



Laboratoire Léon Brillouin

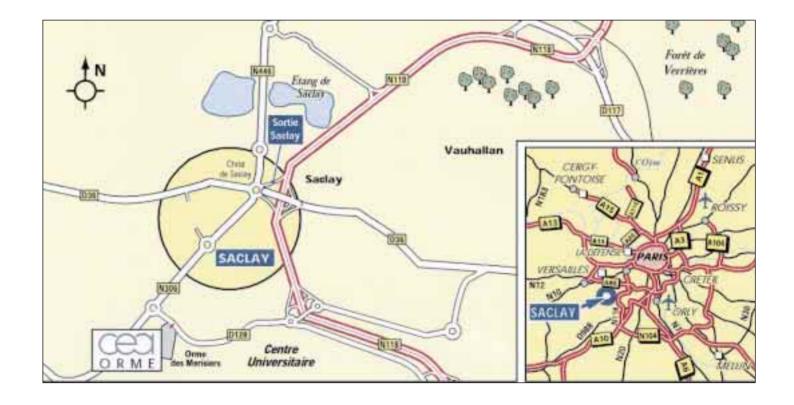


Orphée à la lyre - vers 1947

Laboratoire Léon Brillouin **CEA Saclay** bâtiment 563

91191 Gif-sur-Yvette cedex (France) TÉL. : 33 (0) 1 69 08 52 41 - FAX : 33 (0) 1 69 08 82 61

Serveur internet : http://www-llb.cea.fr



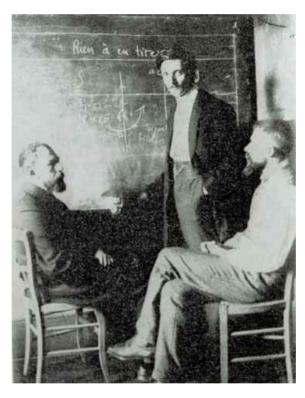
Le Laboratoire Léon Brillouin

La spectrométrie neutronique est apparue aux Etats-Unis à la fin de la dernière guerre dans le but d'utiliser les réacteurs construits dans le cadre du Projet Manhattan.

Très vite, cette technique s'est avérée un très puissant moyen d'investigation de la matière condensée et, malgré son coût élevé, s'est progressivement développée dans le monde ; en France, avec les réacteurs EL3 à Saclay (1957) et Mélusine et Siloé à Grenoble (1959).

En 1970, la divergence du Réacteur à Haut Flux de l'Institut Laue Langevin (initialement Franco-Allemand, puis rejoint par les Anglais) lui donne une forte impulsion.

C'est pour préserver et développer la vitalité de la France dans ce domaine que le CEA et le CNRS décident, en 1974, de créer un laboratoire commun chargé de construire et de faire fonctionner un ensemble de spectromètres à neutrons. La vocation de ce Laboratoire sera de mettre ces outils à la disposition de la communauté scientifique française tout en développant ses propres programmes de recherche.



A l'Ecole Normale Supérieure, Léon Brillouin (debout), avec Beauvais et Perrot (1910).

La décision de construire un réacteur spécifique, optimisé pour la fourniture de faisceaux sortis, est prise en 1976.

Le réacteur « Orphée » a divergé en décembre 1980. Depuis lors, le Laboratoire Léon Brillouin mène de pair ses deux missions : mettre en place et faire évoluer un parc de spectromètres performants ; avoir des contacts avec un grand nombre de laboratoires français, soit sous forme de collaboration scientifique, soit pour accueillir et aider des équipes venues réaliser une expérience.

Depuis une dizaine d'années il s'est, de plus, fortement ouvert sur l'Europe.

En 1997, le LLB a accueilli environ 750 visiteurs, et près de 400 expériences ont été réalisées sur les 25 spectromètres en opération. Environ 20 % des propositions d'expériences émanaient de laboratoires non français de l'Union Européenne.

Le neutron

L'hypothèse de l'existence d'une particule neutre et de masse proche de celle du proton, formulée en 1920 par Rutherford, résulte de 4 grandes découvertes antérieures : le tableau périodique des éléments (Mendeleev, 1869) ; la radioactivité naturelle (Becquerel, 1896 ; P. et M. Curie, 1898) ; le noyau atomique et le modèle planétaire (Bohr, 1913) ; la transmutation artificielle (Rutherford, 1919). Il explique ainsi pourquoi, lorsque le numéro atomique augmente de 1 (un), la masse des atomes correspondants diffère d'environ 2 fois la masse du proton.

En 1930, Bothe et Becker constatent que si l'on bombarde du béryllium par un faisceau de particules Alpha, on obtient un rayonnement plus pénétrant que tous les rayonnements connus, se manifestant encore après avoir traversé 10 cm de plomb. C'est un élève de Rutherford, J. Chadwick, qui démontre en 1932 que ce rayonnement est constitué de corpuscules matériels, non chargés électriquement : le neutron.

Les réacteurs nucléaires

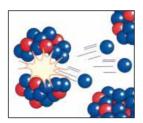
La fission du noyau d'uranium, c'est-à-dire son éclatement en 2 fragments après avoir absorbé un neutron, est démontrée en 1938 (I. Joliot-Curie, O. Hahn); très vite est prouvée l'émission de neutrons excédentaires au cours du processus, donc la fission d'autres noyaux d'uranium, ... et la possibilité d'une « réaction en chaîne » (F. Joliot, Halban, Kowalski, 1939).

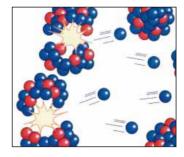
Sources de neutrons, les réacteurs civils peuvent être classés en 2 grandes catégories :

- ceux destinés à la production d'énergie électrique. On veut maximiser la quantité de chaleur produite, c'est-à-dire le nombre total de noyaux qui se fissionnent à chaque seconde. Le cœur sera peu concentré (uranium naturel ou peu enrichi) mais occupera un volume important.
- ceux destinés à produire un flux intense de neutrons, soit de grande énergie pour irradier des matériaux (recherche technologique), soit « thermiques » pour obtenir des faisceaux sortis (diffusion neutronique pour la recherche fondamentale ou appliquée). C'est alors la puissance spécifique, c'est-à-dire le nombre de noyaux par cm³ qui se fissionnent à chaque seconde, que l'on cherchera à rendre maximale. Le cœur sera très compact et très enrichi en uranium fissile (235U).

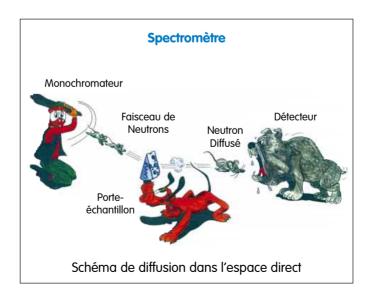
Réacteur







Fission et réaction en chaîne



Neutronique mode d'emploi

La spectrométrie neutronique se fait dans de grandes unités qui, comme le Laboratoire Léon Brillouin, regroupent chercheurs, ingénieurs et techniciens pour réaliser des expériences de diffusion de neutrons thermiques dans des domaines variés.

Nos autorités de tutelle (CNRS et CEA) ont choisi de maintenir dans ce Laboratoire des activités de recherche fondamentale et technologique ainsi que des activités d'accueil. Chaque année, des thèses sont soutenues au LLB et de nombreux résultats sont obtenus par des chercheurs extérieurs venant de Laboratoires français et étrangers.

Ce document sur le LLB a pour objectif de faire découvrir la diffusion des neutrons thermiques aux jeunes scientifiques (et aux moins jeunes !).

Pourquoi fait-on de la diffusion neutronique?	page	4
Comment produit-on des neutrons ?	page	20
Quels sont les principes des appareils de mesure ?	page	32

Cette plaquette ne peut évidemment pas aborder tous les aspects de la diffusion neutronique. Rien n'est dit sur le calcul de la fonction de diffusion et ses liens avec les fonctions de corrélation de position des diffuseurs, ni sur le puissant outil que constitue l'analyse de polarisation, ni ...

Quelques livres sur la diffusion des neutrons thermiques :

S.W. Lovesey - Theory of neutron scattering from condensed matter - Clarendon press, Oxford (1984)

M. Bée - Quasi-elastic neutron scattering - Adam Hilger Bristol and Philadelphia (1988)

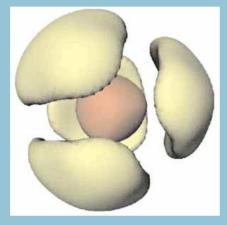
P.A. Krupchitski - Fundamental research with polarized slow neutrons - (traduit par V.I. Kisin) - Springer-Verlag, Berlin (1987)

V.F. Sears - Neutron Optics - Oxford University press, New-York (1989)

La diffusion des neutrons thermiques

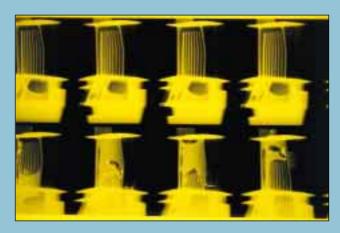
ETUDES STRUCTURALES TRANSITIONS DE PHASE

- Céramiques, zéolithes, hydrures, alliages...
- Composés d'insertion
- Systèmes moléculaires
- Systèmes quasi-périodiques
- Dynamique de réseau
- ...



Désordre des protons (en jaune) d'un groupement amonium dans un solide moléculaire (NH₄)₂SiF₆ (reconstruction 3D par Maximum d'Entropie à partir du spectre de diffraction).

RADIOGRAPHIE AUX NEUTRONS



Contrôle par neutronographie d'une série de 8 turbines à aubes (European Gas Turbine LTD).

Les ailettes des 4 éléments du bas présentent des défauts de fabrication.

BIOLOGIE

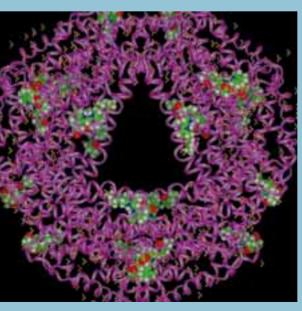
- Conformation des protéines
- Localisation des molécules d'eau
- Fonctionnement d'une membrane

- ...

PHYSICO-CHIMIE

- Conformation des polymères
- Vésicules, micelles
- Microémulsions
- Electrolytes, gels

_

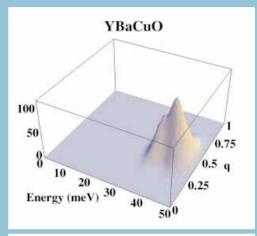


Structure en hélice de l'héxamine de la C-phycocyanine hydratée (simulation).

La diffusion des neutrons thermiques

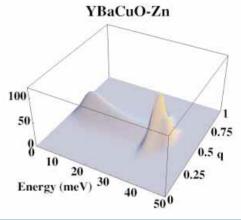
MAGNETISME

- Magnétisme de basse dimensionnalité
- Magnétisme moléculaire
- Multicouches
- Nano particules
- ...



SUPRA-CONDUCTIVITE

- -Structure
- Diagrammes de phase
- Excitations
- Corrélations électroniques
- . . .



Spectres des excitations électroniques obtenus par diffusion inélastique de neutrons de :

- 1) YBaCuO pur (supraconducteur)
- 2) YBaCuO dopé au zinc (non supraconducteur)

MATERIAUX

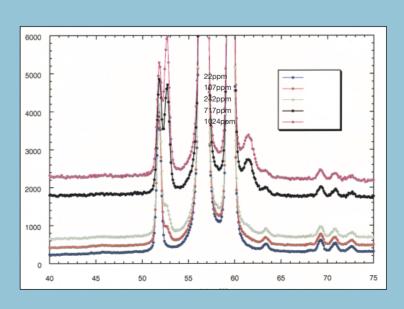
- Textures
- Contraintes
- Précipités
- Cavités
- Composites

- ..

SYSTEMES DESORDONNES

- Alliages
- Nanostructures
- Liquides, amorphes
- Dynamique
- Transition vitreuse

- ..



Dosage de l'hydrogène dans une gaine de combustible par diffusion incohérente de neutrons.

La diffusion des neutrons thermiques

1 - Rayonnement et matière

La connaissance des interactions entre ses constituants élémentaires est essentielle pour expliquer les propriétés physiques d'un matériau ou d'une classe de composés. A l'échelle microscopique, ces interactions déterminent :

- les relations d'ordre entre les atomes (ou les molécules) et entre les moments magnétiques électroniques,
- les caractéristiques dynamiques de chaque atome (dynamique individuelle) et les corrélations de phase entre les mouvements de 2 atomes distincts (dynamique collective). L'analogie existe pour les moments magnétiques.

Depuis plus d'un siècle se sont développées de nombreuses techniques regardant à l'échelle atomique qui permettent au physicien de décrire avec une précision toujours croissante ces interactions fondamentales. Une place privilégiée est occupée par les techniques où interviennent les interactions d'un rayonnement avec la matière : faisceaux de photons, d'électrons, de protons, de noyaux d'hélium... et de neutrons lents.

Dualité Onde-Corpuscule

En 1924, Louis de Broglie écrit dans son traité de mécanique ondulatoire :

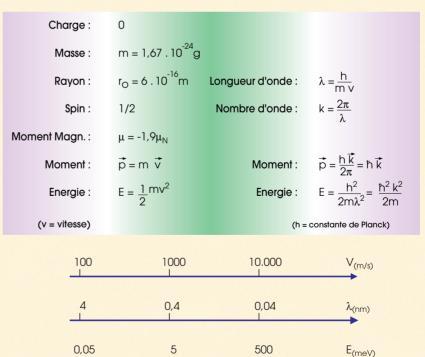
« A toute particule matérielle il convient d'associer une onde ; le mouvement de la particule se déduit des lois de propagation de l'onde associée ».

Cet énoncé, dont de nombreuses expériences sur les électrons et les photons montraient la pertinence, a longtemps divisé le monde scientifique sur la base d'une rationalité qui voudrait qu'un objet soit blanc ou noir, mais pas les deux à la fois : « Il est manifeste que l'application simultanée, sans critique, des deux représentations, ondulatoire et corpusculaire, conduit à des contradictions immédiates. On peut donc en conclure que l'emploi de ces représentations doit avoir des limites fixées par la nature ».

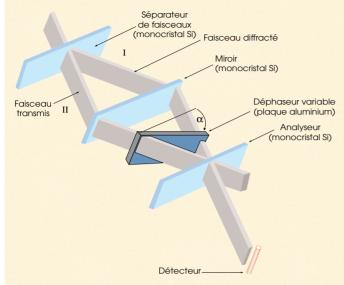
(W. Heisenberg, Les principes physiques de la théorie des Quanta, 1932).

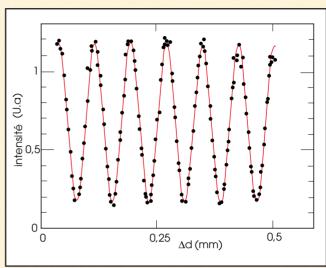
Paramètres caractéristiques du neutron et expression du moment et de l'énergie dans les deux représentations





Interférométrie neutronique





(a) Schéma d'un interféromètre à cristal

(b) Modulation du faisceau par effet d'interférences dans l'analyseur

Une démonstration de la nature ondulatoire du neutron est fournie par les résultats, identiques à ce que l'on connait depuis longtemps avec la lumière, d'expériences d'interférométrie réalisées avec des faisceaux de neutrons. L'interféromètre est ici constitué par 3 monocristaux de silicium dont les plans réticulaires (plans d'atomes) sont tous parfaitement parallèles à une direction commune (fig a).

