



Table Ronde ESS

Evaluation Stratégique

Saint-Rémy-lès-Chevreuse, 15-17 janvier 2001

Organisée par la

Société Française de Neutronique (SFN)

TABLE DES MATIERES

	Pages
Editorial	5
Introduction*	7
Le Projet ESS	21
➤ Quelle source pour l'ESS* ?	23
➤ Status of the European Spallation Source (ESS) Project <i>K. Clausen</i>	25
Sessions instrumentales	39
➤ Introduction*	41
➤ Les techniques de diffraction <i>J. Schweizer</i>	43
➤ Réflectivité et diffusion de neutrons aux petits angles <i>C. Fermon</i>	61
➤ Diffusion inélastique des neutrons <i>J. Dianoux</i>	67
➤ Neutrons polarisés <i>P. Mangin</i>	85
Sessions thématiques	95
➤ Introduction*	97
➤ Physique du Solide - Magnétisme <i>J. Flouquet</i>	101
➤ Les neutrons et les sciences de la vie <i>P. Timmins</i>	105
➤ Matière molle, rayonnement neutron et source à spallation <i>F. Boué</i>	115
➤ Chimie du Solide, Matériaux, Métallurgie <i>D. Fruchart</i>	129
➤ Liquides et systèmes désordonnés <i>R. Vacher</i>	149
➤ Dynamique moléculaire - Catalyse - Cinétiques de transformation <i>H. Jobic</i>	153
➤ Utilisations industrielles et médicales des faisceaux de neutrons <i>C.H. de Novion</i>	159
Annexes	167
➤ Estimation du nombre d'instruments de diffusion de neutrons utilisés par la communauté française*	
➤ Picture gallery for the ESS reference moderators version 4.12.00 <i>F. Mezei</i>	
➤ Liste des participants à TRESSES	

* Ces textes ont fait l'objet d'une rédaction collégiale, à laquelle ont participé F. Leclercq, A. Menelle, H. Mutka, S. Pouget, C. Fermon et J. M. Mignot.

Succès de TRESSES, réelle motivation de la communauté française pour s'impliquer activement dans l'étude de faisabilité de ESS, intérêt des différents représentants des organismes de recherche et du Ministère, soutien des délégués de l'OPECST et du G5, unanimité sur la nécessité d'une structure européenne compatible avec les différentes organisations nationales partenaires de ESS, autant de constatations qui s'imposaient en fin de réunion ; cet enthousiasme a d'ailleurs été conforté par l'annonce officielle du CNRS de s'engager très rapidement au côté du CEA, en tant que membre à part entière dans le comité ESS, témoignant de l'intérêt français pour le projet européen.

Mais depuis mi janvier 2001, il semble que les positions du CNRS et du CEA, soient légèrement en recul par rapport aux conclusions de TRESSES puisqu'à notre connaissance et après discussion avec les représentants des organismes de tutelle lors des Journées de la Neutronique (JDN10, Trégastel, 16-18 mai 2001), la décision de signer l'extension du « Memorandum of Understanding » le 15 juin 2001 n'est pas encore officiellement affichée. Au niveau du CEA, l'actuelle baisse d'intérêt pour le projet CONCERT recentre l'utilisation de l'accélérateur sur la production des neutrons pour l'étude de la matière et il nous a été signifié que le CEA ne s'engagerait pas sans le CNRS dans ESS.

La décision effective de construire ESS doit être prise fin 2003. D'ici là, il convient de finaliser l'étude de faisabilité en faisant progresser les dossiers techniques et instrumentaux de façon à valider les gains en flux qui donneront une nouvelle dimension aux techniques neutroniques, et d'affiner les coûts de construction et de maintenance de ESS. Cette étude crée une dynamique dans la communauté européenne des neutroniciens à laquelle les équipes françaises se doivent de contribuer en y apportant leurs compétences spécifiques.

Sur la base de l'engagement du CEA et du CNRS en tant que partenaires dans le Comité ESS, nous souhaitons qu'il soit possible de :

- *Participer de façon importante à la définition et au choix des instruments pour ESS et continuer le travail amorcé lors de TRESSES.*

- *Profiter efficacement de la construction de SNS et de la source japonaise ainsi que des nouveaux projets de développements instrumentaux à ISIS pour former quelques experts aux techniques sur source à spallation. Il existe des candidats potentiels intéressés mais un message clair d'implication des tutelles sera indispensable pour relayer – sur un plan pratique - leur dynamisme scientifique (politique de détachement de postes, création de stage post doctoral).*

- *Assurer les développements instrumentaux nécessaires aux meilleures performances de l'ILL et du LLB (optique neutronique , détecteurs, ...), qui bénéficieront également aux futures lignes de l' ESS.*

- *Mettre en place une structure réunissant des représentants du CEA, du CNRS, du Ministère de la Recherche et de Technologie et de la communauté scientifique française impliquée dans la spectroscopie neutronique qui sera capable d'harmoniser la position de la France, de réunir les éléments suffisants permettant le choix de l'engagement français dans la construction d'ESS et de préparer cet éventuel engagement. Nous sommes conscients que le CEA et le CNRS ne peuvent s'engager à augmenter fortement le financement dédié aux neutrons sur leurs fonds propres dans les prochaines années et il faudra mettre à profit cette période pour trouver une structure nationale de financement pour la construction de cette source qui assurera à l'Europe le leadership mondial en 2015.*

Juin 2001,
Pour la SFN, Françoise LECLERCQ

Introduction

**La science
faite avec les
neutrons**

" Où sont les atomes, comment bougent-ils ? " (Nobel 1994 : Shull & Brockhouse).

C'est la question préalable à toute **compréhension des mécanismes à la base des propriétés physiques et de la réactivité chimique de la matière** condensée. L'apport des spectroscopies neutroniques dans l'étude conjointe de la structure et de la dynamique de la matière est primordial. Les longueurs d'onde continûment accessibles de 0.3 Å à 20 Å permettent de sonder les structures sur des portées d'ordre variant de 1 Å (échelle des liaisons intramoléculaires) à 1000 Å (gros édifices moléculaires). L'énergie associée variant de 1000 meV (soit environ 250 THz) à 0.2 meV (soit environ 0.05 THz), permet d'explorer les excitations dans des domaines d'énergie variant de l'infrarouge lointain aux radiofréquences. Les techniques neutroniques permettent ainsi de sonder les propriétés dynamiques des systèmes sur plusieurs échelles de distances et d'énergie.

De plus, les neutrons présentent des propriétés spécifiques qui en font un outil irremplaçable :

- de par leur neutralité, ils ont un **grand pouvoir de pénétration** dans la matière ;
- l'interaction neutron-matière est principalement nucléaire. Elle varie irrégulièrement non seulement d'un élément à l'autre mais aussi entre deux isotopes d'un même élément. Il est donc possible de faire varier fortement les contrastes par substitution isotopique. Citons, par exemple, la forte sensibilité des neutrons aux **positions et aux mouvements des atomes d'hydrogène** et la différence importante de contraste obtenue par substitution hydrogène/deutérium. Cette propriété, qui permet d'isoler spécifiquement les interactions des protons avec leur environnement, est fondamentale pour la compréhension **des polymères, des solvants protonés et des mécanismes biochimiques** ;
- le fait que le neutron porte un spin introduit une seconde **interaction, magnétique**, qui permet d'étudier, outre les propriétés liées aux positions et aux mouvements des atomes, celles qui reflètent la structure et la dynamique de leurs moments magnétiques.

Le rapport du *groupe ad-hoc de prospective neutrons* (« rapport Balian ») ¹, établi fin 1997 à la demande conjointe du CEA et du CNRS, présente bien cette « science faite avec les neutrons », en insistant sur les domaines où cette technique expérimentale n'a pas d'équivalent et ceux où elle intervient en complémentarité avec les autres sondes de la matière. Il distingue les apports dans les thèmes suivants : structures ordonnées (cristallographie, dynamique de réseau, magnétisme, supraconductivité) ; milieux désordonnés, verres, liquides ; matière molle ; métallurgie, matériaux, chimie du solide ; l'eau et le vivant ; physique corpusculaire et ondulatoire ; neutronographie et activation nucléaire.

**Les
neutroniciens
français : une
communauté
multi-
disciplinaire**

La communauté des neutroniciens français regroupe ainsi **des scientifiques de toutes disciplines** (physique, chimie, biologie, géologie, sciences des matériaux en vue d'applications industrielles, etc.), relevant de diverses tutelles scientifiques (CNRS, CEA, universités, autres établissements publics de recherche), de quelques industriels, ainsi que les professionnels des centres de neutrons situés sur le territoire français : source nationale du LLB et source européenne de l'ILL.

Un examen des thématiques de recherche du **CNRS** fait apparaître que la moitié des équipes dépendant du département des « **Sciences Physiques** et Mathématiques » et un tiers de celles rattachées au département des « **Sciences Chimiques** » peuvent tirer profit des neutrons pour préciser l'organisation de la matière (assemblages

atomiques et moléculaires) dans des systèmes complexes, caractériser son évolution en fonction des paramètres extérieurs (pression, température, pH, force ionique,...) et apporter des informations essentielles à la compréhension des propriétés physiques des solides (magnétiques, optiques, transport électronique et atomique,...) et des liquides (solvation,...).

En ce qui concerne le CEA (principalement sites de Saclay et de Grenoble), on peut mentionner plus particulièrement, les travaux dans les systèmes électroniques fortement corrélés et leur interaction avec le réseau cristallin visant par exemple à identifier les mécanismes à l'origine de la supraconductivité à haute température critique, l'étude structurale des systèmes supramoléculaires (polymères, colloïdes, composites...), ou encore les mesures du vieillissement thermique et sous irradiation des matériaux d'intérêt nucléaire.

Il faut aussi mentionner les **besoins plus récemment identifiés** tant au CNRS qu'au CEA :

- en **Sciences de la Vie** (sensibilité des neutrons aux protons) qui nécessitent la mise en place de plates-formes pluridisciplinaires physique-chimie-biologie par exemple pour caractériser la relation structure-dynamique-fonction des protéines.

- en **Sciences des Matériaux** (pour des applications industrielles) : citons par exemple la caractérisation des matériaux hors d'équilibre (microstructure, textures, contraintes) et l'étude des nanostructures magnétiques.

Le fait que la sonde neutronique puisse bénéficier à des disciplines variées nécessite un effort de structuration des communautés concernées.

**La SFN
et l'ENSA :
représentation
des
communautés
aux niveaux
national et
européen**

Depuis sa fondation en 1994, la **Société Française de la Neutronique (SFN)** s'est donnée pour mission de renforcer les liens entre les utilisateurs de neutrons, de promouvoir l'utilisation des installations existantes en tirant le meilleur profit de leur spécificité, et d'organiser la réflexion et le débat scientifique sur les évolutions et les projets sources en France et en Europe.

D'autre part, en sa qualité de membre de l'ENSA (**European Neutron Scattering Association**), la SFN contribue, avec ses homologues des autres pays, à l'analyse des besoins actuels et futurs de près de **5000 scientifiques** ayant recours aux différents centres de neutrons en Europe.

**Les TGE d'étude
de la matière -
complémentarité
neutrons
synchrotron**

Les sources **de neutrons et de rayonnement synchrotron** ont en commun d'offrir tout un éventail de sondes expérimentales complémentaires à un très grand nombre d'équipes. Le rôle essentiel de ces Très Grands Equipements, est celui de « **banques** » **de moyens et de compétences au service d'une large communauté**. Ce statut de Très Grand Equipement (**TGE**) **d'infrastructure** a été clairement défini dans le Rapport de l'Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques (**OPECST**)².

Le rayonnement synchrotron bénéficie indéniablement de l'existence, au sein de la communauté scientifique, d'une « culture » des rayons X, dont l'étude est intégrée au cursus universitaire et de l'usage relativement répandu d'équipements de laboratoire. Avec l'ouverture de l'European Synchrotron Research Facility (ESRF), puis les études relatives au projet national SOLEIL, on a assisté à une progression fulgurante des performances des sources de rayonnement synchrotron qui a ouvert des possibilités inenvisageables voici seulement une dizaine d'années. Succédant à une ambiance de concurrence entre **rayonnement synchrotron et spectroscopie** neutronique, on assiste actuellement au développement de la **synergie** entre les deux techniques, permettant une **meilleure compréhension de la matière**.

En ce qui concerne la neutronique, notre pays disposait, à l'aube des années 90, d'une position très favorable, avec la présence sur son sol de **deux sources continues**

**Fort potentiel
français en
neutronique**

modernes de neutrons dédiées à la recherche scientifique : le réacteur national à flux moyen **ORPHEE de Saclay** (14 MW) associé au **Laboratoire Léon Brillouin (LLB)**, et le Réacteur européen à Haut Flux (**RHF – 57MW**) de l'**Institut Laue Langevin de Grenoble (ILL)**, encore à ce jour le plus performant au monde.

Le LLB met à la disposition de la communauté scientifique environ 25 spectromètres, l'ILL 33 (cf tableau en Annexe). Ces deux sources sont accessibles aux expérimentateurs français par l'intermédiaire de propositions d'expériences à déposer deux fois par an. Certains spectromètres ne sont pas entièrement gérés par le LLB ou l'ILL (7 au LLB, 8 CRG à l'ILL). Ils offrent aux utilisateurs potentiels un canal d'accès différent aux faisceaux de neutrons soit par l'intermédiaire de projets de recherche en commun avec le laboratoire responsable du CRG, soit via un système de propositions d'expériences dédiées .

**Situation
internationale**

Par ailleurs, il existe dans le monde plus d'une trentaine de sources, utilisées au moins en partie pour l'étude de la matière condensée, dont environ 14 en Europe (Russie comprise). Ces sources présentent des potentialités ainsi que des systèmes d'accès très variés. On notera les évolutions récentes suivantes : le démarrage de la source suisse SINQ en 1998, l'arrêt définitif de Risø au Danemark et la construction du nouveau réacteur FRM2 de Munich maintenant prêt à démarrer. Parmi les sources européennes non françaises, trois, ISIS au Royaume Uni, HMI en Allemagne et Studsvik en Suède bénéficient de contrats de l'Union Européenne qui y facilitent l'accès des utilisateurs français. En France, le LLB bénéficie d'un contrat similaire pour les utilisateurs européens non français.

**L'avenir des
spectroscopies
neutroniques :
un enjeu
européen**

Les centres de neutrons principalement fréquentés par les français (**LLB et ILL**) ont su mettre en œuvre une politique de **développement instrumental et de jouvence des réacteurs** qui leur assure **un fonctionnement performant jusqu'au minimum 2013**. Pourtant les délais extrêmement longs de gestation de nouvelles sources nécessitent d'ores et déjà de préparer leur remplacement ³. Compte tenu de l'expérience américaine (projet ANS de réacteur de 100 MW abandonné), on peut estimer qu'un projet de réacteur à flux continu capable de produire des faisceaux de neutrons beaucoup plus intenses que ceux de l'ILL se heurterait à des difficultés techniques réhébilitaires et nécessiterait des budgets trop élevés. Ceci conduit à s'orienter vers la technique de **spallation**, qui permet de produire des faisceaux pulsés de neutrons en bombardant une cible de métal lourd par un faisceau de particules accélérées sous plusieurs centaines de MeV. C'est le projet européen de source de neutrons pulsée de nouvelle génération « **European Spallation Source** » (**ESS**), dont les perspectives scientifiques ont été largement discutées lors de la réunion d'Autrans ⁴ et sont détaillées dans le rapport ESS « The Scientific Case » ⁵.

**Pourtant la
situation
actuelle en
France est
préoccupante**

Or, à partir de 1996, les organismes de tutelle de la recherche française ont rencontré des difficultés croissantes pour assurer le financement des sources de neutrons existantes et préparer leur renouvellement. Cette situation, résultat d'un changement d'orientation politique par rapport aux TGE, a mis en lumière des désaccords plus profonds entre le CEA et le CNRS, partenaires dans la convention régissant le LLB et dans la participation française à l'ILL. La communauté des utilisateurs, notamment par la voix de la SFN, n'a cessé de réclamer que soit assuré l'avenir de la neutronique en France, et notamment celui du LLB afin de faciliter l'accès des nouveaux utilisateurs aux spectroscopies neutroniques et de permettre la structuration de la communauté au niveau national, nécessaire à son émergence au niveau international.

**Une stratégie
Française à
préparer**

Différentes raisons peuvent expliquer qu'en 1993, lors du lancement du projet ESS, la France ne s'y soit pas activement engagée :

- changement d'orientation politique française pour le soutien aux TGE,
- restrictions budgétaires imposées aux organismes de tutelle de la recherche,
- inquiétudes liées au fonctionnement des sources implantées sur le territoire français,
- nécessité de structurer la communauté pluridisciplinaire des utilisateurs pour dégager une expression cohérente et globale de ses besoins,
- expertise française acquise sur les sources continues plutôt que sur les sources à spallation.

**En Janvier
2001 la SFN
invite tous les
partenaires
impliqués à une
concertation
lors de
TRESSES**

Pourtant, il est maintenant urgent que la communauté française contribue à la définition d'une **stratégie européenne à l'horizon de 2010-15** et étende ses compétences à la technologie de source à spallation. C'était **une des missions de la SFN** d'ouvrir un débat sur ce sujet : la première étape a été l'organisation d'une **Table Ronde** sur l' **European Spallation Source : Evaluation Stratégique (TRESSES - 15** au 17 janvier 2001 à Gif-sur-Yvette) qui a réuni une centaine de scientifiques utilisateurs (31), professionnels des centres LLB (33) et ILL(25), spécialistes européens des sources pulsées (6), et 5 représentants du projet ESS et de l'ENSA (European Neutron Scattering Association). **Ferenc Mezei**, responsable du dossier instrumental d' ESS, a accepté le rôle de **chef d'orchestre**, présentant **l'état actuel des réflexions et les questions** restant en suspens qui devront être considérés avant **fin 2003**, date à laquelle sera prise la décision effective de la construction de ESS.

La communauté française, répartie en différents groupes de travail, a considéré les questions relatives à la transposition sur source pulsée des expériences actuellement réalisées sur réacteur, ainsi que les techniques spécifiques pouvant être mises en œuvre sur les sources à spallation. On a également cherché à cerner **les capacités et les besoins expérimentaux** justifiant le maintien d'un parc d'instruments sur sources continues. Parallèlement, une analyse **par thématique scientifique** a permis d'identifier les nouvelles perspectives ouvertes par une source pulsée telle que l'ESS.

Un **bilan** du travail réalisé a été proposé le 17 janvier 2001 à une vingtaine de personnalités représentant le **CNRS**, le **CEA**, le **Ministère de la Recherche et de la Technologie** et l'**Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques** et le groupe d'experts du **G5**⁶. La clôture de cette rencontre a consisté en deux tribunes permettant tout d'abord de discuter la **structure européenne nécessaire** au projet ESS, puis au niveau national les points de politique scientifique et la **nécessaire implication de tous les organismes de tutelle** de la recherche française.

Ce rapport reprend les principales conclusions des réflexions et discussions menées lors de TRESSES et constitue une première étape de l'engagement de la communauté des neutroniciens français dans le projet d'avenir de source européenne à spallation.

1 – Rapport du «groupe ad-hoc de prospective neutrons » ,Roger Balian , Novembre 1997

2 - Rapport de l 'OPECST Tome II : Le rôle des Très Grands Equipements dans la recherche publique et privée, en France et en Europe, Décembre 2000

3 - "A Twenty Years Forward Look at Neutron Scattering Facilities in the OECD Countries and Russia", D. Richter and T. Springer, 1998 - jointly published by OECD and ESF.

