Diffusion de neutrons : introduction

J. Schweizer

CEA-Grenoble, DRFMC/SPSMS, Magnétisme et Diffraction Neutronique, Grenoble, France

I. Généralités sur les neutrons

I-1 Les propriétés du neutron

Le neutron est une particule élémentaire qui a été découverte en 1932 par James Chadwick. Ses caractéristiques principales sont résumées dans le tableau I. Il a été utilisé pour la première fois par Clifford Shull en 1946 comme outil pour des expériences de diffusion. Cette technique s'est depuis constamment développée pour concerner tous les aspects de la matière condensée: physique, chimie, matériaux, biologie. Il s'agit d'un outil tout à fait exceptionnel car le neutron possède des propriétés uniques et particulièrement adaptées pour ces études.

Tableau I : Caractéristiques du neutron, relations et constantes utiles

masse	$m = 1.00866 \text{ uma}$ $m = 1.675 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$
spin	$s = 1/2$
moment magnétique	$\mu_n = 9.663 \cdot 10^{-27} \text{ JT}^{-1}$ $\mu_n = 1.913 \mu_{\text{BN}}$
décomposition	$n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}$
temps de vie	$\tau = 888 \text{ s}$
demi-vie	$T_{1/2} = \tau \text{ Log}2 = 615 \text{ s}$
longueur d'onde	$\lambda = \frac{h}{mv}$
vecteur d'onde	$\vec{k} \quad \left(k = \frac{2\pi}{\lambda} \right)$
moment	$\vec{p} = \hbar \vec{k}$
énergie	$E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$
constantes de Planck	$h = 6.626 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$ $\hbar = 1.054 \cdot 10^{-34} \text{ J.s}$
magnéton de Bohr	$\mu_{\text{B}} = 9.274 \cdot 10^{-24} \text{ JT}^{-1}$
magnéton de Bohr nucléaire	$\mu_{\text{BN}} = 5.051 \cdot 10^{-27} \text{ JT}^{-1}$
électron-volt	$1 \text{ eV} = 1.602 \cdot 10^{-19} \text{ J}$

I. 1. 1. Le neutron est électriquement neutre.

Le neutron possède une charge électrique nulle. De ce fait, il peut pénétrer la matière sans se faire arrêter par une barrière coulombienne. Contrairement aux rayons X qui ne voient, la plupart du temps, que la surface de la matière, les neutrons sondent l'intérieur des échantillons, et c'est là un atout important.

I. 1. 2. Le neutron est une particule, mais en même temps une onde, avec une longueur d'onde associée donnée par la formule de de Broglie:

$$\lambda = \frac{h}{mv} \quad (1)$$

où h est la constante de Planck, m la masse du neutron et v sa vitesse.

Avec des neutrons thermalisés par un modérateur dont la température est 300 K, leur vitesse moyenne est de 2200 m/s et leur longueur d'onde moyenne de 1.8 Å, c'est à dire une longueur d'onde qui est du même ordre de grandeur que les distances inter atomiques dans la matière condensée. Les neutrons thermiques sont donc tout à fait adaptés pour être diffractés par les atomes de la matière qui nous entoure.

Pour les photons, rappelons le, la longueur d'onde est donnée par :

$$\lambda = \frac{c}{\nu} \quad (2)$$

où c est la vitesse de la lumière et ν la fréquence de la radiation. C'est ainsi que ce sont les rayons X, avec des fréquences de 10^{17} à 10^{19} Hz qui correspondent à des longueurs d'onde comparables aux distances entre atomes et molécules.

I. 1. 3. L'énergie du neutron correspond à l'énergie cinétique de la particule et est donnée par la formule classique:

$$E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} \quad (3)$$

où k est le nombre d'onde ($k = 2\pi / \lambda$).

Cette énergie se retrouve en joules si on exprime la masse en kilogrammes et la vitesse en m/s. En pratique, on utilise l'électron volt comme unité d'énergie.

Compte tenu de la formule (1) qui relie la longueur d'onde et la vitesse, on arrive à :

$$E = \frac{h^2}{2m\lambda^2} \quad (4)$$

ou, à la formule équivalente, avec des unités bien spécifiées:

$$\lambda(\text{en } \text{\AA}) \cdot \sqrt{E} (E \text{ en eV}) = 0.286 \quad (5)$$

Ainsi, les neutrons thermiques (longueurs d'onde entre 1 et 5 Å) ont des énergies dans la gamme des meV, c'est à dire, dans la gamme des excitations de la matière condensée.

Rappelons que pour les photons l'énergie est donnée par :

$$E = h.v \quad (6)$$

et que pour des rayons X de longueur d'onde $1\text{\AA}$, E vaut 12,4 keV, soit 6 ordres de grandeur de plus que les excitations dans la matière condensée. Pour faire de la spectroscopie de la matière condensée, il faut utiliser le visible ou l'infrarouge.

Le neutron est la seule sonde qui permet d'avoir accès en même temps à la structure, par des phénomènes d'interférence, et à la dynamique, par spectroscopie.

I. 1. 4. Le neutron porte un spin $s=1/2$.

Il lui est donc associé une fonction d'onde de spin qui agit dans un espace à deux dimensions sous tendu par les deux vecteurs $|+\rangle$ et $|-\rangle$:

$$\chi = a |+\rangle + b |-\rangle \quad (7)$$

Il en résulte deux conséquences principales :

D'une part il est possible de polariser les faisceaux de neutrons et aussi d'analyser la polarisation des neutrons après qu'ils aient interagi avec l'échantillon. Ceci donne, comme pour les rayons X, toute une gamme de possibilités expérimentales.

D'autre part, le neutron porte un moment magnétique associé au spin. Ce moment est petit et vaut $1.91 \mu_{\text{BN}}$ (magnétons de Bohr nucléaires). Mais ce moment interagit avec tous les champs magnétiques et, en particulier, ceux qui sont créés par les moments magnétiques d'origine électronique et qui sont mille fois plus grands que lui. Cette interaction donne accès aux structures magnétiques et permet l'étude des excitations magnétiques.

I-2 Ondes et corpuscules, les phénomènes de base. Sections efficaces

Comment se comporte un faisceau de neutrons dans le vide et dans la matière? Nous allons passer en revue dans ce paragraphe les phénomènes que l'on rencontre.

I. 2. 1 Faisceau monochromatique

Un faisceau monochromatique de neutrons peut être considéré comme une onde plane. On peut écrire une onde qui se propage selon la direction $\vec{z}$ par la formule :

$$\Psi = e^{i(kz - 2\pi\nu t)} \quad (8)$$

où ν est la fréquence de l'onde plane. La photo instantanée d'une telle onde est représentée sur la figure 1a. Les lignes de crête sont figurées par les traits pointillés perpendiculaires à la direction de propagation. Ces lignes de crête sont séparées par une longueur d'onde λ . Le vecteur d'onde $\vec{k}$ est un vecteur parallèle à la propagation et de longueur $k = 2\pi/\lambda$ et le moment des neutrons est

$$\vec{p} = m\vec{v} = \hbar\vec{k} \quad (9)$$

En tout point de l'espace l'onde est périodique dans le temps, avec une pulsation ω et une période T données par :

$$\omega = 2\pi/T = 2\pi\nu \quad (10)$$

Figure 1: Les phénomènes de base

I. 2. 2 Absorption d'un faisceau de neutrons

Lorsqu'un faisceau de neutrons traverse de la matière, une partie de ces neutrons peut être absorbée par les noyaux des atomes pour exciter ces noyaux et finalement leur faire éjecter un proton, une particule α , un photon γ ou même conduire à une fission (figure 1b). Si l'échantillon est une plaque mince où les atomes ne se portent pas ombre les uns sur les autres, le nombre de réactions par seconde R est proportionnel à l'intensité du faisceau I_0 mesuré en neutrons par seconde et à la concentration n de noyaux sur la plaque (nombre de noyaux par unité de surface) :

$$R(\text{nbre réactions/s}) = I_0 (\text{nbre neutrons/s}) \cdot n (\text{nbre noyaux/cm}^2) \cdot \sigma_a \quad (11)$$

La constante de proportionnalité σ_a a donc les dimensions d'une surface et s'exprime habituellement en barns ($1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$). C'est la section efficace d'absorption qui caractérise la capacité de chaque noyau à absorber les neutrons.

Si l'échantillon est maintenant une plaque plus épaisse où il faut tenir compte, pour chaque couche, de l'atténuation du faisceau due à l'absorption par les couches précédentes, l'intensité du faisceau à la sortie de la plaque est donnée par :

$$I = I_0 e^{-\mu t} \quad (12)$$

où t est l'épaisseur de la plaque et où le coefficient d'absorption linéaire μ est donné par:

$$\mu = N \cdot \sigma_a \quad (13)$$

N représentant cette fois le nombre de noyaux par unité de volume.

Alors que pour les rayons X, μ est de l'ordre de 100 à 1000 cm⁻¹ (0.01 à 0.001 cm de matière suffisent pour affaiblir le faisceau d'un facteur 1/e), la matière est beaucoup plus transparente pour les neutrons car μ est compris entre 0.01 et 1 cm⁻¹ pour la plupart des matériaux.

L'absorption est un phénomène général des radiations: il dépend de l'énergie et donc de la longueur d'onde des neutrons. On peut le comparer au problème d'un oscillateur amorti et forcé. En effet, il existe des énergies de résonance pour les neutrons qui produisent des excitations du noyau composé (noyau + neutron). Au voisinage de ces énergies de résonance l'absorption est très forte et elle diminue au fur et à mesure qu'on s'en éloigne. Pour presque tous les noyaux, ces énergies de résonance se trouvent bien au delà des énergies des neutrons thermiques et la section efficace d'absorption σ_a est alors proportionnelle à $1/v$ ou à λ . C'est pourquoi les tables d'absorption comme le tableau II précisent toujours la vitesse ou la longueur d'onde pour laquelle ces sections efficaces sont données, laissant à l'expérimentateur le soin d'en déterminer la valeur pour la longueur d'onde qu'il utilise.