La physique ondulatoire nous enseigne que l'intensité du faisceau émergent a pour expression :

$$I = I_0 [a + b \cos (\Delta d)]$$

où Δd est la différence de «chemin optique» entre les trajets suivis par les faisceaux. En introduisant une plaque d'aluminium (l'aluminium est très transparent pour les neutrons mais son indice neutronique, et donc son chemin optique par unité de longueur, est différent de celui de l'air) on fait varier Δd en changeant l'angle α (déphaseur variable).

La figure (b) montre le nombre de neutrons compté par unité de temps dans le détecteur en fonction de Δd . La modulation observée signifie que dans le cristal analyseur, les 2 faisceaux se sont recombinés de façon « cohérente », en accord total avec l'hypothèse ondulatoire.

Un faisceau d'énergie et de direction de propagation définies et connues, traverse le matériau à étudier où il interagit avec ses constituants élémentaires. Dans un processus de diffusion, qui a pour conséquence un changement de direction de propagation et/ou d'énergie du rayonnement, l'interaction est spécifique du couple « rayonnement - constituant élémentaire ». Les caractéristiques du faisceau diffusé sont reliées, par la théorie de la diffusion, aux propriétés d'ordre et de dynamique. Ainsi, en utilisant plusieurs « rayonnements sonde », des informations différentes et complémentaires pourront être obtenues.

Parmi d'autres méthodes de mesure fréquemment utilisées, citons : les techniques de Résonance Magnétique (Nucléaire ou Electronique), les différents types de microscopie (électronique, en champ proche, ...), les spectroscopies Infra-Rouge et Raman, ...

2 - Interaction avec la matière

A: Fonction de diffusion

Revenons un instant sur la dualité onde-corpuscule. Lorsque les particules ont une grande énergie (pour les neutrons, E = 40 keV correspond à λ = 10⁻⁴ nm, très inférieur aux distances entre atomes dans la matière), la vision « corpusculaire » correspondant à l'image du choc entre 2 boules de billard est parfaitement justifiée (cf. « Processus de thermalisation » dans le chapitre « La source et les faisceaux sortis »). Au contraire, nous nous intéressons ici à des neutrons thermalisés dont la longueur d'onde est comprise entre 0,05 et 2 nm, donc comparable aux distances inter-atomiques. La théorie nous indique que dans ces conditions, ce sont les phénomènes de « diffraction » qui sont alors prédominants, et ceux-ci ne se traitent de manière rigoureuse que dans une vision « ondulatoire ».

Dans le faisceau incident, un neutron est défini par son vecteur d'onde $\vec{k_i}$ et son énergie $\vec{k_f}$; après diffusion, son vecteur d'onde est devenu $\vec{k_f}$ et son énergie Ef. A partir des lois de conservation (moment et énergie) résultant de l'application des premiers principes de la physique, on déduit que le neutron et le système diffusant ont échangé:

• un moment

 $\overrightarrow{Q} = \overrightarrow{k_i} - \overrightarrow{k_f}$

 \overrightarrow{Q} = transfert de moment

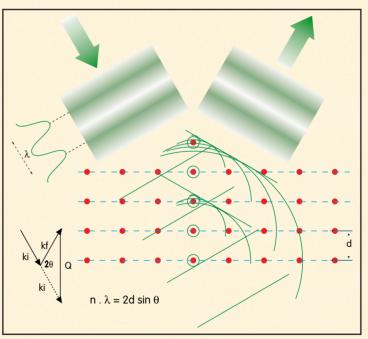
• une énergie

 $\hbar \omega = E_i - E_f$

 $\Delta E = \hbar \omega = \text{transfert d'énergie}$

La diffraction de Braga

Si les diffuseurs (atomes) présentent un ordre périodique, on obtient dans certaines directions une superposition cohérente (c'est-à-dire ayant toutes la même phase à 2π près) des ondelettes sphériques produites par chaque diffuseur. Au total on aura dans ces directions une onde plane de grande amplitude (diffraction de Bragg). L'angle 20 dont est dévié le faisceau dépend de la périodicité du réseau (d) et de la longueur d'onde incidente (λ).

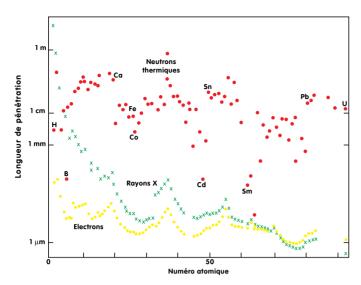


Diffusion d'une onde par un plan d'atomes ordonnés.

La probabilité de cet échange (notée $S(\overrightarrow{Q},\omega)$, fonction de diffusion) est mesurée par le nombre de neutrons (k_f , E_f); elle est directement liée à la nature et à la force des interactions entre l'onde et le diffuseur.

Ce sont les caractéristiques de cette interaction qui vont faire connaître les propriétés des diffuseurs accessibles à l'expérience. Ce sont elles qui, comme nous allons le voir maintenant, font de la diffusion neutronique un outil indispensable pour l'étude de nombreuses propriétés de la matière condensée.

B: Interaction neutron - atome

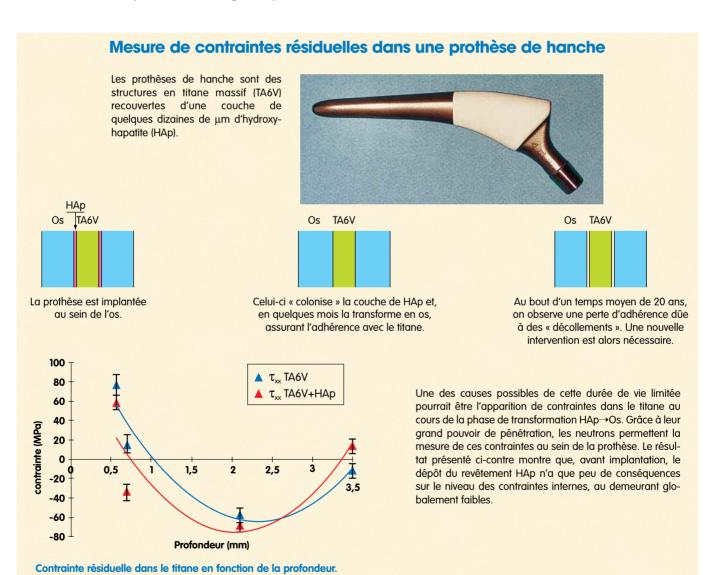


Profondeur de pénétration d'un faisceau de neutrons thermiques (0,18 nm), de rayons X (0,1 nm) ou d'électrons (0,003 nm) en fonction du numéro atomique. (Notez l'échelle logarithmique en ordonnée).

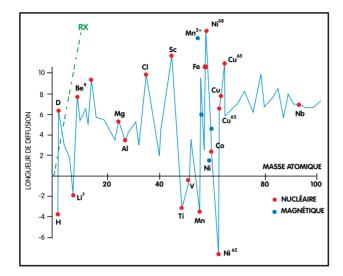
- ☐ Ne portant pas de charge électrique, le neutron n'a pas d'interaction électrostatique avec le nuage électronique de l'atome.
- □ En revanche, il est sensible aux nucléons du noyau de l'atome. C'est avec ce dernier qu'il interagit par des forces « nucléaires », c'est-à-dire à très courte portée (diamètre d'un noyau ≈ 10⁻¹² cm).

Ces caractéristiques entraînent 3 différences importantes entre neutrons et rayons X (RX) :

 Du fait de ses faibles interactions avec la matière, le neutron possède un grand pouvoir de pénétration. Contrairement aux RX qui ne voient les atomes que sur une épaisseur de quelques µm (10-6 m) à partir de la surface, les neutrons permettent de sonder la totalité des atomes d'un échantillon massif.



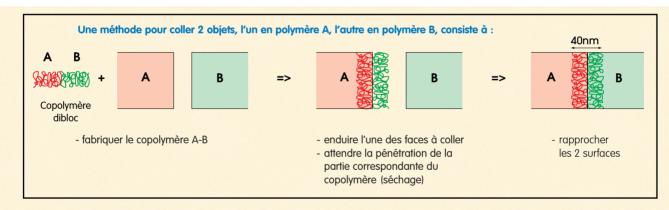
L'interaction « nucléaire » dépend du nombre de nucléons du noyau et des niveaux d'énergie qu'ils occupent. Elle varie sans corrélation avec le numéro atomique Z alors que, pour les RX, elle est proportionnelle au nombre d'électrons présents. Les neutrons permettent ainsi de « voir » certains atomes légers peu visibles par les RX. Une application importante est la localisation de l'hydrogène dans les systèmes biologiques cristallisés et les cristaux moléculaires.



Longueur de diffusion des neutrons thermiques par divers atomes.

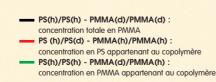
Interaction du neutron avec l'élément correspondant, mesurée en unité de longueur (10-12 cm). Dans un matériau constitué de plusieurs types d'atomes, chaque espèce contribue à la diffusion par le carré de sa longueur de diffusion. La droite en tirets verts est la même quantité pour les rayons X.

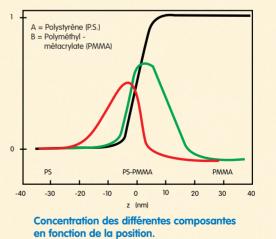
 Enfin, 2 isotopes d'un même élément auront des interactions différentes ce qui n'est pas le cas pour les RX (2 isotopes ont le même nombre d'électrons). Cette propriété est à la base de mesures « différentielles » par substitution isotopique, telles que la mesure de facteurs de structure partiels ou de la conformation d'objets (macromolécules, micelles, vésicules,...) par variation de contraste.



En première approximation, tous les polymères sont constitués de carbone et d'hydrogène en proportions voisines et donc possédent le même pouvoir diffusant (pas de contraste).

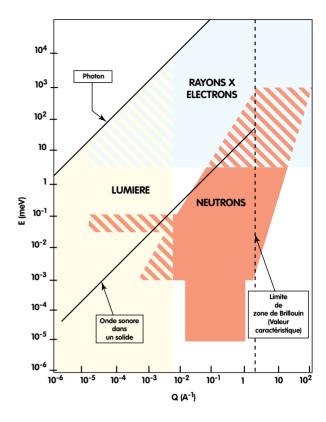
Grâce à la deutération sélective de l'un ou de l'autre des composants de ce système (A, B, A-B), les neutrons permettent de quantifier la concentration des différentes macromolécules lorsqu'on traverse la zone de collage.





- Numériquement, la relation qui lie l'énergie E du neutron et sa longueur d'onde associée (λ) est tout-à-fait favorable à l'étude de la matière condensée. En effet, la masse du neutron permet de satisfaire simultanément 2 exigences :
 - une longueur d'onde comparable aux distances interatomiques (qqs 10-1 nm) et donc la possibilité de figures d'interférence (diffraction),
 - une énergie du même ordre de grandeur que les énergies d'excitation des diffuseurs (atomes ou moments magnétiques) qui sont ainsi facilement mesurables.

Régions de l'espace [transfert de moment (Q), transfert d'énergie (E)] accessibles par différents rayonnements sondes.



Le neutron porte un spin 1/2. Il est équivalent à un moment magnétique $\overrightarrow{\mu}_N$ et de ce fait, sensible aux champs magnétiques créés par les électrons non appariés présents dans le matériau étudié. Dans ces matériaux magnétiques, le potentiel d'interaction matière-neutron comprend un terme de couplage « spin neutron - moment magnétique atomique » qui, de façon similaire au terme d'interaction neutron-noyaux, permet d'étudier l'ordre (structures magnétiques) et la dynamique de ces moments.

Transitions de phase magnétique

La perovskite de manganèse $Pr_{0.5}$ $Ca_{0.09}$ $Sr_{0.41}$ $Mn\,0_3$ présente, en fonction de la température, une succession de transitions de phase structurale et magnétique qui s'exprime par des modifications du diagramme de diffraction :

T > 240 K, phase

paramagnétique

(courbes bleues)

240 > T > 180 K, phase

ferromagnétique

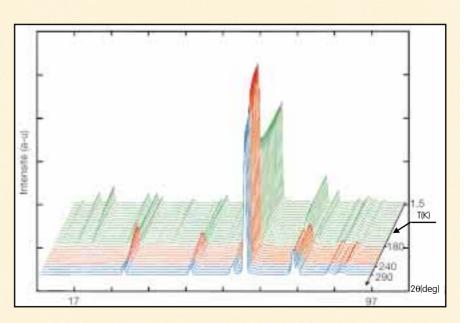
(courbes rouges)

T < 180 K, phase

phase antiferromagnétique (courbes vertes) avec un ordre de charge des ions

Diagrammes de diffraction neutronique à différentes températures.

 Mn^{3+}/Mn^{4+}



Voir l'atome d'hydrogène

Lorsqu'une même structure associe des éléments de numéros atomiques Z très différents, l'élément le plus léger ne donne qu'une contribution très faible au faisceau de rayons X diffracté (chaque espèce y contribue proportionnellement à Z²). Au contraire les neutrons thermiques ont une forte interaction avec l'hydrogène.

Les composés de type AB_5 ont la propriété de stocker, de façon réversible, de grandes quantités d'hydrogène à température et pression ambiantes. Le remplacement d'une fraction des atomes B par un autre métal améliore souvent les performances de ce stockage. Dans la maille hexagonale de La $Ni_{4.5}$ $Sn_{0.5}$ il est possible d'insérer jusqu'à près de 6 atomes d'hydrogène (ou de deutérium). La diffraction de neutrons a permis de localiser précisément leurs positions.

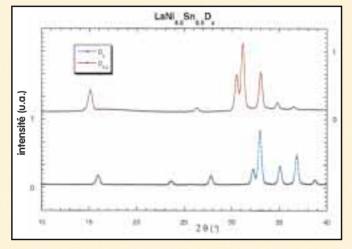
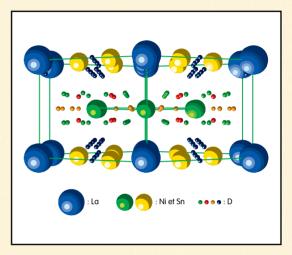
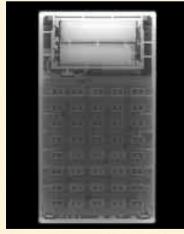


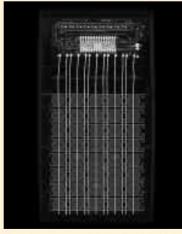
Diagramme de diffraction par une poudre de LaNi $_{4.5}$ Sn $_{0.5}$ et LaNi $_{4.5}$ Sn $_{0.5}$ D $_{5.2}$.



Position des atomes dans la maille.

L'insertion de deutérium gonfle la maille (les pics de diffraction se déplacent) et change les intensités relatives de certains pics.





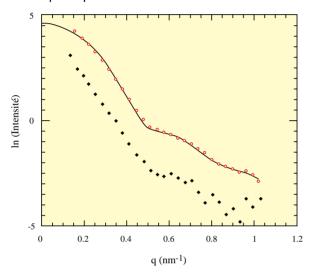
Clichés « neutrons » et « rayons X » d'une calculatrice Texas Instrument.

Une application pratique de cette grande « visibilité » de l'hydrogène est de permettre la visualisation, par « neutronographie » d'un matériau organique (c'est-à-dire contenant principalement du carbone et de l'hydrogène) enfermé dans un récipient métallique. C'est ainsi que les dispositifs pyrotechniques qui assurent la séparation en vol des différents étages du lanceur Ariane sont systématiquement « neutronographiés » grâce aux neutrons produits par le réacteur Orphée.

