

# Chapitre 17 : Diffraction des Neutrons par des structures magnétiques ordonnées

## 17.1 : Introduction

Un neutron rencontrant un atome subit l'action, du noyau et des électrons non appariés (s'il en existe). Les sections efficaces résultant de ces effets sont souvent du même ordre de grandeur pour les ions ou les atomes magnétiques usuels.

A titre d'exemple pour des neutrons de 1.8 Å (2 200 m/s) :

	$4p \langle b_n \rangle^2$ barn	$4p \langle b_m \rangle^2$ barn
Diffusion	Nucléaire	Magnétique
58 Ni	24,4	Ni++ 4,8
59 Co	0,78	Co++ 9,1
56 Fe	12,8	Fe++ 21,3
55 Mn	2,0	Mn++ 21,3

Il est possible de mesurer les diffusions nucléaire et magnétique avec une aussi bonne précision.

## 17.2 : Diffusion élastique par un atome magnétique isolé

On se place dans l'hypothèse de la **diffusion élastique** (diffraction), processus au cours duquel :

- o l'état du diffuseur reste inchangé,
- o le vecteur d'onde du neutron change de  $\vec{k}_0$  en  $\vec{k}$  avec  $\|\vec{k}_0\| = \|\vec{k}\|$
- o le spin du neutron passe de l'état  $|S\rangle$  à l'état  $|S'\rangle$ .

### 17.2.1 Amplitude de diffusion magnétique

On admettra que l'amplitude de diffusion d'un atome magnétique isolé a pour expression :

$$a^{SS'} = \langle S' | b_n + pf_m(H) (\vec{M}_\perp | \vec{S}) | S \rangle \quad (1)$$

- o  $b_n$  est l'amplitude de diffusion nucléaire : elle correspond à une interaction à très courte portée centrée sur la position du noyau. C'est éventuellement la moyenne prise sur tous les isotopes de l'élément naturel concerné.
- o  $\vec{S}$  est l'opérateur de Pauli associé au spin du neutron.

$$\vec{M}_{\perp} = (\vec{e} \wedge (\vec{M}(r) \wedge \vec{e})) = (\vec{e} | \vec{e}) \vec{M} - (\vec{e} | \vec{M}) \vec{e} = \vec{M} - (\vec{e} | \vec{M}) \vec{e}$$

- o  $\vec{M}$  est le moment magnétique de l'atome (spin et orbite),
- o  $\vec{e} = \vec{H} / \|\vec{H}\|$  est un vecteur unitaire ayant la direction et le sens du vecteur de diffusion.  $\vec{H} = (\vec{S} - S_0) / \lambda$

- o le vecteur  $\vec{M}_{\perp}$  est la projection du vecteur  $\vec{M}$  sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion  $\vec{H}$ , Fig. 17.1.

Le second terme de (1) correspond à une interaction de la forme :  $V_m(r) = -(\vec{M}_n | \vec{B}(r))$  entre le moment de spin du neutron  $\vec{M}_n$  et le champ magnétique  $\vec{B}(r)$  créé par les électrons. Plus précisément,  $\vec{B}(r)$  a pour source les moments associés au spin des électrons non-appariés et les moments résultant du courant orbital.

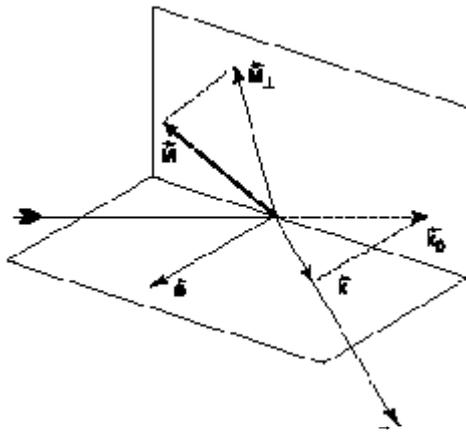


Figure 17.1 - Définition de  $\vec{M}_{\perp}$

Les autres facteurs intervenant dans ce second terme ont les définitions suivantes :

- o  $p = \frac{1}{2} g r_e = 0,2696 \cdot 10^{-12} \text{ cm}$  où  $r_e$  est le rayon classique de l'électron et  $g = 1,913$
- o  $f_m(H)$  est le **facteur de forme magnétique normalisé** de l'atome : c'est la transformée de Fourier de la densité  $\mathbf{r}_m(r)$  des électrons non-appariés de l'atome

$$f_m(H) = \frac{\int_{\text{atome}} \mathbf{r}_m(r) \exp 2i\mathbf{p}(\vec{H} | \vec{r}) d_3r}{\int_{\text{atome}} \mathbf{r}_m(r) d_3r}$$

Avec cette définition , on vérifie que  $f_m(0) = 1$ . Dans la suite de ce chapitre.  $f_m(H)$  est supposé **réel**

On notera l'analogie avec le facteur de forme électronique qui a été introduit en diffraction des rayons X. Dans les deux cas il s'agit de tenir compte de l'étendue des couches électroniques comparable aux longueurs d'onde utilisées (de l'ordre de 1 Å). La conséquence est que ces facteurs de forme sont des fonctions décroissantes de  $\sin\theta / \lambda$ .