Figure 2: Section efficace totale du noyau ¹⁰³Rh

Mais pour certains noyaux, souvent considérés comme pathologiques¹, une ou plusieurs énergies de résonance se trouvent dans la gamme d'énergie des neutrons

¹ Il s'agit principalement des noyaux suivants: ³He, ⁶Li, ¹⁰B, ¹¹³Cd, ¹¹⁵In, ¹²³Te, ¹⁴⁹Sm, ¹⁵¹Eu, ¹⁵⁵Gd, ¹⁵⁷Gd, ¹⁶⁴Dy, ¹⁶⁸Yb et ¹⁷⁶Lu.

utilisés. Il en résulte que l'absorption est très grande (des centaines ou des milliers de barns) et que cette absorption varie très rapidement avec l'énergie des neutrons. Pour la connaître, des tables comme la table précédente ne suffisent plus, il faut consulter la bible: le "Neutron Cross Sections" [1] qui donne les variations de sections efficaces en fonction de l'énergie des neutrons pour tous les éléments naturels et pour tous les noyaux. A titre d'exemple, la figure 2 représente la section efficace totale (absorption + diffusion) du ^{103}Rh qui présente une résonance à 1.3 eV et suit une loi en $1/v$ entre 10 et 100 meV.

Il faut noter que c'est avec ces éléments pathologiques, en profitant de leurs caractéristiques d'absorption tout à fait particulières pour les neutrons thermiques, que l'on réalise les différents dispositifs expérimentaux comme les détecteurs, les filtres ou la collimation des faisceaux.

I. 2. 3 Diffusion des neutrons

La figure 1c représente le phénomène de diffusion. Suite à l'interaction entre le faisceau de neutrons incidents et la matière de l'échantillon, l'échantillon se comporte comme une source et produit une onde diffusée :

$$\Psi_{diff} = -f(\vec{k}, \vec{k}') \frac{e^{i(\vec{k}' \cdot \vec{r} - 2\pi\nu t)}}{r} \quad (14)$$

où l'amplitude de diffusion, $f(\vec{k}, \vec{k}')$, avec la dimension d'une longueur, caractérise la force de l'interaction neutron-matière. A grande distance de la cible, l'onde diffusée pourra être considérée comme une onde plane, de vecteur d'onde $\vec{k}'$. Le vecteur représentant la différence entre les deux vecteurs d'onde, est appelé le vecteur de diffusion :

$$\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}' \quad (15)$$

et le transfert de moment est $\hbar\vec{Q}$.

Si la cible se réduit à une seule particule fixe, cette onde est sphérique et le processus est élastique. Si la cible est plus complexe, il peut y avoir échange d'énergie entre les neutrons et le système diffusant avec $|\vec{k}'| \neq |\vec{k}|$. Le changement d'énergie du neutron est :

$$\hbar\omega = E - E' = \frac{\hbar^2}{2m} (k^2 - k'^2) \quad (16)$$

Par convention, $\hbar\omega$ est positif lorsque le neutron cède de l'énergie au système cible.

Ce qui est mesuré, dans une expérience de diffusion, c'est la fraction de neutrons d'énergie incidente E , diffusés dans un élément d'angle solide $d\Omega$, avec une énergie comprise entre E' et $E'+dE'$. C'est la section efficace différentielle partielle qui s'exprime en barns par stéradian et par unité d'énergie :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{1}{\Phi_0} \frac{\text{nombre de neutrons diffusés par seconde dans } d\Omega \text{ et } dE'}{d\Omega dE'} \quad (17)$$

où Φ_0 est le flux de neutrons incidents, c'est à dire le nombre de neutrons par seconde et par unité de surface.

Si on n'analyse pas l'énergie des neutrons diffusés, mais que l'on compte tous les neutrons diffusés dans $d\Omega$, on mesure la section efficace différentielle qui s'exprime en barns par stéradian :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \int dE' \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} = \frac{1}{\Phi_0} \frac{\text{nombre de neutrons diffusés par seconde dans } d\Omega}{d\Omega} \quad (18)$$

Enfin, si on intègre les neutrons diffusés dans toutes les directions de l'espace, on arrive à la section efficace de diffusion totale qui s'exprime en barns :

$$\sigma_{\text{dif}} = \int d\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\text{nombre de neutrons diffusés par seconde}}{\Phi_0} \quad (19)$$

Nous verrons dans la deuxième partie de ce cours que pour un processus de diffusion où le vecteur d'onde des neutrons passe de $\vec{k}$ à $\vec{k}'$ et où la cible passe d'un état λ à un état λ' , la section efficace différentielle partielle est donnée par l'expression :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \vec{k}' \lambda' | V(\vec{r}) | \vec{k} \lambda \rangle \right|^2 \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \quad (20)$$

où $V(\vec{r})$ est le potentiel représentant l'interaction entre le neutron et les atomes de la cible.

I. 2. 4 Réfraction des neutrons

Le phénomène de réfraction, où le faisceau incident change sa direction au passage à travers un échantillon sans subir une perte importante d'intensité, est bien connu pour la lumière visible à travers une lentille ou un prisme. Il existe aussi pour les neutrons, ainsi d'ailleurs que pour les rayons X. Mais dans ces deux cas les angles de déflexion sont très faibles (voir figure 1d) car, contrairement au cas de la lumière, l'indice de la matière pour les neutrons thermiques (et pour les rayons X) est très voisin de 1. Le ^{58}Ni , un des isotopes les plus réfringents, a un indice de 0.999998 pour une longueur d'onde de 1Å.

Une des manifestations de la réfraction est le phénomène de réflexion totale lorsque les neutrons tombent sur une surface avec un angle d'incidence trop faible. Ils sont alors complètement réfléchis, sans perte d'intensité. Comme les indices sont très voisins de 1, les angles critiques sont très petits.

On comprend bien ce phénomène de réflexion totale par de simples considérations énergétiques. Le neutron, qui interagit avec la matière par un potentiel $V(\vec{r})$ verra en

fait un potentiel moyen $U = \langle V(\vec{r}) \rangle$. Son énergie cinétique totale est $\frac{\hbar^2 k^2}{2m}$, mais la part de cette énergie qui lui permet de l'emporter sur U et de pénétrer dans la matière est $\frac{\hbar^2 k_{\perp}^2}{2m}$ où $k_{\perp}$ est la composante perpendiculaire à la surface. Si cette énergie est inférieure à U , le faisceau de neutrons ne peut pas pénétrer la matière et subit la réflexion totale. Considérant que $\sin\theta = \frac{k_{\perp}}{k}$, l'angle critique est donné par

$$\theta_c = \frac{\lambda}{h} \sqrt{2mU} \quad (21)$$

Cet angle critique est donc proportionnel à la longueur d'onde. Si, pour $\lambda = 1 \text{ \AA}$, il ne vaut que 7 minutes d'angle dans le cas du ^{58}Ni , il monte à plus de 2 degrés lorsque λ dépasse 18 $\text{\AA}$.

On utilise ces propriétés de réfraction et de réflexion totale pour mettre en oeuvre toute une optique instrumentale pour les faisceaux de neutrons avec guides, miroirs, multicouches et super miroirs. Bien entendu, c'est surtout avec des neutrons de grande longueur d'onde, pour des angles critiques les plus grands possibles, que l'optique neutronique est la plus performante.

I-3 Les interactions neutron - matière

Il y a deux interactions différentes entre le neutron et les atomes qui forment la matière: l'interaction nucléaire et l'interaction magnétique.

I. 3. 1 L'interaction nucléaire (neutron - noyau)

Il existe des forces nucléaires entre le neutron et le noyau. Ces forces agissent sur des distances très courtes, de l'ordre de grandeur des dimensions du noyau, c'est à dire $10^{-4} \text{ \AA}$.

La longueur de Fermi

Pour les neutrons utilisés en diffusion, dont la longueur d'onde est comprise entre une fraction d'angström et quelques angströms, on peut représenter le potentiel d'interaction par une fonction δ

$$V_N(\vec{r}) = a \delta(\vec{r}) \quad (22)$$

On a plutôt coutume de l'écrire sous la forme suivante, dite pseudo potentiel de Fermi:

$$V_N(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b \delta(\vec{r}) \quad (23)$$

Dans ces conditions, en revenant à la définition (14):

Longueurs de diffusion et sections efficaces (compilation par Koester et Yelon [2])