4 – « Rapport d'Autrans » : Scientific Prospects for Neutron Scattering with Present and Future Sources - ESF-ENSA, january 1996, ISBN 2-9031 48-90-2

- 5 – *The European Spallation Source : A next Generation Neutron Source for Europe, Vol.II : The Scientific Case Edts : J.L. Finney, U.Steigenberger, A.D. Taylor, C. J. Carlile, J. Kjems ; March 1997, ISBN 090 237 6 500, 090 237 6 608 - voir aussi la mise à jour de ce rapport incluant les réponses aux questions de l' European Science Fondation : The Scientific Strategic Case for a Next Generation European Spallation Neutron Source for Science and Research (ESS Project), jointly published by ESF, ENSA, R&D Council of the ESS Project, December 2000, European Science Foundation, Strasbourg, France, ISBN 2-912049-20-2*
- 6 – *Le groupe d'experts du G5 regroupe des personnalités scientifiques des 5 pays membres : Allemagne Espagne, France, Italie , Royaume Uni - cf www.icmm.csic.es FAM_EG : Large Installation Report: « Fine Analysis matter »*

PROGRAMME

- Lundi 15 Janvier -

A partir de 11h: Accueil

11h30-12h45 **Introduction** - F. Leclercq
Point sur l' ESS (instrumentation) (F. Mezei)
Discussions (G. Pepy, ...)

----- *Repas* -----

14h00-16h00 **Les techniques de diffraction** - Chairman J. Schweizer

- Introduction (J. Schweizer)
- Diffraction sur poudres / textures et contraintes (P. Radaelli / J. Rodriguez)
- Diffraction sur monocristaux (D. Keen / A. Gukasov)
- Liquides et Amorphes (A. Soper / R. Bellissent)
- Hautes pressions (I. Mirebeau)

----- *Pause café* -----

16h30 - 18h **Petits angles - Réflectométrie** - Chairman C. Fermon

- Introduction (C. Fermon)
- Petits angles
- Réflectométrie

- Mardi 16 Janvier -

8h30 - 10h30 **Les techniques de spectrométrie** - Chairman J. Dianoux

- Introduction (J. Dianoux)
- Excitations sur monocristaux
- Spectroscopie
- Rétrodiffusion
- Spectrométrie à échos de spins

----- *Pause café* -----

11h - 12h15 **Neutrons Polarisés** - Chairman P. Mangin

- Introduction (P. Mangin)
- Analyse de polarisation à une dimension (B. Gillon)
- Polarimétrie élastique (E. Lelièvre-Berna)
- Polarimétrie inélastique (L.P. Regnault)
- Conclusion (F. Tasset)

----- *Repas* -----

13h45-14h45 **Techniques spécifiques aux sources à spallation** - Chairman C. Carlile

- Spectroscopie eV
- Muons
- Interférométrie

14h45-15h45 Synthèse sur les sessions instruments (F. Mezei)
Discussions

Introduction des thématiques scientifiques

----- *Pause café* -----

16h15-18h15 Six forums en parallèle, sur les différentes thématiques scientifiques.

- Physique du solide - Propriétés magnétiques (Animateur: J. Flouquet)
- Biologie (Animateur: P. Timmins)
- Matière molle (Animateur: F. Boué)
- Chimie du Solide - Matériaux - Métallurgie (Animateur: D. Fruchart)
- Systèmes désordonnés - liquides (Animateur: R. Vacher)
- Dynamique moléculaire - Catalyse - Cinétiques de transformation (Animateur: H. Jobic)

- Mercredi 17 Janvier -

(en présence des représentants CEA, CNRS, Universités, Ministères)

9h10 - 9h50 Etat des lieux ESS
Aspects techniques (K. Clausen)
Activités du “ Scientific Advisory Committee ” de ESS (D. Richter)

9h50 - 10h10 Présentation CONCERT (J.L. Laclare)

10h10-10h30 L'ESS et les perspectives scientifiques (F. Mezei)

----- *Pause café* -----

11h - 12h30 Présentation des thématiques

- Physique du solide - Propriétés magnétiques (J. Flouquet) - 20 mn
- Biologie (J. Zaccai) - 20 mn
- Matière molle (F. Boué) - 20 mn
- Discussions

----- *Buffet* -----

14h - 15h 30 Présentation des thématiques (suite)

- Chimie du solide - Matériaux – Métallurgie (D. Fruchart) - 20 mn
- Systèmes désordonnés - liquides (R. Vacher) - 20 mn
- Réactions chimiques - Catalyse - Cinétiques de transformation (H. Jobic) - 20 mn

Autres communautés de la Neutronique:

Physique nucléaire - (J. Martino) – 10mn
Neutronographie - Irradiations (CH. De Novion) – 10mn

- Discussions -

15h30-17h30 Tribune : Quelle stratégie française pour s’impliquer dans le projet européen de Source à Spallation ?

(représentants du CEA, du CNRS, du Ministère de la Recherche et de la Technologie, du Comité “ European Spallation Source” , de l’ “ European Neutron Scattering Association ”, de l’Office Parlementaire des choix scientifiques et technologiques, des centres de neutronique implantés en France LLB et ILL, des utilisateurs français des spectroscopies neutroniques...)

Conclusions et Perspectives

Note: Certaines présentations orales, dont celle de J. L. Laclare, n'ont pas fait l'objet d'une contribution écrite. Des informations sur le projet CONCERT sont disponibles à l'adresse <http://web.concert.free.fr/>.

Nous remercions toutes les personnes qui ont participé à l'organisation de TRESSÉS, et tout particulièrement les animateurs des différentes sessions.

Cette réunion n'aurait pu avoir lieu sans les soutiens financiers et logistiques du Laboratoire Léon Brillouin et de l'Institut Laue Langevin.

TRIBUNES

dimension européenne de l'ESS



de gauche à droite

- * **Dr. Peter Tindemans**, représentant du Projet ESS Den Haag NL
- * **Dr. Robert Cywinski**, Président de l'"*European Neutron Scattering Association*" (ENSA), Leeds UK
- * **Dr. Feri Mezei**, ESS Instrumentation Task Group HMI, Berlin, D
- * **Dr. Hannu Mutka**, Vice Président SFN, représentant français à l'ENSA, ILL Grenoble
- * **Pr. Jacques Joffrin**, membre du G5, Université Paris Sud

implication nationale:



de gauche à droite

- * **Mr Jean Gallot**, délégué de l'Office Parlementaire d'Evaluation des Choix Scientifiques et Technologiques
- * **Mme Françoise Fabre**, Direction des Sciences de la Matière CEA Saclay
- * **Mr Yves Terrien**, Délégué ESS, Direction des Sciences de la Matière CEA Saclay
- * **Mr Bernard Frois**, Direction de la Technologie Ministère R&T
- * **Mr Patrick Hemery**, Direction- adj. Sciences Chimiques CNRS
- * **Mr J.P. Pouget**, Direction Sciences Physiques et Mathématiques CNRS
- * **Mr Michel Le Bellac**, Direction de la Recherche Ministère R&T
- * **Mr Roger Balian**, DSM/DRECAM/SPHT CEA Saclay



Ferenc Mezei: l'homme orchestre de ces journées.

LE PROJET

ESS

Quelle source pour l'ESS ?

L'optimisation d'une source continue consiste essentiellement en l'obtention du flux maximal pour la gamme de longueurs d'ondes voulue, par l'utilisation de sources chaudes, thermiques ou froides adaptées à un réacteur fournissant un flux de neutrons le plus élevé possible. Dans le cas d'une source à spallation pulsée, un nombre plus important de paramètres pertinents va influencer directement le mode opératoire et la performance d'un instrument. La longueur et la puissance des impulsions de l'accélérateur sont, par exemple, de première importance; de même, du fait du processus de modération, la structure temporelle des pulses est étroitement liée à la gamme de longueurs d'onde sortant du modérateur. Ceci fait apparaître le besoin de considérer dès le départ les différentes options concernant le modérateur en conjonction avec les spécifications instrumentales. Pour l'ESS ce travail est actuellement en cours, le Groupe de Travail Instruments (Instrument Task Group, ESS-ITG) cherchant à définir les configurations visant à satisfaire les besoins scientifiques pressentis. Les documents produits par l'ITG sont disponibles à l'adresse web "<http://www.hmi.de/bereiche/SF/ess/>".

Quelles impulsions et quel flux?

Afin de déterminer le gain espéré sur la future source de neutrons, plusieurs groupes ont réalisé des simulations à partir des données fournies par le groupe allemand travaillant sur l'optimisation de la production de neutrons. Le faisceau délivré par l'accélérateur est envoyé sur une cible dont la composition est actuellement discutée. Les neutrons formés sont thermalisés par des modérateurs (froid, thermique ou chaud) et partent ensuite vers les instruments.

Trois types de production de neutrons sont proposés pour ESS:

- des impulsions courtes (environ 1 μ s) à une fréquence de répétition de 50Hz (P : 5MW) - flux moyen : 1/5 de l'ILL, flux pic : 100x l'ILL.

Cette option correspond à une amélioration considérable des sources pulsées existantes.

- des impulsions courtes (environ 1 μ s) à une fréquence de répétition de 10Hz (P : 1MW) - flux moyen : 1/25 de l'ILL, flux pic : 100x l'ILL.
Cette configuration favorise les spectromètres utilisant les grandes longueurs d'ondes au prix d'une baisse de flux pour les autres.
- des impulsions longues (environ 2ms) à une fréquence de répétition de 16.6Hz (P : 5MW) - flux moyen : ILL, flux pic 20x l'ILL.
Cette option complètement nouvelle privilégie le flux au prix d'une grande largeur temporelle des bouffées de neutrons qui rend leur utilisation plus difficile sur les instruments.

Le document "Moderator parameters II - Picture gallery for the ESS reference moderators", élaboré par F. Mezei, présente les caractéristiques spectrales et temporelles associées aux différentes configurations étudiées; il est reproduit en annexe.

Si les impulsions courtes sont déjà utilisées sur des sources comme ISIS, les impulsions longues sont une nouveauté propre à ESS. De ce fait, les calculs sont à un stade moins avancé que pour les impulsions courtes. Les chiffres qui ont servi de base aux simulations correspondent à des valeurs vraisemblablement plus faibles que celles qui seront atteintes.

Pour des raisons de limitation des coûts, il est prévu de n'installer que deux cibles sur ESS.

Le flux espéré en impulsions courtes ne dépassera vraisemblablement pas les valeurs données car les extrapolations des sources actuelles de type voisin permettent de bien en connaître les limites. Par contre, en impulsions longues, on peut espérer encore un gain de l'ordre de 3 par une meilleure définition de la cible et des modérateurs.

Dans certains cas, un taux de répétition de 50 Hz n'est pas compatible avec une bonne résolution angulaire et en longueur d'onde sur un échantillon assez grand. C'est la raison pour laquelle une cible d'impulsions courtes à 10 Hz a été envisagée.

Note: Au niveau Européen, un workshop destiné à choisir les 2 cibles qui seront installées et à préparer le "scientific case" a eu lieu du 2 au 6 mai 2001. Comme dans les conclusions de TRESSES, un choix très clair a été fait en faveur d'impulsions courtes à 50 Hz (55% des demandes) et en faveur d'impulsions longues à 16 Hz (35%).

Le projet de Source Européenne à Spallation (ESS): Etat des lieux

Le projet ESS nous a été présenté par les responsables technique (K. Clausen, Technical Project Director), scientifique (D. Richter, Science Executive) et politique (P. Tindemans, Policy Executive). Compte tenu de la rapidité de développement des activités en cours nous n'avons pas jugé utile d'inclure une contribution écrite de la part de chacun d'entre eux dans ce document. Le rapport de K. Clausen qui suit présente l'évolution historique du projet, et ses motivations basées sur une évaluation des perspectives de la neutronique qui fut effectuée au cours des années –90 au niveau international. Il fait le point sur l'état d'avancement du projet, ainsi que sur les principales étapes à venir. La conclusion ne touche que très brièvement le contexte politique européen qui fut amplement développé par P. Tindemans, et qu'il nous semble important de rappeler ici. Ce dernier mettait bien en évidence le fait que l'avenir de la science utilisant la diffusion neutronique ne pourra être assuré que par un effort de collaboration européen. Cependant, à l'heure actuelle, les structures de l'Union Européenne ne sont pas encore prêtes à traiter des grands projets scientifiques tels que l'ESS, et une concertation des nations impliquées s'impose.

Résumé de la contribution de K. Clausen " Status of the European Spallation Source (ESS) Project"

Le projet ESS (European Spallation Source) constitue une proposition, pour l'Europe, de disposer d'une source de neutrons de nouvelle génération. En 1997, deux études concernant la faisabilité de l'ESS ainsi que la motivation scientifique pour une telle source étaient publiées (références 1-4), après un travail de préparation effectué par les partenaires européens acteurs majeurs dans le domaine de la diffusion neutronique. Le projet était alors à un niveau tel d'avancement, tant du point de vue scientifique que

technique, que la décision de construire l'ESS aurait déjà pu être prise. Durant les trois années qui suivirent (1997 – 2000), quelques aspects techniques du projet ont été affinés, mais aucun progrès réel concernant la réalisation de l'ESS n'a été enregistré. Lors de la réunion du Conseil de l'ESS en Mai 2000, il a été décidé de mener un effort concerté dans le but de faire aboutir le projet l'ESS dans les meilleurs délais, tout en effectuant une mise à jour des différentes études à la lumière des développements récents. Le projet ESS 2000 est basé sur l'ancien, que viennent compléter quatre points : 1) Etude de la faisabilité technique et de l'intérêt scientifique d'avoir deux cibles délivrant l'une des pulses courts et l'autre des pulses longs, au lieu de deux cibles à pulses courts comme il était initialement proposé. 2) Evaluation du potentiel de la technologie des accélérateurs supraconducteurs. 3) Mise à jour du projet scientifique pour prendre en compte les avancées scientifiques en général, et tout particulièrement dans les domaines de la biologie, de la biotechnologie et des Sciences de la Terre. 4) Etude de l'option de construire l'ESS comme composante d'une installation multi-applications.

L'objectif actuel est la présentation d'une proposition finalisée pour l'été 2003, en vue d'une décision de construction en 2003/4, qui permettrait de disposer d'une installation opérationnelle peu après 2010.

Status of the European Spallation Source (ESS)

Project

K.N. Clausen

ESS - Central Project Team, c/o Forschungszentrum Jülich, D-52425 Jülich, Germany

E-mail: k.clausen@fz-juelich.de Homepage: <http://www.ess-europe.de>

Abstract

The European Spallation Source (ESS) is a proposal for a next generation neutron source in Europe. A feasibility study and the scientific case for the ESS was prepared jointly by the main European players in the field of neutron scattering and published in 1997 (1-4). The 1997 spallation source project, both the science case and the technical design were in such an advanced state that a decision to build the ESS could have been taken at the time. From 1997 to 2000 technical concepts in the project was refined, but no progress towards the realisation of the ESS was made. At the May 2000 meeting of the ESS Council it was decided to make a concerted effort to make the ESS happen as early as possible and to update the case in view of recent developments. The ESS project 2000 is - the old ESS plus four additions. 1) Investigate the technical feasibility and scientific prospects of having one short and one long pulse target station instead of the original proposal for two short pulse target stations. 2) Look into superconducting accelerator technology. 3) Update the science case according to recent advances in science in general and in the area of biological sciences, biotechnology and earth science in particular. 4) Study the option to build ESS as part of a multipurpose facility.

The aim is to have a proposal ready by summer 2003, decision to build 2003/4 and an operating facility shortly after 2010.

Introduction

In the Large Facilities Report to the Commission of the European Community (CEC) in 1990, the Neutron Study Panel underlined the continuing need for neutron scattering and recognised that a major initiative was necessary to secure an effective ongoing neutron science programme in Europe for the year 2000 and beyond.

Through a joint initiative of FZ-Jülich and Rutherford Appleton Laboratory, a series of meetings in 1991 and 1992 explored options for such a next generation European Neutron Source. These meetings formed the basis for the specification of the ESS – the European Spallation Source. The initiative was joined by a large number of European laboratories. A Council of representatives from the partner laboratories together with observers from France and Spain was formed to oversee the study, which began in June 1993, and continued from December 1994 with CEC and ESF support. In early 1997, the result of the study was published in 3 volumes : ESS – A next generation Neutron Source for Europe – Volume I-III (1,2,4).

In parallel the European Science Foundation (ESF) and the European Neutron Scattering Association (ENSA) prepared a general science case for Neutron scattering, which was published in 1996. (3)

Neutron scattering is to a large extent depending on ageing facilities, and in 1998 ESF and OECD published a joint report on a twenty years forward look at neutron scattering facilities in the OECD countries and Russia (5). The prediction is shown in Fig.1. Recent development are even more pessimistic as this prediction as two important reactors, Brookhaven and Risø have closed down considerably earlier than anticipated.

A global neutron strategy was drawn up by the OECD Megascience Forum in 1998, and “endorsed” by the OECD Ministerial Conference in 1999. That strategy divides the facilities in three tiers, with different strategies for each tier.

Tier 1: Next generation sources. The world needs one in each of the three main economic regions: the Americas, the Asian pacific region and Europe. They are needed for quantitative and qualitative reasons.

Tier 2: Existing front-rank facilities. Up-grade and broaden the international participation in their operation and exploitation. In Europe ISIS and ILL form the second tier.

Tier 3: The smaller national facilities. Many of these facilities will close down before 2015 without replacement. Efforts should be to refurbish and maintain these national neutron facilities as far as appropriate based on scientific and technical excellence and in accordance with national goals.

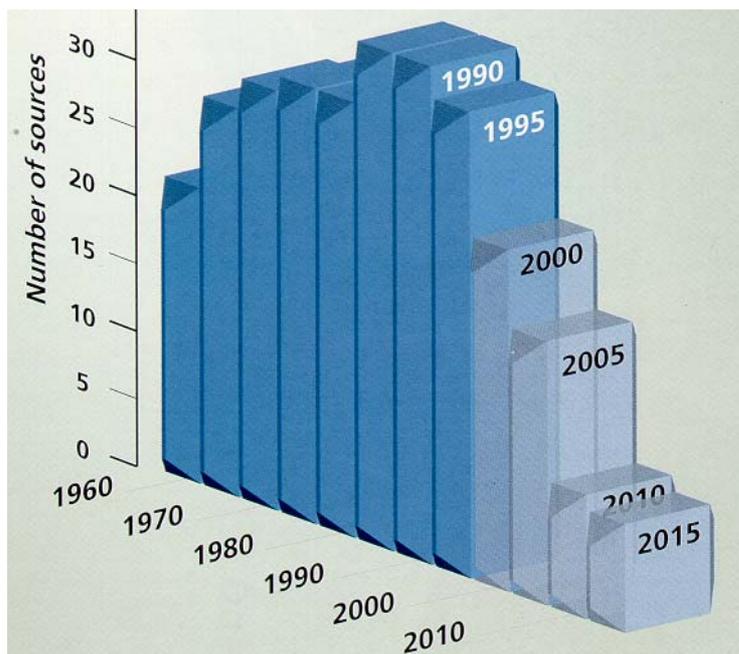


Figure 1: The predicted development of neutron sources in the OECD countries and Russia. (5)

The OECD recommendation has been followed by US and Japan. In December 2000 ground braking was preformed for the US Spallation source SNS in Oak Ridge. SNS is a 2 MW, 60 Hz short pulse ($< 1 \mu\text{s}$) based on a 1 GeV full energy superconducting linac and a single compressor ring. The facility is planned for first operation in 2006. The Joint project in Japan is a Multipurpose facility. The Neutron source is a 1 MW (upgradeable to 5 MW) short pulse ($\sim 1 \mu\text{s}$) facility operating at 25Hz and based on a 400 MeV normal conducting linac followed by a 3 GeV synchrotron. The project was approved in December 2000 and first operation is planned for 2006.

The European neutron users strongly endorse the OECD strategy and have through ENSA declared the ESS as the priority one project for neutrons in Europe.

In spite of all this no real progress towards the realisation of the ESS had been made at the beginning of year 2000. Europe lacks a mechanism that on a regular basis can be used to lead to decisions on research infrastructures that transcend national scales. The reason is very simple: we have to cope with the situation that the major part of Europe's research budget falls within national competencies. Apart from the budgets of the existing

large facilities such as CERN, virtually 95% of the rest is in the national realm! The remaining 5% are in the Framework Programme of the EU, but that Programme cannot do very much for new research infrastructures. It can finance access, and that is basically all. In fact, the Commission and the EU play only a minor role in decisions on large facilities. All those that have been constructed so far, from CERN onwards to ESRF, have been the result of completely ad-hoc mechanisms.

The ESS council facing this reality and the fact that one of the key countries in neutron scattering – France – was only participating as observers decided to react to this situation, and to make a concerted effort to make the ESS project visible and high on the European agenda.