*Remarque :  $p = 0,27 \cdot 10^{-12}$  cm ;  $f_m$  de l'ordre de 1 ;  $\|\vec{M}_\perp(r)\|$  est de l'ordre de quelques magnétons de Bohr.*

*On vérifie que les amplitudes de diffusion nucléaire et magnétique sont du même ordre de grandeur : (quelques  $10^{-12}$  cm).*

**A retenir** : c'est uniquement la composante  $\vec{M}_\perp$  du moment magnétique **perpendiculaire au vecteur de diffusion  $\vec{H}$**  qui est effective pour la diffusion magnétique des neutrons, Fig. 17.1.

### 17.2.2 Détermination des amplitudes de diffusion

L'amplitude de diffusion fait passer d'un état initial  $|S\rangle$  à un état final  $|S'\rangle$

représentés respectivement par les matrices :  $\begin{pmatrix} u \\ d \end{pmatrix}$  et  $\begin{pmatrix} u' \\ d' \end{pmatrix}$  Elle s'écrit :

$$a^{SS'} = (u' \ d') (b_n + pf_m(H) \{ M_{\perp x} \mathbf{s}_x + M_{\perp y} \mathbf{s}_y + M_{\perp z} \mathbf{s}_z \}) \begin{pmatrix} u \\ d \end{pmatrix}$$

Le système Ox , Oy , Oz est orthogonal.; on choisit Oz suivant la direction de polarisation des neutrons En introduisant les représentations matricielles des opérateurs de Pauli, on obtient :

$$a^{SS'} = (u' \ d') (b_n \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} + pf_m(H) \left\{ M_{\perp x} \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} + M_{\perp y} \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} + M_{\perp z} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \right\}) \begin{pmatrix} u \\ d \end{pmatrix}$$

$(u = 1 \ d = 0)$  représente un neutron dans l'état spin-up ou "+",  $(u = 0 \ d = 1)$  un neutron dans l'état spin down ou "-". Soit en développant :

$$a^{SS'} = b_n (uu' + dd') + pf_m(H) \{ M_{\perp x} (u'd + ud') + iM_{\perp y} (-u'd + ud') + M_{\perp z} (uu' - dd') \}$$

Ce qui donne les quatre amplitudes de diffusion suivantes :

$$\begin{aligned}
(u'=1 \quad d'=0) \quad + \leftarrow + \quad (u=1 \quad d=0) \quad a^{++} &= b_n + p f_m(H) M_{\perp z} \\
(u'=0 \quad d'=1) \quad - \leftarrow - \quad (u=0 \quad d=1) \quad a^{--} &= b_n - p f_m(H) M_{\perp z} \\
(u'=0 \quad d'=1) \quad - \leftarrow + \quad (u=1 \quad d=0) \quad a^{+-} &= p f_m(H) (M_{\perp x} + iM_{\perp y}) \\
(u'=1 \quad d'=0) \quad + \leftarrow - \quad (u=0 \quad d=1) \quad a^{-+} &= p f_m(H) (M_{\perp x} - iM_{\perp y})
\end{aligned}$$

Pour simplifier, on a supposé que le spin nucléaire des atomes **diffusants était nul**.

### En conclusion :

- o La diffusion nucléaire se produit sans retournement de spin
- o les composantes  $M_{\perp x}$  et  $M_{\perp y}$  de  $\vec{M}_{\perp}$  perpendiculaires à la direction de polarisation produisent une diffusion **"spin flip"**
- o la composante  $M_{\perp z}$  parallèle à la direction de polarisation est responsable d'une diffusion **"non spin flip"**.

### 17.2.3 Sections efficaces différentielles de diffusion des atomes

Dans un montage de diffraction classique, ne comportant pas de dispositif d'analyse de polarisation, on recueille tous les neutrons quelque soit leur état de polarisation.

Lorsque les neutrons incidents sont polarisés "+" suivant la direction z, la section efficace de polarisation est égale à la somme :  $|a^{++}|^2 + |a^{+-}|^2$  si les neutrons sont comptés dans les deux états de polarisation par le détecteur., soit :

$$\begin{aligned}
\frac{dS}{d\Omega}^{+++} &= \left| b_n + p f_m(H) M_{\perp z} \right|^2 + \left| p f_m(H) (M_{\perp x} + i M_{\perp y}) \right|^2 \\
&= b_n^2 + 2 p b_n f_m(H) M_{\perp z} + p^2 f_m^2(H) \left\| \vec{M}_{\perp} \right\|^2
\end{aligned}$$

$$\text{avec } \left\| \vec{M}_{\perp} \right\|^2 = M_{\perp x}^2 + M_{\perp y}^2 + M_{\perp z}^2$$