Element	A	Per cent Abundance	b	σ	σ_n
Cs	133	100.	0.542	3.96	0.26 (t)
Ba	136	8.9	0.525	3.37	29 (t)
Ba	130	0.106	0.525	3.37	1.2
La	132	0.101	0.525	3.37	11.3
La	134	2.417	0.525	3.37	7.0 (t)
La	135	7.822	0.525	3.37	5.16
La	137	11.21	0.525	3.37	0.4
La	138	71.70	0.525	3.37	5.1
La	138	0.09	0.827	10.2	0.36
La	139	99.91	0.827	10.2	8.97
Ce	136	0.19	0.484	2.9	8.99
Ce	138	0.25	0.47	2.87	57 (t)
Ce	140	81.46	0.45	2.55	0.63
Pr	141	100.	0.445	2.58	7.1
Nd	142	27.13	0.77	7.7	0.57
Nd	143	12.18	0.24	1.0	0.85 (t)
Sm	147	15.1	0.87	9.6	11.5 (t)
Sm	148	8.30	0.87	9.6	51.
Sm	149	13.9	0.87	9.6	17.7
Sm	150	5.84	0.87	9.6	325 (t)
Eu	152	26.6	0.80	8.0	42 (t)
Eu	154	22.6	0.80	8.0	177
Eu	151	47.86	0.60	8.	178
Gd	153	25.14	0.82	8.0	35.22
Gd	152	0.2	0.95	8.0	60
Gd	154	21.1	0.95	8.0	20.5 (t)
Gd	155	14.8	0.95	8.0	363 (t)
Gd	156	20.6	0.95	8.0	18.4 (t)
Gd	157	15.7	0.95	8.0	30
Gd	158	24.8	0.95	8.0	8.6
Tb	159	100.	0.738	14.	20.7 (t)
Dy	156	0.057	1.69	82.6	18.1
Dy	158	0.10	0.67	5.6	99.988
Dy	160	19.34	0.77	22.0	180
Dy	161	16.1	0.77	22.0	0.126
Dy	162	25.5	-0.14	0.25	182
Dy	163	24.9	0.50	9.7	26.31
Dy	164	28.1	0.50	9.7	14.2
Ir	191	37.3	1.06	14.	18.7
Ir	193	62.7	1.06	14.	18.1
Pt	190	0.01	0.9	11.2	180
Pt	192	0.79	0.9	11.2	0.83
Pt	194	32.9	1.06	14.	8.6
Pt	195	33.8	1.06	14.	10.1
Re	185	37.4	0.92	11.3	17.0
Re	187	62.6	0.92	11.3	37.9
Os	186	28.64	-0.119	0.18	1.7 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	1.7 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	91 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	112 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	78 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	3000.
Os	189	16.1	0.78	7.6	80 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	325 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	5 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	23 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	186	1.58	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	187	1.6	1.07	14.9	15.0 (t)
Os	188	13.3	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	189	16.1	0.78	7.6	15.0 (t)
Os	190	26.4	1.10	14.4	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	192	41.0	1.19	18.	15.0 (t)
Os	184	0.02	1.07	14.9	15.0 (t)

$$f(\vec{k}, \vec{k}') = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \langle \vec{k}' | V_N | \vec{k} \rangle = b \quad (24)$$

b est la longueur de diffusion ou longueur de Fermi, caractéristique de chaque noyau². Pour un même élément, cette longueur est différente d'un isotope à l'autre.

La diffusion dépendant du spin

En réalité, la situation est plus compliquée que décrite ci-dessus car l'interaction neutron - noyau dépend du spin et cette dépendance intervient lorsque le noyau possède un spin nucléaire I .

Formellement, l'amplitude de diffusion nucléaire s'écrit

$$f(\vec{k}, \vec{k}') = b + B \vec{\sigma} \cdot \vec{I} \quad (25)$$

où l'opérateur de spin du neutron est $\frac{\hbar}{2} \vec{\sigma}$ et où l'opérateur vectoriel $\vec{\sigma}$ est représenté par les trois matrices de Pauli σ_x , σ_y et σ_z .

En fait, dès lors que le noyau possède un spin ($I \neq 0$), il y a deux valeurs pour la longueur de diffusion. Selon que le spin total (noyau + neutron) prend la valeur $I+1/2$ ou $I-1/2$, la longueur de diffusion est b_+ ou b_- .

Tableau III
Longueurs de diffusion dépendant du spin de quelques noyaux
(en 10^{-12} cm)

noyau	spin	$\bar{b}$	b_+	b_-	$b_+ - b_-$
^1H	1/2	-0.3741	1.085	-4.750	5.835
^2H	1	0.6674	0.953	0.098	0.855
^{23}Na	3/2	0.363	0.63	-0.09	0.72
^{59}Co	7/2	0.253	-0.278	0.991	-1.269

Dans la pratique, même si les neutrons sont polarisés, les noyaux, sauf cas exceptionnel, ne le sont pas. Les neutrons sont diffusés au hasard, soit avec une longueur b_+ soit avec une longueur b_- . Pour calculer la moyenne, il faut prendre en compte le fait que la probabilité pour le spin du noyau composé de valoir $I + \frac{1}{2}$ est

$$\frac{I+1}{2I+1} \text{ tandis qu'elle est } \frac{I}{2I+1} \text{ pour un spin } I - \frac{1}{2}.$$

² Cette longueur de diffusion considère que le noyau est fixe car fixement lié au système diffusant. S'il s'agit de noyaux complètement libres, cette longueur de diffusion est plus petite car le noyau, libre de bouger, recule pendant la collision. Le système se traite alors dans le système du centre de masse neutron-noyau et on arrive à une longueur de diffusion $b_{\text{free}} = bM/(m+M)$, où m est la masse du neutron et M la masse du noyau.

D'où
$$\bar{b} = \frac{I+1}{2I+1} b_+ + \frac{I}{2I+1} b_- \quad (26)$$

Le tableau III donne la valeur des longueurs b_+ ou b_- et $\bar{b}$ de quelques isotopes. De tous les atomes, c'est pour le proton (^1H) que la différence entre b_+ ou b_- est la plus forte.

J'insiste sur le fait que, bien que l'interaction neutron - noyau dépende du spin, il s'agit bien d'interaction nucléaire et non pas d'une interaction magnétique avec le moment magnétique du noyau. Cette dernière existe, mais elle est négligeable: par rapport à l'interaction nucléaire ou à l'interaction magnétique avec les moments électroniques. Elle est plus faible de 3 ordres de grandeur.

La moyenne sur les isotopes

Chaque isotope ayant sa propre longueur de diffusion, et comme il n'y a pas de relation entre la nature de l'isotope et sa position, la longueur de diffusion moyenne d'un élément est donnée par une moyenne où interviennent les abondances isotopiques c_μ :

$$\bar{b} = \sum_{\text{isotopes}} c_\mu \bar{b}_\mu \quad (27)$$

La tableau II, déjà cité pour les sections efficaces d'absorption, donne pour tous les éléments et pour un grand nombre d'isotopes les longueurs de diffusion $\bar{b}$ et $\bar{b}_\mu$.

Longueurs de diffusion complexes et dépendant de la longueur d'onde

Pour les noyaux qui ont un pic de résonance dans la gamme des longueurs d'onde utilisées (et qualifiés de cas pathologiques précédemment), il y a, au voisinage de la résonance, une contribution supplémentaire à la longueur de Fermi. Cette contribution est complexe: elle comprend une partie réelle b' et une partie imaginaire b'' . Toutes deux dépendent de la longueur d'onde et cette dépendance est donnée par les formules de Breit Wigner (Voir Marshall et Lovesey [3], Appendix A ou Mughabghab et al [4] qui donne tous les paramètres pour appliquer les formules de Breit Wigner).

1. 3. 2 L'interaction magnétique

Associé à son spin, le neutron porte un moment magnétique μ_n de $1.91 \mu_{\text{BN}}$. Ce moment ressent tous les champs magnétiques de la matière et, en particulier, les champs émis par les moments magnétiques $\vec{M}$ des atomes dus aux couches électroniques incomplètes. Le couplage est alors le couplage dipôle-dipôle bien connu:

$$V_M(\vec{r}) = \frac{\vec{M} \cdot \vec{\mu}_n}{r^3} - \frac{3 (\vec{M} \cdot \vec{r}) (\vec{\mu}_n \cdot \vec{r})}{r^5} \quad (28)$$

ou encore
$$V_M(\vec{r}) = - \vec{\mu}_n \cdot \text{rot} \left(\frac{\vec{M} \wedge \vec{r}}{r^3} \right) \quad (29)$$

Contrairement à l'interaction nucléaire, cette interaction est très anisotrope: elle dépend très fortement des orientations relatives de $\vec{\mu}_a$, $\vec{M}$ et $\vec{r}$.

En faisant usage des deux identités:

$$\frac{\vec{r}}{r^3} = -\vec{\nabla} \left(\frac{1}{r} \right) \quad (30)$$

et
$$\frac{1}{r} = \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d\vec{q}}{q^2} e^{i\vec{q}\vec{r}} \quad (31)$$

on arrive à l'amplitude de diffusion magnétique:

$$f(\vec{k}, \vec{k}') = \frac{m}{2\pi\hbar^2} \langle \vec{k}' | V_M | \vec{k} \rangle = p \vec{\sigma} \cdot \vec{M}_\perp f(Q) \quad (32)$$

- où p est un facteur qui vaut $0.2696 \cdot 10^{-12} \text{ cm}/\mu_B$ et représente l'amplitude de diffusion à $Q=0$ pour un moment magnétique de $1 \mu_B$.
- où $\vec{M}_\perp$ est la projection du moment magnétique de l'atome sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion:

$$\vec{M}_\perp = \hat{Q} \wedge (\vec{M} \wedge \hat{Q}) = \vec{M} - \hat{Q} (\vec{M} \cdot \hat{Q}) \quad (33)$$

- avec $\hat{Q}$ vecteur unitaire selon le vecteur de diffusion $\left(\hat{Q} = \frac{\vec{Q}}{Q} \right)$
- et où le facteur de forme $f(Q)$ reflète l'extension spatiale du nuage électronique magnétique.

Figure 3: $\vec{M}_\perp$ projection de $\vec{M}$ sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion:

On peut comprendre intuitivement la dépendance angulaire de la diffusion magnétique, pourquoi c'est la composante $\vec{M}_\perp$ de l'aimantation qui intervient et non pas le vecteur aimantation $\vec{M}$:

Dans un phénomène de diffusion, où l'on somme les amplitudes diffusées par tous les points de l'espace diffuseur, avec un facteur de phase $e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}}$, **les plans perpendiculaires à $\vec{Q}$ sont des plans de même phase** : On somme les amplitudes de tous les points d'un tel plan, et on applique à cette somme la phase commune.