The ESS Memorandum of Extension

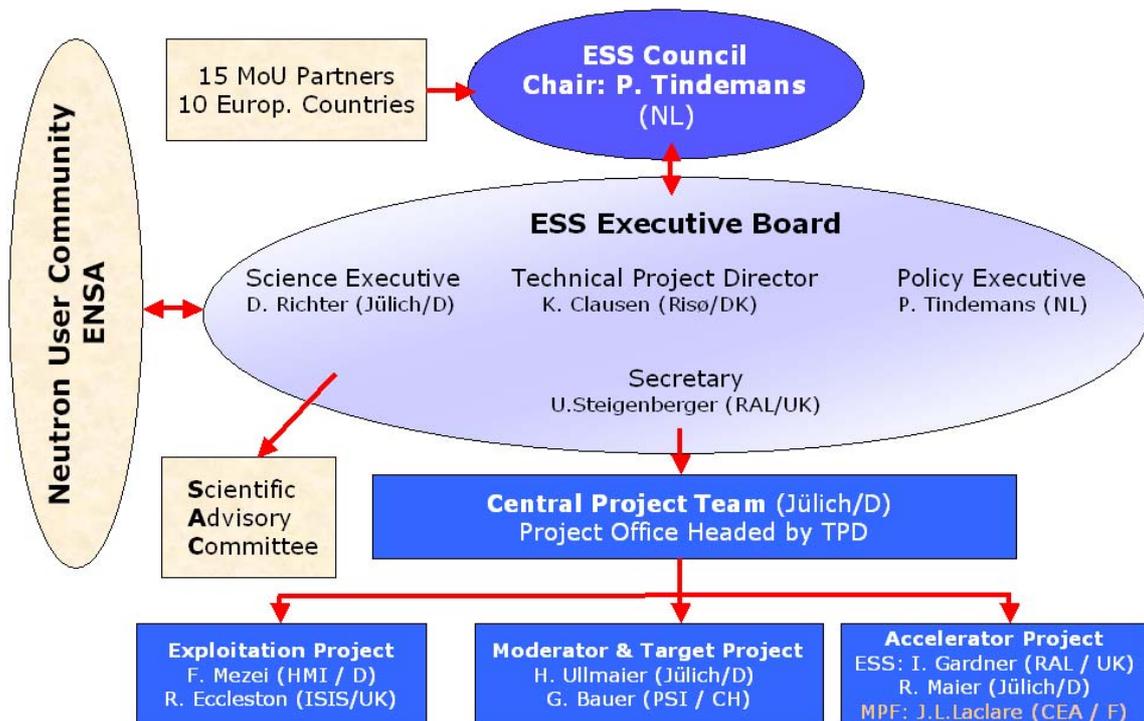
A memorandum of extension was adopted in May 2000 by 13 European partners: ” to design and construct a European next generation spallation source, that upon completion will be the best neutron source world-wide for all classes of instruments”. New technical options such as a superconducting linac and the feasibility of a long pulse target station and to use one accelerator for several science communities (individual target stations for neutron scattering, irradiation, transmutation, rare isotope beams and muon/neutrino physics) will be explored to realise this high ambition.

The council decided to appointment a new Chairman of the ESS Council the ESS project and set up a Central Project Team at Forschungszentrum Jülich (FZJ), Germany, headed by a Project Director. The central team will be responsible for the overall progress of the project and will provide the link between the three technical R&D tasks: accelerator, target systems and instrumentation. (Fig 2)

These three tasks are managed by lead laboratories: the ISIS Facility, UK and FZJ for the accelerator R&D, the FZJ and the Paul Scherrer Institute, Switzerland, for the target and moderator development, and the Hahn Meitner Institute, Germany and the ISIS Facility for the instrumentation design. The CEA in France is now a full member of the Council and plays a key role in the project as responsible for the multipurpose study. CNRS is still not a member of the council even though several CNRS scientists contribute to the project – especially to science and instrumentation.

A Science Advisory Committee under the stewardship of the ESS Science Executive is acting as a focus for the users' points of view and will guide the project towards the optimal solution for the next generation Neutron Source in Europe.

ESS - Organisation



The CEA in France and the ESS have invited the science communities considering the use of high power proton accelerators to participate in a study on the feasibility and cost-effectiveness of an accelerator design that allows the accelerator to be used simultaneously for a number of different purposes such as 1) a neutron spallation target or targets for neutron scattering, 2) a target station or stations for the production of radioactive beams or neutrinos, and 3) a high power irradiation station or stations for materials irradiation, isotope production and R&D required for developing a demonstrator for transmutation of nuclear waste.

Figure 2: Organisation of the ESS study – the multipurpose facility (MPF) is studied in the framework of CONCERT.

This study (CONCERT) is co-ordinated by a team at CEA in Paris under the leadership of Jean-Louis Laclare, and will explore the feasibility and possible synergies of such a facility compared with a stand-alone solution for the ESS and address issues like reliability, R&D needs, construction and operating costs and compatibility both technically and in the mode of operation required by the different user communities.

At the November 27, 2000, ESS R&D COUNCIL meeting in Florence a resolution was agreed, stating the aims to work for a decision in 2003 in order to build ESS according to a time schedule that results in ESS becoming operational in 2010. The ESS shall be a unique third-generation neutron source with a cost range between 1 and 1.5 G€. For the period until 2003 the main milestones are:

June 2001

Selection of target station option.

Decision on single mission versus multipurpose facility.

End of 2001

Selection of accelerator architecture.

2001-2003

ESS active and clearly visible to scientists and decision makers.

2003

Costed technical proposal ready.

Strong science case. Strong expression user support.

Decision makers ready to receive a proposal and make a decision.

The ESS facility

The ESS facility is based on a full energy linac 1.3 GeV with ~ 100 mA peak current. The short pulses are generated in two compressor rings, situated on top of each other in the same tunnel. The first ring is filled during 0.6 msec after a gap of 0.2 msec the the second ring is filled in 0.6 msec. The two rings are then emptied during a single turn – just over 1 μ sec. The long pulse target station is fed directly from the linac for 2.5 msec. (See fig 3.)

Instrumentation activities

The final goal of the instrument and science groups is to produce instrument suites for the different target stations. In order to reach the June 2001 milestone – deciding on the target option and freezing the ESS neutron parameters – the instrument groups together with the SAC science working groups will elaborate on the task to match the identified scientific challenges in different scientific disciplines with instrument and source concepts. This mainly concerns the selection of optimal pulse structures, power distribution and moderator layouts for the different target stations.

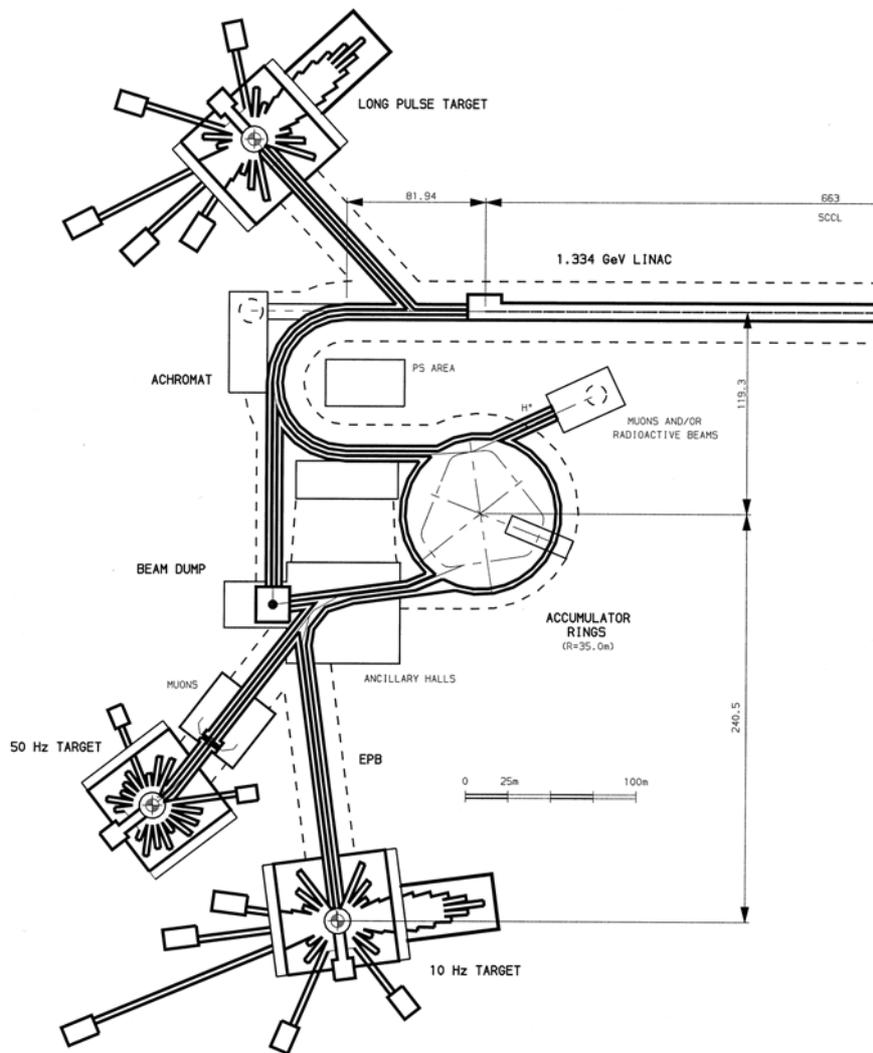


Figure 3: The ESS facility – only two of the three target stations shown will be part of the project.

At present the main issue concerns the performance of a long pulse target station as compared to the low repetition rate short pulse option. The SAC working groups will propose a series of scientific problems from their fields of science to be studied at the ESS. The instrumentation groups will compare the performance of a suite of generic instruments at the 3 different target stations in solving these problems. Comparison will also be made with existing instrumentation in order to access new opportunities and scientific impact.

At a SAC workshop in May 2001, the Science Advisory Group will make its final recommendation on target station options to be presented at the June 2001 ESS R&D Council meeting.

The instrumentation group will also evaluate the potential of ESS for applications other than neutron scattering: fundamental physics, nuclear physics, muon-resonance, radiography, tomography, irradiation, etc. According to the ESS terms of reference, opportunities for these applications should be maintained, without including this set of applications in the optimisation criteria of the basic source parameters or the costing. An informal working party of expert from the various fields concerned will according to their interest be convened to evaluate new opportunities of this kind.

ESS target station activities

The technical limit for flux in a reactor is the ability to cool the core. In a Spallation source the neutron yield - for equal heat deposition - is about 4-6 times higher than for a fission source. In the ESS the Spallation material is Mercury, which is circulated through the target i.e. it is at the same time the coolant. In a short pulse Spallation source the technical limit is given by the shock wave generated on the impact of the proton beam on the target. The estimated upper limit for the acceptable energy of a short pulse is estimated to be 100 kJ/pulse. This means that a 50 Hz and a 10 Hz short pulse target stations at maximum will be able to operate at 5 MW respectively 1 MW. The only way to increase the power of a low frequency target station is to extend the pulses. Extending the pulse to 2.5 msec - with the same current in the accelerator - 5 MW power can be achieved at 16 2/3 Hz. The 3 target stations under study (fig 3) are therefore:

1) a 50 Hz, 5 MW short pulse (1.4 μ s proton pulse) with a time averaged flux \sim ILL and a Peak flux \sim 200 * ILL or 30 * ISIS.

2) a 10 Hz, 1 MW short pulse (1.4 μ s proton pulse) with a time averaged flux \sim 1/10 ILL and a Peak flux \sim 200 * ILL or 30 * ISIS.

3) a 16 2/3 Hz, 5 MW long pulse (2.5 ms proton pulse) with a time averaged flux equal to or better than ILL and a Peak flux \sim 20 or more * ILL or 3 or more * ISIS.

The reason to the addition of 'or more' to the description of the long pulse target station is that the calculations are based on a design, which is not yet optimised for long pulses.

Shortly after the completion of the Technical Study by the end of 1996, it was generally recognized that solid methane moderators could offer dramatic gains in cold neutron flux and pulse shape. Development of Advanced Cold Moderators is hence a key goal in the ESS study. The work will encompass a study of the moderator materials methane hydrate and solid methane and look at pellet production, pellet transport systems plus radiation effects, neutronic performance and scattering kernels of these two materials.

Another topic to be studied is the impact on the target station design and cost of new cold moderator systems, advanced shutter design with in shield neutron optical components, and an optimised reflector design. The long pulse target station albeit similar to the short pulse target station will however require a different design in the target-moderator-reflector region and substantial phase space tailoring of the neutron beams by neutron optical methods and choppers.

The target pressure wave issue will be subject to a theoretical and experimental assessment of the magnitude of the stress problem including an investigation of the onset and possible effect of cavitation in the mercury, the effect of impact on the wall surface and mitigation studies.

All 4 types of candidate structural materials (austenitic and martensitic steels, Ni-based high strength alloy and pure Ta) will be investigated using high energy particle transport (HET) codes and structural mechanics codes, and extensive post-irradiation testing of samples irradiated for doses up to 10 dpa (corresponding to 2 months of full power ESS operation).

The mercury loop design and manufacturing studies will include both computational (thermohydraulics and fluid dynamics), experimental and conceptual work, such as the evaluation of newly developed components, safety considerations (e.g. recovery from spills), manufacturing techniques, remote handling concepts, etc.

ESS accelerator activities

The ESS accelerator follows two routes:

1) The ESS reference design is a follow on to the stand alone normal conducting accelerator presented in volume III of the ESS feasibility study (4). The ring diameter has been increased and the operating frequencies changed from 175, 350, 700 to 280, 560 MHz (6). In addition the feasibility of a superconducting high energy linac and the possibility to accelerate both short and long pulses at the same time is being investigated.

2) The CONCERT multipurpose accelerator. The CONCERT team is developing a superconducting accelerator architecture, which will be able to supply the ESS with both short and long pulses but also be able to support other target stations. (The total power can be up to 25 MW).

One of the main difficulties in the accelerator design is to secure reliability and low beam loss. The beam loss must be below 1 W/m to enable hands on maintenance of the accelerator.

By the end of 2001, the two accelerator projects will be compared for performance and cost, and one of the concepts will be selected for detailed design and inclusion in the final project.

Conclusion

The ESS study is in a very active state, it is important to maintain this momentum and ensure that the entire European neutron scattering community is behind the project and clearly demonstrates this as their first and foremost priority.

In summary:

- The ESS Feasibility has been shown.
- The scientific Excellence established.
- Grass root user support (ENSA) is present.
- Time frame of existing sources (OECD) makes it urgent.
- American/Japanese Challenge will move yet another field of science away from Europe if we do not decide on the ESS now.

The future of neutron scattering in Europe can no longer be solved by national initiatives or programmes. Many European countries will in the future be without a national source and only one third generation source will be build in Europe in the foreseeable future. The ESS project has gained a lot of momentum among scientists and facilities all over Europe, it is therefore very important that not only individual scientists from the CNRS in France, but also CNRS as an organisation formally joins the ESS project.

References

- [1] *ESS, A Next Generation Neutron Source for Europe Vol. I The European Spallation Source* ISBN 090 237 6 500, 090 237 6 551 (1997)
- [2] *ESS, A Next Generation Neutron Source for Europe Vol. II The ESS Scientific case* ISBN 090 237 6 500, 090 237 6 608 (1997)
- [3] *Scientific Prospects for Neutron Scattering with Present and Future Sources*, ESF report ISBN 2-903 148-90-2 (1996)
- [4] *ESS, A Next Generation Neutron Source for Europe Vol. III The ESS Technical Study* ISBN 090 237 6 500, 090 237 6 659 (1997)
- [5] *A twenty years forward look at neutron scattering facilities in the OECD countries and Russia*, Technical report by T. Springer and D. Richter, ESF and OECD ISBN 2-912049-03-2 (1998)
- [6] *Revised Design for the ESS Linac*, I S K Gardner, A Letchford, C Prior, G Rees, J Trotman, J Stovall, A Schempp: ESS-99-94-A (1999)

SESSIONS

INSTRUMENTALES

La première partie de la réunion TRESSES a été consacrée à l'étude des différentes classes d'instruments afin d'évaluer pour quel type d'instruments la source à spallation peut apporter un gain en flux. Cette session était aussi destinée à faire émerger de nouvelles idées d'instruments.

Les rapports qui suivent sont très différents mais reflètent bien la diversité et la richesse des présentations données au cours des différentes sessions.

Les instruments ont été divisés en quatre classes :

- Spectroscopie
- Diffraction
- Petits angles et réflectivité.
- Techniques spécifiques aux sources à spallation

Une session spéciale a été consacrée à la polarisation, l'utilisation de faisceaux polarisés étant à priori moins facile sur une source pulsée que sur un réacteur.

En résumé ...

La source ESS aura un flux moyen équivalent à l'ILL, peut-être supérieur d'un facteur 2 à 3 sur la source à impulsions longues. Le gain minimum envisageable pour un appareil que l'on transplanterait de l'ILL à ESS serait donc celui-ci.

Par contre, le faisceau d'ESS étant pulsé, on peut souvent utiliser tout le spectre en longueurs d'ondes car la sélection des neutrons se fait par temps de vol. Contrairement aux photons, les neutrons ont une vitesse proportionnelle à leur énergie, variant entre 500 et 5000 m/s. On peut donc trier les neutrons en fonction du temps mis pour parcourir la distance cible-détecteur.

Les expériences pouvant pleinement utiliser le faisceau auront donc un gain d'intensité correspondant au rapport de flux entre un faisceau blanc et un faisceau monochromatique, c'est-à-dire de l'ordre de 100 ou plus.

Un avantage des sources pulsées est la résolution en longueur d'onde qui est donnée par la résolution temporelle, excellente sur la source à impulsions courtes. C'est pour cette raison que certains instruments sont montés auprès des réacteurs avec des faisceaux artificiellement pulsés.

Les instruments vraiment adaptés au temps de vol ou nécessitant une haute résolution (comme la diffraction haute résolution ou la mesure des contraintes) auront des gains de l'ordre de 100 ou même plus.

Les instruments comme les petits angles, la réflectivité ou le spin écho qui utilisent seulement une partie du spectre auront des gains entre 10 et 40.

Les instruments comme les trois axes ou la polarimétrie sphérique, mesurant un point de l'espace réciproque ne tirent pas avantage de la structure pulsée et peuvent même être gênés par cette structure.

Enfin, il faut rajouter des gains souvent importants qui peuvent être obtenus à cause de la configuration très différente de la source permettant notamment l'utilisation d'angles solides plus grands. Sur certains instruments, cela peut rajouter un facteur très important (plus de 10) par rapport aux instruments existants.

Il est toujours très difficile de penser au cours de réunions comme TRESSES à des instruments radicalement différents des instruments existants. Cependant de nouvelles idées ont émergé :

- Des idées provenant de la combinaison de différentes techniques: hautes pressions et champ forts, champs très intenses pulsés, RMN pulsés et neutrons...
- De nouveaux concepts d'appareils: Petits angles inélastiques, Réflectivité inélastique, diffraction de surface aux petits angles...

LES TECHNIQUES DE DIFFRACTION

Jacques Schweizer

CEA-Grenoble

Introduction (J. Schweizer)

En 1993, Jacques Winter s'était chargé d'une étude comparative des techniques de diffusion de neutrons sur réacteurs continus et sur sources pulsées. Pour ce faire, il avait comparé les flux, les bruits de fond, les gammes de transfert d'énergie, les gammes de transfert d'impulsion et les géométries des différents instruments. Dans son rapport (décembre 1993), il concluait ainsi:

- Pour une spectroscopie "qualitative" (découvrir les raies, mesurer les positions, voir des séparations), une source pulsée à spallation était tout à fait satisfaisante.
- Pour des expériences "quantitatives" (forme de raies, mesures précises de facteurs de structure), la spallation a de gros progrès à faire.

Mais, disait-il aussi, cette conclusion n'était pas tout à fait honnête car des deux sources qui avaient servi de base pour cette étude, l'ILL fonctionnait depuis 20 ans et ISIS depuis 5 ans seulement. De plus, ajoutait-il, *"les évolutions des sources et des instruments rendront certaines de ces conclusions discutables et peut-être même erronées"*.

