La spectroscopie neutronique à écho de spin à champ nul ou par résonance

S. Longeville

Technische Universität München, Physik Department, James Franck Strasse, 85748 Garching, Germany, and Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS, CE Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette cedex, France

Résumé. Ce cours présente un nouveau type de spectromètre à écho de spin, baptisé écho de spin par résonance, directement inspiré de la résonance magnétique nucléaire. Dans une première partie, nous rappelons la notion d'écho de spin et son application à la spectrométrie de haute résolution. Puis nous présentons les principes théoriques du spectromètre à écho de spin par résonance. Le spectromètre G1bis au laboratoire Léon Brillouin sert d'exemple aux performances de cette technique. Celle-ci est ensuite illustrée par quelques exemples d'expériences.

1. INTRODUCTION

Le principe de l'écho de spin en spectrométrie neutronique à haute résolution a été introduit par F. Mezei en 1972 [1][2]. Près de quinze ans plus tard, R. Gähler et R. Golub ont proposé dans une série de publications [3] [4][5] un nouveau schéma de spectromètre appelé « Neutron Resonance Spin Echo » (NRSE) ou « Zero Field Neutron Spin Echo ». Dans ce type de spectromètre, l'écho de spin n'est plus produit par des bobines à forts champs magnétiques statiques, mais par des bobines radiofréquences directement inspirées de la résonance magnétique nucléaire. Elles utilisent le principe de la résonance pour effectuer un déphasage, puis un rephasage des spins des neutrons (Neutron Resonance Spin Echo). Entre ces bobines, le champ magnétique devant idéalement être nul, on parle également de spectrométrie neutronique à champ nul. Le principe a été testé expérimentalement par D. Dubbers [6] ; Plusieurs spectromètres ont ensuite été construits, au Hahn-Meitner Institut de Berlin [7] tout d'abord, puis sur le guide G1bis du réacteur Orphée du Laboratoire Léon Brillouin (LLB), à Saclay [8]. Un autre spectromètre est actuellement en cours de construction à Munich, sur le nouveau réacteur FRM II de Garching. Après en avoir introduit les principes théoriques, nous décrirons les performances du spectromètre G1bis du réacteur Orphée du LLB (configuration NRSE) construit ces dernières années en collaboration entre le LLB et la Technische Universität de Munich, puis nous montrerons quelques exemples de mesures.

2. RAPPEL DE LA NOTION D'ECHO DE SPIN, APPLICATION A LA SPECTROMETRIE HAUTE RESOLUTION

2.1 Généralités, spécificité

Le principe de la technique est d'utiliser le spin $\frac{1}{2}$ du neutron comme «horloge» permettant de mesurer les changements de vitesse des neutrons lors d'un processus de diffusion. Cette technique permet de sonder directement les changements de vitesse de chaque neutron, et non comme dans les techniques plus «traditionnelles» de mesurer la diffusion inélastique des neutrons par deux spectromètres distincts : un spectromètre primaire servant à la monochromatisation et un secondaire servant à l'analyse du faisceau diffusé. La grandeur mesurable n'est pas un temps de vol ou une longueur d'onde, mais la polarisation d'un faisceau, grandeur macroscopique résultant directement des contributions individuelles de chaque neutron. Enfin, une grande spécificité de cette technique est de mesurer non pas la fonction de diffusion $S(Q, \omega)$, mais la fonction intermédiaire, $I(Q, t)$, ou plus exactement, l'intégrale sur λ du produit de la transformée de Fourier de $S(Q, \omega)$ par $f(\lambda)$, où $f(\lambda)$ est la distribution en longueur d'onde du faisceau incident.

2.2 Notion d'écho de spin

Lorsqu'une particule de spin $\frac{1}{2}$ est plongée dans un champ magnétique, la projection du moment de spin suivant l'axe du champ ne peut prendre que deux valeurs discrètes, représentées par deux états $|+\rangle$ et $|-\rangle$ (up et down). Un faisceau de neutrons polarisé est un faisceau dont toutes les projections des composantes de spin suivant une direction donnée sont identiques. Supposons qu'à un temps $t=0$ un faisceau polarisé suivant une direction x soit soumis à un champ magnétique statique B_0 , orienté dans la direction z . Une force perpendiculaire au plan formé par le moment magnétique de spin et le champ B_0 l'entraîne dans un mouvement de précession ayant pour pulsation angulaire la pulsation de Larmor $\omega_0 = -\gamma B_0$, ou γ est le rapport gyromagnétique du neutron, $\gamma = -2913.2\pi \text{ G}^{-1} \text{ s}^{-1}$ [9]. S'il est soumis à B_0 durant un temps t , le spin effectue donc un nombre de précessions $N = \omega_0 t / 2\pi$.

Le principe de l'écho de spin est, dans sa configuration la plus simple, présenté sur la figure 1.

Figure 1 : Principe de l'écho de spin, évolution spatiale de la polarisation (figure d'après M. Bée).

Le faisceau de neutrons, polarisé suivant $\mathbf{x}$, traverse alternativement deux bobines dont les champs magnétiques ont des directions identiques ($\mathbf{z}$) mais dont les sens sont opposés. Si les champs ont même intensité, et les bobines même géométrie, alors les nombres de précessions opérées par chaque neutron dans les deux parties sont identiques mais de sens contraire. En d'autres termes, un neutron arrivant à l'entrée de la première bobine et dont le spin est orienté suivant l'axe $\mathbf{x}$ sortira de la deuxième bobine également polarisé suivant $\mathbf{x}$. Entre temps il aura effectué dans chaque bobine un nombre de précessions N_λ , directement proportionnel au temps durant lequel il aura été soumis à chaque champ magnétique*, c'est à dire en appliquant la formule de de Broglie, proportionnel à sa longueur d'onde λ :

$$N_\lambda = \frac{\omega_0 t}{2\pi} = \frac{\omega_0 l}{2\pi v} = \frac{\omega_0 l m \lambda}{2\pi h} \quad (1)$$

l longueur d'une bobine
 m masse d'un neutron

En théorie, on peut réaliser un écho en utilisant un faisceau polychromatique, puisque même si le nombre de précessions effectuées par chacun des spins est différent et proportionnel à la longueur d'onde de «son» neutron ils auront tous même phase à la sortie des bobines s'ils avaient même phase à l'entrée.