Pour des neutrons polarisés "-" suivant la direction z, la section efficace de polarisation est égale à la somme :  $|a^{--}|^2 + |a^{-+}|^2$

$$\begin{aligned}
\frac{dS}{d\Omega}^{---+} &= \left| b_n - p f_m(H) M_{\perp z} \right|^2 + \left| p f_m(H) (M_{\perp x} - i M_{\perp y}) \right|^2 \\
&= b_n^2 - 2 p b_n f_m(H) M_{\perp z} + p^2 f_m^2(H) \left\| \vec{M}_{\perp} \right\|^2
\end{aligned}$$

Ces deux sections efficaces différentielles présentent un **terme croisé** qui traduit l'interférence entre les diffusions nucléaire et magnétique

### 17.3 : Diffraction magnétique des neutrons non - polarisés

La moitié des diffusions se produisent lorsque le spin du neutron est parallèle au moment magnétique de l'atome, l'autre moitié quand il est antiparallèle. La section efficace de diffusion des neutrons non-polarisés est égale à la moyenne :

$$\frac{dS}{d\Omega} = \frac{1}{2} \frac{dS^{++++}}{d\Omega} + \frac{1}{2} \frac{dS^{----}}{d\Omega}$$

La probabilité que les neutrons soient dans les états "+" et "-" est en effet de 1/2

La section efficace différentielle cohérente se réduit donc à :

$$\frac{dS}{d\Omega} = b_n^2 + p^2 f_m^2(H) \|\vec{M}_\perp\|^2 = b_n^2 + b_m^2(H)$$

où  $b_m = p_m f_m(H) \|\vec{M}_\perp\|$  est l'amplitude de diffusion magnétique

Il y a donc **incohérence** entre la diffraction nucléaire et la diffraction magnétique. La section efficace de diffusion cohérente des neutrons non polarisés par une structure magnétique ordonnée a deux composantes strictement indépendantes et additives, qu'on peut donc traiter séparément :

- o **Composante nucléaire** : l'intensité de la diffraction nucléaire, mesurée par un balayage à la vitesse angulaire  $\omega$  autour d'un axe perpendiculaire au vecteur de diffusion (diffractomètre), s'écrit pour un petit cristal de volume  $\Delta V$  :

$$I_N(hkl) = \Phi_0(I) \frac{I^3}{w \sin 2q} \frac{|F_N(hkl)|^2}{V_N^2} \Delta V$$

$V_N$  est le volume de la maille nucléaire

$\Phi_0(I)$  est l'intensité du faisceau de neutrons de longueur d'onde associée  $I$  (flux de neutrons par seconde).

Le facteur de structure nucléaire pour la réflexion h k l :

$$F_N(hkl) = \sum_{j=1}^{K_N} b_{nj} \exp 2ip (hx_j + ky_j + lz_j) \exp(-W_j)$$

est rapporté à la maille nucléaire de volume  $V_N$  contenant  $K_N$  atomes d'amplitude de diffusion  $b_{nj}$ . La correction d'agitation thermique est égale à  $\exp(-W_j)$

avec  $W_j = B_j \frac{\sin^2 q}{I^2}$ ,  $B_j$  est le facteur isotrope de température (cf. Chap. 11).

- o **Composante magnétique** : de la même façon l'intensité de la diffraction magnétique, s'écrira :

$$I_M(hkl) = \Phi_0(I) \frac{I^3}{w \sin 2q} \frac{|F_M(hkl)|^2}{V_M^2} \Delta V$$

$F_M(hkl)$  est le facteur de structure magnétique rapporté à la maille magnétique de volume  $V_M$  et contenant  $K_M$  atomes magnétiques

$$: F_M(hkl) = \sum_{j=1}^{K_M} b_{mj}(H) \exp 2i\mathbf{p} \cdot (hx_j + ky_j + lz_j) \exp(-W_j)$$

*Remarque : on doit distinguer les mailles magnétiques et nucléaires qui ne coïncident pas nécessairement.*

On trouvera les expressions de l'intensité magnétique diffractée par un cristal mosaïque et une poudre en remplaçant les facteurs de structure nucléaires, Chap. 16.5, par les facteurs de structure magnétiques.

### 17.3.1 Généralités sur l'étude des structures magnétiques ordonnées

L'intensité d'une raie  $hkl$  de diffraction est, pour les neutrons non - polarisés, la somme des intensités dues à la diffusion nucléaire et magnétique :

$$I(hkl) = I_N(hkl) + I_M(hkl)$$

L'information sur la structure nucléaire se trouve dans la composante nucléaire, tandis que toute l'information sur la structure magnétique se retrouve séparément dans la composante magnétique. La difficulté est de séparer les deux contributions.

Pour accéder à la structure magnétique, différentes techniques sont possibles :

o Spectres au dessus et au dessous de la température d'ordre :

Les matériaux magnétiques deviennent paramagnétiques au dessus d'une certaine température. Dans cet état, les moments magnétiques sont orientés au hasard : il s'en suit que l'aimantation résultante est nulle et que la diffusion magnétique, totalement incohérente, contribue au bruit de fond (diffusion diffusante). La diffraction (pics de Bragg) est alors purement nucléaire.