3 - Apport spécifique de la spectrométrie neutronique

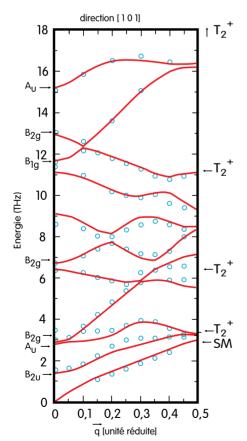
Ainsi, résultant de ses caractéristiques (charge nulle, masse, spin) le neutron possède, d'une part des propriétés uniques (interaction différente avec 2 isotopes, pouvoir de pénétration, interaction magnétique), et d'autre part, des propriétés que l'on ne trouve réunies dans aucun autre rayonnement sonde. Donnons, pour terminer ce chapitre, quelques exemples dans lesquels ces propriétés s'appliquent :

• Plus intense, plus facile à produire et à mettre en œuvre, l'utilisation des faisceaux de RX doit être à la base de toute étude structurale. Mais si l'on veut localiser des atomes légers au milieu d'atomes lourds, mettre en évidence des corrélations spécifiques entre certains atomes dans un liquide ou caractériser des amas dans un alliage, l'intérêt des faisceaux de neutrons est aisé à démontrer. Par exemple, l'utilisation de l'interaction magnétique entre le neutron et l'atome de fer permet de mettre en évidence la précipitation d'amas de cuivre dans certains aciers soumis à un rayonnement neutronique important.



Diffusion de neutrons par un échantillon polycristallin de Fe $Cu_{1.5\%}$ après vieillissement thermique (312h, 500°C).

Intensités mesurées en diffusion aux petits angles en appliquant un champ magnétique de 1,4 T. Les contributions nucléaire et magnétique peuvent être séparées du fait de l'anisotropie de la diffusion magnétique : elle est nulle dans la direction q // H (♦) et maximale dans la direction q LH (o). L'intensité diffusée peut être ajustée (—) de manière satisfaisante en prenant en compte une distribution gaussienne de taille, centrée autour d'un rayon moyen de 8 nm, de particules sphériques constituées de cuivre pur. Cette étude fait partie d'une recherche sur les mécanismes d'une éventuelle fragilisation des cuves de certains réacteurs après plusieurs années de fonctionnement.



• De même, les spectrométries infra-rouge et Raman donnent accès à la valeur des énergies d'excitation élastique dans les solides (phonons). Mais la longueur d'onde des photons utilisés ne permet, au premier ordre en tout cas, qu'un couplage avec des modes en centre de zone (q≈0). La mesure des caractéristiques de la propagation (courbes de dispersion) dans toute la zone de Brillouin, indispensable si l'on veut tester des modèles de potentiel d'interaction entre atomes d'un cristal, requiert une étude par spectrométrie neutronique.

Transition de spin-Peierls dans CuGeO₃

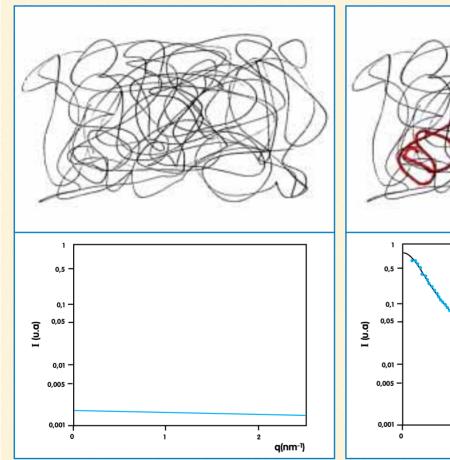
Dans CuGeO₃, les ions Cu⁺⁺ forment des chaînes de spins 1/2 couplés antiferromagnétiquement. Lorsqu'on baisse la température, la tendance à un ordre antiferromagnétique quasi-unidimensionnel est en compétition avec une dimérisation où 2 spins voisins forment une entité à spin nul pour réaliser un état fondamental non magnétique.

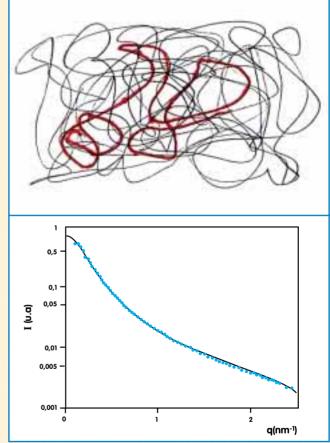
Un couplage entre les spins et les vibrations du réseau (phonons) favorise cette dimérisation et aboutit à une transition structurale avec déplacement des ions Cu^{++} : c'est la transition spin-Peierls. La mesure, par diffusion inélastique des neutrons sur un monocristal de $CuGeO_3$, des courbes de dispersion de phonons fournit des indications sur l'origine microscopique du couplage. Ci-contre sont reportés, une partie des résultats obtenus à température ambiante et le spectre calculé (trait plein) à partir d'un modèle de dynamique de réseau. Les modes ayant la symétrie mise en jeu dans la transition sont notés T_2^+ sur la figure.

• Il est important, tant en physico-chimie qu'en biologie, de pouvoir mesurer des objets de quelques nanomètres, de préciser leurs formes et, s'ils sont hétérogènes, de connaître la répartition de chacun des composants. Si là encore, la diffusion aux petits angles des RX est largement utilisée, il est des cas où seule l'utilisation des neutrons peut donner la réponse.

Fondu de polymère « vu » par un faisceau de neutrons

Pour préciser la conformation d'une macromolécule au milieu de ses semblables (polymère solide ou fondu), on incorpore quelques macromolécules où l'hydrogène a été remplacé par du deutérium. Ces molécules deviennent « différentes » pour les neutrons et donc observables. La substitution isotopique H→D introduit un « contraste » au sein d'une assemblée chimiquement homogène.



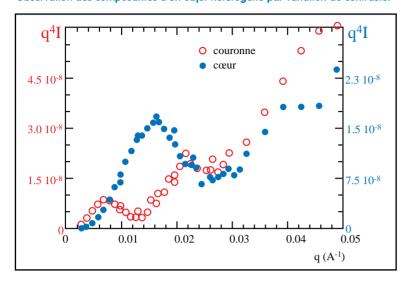


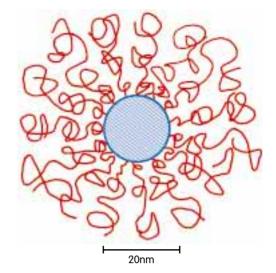
(a) Toutes les chaînes sont hydrogénées : il n'y a pas de contraste, donc très peu d'intensité diffusée.

(b) 13% des chaînes sont deutériées : le contraste H/D permet de mesurer les caractéristiques d'une chaîne.

Conformation des chaînes (figures du haut) et intensité diffusée (figures du bas) par un fondu de polystyrène. En noir : chaînes hydrogènes ; en rouge : chaînes deutériées.

Observation des composantes d'un objet hétérogène par variation de contraste.





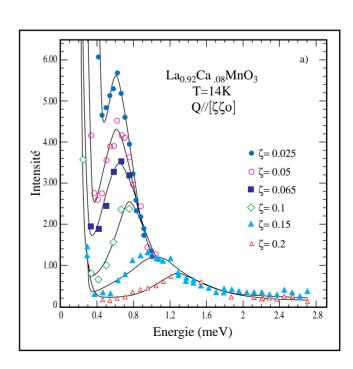
Intensité diffusée par des particules colloïdales de silice auréolées de polymères greffés sur leur surface selon que l'on observe le cœur de silice seulement ou la couronne de polymères seulement. Par un choix judicieux de la proportion H_2O/D_2O on peut ajuster la longueur de diffusion neutronique du solvant à celle de l'un ou l'autre des constituants de la particule, celui-ci devenant alors parfaitement « transparent ». En faisant ainsi varier le « contraste neutronique », on fait apparaître des constituants différents et par là on simplifie le problème que l'on saura alors résoudre.

- L'interaction entre le neutron et les moments magnétiques d'origine électronique portés par l'atome permet d'étudier le magnétisme à l'échelle microscopique :
 - les *relations d'ordre* (ferro, antiferro, ferri magnétisme ; structures magnétiques hélicoïdales, cantées, ...) sont mesurées par diffraction.
 - les *excitations magnétiques* sont accessibles par diffusion inélastique.

Spectres en énergie à différents vecteurs d'onde observés dans le semi-conducteur magnétique dopé La_{1-x}Ca_xMn0₃.

Les composés $RMn0_3$ (R = Terre Rare, structure perovskite) montrent une forte variation de résistivité lorsqu'on les soumet à un champ magnétique extérieur (magnéto-résistance géante).

L'introduction de trous d'électrons par substitution de La par Ca fait apparaître une branche d'excitations supplémentaire. La très forte décroissance de l'intensité quand le vecteur d'onde augmente révèle l'existence d'un petit domaine ferromagnétique associé à ces nouvelles excitations, indiquant l'existence de « gouttelettes de charge » dans ce composé.



Interaction neutron-noyau : le pseudo-potentiel de Fermi

Un neutron et un noyau interagissent par l'intermédiaire de forces nucléaires dont l'expérience montre que la portée est courte, de l'ordre de 10⁻¹³ cm.

Cette distance d'interaction est, d'une part petite devant le rayon moyen d'un noyau (~ 10⁻¹² cm), d'autre part négligeable devant la longueur d'onde des neutrons thermiques ($\sim 10^{-8}$ cm).

On peut montrer que dans ces conditions :

- a) la diffusion du neutron est isotrope, c'est-à-dire équiprobable dans toutes les directions de l'espace (diffusion à caractère 's'):
- b) à l'extérieur du novau, la fonction d'onde du neutron diffusé est peu différente de la fonction d'onde initiale (onde plane), et donc calculable par un traitement en perturbation au 1er ordre (approximation de Born);
- c) un seul paramètre, indépendant de l'énergie du neutron incident, suffit à décrire l'interaction. Ce paramètre, (b=lonqueur de diffusion) est un nombre complexe homogène à une lonqueur. Sa partie réelle peut être positive ou négative selon que l'interaction neutron-noyau est attractive ou répulsive. Sa partie imaginaire représente la probabilité que le neutron soit absorbé par le noyau.

Fermi a proposé une description phénoménologique de cette interaction sous la forme d'un « pseudo-potentiel » ayant les propriétés voulues : par rapport à une origine arbitraire, si le neutron est en ret le noyau en R:

$$V(r) = b \delta (\overrightarrow{r} - \overrightarrow{R})$$

Dans le cas où l'on a une assemblée de N atomes, les noyaux sont numérotés de 1 à N

$$V(r) = \sum_{j=1}^{N} b_{j} \delta (\overrightarrow{r} - \overrightarrow{R_{j}})$$

b_i = longueur de diffusion de l'atome j

Interaction neutron-moment magnétique atomique

Le neutron porte un spin $\overrightarrow{\mathcal{I}_n} \mid |\mathcal{I}_n| = \frac{1}{2}$. Il est équivalent à un moment magnétique

 $\overrightarrow{\mu}_N = -\gamma_N \frac{e\hbar}{m_n c} \overrightarrow{\mathcal{I}}_n \; ; \; \gamma_N = 1,91 \; \text{ (rapport gyromagnétique) qui crée à la distance r un champ magnétique :} \\ \overrightarrow{H}_N \; \text{ (r)} = \text{rot} \frac{\overrightarrow{\mu}_N \wedge \overrightarrow{r}}{| \; r \; |^3}$

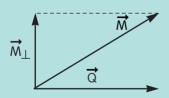
$$\overrightarrow{H}_N$$
 (r) = rot $\frac{\overrightarrow{\mu}_N \wedge \overrightarrow{r}}{|r|^3}$

Le potentiel d'interaction entre le neutron et un électron non apparié de l'atome diffuseur, donc porteur d'un moment magnétique $\overrightarrow{\mu}_{e}$, s'écrit : $V_{\Omega}(r) = - \overrightarrow{\mu}_{\Omega} \cdot \overrightarrow{H}_{N}$

et l'interaction magnétique totale s'obtient en sommant sur tous les électrons non appariés :

$$V_j(\vec{r}) = \sum_{e} V_e(\vec{r})$$

 $V_{j}(\overrightarrow{r}) = \sum_{e} V_{e}(\overrightarrow{r'})$ Il est beaucoup plus facile de travailler dans l'espace de Fourier :



$$V_{j}(\overrightarrow{Q}) = \left(\frac{2\pi\hbar^{2}}{m_{N}}\right) \int d\overrightarrow{r} e^{i\overrightarrow{Q} \cdot \overrightarrow{r}} V_{j}(\overrightarrow{r})$$

$$\mathsf{V}_{j} \ \overrightarrow{(\mathsf{Q})} = \left| \gamma_{\mathsf{N}} \frac{2\mathsf{e}}{\mathsf{h}\mathsf{c}} \right| \overrightarrow{\mathsf{M}}_{\perp} \left(\mathsf{Q} \right) . \overrightarrow{\mathcal{I}}_{\mathsf{n}}$$

$$\overrightarrow{M}(Q) = \Sigma_{e} \overrightarrow{\mu}_{e} e^{-i\overrightarrow{Q} \overrightarrow{r}_{e}}$$

r_e = coordonnée de l'électron e

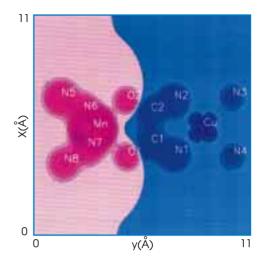
 $\overrightarrow{M}_{\parallel}(Q) = \text{composante de } \overrightarrow{M}(Q) \text{ dans le plan}$ perpendiculaire à \overrightarrow{Q} .

Mieux encore, avec un faisceau dont tous les neutrons ont une même direction de spin, par exemple ∠_z = +½ (faisceau polarisé que l'on sait produire), la mesure du nombre de neutrons dont le spin a été renversé (∠_z = −½) après diffusion permet de déterminer, avec une très grande précision, la *densité locale* de moment magnétique.

Dans ce composé les ions Mn^{2+} et Cu^{2+} sont reliés par un pont organique oxamide (-O-C-N-). La densité de spin est représentée en projection selon la direction perpendiculaire au pont. L'existence d'une région de forte densité positive (en rouge) localisée sur le manganèse (Mn) et d'une région de densité négative (en bleu) centrée sur le cuivre (Cu) confirme l'établissement d'un couplage antiferromagnétique entre les ions métalliques via le pont organique, conduisant à un état fondamental de spin S=2. La plus grande délocalisation de la densité de spin négative sur le pont reflète le caractère plus fortement covalent du cuivre par rapport au manganèse.

L'intérêt de ce composé bimétallique réside dans le fait qu'il est similaire au maillon élémentaire des chaines (Mn, Cu) qui forment un des premiers composés moléculaires présentant un ordre ferromagnétique.

Carte de densité de spin induite par un champ magnétique extérieur dans un composé moléculaire paramagnétique (diffraction de neutrons polarisés).



Polarisation d'un faisceau de neutrons

Le neutron porte un spin $4\left(\left|4\right| = \frac{1}{2}\right)$. Les composantes de ce spin projeté sur une quelconque direction de l'espace (par exemple un champ magnétique extérieur), ne peuvent prendre que les valeurs $4z^{(+)} = \frac{1}{2}$ et $4z^{(-)} = -\frac{1}{2}$ (mécanique quantique).