On peut décomposer tout moment magnétique $\vec{M}$ selon $\vec{M}_\perp$ et $\vec{M}_\parallel$, une composante perpendiculaire à $\vec{Q}$ et une composante parallèle à $\vec{Q}$.

Figure 3 bis : Lignes de champ et plan de même phase pour $\vec{M}_\parallel$ et $\vec{M}_\perp$

Dans la mesure où, du point de vue magnétique, ce que les neutrons ressentent, ce sont les champs magnétiques émis par l'aimantation, on voit sur la figure 3 bis que pour $\vec{M}_\parallel$ les champs magnétiques s'opposent et s'annulent sur un plan de même phase, alors que ce n'est pas le cas pour $\vec{M}_\perp$.

I-4 Production de faisceaux de neutrons

I. 4. 1 Production de neutrons

Deux réactions sont utilisées en pratique pour produire des neutrons: la fission et la spallation.

Figure 4: réactions de fission et de spallation

Fission

C'est la réaction qui se produit dans un réacteur (et dans une bombe atomique). Un neutron thermique frappe un noyau ^{235}U . Ce noyau devient très excité et se scinde en plusieurs fragments avec émission d'un nombre variable de neutrons: entre 2 et 5, en moyenne 2,5. L'énergie moyenne de ces neutrons est 2 MeV.

Spallation

Un proton de haute énergie, issu d'un accélérateur, frappe une cible composée d'atomes lourds (U, W, Hg..). Ces noyaux lourds éjectent alors un certain nombre de particules dont une vingtaine de neutrons ayant une énergie de quelques MeV.

Les jets de protons sur la cible peuvent être pulsés (ISIS) ou continus (SINQ).

I. 4. 2. Modération des neutrons

Les expériences de diffusion neutronique se font avec des neutrons dont l'énergie va d'une fraction de meV à quelques meV. Avec, au départ des neutrons de quelques MeV, il y a 9 ordres de grandeur à perdre pour pouvoir les utiliser. Cette perte d'énergie s'effectue par collisions avec les noyaux d'un modérateur. Plus ces noyaux sont légers, plus le choc est inélastique et plus efficace est le processus de perte d'énergie. Les éléments les plus utilisés sont l'hydrogène (l'eau), le deutérium (l'eau lourde), le béryllium et le graphite. Après quelques dizaines de collisions, les neutrons sont en équilibre thermique avec le milieu. Il faut pour cela quelques centimètres d'eau ou quelques décimètres d'eau lourde.

Des neutrons en équilibre thermique avec un modérateur à très basse température comme un dewar plein d'hydrogène ou de deutérium liquide (source froide) sont des neutrons de basse énergie (inférieure à 10 meV) ou neutrons froids. Des neutrons en équilibre thermique avec de l'eau à température ambiante sont dits neutrons thermiques (énergie typique 25 meV). Des neutrons en équilibre thermique avec un bloc de graphite chauffé à 2000°C (source chaude) sont des neutrons chauds.

(énergie supérieure à 100 meV). Des spectres caractéristiques des différentes sources sont représentés sur la figure 5.

Figure 5: Spectres caractéristiques des différentes sources

I. 4. 3. Extraction des faisceaux

On obtient un faisceau de neutrons en ouvrant un canal dans la protection et dans le modérateur, trou par lequel les neutrons bien situés et bien dirigés peuvent s'échapper (voir figure 6). Ces neutrons ont donc la direction imposée par le canal. Leurs vitesses (ou leurs longueurs d'onde) sont réparties selon le spectre maxwellien correspondant à la température du modérateur.

Figure 6: Disposition des sources et des canaux à l'ILL

I-5 Détection des neutrons

Le neutron n'ayant pas de charge, il faut pour le détecter lui faire subir une réaction nucléaire et détecter soit les particules chargées soit les photons émis par cette réaction.

I. 5. 1. Compteurs

Compteurs proportionnels

Ils sont constitués d'une chambre à gaz contenant le gaz absorbant. Il s'agit soit de BF_3 enrichi en ^{10}B :

soit de ${}^3\text{He}$:

Les particules chargées émises par la réaction nucléaire ionisent le gaz. Les électrons ainsi émis sont accélérés par les électrodes (voltage de 2 ou 3 kV) et ionisent encore plus d'atomes de gaz. Il en résulte une décharge sur le fil d'anode. les photons γ créent des impulsions beaucoup plus faibles et faciles à éliminer.

Scintillateurs

Les neutrons sont absorbés dans une couche de verre ou de plastique chargée en ${}^6\text{Li}$ et ZnS .

Les particules chargées créent des excitations électroniques qui se désactivent en donnant des photons. Ces photons sont transportés par un guide de lumière vers un photomultiplicateur.

Les scintillateurs ont une zone d'absorption des neutrons moins épaisse que les chambres à gaz. Ils sont de ce fait plus précis pour les expériences de temps de vol.

Chambres à fission

Une feuille d'uranium solide est fixée dans une chambre à gaz. Les particules émises dans la réaction de fission sont comptées dans la chambre à gaz.

I. 5. 2. Multidétecteurs

Plutôt que de déplacer un compteur unique dans toutes les directions de l'espace

Figure 7: PSD à une dimension: (a) à fil résistif, (b) banane multifils

pour compter les neutrons diffusés, il est beaucoup plus rentable de tapisser l'espace de surfaces de détection sensibles.

La première possibilité a été d'utiliser un certain nombre de détecteurs individuels. Puis sont apparus les détecteurs sensibles à la position (Position Sensitive Detector ou PSD) à une ou deux dimensions.

A une dimension on peut utiliser un fil résistif qui permet de localiser la position où le neutron a été absorbé (voir figure 7a) ou bien un grand nombre de fils parallèles comme sur la banane de la figure 7b. A deux dimensions le détecteur implique 2 systèmes de fils, perpendiculaires, qui permettent une localisation en x et en y (voir figure 8).

Figure 8: PSD à deux dimensions

L'usage des multidétecteurs s'est généralisé au cours des deux dernières décennies car c'est un moyen d'augmenter l'efficacité d'un instrument de façon beaucoup plus économique que d'augmenter le flux de la source de neutrons.

II. La diffusion de neutrons: un corréloscope dans l'espace ($\vec{Q}$, ω)

On va voir dans ce chapitre ce que mesure la diffusion de neutrons et comment les mesures sont faites.

II-1 La mesure des neutrons diffusés: une mesure dans l'espace ($\vec{Q}$, ω), transformé de Fourier de l'espace ($\vec{r}$, t)

Dans ce chapitre nous allons esquisser, sans entrer dans les détails, les étapes qui mènent à l'expression de la section efficace de diffusion. Nous suivrons plus particulièrement la diffusion par les noyaux et donnerons par analogie les résultats pour la diffusion par les moments magnétiques.

II. 1. 1. Le phénomène de diffusion

Au cours de la diffusion, le neutron passe d'un état défini par le vecteur d'ondes $\vec{k}$ à un état défini par le vecteur d'onde $\vec{k}'$. Pendant le même temps, le système diffusant passe d'un état λ à un état λ' .

Règle d'or de Fermi

La section efficace différentielle de diffusion est donnée par la règle d'or de Fermi qui donne la probabilité de transition d'un état caractérisé par les deux variables $|\vec{k}, \lambda\rangle$ vers un état caractérisé par $|\vec{k}', \lambda'\rangle$ ³

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \vec{k}', \lambda' | V | \vec{k}, \lambda \rangle \right|^2 \quad (34)$$

où V est le potentiel d'interaction entre le neutron et le système .

Conservation de l'énergie

En considérant que l'énergie de l'ensemble (neutron + système) ne doit pas changer pendant le processus de diffusion,

$$E + E_\lambda = E' + E_{\lambda'} \quad (35)$$

on peut alors exprimer la section efficace différentielle partielle:

³ En fait, le neutron est aussi caractérisé par sa variable de spin qui, au cours de la diffusion, passe de la valeur σ à la valeur σ' . En conséquence, la formule (34) ci-dessus doit être remplacée par la formule suivante :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda' \\ \sigma \rightarrow \sigma'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \vec{k}', \lambda', \sigma' | V | \vec{k}, \lambda, \sigma \rangle \right|^2$$

Dans le cadre de cette introduction, par soucis de simplification, nous ne traiterons pas la variable de spin. Les résultats donnés dans ce chapitre ne seront exacts que pour la diffusion par des neutrons non polarisés.

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda'}} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \left| \langle \vec{k}', \lambda' | V | \vec{k}, \lambda \rangle \right|^2 \delta(E' + E_{\lambda'} - E - E_{\lambda}) \quad (36)$$

Transformée de Fourier de la fonction potentiel

Le potentiel d'interaction entre le neutron et le système diffuseur est la somme des potentiels d'interaction entre le neutron et les différents centres atomiques j :

$$V(\vec{r}) = \sum_j V_j(\vec{r}_j) = \sum_j V_j(\vec{r} - \vec{R}_j) \quad (37)$$

Où $\vec{r}$ est la coordonnée absolue du neutron, $\vec{R}_j$ celle de l'atome j et $\vec{r}_j = \vec{r} - \vec{R}_j$ la coordonnée du neutron par rapport à l'atome j . L'intégration sur $\vec{r}$ donne :

$$\langle \vec{k}', \lambda' | V | \vec{k}, \lambda \rangle = \sum_j V_j(\vec{Q}) \langle \lambda' | e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j} | \lambda \rangle \quad (38)$$

avec $\vec{Q} = \vec{k} - \vec{k}'$, vecteur de diffusion, $V_j(\vec{Q})$ étant la transformée de Fourier du potentiel $V_j(\vec{r}_j)$

$$V_j(\vec{Q}) = \int e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}_j} V_j(\vec{r}_j) d\vec{r}_j \quad (39)$$

II. 1. 2. Diffusion par les noyaux

Comme potentiel $V_j(\vec{r}_j)$, nous prenons le pseudo-potential de Fermi:

$$V_j(\vec{r}_j) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_j \delta(\vec{r}_j) \quad (23)$$

ce qui nous donne comme transformée de Fourier du potentiel :

$$V_j(\vec{Q}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_j \quad (40)$$

et pour la section efficace différentielle partielle:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda'}} = \frac{k'}{k} \left| \langle \lambda' | \sum_j b_j e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j} | \lambda \rangle \right|^2 \delta(E' + E_{\lambda'} - E - E_{\lambda}) \quad (41)$$

Représentation intégrale de la fonction de Dirac pour l'énergie

On utilise la forme intégrale de la fonction de Dirac δ pour l'énergie :

$$\delta(\gamma) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i\gamma t} dt \quad (42)$$

Avec $E-E' = \hbar\omega$, l'énergie cédée au système par le neutron :

$$\delta(E' + E_{\lambda'} - E - E_{\lambda}) = \delta(E_{\lambda'} - E_{\lambda} - \hbar\omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(E_{\lambda'} - E_{\lambda})\frac{t}{\hbar}} e^{-i\omega t} dt \quad (43)$$

Les états $|\lambda\rangle$ et $|\lambda'\rangle$ ont comme valeurs propres E_{λ} et $E_{\lambda'}$.