Un autre spectre pris au dessous de la température d'ordre comporte les deux contributions : le spectre "différence" représente la diffraction purement magnétique. Cette soustraction suppose que les données expérimentales ont été corrigées et mises à la même échelle.

o Champ magnétique parallèle au vecteur de diffusion  $\vec{H}$  (Fig. 17.2) :

L'aimant est solidaire de la platine d'un diffractomètre "2 axes" le champ magnétique est constamment parallèle au vecteur diffusion des cristallites de la poudre en position de diffraction. On suppose que le champ magnétique  $\vec{B}$  sature l'aimantation dans la direction du vecteur de diffusion  $\vec{H}$ , (Fig. 17.2) : alors les composantes  $\vec{M}_\perp$  sont toutes nulles. **Conséquence :**

o spectre en champ saturant :  $I_N$  (car  $I_M = 0$ )

o spectre en champ nul :  $I_N + I_M$  (si  $T < T_{\text{ordre}}$ )

Le spectre "différence" est celui de la diffraction magnétique Les deux spectres étant pris à la même température, les corrections d'agitation thermiques sont simplifiées.

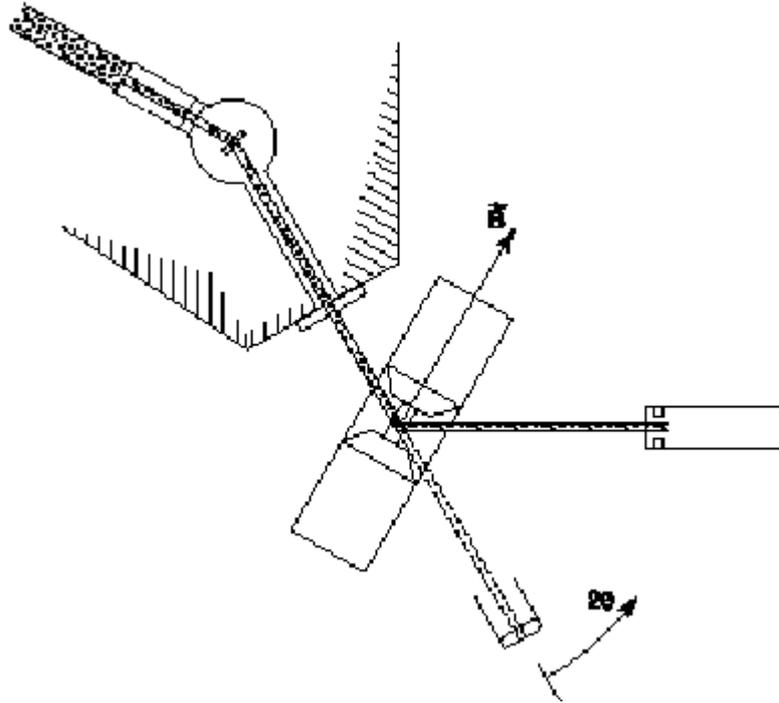


Figure 17.2 - Diffraction avec champ magnétique parallèle au vecteur de diffusion

### 17.3.2 Structures magnétiques colinéaires

Dans une structure magnétique colinéaire, les moments atomiques sont parallèles à une direction commune : c'est le cas des matériaux antiferromagnétiques simples. Le vecteur interaction magnétique se ramène à une formule scalaire plus simple.

Soit  $\vec{u} = \vec{M} / \|\vec{M}\|$  le vecteur unitaire porté par la direction commune, le moment situé sur le site  $j$  s'écrit :  $\vec{M}_j = \mathbf{e}_j M_j \vec{u}$  où  $M_j = \|\vec{M}_j\|$  et  $\mathbf{e}_j = +$  ou  $-$  1 selon que le moment  $M_j$  est parallèle ou antiparallèle à  $\vec{u}$ .

La projection du vecteur  $\vec{M}_j$  s'écrit :

$$\vec{M}_{\perp j} = \vec{M}_j - (\vec{M}_j | \vec{e}) \vec{e} = \mathbf{e}_j M_j (\vec{u} - (\vec{u} | \vec{e}) \vec{e}) = -\mathbf{e}_j M_j \vec{q}$$

On introduit le vecteur interaction magnétique  $\vec{q} = [(\vec{u} | \vec{e}) \vec{e} - \vec{u}]$ , indépendant du site atomique  $j$  :  $\|\vec{q}\|^2 = 1 - (\vec{u} | \vec{e})^2 = \sin^2 \mathbf{a}(H)$

où  $\mathbf{a}$  est l'angle entre la direction commune des moments et le vecteur de diffusion unitaire  $\vec{e}$ .