La grandeur mesurée est la polarisation suivant une direction donnée [10]. C'est fonction de la moyenne sur tout le faisceau de la projection des spins suivant l'axe considéré, et est définie [11] comme le rapport

$$P = \frac{N_{|+\rangle} - N_{|-\rangle}}{N_{|+\rangle} + N_{|-\rangle}} \quad (2)$$

ou $N_{|+\rangle}$ et $N_{|-\rangle}$ représentent le nombre de neutrons dont les spins sont dans les états $|+\rangle$ et $|-\rangle$

2.3 Application de l'écho de spin à la spectrométrie haute résolution

En théorie, pour réaliser un spectromètre à écho de spin, il suffit de placer un échantillon entre deux bobines 1 et 2. Si celui-ci diffuse de manière quasiélastique ou inélastique, la vitesse des neutrons dans le second bras du spectromètre sera différente de celle dans le premier bras. Pour des neutrons de longueur d'onde incidente λ_0 (et donc de vitesse v_0) on observera un étalement du spectre des vitesses dans le second bras en fonction des propriétés dynamiques de l'échantillon. Le nombre de tours effectués dans la bobine 2 sera donc différent de celui dans la bobine 1 et on observera une diminution de la polarisation du faisceau (cas de la diffusion quasiélastique). On montre facilement [12][13] (cf. Annexe 1) que dans des cas simples (diffusion quasiélastique), la polarisation peut être considérée comme proportionnelle à la fonction intermédiaire de diffusion $I(\mathbf{Q}, t)$. En théorie, la polarisation du faisceau diffusé est indépendante de la distribution en longueurs d'onde incidente lors d'un processus de diffusion élastique. Par contre, dans la pratique on est limité à une distribution de 10 à 15% autour d'une longueur d'onde λ_0 afin de pouvoir interpréter le spectre diffusé en terme de fonction intermédiaire de diffusion $I(\mathbf{Q}, t)$, lorsqu'il y a diffusion quasiélastique. Cette technique permet donc de découpler résolution et intensité du faisceau, couplage qui est par exemple, dans le cas de la spectrométrie par temps de vol «classique», la limite à la haute résolution. Le prix à payer est bien sûr une mauvaise définition du vecteur d'onde diffusé, et la nécessité de posséder un faisceau polarisé (donc un flux réduit). La figure II est une représentation schématique des spectromètres à écho de spin «classiques» tels que IN11[†], ou MESS[‡] [14]. Outre les bobines NSE, on note la présence d'un sélecteur de vitesse et de deux polariseurs dont l'un est utilisé pour la polarisation du faisceau incident (polariseur) et l'autre pour l'analyse du faisceau diffusé (analyseur).

* En réalité c'est l'intégrale du champ magnétique sur la distance qui doit être prise en compte $\int B dl$

[†] Institut Laue Langevin, Grenoble

[‡] Laboratoire Léon Brillouin, Saclay

Un «spin-flipper» $\pi/2$ sert à initialiser la précession, en orientant les spins perpendiculairement à la direction du champ, et un autre à les réorienter suivant z pour être analysés. Un détecteur est placé juste après l'analyseur, et bien sûr, un échantillon entre les deux bras. Lorsque les mesures sont effectuées à des angles de diffusion inférieurs à 90° , la configuration du spectromètre est différente [14]. Plutôt que d'inverser les sens des champs produits par les bobines, on place un « π -flipper» à proximité de l'échantillon, cette configuration a pour but une meilleure continuité des lignes de champs entre les deux bobines, l'écho étant par ailleurs atteint de manière similaire [15].

Dans la pratique, on mesure la polarisation du faisceau diffusé en faisant varier l'intensité du champ dans le second bras. On peut ainsi passer alternativement d'une valeur d'intégrale de champ correspondant à une polarisation maximum à une polarisation minimum, le rôle de l'analyseur étant de transformer la polarisation en nombre de neutrons par unité de temps. On détermine ensuite simplement la polarisation du faisceau autour du maximum de l'écho par la formule :

$$n(i) = \frac{N}{2} (1 + P \cos(i * \frac{2\pi}{L} + \varphi)) \quad (3)$$

A chaque valeur du champ correspond un temps caractéristique le «temps de spin écho» (ou temps de Fourier) τ , qui permet de sonder un point de la transformée de Fourier (en énergie) de la fonction de diffusion $S(\mathbf{Q}, \omega)$ (cf. Annexe I).

Figure 2 : Schéma de principe du spectromètre à écho de spin MESS.

3. PRINCIPE DU SPECTROMETRE A ECHO DE SPIN PAR RESONANCE (NRSE)

La figure 3 présente schématiquement un spectromètre NRSE tel qu'il a été construit au réacteur Orphée du Laboratoire Léon Brillouin. Dans cette configuration, les solénoïdes produisant les champs magnétiques statiques sont remplacés par quatre bobines radiofréquences et l'ensemble du spectromètre est protégé des champs magnétiques extérieurs par une enveloppe de métal de très forte permittivité magnétique. Cependant la «base» du spectromètre NRSE reste identique à celle du NSE.

3.1 Principe des spins flippers radiofréquences

Ces «spin-flippers» ou plus simplement bobines radiofréquences constituent le cœur de ce type de spectromètre. Ce sont ces bobines qui vont servir à réaliser un écho et qui vont contribuer pour une grande partie à déterminer les performances du spectromètre. Leur principe est directement inspiré de la résonance magnétique nucléaire (RMN). Il est d'associer simultanément l'effet de deux champs, un champ statique B_0 et un champ dépendant du temps $B_1(t)$, perpendiculaire au premier. L'effet de ces

champs sur des particules de spins 1/2 est décrit dans de nombreux ouvrages[9] ; nous n'en rappellerons ici les principes que dans un cas semi-classique. En effet, même si pour la RMN un traitement quantique (ou spectroscopique) peut sembler plus approprié à la compréhension des mécanismes, une approche classique semble plus intuitive dans le cas de la diffusion de neutrons.

Figure 3 : Schéma de principe d'un spectromètre à écho de spin par résonance.

La géométrie des champs, à l'intérieur des bobines, est représentée sur la figure 4. Pour des questions de commodité nous allons étudier le mouvement dans un référentiel tournant $R(O, \mathbf{x}, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ lié au champ $B_1(t)$. Dans ce référentiel, le mouvement peut en effet être simplement décrit par une précession des spins $\vec{S}$ autour de $B_1(t)$.