Le faisceau issu du réacteur est non polarisé, c'est-à-dire qu'il contient 50 % de neutrons $\mathcal{J}_{\mathbf{Z}}^{(+)}$ et 50 % de neutrons $\mathcal{J}_{\mathbf{Z}}^{(-)}$. La production de faisceaux où tous les neutrons ont la même direction de spin est une opportunité très intéressante pour les études magnétiques. Nous citerons ici les 2 méthodes couramment employées aujourd'hui, et une méthode d'avenir.

1) Diffraction par un cristal ferro-magnétique

Lorsqu'un atome porte un moment magnétique, son interaction avec le neutron est la somme des interactions neutron – noyau (amplitude b) et neutron – moment magnétique (amplitude f_{ma}).

Si, à la fois, ces atomes sont régulièrement disposés (cristal) et que leurs moments magnétiques sont tous parallèles (ferro-magnétique), l'intensité des pics de Bragg est proportionnelle à (b \pm | f_{mg} |)². Le signe à choisir dépend de l'orientation mutuelle du spin du neutron et du moment magnétique de l'atome. Si on choisit le cristal et le pic de Bragg tels que b \approx | f_{mg} |, c'est-à-dire (b- | f_{mg} |) \approx 0, le faisceau diffracté ne contiendra que les neutrons (\cancel{J} // \overrightarrow{m}) (\cancel{J}_{Z} ⁽⁺⁾).

2) Réflexion par un « miroir magnétique »

A la surface de séparation entre le vide et un milieu d'indice n, un faisceau de neutrons subit une réflexion totale si son angle d'incidence ϕ est inférieur à une valeur critique $\phi_c = \sqrt{\frac{2}{(1-n)}}$ (cf. chapitre 2, « guide de neutrons »). Dans le cas d'un milieu magnétique soumis à un champ extérieur \overrightarrow{H} , le facteur (1-n) comporte 2 termes qui s'ajoutent si le spin du neutron \overrightarrow{J} est parallèle à l'induction \overrightarrow{B} (angle critique $\phi_c^{(+)}$) et se retranchent s'ils sont antiparallèles ($\phi_c^{(-)}$). Si ces termes sont voisins, $\phi_c^{(-)} = 0$ et pour toutes les incidences $0 < \phi < \phi_c^{(+)}$ seuls les neutrons $\mathcal{J}_z^{(+)}$ seront réfléchis.

Remarque : dans ce cas, le faisceau réfléchi n'est pas monochromatique

3) Filtrage des spins par ³He polarisé

Une méthode très prometteuse, en cours de développement, s'appuie sur le fait que la section de capture de 3 He, isotope de l'atome d'hélium à 3 nucléons (2 protons et 1 neutron), dépend du spin du neutron incident. Si celui-ci peut s'apparier avec le spin du nucléon célibataire pour former une paire à spin total nul (spins antiparallèles), la section de capture est très forte ; elle est 1000 fois plus faible dans le cas contraire. Quand un faisceau de neutrons traverse un volume de gaz 3 He polarisé (spins des noyaux tous //), 1000 neutrons ${}^4\mathcal{I}^{-1}$ sont capturés alors qu'un seul ${}^4\mathcal{I}^{+1}$ disparaît.

Diffusion cohérente et incohérente

Intéressons-nous à l'interaction d'un neutron lent ($\lambda_0 > 10^{-2}$ nm) avec les atomes d'un cristal parfait, c'est-à-dire avec un très grand nombre de diffuseurs situés aux nœuds d'un réseau régulier. Comme la particule incidente a une longueur d'onde comparable à la distance entre 2 diffuseurs, le neutron ne va pas interagir avec 1 atome en particulier mais avec la totalité des diffuseurs de l'échantillon.

En mécanique ondulatoire, la fonction d'onde du neutron incident est une onde plane. Cette onde est diffractée par chacun des noyaux de l'échantillon qui, dans le cadre des hypothèses avancées par Fermi (cf : encart), se comportent comme des sources secondaires : ils réémettent, dans toutes les directions de l'espace et de façon isotrope, une onde sphérique déphasée par rapport à l'onde incidente d'une quantité proportionnelle à b_e longueur de diffusion du noyau et le cette représentation, qui a pour origine la théorie de la propagation et de la diffusion des ondes développée en optique depuis Huyghens (« Traité de la Lumière », 1690), s'applique quelle que soit la nature de l'onde ; elle permet de comprendre une spécificité essentielle de la diffusion neutronique : la présence simultanée, dans le signal détecté, de 2 composantes, l'une dite « cohérente », l'autre « incohérente » :

Si tous les diffuseurs de notre cristal parfait sont strictement identiques (même isotope d'une même espèce chimique) et que de plus les noyaux ne portent pas de spin, alors b_ℓ = b quelque soit ℓ , et les ondes réémises présentent entre elles une relation de phase définie. En un point situé loin de l'échantillon, toutes ces ondes interfèrent ; l'amplitude A de l'onde résultante, qui s'obtient en sommant sur toutes les contributions, n'est différente de zéro que dans la direction où la différence de marche entre 2 ondes secondaires est un multiple entier de 2π (direction de Bragg) ; A est alors égale à la somme des longueurs de diffusion (ou amplitudes de diffusion) :

$$A = \sum_{\ell=1}^{N} b_{\ell} = Nb$$

Tous les diffuseurs participent au résultat final de manière « cohérente ». La longueur de diffusion de chaque noyau sera dite cohérente, b_{COh} =b. Le nombre de neutrons diffusés dans la direction de Bragg (section efficace différentielle cohérente) est donné par le carré de l'amplitude de la fonction d'onde neutronique. Il est proportionnel à $(b_{COh})^2$.

□ Supposons maintenant que les longueurs de diffusion fluctuent de manière aléatoire de site en site, autour d'une valeur moyenne : ____ N

 $b\ell = \overline{b} + \delta b\ell$ avec $\sum_{\ell=1}^{N} \delta b_{\ell} = 0$

On peut alors schématiser le système en considérant que chaque site est occupé par 2 diffuseurs spatialement confondus :

- un diffuseur ayant une longueur de diffusion \overline{b} . Cet ensemble réémet des ondes en phase qui interfèrent, de manière identique au cas précédent. Il produit une composante cohérente et \overline{b} .
- un diffuseur ayant une longueur de diffusion $\delta \, b_\ell$ qui varie de façon aléatoire de site en site, donc sans aucune corrélation entre les valeurs de $\delta \, b$ sur 2 sites voisins. De ce fait, les phases des ondes réémises par ces diffuseurs sont elles aussi aléatoires et, comme pour la lumière issue de 2 sources incohérentes, ne donnent pas d'interférence. L'intensité résultante est la somme des intensités, c'est-à-dire la somme des carrés des amplitudes. De plus, comme l'intensité émise par chaque diffuseur est isotrope, il en est de même de l'intensité globale. Cette fluctuation aléatoire de la longueur de diffusion produit une composante incohérente. Son intensité $(d\sigma/d\Omega)_{inc}$ est isotrope et proportionnelle à :

$$\mathsf{K}^2 = \sum_{\ell=1}^{\mathsf{N}} \delta \, \mathsf{b}_{\ell}^{\,2} = \mathsf{N} \left[(\overline{\mathsf{b}_{\ell} - \overline{\mathsf{b}}})^2 \right] = \mathsf{N} \left[\overline{\mathsf{b}_{\ell}^2} - (\overline{\mathsf{b}})^2 \right]$$

Par analogie, on définit une longueur de diffusion incohérente (par noyau) :

$$b_{inc} = \sqrt{\frac{K^2}{N}} = \sqrt{\overline{b_{\ell}^2} - (\overline{b})^2}$$

Nous avons donc addition d'une composante cohérente et d'une composante incohérente. Ce résultat est très général : il en est ainsi aussi bien pour l'intensité élastique que inélastique du faisceau de neutrons diffusés. Comme nous avons tenté de l'expliquer, la composante cohérente résulte d'un processus collectif auquel tous les diffuseurs du cristal participent. La loi de variation de son intensité avec le transfert de moment Q et l'énergie échangée h_{ω} (fonction de diffusion cohérente S_{coh} (Q, $_{\omega}$)) est la traduction des corrélations spatiales et des dynamiques collectives des diffuseurs. Au contraire, chaque diffuseur contribue de manière indépendante (simple addition des intensités diffusées) à la composante incohérente. La fonction de diffusion correspondante S_{inc} (Q, $_{\omega}$) ne contient que leurs dynamiques individuelles. L'importance relative de chacune des composantes est donnée par les valeurs respectives de la longueur de diffusion moyenne \overline{b} et de sa fluctuation δb .

Pour terminer, voyons les causes qui entrainent une fluctuation de b de site en site. Elles sont au nombre de 2 :

1) le désordre isotopique: nous avons vu que 2 isotopes d'un même élément de la classification périodique n'ont pas la même longueur de diffusion. Si aucune « précaution » particulière n'est prise lors de la préparation de l'échantillon, chaque espèce chimique présente dans l'échantillon est un mélange de ses isotopes tel qu'il existe à l'état naturel, la répartition spatiale se faisant au hasard.

Par exemple, si un élément a 2 isotopes en concentration C_1 et C_2 ($C_1 + C_2 = 1$) dont les longueurs de diffusion respectives sont b_1 et b_2 :

$$\begin{array}{c} \overline{b} = C_1 \ b_1 + C_2 \ b_2 \\ \hline \overline{b^2} = C_1 \ b_1^2 + C_2 \ b_2^2 \end{array} \right\} \ (\delta b)^2 = C_1 \ C_2 \ (b_1 - b_2)^2 \\ \end{array}$$

2) le spin nucléaire: le neutron porte un spin 1/2. Les forces nucléaires à l'origine de la diffusion du neutron par un noyau dépendent de l'orientation mutuelle des spins du neutron et du noyau, si ce dernier porte un spin i (spin nucléaire). Il y a dans ce cas 2 longueurs de diffusion b(+) et b(-) selon que ces spins sont « parallèles » (spin total i + 1/2) ou « antiparallèles » (spin total i - 1/2). Si, ni la cible ni le faisceau incident ne sont polarisés, le passage par l'un ou l'autre de ces états de spin total est aléatoire. En définitive, tout se passe comme si les longueurs de diffusion b(+) et b(-) se répartissaient au hasard sur le réseau des diffuseurs, en proportion donnée par le nombre d'états correspondants (il y a (2s + 1) états de spin total s). On montre ainsi que :

$$\overline{b} = \frac{i+1}{2i+1} b^{(+)} + \frac{i}{2i+1} b^{(-)}$$

$$(\delta b)^2 = \frac{\mathbf{i} (\mathbf{i} + 1)}{(2\mathbf{i} + 1)^2} (b^{(+)} - b^{(-)})^2$$

Remarque: la distinction entre « cohérent » et « incohérent » dans l'expression de la section efficace de diffusion n'est pas toujours évidente et parfois source de confusion. Par exemple : le désordre chimique dans un alliage produit une fluctuation de site en site de la longueur de diffusion et donc, rajoute des termes incohérents ; par contre un désordre de position modifie les corrélations et donc les termes cohérents. Comme expérimentalement ces 2 désordres se traduisent de façon similaire par l'apparition d'une intensité diffusée entre les directions de Bragg, on préfèrera souvent parler de diffusion « diffuse ».

La Source et les faisceaux sortis



La source et les faisceaux sortis

Le neutron est une particule difficile à produire. Son coût de production élevé vient, d'une part de la nocivité des particules produites dont il faut se protéger et des produits de fission qu'il faut confiner et stocker, d'autre part des multiples éléments et circuits de sécurité nécessaires pour assurer la sûreté de l'installation (prévention des accidents). Le nombre, ou plutôt le flux (nombre de particules traversant une unité de surface pendant 1 seconde) maximum de neutrons que l'on sait actuellement générer est limité par la quantité de chaleur (produite par la réaction de fission) par unité de volume de combustible que l'on parvient à évacuer. Par exemple, le RHF de Grenoble, réacteur actuellement le plus performant du monde, produit un flux de 1.5*10¹⁵ neutrons/cm².s, chiffre à comparer au flux délivré par un laser de puissance moyenne (10²⁰ photons/cm².s) ou celui fourni par un générateur X de laboratoire (10¹⁸ photons/cm².s).

La mise en œuvre d'une expérience de diffusion neutronique va comporter plusieurs étapes et mettre en jeu plusieurs dispositifs expérimentaux ; il faut :

- produire un flux de neutrons le plus intense possible (fission des noyaux d'uranium dans le cœur),
- amener l'énergie des particules produites dans la gamme de celle des phénomènes étudiés (thermalisation),
- sélectionner, avec le moins de perte possible, les neutrons ayant tous la même direction de propagation (collimation) et une énergie choisie (monochromatisation).
- mesurer, après qu'ils aient interagi avec l'échantillon, la proportion de ceux qui ont été déviés et dont la trajectoire fait un angle (20) avec la direction initiale (analyse angulaire) et/ou ceux dont l'énergie finale a varié (analyse en énergie).

1 - Le réacteur Orphée

ORPHÉE est un réacteur essentiellement destiné à fournir des faisceaux de neutrons pour les besoins de la recherche fondamentale.

Caractéristiques principales

Flux thermique maximal dans le réflecteur (n cm-2s-1)	_	3.1014
Puissance du cœur (MW)		14
Fluide caloporteur	-	H ₂ O
Surface d'échange (m²)	-	20,68
Volume total du cœur (dm³)	-	56
Hauteur active (cm)	-	90
Puissance dégagée dans les plaques combustibles (MW)	-	12,6
Flux calorifique (W cm ⁻²) :		
moyen	-	61
maximal	-	172
Flux calorifique maximal du filet chaud (W cm-2)	-	206
Température maximale de paroi (° C)	-	123,5
Densité de puissance du réseau (MW dm ⁻³) :		
moyenne	-	0,25
maximale	-	1,2
Pression cœur (bar):		
entrée	-	4
sortie	- 100	2
Vitesse d'eau (ms-1)		7,5
Charge en ²³⁵ U (kg)	-	5,88
Durée du cycle (jour)	-	100
Taux de combustion moyen (% ²³⁵ U brûlé)	-	30



Piscine cœur

□ Le cœur

Le cœur, très compact, est contenu à l'intérieur d'un caisson parallélépipédique en zircaloy de section carrée $(25 \times 25 \text{ cm}^2)$; sa hauteur active est de 90 cm.

Il est composé de 8 assemblages combustibles à plaques parallèles dont la matière fissile est constituée par un alliage d'aluminium et d'uranium enrichi en ²³⁵U, disposés autour d'un élément réflecteur central en béryllium.

La fine division du réseau en plaques combustibles minces (1,27 mm) séparées par des canaux d'eau étroits (2,1 mm) permet une très grande surface d'échange thermique par unité de volume (de l'ordre de 0,6 m² par dm³), donc une puissance spécifique élevée, elle-même condition de la production de flux neutroniques importants.

La masse totale d'uranium 235 du cœur est inférieure à 6 kg.

Le cœur est renouvelé entièrement tous les cent jours.

Le contrôle de la réactivité est effectué au moyen de plaques absorbantes (Hafnium) se déplaçant verticalement dans les assemblages de contrôle.

Le cœur est disposé dans un réflecteur d'eau lourde circulant de bas en haut dans une cuve en acier inoxydable. La protection biologique est assurée par de l'eau ordinaire déminéralisée, contenue dans une piscine de 4,5 m de diamètre et de 15 m de haut, elle-même entourée par un mur de béton de 1,50 m d'épaisseur. Le diamètre total du bloc réacteur ainsi constitué est de 7,50 m.