Il en résulte les relations suivantes :

$$\begin{aligned} H|\lambda\rangle &= E_{\lambda}|\lambda\rangle & H|\lambda'\rangle &= E_{\lambda'}|\lambda'\rangle \\ e^{-iH\frac{t}{\hbar}}|\lambda\rangle &= e^{-iE_{\lambda}\frac{t}{\hbar}}|\lambda\rangle & e^{-iH\frac{t}{\hbar}}|\lambda'\rangle &= e^{-iE_{\lambda'}\frac{t}{\hbar}}|\lambda'\rangle \end{aligned} \quad (44)$$

et pour la section efficace :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\substack{\vec{k} \rightarrow \vec{k}' \\ \lambda \rightarrow \lambda'}} = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \sum_{j'} b_j^* b_{j'} \langle \lambda | e^{-i\vec{Q}\vec{R}_j} | \lambda' \rangle \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \lambda' | e^{iH\frac{t}{\hbar}} e^{i\vec{Q}\vec{R}_{j'}} e^{-iH\frac{t}{\hbar}} | \lambda \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (45)$$

Somme sur $|\lambda'\rangle$ et moyenne sur $|\lambda\rangle$

Dans une expérience de diffusion neutronique, on ne se limite pas à la section efficace liée à la transition d'un système qui passe de l'état $|\lambda\rangle$ à l'état $|\lambda'\rangle$.

-Pour un état initial $|\lambda\rangle$, on fait la somme des sections efficaces correspondant à tous les états finaux $|\lambda'\rangle$ du système.

-D'autre part on fait une somme sur tous les états initiaux $|\lambda\rangle$ possibles, en tenant compte de la probabilité p_{λ} pour le système de se trouver dans cet état initial, compte tenu de sa température.

On applique la relation de fermeture :

$$\sum_{\lambda'} \langle \lambda | A | \lambda' \rangle \langle \lambda' | B | \lambda \rangle = \langle \lambda | AB | \lambda \rangle \quad (46)$$

et on utilise l'opérateur de Heisenberg dépendant du temps :

$$\vec{R}_j(t) = e^{iH\frac{t}{\hbar}} \vec{R}_j e^{-iH\frac{t}{\hbar}} \quad (47)$$

avec

$$\vec{R}_j(0) = \vec{R}_j \quad (48)$$

et on arrive à l'expression de la section efficace différentielle pour la diffusion nucléaire :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^N = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \sum_{j,j'} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\langle b_j^\dagger b_{j'} e^{-i\vec{Q}\vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q}\vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \quad (49)$$

où la valeur entre crochets $\langle A \rangle$ représente la moyenne thermique de l'opérateur A à la température T , moyenne donnée par la formule:

$$\langle A \rangle = \sum_{\lambda'} p_{\lambda'} \langle \lambda' | A | \lambda' \rangle \quad (50)$$

Cette expression (49) de la section efficace différentielle partielle est une fonction du vecteur de diffusion $\vec{Q}$ et du transfert d'énergie $\hbar\omega$

Si on définit un opérateur "densité" nucléaire $\hat{\rho}(\vec{r}, t)$ comme une densité de noyaux pondérée par les longueurs de Fermi de chaque noyau :

$$\hat{\rho}(\vec{r}, t) = \sum_j b_j \delta(\vec{r} - \vec{R}_j(t)) \quad (51)$$

la section efficace différentielle partielle est la double transformée de Fourier de la fonction de corrélation de cette densité nucléaire avec elle-même.

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)^N = \text{DTF} \left[\hat{\rho}(\vec{r}, t) \middle| \hat{\rho}(\vec{0}, 0) \right] \quad (52)$$

Cette notion d'autocorrélation est expliquée en termes de probabilités dans le paragraphe suivant.

II. 1. 3. Un corréloscope dans l'espace $(\vec{r}, t)$

Pour comprendre ce que représente la fonction de corrélation, nous allons donner l'exemple développé par Scherm et Fak [5] sur le "corréloscope à mouches". Des mouches volent dans une pièce qui représente notre espace direct ou espace $(\vec{r}, t)$. Nous voulons les étudier à l'aide d'un corréloscope constitué de 2 viseurs A et B reliés par une règle graduée et par un chronomètre (figure 9).

Figure 9: un corréloscope à mouches, d'après [5]

On commence par chercher une mouche dans le viseur A. Quand on en voit une, on met la règle à zéro en A et on déclenche le chronomètre. On se met alors à chercher une mouche dans le viseur B. Quand on en voit une, la même ou une autre, on note sa coordonnée d'espace $\vec{r}$ et sa coordonnée de temps t . On recommence l'opération un très grand nombre de fois (d'abord le viseur A, puis le viseur B). On a alors

mesuré $P[\rho(\vec{r}, t) | \rho(\vec{0}, 0)]$, la probabilité conditionnelle d'avoir une mouche en $(\vec{r}, t)$ si on en a vu une en $(\vec{0}, 0)$.

C'est la fonction de l'espace réel que l'on cherche à déterminer par la diffusion de neutrons: **la probabilité conditionnelle d'avoir une particule en $(\vec{r}, t)$ s'il en existe une en $(\vec{0}, 0)$.**

En fait les neutrons ne mesurent pas directement cette fonction de corrélation, mais une fonction de $(\vec{Q}, \omega)$ donnée par la formule (49), qui est **sa double transformée de Fourier par rapport à l'espace et au temps.**

II. 1. 4. Section efficace pour la diffusion magnétique

Pour la diffusion magnétique, la formule (49) s'applique,

avec b_j remplacé par $p \vec{\sigma} \cdot \vec{M}_{j,j} f_j(Q)$

où $p = 0.2696 \cdot 10^{-12} \text{ cm} / \mu_B$ est une constante

$\vec{M}_{j,j}$ est la projection du moment magnétique $\vec{M}_j$ sur le plan perpendiculaire à $\vec{Q}$

$f_j(Q)$ est le facteur de forme du nuage magnétique de l'atome j

$\vec{\sigma}$ est l'opérateur vectoriel "matrices de Pauli" du neutron ($\vec{s} = \frac{\hbar}{2} \vec{\sigma}$)

Ce qui donne, pour des neutrons non polarisés:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^M = \frac{p^2}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \sum_{j,j'} \int_{-\infty}^{+\infty} \langle \vec{M}_{j,j'}^*(0) \cdot \vec{M}_{j,j'}(t) f_{j,j'} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j,j'}(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j,j'}(t)} \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (53)$$

Il s'agit là encore d'une fonction dans l'espace $(\vec{Q}, \omega)$ qui est la double transformée de Fourier par rapport à l'espace et au temps de la fonction de corrélation magnétique avec elle même:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)^M = \text{DTF} P[\vec{m}_\perp(\vec{r}, t) | \vec{m}_\perp(\vec{0}, 0)] \quad (54)$$

où $\vec{m}(\vec{r}, t)$ représente la densité d'aimantation, fonction de l'espace et du temps.

II. 1. 5. Section efficace totale

Avec des neutrons non polarisés, il n'y a pas d'interférence entre les amplitudes nucléaires et les amplitudes magnétiques. La section efficace totale est la somme de la section efficace nucléaire et de la section efficace magnétique :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)^{\text{Tot}} = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)^N + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)^M \quad (55)$$

II-2 Sections efficaces cohérentes et incohérentes

C'est là une particularité très générale et très importante de la diffusion des neutrons qui est due au fait que les différents atomes d'un même élément diffusent les neutrons avec des longueurs de diffusions qui ne sont pas les mêmes d'un atome à l'autre. Ce phénomène existe pour quelques cas de figure dans la diffusion des rayons X, mais n'a pas le caractère systématique que nous rencontrons ici.

En diffusion nucléaire, la différence de longueurs de diffusion provient d'une part de la présence d'isotopes qui ont chacun leur propre longueur de Fermi, et d'autre part, dans le cas d'isotopes ayant un spin nucléaire, de l'existence de deux possibilités: b_+ ou b_- comme longueur de diffusion.