Soit
$$\vec{B}(t) = \vec{B}_0 + \vec{B}_1(t) \quad (4)$$

l'équation du mouvement s'écrit
$$\left(\frac{d\vec{S}}{dt} \right) = \gamma \vec{S} \wedge \vec{B}(t) \quad (5)$$

dans le référentiel $R(O, \mathbf{x}, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$, l'équation devient

$$\left(\frac{d\vec{S}}{dt} \right)_{\mathcal{R}} = \left(\frac{d\vec{S}}{dt} \right) - \omega \vec{e}_x \wedge \vec{S}(t) \quad (6)$$

$$\left(\frac{d\vec{S}}{dt} \right)_{\mathcal{R}} = \vec{S}(t) \wedge [(\omega - \omega_0) \vec{e}_x - \omega_1 \vec{e}_z] \quad (7)$$

ω est la vitesse angulaire du référentiel R , c'est à dire du champ radiofréquence $B_1(t)$

ω_0 , et ω_1 sont respectivement les pulsations de Larmor des champs B_0 et $B_1(t)$ soit $\omega_0 = -\gamma B_0$
 $\omega_1 = -\gamma B_1$

Figure 4 : Géométrie des champs dans les bobines de résonance.

on peut réécrire

$$\left(\frac{d\vec{S}}{dt}\right) = \gamma \vec{S} \wedge \vec{B}_R(t) \text{ avec } B_R = \frac{1}{\gamma} [\Delta\omega \vec{e}_x - \omega_1 \vec{e}_z] \quad (8)$$

Si ω et ω_0 sont identiques, $\Delta\omega = \omega - \omega_0 = 0$, on dit alors qu'il y a condition de résonance. Le champ effectif B_R vu par le moment magnétique de spin dans le référentiel tournant R est uniquement constitué d'une composante suivant $\vec{e}_z$,

$$B_R = -\frac{1}{\gamma} \omega_1 \vec{e}_z \quad (9)$$

et, toujours dans le référentiel tournant, le spin décrit simplement un mouvement de précession autour de $B_1(t)$.

La figure 5 est une représentation schématique du faisceau de neutron et d'une bobine radiofréquence, la figure 5a présente la géométrie en vue horizontale tandis que la figure 5b est une représentation latérale. Le champ statique B_0 est perpendiculaire à la direction du faisceau, suivant l'axe x, et le champ $B_1(t)$ oscille dans le plan yOz. On suppose que les spins ne sont soumis à aucun champ en dehors des bobines.

L'intensité du champ B_0 et la fréquence de rotation du champ $B_1(t)$, $\omega/2\pi$, sont déterminées de sorte que l'on soit en condition de résonance : $\omega = |\gamma| B_0$. Quant à l'intensité du champ $B_1(t)$, elle est choisie de sorte que, à la sortie de la bobine comme à l'entrée, tous les spins soient situés dans le plan horizontal yOz. Il faut donc que les spins effectuent une rotation à la fréquence de Larmor, autour du champ $B_1(t)$, d'un angle π soit :

$$\pi = \gamma B_1 \frac{d}{v} \quad (10)$$

d = épaisseur de la bobine
 v = vitesse des neutrons

On cherche à déterminer la phase des spins dans le plan yOz d'un faisceau de neutrons qui va traverser la bobine. Soit un neutron i, qui pénètre dans la bobine en A à un temps t_A et en sort en A' à un temps $t_{A'}$. Au temps t_A , son spin S_i , est déphasé d'un angle ϕ_i par rapport à l'axe y, et l'angle entre le champ magnétique $B_1(t)$ et y est ωt_A . Durant le temps de traversée de la bobine par le neutron $t = t_{A'} - t_A$, l'angle entre le champ magnétique $B_1(t)$ et l'axe x aura été modifié par la valeur ωt , soit $\omega d/v$. Soit $\phi_{A'}$ l'angle formé par le spin et l'axe y à la sortie du neutron de la bobine, si S_i a effectué une précession d'un angle π autour de B_1 on aura alors :

$$\phi_{A'} = \omega \frac{d}{v} + 2\omega t_A - \phi_A \quad (11)$$

Figure 5 : Effet d'une bobine sur un spin (a) dans le plan yOz, (b) dans le plan xOz.

3.2 Principe du spectromètre à écho de spin par résonance

Comme indiqué sur la figure de l'annexe II, un spectromètre à écho de spin par résonance est constitué d'une association de quatre bobines radiofréquences (ou $4n$ dans le cas de la technique dite des «bootstrap»[5][16]). La direction du champ statique dans les bobines est identique (verticale), mais les sens sont opposés dans les bobines du second bras par rapport à celle du premier. Dans le tableau de l'annexe II sont résumées les phases du champ magnétique B_1 ainsi que celles des spins en différents points du spectromètre. Le faisceau est supposé polarisé et l'angle entre l'axe y et l'orientation des spins arrivant sur la bobine A égal à 0° .

La condition d'écho est obtenue lorsque les spins sortant de la bobine D ont la même orientation que lorsqu'ils sont entrés dans la bobine A et ce indépendamment de leur vitesse. Cette condition est satisfaite si :

$$\frac{l_{AB} + d}{v} - \frac{l_{CD} + d}{v'} = 0 \quad (12)$$

C'est à dire dans le cas d'un processus de diffusion élastique ou quasiélastique, lorsque la distance entre les bobines C et D est identique à celle entre A et B.

La grandeur mesurée, la polarisation du faisceau suivant l'axe z est calculée de manière similaire à la NSE traditionnelle (cf. Annexe1). Soit ϕ l'angle (y, S_i) à la sortie de la bobine D, la contribution de chaque neutron est donnée par[§]:

$$\begin{aligned} P_z(\lambda, \delta\lambda) &= \cos(2\omega_f \frac{l_{AB} + d}{h} m\lambda - 2\omega_f \frac{l_{CD} + d}{h} m\lambda') \\ &= \cos(2\omega_f \frac{l_{AB} + d}{h} m\lambda - 2\omega_f \frac{l_{CD} + d}{h} m(\lambda + \delta\lambda)) \\ &\approx \cos(2\omega_f \frac{l + d}{h} m\delta\lambda) \end{aligned} \quad (13)$$

Après sommation sur tous les neutrons on obtient :

$$\langle P \rangle = \int_0^\infty I(\lambda) d\lambda \int_{-\lambda}^\infty W(\lambda, \delta\lambda) P(\lambda, \delta\lambda) \cos(2\omega_f \frac{l + d}{h} m\delta\lambda) d\delta\lambda \quad (14)$$

$I(\lambda)$ = distribution en longueur d'onde du faisceau incident

$W(\lambda, \delta\lambda)$ = fonction de transmission du spectromètre

$P(\lambda, \delta\lambda)$ = probabilité d'un processus de diffusion avec longueur d'onde incidente λ et de transfert $\delta\lambda$