- 1. Cœur
- 2. Réflecteur d'eau lourde
- 3. Piscine et canal de transfert
- 4. Circuit primaire
- 5. Circuit secondaire
- 6. Circuit d'eau lourde
- 7. Mécanisme de commande des barres de contrôle
- 8. Echangeur
- 9. Pompe
- 10. Bâche de vidange de la piscine
- 11. Source froide
- 12. Source chaude
- 13. Canal tangentiel
- 14. Hall des expérimentateurs
- 15. Guide à neutrons
- 16. Hall-pile
- 17. Protection primaire fixe
- 18. Monochromateur
- 19. Protection du monochromateur
- 20. Spectromètre



Bloc réacteur, coupe verticale

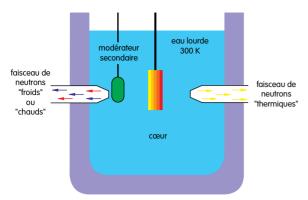
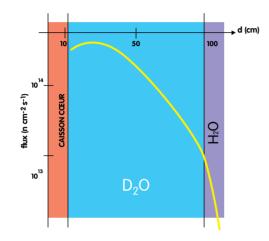


Schéma du modérateur



Flux de neutrons thermiques en fonction de la distance au cœur

Les sources « froides » et « chaudes »

Pour les besoins de certaines expériences on désire avoir une source de neutrons d'énergie soit plus faible (~ 0,001 eV), soit plus élevée (~ 1 eV). On obtient de tels neutrons grâce à des modérateurs secondaires qui, placés dans l'eau lourde, créent des conditions locales modifiant l'énergie (la vitesse) moyenne des neutrons. Un récipient rempli d'hydrogène liquide (température 20K) constituera une source de neutrons lents ; un bloc de graphite chauffé à 1400 K fournira des neutrons de grande énergie. Ce sont respectivement les sources froides et chaudes.

□ La thermalisation des neutrons

Le modérateur

La réaction de fission en chaîne dans le cœur, casse les noyaux d'uranium 235 en éléments plus légers et libère en moyenne 2,5 neutrons par atome d'uranium consommé. Ces neutrons ont une énergie cinétique d'environ 1 million d'électron-volt, beaucoup trop grande pour qu'ils soient utilisables en physique de la matière condensée. Afin de les ralentir, ils sont mis en contact avec un matériau adéquat (le modérateur) où, par chocs successifs avec les atomes, ils cèdent la plus grande partie de leur énergie. Les matériaux les plus adaptés au rôle de modérateur sont des matériaux constitués d'atomes légers : l'eau, le graphite, le béryllium... De plus, on veut minimiser les évènements où, qu cours du choc, l'atome du modérateur capture le neutron : cette condition a fait choisir pour ORPHÉE un modérateur « eau lourde » qui entoure le cœur. Les neutrons de fission y sont ralentis, et après quelques chocs, ils ont en moyenne une énergie (vitesse) comparable à l'énergie cinétique des atomes ralentisseurs (~ 0,025 eV pour un modérateur à 300 K). C'est au sein de ce bidon que plongent les canaux par lesquels on prélève les neutrons « thermiques ».



Source froide annulaire

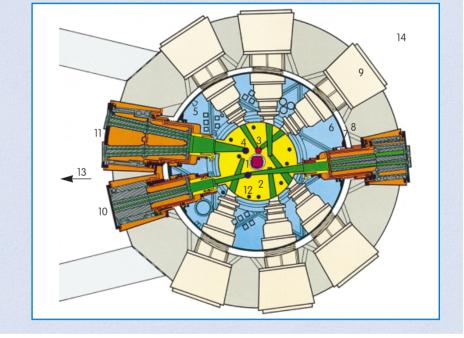
□ Les canaux

Le réacteur est équipé de 9 canaux horizontaux, tangentiels au cœur, permettant l'utilisation de 20 faisceaux de neutrons. Le « nez » de ces canaux est situé dans le modérateur à proximité du cœur, là où le flux des neutrons thermalisés par l'eau lourde est maximal ; trois canaux visent deux « sources froides », deux autres canaux une « source chaude ». Il est ainsi possible de sélectionner le spectre de neutrons le mieux adapté aux utilisations souhaitées.

De 2 canaux visant les sources froides sont extraits six faisceaux canalisés par des « guides à neutrons » sortant du bâtiment réacteur pour être utilisés dans un hall attenant (hall des guides à neutrons).

9 canaux verticaux servent à l'irradiation d'échantillons divers et à l'analyse par activation. Dans ce dernier cas, les échantillons sont expédiés par une liaison pneumatique au Laboratoire Pierre Sue, laboratoire commun au CEA et au CNRS.

- 1. Cœur
- 2. Réflecteur d'eau lourde
- 3. Source chaude
- 4. Source froide
- 5. Piscine
- 5. Piscine
- 6. Cuvelage de la piscine
- 7. Vide annulaire
- 8. Doublante piscine
- 9. Canal simple
- 10. Canal simple
- 11. Canal double
- 12. Canal vertical
- 13. Hall des guides à neutrons
- 14. Hall des expérimentateurs



Bloc pile, coupe horizontale



Salle de conduite du réacteur Orphée

2 - Les faisceaux sortis

☐ Le guide de neutrons



Le guide G1 et le déviateur G1 bis (en dessous)

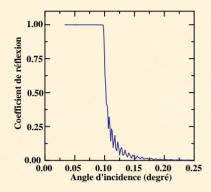
Le premier élément de la majorité des appareils de spectrométrie neutronique est un monochromateur. Sa fonction est de prélever, dans le faisceau polychromatique extrait du modérateur, les neutrons dont la lonaueur d'onde se situe à l'intérieur d'une bande plus ou moins étroite et de les diriger sur l'échantillon. Les autres neutrons du faisceau, c'est-à-dire entre 90 et 99 % du total, traversent le monochromateur et vont se perdre dans le béton de protection! Il est clair qu'une disposition permettant à plusieurs spectromètres prélevant des longueurs d'onde différentes, d'être placés sur un même faisceau représente une utilisation plus rationnelle des neutrons produits. Cependant les spectromètres sont des appareils volumineux et ceci n'est possible qu'en les disposant les uns derrière les autres, et donc de plus en plus loin de la source. En rappelant que les neutrons sont des particules neutres qui se comportent, du point de vue de leur dynamique dans le vide comme un gaz parfait, le flux de particules à la distance d de la source est proportionnel à $1/d^2$ (angle solide sous lequel on voit la source); ainsi disposés les appareils successifs seraient de moins en moins lumineux. Les guides de neutrons, en « canalisant » les particules, vont permettre de distribuer loin du cœur, des faisceaux qui conservent leur divergence angulaire, c'est-à-dire sans qu'il y ait perte de flux. Cet effet guide est d'autant plus marqué que la longueur d'onde est plus grande.



Dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique. Vue d'ensemble de la machine utilisée pour la fabrication de guides supermiroirs (photo CILAS).

Guide à simple réflexion totale

La propagation de l'onde associée au neutron fait intervenir l'indice « n » du milieu, qui dépend de la nature des atomes qui le composent. A une interface, le passage d'un milieu « n_1 » à un milieu « n_2 » va entraîner un changement de la direction de propagation et sous certaines conditions ($n_2 < n_1$; angle d'incidence < angle critique) l'onde ne pourra pas « traverser » ; on aura réflexion totale. L'angle critique dépend de la différence (n_2 - n_1) et de la longueur d'onde du neutron. Ce phénomène, bien connu pour les ondes électromagnétiques (fibre optique), est utilisé pour transporter sans perte les neutrons sur des distances de plusieurs dizaines de mètres. Le guide est un tube creux, en verre épais, dont la paroi interne est polie et recouverte d'une couche de nickel. Cependant l'indice de ce matériau, bien que l'un des meilleurs, n'est que peu différent de l'indice du vide et l'angle critique de réflexion totale est petit (0.5 d° pour une longueur d'onde de 0.5 nm).

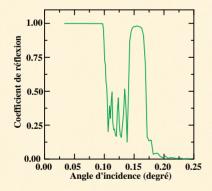


Réflexion par une couche épaisse de nickel (300 nm).

Tous les neutrons arrivant sur la surface avec un angle inférieur à l'angle critique sont réfléchis. C'est le plateau de réflexion totale. Pour des angles d'incidence supérieurs, ils sont en partie transmis, en partie réfléchis.

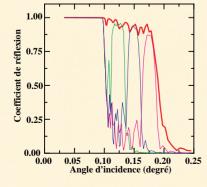
Guide à supermiroirs

Pour augmenter les performances des guides, on utilise les interférences constructives entre les ondes réfléchies par une alternance de couches d'épaisseurs contrôlées, qui créent une succession de pics de diffraction au-delà de l'angle critique. La technique actuelle permet de déposer des multicouches nickel-titane donnant au guide un angle critique apparent double de celui d'un guide à simple réflexion totale.



Réflexion par une multicouche périodique d'un matériau réflecteur comme le nickel (11 nm) et d'un matériau espaceur comme le titane (11 nm) surmonté d'une couche épaisse de nickel.

On retrouve le plateau de réflexion totale du cas précédent, mais en plus, un phénomène d'interférences constructives entre les ondes réfléchies par les couches de nickel crée un pic de réflexion pour un angle d'incidence particulier supérieur à l'angle critique. C'est cet effet qui va être utilisé pour prolonger le plateau de réflexion totale.



Réflexion par une multicouche non-périodique de nickel et de titane surmontée d'une couche épaisse de nickel.

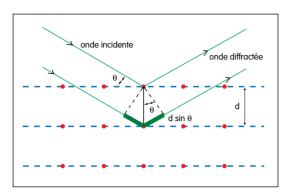
On arrive ainsi à créer une série de pics dans le prolongement du plateau de réflexion totale. La somme de ces pics donne une extension au plateau de réflexion totale. On obtient ainsi un angle critique apparent beaucoup plus grand. Plus l'extension recherchée est importante, plus les couches doivent être nombreuses et fines.

□ La sélection des neutrons

Le monochromateur

En relation avec la dualité onde-corpuscule il existe deux familles de monochromateurs :

• Les monocristaux, qui fonctionnent sur le principe de la diffraction d'une onde par un système périodique.





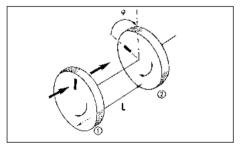


Montage permettant le choix entre différents cristaux monochromateurs. (photo ILL).

Si d est la périodicité du milieu, dans le plan d'incidence, seuls les neutrons ayant une longueur d'onde (λ) vérifiant la relation de Bragg $n\lambda=2d\sin\theta$ seront réfléchis en phase. Les cristaux les plus couramment utilisés sont le cuivre, le germanium, certains alliages, et surtout le graphite pyrolitique.

Si tous les plans réflecteurs sont parfaitement parallèles entre eux, peu de neutrons incidents vérifieront la relation de Bragg : le faisceau diffracté sera très bien résolu mais aura une intensité très faible. Pour augmenter la « réflectivité » on utilise des cristaux dont les plans d'atomes présentent un certain désordre d'orientation (mosaïcité). Les cristaux les plus couramment utilisés (cuivre, germanium, graphite pyrolitique) ont des mosaïcités comprises entre 0,5 et 1 d°.

• Les systèmes mécaniques, qui sélectionnent les particules selon leur vitesse.

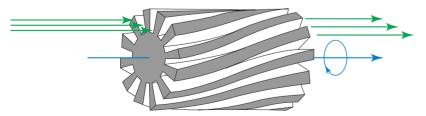


Monochromateur à disques.



Partie terminale du monochromateur à chopper «Mibémol»

Chaque disque est en matériau absorbant et comporte une fente transparente. Ils sont distants de L et tournent à la même vitesse angulaire ω . Si les fentes font entre elles un angle constant ϕ , seuls les neutrons ayant une vitesse $V \simeq \omega L/\phi$ sont transmis.



Sélecteur de vitesse.

Sur un cylindre de longueur L, on trace des « sillons » hélicoïdaux (pas de l'hélice = P). Si le cylindre tourne autour de son axe à la vitesse angulaire ω , chaque sillon ne transmet que les neutrons ayant une vitesse V $\simeq P \omega/2\pi$.

Le sélecteur mécanique est bien adapté à la production de faisceaux de grande longueur d'onde ($\lambda_0 > 0.6$ nm). Il permet aussi, lorsqu'une bonne résolution en énergie n'est pas nécessaire (par exemple pour la diffusion aux petits angles) d'augmenter le flux disponible en fabriquant un faisceau « peu » monochromatique ($\Delta V/V \simeq 10$ à 20 %).

Monochromateur focalisant

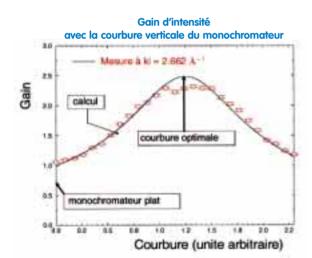
La source (volume de modérateur en regard du nez du canal) est une source étendue dont il est possible d'extraire des faisceaux de grande dimension : à Orphée environ 24*90 mm².

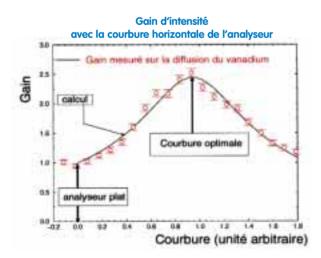
Le monochromateur focalisant va, au prix d'une perte minime de qualité, « concentrer » le faisceau monochromatique et augmenter ainsi le flux qui arrive sur l'échantillon.

Le principe est celui de la réflexion d'une onde par une surface courbe (analogie avec la focalisation d'un faisceau de lumière). Mais il faut tenir compte ici de la condition de Bragg pour la réflexion dans le plan d'incidence. De ce fait les conditions de focalisation vont dépendre de la longueur d'onde.



Montage à focalisation variable dans les 2 plans (analyseur 1T). Assemblage de cristaux plans à orientation modulable permettant de faire varier les courbures de l'ensemble.





Condition de focalisation

- verticale

$$\frac{1}{R_{V}} = \frac{1}{2\sin\theta_{0}} \left(\frac{1}{Z_{1}} + \frac{1}{Z_{2}} \right)$$

- horizontale

$$\frac{1}{R_H} = \frac{\sin \theta_0}{2} \left(\frac{1}{Z_1} + \frac{1}{Z_2} \right)$$

avec:

R_v rayon de courbure verticale

R_H rayon de courbure horizontale

Z₁ distance source-monochromateur

Z₂ distance monochromateur-point focal

 θ_0 angle de Bragg

□ La détection des neutrons

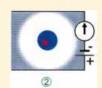
Le détecteur

Après avoir interagi avec différents constituants (noyaux et/ou spins électroniques) de l'échantillon, le neutron a une direction de propagation et une énergie différentes de leurs valeurs initiales. C'est de l'amplitude de ces changements et de la proportion des neutrons qui les subissent que l'on obtiendra les informations sur les distances et les mouvements présents dans l'échantillon étudié. L'élément final du spectromètre sera donc un détecteur, qui compte le nombre de neutrons qui le traversent (indépendamment de leur énergie, ce paramètre étant mesuré par un dispositif annexe).

Le neutron ne créant pas d'ions sur son passage, sa détection doit toujours mettre en jeu une réaction nucléaire. La majorité des détecteurs de neutrons fonctionne sur un même principe : une chambre est remplie d'un gaz dont un constituant absorbe fortement les neutrons thermiques en réémettant une particule chargée ; un champ électrique accélère cette charge qui, en se cognant aux autres atomes du gaz, va les ioniser en produisant des électrons secondaires (amplification) ; la cathode récolte ces électrons et donne une impulsion électrique que l'on détecte.

