

Chapitre 16 : Diffusion des Neutrons

16.1 : Introduction

Les neutrons sont des particules neutres possédant un spin $\frac{1}{2}$, et de masse très voisine de celle du proton ($m = 1,675 \cdot 10^{-24}$ g). Le neutron libre est instable : sa période est de l'ordre de 12 mn.

Le moment magnétique de spin du neutron est égal à : $\vec{M}_n = -g\mathbf{m}_p \vec{S}_n$

- o g est une constante égale à 1,913
- o $\mathbf{m}_p = eh/4\pi M_p$ est le magnéton de Bohr nucléaire égal à 1/1836 fois le magnéton de Bohr électronique $\mathbf{m}_b = eh/4\pi m_e$ et M_p et m_e sont respectivement les masses du proton et de l'électron.
- o \vec{S}_n est le spin du neutron

Le signe "−" indique que le moment magnétique du neutron est opposé à son spin. C'est un moment magnétique très petit comparé aux moments d'origine électronique. Pour mémoire, le moment magnétique de spin de l'électron est égal à $\vec{M}_e = -2\mathbf{m}_b \vec{S}_e$ avec \vec{S}_e spin de l'électron.

Au neutron de vitesse v , on associe une onde plane dont la longueur d'onde est donnée par la relation de DE BROGLIE :

$$\mathbf{l} = \frac{h}{p} \quad \text{qui devient dans les unités indiquées : } \mathbf{l} (A^\circ) = \frac{3956}{v(m/s)}$$

Un neutron ayant une énergie cinétique E se déplace à une vitesse $v = \sqrt{2E/m}$ qui vaut dans les unités pratiques : $v(m/s) = 13831 \sqrt{E(eV)}$

Des neutrons de 1.8 Å ont une vitesse de 2 200 m/s environ, ceux de 0.84 Å, 4 700 m/s environ.

Si on exprime λ en fonction de l'énergie E du neutron, il vient :

$$\mathbf{l} = \frac{h}{\sqrt{2Em}} \quad E = \frac{h^2}{2m\mathbf{l}^2} : \text{ soit } \mathbf{l} (A^\circ) = \frac{0,2860}{\sqrt{E(eV)}} \quad E(eV) = \frac{0,0818}{\mathbf{l}^2 (A^\circ)}$$

dans les unités indiquées.

L'énergie d'un neutron de 1,8 Å vaut environ $25 \cdot 10^{-3}$ eV (25 meV), celle d'un neutron de 0.84 Å, 116 meV environ. Lorsque des neutrons sont à l'équilibre thermique avec un milieu à la température T , le spectre de leurs vitesses est maxwellien, et leur vitesse

quadratique moyenne $\sqrt{\langle v^2 \rangle}$ est telle que : $\frac{1}{2} m \langle v^2 \rangle = \frac{3}{2} kT$, à laquelle correspond

une longueur d'onde moyenne $\langle \mathbf{l} \rangle = \frac{h}{\sqrt{3mkT}}$ soit en unités pratiques : $\langle \mathbf{l} \rangle_{A^\circ} = \frac{30,8}{\sqrt{T}}$

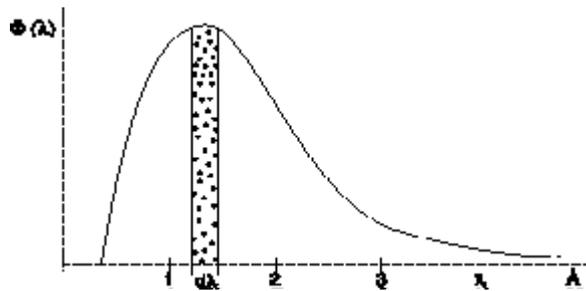
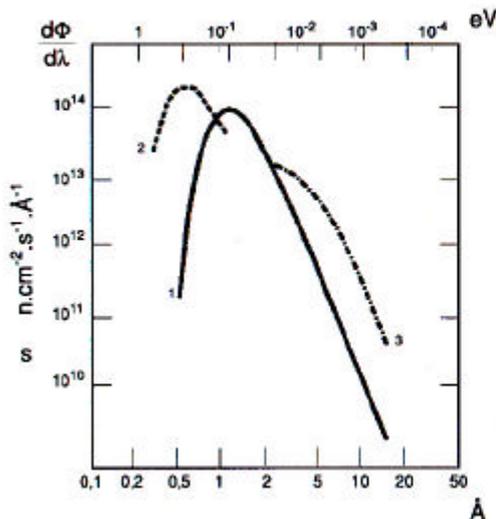