D'où tout l'intérêt de cette comparaison, d'abord technique par technique, puis ensuite, thème scientifique par thème scientifique, mise en place sept ans plus tard, par la Société Française de Neutronique.

Dans cette session consacrée à la diffraction, nous avons demandé à des spécialistes de la diffraction, responsables d'instruments soit sur réacteur continu, soit sur source pulsée, de nous décrire l'état actuel de la technique, de nous dire quels sont les

principaux progrès qui ont été réalisés ces dernières années et quels sont les progrès qui restent à faire.

La session a été fragmentée en 7 exposés: 2 exposés sur la diffraction par des poudres (Juan Rodriguez-Carvajal et Paolo Radaelli), 2 exposés sur la diffraction par des monocristaux (Arsen Gukasov et David Keen), 2 exposés sur la diffusion par des systèmes désordonnés, liquides et amorphes (Robert Bellissent et Alan Soper) et pour finir un exposé sur la diffraction sous haute pression (Isabelle Mirebeau).

I- Diffraction sur poudres

I-1 Sources continues

Juan Rodriguez-Carvajal (LLB, CENG) a commencé par rappeler ce que l'on attendait de la diffraction sur poudres:

- Etudes structurales, cristallographie de haute précision dans des environnements complexes: haute pression, haute et basse température, transitions de phase
- Défauts cristallins, diffusion diffuse
- Structures magnétiques, diagrammes de phase magnétiques
- Phénomènes dépendant du temps, diffraction en temps réel

Il a inventorié ensuite les matériaux et les phénomènes sur lesquels portaient la plupart des études actuelles: oxydes de métaux de transition et de terres rares, supraconducteurs à haut T_c , transitions métal-isolant, magnéto-résistance géante, systèmes de basse dimension, hydrogène dans les métaux, composés intermétalliques magnétiques, composés moléculaires et fullerènes, matériaux composites et technologiques: ciments, céramiques, zéolites, catalyseurs, composés pharmaceutiques et biocompatibles, réactions chimiques solide-solide, liquide-solide et gaz-solide, composés magnétiques supermoléculaires, conducteurs ioniques, électrolytes solides, matériaux aperiodiques, quasicristaux, structures modulées, semiconducteurs magnétiques dilués...

Il a ensuite comparé, pour les deux types de diffractomètre à longueur d'onde constante (réacteur continu) et à temps de vol (source pulsée), les résolutions et le traitement des données par analyse de profil.

Pour les instruments à longueur d'onde constante, la résolution est déterminée par les collimateurs et l'arrangement optique du diffractomètre. Le domaine en Q est limité et dépend de la longueur d'onde choisie. Si on veut l'étendre en choisissant de courtes longueurs d'onde (diffractomètre sur source chaude), le gain en Q entraîne une dégradation de la résolution. De toutes façons, il est difficile d'obtenir une bonne résolution sur l'ensemble du domaine en Q avec un seul instrument (voir figure 1). Par contre, le traitement des données est aisé: les corrections des données brutes sont faciles et le modèle de profils (analyse de type Rietveld) simple et facile à mettre en œuvre.

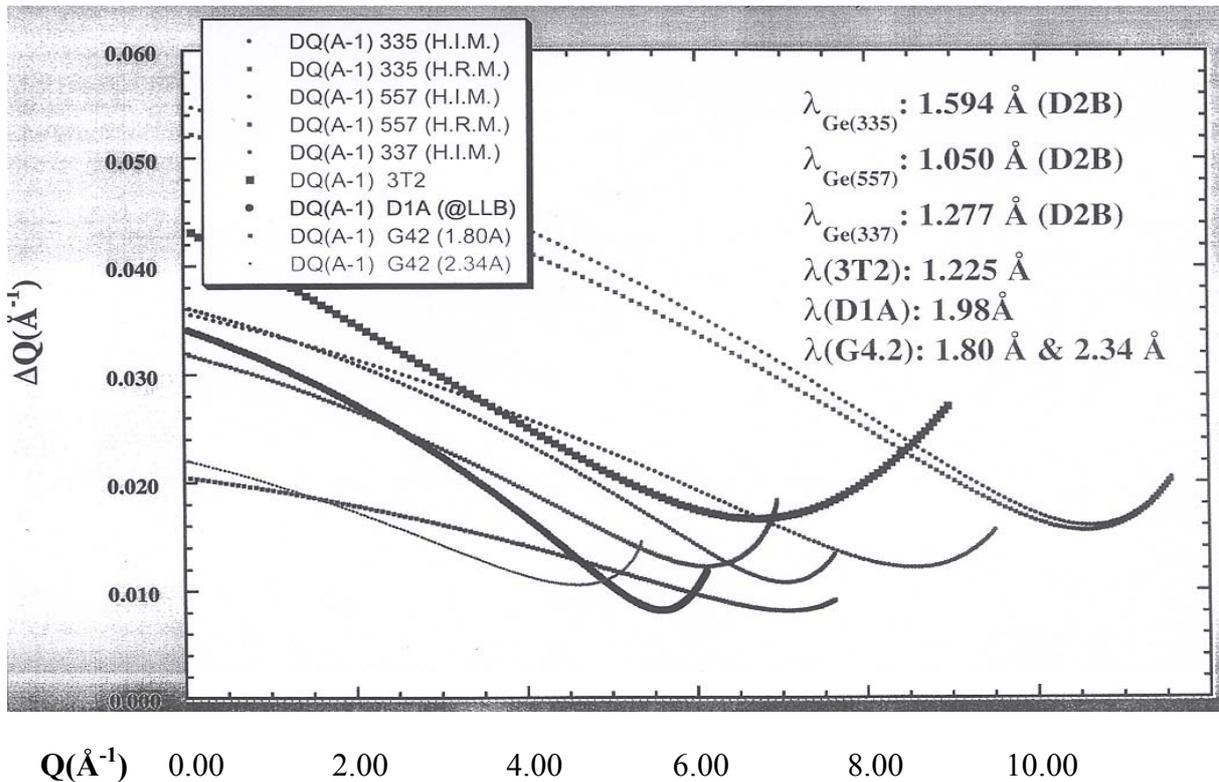


Figure 1: Résolution de différents diffractomètres à poudres (réacteur)

Pour les diffractomètres à temps de vol, la résolution est déterminée par la largeur du pulse et la longueur de vol. On peut obtenir une excellente résolution avec des instruments à grande longueur de vol et il est possible de maintenir cette très bonne

résolution sur tout le domaine en Q en utilisant plusieurs bancs de détecteurs. Par contre, le traitement des données est complexe: les corrections des données brutes sont importantes et les modèles mathématiques pour analyser les profils de raies sont compliqués.

Pour la diffraction sur poudres, il y a intérêt donc à utiliser des diffractomètres à temps de vol avec des pulses courts, combinés à de grandes longueurs de vol pour profiter d'une bonne résolution. On peut faire des mesures pour des transferts de moments plus élevés qu'avec des réacteurs continus (grands Q), bénéficier d'un bruit de fond plus bas et profiter d'une géométrie de diffraction fixe favorable à un environnement de l'échantillon complexe. Enfin, pour les expériences "in situ", il est tout à fait souhaitable de coupler la nature pulsée de la source à la réponse en temps réel de l'échantillon.

La construction de l'ESS permettrait d'aborder des études aujourd'hui infaisables:

- échantillons encore plus petits
- pressions encore plus hautes
- matériaux partiellement hydrogénés
- changements structuraux subtils
- structures magnétiques de composés moléculaires
- cinétiques inférieures à une seconde

I-2 Sources pulsées

Paolo Radaelli (ISIS) décrit ensuite les différents types de diffractomètres à temps de vol qui existent ou qui sont en construction à ISIS.

Il commence par indiquer qu'un pulse trop long (2.5 msec) ne convient pas pour la diffraction sur poudres, mais qu'il faut le raccourcir et le remettre en forme triangulaire. Pour cela on intercale un chopper entre le modérateur et l'échantillon. Une telle solution permettrait d'utiliser les neutrons froids de la source à pulses longs.

Il explique ensuite que la largeur de la bande de longueurs d'onde et la longueur de vol sont contraints par la fréquence de répétition de la source pour éviter les recouvrements de neutrons de pulse à pulse (les neutrons rapides du deuxième pulse rattrapant les neutrons lents du premier pulse).

Il classe ensuite les instruments existants en fonction de leur largeur de bande. Il y a d'abord les instruments à large bande de longueurs d'onde (WBW) comme Polaris ou Osiris. Ces instruments donnent une résolution bonne et constante sur une grande gamme de d . Ils donnent des diagrammes uniques comme le montre la figure 2. Cependant ils sont difficiles à calibrer et à optimiser.

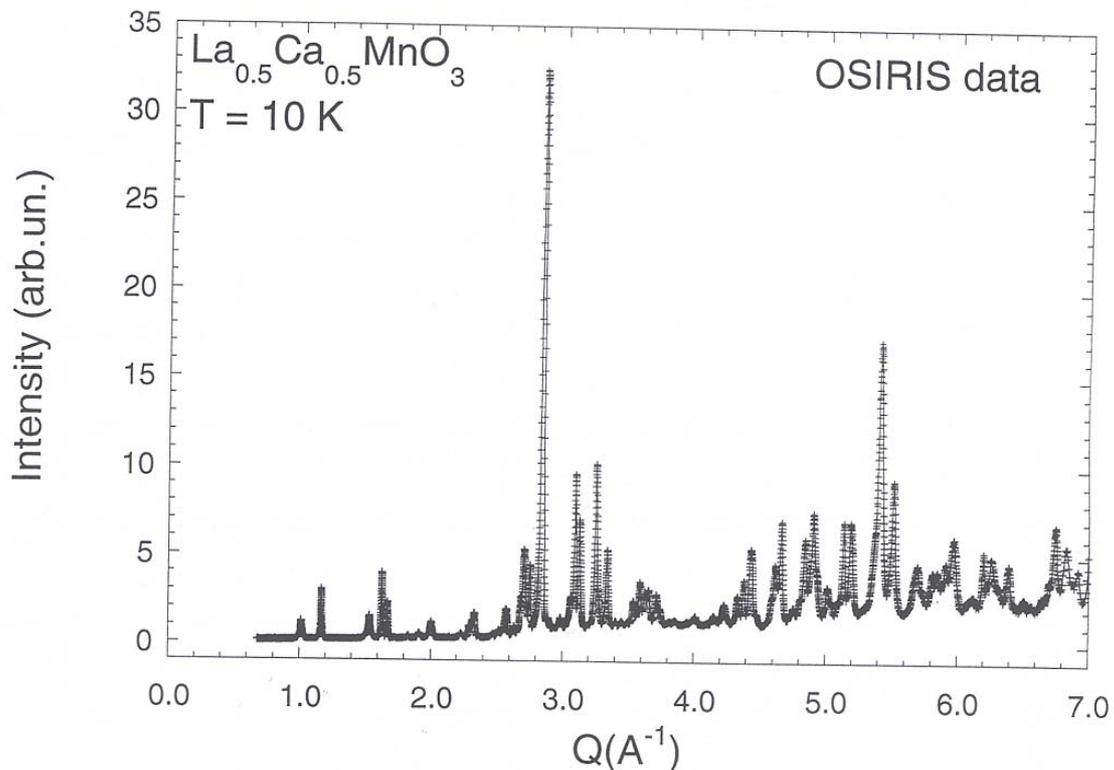


Figure 2: Diagramme de poudre obtenu sur OSIRIS (instrument à large bande (WBW))

Il y a ensuite les instruments à plusieurs bancs de détecteurs comme GEM avec, pour chacun des détecteurs, une étroite bande de longueurs d'onde (NBW). Ces instruments sont à la fois très précis et très rapides. Ils ont une excellente résolution, équivalente à celle du synchrotron et couvrent une gamme très étendue de d . Leur principal

inconvenient est de présenter les données sur des diagrammes séparés (voir figure 3) et posent des problèmes d'indexation.

Enfin, les concepts futurs correspondent à une distribution continue de détecteurs. On pourra les faire travailler soit sur le mode NBW soit sur le mode WBW en considérant de pseudo bancs de détecteurs. De tels instruments seront adaptés pour les pulses courts, pour les pulses longs et pour les réacteurs continus.

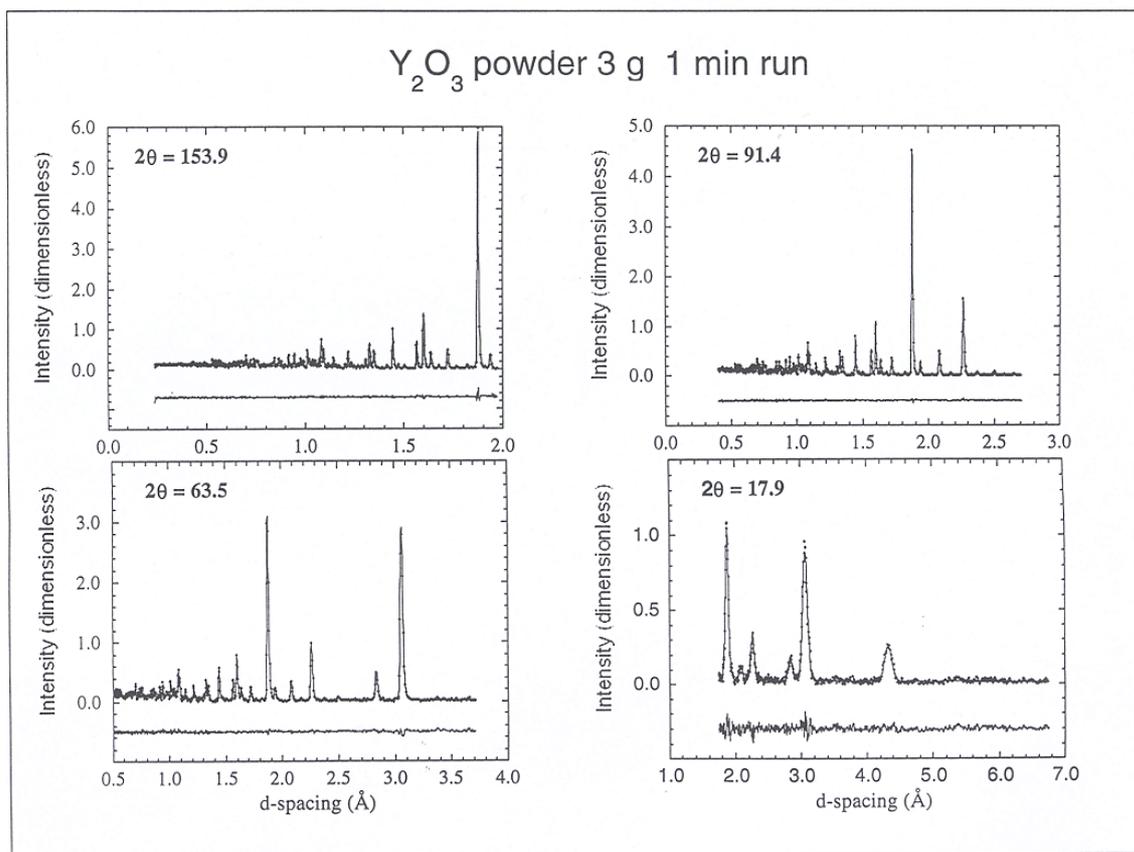


Figure 3: Différents diagrammes de poudre obtenus sur GEM (instrument à bandes étroites (NBW))

Pour finir, Radaelli compare les figures de mérite d'instruments de diffraction sur poudres à l'ESS avec celles de D20. La résolution sera meilleure sur toute la gamme de d et, selon le critère choisi, l'intensité sera meilleure de un ou de deux ordres de grandeur.

II- Diffractométrie sur monocristaux

II-1 Sources continues

Arsen Gukasov (LLB) décrit ensuite les différents types de diffractomètres à monocristaux existant sur réacteur continu.

Un diffractomètre se caractérise par sa vitesse d'acquisition des données, sa résolution qui doit être adaptée au problème traité et la qualité des données mesurées: bruit de fond, corrections, normalisation, erreurs internes. Il classe les diffractomètres de la façon suivante:

- Diffractomètres 4-cercles comme D9, D10 à l'ILL, 6T2, 5C2 à LLB.

Ces appareils produisent des données de bonne qualité et ont un faible bruit de fond.

- Diffractomètres à bras levant comme D15 et D22 à l'ILL ou 6T2 à LLB. Ces appareils, aussi à bas bruit de fond sont bien adaptés pour des environnements d'échantillon sophistiqués, permettant des mesures sous pression, sous champ fort ou à très basse température.

- Diffractomètre quasi Laue comme LADI à l'ILL. Cet appareil se caractérise par une très grande vitesse d'acquisition.

Il examine la résolution des diffractomètres à monocristaux. Comme pour les diffractomètres à poudres, c'est une fonction de l'angle de Bragg θ et dépend beaucoup de l'angle de Bragg du monochromateur θ_M . Il rappelle, que suite aux travaux de Cagliotti dans les années 60, il a été compris que la courbe de résolution pour les appareils à monocristaux (omega scan) passe par un minimum pour un angle θ_{\min} deux fois plus grand que l'angle θ_{\min} de la courbe de résolution des poudres (voir figure 4). Il est donc relativement aisé de construire un appareil à monocristaux ayant une résolution qui reste du même ordre de grandeur dans tout le domaine angulaire.

Il insiste sur le fait que, comparé au problème des poudres où la résolution joue un rôle essentiel, ce n'est pas le cas pour les monocristaux. La vitesse d'acquisition, donc la luminosité de l'appareil, est un paramètre beaucoup plus important

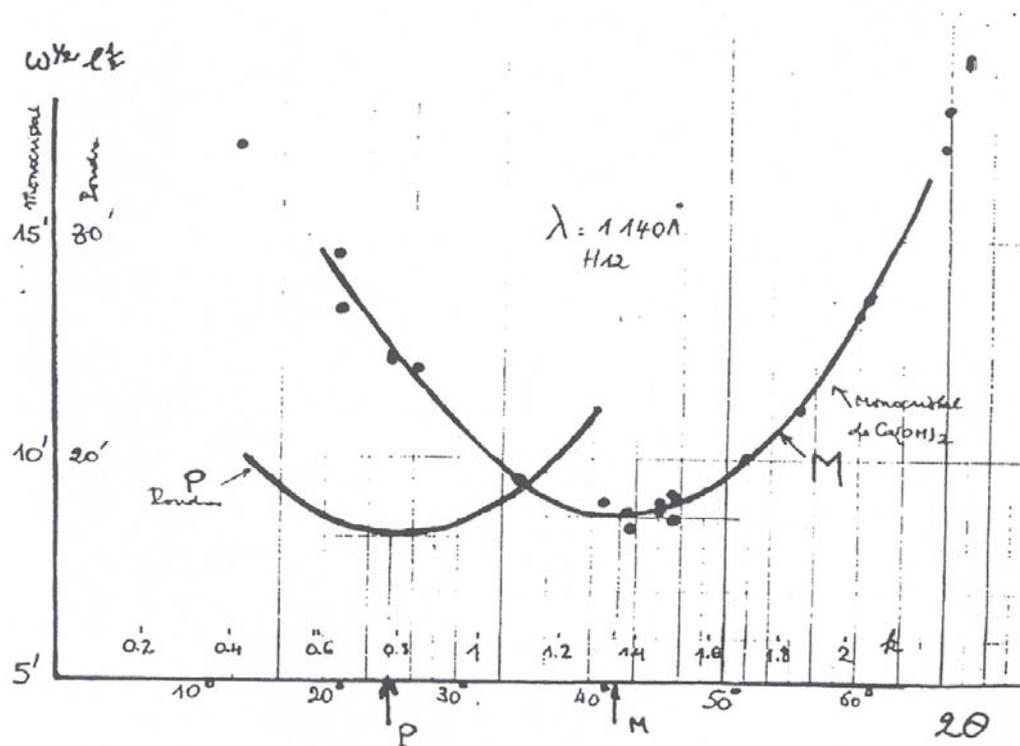


Figure 4: Comparaison entre les courbes de résolution d'un diffractomètre à poudres et d'un diffractomètre à monocristaux (réacteur)

Pour l'ESS, où la résolution naturelle est trop bonne a priori, il y aurait intérêt à élargir le pulse en piégeant le plus longtemps possible les neutrons dans l'ensemble modérateur-réacteur, à focaliser les faisceaux pour augmenter la vitesse d'acquisition et à installer des collimateurs radiaux pour abaisser le bruit de fond.