Pour simplifier l'exposé, **on va supposer dans ce qui suit que le système est monoatomique** et que sa longueur de Fermi est réelle. Comme tous les atomes sont chimiquement équivalents, il n'y a pas de relation entre la valeur de b_j et sa position $\vec{R}_j$:

$$\langle b_j b_{j'} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \rangle = \langle b_j b_{j'} \rangle \langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \rangle \quad (56)$$

La formule (49) s'écrit alors:

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^N = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \langle b_j b_{j'} \rangle \sum_{jj'} \int_{-\infty}^{+\infty} \langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \rangle e^{-i\omega t} dt \quad (57)$$

Intéressons-nous à $\langle b_j b_{j'} \rangle$

Pour chaque atome, écrivons que:

$$b_j = \bar{b} + \Delta b_j \quad (58)$$

où Δb_j représente l'écart à la moyenne, ce qui implique que sa propre moyenne est nulle : $\langle \Delta b_j \rangle = 0$

On va devoir évaluer la moyenne des produits $b_j b_{j'}$ pris sur tous les couples jj'

$$\begin{aligned} \langle b_j b_{j'} \rangle &= \langle (\bar{b} + \Delta b_j)(\bar{b} + \Delta b_{j'}) \rangle \\ &= \langle \bar{b}^2 + \bar{b}\Delta b_j + \bar{b}\Delta b_{j'} + (\Delta b_j)(\Delta b_{j'}) \rangle \end{aligned} \quad (59)$$

Les moyennes du deuxième et du troisième terme sont nulles compte tenu de (58). Quant à la moyenne sur $(\Delta b_j)(\Delta b_{j'})$, il faut distinguer:

$$\begin{aligned} \langle (\Delta b_j)(\Delta b_{j'}) \rangle &= 0 & \text{si } j' \neq j \\ &= \overline{(\Delta b)^2} & \text{si } j' = j \end{aligned} \quad (60)$$

et la section efficace différentielle partielle se sépare en deux parties :

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^N &= \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} (\bar{b})^2 \sum_{j,j'} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \\ &+ \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} (\overline{\Delta b})^2 \sum_j \int_{-\infty}^{+\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (61)$$

- une partie "**cohérente**" qui représente l'**interaction entre paires d'atomes** $(\sum_{j,j'})$, construite avec la moyenne du carré des longueurs de Fermi $(\bar{b})^2$
- une partie "**incohérente**" qui représente l'**interaction de chaque atome avec lui-même** $(\sum_j)$, construite avec la moyenne du carré de l'écart à la moyenne $(\overline{\Delta b})^2$

Autre expression pour la moyenne du carré de l'écart $(\overline{\Delta b})^2$

$$\begin{aligned} (\Delta b_j)^2 &= (b_j - \bar{b})^2 = (b_j^2 - 2\bar{b}b_j + (\bar{b})^2) \\ (\overline{\Delta b})^2 &= (\overline{b^2} - 2\bar{b}\bar{b} + (\bar{b})^2) = \overline{b^2} - (\bar{b})^2 \end{aligned} \quad (62)$$

Pour chaque élément, on définit

- sa section efficace totale $\sigma = 4\pi \overline{b^2}$
- sa section efficace cohérente $\sigma_c = 4\pi (\bar{b})^2$
- sa section efficace incohérente $\sigma_i = 4\pi \overline{b^2} - 4\pi (\bar{b})^2$

et on a bien :

$$\sigma = \sigma_c + \sigma_i \quad (63)$$

Dans le tableau II sont tabulées, pour chaque isotope et pour chaque élément, les longueurs de Fermi moyennes $\bar{b}$ et les sections efficaces totales $\sigma = 4\pi \overline{b^2}$. On peut en déduire la section efficace cohérente $\sigma_c = 4\pi (\bar{b})^2$ et la section efficace incohérente $\sigma_i = \sigma - \sigma_c$.

Pour les systèmes monoatomiques, on peut donc remplacer dans l'expression des sections efficaces différentielles partielles $(\bar{b})^2$ par $\frac{\sigma_c}{4\pi}$ et $(\overline{\Delta b})^2$ par $\frac{\sigma_i}{4\pi}$. On a alors :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right) = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{coh}} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{inc}} \quad (64)$$

avec

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{coh}} = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \frac{\sigma_c}{4\pi} \sum_{j,j'} \int_{-\infty}^{+\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \quad (65)$$

et

$$\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'} \right)_{inc} = \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \frac{\sigma_i}{4\pi} \sum_j \int_{-\infty}^{+\infty} \left\langle e^{-i\vec{Q}\vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q}\vec{R}_j(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \quad (66)$$

II-3 Fonctions de paires, fonctions intermédiaires et facteurs de structure dynamiques

II. 3. 1. Fonctions de corrélation de paires

Nous avons défini un opérateur "densité nucléaire" :

$$\hat{\rho}(\vec{r}, t) = \sum_j b_j \delta(\vec{r} - \vec{R}_j(t)) \quad (51)$$

En supposant, pour simplifier, que le système est monoatomique, on utilise l'opérateur "densité de particules" :

$$\rho(\vec{r}, t) = \sum_j \delta(\vec{r} - \vec{R}_j(t)) \quad (67)$$

La fonction de corrélation de paires dépendant du temps est :

$$\begin{aligned} G(\vec{r}, t) &= \frac{1}{N} \int \langle \rho(\vec{r}', 0) \rho(\vec{r}' + \vec{r}, t) \rangle d\vec{r}' \\ &= \frac{1}{N} \sum_{j,j'} \left\langle \delta[\vec{r}' - \vec{R}_j(0)] \delta[\vec{r}' + \vec{r} - \vec{R}_{j'}(t)] \right\rangle d\vec{r}' \end{aligned} \quad (68)$$

Cette fonction de corrélation de paires dépendant du temps $G(\vec{r}, t)$ correspond à la probabilité de trouver une particule en $(\vec{r}, t)$ sachant qu'il y en avait une en $(\vec{0}, 0)$ et que nous avons désignée par $P[\rho(\vec{r}, t) | \rho(0, 0)]$ dans le paragraphe du corréloscope.

De la même façon, la fonction d'autocorrélation de paires (self) dépendant du temps est :

$$G_s(\vec{r}, t) = \frac{1}{N} \sum_j \left\langle \delta[\vec{r}' - \vec{R}_j(0)] \delta[\vec{r}' + \vec{r} - \vec{R}_j(t)] \right\rangle d\vec{r}' \quad (69)$$

qui correspond, dans l'image du corréloscope à mouches, à la probabilité de trouver en $(\vec{r}, t)$ la même mouche qu'on avait trouvée en $(\vec{0}, 0)$.

Les sections efficaces différentielles partielles, cohérentes et incohérentes, sont, à un coefficient près, les doubles transformées de Fourier de $G(\vec{r}, t)$ et $G_s(\vec{r}, t)$.

$G(\vec{r}, t)$ et $G_s(\vec{r}, t)$ ont la dimension d'un [volume]⁻¹.

II. 3. 2. Fonctions intermédiaires

On est parfois amené à utiliser des transformées de Fourier des fonctions $G(\vec{r}, t)$ et $G_s(\vec{r}, t)$, qui ne sont transformées de Fourier que par rapport à la variable d'espace $\vec{r}$. On définit ainsi :

La fonction intermédiaire $I(\vec{Q}, t)$:

$$\begin{aligned} I(\vec{Q}, t) &= \int G(\vec{r}, t) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{j,j'} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle \end{aligned} \quad (70)$$

et la fonction intermédiaire self $I_s(\vec{Q}, t)$:

$$\begin{aligned} I_s(\vec{Q}, t) &= \int G_s(\vec{r}, t) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \\ &= \frac{1}{N} \sum_j \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \right\rangle \end{aligned} \quad (71)$$

$I(\vec{Q}, t)$ et $I_s(\vec{Q}, t)$ sont sans dimension.

II. 3. 3. Facteurs de structure dynamiques

Pour arriver aux sections efficaces différentielles partielles, il reste à transformer de Fourier $I(\vec{Q}, t)$ et $I_s(\vec{Q}, t)$ par rapport au temps. On définit alors le facteur de structure dynamique $S(\vec{Q}, \omega)$ ⁴:

$$\begin{aligned} S(\vec{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} I(\vec{Q}, t) e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_{j,j'} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (72)$$

et le facteur de structure dynamique incohérent $S_{inc}(\vec{Q}, \omega)$:

$$\begin{aligned} S_{inc}(\vec{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} I_s(\vec{Q}, t) e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{1}{2\pi\hbar N} \int_{-\infty}^{\infty} \sum_j \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (73)$$

$S(\vec{Q}, \omega)$ et $S_{inc}(\vec{Q}, \omega)$ ont comme dimension une [énergie]⁻¹.

⁴ Le facteur de structure dynamique est aussi appelé "scattering law", sans qu'il n'y ait d'explication logique pour ce terme

II. 3. 4. Sections efficaces différentielles partielles

Les sections efficaces peuvent donc s'écrire (pour un système monoatomique) :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{coh}} = \frac{k'}{k} \frac{\sigma_c}{4\pi} N S(\vec{Q}, \omega) \quad (74)$$

et

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\text{inc}} = \frac{k'}{k} \frac{\sigma_i}{4\pi} N S_{\text{inc}}(\vec{Q}, \omega) \quad (75)$$

Dans ces deux expressions, la première partie dépend des particularités de l'expérience et des neutrons, tandis que la deuxième partie est caractéristique du système étudié et représente sa fonction de réponse.

II-4 Sections efficaces "distincte" et "self"

En passant de la formule (56) à la formule (64), nous avons séparé la section efficace d'un système monoatomique en une section efficace cohérente et une section efficace incohérente :

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^N &= \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} (\bar{b})^2 \sum_{j'=-\infty}^{+\infty} \int \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \\ &+ \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \left(\overline{(b)^2} - (\bar{b})^2 \right) \sum_j \int \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (61)$$

La partie cohérente (le premier terme) qui représente l'interaction entre paires d'atomes ($\sum_{j'}$), incluait aussi, parmi toutes les paires, l'interaction de l'atome j avec lui-même ($j'=j$). La partie incohérente (le deuxième terme) ne représentait que l'interaction de l'atome j avec lui-même ($\sum_j$).