Les 6 étapes de la détection d'un neutron thermique :





L'absorption du neutron par le noyau A





déclenche l'émission d'une particule ionisante qui, accélérée par un champ électrique, crée des charges.





Récoltées par les électrodes, ces charges produisent une impulsion de courant que l'on détecte.

Il faut que le noyau A:

- soit une molécule gazeuse à la température ambiante,
- « aime » beaucoup capturer les neutrons,
- émette une particule très ionisante.

Deux bons candidats:

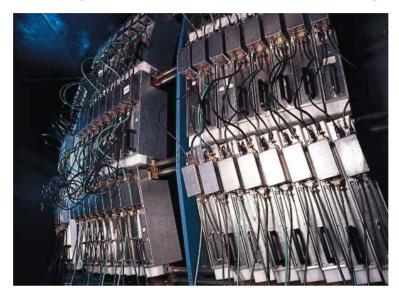
 $10_{B+n} \Rightarrow {}^{7}Li + {}^{4}He$ (Gazeux sous forme BF₃)

- Avantages : bonne efficacité, bon marché.
- Inconvénient : très toxique.

- 3 He + n \Rightarrow 3 T + p (Gazeux naturellement)
- Avantages : bonne efficacité, non toxique.
- Inconvénient : très cher, très sensible aux impuretés.

Multidétecteur

Après diffusion par l'échantillon, les directions de propagation des particules sont réparties dans tout l'espace. La mesure de cette loi de répartition en intensité I(20) permet d'obtenir, à condition d'explorer un domaine angulaire aussi vaste que possible, la relation d'ordre qui caractérise le diffuseur étudié (structure). L'expérience sera d'autant plus rapide (ou d'autant plus précise, au choix de l'expérimentateur) que l'on se donnera les moyens de mesurer simultanément cette intensité dans plusieurs directions.



Une méthode consiste à juxtaposer plusieurs détecteurs individuels.

Banc de détecteurs du spectromètre Mibemol

Une autre possibilité est de concevoir un détecteur étendu qui, par son architecture interne, donne la position de l'atome absorbeur, à l'origine de la particule ionisante détectée.

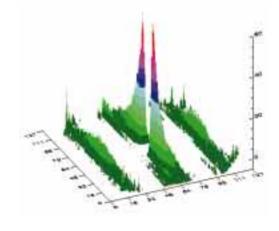
Ce sont les multidétecteurs ou PSD (Position Sensitive Detector).

Il en existe de plusieurs types :

- à 1 dimension, avec repérage de l'abscisse de l'impact (linéaire) ou de la variable angulaire (type banane),
- à 2 dimensions dans un plan où l'on repère, grâce à un réseau de fils perpendiculaires, à la fois l'abscisse et l'ordonnée du point d'absorption du neutron (détecteur XY).



Multidétecteur XY de 64x64 cellules, en cours d'assemblage (photo ILL).



Représentation 3D du nombre de neutrons recueillis dans chaque cellule d'un multidétecteur plan XY de 128 x 128 cellules (diffusion par un polymère cristal liquide)

Les spectromètres



Les spectromètres

La diffusion des neutrons thermiques par la matière condensée est gouvernée par les lois de conservation (moment cinétique, énergie, moment magnétique, ...) appliquées au système global (diffuseurs + neutrons). Le rôle du spectromètre est de mesurer, pour chaque neutron envoyé dans l'échantillon, la variation de ces différentes quantités après diffusion.

Dans leur très grande majorité, les spectromètres installés autour d'une source continue, telle que le réacteur Orphée, seront tous basés sur les mêmes principes :

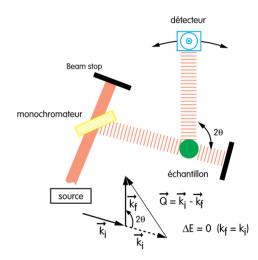
- préparer, afin d'en « bombarder » l'échantillon, un faisceau de neutrons ayant tous une même direction de propagation $\overrightarrow{k_i}$, une même énergie E_i et, dans le cas d'un faisceau polarisé, un même état de spin $\overrightarrow{\sigma_i}$;
- mesurer, après diffusion par l'échantillon, la proportion de neutrons qui ont une direction de propagation $\vec{k_f}$, une énergie $\vec{k_f}$ et, éventuellement, leur état de spin $\vec{\sigma_f}$.

Les différentes classes de spectromètres que nous allons maintenant brièvement décrire diffèrent essentiellement par la nature et le nombre des paramètres finaux que l'on mesure, par la technique utilisée ou encore par la gamme des valeurs (\vec{k}, E) pour laquelle ils ont été optimisés.

1 - Les diffractomètres

Cette classe d'appareils mesure le nombre de neutrons ayant subi, du fait de l'interaction avec les diffuseurs de l'échantillon, un changement de direction de propagation $2\theta = (\overrightarrow{k_f}, \overrightarrow{k_i})$.

Un faisceau parallèle et monochromatique (longueur d'onde λ_0) est envoyé sur l'échantillon. Le détecteur est mobile sur un cercle centré sur l'échantillon. Chaque position du détecteur définit une direction de propagation des neutrons émergents, faisant un angle 2θ avec la direction initiale. L'intensité enregistrée mesure le nombre de neutrons ayant échangé un moment cinétique $|Q|=|\overrightarrow{k_i}-\overrightarrow{k_f}|=\frac{4\pi}{\lambda_0}$ sin θ (en supposant la diffusion purement élastique).

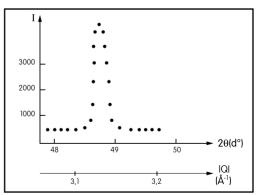


Représentation schématique d'un diffractomètre.

Les directions où la diffusion est intense (pics de Bragg) sont reliées à « l'ordre à longue distance de la structure moyenne » : un réseau de plans atomiques séparés par une distance (d) fera apparaître un maximum d'intensité dans la direction $2\theta = 2$ arc sin $(\frac{\lambda}{2d})$.

Dans le cas d'un cristal (réseau périodique à 3 dimensions \overrightarrow{a} , \overrightarrow{b} , \overrightarrow{c}), les directions de Bragg sont données par les vecteurs du « réseau réciproque » : $\overrightarrow{Q} = \overrightarrow{G} = h\overrightarrow{a}^* + k\overrightarrow{b}^* + l\overrightarrow{c}^*$

Les intensités relatives de la succession des pics (h, k, l) permettent de déterminer la position de tous les atomes dans la maille élémentaire.



Courbe d'intensité diffusée l= f(20), mesurée par le détecteur lorsqu'il traverse une direction de Bragg.

Les écarts à l'ordre parfait se traduisent, selon leur nature, par différentes modifications de la répartition angulaire des neutrons diffusés :

Dans un alliage A₃ B bien cristallisé, la répartition sur chaque site des atomes A (•) et B (•) peut être plus ou moins aléatoire (ordre ou désordre chimique) :

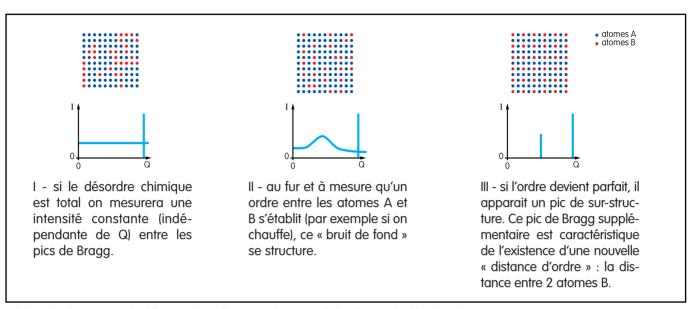
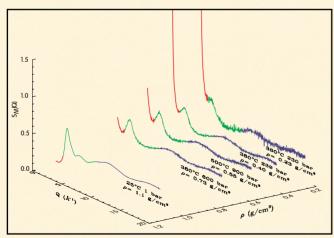


Schéma des diagrammes de diffraction d'un alliage A₃ B bien cristallisé. Influence du désordre chimique.

L'eau supercritique

Dans le plan (Pression-Température), la transition liquide-gaz se produit en des points (P, T) bien définis. Cette transition n'existe que en deçà du point critique (P_c , T_c); ainsi, partant de l'état liquide, un changement de température et de pression contournant le point critique permet d'obtenir un gaz sans avoir traversé la courbe d'ébullition. Dans cette région du plan ($P > P_c$; $T > T_c$) on parlera de fluide supercritique.

Dans leur état supercritique, les fluides ont souvent des propriétés physico-chimiques nouvelles. Par exemple, l'eau supercritique est extrêmement réactive : elle oxyde la plupart des corps organiques, produisant par dégradation du gaz carbonique et de l'eau. L'utilisation de cette propriété est envisagée pour le traitement des déchets domestiques.



Facteur de structure de l'eau (D_2O) pour différentes températures et pressions. Point critique $T_c = 371\,^{\circ}\text{C}$, $P_c = 218\,\text{bar}$, $P_c = 0,36\,\text{g/cm}3$.

L'évolution du facteur de structure, mesuré sur un grand domaine de Q, conduit à 3 résultats :

- Q > 5 Å⁻¹ (dimension moléculaire ; en bleu)
 ⇒ les courbes, très semblables, montrent que la structure de la molécule n'est pas modifiée lorsque l'on traverse le point critique.
- 5 > Q > 1 Å⁻¹ (distances intermoléculaires ; en vert)
 ⇒ lorsque la densité diminue, le pic principal s'élargit et se déplace ; les molécules sont moins localisées et leurs distances augmentent.
- Q < 1 Å⁻¹ (densité locale ; en rouge)
 ⇒ au voisinage du point critique il apparaît une forte diffusion à petit angle produite par les fluctuations de densité (fluctuations critiques).

□ Diffractomètre 2 axes pour poudres et liquides



Le diffractomètre « poudre » G41 et son multidétecteur 800 cellules

Une poudre isotrope est constituée de petits cristallites orientés au hasard dans toutes les directions. Le diagramme de diffraction observé ne dépend pas de la direction du faisceau incident. En effet, par rapport à n'importe quel axe, la distribution angulaire des cristallites est, par hypothèse, identique. La diffraction est distribuée uniformément sur des cônes d'axes parallèles au faisceau incident et d'ouverture 2θ. La mesure du spectre de diffusion (pics de Bragg et/ou diffusion diffuse entre ces pics) se fait en mesurant la distribution des intensités arrivant dans le détecteur lorsqu'il se déplace dans le plan horizontal sur un cercle centré sur l'échantillon (ou de façon plus efficace en utilisant un multidétecteur). Un deuxième axe de rotation, autour du monochromateur, permet de choisir la longueur d'onde incidente λ₀, et donc la gamme de transfert de moment Q analysée.

Remarquons encore que, si pour chaque cristallite, \overrightarrow{Q} est défini tant en module qu'en direction, l'isotropie de l'échantillon implique que la mesure globale est une moyenne sur toutes les orientations (moyenne de poudre). Le transfert de moment n'est, dans ce cas, défini qu'en module. (q = $|\overrightarrow{Q}|$):

I (20) = I (q) =
$$\int_{0}^{2\pi} I(\overrightarrow{Q}) \sin \beta d\beta$$

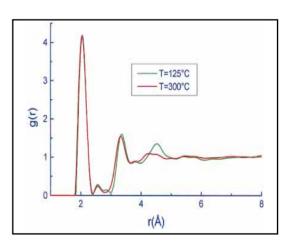
□ Dans un liquide, la mesure de la répartition angulaire de l'intensité diffusée permet d'accéder à la fonction de distribution de paire g(r) qui caractérise l'ordre local des atomes :

g (r) = 1 +
$$\frac{1}{2\pi^2 \ell_0} \int_0^{\infty} q^2 [I(q) - I(\infty)] \frac{\sin qr}{qr} dq$$

 ϱ_0 = densité moyenne

I (∞) = intensité diffusée pour q très grand

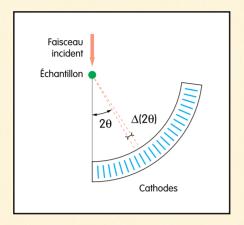
Le soufre liquide présente, vers 160° C une discontinuité qui affecte de nombreuses propriétés : viscosité, densité, chaleur spécifique... Les g(r) à 125 et 300°C montrent la disparition d'un pic de corrélation autour de 4,5 Å. Ces résultats sont bien rendus dans un modèle où le soufre liquide, constitué d'anneaux S_8 à basse température, se transforme en un liquide de longues chaînes S_n au-dessus de 160° C.



Transition de polymérisation du soufre liquide.

Multidétecteur « Banane »

Il permet de mesurer, en un seul comptage, la distribution de l'intensité diffusée dans un large secteur angulaire.



Dans le volume compris entre 2 portions de cylindres concentriques (axe commun perpendiculaire au plan de diffusion et passant par l'échantillon), on a disposé une série de N cathodes séparées par un angle $\Delta(2\theta)$. Ce volume est rempli par du gaz détecteur (BF $_3$ ou 3 He). Une électronique adaptée repère, pour chaque neutron détecté, le numéro de la cathode d'où provient l'impulsion électrique associée (voir § détecteur). Le contenu de la case « n », qui représente le nombre de neutrons diffusés dans l'angle n x $\Delta(2\theta)$ est alors incrémenté d'une unité.

3 types de multidétecteurs « Banane » existent au LLB :

N = 400 cellules sur 80 degrés $\Rightarrow \Delta(2\theta)$ = 12 min d'angle

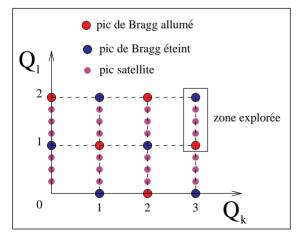
N = 800 cellules sur 80 degrés $\Rightarrow \Delta(2\theta)$ = 6 min d'angle

N = 640 cellules sur128 degrés $\Rightarrow \Delta(2\theta)$ = 12 min d'angle

□ Diffractomètre 4 cercles pour monocristaux

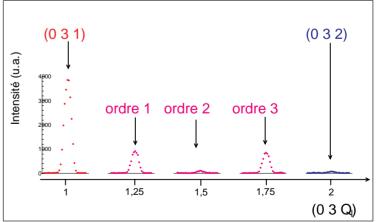
Lorsque l'échantillon est un monocristal, l'orientation de ses axes cristallins par rapport aux directions $\overrightarrow{k_i}$, $\overrightarrow{k_f}$ devient un paramètre fondamental de la mesure. C'est pourquoi, outre l'axe de rotation autour du monochromateur (choix de la longueur d'onde incidente λ_0) on aura besoin ici de 4 rotations d'axes concourant au centre du plateau échantillon : 3 rotations (angles d'Euler) qui permettent toutes les orientations relatives des axes cristallins par rapport à la direction incidente $\overrightarrow{k_i}$ et 1 rotation du détecteur définissant l'angle de diffusion 20

Diffractomètre 6T2



Structure modulée du chlorure de calcium et de bétaïne dihydraté (BCCD).





Balayage en \overrightarrow{Q} le long de $\overrightarrow{c^*}$ entre les pics de Bragg (0 3 1) et (0 3 2) dans la phase modulée $\overrightarrow{Q}=\frac{1}{4}\overrightarrow{c^*}$ de BCCD à T=100~K: mise en évidence de pics satellites d'ordre 3 très intenses. La mesure des intensités des pics de diffraction sur monocristal permet d'affiner la structure dans l'espace direct.