Soit, dans le cas d'une approximation quasiélastique, et en prenant $W(\lambda, \delta\lambda) = 1$ sur l'intervalle considéré on obtient

$$\langle P \rangle \cong \int_0^\infty I(\lambda) d\lambda \int_{-\infty}^\infty S(Q, \omega) \cos(\omega \tau_{NRSE}) d\omega \quad (15)$$

$$\text{avec } \tau_{NRSE} = 2\omega_f \frac{l + d}{2\pi} \frac{m^2}{h^2} \lambda^3 \quad (16)$$

[§] on suppose $l_{AB} \approx l_{CD}$, ce qui est le cas pour la diffusion quasiélastique ($l_{AB} \approx l_{CD} \approx 2$, $l_{AB} - l_{CD} \approx 0.005$)

4. LE SPECTROMETRE MuSES DU REACTEUR ORPHEE DU LLB

4.1 Description

Le spectromètre MuSES est installé sur le guide G₁bis du réacteur Orphée (P=14 MW). Il a été construit en collaboration entre le LLB et le département de physique de l'université de Munich (Groupes de W. Petry et R. Gähler)*.

Le faisceau de neutrons est polarisé par une section du guide équipée de miroir polarisant [17]. Le flux intégré en sortie du guide est d'environ $9.4 \cdot 10^8$ neutrons $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (mesuré par activation à la feuille d'or et non corrigé des absorptions différentielles). La figure 6 donne un schéma de principe du spectromètre.

Le spectromètre est constitué de deux parties distinctes, un spectromètre NSE «conventionnel» qui permet de mesurer les faibles temps de Fourier τ et un spectromètre NRSE pour les valeurs de τ les plus élevées.

Le sélecteur de vitesse délivre un faisceau «monochromatique» entre 3.5 Å et 14 Å avec un $\Delta\lambda/\lambda$ de l'ordre de 15%. Le flux est élevé, il atteint par exemple la valeur de $2 \cdot 10^7$ neutrons polarisés par seconde à 4.8 Å sur l'échantillon, le maximum de la distribution étant situé entre 5 et 6 Å. La distance entre les bobines radiofréquences (BRF) dans chaque bras est variable, une distance de $l=1,8$ m est choisie pour la plupart des mesures, leur épaisseur est de $d=8$ cm et elles sont montées en géométrie «bootstrap» (ce qui a pour effet de doubler les temps accessibles). A l'intérieur de chaque bras (entre les BRF) un guide a été installé, d'angle de réflexion limite de $\sim 0.7 \theta_c^{Ni}$.

Figure 6 : Schéma de principe du spectromètre G₁bis.

4.2 Performances du spectromètre

4.2.1 Domaine de temps accessible, définition du champ effectif

On peut à partir des formules (I-5) et (16) définissant les temps d'écho de spin (ou de Fourier) pour les principes NSE et NRSE introduire la notion de champ effectif qui permet de comparer les performances des deux types de spectromètres.

$$\tau_{NSE} = \frac{m^2}{h^2} \frac{\gamma BL}{2\pi} \lambda^3 \quad \text{et} \quad \tau_{NRSE} = \frac{m^2}{h^2} \frac{\gamma B_{eff} L}{2\pi} \lambda^3 \quad (17)$$

on obtient ainsi $B_{eff} = 2 \frac{\omega_f}{\gamma}$ ou $B_{eff} = 4 \frac{\omega_f}{\gamma}$ dans le cas du NRSE avec «bootstrap»

La fréquence maximale d'utilisation des BRF est, dans l'état actuel des développements, d'environ 640kHz. Ce qui correspond à un champ effectif équivalent à un spectromètre NSE, de l'ordre de 900 Gauss.

La figure 7 présente en coordonnées λ , τ les possibilités de MuSES. Comme tout type de spin écho, c'est la dépendance en λ^3 qui induit une diminution drastique du domaine de temps accessible pour les faibles longueurs d'ondes.

Figure 7 : Temps de Fourier maximum du spectromètre G₁bis en fonction de la longueur d'onde, pour une distance entre les bobines RF de $l=1.8\text{m}$

Cette dépendance, moyennée sur la distribution relativement large en longueur d'onde du faisceau incident ($\Delta\lambda/\lambda \approx 15\%$) induit une forte incertitude sur la définition du temps d'écho de spin τ . Une incertitude supplémentaire est présente en NSE, c'est la définition de l'intégrale $\int B dl$. Dans le cas du NRSE, la fréquence de rotation du champ tournant est donnée avec une très grande précision par les générateurs, cette incertitude n'existe donc pas.

4.2.2 Polarisation et isolation magnétique

Entre les bobines radiofréquences, toute modification de la phase des spins va avoir pour effet de faire chuter la polarisation. On va donc chercher à isoler le spectromètre de toute «contamination magnétique» extérieure. Un calcul de l'angle précessé par un spin lorsqu'il est soumis au champ magnétique terrestre sur une distance identique à celle du spectromètre permet de montrer l'ampleur du problème. Soit ϕ l'angle de précession, il est défini par $\phi = \gamma B l / \nu$. Pour des neutrons de longueur d'onde λ , soumis à un champ B sur une distance l, on obtient $\phi = 4.63 B(G) \cdot l(m) \cdot \lambda(\text{\AA})$, ce qui signifie que pour une distance de 4 mètres, le simple effet du champ terrestre sera de déphaser les spins ~ 20 à 40 radians. Même si ce n'est bien sûr que le déphasage relatif des spins qui est le facteur pertinent, avec la forte distribution en longueur d'onde du faisceau utilisé une telle valeur est incompatible avec toute mesure par écho de spin. Néanmoins toutes les contaminations magnétiques n'ont pas le même effet sur la perte de polarisation du faisceau, qui dépend de la direction du champ par rapport au plan de précession des spins.

L'isolation est effectuée par construction d'une enveloppe de métal ayant une très forte permittivité magnétique autour du spectromètre. Ce μ -métal va guider les lignes de champ et par conséquent servir d'écran magnétique. On arrive ainsi, avec l'aide supplémentaire de quelques champs compensatoires, à réduire l'intensité du champ entre les bobines à des valeurs de l'ordre de 1 à 2 mG et inférieures à 10 mG dans la zone de l'échantillon ce qui rend les mesures tout à fait réalisables.