Figure 16.1 - Spectre d'émission des neutrons

$\Phi(\lambda)d\lambda$ est le nombre de neutrons de longueur d'onde λ , $\lambda+d\lambda$ émergent par sec du collimateur.

La thermalisation des neutrons se produit après un nombre suffisant de collisions dans des substances adaptées aux gammes de longueur d'onde désirée. Fig. 16.2 et 16.3

- o bidon réflecteur rempli d'eau lourde maintenue à une température proche de l'ambiante (320 K°) pour la source **thermique**
- o l'hydrogène liquide bouillant à 20 K° pour la source **froide**
- o bloc de graphite porté à 1000 K° pour la source **chaude**



T_0	20	100	300	1000 K
$\langle \lambda \rangle$ (Å)	6.89	3.08	1.78	0.97
V (km/s)	0.57	1.28	2.22	4.08
E (meV)	1.72	8.62	25.8	86.9

-
- 1 source thermique (300 K)
 - 2 source haute température (1000 K)
 - 3 source basse température (20°K)

Figure 16.2 : Spectre d'émission des neutrons (document du L.L.B)

A la sortie du réacteur, les faisceaux de neutrons sont divergents, ils ont un spectre "blanc", les directions de spins ont réparties au hasard. Le collimateur d'entrée (fentes de Sollers) et le monochromateur se trouvent dans une enceinte de protection biologique accolée à la paroi du réacteur. Fig. 16.3

Après réflexion de BRAGG sur un monocristal (cuivre 200, graphite par exemple), le faisceau de neutrons est monochromatique, aux harmoniques près. Il est approximativement parallèle, la section disponible est de l'ordre du cm^2 . Pour obtenir une intensité suffisante, on doit sélectionner dans le spectre "blanc" une bande assez large au moyen de collimateurs ouverts et de monochromateur à large mosaïque. La conséquence est que les faisceaux de neutrons monochromatiques ont des qualités optiques médiocres comparés à celles des rayons X :

	neutrons	rayons X
divergence	0.5 deg.	0.01 deg
largeur relative	10^{-2}	10^{-4}

Ces neutrons "pour diffraction" ont donc des énergies de l'ordre de quelques centièmes d'électron - volt (dizaines de meV).

Or 1 eV correspond à 11 600 K° : l'énergie de ces neutrons correspond à quelques centaines de K°, soit à une température de l'ordre de l'ambiante. On dit que ces neutrons sont des "neutrons thermiques". Leur énergie est du même ordre de grandeur que l'énergie d'agitation thermique dans les solides à la température ambiante .

Conséquence : dans une collision neutron-phonon, les énergies des particules sont comparables, le changement relatif d'énergie du neutron peut être important. On peut mesurer le transfert d'énergie du phonon au neutron en effectuant l'analyse en énergie des neutrons diffusés.