2 - Les spectromètres pour diffusion inélastique

Lorsque, au-delà de leur « position moyenne », on veut étudier la dynamique des atomes de l'échantillon (ou des moments magnétiques portés par ces atomes), le spectromètre doit mesurer le nombre de neutrons qui ont subi un changement d'énergie $\hbar\omega$ au cours du processus de diffusion, c'est-à-dire la proportion de particules qui, arrivant dans l'échantillon avec une énergie E_i , en ressort dans la direction $\overline{k_i}$ (formant un angle ψ avec la direction k_i des neutrons incidents) avec une énergie E_f (loi de conservation $\hbar\omega = E_i$ - E_f). Cependant, il n'existe pas de phénomène physique qui mesure (ou sélectionne) directement l'énergie des neutrons :

```
neutron = onde \rightarrow énergie \Leftrightarrow longueur d'onde \lambda neutron = particule \rightarrow énergie \Leftrightarrow vitesse V
```

Ces 2 visions sont à la base de 2 classes de spectromètres qui mesurent l'inélasticité de la diffusion.

□ Le spectromètre à 3 axes

Avant l'échantillon, les neutrons d'une énergie choisie sont sélectionnés puis, leur énergie après diffusion est mesurée par la longueur d'onde.

Le faisceau incident, parallèle et monochromatique λ_0 , est produit par réflexion de Bragg sur un monocristal (monochromateur). La variation de λ_0 est obtenue par rotation de l'ensemble du spectromètre (angle m) autour de l'axe vertical passant par le monochromateur (1^{er} axe).

L'analyse de l'intensité diffusée se fait en fonction de l'angle ψ mesuré autour de l'axe vertical passant par l'échantillon ($2^{\text{ème}}$ axe). Enfin, dans cette direction ψ , l'énergie des neutrons est analysée par un second monocristal et un détecteur mobile en rotation (angle a) autour de l'axe vertical correspondant ($3^{\text{ème}}$ axe).

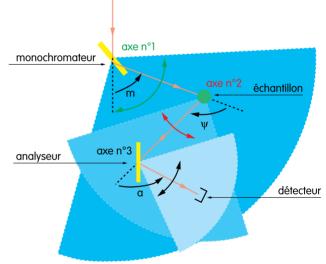
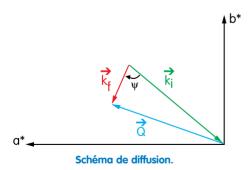


Schéma de principe du spectomètre à 3 axes.



Le plan a*, b* est le plan du réseau réciproque défini par les faisceaux incident et diffusé (plan de diffusion).

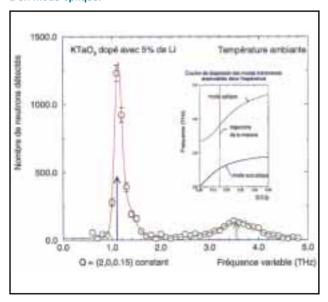
L'analyse du schéma de diffusion montre que les degrés de liberté disponibles permettent, si l'échantillon est monocristallin, de se déplacer à volonté dans le plan choisi du réseau réciproque.



Spectromètre à 3 axes 1T1

Selon le cas, on pourra parcourir un chemin à \overrightarrow{Q} constant (mesure de S (\overrightarrow{Q} = c^{te} , ω) ou un chemin à transfert d'énergie constant pour obtenir S(\overrightarrow{Q} , ω = c^{te}). Ces possibilités sont extrêmement utiles lorsqu'on dispose d'un monocristal du matériau à étudier.

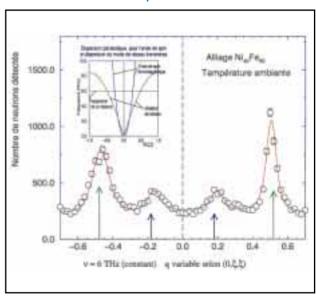
Méthode à Q constant : détermination d'un mode acoustique et d'un mode optique.



Pour mesurer des modes de vibration de réseau d'un cristal, le spectromètre 3-axes permet de sonder l'espace des phases (\overline{Q},ω) .

Des neutrons seront diffusés lorsque la trajectoire de mesure intersecte les courbes $\omega = f(\overrightarrow{Q})$ qui caractérisent la dynamique de réseau du système cristallin. La figure donne un exemple de mesure à \overrightarrow{Q} constant fournissant la détermination de 2 modes (un acoustique et un optique) de polarisation transverse.

Méthode à énergie constante : détermination d'un mode de vibration et d'un mode d'onde de spin.



Lorsque les modes de vibration ont une forte dispersion en fonction de \overrightarrow{Q} , on fait la mesure sur un spectromètre à 3-axes en suivant une trajectoire à énergie (ou fréquence) constante.

La figure donne un exemple qui fournit la détermination simultanée d'un mode de vibration de réseau (flèches vertes) et d'un mode de précession de spin (flèches bleues) dans un alliage ferromagnétique de Ni₄₀Fe₆₀.

La mesure est réalisée en $+\overrightarrow{Q}$ et $-\overrightarrow{Q}$ pour illustrer les effets de résolution instrumentale.

☐ Le spectromètre à temps de vol

C'est la vitesse V, ou plus précisément le temps t mis pour parcourir une distance donnée $\left| t = \frac{L}{V} \right|$ qui va mesurer l'énergie des neutrons avant et après diffusion par l'échantillon.

Le faisceau incident monocinétique (V_i) est préparé sous forme de bouffées grâce à un monochromateur à disques. L'instant de passage de la bouffée dans l'échantillon est repéré par la production d'une impulsion électrique synchrone à l'ouverture du dernier disque. En déclenchant à cet instant un « chronomètre », on mesure le temps mis par chaque neutron pour « voler » de l'échantillon au détecteur situé à la distance L dans la direction ψ . Bien évidemment, la mesure se répète à l'identique à chaque bouffée produite par le monochromateur (à chaque tour de roue).

Le schéma de diffusion montre que chaque temps d'arrivée dans le détecteur correspond à un transfert de moment Q différent en module et en direction. Il s'en suit un chemin complexe dans l'espace réciproque de l'échantillon, complexité qui rend souvent inutile, et parfois nuisible, l'utilisation d'un monocristal. Par contre, en mettant de nombreux détecteurs, on mesurera simultanément les transferts inélastiques dans plusieurs directions ψ .

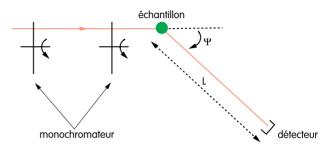
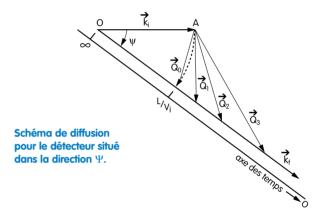
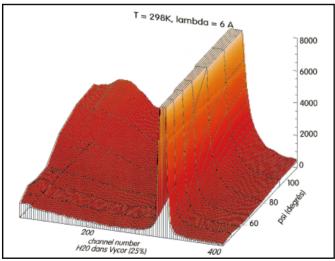


Schéma d'un spectromètre à temps de vol.





Spectre en temps de vol de l'eau confinée.

Le vycor est un verre de silice de grande porosité correspondant à un réseau de pores cylindriques (diamètre 50Å) interconnectés. Dans ces volumes internes de nombreuses molécules peuvent s'adsorber; elles y sont alors confinées dans de très petits espaces; ce confinement influence la dynamique et donc les propriétés thermodynamiques. Le spectre des neutrons diffusés par les molécules d'eau adsorbées dans le vycor est mesuré par temps de vol en fonction de l'angle de diffusion et de l'énergie échangée. L'analyse des composantes quasi-élastiques indique que le modèle de diffusion par saut représentatif de l'eau liquide reste valable. Par contre, le coefficient de diffusion à grande distance est, à 25°C, environ 10 fois plus faible que pour l'eau non confinée; il reste mesurable à -15°C.

□ La mesure de très faibles transferts d'énergie : le spectromètre à « écho de spin »

Le moment magnétique (spin) porté par le neutron offre un moyen de mesurer avec précision de très faibles changements d'énergie intervenus au cours du processus de diffusion.

En effet, plongé dans un champ magnétique H, ce spin tourne autour du champ (précession de Larmor) avec une vitesse angulaire $\Omega = \gamma H$ ($\gamma =$ rapport gyromagnétique $\simeq 2.10^8$ rd/s.T). Utilisée comme un chronomètre, cette rotation est intéressante à double titre :

- En comptant le nombre de tours, on connaît avec précision le temps passé par le neutron dans le champ magnétique. Si le neutron parcourt l'axe d'un solenoïde de longueur L (bobine de précession) parcouru par un courant (qui créé le champ) on en déduit sa vitesse V.
- Chaque neutron porte sa propre « horloge » qui se déclenche lorsqu'il pénètre dans la bobine et s'arrête lorsqu'il en ressort.



Le spectromètre à « écho de spin » MESS.

Les longs cylindres qui se trouvent avant et après l'échantillon sont les bobines de précession. Elles sont identiques mais créent des champs magnétiques de sens opposés. Si au cours de la diffusion le neutron ne change pas de vitesse, son spin tourne de N_1 tours avant l'échantillon et $-N_1$ après ; à la sortie il aura donc exactement la même orientation qu'à l'entrée (écho). Par contre si la vitesse change, l'orientation du spin sera différente. En mesurant cette orientation on peut détecter un changement de vitesse très faible ($\Delta V/V_0 \simeq 10^{-5}$).

3 - Les réflectomètres

Dans un chapitre précédent nous avons mentionné que tout milieu est caractérisé, du point de vue de la propagation d'une onde, par un indice \mathbf{n} (dont la valeur dépend de la nature de l'onde). Dans le cas de la propagation des neutrons, on peut montrer que cet indice ne dépend que de la **densité de longueur de diffusion** du matériau, c'est-à-dire du produit de sa densité (ϱ) par la longueur de diffusion moyenne (b_{coh}) des différentes espèces atomiques présentes $n=1-\frac{\lambda^2}{2\pi}\,\varrho$ b_{coh}

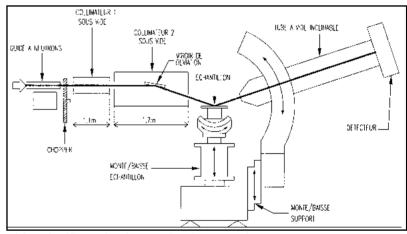


Schéma du réflectomètre à temps de vol DESIR (G5 bis).

Remarquons tout de suite que dans un matériau, même dense et constitué d'atomes ayant une longueur de diffusion importante, l'indice **n** reste toujours très voisin de 1 pour la gamme des longueurs d'onde disponible ; par exemple pour

$$le \; nickel : \lambda = 10 \mbox{\norm{\mathring{A}}} \; \Rightarrow \frac{\lambda^2}{2\pi} \; \theta \; b_{coh} \approx 10^{-4}.$$

Les lois qui régissent le passage de l'onde d'un milieu d'indice \mathbf{n}_1 à un milieu d'indice \mathbf{n}_2 (par exemple à travers la surface de séparation entre le vide, ou l'air, où se propage le faisceau incident (\mathbf{n}_1 =1), et le matériau « échantillon ») sont les mêmes que celles de la lumière, connues depuis le 19^{ème} siècle (Fresnel, Maxwell). En particulier il y a toujours apparition d'un **faisceau réfléchi.**

Si \mathbf{n}_2 <1, il existe un angle critique $\theta_{\rm C}$ tel que pour θ < $\theta_{\rm C}$ on a **réflexion totale**. $\theta_{\rm C} \sim \frac{\lambda}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\ell_2 b_2}$

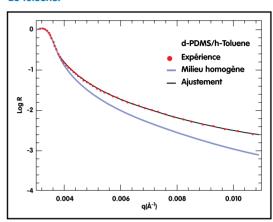
Pour $\theta > \theta_c$ le faisceau se décompose en un faisceau réfracté et un faisceau réfléchi. La répartition de l'intensité entre ces 2 composantes dépend de l'angle d'incidence θ et de la variation \mathbf{n}_2 (z) de l'indice avec la distance z à l'interface.

 \square Si le milieu est homogène (\mathbf{n}_2 (z) = C^{te}) l'intensité réfléchie est donnée par la formule de Fresnel :

$$I_r = I_0 \bigg| \frac{1 - x}{1 + x} \bigg|^2 \; ; \; \; x = \sqrt{1 - \bigg| \frac{q_c}{q} \bigg|^2} \; \; ; \; \; q = \; \frac{4 \; \pi}{\lambda} \; sin \; \theta \label{eq:Ir}$$

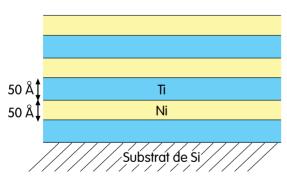
Si $\frac{d}{dz}$ $\mathbf{n}_2 \neq 0$ (gradient d'indice) on mesurera un écart à cette distribution. En fonction d'hypothèses sur la forme analytique de $\mathbf{n}_2(z)$, différentes courbes théoriques peuvent être calculées et comparées au résultat expérimental.

Intensité réfléchie à l'interface air-solution PDMS dans du toluène.



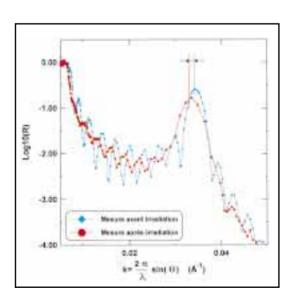
L'écart à la courbe « milieu homogène » est un effet de gradient de concentration des molécules de polymère au voisinage de la surface. La prédiction théorique $\mathcal{Q}(z) = z^{-4/3}$ est très bien vérifiée ($\mathcal{Q}(z) = concentration en polymère$).

□ Pour une structure en couches, l'indice subira des variations brutales (marches d'escalier) se traduisant par une série de pics dans la partie décroissante de l'intensité réfléchie. Ces pics sont la conséquence d'interférences entre les différents rayons réfléchis par la succession des interfaces. Leur nombre et leurs écarts permettent de mesurer l'épaisseur des couches et la gualité des interfaces (rugosité, interdiffusion…).



Traitement: irradiation aux neutrons thermiques sous une fluence de 6.10¹⁹n.cm⁻².

Multicouche composée de 10 bicouches Ni/Ti sur silicium.



Courbe de reflectivité de la multicouche mesurée avant et après irradiation.

Le déplacement du pic est caractéristique d'un gonflement des couches. La baisse de son intensité est caractéristique de l'augmentation (entre 5 à 30Å) de la rugosité entre couches.

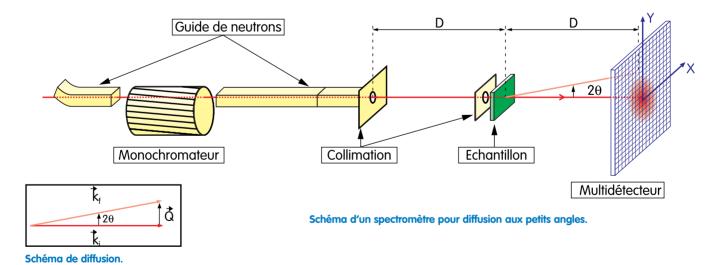
4 - Les spectromètres pour « diffusion aux petits angles » (DPA)



Spectromètre PAXE.

Conçus pour caractériser des objets de grande taille (1 à 50 nm) ces spectromètres mesurent la quantité de neutrons qui ont été diffusés « vers l'avant », c'est-à-dire issus de processus ayant mis en jeu de très petits transferts de moment cinétique.