D'autres facteurs contribuent à une diminution de la polarisation :

- les guides, polariseur et analyseur
- la distribution en longueur d'onde du faisceau ($\Delta\lambda/\lambda \sim 0.15$), induit une distribution des π -flips au niveau des bobines de résonance.
- les différents champs de fuites provenant des bobines radiofréquence.

4.2.3 Résolution et Intensité

Le rapport résolution sur intensité résulte toujours d'un compromis. Malgré le fait que, intrinsèquement, la technique d'écho de spin permet un découplage entre ces deux grandeurs, on est lors de la construction d'un spectromètre obligé d'effectuer des choix. On peut par exemple, chercher à augmenter les distances entre les flippers $\pi/2$ et l'échantillon pour favoriser la résolution (gamme de temps de Fourier accessible), ce qui induit nécessairement, par le simple rapport des angles solides détectés une diminution de l'intensité. Cette option a été celle adoptée pour la construction de MESS au LLB, ce spectromètre est particulièrement adapté à des mesures aux petits angles où l'intensité résultant de processus de diffusion cohérents peut être très élevée. D'autres spectromètres comme IN11 ont été construits dans un but intermédiaire, réduisant le maximum du temps de Fourier afin de favoriser l'intensité.

Deux propriétés sont spécifiques aux NRSE :

- La géométrie de ce type de configuration autorisant une plus grande compacité que dans le cas NSE, le flux transmis est plus important. La simple dépendance en $1/r^2$ du flux en fonction de la distance, permet facilement de gagner un facteur 2.
- La résolution est totalement indépendante de l'angle de diffusion, ceci est dû à l'absence de champ induit par les bobines radiofréquences, contrairement à leur équivalent NSE.

Dans l'état actuel du spectromètre G₁bis la polarisation pour la fréquence la plus élevée n'est que de ~ 0.3 , mais elle augmente très vite lorsque la fréquence diminue :

$$P \approx 0.3 \text{ pour } 452 \text{ kHz, } \lambda = 4.8 \text{ \AA, temps de spin écho } \tau = 2.5 \text{ ns.}$$

$$P \approx 0.65 \text{ pour } 320 \text{ kHz, } \lambda = 4.8 \text{ \AA, temps de spin écho } \tau = 1.8 \text{ ns.}$$

5. EXEMPLE DE MESURES

5.1 Diffusion cohérente et incohérente

Les longueurs de diffusion atomiques sont dépendantes de l'isotope considéré et de l'état de spin de son noyau. Pour un même élément, constitué d'atomes chimiquement non différenciables, les longueurs de diffusion peuvent donc varier très fortement. La diffusion est donc séparée en deux types de processus, la diffusion cohérente et incohérente. La diffusion cohérente sonde la transformée de Fourier de la fonction de corrélation de paire pondérée par la moyenne des longueurs de diffusion. La diffusion incohérente est quant à elle, proportionnelle à la transformée de Fourier du produit de la fonction d'auto-corrélation par l'écart type des longueurs de diffusion. Elle peut elle-même être séparée en diffusion incohérente isotopique et diffusion incohérente de spin. Rappelons que les distributions isotopiques et d'état de spin nucléaire sont respectivement à l'origine de la distribution des longueurs de diffusion.

$$S^{coh}(Q, \omega) \sim \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} dt \sum_{i,j} \left\langle b_i^c b_j^c e^{-iQr_i(0)} e^{iQr_j(t)} \right\rangle \quad (18)$$

$$S^{Inc}(Q, \omega) \sim \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\omega t} dt \sum_i \left\langle b_i^{inc2} e^{-iQr_i(0)} e^{iQr_i(t)} \right\rangle \quad (19)$$

On peut montrer, par le calcul des opérateurs de diffusion [18], que les processus de diffusion cohérent et incohérent isotopique se font toujours avec conservation de l'état de spin du neutron $|+\rangle \rightarrow |+\rangle$ et $|-\rangle \rightarrow |-\rangle$, les probabilités $|+\rangle \rightarrow |-\rangle$ et $|-\rangle \rightarrow |+\rangle$ étant nulles. La diffusion incohérente de spin se fait quant à elle pour 1/3 avec conservation de l'état de spin et pour 2/3 avec π -flip ($|+\rangle \rightarrow |-\rangle$ et $|-\rangle \rightarrow |+\rangle$), la polarisation lors d'un tel processus sera donc négative et d'intensité 3 fois plus faible que lors des processus cohérent et incohérent isotopique : soit $P = -1/3$.

On va donc en général chercher à faire des mesures par écho de spin sur des échantillons dont les longueurs de diffusion sont principalement cohérentes. Une mesure à qualité équivalente d'un processus de diffusion incohérent nécessitera 9 fois plus de temps. Le pire étant bien sûr un mélange de processus cohérent-incohérent qui annulerait la polarisation.

5.2 Un standard, le quartz à température ambiante

Le quartz est utilisé comme standard pour la résolution (Polarisation en fonction de τ) lorsque l'on réalise des mesures à relativement grand vecteur d'onde. C'est en effet un verre qui diffuse de manière cohérente, (les sections efficaces sont en barn de $\sigma_{Si}^{coh} = 2.163$, $\sigma_O^{coh} = 4.235$, $\sigma_{Si}^{Incoh} = 0.019$, $\sigma_O^{Incoh} = 0$) avec une forte intensité dans le domaine $1-2 \text{ \AA}^{-1}$ (correspondant approximativement au maximum du facteur de structure). Sa température de transition vitreuse¹⁹ (T_g) est extrêmement élevée, de sorte qu'il apparaît comme un diffuseur totalement élastique dans la fenêtre du spin-écho à température ambiante. Contrairement aux autres techniques à haute résolution (en particulier les techniques de temps de vol), la résolution de l'écho de spin n'est que peu dépendante de la géométrie de l'échantillon, on peut donc utiliser une géométrie pour un standard légèrement différente de celle de l'échantillon à mesurer. La diffusion multiple ne perturbant pas la mesure de la résolution, les mesures ont été effectuées sur un échantillon parallélépipédique de 1 cm d'épaisseur couvrant approximativement la surface du faisceau. Le nombre de neutrons comptés sur le détecteur est d'environ 180 par seconde (somme sur les deux polarisations) pour $\lambda=5.8 \text{ \AA}$, $2\theta=90^\circ$ ($Q \sim 1.5 \text{ \AA}^{-1}$) et 130 pour $\lambda=4.8 \text{ \AA}$, $2\theta=100^\circ$ ($Q \sim 2 \text{ \AA}^{-1}$). La figure 8 représente typiquement un écho obtenu pour une fréquence de 226kHz, correspondant à un temps de spin écho de 633 ps pour $\lambda=4.8 \text{ \AA}$.