Il est parfois intéressant de faire une autre partition de la section efficace de la formule (51), une partition légèrement différente en **distincte** ($j \neq j'$) et **self** ($j=j'$) :

$$\begin{aligned} \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\vec{k} \rightarrow \vec{k}'}^N &= \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} (\bar{b})^2 \sum_{j \neq j'} \int \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \\ &+ \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{k'}{k} \overline{(b)^2} \sum_j \int \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t)} \right\rangle e^{-i\omega t} dt \end{aligned} \quad (76)$$

Dans la partie self (le deuxième terme de cette partition) se trouvent regroupés le terme "cohérent self" en $(\bar{b})^2$ et le terme "incohérent self" en $(\overline{(b)^2} - (\bar{b})^2)$, pour donner simplement un terme en $\overline{(b)^2}$:

II-5 Gain et perte d'énergie. Le principe de la balance détaillée

Par convention, $\hbar\omega$ est positif lorsque le neutron cède de l'énergie à l'échantillon (le système) : le neutron perd de l'énergie et le système en gagne lorsqu'il passe de λ à λ' .

Il peut se produire le processus de diffusion inverse où le système passe de λ' à λ en perdant de l'énergie tandis que le neutron gagne cette énergie :

Pour les deux processus, les facteurs de structure dynamiques s'écriront exactement de la même façon, sauf la probabilité de trouver le système en λ ou λ' (p_λ ou $p_{\lambda'}$ qui interviennent dans la moyenne thermique $\langle \dots \rangle$).

$$p_{\lambda'} = e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}} p_\lambda \quad (77)$$

donc :

$$S(-\vec{Q}, -\omega) = e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}} S(\vec{Q}, \omega) \quad (78)$$

Si le système est centro-symétrique, on a alors $S(-\vec{Q}, \omega) = S(\vec{Q}, \omega)$, et on peut écrire:

$$S(\vec{Q}, -\omega) = e^{-\frac{\hbar\omega}{k_B T}} S(\vec{Q}, \omega) \quad (79)$$

C'est le principe de la balance détaillée. Il indique que si on travaille en perte d'énergie pour le neutron ($\hbar\omega > 0$), l'intensité diffusée sera plus forte car, entre les deux états λ et λ' , la probabilité est plus forte de trouver le système dans l'état de plus basse énergie.

II-5 Limite de $G(r, t)$ pour $t \rightarrow \infty$

Diffusion élastique et diffusion inélastique

Pour tous les systèmes, on peut décomposer la fonction de corrélation de paires dépendant du temps de la façon suivante :

$$G(\vec{r}, t) = G(\vec{r}, \infty) + G'(\vec{r}, t) \quad (80)$$

avec $\lim_{t \rightarrow \infty} G'(\vec{r}, t) = 0$

De même, on peut décomposer la fonction intermédiaire :

$$I(\vec{Q}, t) = I(\vec{Q}, \infty) + I'(\vec{Q}, t) \quad (81)$$

avec $\lim_{t \rightarrow \infty} I'(\vec{Q}, t) = 0$

Ce qui nous donne pour le facteur de structure dynamique :

$$\begin{aligned} S(\vec{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} [I(\vec{Q}, \infty) + I'(\vec{Q}, t)] e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{\delta(\omega)}{\hbar} I(\vec{Q}, \infty) + \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} I'(\vec{Q}, t) e^{-i\omega t} dt \\ &= S^{cl}(\vec{Q}, \omega) + S^{incl}(\vec{Q}, \omega) \end{aligned} \quad (82)$$

Ce qui donne pour la section efficace différentielle partielle :

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{coh} = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{coh}^{cl} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{coh}^{incl} \quad (83)$$

avec

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{coh}^{cl} = \frac{k'}{k} \frac{\sigma_c}{4\pi} \frac{N}{\hbar} \delta(\omega) I(\vec{Q}, \infty) \quad (84)$$

en notant que $k=k'$ et après intégration sur $E' = \hbar\omega$:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{coh}^{cl} = \int \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{coh}^{cl} dE' = \frac{\sigma_c}{4\pi} N I(\vec{Q}, \infty) \quad (85)$$

avec

$$I(\vec{Q}, \infty) = \frac{1}{N} \sum_{j,j'} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(\infty)} \right\rangle \quad (86)$$

et

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{coh}^{cl} = \frac{\sigma_c}{4\pi} \sum_{j,j'} \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(\infty)} \right\rangle \quad (87)$$

Par exemple, pour un cristal rigide, formé d'atomes identiques et fixes, aux noeuds d'un réseau de Bravais

$$\rho(\vec{r}) = \sum_i \delta(\vec{r} - \vec{l}_i)$$

on a comme section efficace différentielle cohérente :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{coh}^{cl} = \frac{\sigma_c}{4\pi} \left| \sum_i e^{i\vec{Q} \cdot \vec{l}_i} \right|^2 \quad (88)$$

C'est là un résultat bien connu: la somme $\sum_i e^{i\vec{Q} \cdot \vec{l}_i}$ vaut en général zéro, sauf si le vecteur $\vec{Q}$ se trouve coïncider avec un noeud du réseau réciproque. En dehors de ces noeuds, la section efficace cohérente est nulle.

En effet :

$$\left| \sum_{\vec{r}} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \right|^2 = \frac{N(2\pi)^3}{v_0} \sum_{\vec{r}} \delta(\vec{Q} - \vec{r}) \quad (89)$$

où N représente le nombre de mailles (ici d'atomes), v_0 le volume d'une maille du réseau direct et où les $\vec{r}$ correspondent aux différents noeuds du réseau réciproque⁵. On a alors la loi de Bragg pour un cristal monoatomique rigide :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{coh}}^{\text{el}} = \frac{N(2\pi)^3}{v_0} (\bar{b})^2 \sum_{\vec{r}} \delta(\vec{Q} - \vec{r}) \quad (90)$$

Cette loi se généralise pour un cristal formé d'atomes non identiques qui vibrent autour de leur position d'équilibre :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{coh}}^{\text{el}} = \frac{N(2\pi)^3}{v_0} \left| \sum_j \bar{b}_j e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j} e^{-W_j} \right|^2 \sum_{\vec{r}} \delta(\vec{Q} - \vec{r}) \quad (91)$$

avec un facteur de structure nucléaire

$$F_N(\vec{Q}) = \sum_j \bar{b}_j e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j} e^{-W_j} \quad (92)$$

qui porte sur tous les atomes j d'une maille et qui inclut le facteur de Debye-Waller e^{-W_j} de chaque atome.

On a un traitement équivalent pour la diffusion incohérente:

$$G_s(\vec{r}, t) = G_s(\vec{r}, \infty) + G'_s(\vec{r}, t) \quad (93)$$

avec $\lim_{t \rightarrow \infty} G'_s(\vec{r}, t) = 0$

$$I_s(\vec{Q}, t) = I_s(\vec{Q}, \infty) + I'_s(\vec{Q}, t) \quad (94)$$

avec $\lim_{t \rightarrow \infty} I'_s(\vec{Q}, t) = 0$

$$\begin{aligned} S_{\text{inc}}(\vec{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} [I_s(\vec{Q}, \infty) + I'_s(\vec{Q}, t)] e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{\delta(\omega)}{\hbar} I_s(\vec{Q}, \infty) + \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} I'_s(\vec{Q}, t) e^{-i\omega t} dt \\ &= S_{\text{inc}}^{\text{el}}(\vec{Q}, \omega) + S_{\text{inc}}^{\text{inel}}(\vec{Q}, \omega) \end{aligned} \quad (95)$$

et

⁵ On rappelle ici que les 3 vecteurs de base du réseau réciproque sont définis par

$$\vec{\tau}_1 = \frac{2\pi}{v_0} \vec{a}_2 \wedge \vec{a}_3, \quad \vec{\tau}_2 = \frac{2\pi}{v_0} \vec{a}_3 \wedge \vec{a}_1, \quad \vec{\tau}_3 = \frac{2\pi}{v_0} \vec{a}_1 \wedge \vec{a}_2$$

$$\left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'} \right)_{inc} = \left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'} \right)_{inc}^{el} + \left(\frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'} \right)_{inc}^{inel} \quad (96)$$

qui, pour la partie élastique, après intégration sur E' donne :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{inc}^{el} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \sum_j \left\langle e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(\infty)} \right\rangle \quad (97)$$

Dans le cas du cristal formé d'atomes identiques, fixes, aux noeuds du réseau de Bravais,

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{inc}^{el} = \frac{\sigma_i}{4\pi} \sum_i e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{r}} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} = \frac{N\sigma_i}{4\pi} \quad (98)$$

La diffusion incohérente, dans ce cas est isotrope car elle est indépendante de $\vec{Q}$.

Mais si on considère un cristal où les atomes vibrent autour de leur position d'équilibre, on retrouve le facteur de Debye-Waller qui représente la corrélation qui existe entre la position de l'atome à un moment donné et la position de ce même atome beaucoup plus tard :

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{inc}^{el} = \sum_j \frac{(\sigma_i)_j}{4\pi} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(\infty)} = N \frac{\sigma_i}{4\pi} e^{-2W} \quad (99)$$

II-5 Intégrale du facteur de structure dynamique sur les échanges d'énergie: la limite $G(r,0)$ ou la photo instantanée

Si, partant de l'expression du facteur de structure dynamique,

$$S(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \int d\vec{r} G(\vec{r}, t) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \quad (100)$$

on l'intègre sur les échanges d'énergie $\hbar\omega$,

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} d(\hbar\omega) S(\vec{Q}, \omega) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \int d\vec{r} G(\vec{r}, t) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dt \delta(t) \int d\vec{r} G(\vec{r}, t) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \end{aligned} \quad (101)$$

et on arrive à l'intégrale suivante:

$$S(\vec{Q}) = \int_{-\infty}^{\infty} d(\hbar\omega) S(\vec{Q}, \omega) = \int d\vec{r} G(\vec{r}, 0) e^{i\vec{Q} \cdot \vec{r}} \quad (102)$$

qui est donc la transformée de Fourier de l'espace de la fonction de paires instantanée (snapshot).