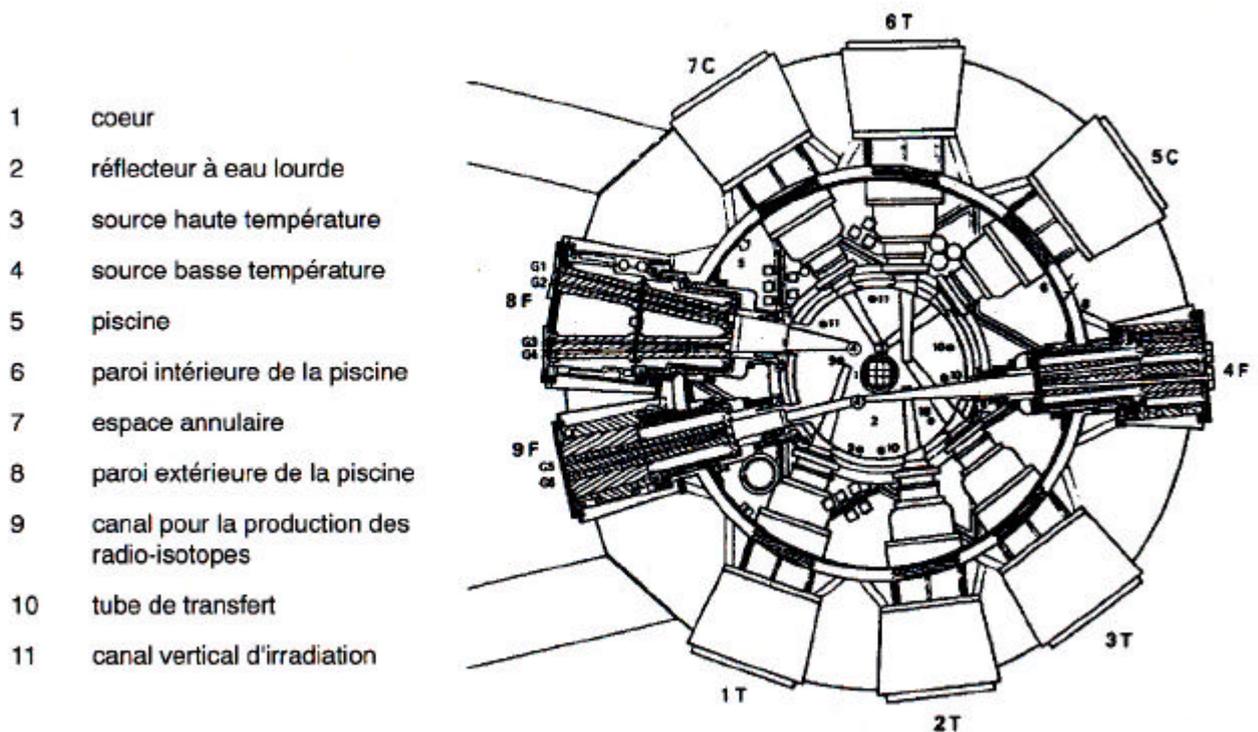


Figure 16.3 : Réacteur nucléaire (L.L.B) : implantation des canaux de sortie des neutrons (document du L.L.B)

16.2 : Interaction entre les neutrons thermiques et les atomes

Les phénomènes d'absorption et de diffusion, se produisent lorsque les neutrons thermiques traversent la matière : ils sont la conséquence des interactions neutrons-atomes.

16.2.1 Interaction avec les noyaux

ABSORPTION : le noyau (A, Z) (A neutrons + Z protons) qui capture un neutron devient un noyau (A+1,Z) dans un état excité. La masse du noyau (A+1,Z) est en effet toujours inférieure à la somme des masses du noyau (A, Z) et du neutron (1, 0).

La désexcitation : $n_0^1 + N_Z^A \Rightarrow [N_Z^{A+1}] \Rightarrow N_Z^{A+1} + g$ est la plus fréquente avec des neutrons thermiques, excepté la réaction : $n_0^1 + B_5^{10} \Rightarrow [B_5^{11}] \Rightarrow Li_3^7 + a_2^4$

qui est mise à profit dans les compteurs à gaz BF₃ pour les neutrons. La particule α ionise le BF₃ ; les électrons sont collectés comme dans un compteur à gaz classique pour rayons X.

DIFFUSION : le neutron arrivant à proximité du noyau (quelques 10⁻¹³cm !) "sent" un potentiel d'interaction qui le dévie de sa trajectoire. La diffusion due à cette interaction est une collision.

DIFFUSION de SPIN : elle se produit si le noyau est porteur d'un moment magnétique c'est à dire s'il a un spin *I* non nul. Le neutron et le noyau peuvent se combiner pour former un ensemble ayant un spin total d'amplitude égale à : *I*+1/2 ou *I*-1/2 et prenant 2*I*+1 orientations dans l'espace auxquelles correspondent des amplitudes de diffusion *b*₊ et *b*₋

16.2.2 Interaction avec les électrons

DIFFUSION : la diffusion de "collision" est négligeable

DIFFUSION MAGNETIQUE : elle se produit lorsque les atomes (ions) du matériau ont des couches électroniques incomplètes et possèdent par conséquent un moment magnétique de l'ordre de quelques *m_B* (1 *m_B* est égal à 1,165*10⁻²⁹ MKSA). Ce sont les éléments du groupe du Fer, du Palladium, des Terres, des Uranides.