II-2 Sources pulsées

David Keen (ISIS) présente le diffractomètre à monocristaux SXD installé sur la source pulsée ISIS.

Il s'agit d'un appareil de diffraction de type Laue, à temps de vol. Il fonctionne avec des angles 2θ compris entre 15° et 165° , pour des longueurs d'onde comprises entre 0.15 \AA et 10 \AA . Onze détecteurs sont installés dans le plan équatorial et en dessous, de

façon à couvrir 50% de l'angle solide. Chaque détecteur est un détecteur à deux dimension de 64 X 64 pixels, chaque pixel ayant une taille de 3 X 3 mm² (voir figure 5).

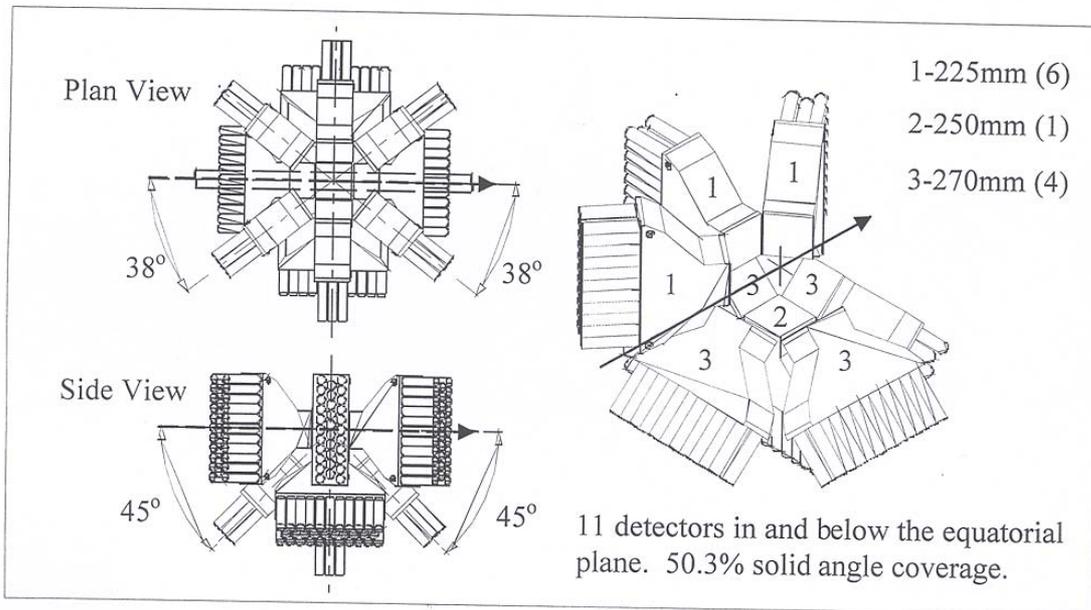


Figure 5: Schéma des détecteurs du diffractomètre à monocristaux SXD à ISIS

Une collecte de données consiste en un certain nombre d'enregistrements, chaque enregistrement correspondant au cristal échantillon fixe et aux détecteurs fixes. Ensuite le cristal est tourné autour de l'axe vertical et d'autres enregistrements sont pris.

Les avantages de cette méthode tiennent surtout à la vitesse d'acquisition élevée. Celle-ci permet d'étudier de tout petits monocristaux, presque de la taille de échantillons de rayons X. Elle permet aussi de faire des études en fonction de la température et d'essayer de résoudre des structures de grande dimension.

Les données sont recueillies pour quelques positionnements seulement de l'échantillon, ce qui permet de placer celui-ci dans un environnement sophistiqué (hautes pressions par exemple).

Le fait d'avoir une couverture continue dans le réseau réciproque permet d'enregistrer la diffusion diffuse, de séparer le pics de Bragg et de suivre les transitions de phase.

Les inconvénients de la méthode tiennent surtout au flux limité qui existe actuellement sur SXD et au fait que les corrections à apporter aux intensités mesurées sont complexes. Complexes mais pas impossibles à améliorer!

Il donne enfin quelques exemples d'études structurales en fonction de la température ou de la pression. Il indique qu'une collecte de 12 heures sur l'ancien SXD se ramène à 2 heures sur le nouvel SXD et qu'une telle collecte ne prendra que 4 minutes sur ESS.

Pour l'avenir, il voit une optique focalisante pour augmenter le flux, un effort pour augmenter le flux à bas Q et une meilleure résolution. Du point de vue des axes de recherche, il pense au magnétisme et aux systèmes biologiques.

III- Diffusion par des systèmes désordonnés

III-1 Sources continues

Robert Bellissent (LLB-CENG) expose la problématique de la diffusion des neutrons par les systèmes désordonnés sur les sources continues. Cette méthode consiste d'abord à déduire des mesures le facteur de structure statique $S(Q)$ et ensuite, par transformée de Fourier, à obtenir la fonction de corrélation de paires $g(r)$.

$S(Q)$ correspond à l'intégration sur toutes les énergies de $S(Q,\omega)$. La mesure, qui ne correspond qu'à une intégration partielle sur les énergies, sera d'autant plus juste que l'énergie des neutrons incidents est élevée, c'est la meilleure façon de minimiser les corrections d'inélasticité, dites corrections de Placzek.

Pour la transformée de Fourier, celle-ci sera d'autant plus juste qu'elle maximisera la gamme de vecteurs de diffusion Q , et aussi, que les mesures aux grands vecteurs Q seront plus précises.

Les instruments destinés aux études d'ordre local dans les liquides et amorphes seront donc installés sur source chaude pour atteindre les grands vecteurs Q , et pourvus de multidétecteurs afin de pouvoir effectuer des comptages conséquents.

Il décrit ensuite les deux instruments existant en France sur réacteur continu.

7C2 au LLB est installé sur une source chaude (température 1400 K). Il est composé d'un multidétecteur linéaire de 640 cellules qui couvre un angle de 128° par pas de 0.2° . Ce multidétecteur reste fixe, tout le spectre est obtenu en une mesure. La longueur d'onde est 0.7 \AA , ce qui donne une efficacité de 17% pour le détecteur. Les facteurs de structure sont mesurés typiquement avec une précision relative de 10^{-3} . Un exemple de mesure est donné sur la figure 6. Les variations observées sur les spectres du soufre liquide entre 125° et 300° confirment que la transition de polymérisation observée à 160 K correspond au passage d'anneaux S_8 à des chaînes gaussiennes d'atomes.

Un projet existe pour remplacer le multidétecteur linéaire par 15 multidétecteurs XY installés en quinconce, ce qui devrait augmenter l'angle solide, l'efficacité générale de l'instrument et réduire d'un ordre de grandeur le rapport signal sur bruit.

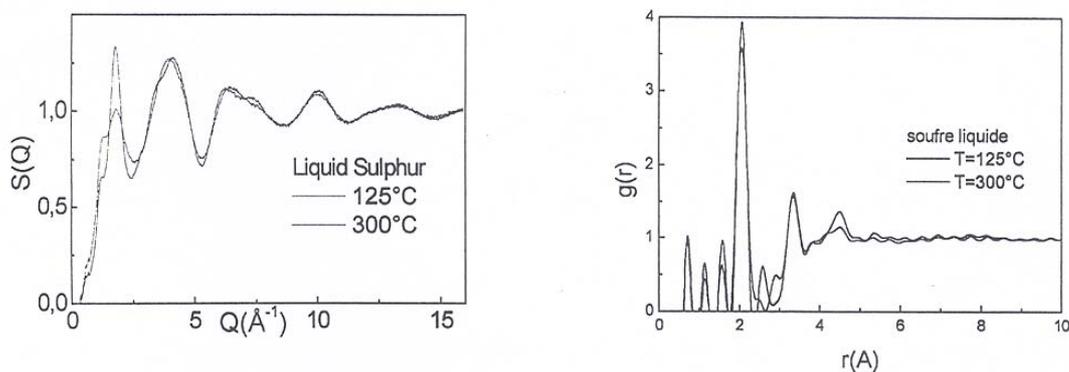


Figure 6: La transition de polymérisation du soufre liquide. La variation d'intensité du pic à 4.7 \AA de $g(r)$ montre le passage d'anneaux S_8 à des chaînes gaussiennes

D4b à l'ILL est installé sur la source chaude (température 2000K). Il est composé de deux multidétecteurs linéaires de 128 cellules. Le premier couvre 12° par pas de 0.1° , le deuxième couvre 25° par pas de 0.2° . La longueur d'onde est variable entre 0.35 \AA et 1.10 \AA . A 0.7 \AA , l'efficacité des détecteurs est de 90%. Les mesures de $S(Q)$ se font habituellement avec une précision relative de 10^{-4} . La figure 7 montre la mesure sur D4b, à différentes températures, du facteur de structure de $Al_{72}Pd_{21}Mn_7$, liquide précurseur de

quasicristaux. Les oscillations à grands vecteurs Q de $S(Q)$ conservent leurs positions à haute température, ce qui indique la conservation d'un certain degré d'ordre icosaédrique.

Avec la longueur d'onde continûment variable de D4b, il est en principe possible d'y réaliser des expériences de diffusion anormale. L'augmentation du flux sur D4c devrait ouvrir ce nouveau champ d'expériences. En effet, le nouveau D4c a fait passer le nombre de détecteurs de 2 à 9 avec augmentation de l'angle solide total et de l'efficacité générale de l'instrument.

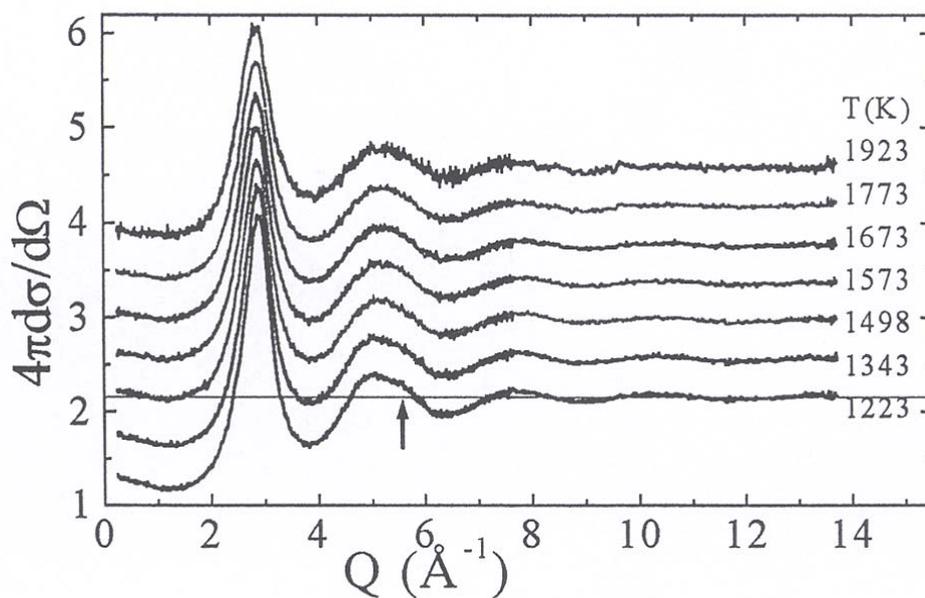


Figure 7: Liquide de $Al_{72}Pd_{21}Mn_7$ précurseur de quasicristal: les oscillations à grands Q conservent leur position jusqu'à 1923K. Un certain degré d'ordre icosaédrique subsiste à haute température

Avec ESS, les améliorations seront bénéfiques pour deux raisons:

- la possibilité d'atteindre de très grands vecteurs de diffusion représente un gain essentiel pour améliorer les transformées de Fourier et minimiser les effets inélastiques.
- la possibilité de construire des environnements d'échantillon sophistiqués grâce à la géométrie de la diffusion avec des sources pulsées.

III-2 Sources pulsées

Alan Soper (ISIS) donne le point de vue d'un utilisateur de sources pulsées pour la diffusion par les matériaux désordonnés.

Il commence par donner la liste des problèmes les plus étudiés en ce moment: liquides complexes, fluides surfondus, polymères conducteurs, électrolytes à température ambiante, transition vitreuse, transitions de phase liquide-liquide. Des études fondamentales portent sur les potentiels intermoléculaires et en particulier sur les queues de ces fonctions. Les expériences concernent souvent de petits effets ou de petits échantillons.

Sans les décrire en détails, il indique que deux instruments sont utilisés à ISIS pour les liquides et les amorphes: le diffractomètre SANDALS et le diffractomètre GEM (figure 8).

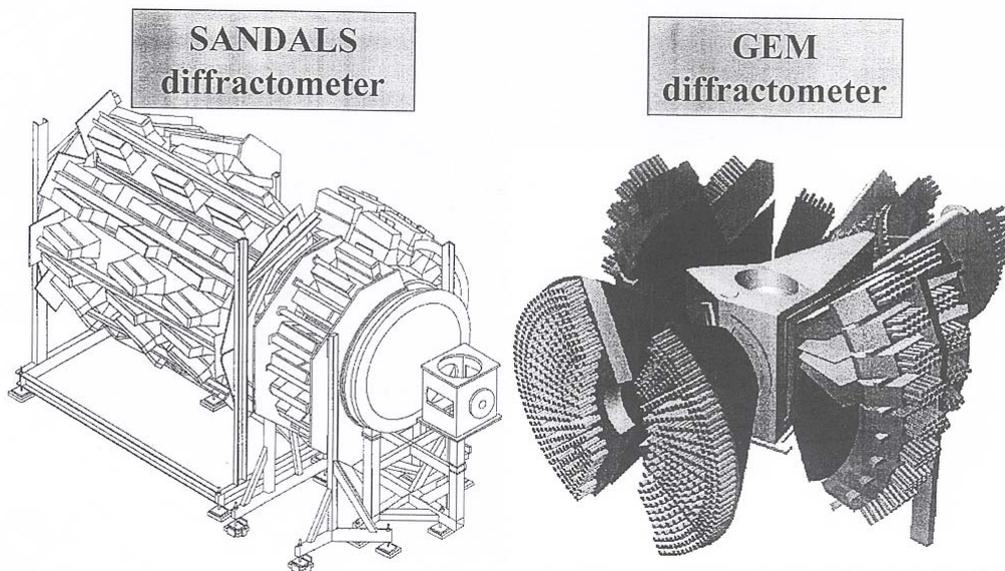


Figure 8: Schéma des deux diffractomètres SANDALS et GEM à ISIS

Il fait la liste des caractéristiques que doivent présenter les instruments pour être bien adaptés. Une large gamme de vecteurs de diffusion Q : entre 0.01 et 60 \AA^{-1} , une bonne résolution en Q pouvant atteindre 0.5% en $\Delta Q/Q$, un grand taux de comptage pour

l'ensemble de la gamme en Q , un bruit de fond minimisé par des collimateurs bien placés, des détecteurs stables, un changement d'échantillon rapide, des outils de traitement de données bien adaptés (et ils sont sophistiqués) et des corrections d'inélasticité pas trop élevées pour être maîtrisées.

En ce qui concerne ces corrections d'inélasticité, il rappelle qu'elles dépendent de l'angle de diffusion 2θ et que, pour les réduire, il faut limiter cet angle et utiliser une grande longueur de vol ce qui diminue la divergence du faisceau.

Il propose enfin ce que serait un diffractomètre idéal pour les études de liquides et amorphes à l'ESS: une longueur de vol de 20 à 25 mètres, une vue directe du modérateur avec la possibilité d'un guide focalisant pour les études à faibles Q , un modérateur à eau pour la cible à haute fréquence et un modérateur à hydrogène liquide pour la cible à basse fréquence, une excellente collimation et des pulses étroits avec un $\Delta t/t$ inférieur à 1%, des pulses plus longs allant à l'encontre des buts recherchés.

IV- Diffraction sous hautes pressions

Pour finir, Isabelle Mirebeau (LLB) fait une description des expériences de diffraction sous hautes pressions sur réacteurs et sur sources pulsées.

Elle commence par décrire les cellules de pression telles qu'elles ont été développées à l'Institut Kurchatov (voir figure 9): enclumes de saphir (pression maximum 10 GPa) ou de diamant (pression maximum 50 GPa), large ouverture (80°), encombrement réduit compatible avec les cryostats et les cryoaimants. Les volumes des échantillons sont petits: de 1 à 0.1 mm^3 pour les cellules saphir, jusqu'à 10^{-3} mm^3 pour les cellules diamant à très haute pression. Un instrument spécifique, G61 a été optimisé à LLB pour les études avec ces cellules avec une focalisation du faisceau par des supermiroirs et une très forte réduction du bruit de fond. Les études entreprises concernent le magnétisme et les systèmes mésoscopiques.

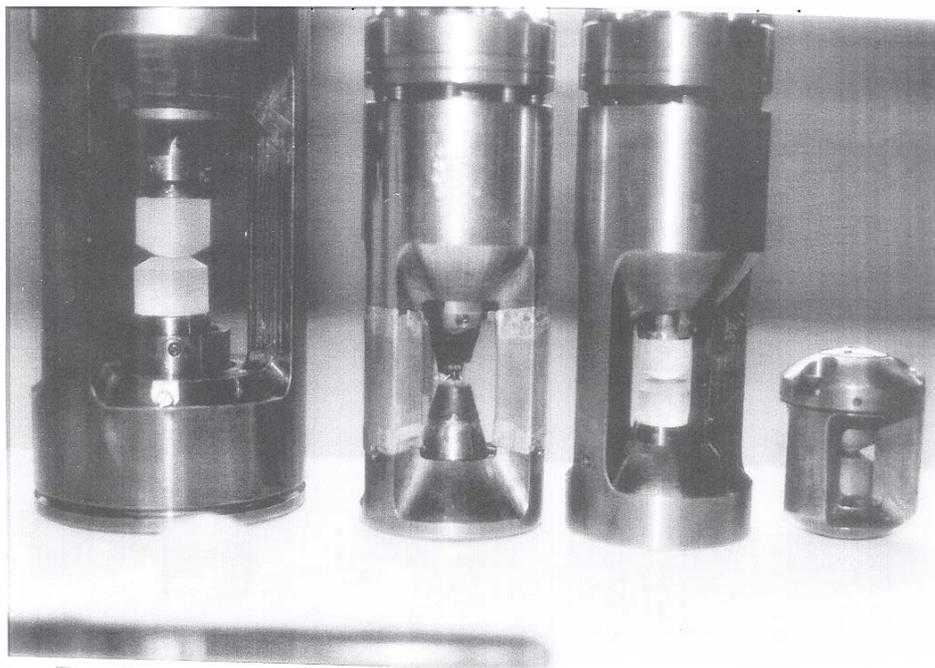


Figure 9: Cellules de pression du type "Institut Kurchatov"

La figure 10 représente un exemple où le pic caractéristique de nanotubes de carbone, pour une organisation en faisceaux de ces tubes, évolue sous pression et évolue de façon anisotrope selon que ces tubes sont horizontaux ou verticaux.

Elle décrit ensuite les cellules développées à Paris et Edimbourg. Ce sont de grosses cellules (20-30 cm, 50 kgs) à 4 colonnes. Elles sont trop grosses pour entrer dans les cryostats habituels: elles fonctionnent essentiellement à température ambiante, à haute température jusqu'à 1200 K et peuvent éventuellement descendre à 100 K. . Elles utilisent des enclumes en carbure de tungstène (pression maximum 10 GPa) ou en diamants synthétiques (jusqu'à 25-30 GPa). Le volume d'échantillon est beaucoup plus élevé que précédemment: 100 mm³ jusqu'à 10 GPa, 35 mm³ jusqu'à 30 GPa. Elles sont très bien adaptées pour les sources pulsées avec un angle 2θ de 90°, et donnent dans ces conditions un bruit de fond très bas. Elles ont servi essentiellement à des études structurales sur poudres, mais aussi, sur le réacteur LLB à la diffusion inélastique sur monocristaux.