L'amplitude de diffusion magnétique de l'atome  $j$  s'écrit maintenant :  $b_{mj} = p f_{mj}(H) \sin \mathbf{a}(H) \mathbf{e}_j M_j$ . Dans le cas simple où les moments magnétiques sont tous identiques :  $b_{mj} = p f_{mj}(H) \sin \mathbf{a}(H) M \mathbf{e}_j$ , et le facteur de structure devient :

$$F_M(H) = p M f_m(H) \sin \mathbf{a}(H) \sum_j^{K_M} \mathbf{e}_j \exp 2i\mathbf{p}(\vec{H} | \vec{r}_j) \exp -W_j$$

Les extinctions de  $F_M(H)$  sont celles de  $\sin \mathbf{a}(H)$  et de  $\sum_j^{K_M} \mathbf{e}_j \exp 2i\mathbf{p}(\vec{H} | \vec{r}_j)$

**Exemple** : Le fluorure de manganèse  $\text{MnF}_2$  (4)

La maille nucléaire est quadratique ( $a = 4,873 \text{ \AA}$   $c = 3,310 \text{ \AA}$ ), les atomes occupant les positions (P  $4_2/m$  nm) :

Mn : 0 0 0    1/2 1/2 1/2    F : +- (u u 0   u+1/2 , 1/2 -u , 1/2) u = 0.303

$\text{MnF}_2$  est antiferromagnétique au dessous de  $72 \text{ K}^\circ$ . En comparant les spectres de diffraction de poudre pris respectivement à  $295 \text{ K}^\circ$  et  $23 \text{ K}^\circ$ , Fig. 17.3, on observe que:

- o les raies magnétiques s'indexent toutes dans la maille nucléaire
- o les indices des raies magnétiques ont pour valeur h k l : {1 0 0}, {1 1 1}, {2 1 0} et {2 0 1}

Faisons l'hypothèse que la maille magnétique contient deux ions  $\text{Mn}^{++}$  ayant des moments (de même module) en position antiparallèle :

$\mathbf{e}(0 \ 0 \ 0) = +1$      $\mathbf{e}(1/2 \ 1/2 \ 1/2) = -1$ , alors :

$$F_M(hkl) = p M f_m(hkl) \sin \mathbf{a}(hkl) \left[ 1 - \exp \left( 2i\mathbf{p} \frac{h+k+l}{2} \right) \right]$$

$F_M(hkl) = 0$  si  $h+k+l = 2n$  et si  $\sin \mathbf{a}(hkl) = 0$

Ce résultat est en accord avec l'indexation des raies observées ; l'absence de la réflexion (0 0 1) indique que la direction commune des moments est parallèle à  $[0 \ 0 \ 1]^*$  c'est-à-dire l'axe c ( $\sin \alpha(0 \ 0 \ 1) = 0$ ).

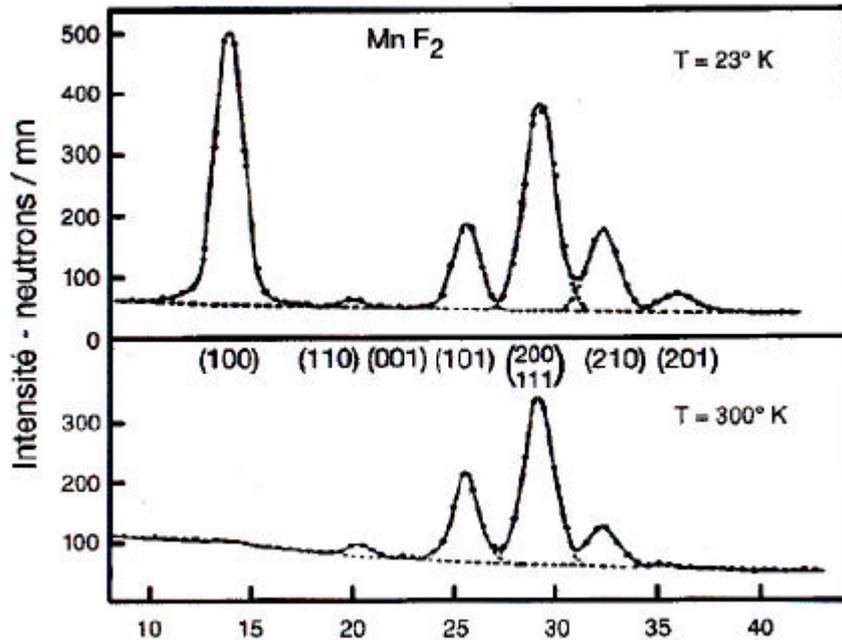


Figure 17.3 - Diagramme de diffraction de poudre de  $MnF_2$  (1)

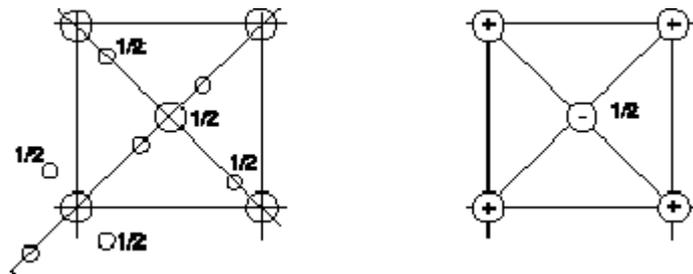


Figure 17.4 - Structure nucléaire et magnétique de  $MnF_2$

En fait, dans le cas de la diffraction de poudre, on doit prendre la valeur moyenne sur les équivalentes  $\{h k l\}$ . Pour la réflexion  $\{2 0 1\}$  de  $MnF_2$  il y en a 8 :  $2 0 1$   $0 2 1$   $-2 0 1$  etc... Pour chacune de ces réflexions , l'angle  $\alpha$  (hkl) est différent.