16.3 : Absorption des neutrons thermiques

On associe à chaque noyau une section efficace d'absorption *S_a* ou section efficace de capture qui représente la surface dans laquelle le neutron est capté. Si Φ₀ est le flux neutrons incident (nombre de neutrons par unité de temps et de surface normale au faisceau), le flux Φ transmis après la traversée d'un matériau d'épaisseur *e* contenant *N* noyaux par unité de volume est : $f = f_0 \exp(-Ns_a) = f_0 \exp(-m)$

$m = NS_a$ est le coefficient d'absorption linéaire mesuré en cm⁻¹. *S_a* est donné en barn (1 barn = 10⁻²⁴ cm²)

Les sections efficaces de capture des noyaux pour les neutrons sont très variables d'un noyau à l'autre et en particulier d'un isotope à l'autre. Pour les valeurs numériques, voir la référence 1

A retenir :

o les sections efficaces d'absorption sont de l'ordre de 1 barn. ; elles dépendent en général de la longueur d'onde

o l'absorption des neutrons thermiques par la matière est en général très faible, beaucoup plus faible que celle des rayons X.

Exemple : (unité : barn 10^{-24} cm^2)

	Neutrons (1.08 Å)	Rayons X (1.54 Å)
Vanadium	2,8	19 700
Fer	1,4	28 600
Argent	36	39 000
Uranium	2,1	121 000

les exceptions : B Li Cd Sm Eu Gd

Conséquences :

- o 1 - On peut compenser la faiblesse des flux incidents, en utilisant des échantillons de quelques mm au cube, alors que les échantillons pour la diffraction X ont quelques 0,1 mm au cube
- o 2 - La totalité de l'échantillon (ou presque) participe à la diffraction, alors que pour les rayons X ce n'est que la surface (en général).
- o 3 - La mise sous conditions de l'échantillon (cryostat, four, cellule haute pression, etc...) est rendue plus facile par l'emploi de fenêtres épaisses et faciles à réaliser, que les neutrons traversent sans atténuation importante .
- o 4 - Possibilité de substituer un isotope absorbant par un autre non capturant dans un matériau.

16.4 : Diffusion nucléaire des neutrons

C'est le noyau qui est principal acteur de la diffusion des neutrons.

16.4.1 Diffusion par un noyau

Les forces nucléaires qui sont responsables de la diffusion des neutrons ont une extension de 10^{-14} à 10^{-15} m, beaucoup plus petite que la longueur d'onde des neutrons (10^{-10} m).

Vis à vis du neutron, le noyau va apparaître comme un **point diffractant** : la diffusion sera **isotrope**. Elle sera représentée par une onde sphérique centrée sur la position du

$$\text{noyau : } \Psi(r) = -\frac{b}{r} \exp i(k|\vec{r}) \quad (k = 2\mathbf{p} / \mathbf{l})$$

b est l'amplitude de diffusion nucléaire, le signe - indique que les noyaux se comportent comme des sphères dures et que l'onde diffusée est en opposition de phase avec l'onde incidente pour la grande majorité des noyaux. Cette amplitude de diffusion nucléaire est indépendante de l'énergie des neutrons et de l'angle de diffusion.