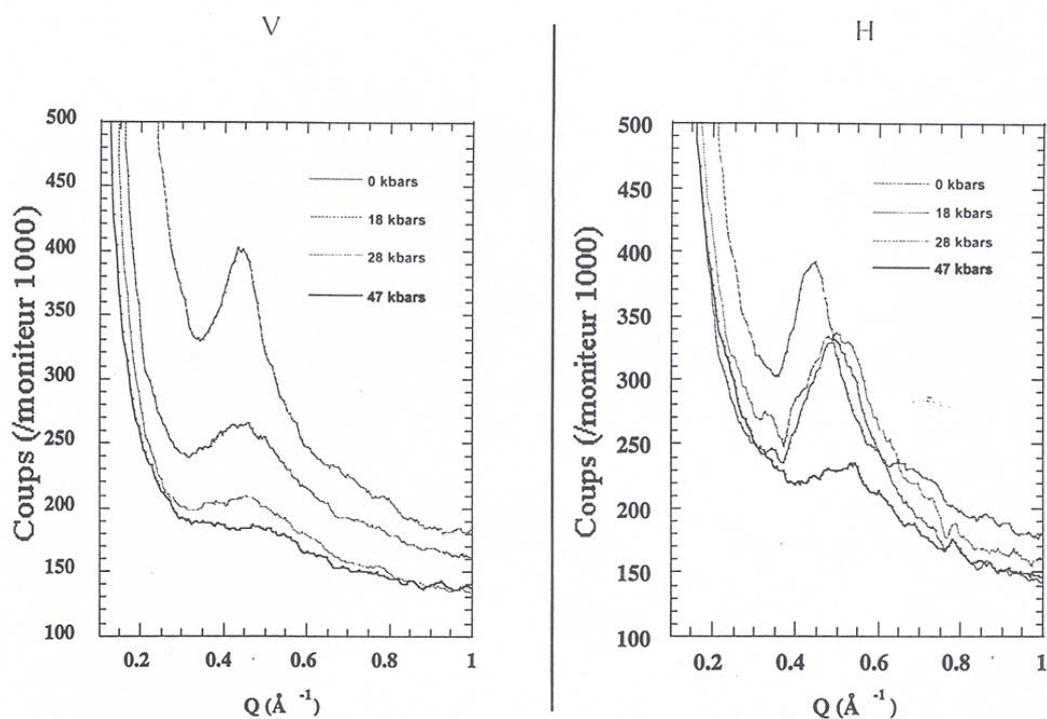
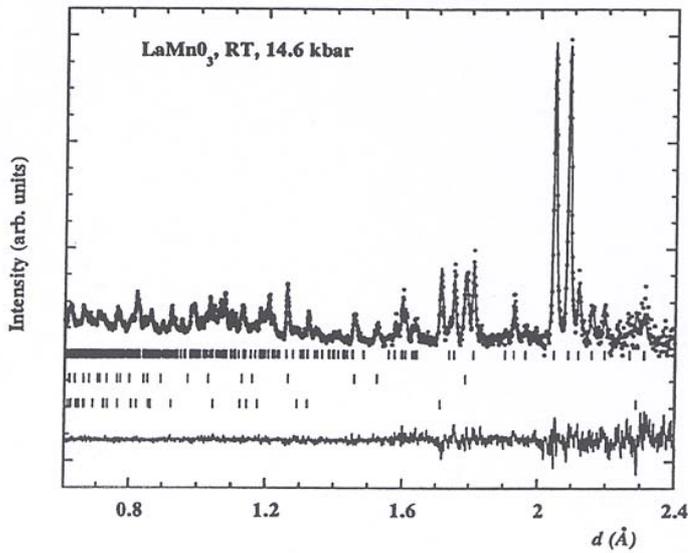


Figure 10: Diffusion anisotrope par un "fagot" de nanotubes de carbone sous pression. Le fagot est successivement vertical (V) puis horizontal (H)

La figure 11 montre, pour un même composé LaMnO_3 sous pression, l'étude structurale faite avec une cellule de ce type à ISIS (diffractomètre POLARIS) et l'étude magnétique faite à LLB (diffractomètre G61) avec une cellule de type Kurchatov.

En ce qui concerne l'ESS, il est clair qu'une source pulsée comme celle-là sera très bien adaptée aux études structurales. La source plus puissantes permettra de nouveaux types d'expériences: synthèse in situ sous pression ou cinétiques sous pression. Pour le magnétisme, où les informations se trouvent surtout à petits vecteurs de diffusion, il est tout à fait nécessaire d'étudier un diffractomètre à poudres à petits Q , optimisé pour les tout petits échantillons, avec un bruit de fond très bas, afin de retrouver les mêmes performances instrumentales que l'on a optimisées pour le réacteur LLB.



Une étude
structurale sur
ISIS (Polaris)

$P_{\text{max}}=8\text{GPa}$,
 T_{amb}

...e t
magnétique au
LLB (G61)

$P_{\text{max}}=13\text{GPa}$,

$1.5 < T < 150\text{K}$

vol 0.01mm^3

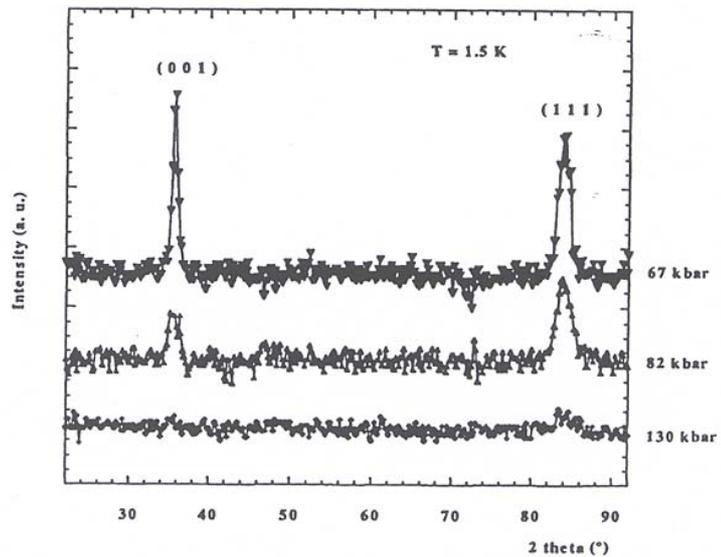


Figure 11: LaMnO₃: une étude structurale sur POLARIS (ISIS) et une étude magnétique sous pression sur G61 (LLB).

Réflectivité et diffusion de neutrons aux petits angles.

Claude Fermon

Laboratoire Léon Brillouin

Gif-sur-Yvette

La réflectivité comme la diffusion aux petits angles utilisent, sur les réacteurs des faisceaux de grandes longueurs d'onde et mesure l'intensité diffusée autour du faisceau direct. L'utilisation de sources pulsées peut apparaître à priori comme un handicap pour ces deux techniques. Pourtant, même sur un réacteur, la réflectivité se fait souvent en pulsant le faisceau incident (D17 à l'ILL ou EROS au LLB) avec des pertes d'intensité assez faibles par rapport à un appareil monochromatique. La diffusion aux petits angles, elles, n'utilise pas de faisceaux pulsés sur des réacteurs. Le seul exemple de diffusion aux petits angles pulsé est l'appareil lowQ sur ISIS.

I- Demande nationale

I-1 Diffusion de neutrons aux petits angles

Actuellement, 6 appareils aux petits angles sont installés entre le LLB et L'ILL : D11, D22 à l'ILL, Paxy, Paxe, Pace, Papol au LLB. 5 sont programmés pleinement et 1, PAPOL est réservé aux développements de variation de contraste par polarisation dynamique.

La demande de ce type de mesure ne présente pas de décroissance en fonction des années et on peut prévoir un maintien de la demande avec une augmentation pour certains aspects spécifiques aux neutrons : magnétisme, conformation de macromolécules par variation de contraste.

I-2 Réflectivité

La réflectivité est dans une position très différente. C'est une technique récente, 10 ans pour les liquides, 7 ans pour les couches minces magnétiques et en constante évolution. On a donc assisté à une forte augmentation de la demande, notamment en magnétisme, avec une saturation actuelle, principalement due à la nécessité d'une maturation de l'analyse des données.

La construction récente de plusieurs réflectomètres en Europe et le démarrage bientôt de D17 à l'ILL devrait permettre de structurer une communauté à même d'utiliser pleinement cette nouvelle technique.

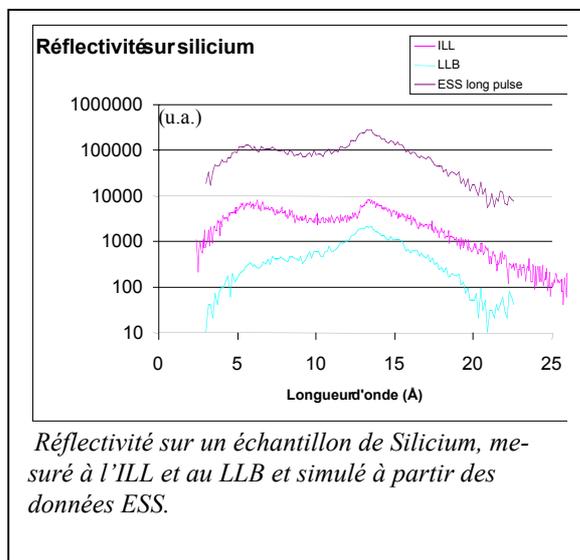
Il semble donc raisonnable, dans un projet comme l'ESS d'envisager la construction d'au moins une ligne petits angles et d'une ligne réflectivité.

II- Comment travailler en faisceau pulsé ? quel sera le gain ?

Pour ces techniques, l'essentiel de l'information dépend du vecteur de diffusion \mathbf{q} , relié à l'angle de diffusion et à la longueur d'onde par :

$$q = \frac{4\pi}{\lambda} \sin(\theta)$$

Sur un réacteur, on travaillera à longueur d'onde λ constante et l'information $I(\mathbf{q})$ sera obtenue par la dépendance en angle θ . La perte, sur un réacteur provient de la monochromatisation du faisceau.



Dans le cas d'un faisceau pulsé, il sera possible d'utiliser un large spectre de longueurs d'ondes, la sélection d'énergie se faisant par temps de vol. Pratiquement, 30 à 50% du faisceau total est utilisable. Le reste correspond à des longueurs d'ondes trop petites pour être intéressantes. On obtient

alors pour chaque angle θ , un spectre en λ qu'il faut recombinaison pour utiliser tous les neutrons.

A flux de source égal, le gain vient donc d'une utilisation plus large des longueurs d'onde.

Par rapport à l'ILL, le gain pour une diffusion aux petits angles serait d'environ 10. Le gain sera plus important pour les petits objets (petites longueurs d'ondes) que pour les très gros.

Pour la réflectivité, le gain sera nettement plus important car on peut utiliser une plage de longueurs d'ondes plus grande. Typiquement un gain d'un facteur 30 à 100 est attendu par rapport à l'ILL

III- Short pulse, long pulse?

Il serait trop long de développer ici les simulations et calculs fait pour déterminer la meilleure configuration possible pour les expériences de réflectivité et de diffusion aux petits angles.

Il apparaît que le meilleur gain en flux et en flexibilité sera d'utiliser une source froide avec un modérateur couplé et des pulses longs.

Pour la réflectivité comme pour la diffusion aux petits angles, un ou plusieurs choppers additionnels seront nécessaires pour assurer un non recouvrement des longueurs d'ondes et un bruit de fond bas.

IV- Pourra-t-on réaliser sur ESS les expériences courantes ?

IV-1 Diffusion de neutrons aux petits angles

Pratiquement, toutes les expériences réalisées à l'ILL pourront se faire sur ESS. L'ultra small angle scattering (USANS), qui sert à visualiser de très gros objets (μm ou plus) se fait actuellement en utilisant un double cristal. L'application de cette technique sur une source pulsée reste à étudier.

IV-2 Réflectivité

Les expériences de réflectivité utilisent déjà des faisceaux artificiellement pulsés. Il n'y a donc pas de problèmes pour réaliser les expériences courantes. Deux types d'expériences sont un peu plus compliquées : les expériences avec analyse de polarisation car il est plus difficile de bien analyser un faisceau blanc et les expériences de diffusion hors spéculaire car les trajectoires en temps de vol ne sont pas symétrique en vecteur de diffusion dans le plan.

IV-3 Contraintes techniques

Dans ces deux cas le monitoring du faisceau direct en temps de vol avant et après l'échantillon apparaît crucial. Ceci implique le développement d'atténuateurs précis et ne diffusant pas aux petits angles. L'analyse de polarisation sur faisceau pulsé en réflectivité est en train d'être installée sur D17 à l'ILL et ne devrait pas poser de problèmes à l'échéance de la construction d'ESS.

V- Quelles nouvelles expériences réaliser ?

V-1 Diffusion de neutrons aux petits angles

Une source pulsée permettrait de réaliser des expériences nettement mieux résolues. En effet, la résolution des expériences aux petits angles est donnée par le $\Delta\lambda$ utilisé, typiquement 10% alors que sur une source pulsée, il sera de l'ordre de 1-3% sans perte de flux. Ce gain en résolution permet de mieux définir les distributions de tailles d'objets étudiés.

Le deuxième type de mesure envisagé est les mesures où le système varie en fonction du temps. La limite de résolution en temps est donnée par la largeur du pulse de départ.

La combinaison du temps de vol avec des détecteurs bidimensionnels permettrait de traiter les effets inélastiques aux petits angles apportant ainsi de nouvelles informations sur la nature des systèmes observés.

Enfin, un type d'expérience qui paraît envisageable et très prometteur est de combiner la RMN pulsée avec les neutrons afin de modifier le contraste in-situ en jouant sur l'orientation de la polarisation des spin nucléaires. Ceci serait particulièrement utile pour la détermination de structures en biologie. On pourrait ainsi combiner une information structurale (distance entre atomes) avec une information chimique (déplacement de la raie des protons sélectionnés) pour des distances beaucoup plus grandes que celles accessibles par des expériences de RMN multidimensionnelles.

V-2 Réflectivité

Les expériences qui pourront être développées pour les surfaces découlent principalement de l'augmentation de flux.

Ainsi, comme cela se fait sur les synchrotrons, les expériences hors spéculaires et de diffraction de surface qui permettent de sonder les fluctuations latérales dans les surfaces pourront se développer. On peut s'attendre à des résultats nouveaux notamment dans le domaine du magnétisme.

Le deuxième type d'expérience est la diffusion inélastique qui permettra d'avoir accès à la dynamique, phonons, ondes de spin, ondes de surface... pour des couches minces. Il existe à l'heure actuelle très peu de techniques permettant d'avoir accès aux courbes de dispersion des excitations de surfaces.

Diffusion inélastique des neutrons

Chairman : José Dianoux (ILL – Grenoble)

I- La spectrométrie sur monocristaux (B. Hennion - LLB Saclay)

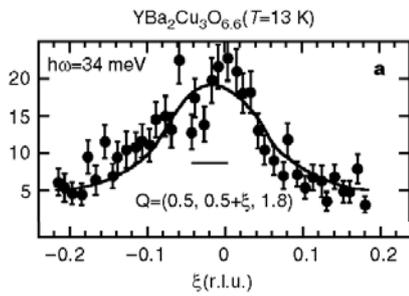
L'étude des propriétés dynamiques des systèmes présentant de fortes corrélations spatiales impose une mesure précise de la dépendance en $q=Q-\tau$ des caractéristiques des excitations, leur énergie ω et leur amortissement. C'est le cas pour l'étude des courbes de dispersion des excitations collectives (phonons ou magnons), qui permettent soit la détermination de paramètres microscopiques associés à un modèle décrivant la dynamique du système (dynamique de réseau ou dynamique de spins), soit la confrontation à un calcul *ab initio*. L'objectif des mesures est dans ce cas l'obtention d'un ensemble de points (q,ω) suffisant pour l'affinement d'un modèle ou la validation d'un calcul.

Dans de nombreux cas, c'est le mécanisme microscopique responsable des propriétés du système étudié qui est l'objectif scientifique des mesures. On peut citer : l'étude des phénomènes prétransitionnels, les recherches de couplage électron-phonon ou spin-réseau, les excitations spécifiques de phases particulières (ex : phason et amplitudon des phases incommensurables), la résonance magnétique dans les supraconducteurs à haute température critique, etc.... La mesure consiste alors à suivre l'évolution d'une partie restreinte en (q,ω) de la dynamique en fonction d'un paramètre extérieur (température, pression, champ magnétique, ...), la position et l'amortissement en fonction de q devant être obtenus avec précision.

En conséquence, suivant l'objectif scientifique, on passera d'une mesure ponctuelle (exemple : intensité du pic de résonance en fonction de la température dans YBaCuO pour mettre en évidence sa relation à la température critique) à une mesure

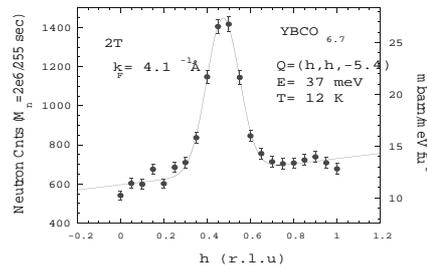
linéaire (détermination de courbes de dispersion) ou à une mesure de surface (mapping de l'intensité dans les systèmes magnétiques de basse dimensionalité), comme illustré ci-dessous. L'évaluation des performances de l'ESS pour ce type de mesure passe donc par l'estimation de l'intensité obtenue en un point de mesure ($\Delta q, \Delta \omega$), extrapolée des données actuelles des différentes sources..

Comparison LLB/ISIS:
 - HET(ISIS), comptage en 12 h = 720 minutes, E= 34 meV (26 g - YBCO_{6.6})



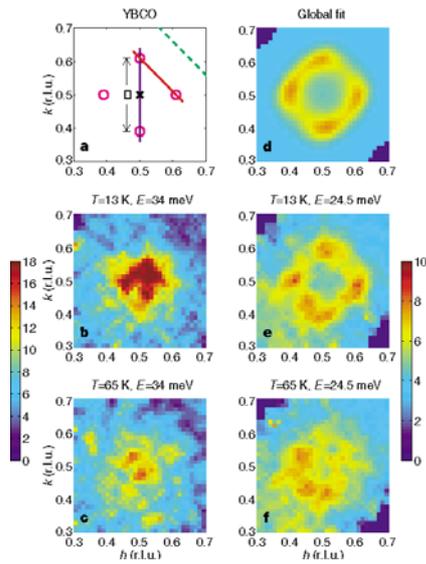
Mook et al nature 395, p 580, (1998).

Comparison LLB/ISIS:
 - 2T(LLB), comptage en 255 sec = 4.25 minutes, E= 37 meV (10 g YBCO_{6.7})

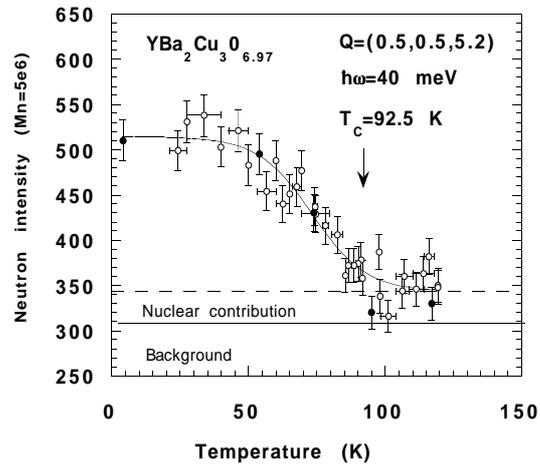


Fong et al Phys Rev B, 61, p 14773 (2000).