Figure 8 : Echo de spin obtenu sur un échantillon de quartz : spectromètre G₁bis avec $\omega/2\pi=226\text{kHz}$, $\lambda=4.8 \text{ \AA}$, $\tau=633$ ps.

5.3 Etude du mécanisme de la relaxation α d'un verre ionique CRN ($\text{Ca}[(\text{NO}_3)_2]_{0.4}[\text{RbNO}_3]_{0.6}$) par écho de spin²⁰

Vers le milieu des années 1980, la compréhension des mécanismes de la transition liquide-verre a fortement progressé par l'introduction des théories dites du couplage de mode. Ces théories prenant en compte les couplages non-linéaires des fluctuations de densité dans des liquides simples ont en effet réussi à prédire une transition d'un régime ergodique vers un régime non-ergodique pour des temps mesoscopiques.

La quantité fondamentale émanant de ces théories et servant à la description des phénomènes relatifs à la transition vitreuse est la fonction de corrélation de densité $\Phi_q(t)$. De nombreuses études expérimentales ont été menées sur différents systèmes par des techniques permettant de sonder cette quantité. La diffusion de la lumière, sensible aux fluctuations du tenseur diélectrique, permet de sonder les fluctuations de densité pour des vecteurs d'onde correspondant à la longueur d'onde de la radiation utilisée ($\lambda \approx 5000 \text{ \AA}$). Par des mesures diélectriques, grandeurs macroscopiques, on peut accéder à la susceptibilité diélectrique pour $Q=0$. La technique certainement la plus riche dans ce type de problème est la diffusion de neutrons puisqu'elle permet de mesurer une quantité proche de la fonction de corrélation des fluctuations de densité $\Phi_q(t)$ pour différents vecteurs d'ondes Q . Cela se fait, soit directement par la fonction intermédiaire de diffusion $I(Q,t)$ qui est une mesure des fluctuations de densité pondérées en diffusion cohérente (et/ou incohérente) obtenue par écho de spin, soit par d'autres techniques telles que

les mesures par spectrométrie à temps de vol qui permettent d'accéder à la transformée de Fourier temporelle de $I(\mathbf{Q}, t)$, $S(\mathbf{Q}, \omega)$.

Le composé ionique $(\text{Ca}[(\text{NO}_3)_2]_{0.4}[\text{KNO}_3]_{0.6})$ (CKN) est un des liquides les plus couramment étudiés formant un composé vitreux. Une description cohérente de sa dynamique a été obtenue par une analyse conjointe de résultats émanants de différentes techniques expérimentales telle que la diffusion de neutrons [21] et la diffusion de la lumière [22], récemment confirmés par des mesures diélectriques [23]. CKN est considéré comme un composé modèle des liquides pouvant vitrifier.

La théorie du couplage de modes prédit pour la susceptibilité une loi d'échelle dans la région du «cross-over» entre les deux régimes de relaxation, α et β .

$$\chi''(q, \omega) = \chi^{\min} \left(a(\omega/\omega_{\min})^{-b} + b(\omega/\omega_{\min})^a \right) \quad (20)$$

Les deux exposants, a et b , étant reliés à un seul et même paramètre λ

$$\lambda = \frac{\Gamma^2(1-a)}{\Gamma(1-2a)} = \frac{\Gamma^2(1+b)}{\Gamma(1+2b)} \quad (21)$$

Dans tous les composés étudiés, λ est de l'ordre de 0.75. Cette valeur a été confirmée par l'extension des mesures diélectrique au régime des relaxations α et β réalisées sur CKN (Lunkenheimer et al [23]), la grandeur mesurée étant :

$$\varepsilon''(\omega) = \varepsilon^{\min} \left(a(\omega/\omega_{\min})^{-b} + b(\omega/\omega_{\min})^a \right) \quad (22)$$

Ces auteurs ont également réalisé des expériences sur un composé ionique très similaire à CKN : le CRN, $(\text{Ca}[(\text{NO}_3)_2]_{0.4}[\text{RbNO}_3]_{0.6})$. Dans ces mesures, ils ont mis en évidence la présence d'un exposant λ proche de 0.95. Afin de vérifier ces mesures, le groupe de physique de W. Petry de la Technische Universität München a entamé une étude de CRN par diffusion de neutrons et de la lumière. Par diffusion de neutrons, les spectromètres à temps de vol sont les plus adaptés à des mesures dans la gamme d'énergie correspondant au processus de relaxation β , tandis que l'étude de la relaxation α se fait par écho de spin.

Etude du mécanisme de la relaxation α de CRN par écho de spin :

Le CRN est un diffuseur principalement cohérent, le rapport de ses sections efficaces cohérentes sur incohérentes est d'environ $\sigma^{\text{coh}}/\sigma^{\text{inc}} \approx 21$, ce chiffre ne donnant bien sûr qu'une indication, puisque le rapport des intensités résultant des 2 processus de diffusion est dépendant de $\mathbf{Q}$. La température de transition vitreuse de CRN est d'environ $T_g=330\text{K}$. On cherche donc à mesurer la relaxation structurale dans les domaines de température où elle va être observable dans la fenêtre du spin-écho.

On mesure donc $\langle P(Q, \tau) \rangle$ pour différent τ , puis afin d'obtenir une grandeur que l'on peut assimiler à la fonction intermédiaire de diffusion on effectue un certain nombre de traitements. On commence d'abord par diviser le signal mesuré à un temps τ par celui mesuré à $\tau=0$. On normalise ainsi le signal puisque :

$$P(Q, \tau=0) \approx \int_{-\infty}^{\infty} S(Q, \omega) d\omega = S(Q) \quad (23)$$

Notons que l'on effectue aussi une correction des processus de diffusion se déroulant avec des « spins-flips », c'est à dire que l'on « supprime » entre autres du signal la diffusion incohérente de spin. Cette approximation n'est donc valable que si l'on suppose que les processus cohérent et incohérent ont la même dynamique^[24], ou qu'un processus est négligeable devant l'autre.