La section efficace différentielle de diffusion vaut : $\frac{dS}{d\Omega} = b^2$ et la section efficace totale

$$S_T = 4\pi b^2$$

Si ce noyau est porteur d'un spin I , l'état de spin du système combiné : $I+1/2$ ou $I-1/2$ a sa propre amplitude de diffusion b_+ avec l'abondance w_+ et b_- avec l'abondance w_- :

$$w_+ = \frac{2(I+1)}{2(I+1)+2I} = \frac{I+1}{2I+1} \quad w_- = \frac{2I}{2(I+1)+2I} = \frac{I}{2I+1}$$

Pour un noyau possédant un spin nucléaire comme 1H ($1/2$) 2H (1) 59Co ($7/2$) 63Cu ($3/2$) etc (réf. 2 à 5), l'amplitude de diffusion nucléaire s'écrit : $b = w_+ b_+ + w_- b_-$

16.4.2 Diffusion par un atome

Les noyaux d'un même élément comportent souvent plusieurs isotopes, ayant chacun une abondance bien définie. Chaque isotope a sa propre longueur de diffusion et s'il a un spin ses propres valeurs de diffusion b_+ et b_- avec les abondances w_+ et w_-

Les différents isotopes d'un atome sont répartis au hasard sur les positions atomiques du matériau, avec une fréquence correspondant à l'abondance isotopique. Les amplitudes de diffusion, les sections efficaces de diffusion et les sections efficaces d'absorption sont moyennées. Soit c_j la concentration de l'isotope j (on dit aussi abondance) :

$$\langle b \rangle = \sum_j^{NI} c_j b_j \quad \text{avec} \quad \sum_j^{NI} c_j = 1$$

b_j est l'amplitude de diffusion de l'isotope j , éventuellement si l'isotope a un spin :

$$b_j = w_{+j} b_{+j} + w_{-j} b_{-j}$$

L'amplitude moyenne $\langle b \rangle$ prise sur les NI isotopes, est appelée longueur de diffusion cohérente : c'est celle d'un atome "moyen" occupant tous les sites cristallins du matériau. Elle joue le même rôle que le facteur de diffusion atomique pour les rayons X.

L'amplitude de diffusion b_k d'un site k quelconque parmi les N sites du matériau se met sous la forme d'une somme de deux termes : $b_k = \langle b \rangle + (b_k - \langle b \rangle)$

o le premier terme est l'amplitude moyenne $\langle b \rangle$, identique sur tous les sites : il donne lieu à de la diffusion cohérente. L'amplitude totale est la somme des amplitudes diffusées par chaque site.

o le second terme, représentant l'écart par rapport à la l'amplitude moyenne, varie au hasard de site en site. C'est un donc un terme de désordre donnant lieu à de la diffusion incohérente : l'intensité totale est la somme des intensités diffusées par chaque site :

$$\begin{aligned} \sum_k^N (b_k - \langle b \rangle)^2 &= \sum_k^N (b_k^2 - 2b_k \langle b \rangle + \langle b \rangle^2) \\ &= N (\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2) \end{aligned}$$

On trouve pour chaque atome dans les Tables de données répertoriées en 16.6 :

o la section efficace de diffusion cohérente : $s_{coh} = 4p \langle b \rangle^2$:

elle est proportionnelle au carré de la moyenne arithmétique des amplitudes de diffusion des NI isotopes.

o la section efficace totale : $s_{tot} = 4p \langle b^2 \rangle = \sum_j^{NI} c_j b_j^2$

elle est proportionnelle au carré de la moyenne quadratique des amplitudes de diffusion des NI isotopes.

o la section efficace de diffusion incohérente : $s_{incoh} = s_{tot} - s_{coh}$?

$$s_{incoh} = 4p [\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2]$$

Exemple : Amplitude de diffusion cohérente : unité 10^{-12} cm

	Neutrons	Rayons X : $\sin\theta / \lambda = 0.5 \text{ \AA}^{-1}$
carbone	0,60	0,48
oxygène	0,58	0,62
vanadium	-0,05	2,8
cuivre	0,76	3,8
zinc	0,57	3,9
uranium	0,85	14,80

Les amplitudes de diffusion des neutrons varient irrégulièrement d'un élément à l'autre contrairement à celles des rayons X. Elles sont de l'ordre de 10^{-12} cm, certaines sont négatives comme celles des isotopes suivants :

$$62 \text{ Ni} : - 0, 87 \qquad 55 \text{ Mn} : - 0,39$$

Exemple : section efficace incohérente (unité 10^{-24} cm²)

	S_{tot}	S_{coh}	$S_{incoh} = S_{tot} - S_{coh}$
hydrogène	81	1.76	79.7
deutérium	7.6	5.59	2
vanadium	5.1	0.03	5

L'hydrogène donne un bruit de fond très important ; on a la possibilité de le remplacer par un de ses isotopes : le deutérium qui est chimiquement équivalent. Le vanadium donne très peu d'intensité diffractée : il est utilisé pour faire des porte-échantillons, par contre il apporte du bruit de fond. Valeurs numériques : voir les références 2 à 5.