Pour les études de structure, on utilise en général la section efficace élastique. Mais pour les liquides, la diffusion n'est jamais vraiment élastique. En effet, la section efficace différentielle strictement élastique est donnée par:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{coh}}^{\text{el}} = \sum_{j,j'} \langle \bar{b}_j \bar{b}_{j'} e^{-i\vec{Q} \cdot \vec{R}_j(t=0)} e^{i\vec{Q} \cdot \vec{R}_{j'}(t=\infty)} \rangle \quad (87)$$

et, pour les liquides, il n'y a pas de corrélation entre $\vec{R}_j(t=0)$ et $\vec{R}_{j'}(t=\infty)$. La courbe de diffusion est donc inélastique, et sa largeur en ω est d'autant plus grande que Q est plus élevé. On étudie néanmoins la structure des liquides en intégrant les neutrons diffusés de toutes les énergies pour atteindre la corrélation structurale instantanée à $t=0$. Comme la fenêtre d'échange d'énergie sur laquelle on peut intégrer est limitée, il faut appliquer une correction d'inélasticité dite correction de Placzek.

II-6 Les instruments de diffusion neutronique

II. 6. 1. Les diffractomètres (diffusion élastique)

Pour l'étude des structures, on n'est intéressé que par la fonction $S(\vec{Q})$. Les instruments utilisés négligent la dépendance en ω et considèrent que toute la diffusion est élastique. La diffusion élastique par la matière cristallisée est le plus souvent appelée "diffraction" et les appareils correspondants sont les "diffractomètres".

Une première série d'instruments implique un faisceau incident monochromatique. Ce faisceau est obtenu par réflexion de Bragg sur une série de plans réflecteurs (hkl) d'un gros cristal appelé monochromateur :

$$2d_{hkl} \sin\theta = \lambda$$

Ce monochromateur sélectionne une longueur d'onde unique (un seul $\vec{k}$) pour le faisceau tombant sur l'échantillon. Un détecteur mesure l'intensité (section efficace différentielle) diffusée dans la direction $\vec{k}'$ où il se trouve. Le détecteur bouge et explore les différents $\vec{k}'$ (figure 10).

Figure 10: diffractomètre à faisceau monochromatique

En diffraction classique, on distingue

- les diffractomètres à poudres
- les diffractomètres à monocristaux
 - avec cercle d'Euler (4 cercles)
 - à bras levant

Pour la diffusion neutronique à petits angles (DNPA), on utilise une grande longueur d'onde et le monochromateur est remplacé par un sélecteur de vitesse mécanique (figure 11).

Figure 11: diffractomètre de diffusion à petits angles

Une deuxième série d'instruments est basée sur la mesure du temps de vol. Dans ce type d'instruments, les neutrons arrivent par bouffées, soit que la source est pulsée, soit que le faisceau primaire est haché par un chopper. Là encore, on considère que toute la diffusion est élastique et, pour explorer les différents vecteurs de diffusion $\vec{Q}$, on fixe le détecteur (angle fixe) et on mesure les différentes longueurs d'onde qui sont diffusées (figure 12). En effet, pour chaque neutron détecté, on enregistre le temps τ qu'il a mis pour aller du chopper jusqu'au compteur, et sa vitesse est donnée par:

$$v = \frac{\tau}{L_1 + L_2}$$

Figure 12: diffractomètre à temps de vol

II. 6. 2. Les spectromètres (diffusion inélastique)

Ces appareils permettent de connaître l'énergie (ou le vecteur d'onde) des neutrons avant et après le processus de diffusion.

Spectromètre à triple axe

Figure 13: Spectromètre à triple axe

C'est un appareil qui s'obtient en ajoutant, après l'échantillon, un troisième axe à un diffractomètre à faisceau monochromatique. Ce troisième axe porte un cristal analyseur qui permet, par réflexion de Bragg, de mesurer l'énergie des neutrons diffusés par l'échantillon (figure 13)

Spectromètre à temps de vol (ou time of flight)

Il existe plusieurs façons d'utiliser le temps de vol et de le combiner à la diffraction de Bragg sur un cristal pour analyser les énergies avant et après diffusion sur l'échantillon comme le montre le tableau IV.

Tableau IV
Les différents types de spectromètres à temps de vol

avant diffusion	après diffusion	spectromètre
temps de vol	temps de vol	spectromètre à double chopper
cristal	temps de vol	spectromètre à cristal tournant et temps de vol
temps de vol	cristal	spectromètre à temps de vol et géométrie inverse

II. 6. 3. Les instruments inélastiques à très haute résolution

Les instruments à rétrodiffusion (ou backscattering)

Ce sont des appareils qui, comme les spectromètres à triple axe, comportent un monochromateur, un échantillon et un analyseur, mais où monochromateur et analyseur sont des cristaux parfaits fonctionnant en rétrodiffusion ($2\theta=180^\circ$).

En différenciant la loi de Bragg pour obtenir la résolution en longueur d'onde

$$\left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda}\right)^2 = \left(\frac{\Delta d}{d}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\theta}{\tan\theta}\right)^2 \quad (103)$$

on voit que le deuxième terme disparaît pratiquement pour $\theta=90^\circ$ et la résolution ne dépend plus que du premier terme, c'est à dire de la perfection du cristal (monochromateur ou analyseur).

Les neutrons rétrodiffractés par le monochromateur reviennent sur leurs pas et, grâce à un déflecteur (un cristal à large bande passante), sont envoyés sur l'échantillon. Après diffusion par l'échantillon, les neutrons sont rétrodiffractés par l'analyseur, retraversent l'échantillon et tombent sur un détecteur. En fait il y a un grand nombre d'analyseurs et de détecteurs (figure 14). Un chopper permet d'éliminer les neutrons qui iraient directement de l'échantillon au détecteur, sans passer par l'analyseur.

Figure 14: Spectromètre à rétrodiffusion

L'exploration en énergie se fait par balayage de la longueur d'onde incidente
 -soit par effet Doppler, en imprimant un mouvement au monochromateur
 -soit par chauffage du monochromateur, ce qui entraîne une variation continue du paramètre d .

On peut ainsi atteindre des résolutions meilleures que le μeV .

Les instruments à écho de spin (ou neutron spin echo)

Ce sont des instruments pour lesquels la mesure du changement de vitesse du neutron avant et après le processus de diffusion se fait en étudiant le nombre de rotations de Larmor (quelques millions) que font les spins des neutrons en passant dans une zone de champ magnétique: les neutrons les plus rapides font moins de précessions, les neutrons les plus lents font plus de précessions.

Le faisceau est rendu monochromatique par un sélecteur de vitesses, polarisé par un supermiroir et les spins sont mis en rotation autour du champ B_0 dans un premier solénoïde (figure 15). Cependant, dû à la distribution en longueurs d'onde $\Delta\lambda$ (en vitesses Δv) du faisceau (grossièrement monochromatique seulement), la polarisation du faisceau se perd rapidement dans cette première zone de précession.

Figure 15: spectromètre à écho de spin

Au niveau de l'échantillon, un retournement des spins est effectué (diffusion avec spin flip ou flipper π). De ce fait, les spins qui avaient pris de l'avance dans leur rotation se retrouvent en retard, tandis que ceux qui avaient pris du retard se retrouvent en avance.

Figure 16: Variations de la polarisation en fonction du champ (scan symétrique)

Après diffusion sur l'échantillon une deuxième zone de précession, identique à la première fait précesser les spins. A la sortie de cette zone, les retards et les avances de rotation se trouvant compensées, un écho de la polarisation initiale est retrouvé.

La variation de cette polarisation en fonction du champ (figure 16) dans les deux bobines (scan symétrique) représente la fonction intermédiaire $I(\vec{Q}, t)$ du système (t est proportionnel à B_0).

Avec le spin echo, des résolutions en énergie inférieures au neV peuvent être atteintes.

II. 6. 4. Les domaines d'utilisation des différents instruments de diffusion inélastique

Les domaines accessibles en transfert d'énergie et en transfert de moment (vecteur de diffusion) sont représentés sur la figure 17 pour les différents instruments de diffusion inélastique.

Figure 17: Les domaines accessibles en Q et en E pour les différents spectromètres. Les symboles sont les suivants : TOF pour temps de vol, BS pour rétrodiffusion et NSE pour écho de spin

Bibliographie

- [1] "Neutron Cross Sections", BNL-325, édité par D.J. Hughes et J.A. Harvey, USAEC, McGraw-Hill Book, 1955
- "Neutron Cross Sections", volume 2, édité par V. McLane, C.L. Dunford et P.F. Rose, Academic Press, 1988
- [2] L. Koester et W.B. Yelon, Neutron Diffraction Newsletter, édité par G.H. Lander et M.H. Mueller, 1982
- [3] "Theory of Thermal Neutron Scattering" par W. Marshall et S.W. Lovesey, Oxford, Clarendon Press (1971)
- [4] "Neutron Cross Sections", volume 1 par S.F. Mughabghab, M. Divadeenam et N.E. Holden, Academic Press (1981)
- [5] R. Scherm et B. Fåk, in "Neutron and Synchrotron for Condensed Matter Studies (H.E.R.C.U.L.E.S)", édité par J. Baruchel, J.L. Hodeau, M.S. Lehmann, J.R. Regnard et C. Schlenker, Volume 1, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg et Les Editions de Physique, Les Ulis, 1993, pp 113-143