Mook et al Nature 395, p 580 (1998)



Bourges et al, Phys.Rev. B 53, p876 (1996)



La technique standard près des sources continues utilise le spectromètre triple-axe : la sélection de l'énergie des neutrons avant et après l'échantillon se fait par réflexion de Bragg sur monocristal, la mesure se fait pas à pas le long d'une trajectoire quelconque en (q, ω) , en utilisant la rotation de l'échantillon. Les spectromètres existent sur source froide (IN12 et IN14 à l'ILL, 4F1 et 4F2 au LLB), source thermique (IN8, IN20 et IN22 à l'ILL, 1T et 2T au LLB) et source chaude (IN1 à l'ILL). L'utilisation de neutrons polarisés ne pose pas de problème de principe. Près des sources pulsées, on utilise :

- La monochromatisation par chopper du faisceau incident et l'utilisation de la technique du temps de vol pour le faisceau diffusé (MARI, HET, MAPS et PHOENIX à ISIS). L'échantillon étant fixe, on obtient un ensemble de trajectoires dans l'espace réciproque. C'est la méthode de prédilection pour faire du mapping (spécialement si la basse dimensionalité du système permet une bonne utilisation des valeurs de q).
- soit un fonctionnement en faisceau incident polychromatique et une sélection de l'énergie diffusée par réflexion de Bragg sur un ensemble de cristaux analyseurs (PRISMA à ISIS). Cette méthode permet un contrôle partiel de la direction de q . Le nombre de cristaux analyseurs limite par contre son efficacité.

La techniques de temps de vol et l'utilisation de multidétecteurs rendent extrêmement problématiques les mesures en neutrons polarisés. A l'heure actuelle la seule voie de progrès réside dans le filtre à Hélium3 polarisé.

La comparaison des performances des différentes techniques ne peut se faire que via les informations en provenance d'ISIS, de l'ILL et du LLB . En ce qui concerne l'intensité au niveau de l'échantillon, les valeurs figurant dans la documentation des centres varient de 2.3 à 7.10^4 en passant de MARI à PHOENIX (ISIS) et de 1 à 2.10^8 sur IN8 (ILL). Bien que d'interprétation délicate, ces valeurs indiquent un rapport supérieur à 1000 en faveur de la source continue, pour un comptage simple (au détecteur). L'explication de ce nombre important tient au rapport des flux moyens entre les sources (facteur ~ 50), à la différence de thermalisation des faisceaux, puisque la référence est prise à 50 meV (facteur ~ 2), et à l'optimisation de l'utilisation des faisceaux réalisée au niveau des monochromateurs et analyseurs des sources continues (facteur 10 au moins). Ce chiffre est corroboré par la mesure de la résonance dans YBaCuO étudiée sur HET à ISIS

et sur 2T au LLB, les 2 mesures ayant été reportées en unité absolue. En comparant temps d'acquisition et poids de l'échantillon (12 h, 26 g sur HET, 4.25 minutes et 10 g sur 2T) on arrive au facteur 440. Pour aller au delà, il faut avoir accès au comptage brut, indiqué pour 2T mais non pour HET. La comparaison des barres d'erreur, reportées sur la figure ci-dessus, permet néanmoins de constater qu'un facteur supplémentaire d'au moins 3 (voire 5 ...) est parfaitement réaliste.

Par contre il faut souligner que l'utilisation du mapping sur HET a permis dans la même mesure une cartographie de l'intensité apportant des informations globales importantes sur la distribution de l'intensité magnétique. Mais pour vérifier la relation entre la résonance et la transition supra, il aurait fallu répéter l'acquisition complète (soit 12 heures) à chaque température...

Les performances des mesures sur source continue et sur source pulsée sont en fait essentiellement complémentaires. L'apport de l'ESS, même potentiellement d'un facteur 100 par rapport à ISIS en jouant sur la définition de la fréquence de la source et la nature du modérateur, ne sera effectif que pour les mesures susceptibles de bénéficier de la couverture de l'espace réciproque offerte par la technique de temps de vol : mapping des intensités, mesure globale de courbes de dispersion, spécialement dans les hautes énergies et sous réserve que la dépendance de q avec la direction ne soit pas un obstacle majeur. Le volume minimum des échantillons restera important : pour une expérience de même qualité que celle déjà citée de Mook sur YBaCuO on passera typiquement de $\sim 4 \text{ cm}^3$ à $40\text{-}80 \text{ mm}^3$, alors que la même mesure a déjà été réalisée sur un échantillon supraconducteur au Bismuth de 70 mm^3 , sur triple-axes, tant au LLB qu'à l'ILL.

Le travail nécessitant une bonne intensité dans chaque pas de mesure (échantillons de petit volume, mesures répétitives en fonction d'un paramètre extérieur, mesure précise en position et amortissement d'une partie limitée des excitations) ne pourra se faire de façon satisfaisante près d'une source pulsée, sauf à augmenter de façon non réaliste le temps d'acquisition.

La solution la plus rationnelle du point de vue scientifique est donc d'optimiser les performances des sources pulsées là où elles sont performantes (mapping, ensemble complet de courbes de dispersion, excitations de haute énergie). Ceci entraînera mécaniquement un meilleur recouvrement avec la spectrométrie de type triple-axe. Mais

il est capital de conserver la capacité de mesure point à point avec optimisation de l'intensité, qui est l'apanage des sources continues. Cette conclusion est renforcée par la prise en compte des possibilités de mesure en neutrons polarisés, facilement compatible avec la technique triple-axe, beaucoup plus problématique avec les techniques pulsées.

II- Spectroscopie - Temps de Vol (H. Mutka - ILL Grenoble)

Nous avons examiné les spectromètres destinés à mesurer des facteurs de structure dynamiques dans une gamme étendue d'énergies, à partir de 0.1 meV jusqu'à plusieurs centaines de meV. Deux concepts d'instruments sont possibles pour ce type d'expériences. On peut fonctionner avec une énergie incidente fixe, délivrée par un monochromateur, et analyser l'énergie finale (géométrie directe) où bien utiliser une énergie incidente variable (monochromatique ou blanc) et un analyseur à énergie finale fixe (géométrie inversée).

Les domaines scientifiques concernés par de tels instruments sont très variés, comme l'indique, à titre d'exemple, la liste ci-dessous:

- Densité d'états vibrationnels: systèmes désordonnés, métallurgie
- Diffusion quasi-élastique: dynamique relaxationnelle, diffusion, transitions de phases
- Diffusion diffuse élastique: ordre à courte distance, systèmes désordonnés, métallurgie
- Excitations collectives à petits vecteurs d'onde ($Q \rightarrow 0$): liquides, systèmes désordonnés
- Spectroscopie moléculaire: chimie/physique de solides
- Spectroscopie magnétique: chimie/physique de solides

II-1 Spectromètres à choppers -géométrie directe

Actuellement il existe de tels instruments aussi bien sur source continue (réacteurs) que sur sources pulsées. Dans la gamme des neutrons froids (énergie incidente $1 \text{ meV} < E < 20 \text{ meV}$) les instruments fonctionnant à l'ILL - IN5, IN6, D7 (neutrons polarisés), ou au LLB - MIBEMOL font référence. Pour les neutrons thermiques/épithermiques (énergie incidente $10 \text{ meV} < E < 1000 \text{ meV}$) on trouve IN4 à l'ILL et plusieurs instruments à ISIS - HET, MARI, MAPS.

Les avantages des instruments actuels installés sur les sources continues sont par exemple :

- une fonction de résolution très propre ainsi qu'une grande facilité de variation de l'énergie incidente par phasage des choppers, associées aux monochromateurs TdV (IN5, MIBEMOL)

- un taux de comptage élevé, associé au monochromateur à cristal focalisant (IN6, IN4)

Sur les sources à spallation l'utilisation des neutrons froids n'est pas encore optimisée. Par contre dans le domaine thermique/épithermique il existe des instruments très performants, avec une gamme dynamique étendue et une bonne résolution en transfert d'énergie.

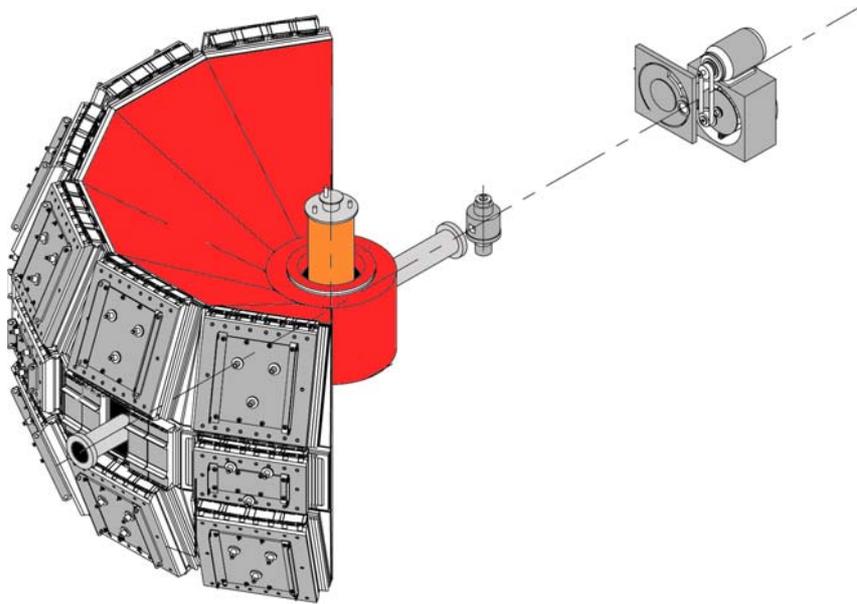
II-2 Spectromètres à analyseurs Cristal/Filtre -Géométrie inverse

Des instruments ont été construits sur sources à spallation, utilisant un faisceau incident blanc couplé à une analyse en temps de vol. Une seule mesure donne alors une information sur une gamme dynamique étendue, avec une bonne résolution. A ISIS l'instrument TOSCA représente, à l'heure actuelle, l'aboutissement du développement de ce type de spectromètres à analyseur cristal, commencé avec TFXA. Sur le réacteur à haut flux de l'ILL, l'instrument IN1BeF (analyseur filtre Be) est encore performant, surtout quand il s'agit de mesurer des faibles quantités d'échantillon sur une gamme dynamique plus limitée.

II-3 Optimisation en cours

Indépendamment du mode de fonctionnement des sources l'amélioration des performances des instruments actuels est possible en travaillant sur les caractéristiques optiques. A l'ILL une version révisée de IN5 est en construction ; à ISIS le projet MERLIN (ex. PHOENIX) été lancée. Dans les deux cas l'utilisation de guides à neutrons focalisants peut engendrer des gains considérables approchant un ordre de grandeur pour le flux incident sur l'échantillon. L'autre facteur important qui permet de diminuer les temps d'acquisition est l'augmentation de l'angle solide de détection des neutrons diffusés, qui peut atteindre jusqu'à 1/4 de 4π dans certaines applications récemment proposées (voir figure). Les détecteurs pixelés -installés sur l'instrument MAPS à ISIS, prévus pour MERLIN seront très utiles pour une meilleur détection de la diffusion cohérente.

Le développement de spectromètres dédiés à la diffusion inélastique aux petits angles va ouvrir de nouvelles perspectives expérimentales; voir le projet BRISP(CRG à l'ILL), ainsi que, dans une certaine mesure, IN4 avec son détecteur aux petits angles. Ce domaine sera encore mieux servi quand une source intense à haute énergie sera disponible.



MERLIN (projet à ISIS) donne un aperçu d'un instrument TdV géométrie directe de nouvelle génération, avec ses 20 m² de détecteurs (angle solide 1/4 de 4 π). Remerciements à R. Eccleston, ISIS facility.

II-4 Conclusion sur le passage à ESS

On ne s'attend pas à des problèmes particuliers liés à la conception d'instruments ni au mode opératoire des expériences. En ce qui concerne le flux nous savons que l'intensité pic prévue pour l'ESS devrait représenter de 40 à 100 fois le flux de l'ILL, ou encore 30 fois ISIS. Ce gain se répercute, en principe, directement sur les instruments. Dans certains cas toutefois le taux de répétition plus faible (fixe à 50/10 Hz, variable sur réacteur max. 500 Hz) peut être un facteur défavorable, mais on évite les problèmes liés au recouvrement temporel. La perte d'efficacité liée au faible taux de répétition peut, dans certains cas, être contournée en utilisant l'astuce de multiplication proposée par Mezei et coll.(Physica B **276**, p. 128).

Les gains obtenus grâce aux guides de neutrons, et plus généralement à l'optique neutronique, sont transportables sur source à spallation, et seront déterminants pour les performances instrumentales dans la gamme des neutrons froids. De la même manière, les

futurs instruments de l'ESS bénéficieront directement des développements actuels dans le domaine des systèmes de détection. Le gain en efficacité globale de l'instrumentation devrait atteindre au minimum un facteur 10, et vraisemblablement un facteur 1000 dans certains cas. Il est à noter que l'ESS offrira également une ouverture vers des énergies incidentes très élevées, permettant l'accès à une plus large gamme dynamique à petit vecteur de transfert Q .

III- Rétro-diffusion des neutrons sur une source à spallation

(B. Frick - ILL Grenoble)

La spectroscopie en rétro-diffusion (RD) des neutrons joue un rôle majeur pour l'analyse de la dynamique "lente" de la matière. Les sujets scientifiques sont vastes et se concentrent surtout sur des problèmes de diffusion et des mouvements locaux sur une échelle de temps de quelques nanosecondes. La RD est la seule technique directe pour l'investigation de l'effet tunnel quantique et elle joue un rôle de plus en plus important dans la recherche en biologie. La fenêtre dynamique de la RD se situe entre celles de l'écho de spin et du temps de vol (TdV). En raison des fenêtres dynamiques restreintes, pour la plupart des sujets abordés la RD est combinée avec des expériences de TdV pour la plupart des sujets abordés. Aujourd'hui la rétro-diffusion parfaite est seulement développée sur réacteurs et elle permet d'accéder à une résolution de 0.3 à 1 μeV et à une gamme de Q de 0.1 à 5.2 \AA^{-1} . Le désavantage principal de cette technique est sa fenêtre dynamique très limitée.

Sur une source à spallation il y a deux types d'instruments possibles pour avoir une résolution en énergie similaire : les *spectromètres TdV inverses* avec des analyseurs proches de la rétro-diffusion (type IRIS à ISIS,) ou des spectromètres en RD parfaite du type *MUSICAL* (**M**ulti **S**iliCon monochromator **cr**yst**AL**) proposé par B. Alefeld. Pour ces deux types de spectromètres, en raison de la nature pulsée de la source, on gagne un facteur 2 en intensité, pour un flux moyen égal à celui du réacteur (bien entendu ce facteur 2 pourrait aussi être gagné sur un réacteur, en acceptant une dégradation de la résolution en s'écartant de la rétro-diffusion parfaite).

Les *spectromètres TdV inverses* avec des analyseurs proches de la RD et des analyseurs en Mica, Si ou PG donnent une résolution en énergie qui est limitée par les paramètres de TdV. Quelques valeurs typiques sont données dans le tableau ci-dessous. L'avantage de ce type de spectromètre est sa plus grande flexibilité en gamme d'énergie comparé à la RD classique. Le désavantage est la résolution en énergie dégradée et asymétrique. On peut arriver à une résolution du μeV seulement en utilisant des longueurs d'ondes longues, en sacrifiant alors la gamme en Q (par exemple : Mica(002) $\rightarrow \delta E \sim 0.2\mu\text{eV}$ mais $Q_{\text{max}} \sim 0.6\text{\AA}^{-1}$). Ce type de spectromètre est bien connu (IRIS, LAM-80ET) et va être réalisé sur les sources à spallation de dernière génération SNS et JSNS. On peut s'attendre à des facteurs de gain en intensité de 10 à 30 comparé aux meilleurs spectromètres de RD installés sur les réacteurs d'aujourd'hui.

Les *spectromètres du type MUSICAL* sont moins bien connus (voir figure) . Avec MUSICAL on garde essentiellement la conception de la RD parfaite, mais on utilise un assemblage des monochromateurs qui réfléchissent des énergies ou λ différentes (par exemple en appliquant un ΔT ou en utilisant du $\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x$). La distance entre les monochromateurs doit être suffisamment importante pour séparer les impulsions des différents monochromateurs dans le spectromètre secondaire. Le nombre maximal de monochromateurs est limité par le temps de répétition T de la source et la largeur τ des impulsions produites ($N < T/2\tau$). Pour un assemblage statique le transfert d'énergie maximal reste restreint et est donné par les longueurs d'ondes extrêmes produites par les monochromateurs auxquelles on peut éventuellement ajouter une vitesse Doppler. Le gain théorique de $2N$ (200 pour $T = 20$ ms et $\tau = 100$ μs) par rapport à un spectromètre RD classique sur un réacteur est certainement fortement réduit pour un assemblage réaliste des monochromateurs (problèmes de longueur, d'absorption, d'interférences, ordres supérieures ...), mais devrait être supérieur à un facteur 10. Une publication relative à un « Doppler-Musical » au JSNS (spallation japonais) propose un gain de 50 comparé à IN16 pour Si(111). Un spectromètre *du type MUSICAL* n'est pas encore construit et demande d'abord une étude approfondie.

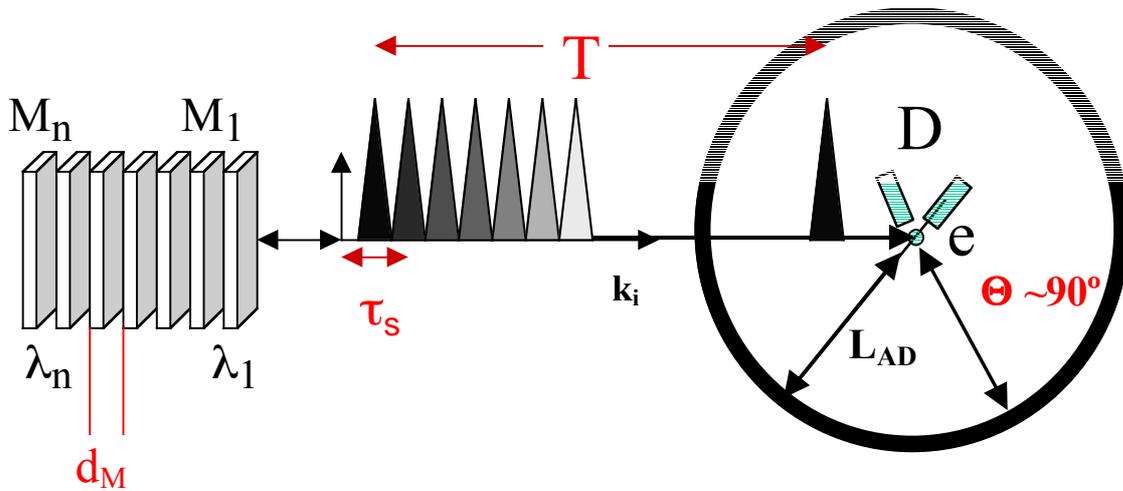


Schéma d'un spectromètre MUSICAL.

	λ (Å)	δE (µeV)	ΔE (µeV)	Q (Å ⁻¹)
RD réacteur sf	6.27 Si(111)	0.3 – 1	±15 (max. ±40)	0.1 – 2.0
RD réacteur sf	3.275 Si(311)	2	± 28	0.2 – 3.8
RD réacteur th	2.23 CaF ₂ (422)	8 - 12	±125 - 300	0.7 – 5.2
TdV inverse proche RD	6.267 Si(111)	2.5	± 250	0.1 – 2.0
TdV inverse proche RD	3.273 Si(311)	10	± 280	0.2 – 3.8
TdV inverse proche RD	20.0 Mica(002)	0.22	±60	0.05 – 0.6
type MUSICAL (+ Doppler)	40 Si(111) ($v_D \sim 2.5$ m/s)	1	±20 (±35)	0.1 – 2.0

Comparaison de quelques paramètres typiques entre RD sur réacteur (sf= source froide, th = thermique) et TdV inverse sur source à spallation.

IV- TDV N(R)SE: la spectroscopie à écho de spin en temps de vol (B. Farago - ILL Grenoble et S. Longeville - LLB Saclay)

IV-1 Introduction

Tous les spectromètres à écho de spin actuellement en service, qu'ils soient de type NSE (spectromètre à écho de spin utilisant de forts champs magnétiques) ou NRSE (écho de spin par résonance) sont situés sur des réacteurs. Il s'agit en effet d'une technique de mesure de la diffusion inélastique des neutrons qui utilise généralement un flux continu de neutrons. Avec la perspective des futures sources à spallation du type ESS – à flux pulsé autour de 16.7 à 50 Hz -, dont l'intensité de crête va être nettement supérieure à celle des meilleurs réacteurs actuellement en service, mais dont le flux moyen restera de l'ordre voire inférieur pour les grandes longueurs d'onde à celui de l'ILL, il y a nécessité d'étudier les adaptations instrumentales visant à optimiser les gains substantiellement apportés par l'utilisation des structures pulsées pour ce type de source.