La diffusion par les noyaux peut être élastique ou inélastique. Dans un processus élastique, il n'y a pas d'échange d'énergie entre le neutron et le noyau. Dans un processus inélastique, les échanges d'énergie donnent lieu à la création ou à l'annihilation d'excitations élémentaires comme les phonons.

16.5 : Diffraction nucléaire des neutrons

Les sections efficaces différentielles de diffusion élastique des neutrons et des rayons X d'un atome s'écrivent respectivement :

$$\left(\frac{dS}{d\Omega}\right)_N = \langle b \rangle^2 \quad \left(\frac{dS}{d\Omega}\right)_X = r_e^2 P(\mathbf{q}) f\left(\frac{\sin \mathbf{q}}{l}\right)$$

$\langle b \rangle$ est l'amplitude de diffusion cohérente moyenne des noyaux ; c'est une quantité constante. Pour les rayons X, la section efficace a une expression plus compliquée, à cause du terme de polarisation et du facteur de diffusion atomique qui dépend de $\sin\theta/\lambda$.

On remplace la section efficace des rayons X par celle des neutrons, dans les expressions introduites Chap. 10 et 15 pour obtenir les expressions correspondantes de la diffraction neutronique.

La section efficace différentielle pour les atomes d'un cristal s'écrit :

$$\left(\frac{dS}{d\Omega}\right) = |F_T(H)|^2 |C(H)|^2$$

Le module du facteur de forme du cristal, $|C(H)|^2$ est nul en dehors des valeurs de $\vec{H} = \vec{r}_{hkl}^*$, Chap.10.

$$F_T(hkl) = \sum_{j=1}^N \langle b_j \rangle \exp 2i\mathbf{p} (hx_j + ky_j + lz_j) \exp -2B_j \frac{\sin^2 \mathbf{q}}{l^2}$$

est le facteur de structure pour les N atomes de la maille, B_j est le facteur isotrope de température pour l'atome j de la maille.

Remarque : Le facteur de température est identique pour les rayons X et les neutrons : il traduit en effet la détérioration des conditions d'interférence par les oscillations (de faible amplitude) qu'effectuent les noyaux autour de leur position d'équilibre.

16.5.1 Intensité diffractée par un monocristal de volume DV

L'intensité intégrée est mesurée par un balayage à la vitesse angulaire ω constante autour d'un axe perpendiculaire aux faisceaux incident et diffracté (diffractomètre, Chap. 15).

$$N(hkl) = \Phi_0(I) \frac{I^3}{w \sin 2\mathbf{q}} \frac{|F_T(hkl)|^2}{V_m^2} \Delta V$$

$\Phi_0(I)$ est le flux incident par seconde de neutrons de longueur d'onde associée λ , $N(hkl)$ est le nombre de neutrons diffractés lorsque la sphère d'Ewald est traversée par le noeud hkl.

16.5.2 Intensité diffractée par un monocristal mosaïque :

$$N(hkl) = \Phi_0(I) \frac{I^3}{w \sin 2\mathbf{q}} \frac{|F_T(hkl)|^2}{V_m^2} VA(hkl)y$$

$A(hkl)$ et y les facteurs de transmission et d'extinction, V est le volume de l'échantillon situé dans le faisceau.

16.5.3 Intensité diffractée par une poudre

Le compteur est à la distance R de l'échantillon, il intercepte une longueur L de l'anneau Debye-Scherrer, au moyen d'une fente de réception placée devant le compteur, Chap.15 :

$$N(L) = \Phi_0(I) \frac{I^3}{8pR} \frac{L}{\sin q \sin 2q} m_{hkl} \frac{|F_T(hkl)|^2}{V_m^2} V \frac{\mathbf{r}'}{\mathbf{r}}$$

V est le volume de poudre irradiée ; \mathbf{r}' et \mathbf{r} étant les masses volumiques de la poudre et du même échantillon à l'état massif, $V \mathbf{r}' / \mathbf{r}$ est donc le volume d'échantillon irradié à l'état massif.

