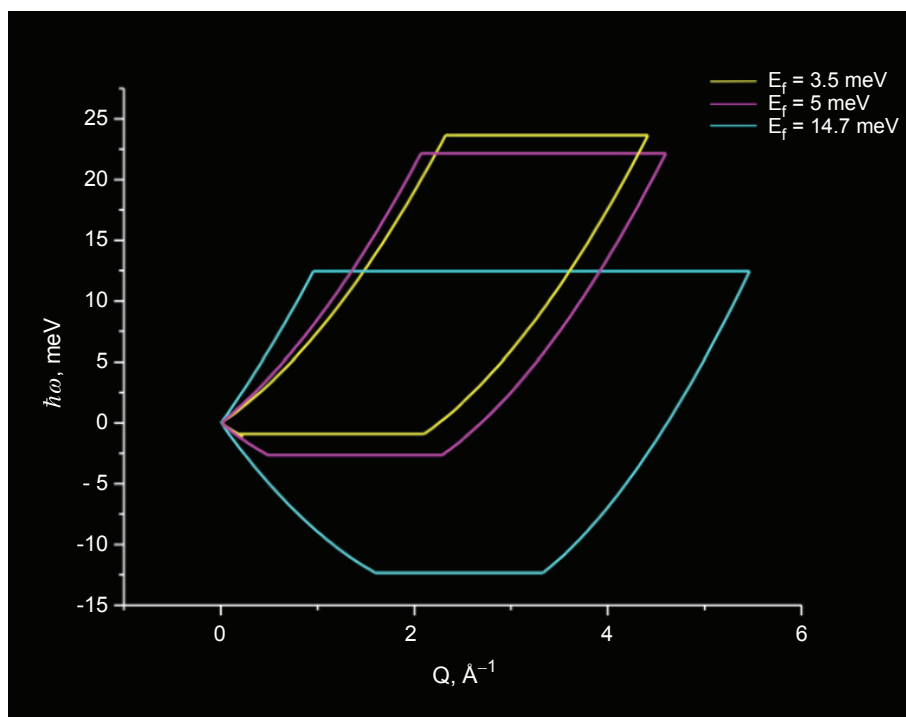


圖 4. SIKA 之動量與能量偵測包絡圖。

板，因此相較世界上其他之冷中子三軸散射儀，SIKA 的 Q-E 範圍 (如圖 4 所示) 相當的大，在搭配 PG 過濾晶體以 $E_f = 14.87$ meV 設定下，SIKA 可以量測 ± 14 meV 之能量變化 (energy transfer) 與最大 5.8 \AA^{-1} 之動量變化 (momentum transfer)，在搭配鈹過濾晶體時，可以在高能量解析度模式下量測超過 20 meV 之能量變化與最大 4.5 \AA^{-1} 之動量變化。

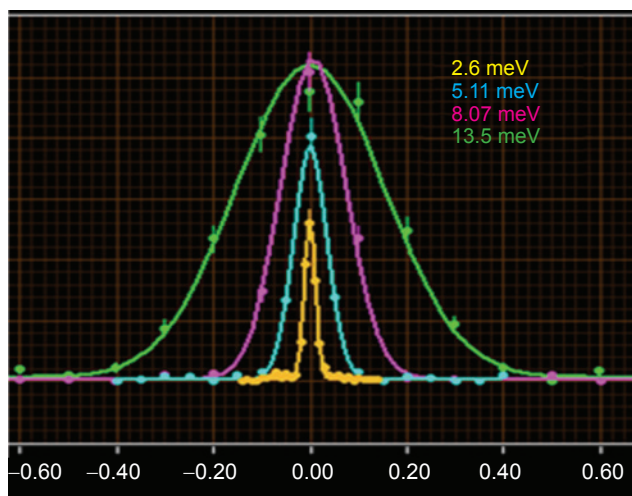


圖 5. SIKA 在各個能量下的能量解析度。

SIKA 之中子通量經由金箔測試法直接量測，在單色晶體無聚焦之設定下，於樣品位置測得 $5.66 \times 10^6 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ 之絕對中子通量，與最初設計時的模擬數值相符，其數值優於與世界最佳的冷三軸中子散射儀之一 PANDA (其位於德國慕尼黑的 FRM II)。