La résolution du spectromètre a été mesurée directement sur l'échantillon à une température suffisamment basse pour que, dans la fenêtre de temps qui nous est accessible, le temps de relaxation τ_α puisse être considéré comme infini (typiquement à 250 K). Les corrections de résolution sont, pour de la

diffusion quasiélastique, relativement simple en écho de spin puisqu'elles consistent en une simple division, ce que l'on peut intuitivement comprendre comme résultant d'une propriété bien connue des produits de convolution **. Comparons par exemple des mesures par écho de spin et temps de vol :

$$\text{Temps de vol} \quad I^{mes}(Q, \omega) \sim R(Q, \omega) \otimes S(Q, \omega) \quad (24)$$

(après transformation temps de vol - énergie)

$R(Q, \omega)$ Résolution du spectromètre
(on suppose en général un découplage entre Q et ω)

$$\text{Spin écho} \quad \langle P(Q, \tau) \rangle \sim I(Q, \tau) = \int_{-\infty}^{\infty} S(Q, \omega) e^{i\omega\tau} d\omega \quad (25)$$

$$\text{soit} \quad \langle P^{mes}(Q, \tau) \rangle = \langle P_Z(Q, \tau) \rangle * \langle P_z(Q, \tau) \rangle^S \quad (26)$$

$\langle P(Q, \tau) \rangle^S$ = polarisation obtenue sur un standard : résolution

Un calcul plus formel a été donné par J. B. Hayter [25].

Nous avons réalisé des mesures à différents vecteurs d'onde de diffusion, la figure 9 présente les résultats obtenus pour $Q=1.7 \text{ \AA}^{-1}$.

Figure 9 : $S(Q, t)$ de CRN pour $Q=1.7 \text{ \AA}^{-1}$

Les spectres obtenus ont été ajustés par une fonction exponentielle étirée, ou fonction de type Kohlrausch-Williams-Watt,

$$I(Q, t) \sim A(Q) e^{-(t/\tau(T))^\beta} \quad (27)$$

** $\text{TF}(A(x) \otimes B(x)) = \text{TF}(A(x)) * \text{TF}(B(x))$ (TF= transformée de Fourier)

Sur la figure 10 les résultats obtenus à différentes températures ont été représentés sur une même échelle $-t/\tau(T)$. Cette représentation permet de tester le principe de superposition des spectres en fonction de la température. Les prédictions théoriques semblent en bon accord avec les résultats expérimentaux.

Figure 10 : Résultats de la figure 8 en échelle t/τ

L'exposant β peut donc être déterminé avec une meilleure précision $\beta=0.49\pm0.01$. Puis à partir de β fixé, on peut de nouveau ajuster les valeurs du paramètre τ en fonction de la température. Les résultats sont présentés sur la figure 11.

Figure 11 : Evolution du temps de relaxation τ_α obtenu à partir des affinements de la fonction (27)

Afin d'obtenir une description de la dynamique du système sur un intervalle de temps permettant d'observer les mécanismes de relaxation α et β , ces résultats doivent être combinés avec d'autres mesures réalisées sur un spectromètre à temps de vol [26]. Ces résultats sont en cours d'analyse mais il semble

d'hors et déjà que le paramètre λ obtenu par diffusion de neutrons soit ~ 0.7 ce qui serait en contradiction avec les mesures diélectriques.

6. CONCLUSION

La spectrométrie à écho de spin par résonance s'avère donc comme une technique crédible alternative à la NSE. Elle présente les mêmes avantages que la spectrométrie à écho de spin classique, c'est à dire le découplage entre intensité (monochromatisation du faisceau incident) et résolution, ainsi que la mesure directe de la fonction intermédiaire de diffusion sans pour autant nécessiter la présence de bobines produisant des champs magnétiques intenses. Plus compacte, elle autorise une meilleure optimisation du rapport des neutrons détectés sur le flux incident, elle permet également de réaliser des mesures à grands angles plus aisément qu'avec la NSE. Elle possède néanmoins certaines faiblesses dont la principale semble être, dans l'état actuel du développement, sa polarisation relativement faible à grands temps de spin écho dans le cas de la technique dite des «bootstrap» ($P \sim 0.3$ pour $\omega/2\pi = 452\text{kHz}$, mais $P \sim 0.65$ pour $\omega/2\pi = 320\text{kHz}$). Cette perte de polarisation partiellement comblée par le gain en intensité, augmente notablement l'incertitude sur la mesure à grand τ et réduit l'augmentation de l'intervalle de temps normalement apporté par la NRSE. Néanmoins, dans le cas du tout jeune spectromètre MuSES, nous espérons pouvoir corriger rapidement ces imperfections.

Références

- [1] F. Mezei, Z. Physik, **255** (1972) 146
- [2] F. Mezei (ed), Lecture Notes in Physics. **Vol. 128**: Neutron Spin echo, Berlin, Heidelberg, New York: Springer Verlag 1980
- [3] R. Gähler and R. Golub, Z. Phys. B -Cond. Matt., **65** (1987) 289
- [4] R. Golub, R. Gähler, Physics Letters A, **123**, (1987), 43.
- [5] R. Gähler and R. Golub, J. Phys. France, **49**, (1988), 1195
- [6] D. Dubbers, P. El-Muzzeni, M. Keesler, Nucl. Instr. Methods **A275**, (1989) 294.
- [7] T. Keller, R. Golub, F. Mezei and R. Gähler, Physica B **234-236** (1997) 1126-1127
- [8] M. Köppe, P. Hank, J. Wuttke, W. Petry, R. Gähler, R. Kahn., J. Neutron Res. **4** (1996) 261
- [9] Le traitement des mouvements d'une particule de spin $\frac{1}{2}$ soumise à un champ magnétique est un problème classique la mécanique, il peut être réalisé dans un cas semi-classique ou Quantique, cf. par exemple: P. Feynmann, Cours de Physique vol 3, Mécanique Quantique, Addison-Wesley Publishing Compagny; C. Cohen Tanoudji, B. Diu, F. Lanoe, Mécanique Quantique, édition Hermann.
- [10] O. Schärpf, dans référence 2
- [11] H. Kendrick, S. A. Werner and A. Arrott, Nucl. Instr. Methods **68**, (1969) 50.
- [12] J. B. Hayter, Neutron Spin Echo data analysis, ILL report 78HA50.
- [13] J. B. Hayter and J. Penfold, Z. Physik, **B 35** (1979) 199
- [14] S. Poujet exposé précédent
- [15] O. Schärpf, dans référence 2
- [16] T. Keller, P. Zimmermann, R. Golub and R. Gähler, Physica B **162** (1990) 327
- [17] K. Al usta, R. Gähler, P. Böni, P. Hank, R. Kahn, M. Köppe, A. Menelle and W. Petry, Physica B **241-243** (1998) 77-78
- [18] Squires G. L., Thermal Neutron Scattering, Cambridge University Press.
- [19] B Rufflé ce cours.
- [20] J. Wuttke, S. Longeville, U. Rauch, I. köper and W. Petry.
- [21] F. Mezei, W. Knaak and B. Farago, Phys. Rev. Lett. **58** (1987) 571
- [22] Cummins H. Z., W. Du, M. Fuchs, W. Götz, S. Hildebrands, A. Latz, G. Li and N. J. Tao, Phys. Rev. E **47** (1993) 4223.
- [23] Lunkenheimer P., Pimenov A. and Loidl A., Phys. Rev. Lett. **78** (1997) 2995.
- [24] L'approximation de Vinyard, $S^{Cnh}(Q, \omega) = S^{Luc}(Q, \omega) S(Q)$ entre par exemple dans ce cadre.
- [25] J. B. Hayter dans référence 2
- [26] J. Wuttke et al, to be published.