Les échantillons sont des plaquettes ou des cylindres, leurs dimensions caractéristiques atteignent 5 à 10 mm du fait de la faible absorption des neutrons. Pour une plaquette d'épaisseur T placée en transmission symétrique, à l'angle q de diffraction : $A(hkl) = \frac{T}{\cos q} \exp - \frac{\mu \mathbf{r} T}{\cos q}$

16.5.4 Diffusion incohérente :

La section efficace de diffusion incohérente des N mailles du cristal est donné par :

$$\left(\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right)_{incoh} = N \sum_{j=1}^P (\mathbf{s}_{incoh} / 4p)_j \exp - 2B_j \frac{\sin^2 q}{I^2}$$

La somme est prise sur les P atomes de la maille, \mathbf{s}_{incoh} est la section efficace incohérente de chacun de ces P atomes.

Le nombre de neutrons dN/dt recueilli par unité de temps à travers une fente de surface ΔS située à la distance R de l'échantillon est égal à :

$$\frac{dN}{dt} = \Phi_0(I) \left(\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right)_{incoh} \frac{\Delta S}{R^2}$$

$\Phi_0(I)$ est le flux incident par seconde.

16.5.5.Exemple de cas favorables pour la diffraction des neutrons

En diffraction des rayons X, lorsque des atomes lourds ou très lourds se trouvent en présence d'atomes très légers dans la maille, on peut localiser les atomes lourds avec une bonne précision, mais on ne peut pas le faire pour les atomes légers. En effet, les atomes lourds ont un poids prépondérant dans le facteur de structure devant les atomes légers, puisque leur amplitude de diffusion est proportionnelle au nombre d'électrons.

Par contre, en diffraction neutronique, les amplitudes de diffusion nucléaire $\langle b \rangle$ des neutrons varient peu d'un élément à l'autre. Il y a de bonnes chances que le contraste

entre atomes lourds et légers ne soit pas trop différent et que la précision de localisation soit comparable.

Exemple :

les composés de l'uranium U : 0,85 (en 10^{-12} cm)

U H₃ H : -0,37

U C₃ C : 0,66

U O₂ O : 0,58

les composés du tungstène W : 0,48 et du Thorium Th : 1,03

W C C : = 0,66.

les cas désespérés : ce sont les quelques cas où ,à la fois, la diffusion des rayons X **et** des neutrons n'offre pas un contraste satisfaisant :

Cs I : Rayons X Cs⁺ / I⁻ : 54 : électrons

Neutrons Cs / I 0.56 / 0.53 (10^{-12} cm)

MgO : Rayons X Mg⁺⁺ / O⁻⁻ 10 électrons

Neutrons Mg / O : 0.58 / 0.52 (10^{-12} cm)

Un autre avantage est offert par les neutrons : celui de substituer un isotope d'un élément à l'autre du même élément. En faisant varier la proportion isotopique d'un élément dans le cristal on modifie son amplitude de diffusion moyenne $\langle b \rangle$ et on peut ainsi ajuster le contraste.

Dans les matériaux organiques, on remplace l'hydrogène qui donne une très forte diffusion incohérente, par du deutérium qui lui est chimiquement équivalent et qui a l'avantage d'avoir un " b " confortable égal à $0,67 \cdot 10^{-12}$ cm.

16.6 : Tables des données numériques

- o 1 • G.E. BACON - Neutron Diffraction Third Edition - pages 72/73 - Clarendon
- o 2 • G.E. BACON - Neutron Diffraction Third Edition - pages 38 à 41
- o 3 • G.E. BACON - Coherent neutron scattering amplitudes - Acta Cryst. A 28, 357 (1972)
- o 4 • L. KOESTER et al. - Atomic Data and nuclear Data - tables 49,65-120 (1991)
- o 5 • NEUTRONS NEWS VOL. 3 Nb 3, 1992, Gordon an Breach Science.
- o 6 • Tables Internationales de Cristallographie - pages 383 à 399