如圖 5 所示，SIKA 擁有極佳之能量解析度，最高能量解析度可達 27.5 eV，在相同儀器設定條件下 ($E_f = 5$ meV)，SIKA 擁有 0.085 meV 之能量解析度，也較 PANDA 之 0.12 meV 解析度為佳。

六、SIKA 的近況

SIKA 於 2014 年 1 月成功地獲得第一張 Nickel 粉末繞射圖譜 (如圖 6 所示) 後，緊接在一個星期後又成功地獲得了 PrFeO_3 非彈性散射圖譜 (圖 7)。在歷經光學地板之修復工程後隨即在 2014 年第 2 季成功地量測出鉛單晶在室溫下的聲子色散圖譜 (圖 8)，緊接著在 2014 年第 3 季成功地捕獲鋰離子在鋰電池臨場充放電下於電極間的遷移過程圖譜 (圖 9)。

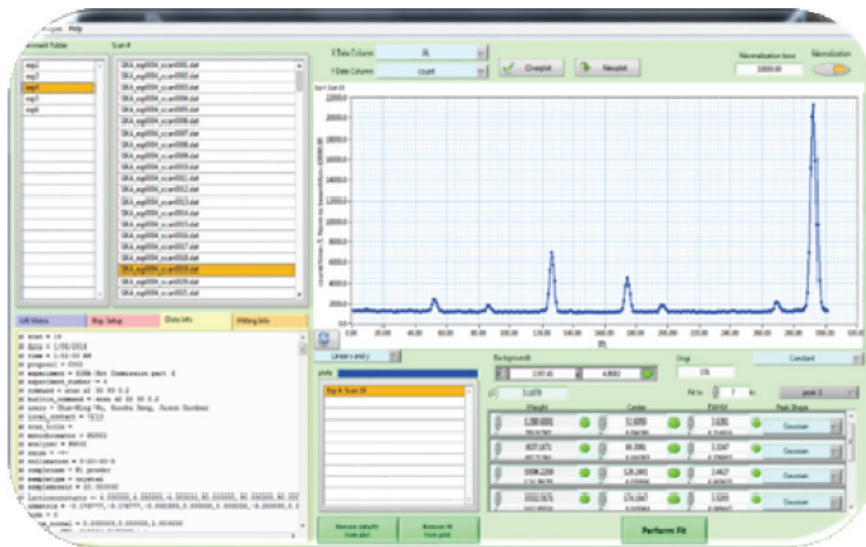


圖 6. SIKA 首次量測到之鎳金屬粉末繞射圖譜。

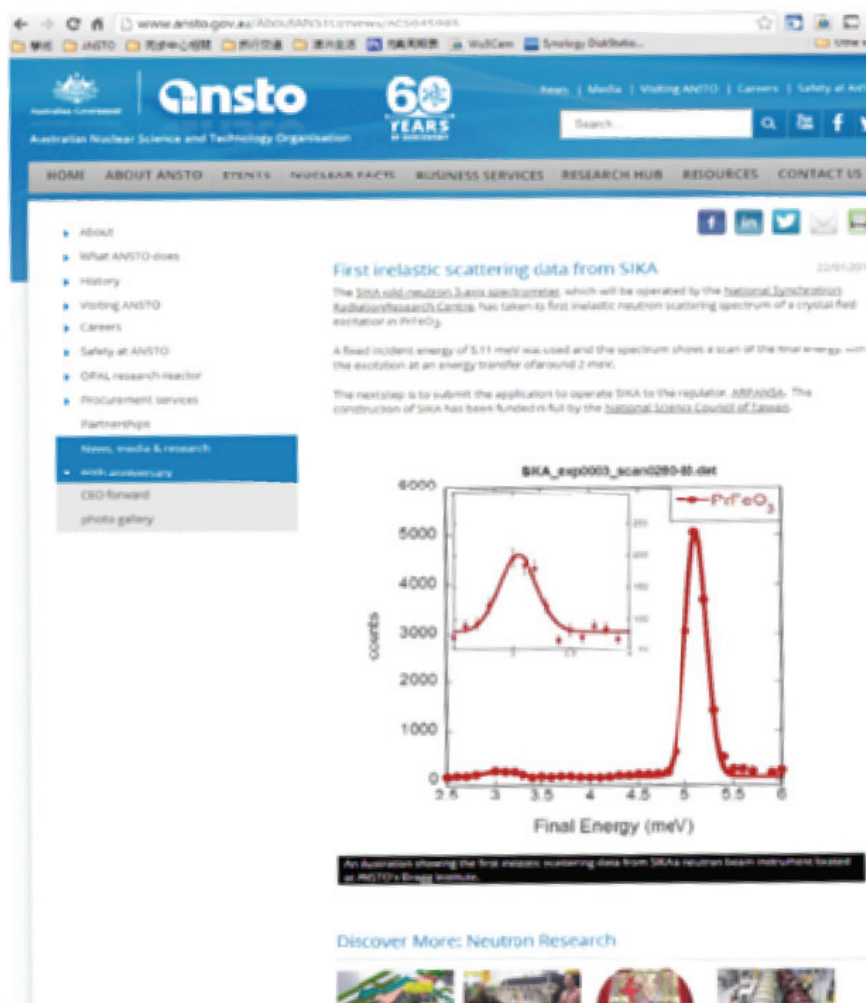


圖 7. SIKA 第一張非彈性實驗結果於 ANSTO 網站 Highlight。

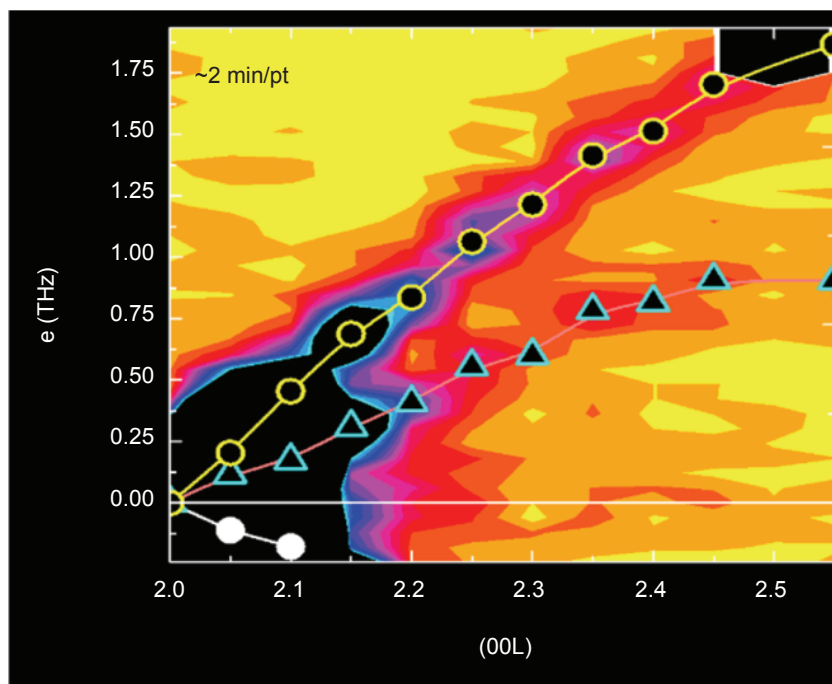


圖 8. SIKA 量測之室溫下的鉛單晶樣品之聲子色散關係圖。

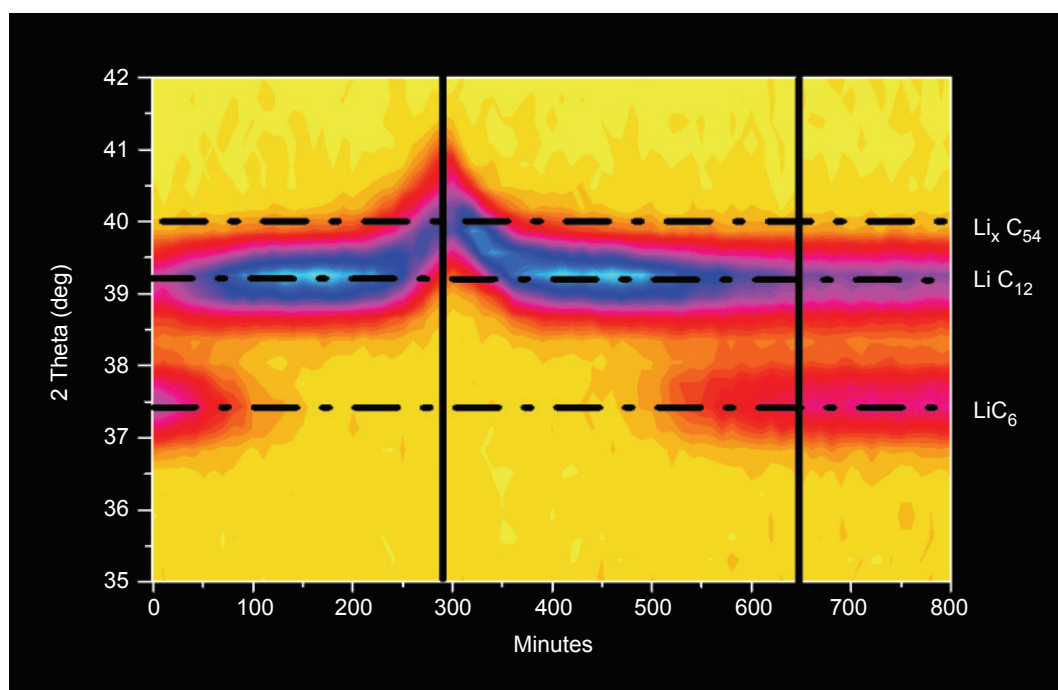


圖 9. SIKA 捕獲商用標準鋰電池在臨場充放電下之鋰離子在電極間的遷移過程光譜圖。

七、結語