Le calcul de  $\langle q^2 \rangle$  a été effectué pour les différents systèmes cristallins, en fonction des angles  $\alpha$  que fait la direction commune avec les axes cristallographiques de la maille (3). Pour une maille cubique, on trouve  $\langle q^2 \rangle = 2/3$  : autrement dit il n'est pas possible de déterminer l'orientation commune des moments pour un corps cubique à partir d'un spectre de diffraction de poudres. Il faut alors disposer d'un monocristal, mais l'existence de plusieurs domaines magnétiques complique l'interprétation des résultats.

### 17.4 : Neutrons polarisés

Supposons que les neutrons du faisceau incident soient polarisés verticalement et que le champ magnétique appliqué à l'échantillon soit aussi vertical et donc perpendiculaire au vecteur de diffusion.

Dans cette configuration, Fig. 17.5 : Oz est vertical, Ox est parallèle au vecteur diffusion et orienté dans le même sens, Oy forme avec Ox et Oz un système d'axes orthogonaux. Si le champ magnétique est **parfaitement saturant**, alors

$$M_{\perp x} = 0 \quad M_{\perp y} = 0 \quad M_{\perp z} = \|\vec{M}_{\perp}\|$$

Les sections efficaces correspondant aux états "+" et "-" deviennent :

$$\frac{dS^{++++}}{d\Omega} = \left( b_n + p f_m(H) \|\vec{M}_{\perp}\| \right)^2 = \left( b_n + b_m(H) \right)^2$$

$$\frac{dS^{----}}{d\Omega} = \left( b_n - p f_m(H) \|\vec{M}_{\perp}\| \right)^2 = \left( b_n - b_m(H) \right)^2$$

Dans un montage de ce type, la diffusion magnétique est uniquement "non spin flip" : il y a donc **interférence entre les diffusions nucléaire et magnétique**.

Nous avons vu que la diffraction des neutrons non-polarisés ne donne pas accès directement à la diffusion magnétique. Celle-ci est obtenue au prix d'un traitement des données expérimentales qui s'accompagne d'une perte de précision. La technique des neutrons polarisés a été développée pour améliorer la détection de la diffusion magnétique. Elle devient intéressante lorsque celle-ci est très inférieure à la diffusion nucléaire.

Pour illustrer le gain apporté par les neutrons polarisés, considérons l'exemple suivant dans lequel la diffusion magnétique  $F_M$  représente 10 % de la diffusion nucléaire  $F_N$  :

o Neutrons non polarisés :

$$I = F_N^2 + F_M^2 = F_N^2 + (0,1F_N)^2 = 1,01F_N^2$$

o Neutrons polarisés :

$$I_+ = (F_N + F_M)^2 = (F_N + 0,1F_N)^2 = 1,21F_N^2$$

$$I_- = (F_N - F_M)^2 = (F_N - 0,1F_N)^2 = 0,81F_N^2$$

Le gain en sensibilité est significatif.

### 17.4.1 Production des neutrons monochromatiques polarisés

On utilise souvent un monocristal magnétique qui assurera à la fois la monochromatisation et la polarisation. Au niveau du monocristal, le faisceau blanc des neutrons non polarisés peut être considéré comme formé de deux faisceaux "+" et "-" dont les polarisations sont +1 et -1 suivant la direction z du champ magnétique appliqué.

Le nombre de neutrons (n+) et (n-) réfléchis dans l'état + et - est proportionnel respectivement à :  $(F_N + F_M)^2$  et  $(F_N - F_M)^2$ ,  $F_N(H)$  et  $F_M(H)$  étant les facteurs de structure nucléaire et magnétique.

La polarisation P du faisceau réfléchi est définie par : 
$$P = \frac{(n+) - (n-)}{(n+) + (n-)} = \frac{2F_N F_M}{F_N^2 + F_M^2}$$

Pour obtenir une polarisation égale à +1 ou -1, il faut trouver un monocristal et une réflexion  $hkl$  telle que :  $F_N(hkl) = \pm F_M(hkl)$  : il n'en existe pas beaucoup ! Les monocristaux utilisés sont :

- o L'alliage FeCo ( Fe<sub>0.08</sub> Co<sub>0.92</sub>) : réflexion 2 0 0 ,  $F_N(200) \cong F_M(200)$  sont tous les deux positifs donc,  $P > 0$ . On obtient , bobines de flipping à l'arrêt :  $P = + 0,970$ , en fonctionnement :  $P = - 0,965$