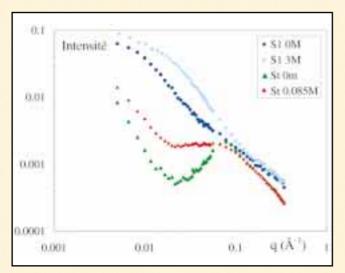
Pour ce faire ils vont réunir 2 spécificités : un faisceau incident très bien collimaté et de grande longueur d'onde λo ; un détecteur étendu (plan) et situé à grande distance de l'échantillon (entre 1 et 7 m).



Le point d'impact de chaque neutron détecté est repéré par ses coordonnées (X,Y) dans un système d'axes orthogonaux lié au détecteur. L'origine des axes étant le point du détecteur où arrive le faisceau incident non dévié, un neutron détecté au point de coordonnées (X,Y) a subi un transfert de moment :

$$Q = \frac{4 \pi}{\lambda_0} \sin \theta \sim \frac{2 \pi}{\lambda_0} \frac{\sqrt{X^2 + Y^2}}{D} (\theta \text{ petit}) \quad \text{où D est la distance de l'échantillon au détecteur.}$$

Interaction électrostatique inter et intra chaînes dans un polyélectrolyte en solution



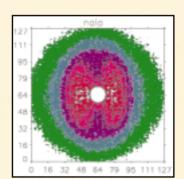
Intensité diffusée par une solution de polyélectrolytes, avec et sans sel ajouté.

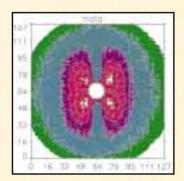
Intensité mesurée dans la direction θ (en abscisse, $q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta$) pour des solutions de polyélectrolytes (polymères chargés dans l'eau, 0.17 mole/litre) :

- Si toutes les chaînes sont marquées, on observe une répulsion à une distance caractéristique (maximum dans la courbe des triangles verts), qui est « écrantée » par la forte densité de charges lorsque l'on ajoute du sel (triangles rouges).
- Si la moitié des chaînes est deutériée, l'autre moitié hydrogénée, et que l'on ajuste l'indice du solvant à une valeur moyenne (mélange d'eau lourde et d'eau légère), on mesure directement le signal d'une seule chaîne. En l'absence de sel (cercles bleu foncé), les répulsions étirent la chaîne, son signal décroît donc plus vite avec l'angle. En présence de sel (cercles bleu clair), ces répulsions disparaissent et la chaîne a la même rigidité qu'à l'état neutre.

Effet de l'étirement dans un matériau composite

Mise en évidence expérimentale des corrélations entre particules de silice nanométriques dans une matrice polymère sous étirement : carte d'intensité sur un multidétecteur bidimensionnel perpendiculaire au faisceau. Le signal initialement isotrope (anneau) traduit sous élongation le déplacement des particules, ce qui peut permettre de comprendre le renforcement des polymères par des particules dures.



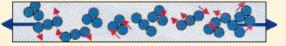




Isotrope



Elongation modérée : déplacement affine des parties dures. (Spectre ci-contre, 2 lobes).



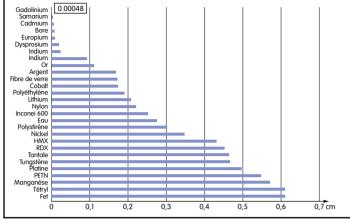
Evitement par cisaillement local. (Spectre ci-contre, 4 lobes).

Observation par DNPA du déplacement mutuel de particules dures dans une matrice polymère étirée.

5 - La radiographie aux neutrons

Totalement différente dans ses buts et son principe, la radiographie aux neutrons est une technique d'imagerie directe par transmission.

Un faisceau de neutrons de grande section est envoyé sur l'objet à observer. Un détecteur photographique, sensible aux neutrons, est placé derrière. Après exposition, on obtient une image de la « transparence aux neutrons » moyennée sur toute l'épaisseur de l'objet traversé.



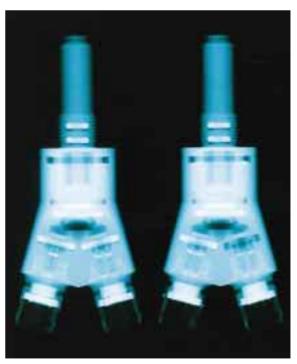


Cette transparence est fonction de la probabilité qu'a le neutron de traverser l'objet sans « disparaître » du faisceau initial, c'est-à-dire sans être ni absorbé (auquel cas il disparaît complètement) ni diffusé (il est alors dévié de sa trajectoire initiale et n'atteint pas la plaque photo). Elle fait intervenir les interactions neutron-matière dont nous avons évoqué les principales caractéristiques dans un chapitre précédent. En particulier ses différences avec l'interaction rayons X-matière, qui font de l'imagerie neutron une technique complémentaire de l'imagerie RX.

Epaisseur du matériau pour laquelle le faisceau de neutrons thermiques est atténué de 50% (λ = 1.8 Å).

La technologie spatiale exige des contrôles aussi poussés que possible de certains équipements critiques. Parmi ceuxci, différents dispositifs faisant appel à la pyrotechnie (explosifs) sont utilisés pour assurer des fonctions essentielles comme la séparation des étages et le largage des satellites. La très grande « visibilité » de l'hydrogène par les neutrons fait de la radiographie aux neutrons une méthode fiable pour détecter, à travers les enveloppes métalliques, d'éventuels défauts dans la mise en place de ces explosifs ou dans le montage final.

Sur la photo on voit qu'il manque un joint caoutchouc (en noir) dans l'élément de droite.



Radiographie aux neutrons de vérins pyrotechniques ARIANE (DASSAULT-AVIATION).

Travailler au LLB



Notre but

Promouvoir l'utilisation de la spectrométrie neutronique dans divers domaines de la recherche fondamentale et appliquée est une mission importante du LLB. Une condition nécessaire pour y parvenir est le maintien au sein du Laboratoire d'une recherche de qualité qui suppose de pouvoir accueillir de nombreux thésards et post-doctorants. Des visites du Laboratoire, en groupe ou individuelles, sont organisées à la demande. Outre la découverte des installations, elles permettent de prendre contact avec différentes équipes de chercheurs qui travaillent dans des domaines variés.

Le LLB doit aussi organiser pour les équipes extérieures, l'accès à l'ensemble des spectromètres installés autour du réacteur. Cette possibilité a pour préalable la soumission d'une proposition d'expérience écrite.

Soumettre une proposition d'expérience

Si vous souhaitez déposer pour la première fois une demande d'expérience, veuillez contacter le Secrétariat Scientifique du LLB qui vous adressera le formulaire correspondant. Une soumission par Internet sera possible prochainement (courant 1999). Toutes les propositions sont discutées au cours de Tables Rondes thématiques (qui se tiennent habituellement chaque année durant le dernier trimestre).

Leur annonce est faite durant l'été par un dépliant comportant la liste et les dates des diverses sessions ainsi qu'un bulletin de participation à leur déroulement et une invitation à une éventuelle présentation orale du projet d'expérience.

A chaque Table Ronde est associé un Comité de Sélection comportant des représentants de la communauté scientifique Française et Européenne et des membres du LLB. Il est chargé d'établir pour chaque proposition un classement :

- A expérience qui sera réalisée
- B expérience acceptée sur critère scientifique mais dont la réalisation dépendra du temps de faisceau disponible
- C expérience non acceptée

Pour toutes informations complémentaires vous pouvez nous contacter :

SECRETARIAT SCIENTIFIQUE DU LABORATOIRE LEON BRILLOUIN CEA SACLAY BATIMENT 563 91191 GIF-SUR-YVETTE CEDEX

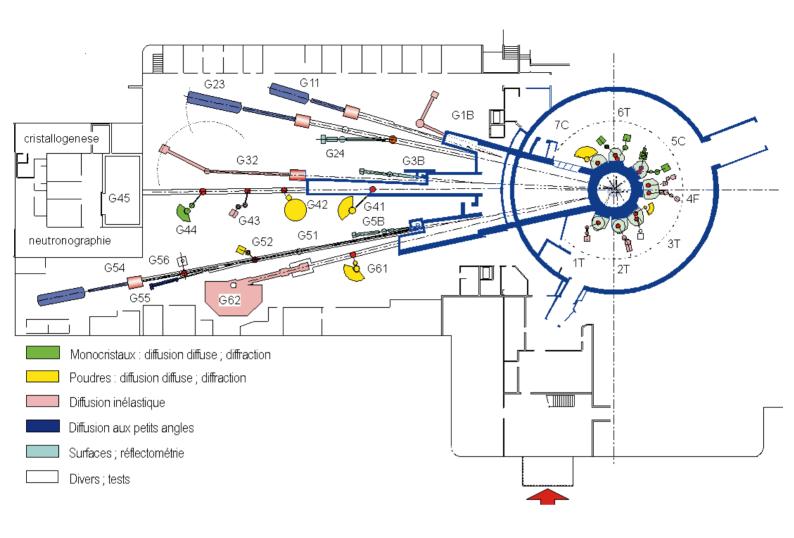
© 33 (0) 1 69 08 60 38

FAX: 33 (0) 1 69 08 82 61

e-mail: experience@llb.saclay.cea.fr

serveur internet: http://www-llb.cea.fr

IMPLANTATION GENERALE DES SPECTROMETRES



Crédits Photos

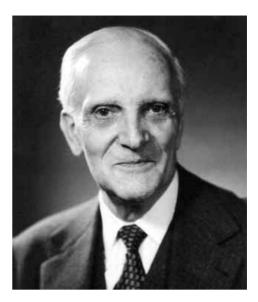
Page A1	Orphée à la lyre – vers 1947 – par Jean Cocteau	©Adagp, Paris 1998
Page A3	Vue aérienne du site du CEA/SACLAY	CEA/Gonin
Page A6	Portrait de Léon Brillouin	Académie des Sciences/Jean-Loup Charmet Paris
Page 1	Léon Brillouin avec Beauvais et Perrot, ENS (1910)	Archives de la famille de Mr Léon Brillouin
Pages 4/5	Contrôle par neutronographie d'une série de 8 turbines à aubes	CEA/European Gas Turbine Ltd
Page 9	Prothèse de hanche	Université de Reims
Page 12	Clichés "neutrons" et "rayons X" d'une calculatrice	CEA
Pages 20	Le réacteur Orphée	LLB/Jean Biaugeaud
Page 22	Piscine cœur	LLB/Jean Biaugeaud
Page 24	Source froide annulaire	CEA/Maurice Faugère Productions
Page 25	Salle de conduite du réacteur Orphée	LLB/Jean Biaugeaud
Page 26	Le guide G1 et le déviateur G1bis	LLB/Jean Biaugeaud
	Dépôt de couches minces par pulvérisation cathodique	CILAS
Page 28	Montage permettant le choix entre différents monochromateurs	ILL/Neyrtec Service Photo-Cinéma
	Partie terminale du monochromateur à chopper "Mibemol"	LLB/Jean Biaugeaud
Page 29	Montage à focalisation variable (analyseur 1T)	LLB/Bleue Image
Page 31	Banc de détecteurs du spectromètre Mibemol	LLB/Bleue Image
	Multidétecteur XY de 64x64 cellules	ILL/Studio de la Revirée
Pages 32	Vue d'ensemble du hall des guides du réacteur Orphée	LLB/Jean Biaugeaud
Page 36	Diffractomètre " poudre " G41 et multidétecteur 800 cellules	LLB/Jean Biaugeaud
Page 37	Diffractomètre 6T2	LLB/Bleue Image
Page 39	Spectromètre à 3 axes 1T1	LLB/Jean Biaugeaud
Page 41	Spectromètre à "écho de spin" MESS	LLB/Jean Biaugeaud
Page 43	Spectromètre PAXE	LLB/Bleue Image
Page 45	Radiographie aux neutrons de vérins pyrotechniques ARIANE	CEA/Dassault-Aviation A5

Léon Brillouin 1889-1969

Léon Brillouin, né à Sèvres en 1889, "intègre" l'Ecole Normale Supérieure en 1908.

Fait très exceptionnel pour un jeune physicien français de l'époque, il poursuit sa formation (1912) à l'Institut de Physique Théorique de Munich alors dirigé par A. Sommerfeld : là s'était déroulée quelques mois auparavant l'expérience de Von Laue sur la « diffraction des rayons de Roentgen » (rayons X) par un cristal.

De retour en France (1913), il entreprend une thèse sur la théorie des solides; il propose une équation d'état bâtie sur les vibrations atomiques (phonons) qui parcourent le solide.



Il étudie également la propagation d'une onde lumineuse monochromatique et son interaction avec les ondes acoustiques : il montre que le rayon diffusé est constitué par la somme de trois composantes (effet Brillouin) : une à la fréquence de l'onde incidente (ω_o), les deux autres à des fréquences qui l'encadrent symétriquement ($\omega_o \pm \Delta \omega$) (Doublet Brillouin) ; l'écart dépend de l'angle de diffusion. Cette prédiction théorique ne sera observée expérimentalement qu'une dizaine d'années plus tard. Interrompu dans son travail par la guerre de 1914-1918, il soutient sa thèse en 1920 (Jury : Marie Curie, Paul Langevin, Jean Perrin !).

Débute alors une période de grande fécondité dans la production scientifique de Léon Brillouin au cours de laquelle il contribue à la « révolution quantique » dans divers domaines de la physique :

- Il propose une méthode de résolution approchée de l'équation de Schrödinger (méthode B.K.W. : **B**rillouin, **K**ramers, **W**entzel) appliquée aux électrons.
- Il reprend la théorie du paramagnétisme dont Langevin a donné 20 ans auparavant un modèle "classique" en y introduisant la quantification du moment orbital (1927).
- Au cours d'un travail sur la propagation d'une onde électronique dans un réseau cristallin, il est amené à introduire un concept qui s'avèrera particulièrement utile dans la théorie des solides cristallins: Les Zones de Brillouin (1930).
- Il publie une série d'articles dans lesquels il traite des méthodes d'étude des systèmes à plusieurs électrons (formule de Brillouin-Wigner).

Parallèlement à ses activités de recherche il enseigne, d'abord à la Sorbonne où il accède en 1928 à la chaire de Physique Théorique, puis au Collège de France où il est élu en 1932.

En Août 1939, un mois avant la déclaration de guerre à l'Allemagne, Léon Brillouin est nommé, en tant que spécialiste de la propagation des ondes, directeur de la Radiodiffusion Nationale. Mai 1940, la débâcle ; le gouvernement et la haute administration dont il fait partie se replient à Vichy. Il y reste six mois puis démissionne et part aux Etats-Unis où il adhère au groupe de la France

Libre ; il participe à l'effort de guerre en travaillant dans le domaine des radars à l'Université de Columbia (New-York).

A la fin de la guerre il décide de rester aux Etats-Unis où il enseigne à Harvard et Columbia; il est élu membre de la National Academy of Sciences en 1953. Loin d'abandonner la recherche, il se passionne pour un domaine qui vient de naître : « La Théorie de l'Information ». Il invente le concept de « Néguentropie » (entropie négative) pour démontrer l'équivalence entre entropie et information, et pour qu'ainsi, le « Démon de Maxwell » ne viole pas le principe de Carnot. Il meurt en 1969 à New-York.

Bibliographie :

Les Tenseurs en Mécanique et en Elasticité, Paris 1937, 1949.

Quantenstatistik, Berlin 1931.

Propagation des Ondes dans les Milieux Périodiques, Paris 1956.

La Science et la Théorie de l'Information, Paris 1959.

Pour en savoir plus : « Léon Brillouin, A la Croisée des Ondes », R. Mosseri, Belin (1998).