Annexe I**Calcul de la réponse quasiélastique mesurée par NSE^[13]**

Soit $\Omega(\lambda)$ le nombre de précessions effectuées par le spin d'un neutron de longueur d'onde λ dans la première bobine du spectromètre et $\Omega(\lambda')$ le nombre de précessions effectuées dans la deuxième bobine :

Soit λ_0 la valeur moyenne du spectre, déterminée par le sélecteur de vitesse, on a alors

$$\lambda_0 \mapsto \Omega(\lambda_0) = \gamma_B B \frac{l}{v_0} = \gamma_B B \frac{lm\lambda_0}{h} = 2\pi N_0 \quad (\text{I-1})$$

$$\lambda \mapsto \Omega(\lambda) = \gamma_B B \frac{l}{v} = \gamma_B B \frac{lm\lambda}{h} = 2\pi N_0 \frac{\lambda}{\lambda_0} \quad (\text{I-2})$$

Lors d'un processus de diffusion inélastique (ou quasiélastique) on a $\lambda' = \lambda + \delta\lambda$

La contribution à la polarisation du faisceau d'un neutron de longueur incidente λ et diffusée λ' est :

$$\begin{aligned} P_2(\lambda, \delta\lambda) &= \cos(\Omega(\lambda + \delta\lambda) - \Omega(\lambda + \delta\lambda)) \\ &= \cos(2\pi N_0 \frac{\lambda + \delta\lambda}{\lambda_0} - 2\pi N_0 \frac{\lambda}{\lambda_0}) \\ &= \cos(2\pi N_0 \frac{\delta\lambda}{\lambda_0}) \end{aligned} \quad (\text{I-3})$$

Pour calculer la polarisation totale du faisceau, il faut intégrer la contribution sur la distribution incidente en longueur d'onde, prenant en compte les probabilités de transmission au sein du spectromètre $W(\lambda, \delta\lambda)$ et de diffusion par l'échantillon soit :

$$\langle P \rangle = \int_0^\infty I(\lambda) d\lambda \int_{-\lambda}^\infty W(\lambda, \delta\lambda) P(\lambda, \delta\lambda) \cos(2\pi N_0 \frac{\delta\lambda}{\lambda_0}) d\lambda \quad (\text{I-4})$$

$P(\lambda, \delta\lambda)$ = probabilité d'un processus de diffusion avec longueur d'onde incidente λ et de transfert $\delta\lambda$

Dans l'approximation d'un processus de diffusion quasiélastique ($\delta\lambda \ll \lambda$), on a $\delta\lambda = \frac{m\lambda^3 \omega}{2\pi\hbar}$.

En prenant $W(\lambda, \delta\lambda) = \text{constante}$ et en effectuant le changement de variable $P(\lambda, \delta\lambda) d\lambda = S(Q, \omega) d\omega$, on obtient :

$$\begin{aligned} \langle P \rangle &= \int_0^\infty I(\lambda) d\lambda \int_{-\infty}^\infty S(Q, \omega) \cos(2\pi N_0 \frac{m\lambda^3 \omega}{2\pi\hbar\lambda_0}) d\omega \\ \langle P \rangle &= \int_0^\infty I(\lambda) d\lambda \int_{-\infty}^\infty S(Q, \omega) \cos(\omega\tau) d\omega \\ \tau &= \frac{N_0 m \lambda^3}{\hbar \lambda_0} = \frac{\hbar}{m} \frac{\gamma_B L}{v^3} = \frac{m^2}{\hbar^2} \frac{\gamma_B L}{2\pi} \lambda^3 \end{aligned} \quad (\text{I-5})$$

On introduit ainsi la notion de temps de spin écho, τ . Pour le calcul de τ en fonction du champ magnétique nous avons supposé que $\int B dl = Bl$ ou l est la longueur de la bobine NSE. On suppose, dans le cas où les phénomènes observés sont très peu dispersés, que les deux intégrales sont indépendantes on obtient alors :

$$\langle P_z \rangle \propto I(Q, \tau) \quad (\text{I-6})$$

où $I(Q, t)$ est la fonction intermédiaire de diffusion.

Annexe II

Spectromètre NRSE

	t	Br	Spin
A	t_A	ωt_A	0
A'	$t_{A'} = t_A + \frac{d}{v}$	$\omega t_{A'}$	$2\omega t_A + \omega \frac{d}{v}$
B	$t_B = t_A + \frac{l_{AB} + d}{v}$	ωt_B	$2\omega t_A + \omega \frac{d}{v}$
B'	$t_{B'} = t_A + \frac{l_{AB} + 2d}{v}$	$\omega t_{B'}$	$2\omega t_B - \Phi_B + \omega \frac{d}{v}$ $= 2\omega \frac{l_{AB} + d}{v}$
C	t_C	$-\omega t_C$	$2\omega \frac{l_{AB} + d}{v}$
C'	$t_{C'} = t_C + \frac{d}{v}$	$-\omega t_{C'}$	$-\omega \frac{d}{v'} - 2\omega t_C - 2\omega \frac{l_{AB} + d}{v}$
D	$t_D = t_C + \frac{l_{CD} + d}{v'}$	$-\omega t_D$	$-\omega \frac{d}{v'} - 2\omega t_C - 2\omega \frac{l_{AB} + d}{v}$
D'	$t_{D'} = t_C + \frac{l_{CD} + 2d}{v'}$	$-\omega t_{D'}$	$-\omega \frac{d}{v'} + 2(-\omega t_C - \omega \frac{l_{CD} + d}{v'})$ $(-\omega \frac{d}{v'} - 2\omega t_C - 2\omega)$ $= 2\omega(\frac{l_{AB} + d}{v} - \frac{l_{CD} + d}{v'})$