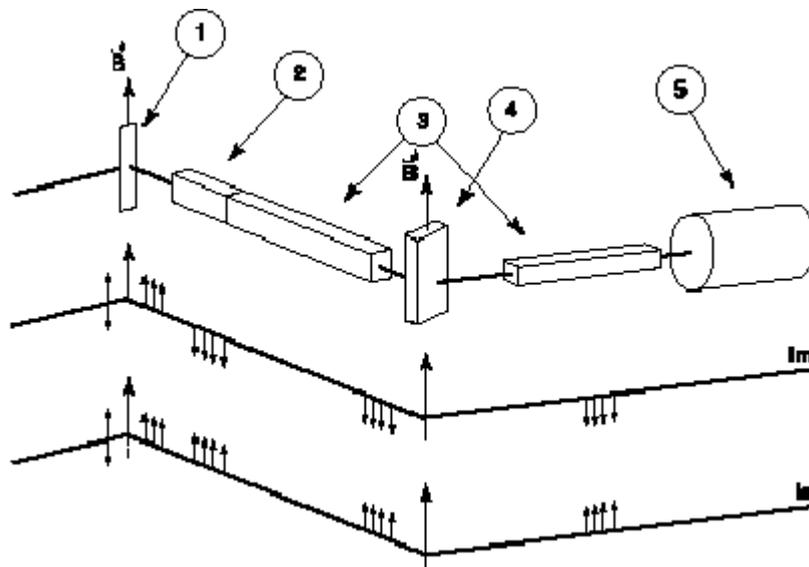
La perte de polarisation est due à l'efficacité du "flipper"

- o L'alliage d'HEUSSLER Cu<sub>2</sub>MnAl : réflexion 1 1 1 :  $F_N(111) \cong -F_M(111)$  qui donne une polarisation négative (opposée à celle du FeCo).

### 17.4.2 Diffractomètre à neutrons polarisés

L'utilisation des neutrons polarisés suppose que le diffractomètre soit équipé, en plus des équipements standards (cercles, détecteur) :

- o d'un monochromateur polarisant
- o d'un dispositif de renversement de la direction des spins des neutrons. (par exemple : bobines radio-fréquence de "flipping")
- o d'un champ-guide pour conserver la direction de polarisation des neutrons
- o d'un électro-aimant capable de produire au niveau de l'échantillon un champ magnétique homogène de plusieurs teslas. Dans la configuration classique, le champ magnétique appliqué sur l'échantillon est vertical, parallèle à la direction de polarisation ; sur certains appareils ce champ peut être dirigé parallèlement au vecteur de diffusion.



- 1 : monocristal - polariseur
- 2 : bobines de flipping
- 3 : champ- guide
- 4 : échantillon
- 5 : détecteur

Figure 17.5 - Schéma d'un diffractomètre à neutrons polarisés(sans analyse de polarisation)

On voit qu'un diffractomètre à neutrons polarisés est un appareil sophistiqué et donc nécessitant des investissements lourds et du personnel entraîné. Des appareils de ce type sont en fonctionnement au laboratoire Léon Brillouin (L.L.B. Saclay) et à l'Institut Laue Langevin (I.L.L. Grenoble/laboratoire européen).

Le faisceau est polarisé si le nombre de spins pointant dans la direction "+" est différent du nombre de ceux qui pointent dans la direction "-". Les cristaux (1) agissant à la fois comme monochromateur et polariseur délivrent des faisceaux monochromatiques polarisés à mieux que 95 %.

Les  $N$  neutrons (par seconde) incidents sont séparés par le polariseur en deux groupes polarisés dans la direction du champ appliqué, l'un comptant  $N(+)$  neutrons avec des spins dans l'état "+" ou "up" et l'autre  $N(-)$  neutrons avec des spins dans l'état "-" ou

"down". La polarisation du faisceau est égale à : 
$$P = \frac{N(+)-N(-)}{N(+)+N(-)}$$

En introduisant les probabilités  $n(+)$ ,  $n(-)$  de trouver des neutrons respectivement dans l'état "+" et "-" dans un faisceau de neutrons :

$$:n(+)=\frac{N(+)}{N(+)+N(-)} \quad n(-)=\frac{N(-)}{N(+)+N(-)} \quad n(+)+n(-)=1$$

$$\text{On obtient : } n(+)=\frac{1}{2}(1+P) \quad n(-)=\frac{1}{2}(1-P) \quad P=n(+)-n(-)$$

Le "spin flipper" ou inverseur de spin (2) retourne sur commande le spin des neutrons le long de la direction de polarisation,  $f$  étant la probabilité de retournement d'un spin, les probabilités de trouver les neutrons dans l'état "+" et "-" deviennent  $n'(+)$  et  $n'(-)$  :

$$n'(+)=n(-)f+n(+)(1-f) \quad n'(-)=n(+f+n(-)(1-f)$$

On notera que si le flipper était parfait ( $f = 1$ ), tous les neutrons dans l'état "+" proviendrait du retournement des neutrons dans l'état "-". Et inversement.

o lorsque le flipper est en fonctionnement la polarisation du faisceau devient :

$$P'=\frac{n'(+)-n'(-)}{n'(+)+n'(-)}=(1-2f)P$$

La probabilité de trouver des neutrons dans l'état "+" et "-" s'exprime par :

$$n'(+)=\frac{1+P(1-2f)}{2} \quad n'(-)=\frac{1-P(1-2f)}{2}$$

o lorsque le flipper est à l'arrêt :  $f = 0$ . et  $n'(+)=n(+)$   $n'(-)=n(-)$

L'efficacité  $E = 2f - 1$  des "spin-flippers" est proche de 0,99.