SIKA 適用於超導、磁性、低維度電子自旋、晶體場、低能量聲子色散關係與儲能材料等領域之研究，已在過去一年間的成功測試結果所顯示。因此於 2015 年 2 月開始開放用戶試用計畫 (Friendly User Program)，讓首批的台灣用戶參與 SIKA 之測試。此外，SIKA 亦加入 ANSTO 之 2015 年下半年之實驗期程，正式開始服務國內外之用戶。

參考文獻

1. B. N. Brockhouse, *In Inelastic Neutron Scattering in Solids and Liquids*, International Atomic Energy Agency, 113 (1961).
2. G. Shirane, S. M. Shapiro, and J. M. Tranquada, *Neutron Scattering with a Triple-Axis Spectrometer: Basic Techniques*, Cambridge University Press, 1st edition (2006)
3. J. W. Lynn, Y. Chen, S. Chang, Y. Zhao, S. Chi, W. Ratcliff II, B. G. Ueland, and R. W. Erwin, *Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology*, 117 (2012)
4. A. S Chneidewind, P. L. Ink, D. E. Tzendorf, O. S. Tockert, and M. Lowenhaupt, *Scientific Reviews*, 18 (2007)
5. *The Nobel Prize in Physics 1994*, http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/1994/



吳浚銘先生為輔仁大學化學博士，現任同步輻射駐澳冷中子三軸散射儀之儀器科學家。

Chun-Ming Wu received his Ph.D in chemistry from Fu-Jen Catholic University. He is currently the instrument scientist of cold neutron triple-axis spectrometer-Sika, which is located in Australia and operated by National Synchrotron Radiation Research Center.



張烈錚先生為英國華威大學物理博士，現任國立成功大學物理系副教授，同時也是日本東京大學物性研究所中子科學實驗室訪問教授。

Lieh-Jeng Chang received his Ph.D in physics from University of Warwick, UK. He is currently an associate professor in the Department of Physics at National Cheng Kung University, and also a visiting professor at Neutron Science Laboratory, The Institute of Solid State Physics, The University of Tokyo, Japan.