### 17.4.3 Méthode de mesure. Rapport de Flipping

On mesure l'intensité au sommet de la réflexion, dans les mêmes conditions, pour les deux états de spin des neutrons : on obtient, après avoir effectué les corrections expérimentales, une intensité  $I_F$  quand la bobine de flipping est en fonctionnement et  $I_A$  quand elle est à l'arrêt.

On détermine alors le rapport de flipping :  $R = I_A / I_F$

L'intensité du faisceau de neutrons diffracté par un matériau cristallisé et proportionnelle à la section efficace de diffusion :

$$\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} = n^{'+} \left( \frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right)^{++} + n^{'(-)} \left( \frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right)^{-}$$

$$\frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} = \frac{1+P(1-2f)}{2} (F_N + F_M)^2 + \frac{1-P(1-2f)}{2} (F_N - F_M)^2$$

En se plaçant dans l'hypothèse d'un cristal centrosymétrique, c'est-à-dire  $F_N$  et  $F_M$

**réels**, on obtient :  $\left( \frac{d\mathbf{s}}{d\Omega} \right)_{centro} = F_N^2 + 2F_N F_M P(1-2f) + F_M^2$

Le rapport de flipping est égal à :  $(R)_{centro} = \frac{I_A}{I_F} = \frac{F_N^2 + 2F_N F_M P + F_M^2}{F_N^2 + 2F_N F_M P(1-2f) + F_M^2}$

En posant  $\mathbf{d} = \frac{F_N}{F_M}$ ,  $R$  devient :  $(R)_{centro} = \frac{I_A}{I_F} = \frac{1+2P\mathbf{d} + \mathbf{d}^2}{1-2PE\mathbf{d} + \mathbf{d}^2}$

Cette équation a deux racines qui sont, si  $R \neq 1$  :

$$\left( \frac{F_N}{F_M} \right)_{centro} = \frac{1}{R-1} \left\{ P(1+RE) \pm \left[ P^2(1+RE)^2 - (R-1)^2 \right]^{1/2} \right\}$$

En général on choisit la racine qui donne  $|F_M| < |F_N|$ .

Dans la majorité des cas cette méthode de mesure est utilisée lorsque la contribution magnétique est faible devant le signal nucléaire :  $|F_M| \ll |F_N|$ .

En supposant que les termes en  $\mathbf{d}^2$  sont négligeables devant les termes en  $\mathbf{d}$  :

$$\left( \frac{F_N}{F_M} \right)_{centro} \cong \frac{R-1}{2P(1+E)}$$

On trouvera dans (5), la généralisation aux structures non centrosymétriques.

Pour  $d$  valant seulement 0,1, le rapport de flipping vaut environ 1,4 ( $P=1$ ,  $E=1$ ). En plus du gain en sensibilité, cette méthode présente les avantages suivants de simplification :

- o mesure directe évitant les problèmes de normalisation,
- o mesure ponctuelle au sommet de la réflexion,
- o élimination des corrections d'absorption, puisque les deux intensités  $I_A$  et  $I_B$  sont absorbées de la même façon.

Pratiquement, on doit tenir compte de la polarisation réelle du faisceau, de l'efficacité de flipping, de la contamination en  $\lambda/2$  et des corrections d'extinction. Par contre si  $F_N$  et  $F_M$  sont du même ordre de grandeur, les mesures classiques d'intensité intégrée sont plus précises.

#### 17.4.4 Applications

La détermination expérimentale est le rapport  $d = F_N / F_M$  ; mais pour accéder au facteur de structure magnétique, il faut au préalable connaître avec précision le facteur de structure nucléaire  $F_N$ . Ensuite, le problème qui se pose est celui du calcul du facteur de forme magnétique et de la densité de spin (ou magnétisation) à partir des facteurs de structure magnétiques  $F_M(hkl)$  (6).

#### 17.5 : Références

- o 1 Polarisation Analysis of Thermal-Neutron Scattering - R.M. MOON, T. RISTE and W.C. KOEHLER - Physical Review (1969) Vol. 181 Nb 2 920-931.
- o 2 G.E. BACON - Neutron Diffraction Third Edition 531-532.
- o 3 A Note on the Magnetic Intensities of Powder Neutron Diffraction  
Gen SHIRANE - Acta Cryst. (1959) 12 282-285.
- o 4 Neutron Diffraction Studies of Antiferromagnetism in Manganous Fluoride and Some Isomorphous Compounds. - R. A. ERICKSON - Physical Review (1953) Vol90 Nb5 779-785.
- o 5 Model-Free Polarized Neutron Diffraction Study of an Acentric Crystal : Metamagnetic UCoAl - R. J. PAPOULAR - A. DELAPALME  
Phys. Rev. Lett. (1994) 72 10 1486-1489.
- o 6 J. SCHWEIZER, Chapitre VI du Cours HERCULES, Ecole de Physique de Grenoble.