IV-2 Principe général de l'écho de spin par temps de vol

Lorsque l'on utilise un spectromètre à écho de spin en version « monochromatique » le détecteur compte en continu, mais une faible fenêtre en longueur d'onde autour du maximum est analysée ($\delta\lambda/\lambda \# 0.1 - 0.2$). Dans le mode écho de spin en temps de vol (TDV – N(R)SE) on utilise la quasi-totalité de la distribution en longueur d'onde du faisceau incident, qui par contre doit être pulsé par un système de choppers. La mesure du temps de vol permet de déterminer approximativement la longueur d'onde initiale (en supposant que la diffusion est élastique) et par conséquent de déterminer le temps de Fourier associé à un canal temporel i

$$\lambda_i = 2\pi\hbar \frac{t_i}{mL_D}$$

et

$$\tau_i = \alpha\lambda_i^3$$

α dépend de l'option choisie (conventionnelle ou par résonance) mais est une grandeur instrumentale, L_D est la distance entre le premier chopper et le détecteur. Une illustration de ce principe est donnée par la figure 1 qui représente dans un diagramme

temps-distance, la configuration du spectromètre IN15, dans son option temps de vol. L'analyse dynamique est réalisée par la mesure de la polarisation du faisceau diffusé, pour chaque canal temporel i , grandeur qui est directement proportionnelle à la fonction intermédiaire de diffusion, et qui ne dépend pas au premier ordre de la longueur d'onde utilisée. On accumule ainsi, pour un angle donné et dans les différents canaux, la fonction $\langle P(\theta_j, t_i) \rangle$ qui peut ensuite être transformée en une fonction du vecteur d'onde et du temps de Fourier : $S(Q_{i,j}, t_i)$. On cherche donc à profiter de la structure pulsée du faisceau par l'analyse simultanée d'une large gamme de longueurs d'onde incidentes et par conséquent un domaine de temps et de vecteur d'onde beaucoup plus étendu.

IV-3 TDV-NSE : le spectromètre IN15

IN15 est un spectromètre à écho de spin traditionnel construit pour réaliser des mesures aux petits angles avec des temps de Fourier très élevés. Il peut être utilisé soit en mode monochromatique soit en temps de vol.

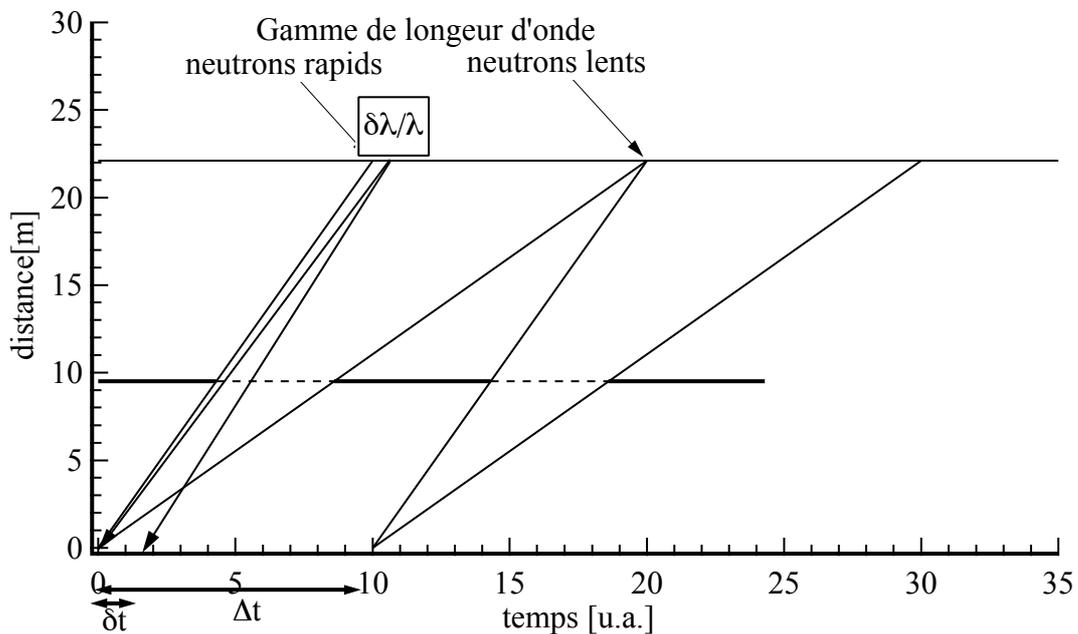


Figure 1- Diagramme TDV correspondant au système de chopper de IN15.

IV-3-a Le temps de vol

Au temps $t=0$ le faisceau est ouvert pour un intervalle de temps δt , créant un pulse polychromatique ($\delta t \# 1$ msec). Au fur et à mesure de leur temps de vol, les neutrons vont se séparer en fonction de leur longueur d'onde. Les neutrons les plus rapides atteindront le détecteur, situé à une distance de 22 m du premier chopper au bout d'un temps t , et afin d'optimiser les temps de comptage on fait en sorte que les plus lents atteignent le détecteur à un temps $t+Dt$ où Dt est la période du système de chopper (période de la source dans le

$$\Delta\lambda = \frac{h}{m} \frac{\Delta t}{L_D}$$

cas d'une source pulsée : 20 ou 60 msec). Pour limiter la bande passante en longueur d'onde on introduit donc un chopper en position 2 afin d'éviter le recouvrement des spectres au niveau des détecteurs, on analyse ainsi une bande

Pour IN15, un spectromètre NSE à très haute résolution optimisé pour réaliser des mesures sur des vecteurs d'onde dans le domaine des petits angles, un système de chopper avec une fréquence de répétition de 10-20 Hz et une largeur de pulse de 2-3 msec est optimum.

IV-3-b L'écho de spin

Les systèmes polariseur et analyseur doivent être opérationnels sur une large gamme de longueurs d'onde sans modification géométrique. En fait, avec l'introduction des supermiroirs et les progrès réalisés depuis, cela ne pose plus de problème, au moins pour les neutrons froids. La condition d'écho est atteinte lorsque les intégrales de champ dans les deux bras sont identiques, ce qui ne dépend pas de la longueur d'onde ; aucune modification des bobines n'a donc à être réalisée pour passer de l'option monochromatique à temps de vol (quelle que soit la géométrie des bobines). Les bobines de Fresnel et les autres éléments de correction corrigent les inhomogénéités de champ des solénoïdes, ainsi que les contaminations magnétiques provenant des champs de fuite des polariseurs, analyseurs et bobines de compensation horizontale des flippers, mais aussi du champ magnétique terrestre. Parmi tous ces éléments, seules les bobines horizontales des flippers doivent être synchronisées avec la longueur d'onde incidente, ce qui s'est avéré relativement facile à réaliser.

IV-3-c L'espace Q, t.

Chaque valeur de Q peut être atteinte avec cette option par plusieurs couples $2\theta_j$, λ_j . Le choix d'une configuration résulte d'un compromis entre la dépendance en Q, l'intensité diffusée et la dépendance du flux incident en fonction de la longueur d'onde et le domaine de temps désiré. Avec la très forte décroissance en l du flux incident ($\Phi(\lambda) \propto 1/\lambda^5$) on peut rapidement gagner un facteur 10 en intensité en choisissant des courtes longueurs d'onde. Par ailleurs, l'intervalle nécessaire à la mesure de la décroissance complète de la fonction intermédiaire de diffusion doit néanmoins rester couvert, sachant que $\tau_{\max} \propto \lambda^3$.

Sur la figure 2 est représenté l'espace Q-temps couvert par trois angles de détecteur différents. L'image de fond en gris est une représentation tridimensionnelle de la fonction $S(Q, \tau)$ pour un processus de diffusion simple $S(Q,t) = \exp(-DQ^2t)$. Avec une telle dépendance de $S(Q,\tau)$ on a une situation très favorable, les parallélogrammes qui sont mesurés en un seul scan suivent approximativement les lignes de $S(Q, \tau)$ constant sur trois ordres de grandeur en temps.

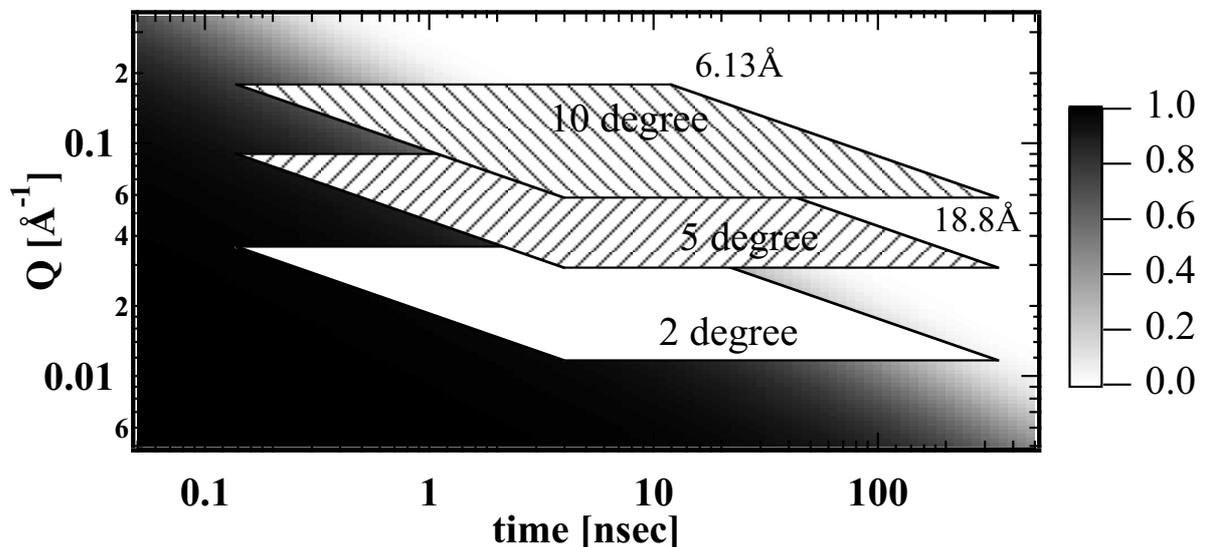


Figure 2- Espace Q-temps mesuré par 3 angles de détecteur sur IN15 en utilisant la bande de longueur d'onde $\lambda = 6.13 \dots 18.8 \text{ \AA}$.

IV- 4 TDV-NRSE : perspectives.

En spectroscopie à écho de spin par résonance on remplace les bobines produisant les forts champs magnétiques par des bobines de résonance beaucoup plus compactes. Elles associent un champ magnétique statique (B_0), perpendiculaire au plan de diffusion et un champ alternatif dans le plan de diffusion, dont la fréquence est choisie afin d'atteindre la condition de résonance pour les neutrons ($\gamma_n B_0 = \omega_1$). L'intensité du champ radiofréquence est fixée pour que les spins de neutrons d'une longueur d'onde donnée précessent d'un angle π autour de B_1 : $\pi = \gamma_n d/v$, où d est l'épaisseur de la bobine et v la vitesse du neutron. Par ailleurs, aucun système de correction n'est nécessaire, mais la totalité du parcours emprunté par les neutrons doit être isolée de toute contamination magnétique extérieure. L'option NRSE sert à la mesure des grands temps de Fourier et doit donc être associée avec une option NSE pour étendre la gamme vers les temps courts. Mais, du fait de l'isolation magnétique et des faibles courants utilisés ($< 10A$) il n'est nécessaire ni d'introduire des flippers ($\pi/2 - \pi - \pi/2$) ni des bobines de correction.

Dans une option TDV-NRSE ou multi-longueur d'onde, le seul paramètre qui doit être synchronisé avec la longueur d'onde incidente sera l'intensité du champ alternatif. On devra donc réaliser un champ oscillatoire avec des fréquences s'étalant typiquement de 10 kHz au MHz avec une modulation d'intensité de typiquement 15 à 50 Hz, les modulations de champ dans les différentes bobines devant être déphasées. Le champ doit bien sûr être homogène sur la totalité du faisceau analysé soit sur plusieurs dizaines de cm^2 .

La spécificité du spectromètre est sa plus grande flexibilité d'utilisation aux grands angles (pas de problème de continuité des champs autour de l'échantillon) ainsi que sa compacité. Par contre, dans l'état actuel des développements ce type de spectromètre ne permet pas d'atteindre les temps de plusieurs centaines de nano-secondes atteints pour des très grandes longueurs d'onde en NSE. Cette configuration est donc plus avantageuse pour les mesures à vecteurs d'onde intermédiaires ($0.1 - 3 \text{ \AA}^{-1}$). Si on prend une géométrie du type de celle de MUSES au LLB avec une distance $L_D \# 10 \text{ m}$ on peut couvrir en un seul scan un intervalle de $\Delta\lambda = 8 \text{ \AA}$ si on pulse le faisceau à 16.7 Hz. On peut ainsi typiquement couvrir le domaine $\lambda = 2 - 10 \text{ \AA}$ qui est optimum pour ce type de spectromètre (cf IV-3).

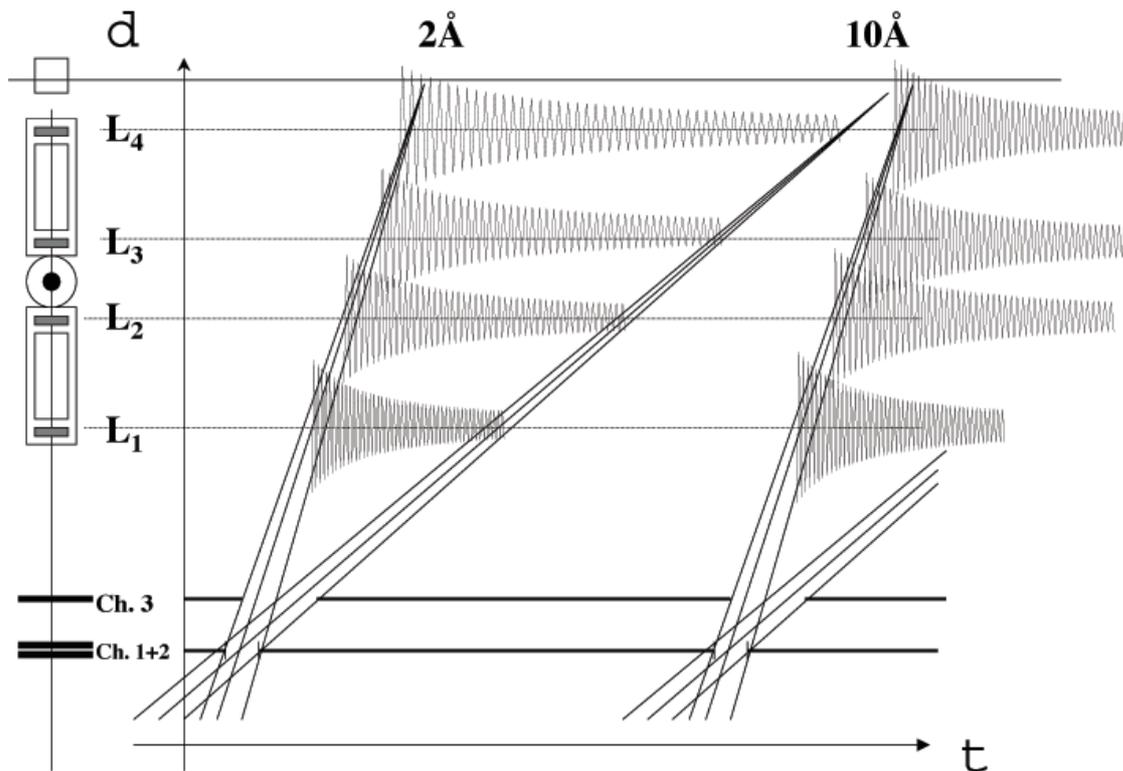


Figure 3- Diagramme temps de vol et amplitude du courant alternatif pour une option TDV-NRSE.

IV-5 Conclusions

Dans un très grand nombre de problèmes en physique de la matière condensée, en biophysique, ... la dépendance du temps de relaxation en fonction du vecteur d'onde est un point essentiel. La très forte dépendance de l'intensité et du temps de relaxation évolue généralement bien en phase avec la dépendance en longueur d'onde du flux incident et par conséquent avec les temps de Fourier accessibles. Dans les études en mode temps de vol (analyse polychromatique), on couvre une très large gamme $Q\text{-}\tau$. Si par contre on cherche à se focaliser sur l'évolution en fonction d'un paramètre extérieur d'un phénomène localisé en vecteur d'onde l'analyse du type monochromatique restera plus avantageuse.

Concernant la question de la source pulsée, quelle sera la fréquence la mieux appropriée pour ce type de spectromètre, et quels types de pulses sont plus avantageux (courts ou longs) ? Comme la technique de l'écho de spin ne nécessite qu'une définition approximative de la longueur d'onde, il est clair qu'en mode temps de vol on va chercher à favoriser l'intensité au détriment de la résolution. On va donc choisir des pulses longs (1 à 2 msec). Quant à la fréquence de la source, cela dépend du type d'appareil : un appareil

compact du type de MUSES pour les mesures à grands vecteurs d'onde $Q \# 0.1 - 3 \text{ \AA}^{-1}$ nécessitera une fréquence de 50 Hz, tandis qu'un appareil aux petits angles et à très haute résolution utilisant des domaines de longueurs d'onde typiquement de 8 – 20 Å (IN15) sera optimisé pour une fréquence de source de plutôt 16.7 Hz. En tout état de cause, on peut réduire à volonté la largeur des pulses et les fréquences par des systèmes de choppers, l'inverse n'est évidemment pas possible.

Neutrons Polarisés

Philippe Mangin

CNS/LPM Université Nancy I

Vandœuvre

Introduction

Si la diffraction de neutrons non polarisés fournit une information globale sur la structure nucléaire et magnétique des échantillons, la diffraction de neutrons polarisés conduit à des informations *sélectives* qui s'avèrent essentielles lors de la détermination des structures ou de cartes de densité magnétique. Les informations recueillies sont d'autant plus pertinentes que l'on raffine la technique, en polarisant le seul faisceau incident, en effectuant une analyse de polarisation longitudinale du faisceau diffracté ou mieux encore, en procédant à une analyse tridimensionnelle de polarisation. Les informations seront plus riches encore si on y ajoute une analyse en énergie du faisceau de neutrons diffractés.

Chaque sélection en spin ou en énergie s'effectue au détriment de l'intensité du faisceau puisque, lors de chacune des opérations, seule une partie des neutrons est conservée. En fait, non seulement les neutrons ne répondant pas au critère de sélection sont éliminés, mais malheureusement une fraction non négligeable des "bons" neutrons se trouve perdue dans les étapes d'analyse. Le problème de l'intensité est fondamental et apparaît avec d'autant plus d'acuité que les analyses ont pour objectif de faire émerger des informations de faibles intensités qui se trouvent écrasées dans les mesures globales, effectuées sans analyse de polarisation et sans discrimination en énergie.

Aussi, toute source qui annonce une augmentation considérable du flux de neutrons disponibles est souhaitée de tous ses vœux par la communauté des neutrons polarisés, pourvu que les neutrons disponibles soient "utilisables". Ils doivent présenter de bonnes caractéristiques et le faisceau issu de la nouvelle source doit être compatible avec les techniques spécifiques de polarimétrie, sous leurs formes actuelles et futures.

Dire simplement que la communauté des neutrons polarisés a un besoin urgent de source à haut flux de neutrons est une banalité. Identifier les neutrons *utilisables*, en y apportant la dimension statistique du bruit de fond, est le cœur du problème.

I- Informations fournies par les neutrons polarisés.

Dans le cas le plus simple d'échantillons non magnétiques, la diffusion des neutrons est d'origine purement nucléaire. Son facteur de structure au vecteur de diffusion \mathbf{q} s'écrit comme une somme sur tous les noyaux localisés en \mathbf{r}_i :

$$F_N = \sum_i b_i \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i)$$

soit encore lorsque l'échantillon est monoatomique :

$$F_N = b \int \rho(\mathbf{r}) \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

L'intensité diffusée s'écrit alors:

$$\sigma_N = b^2 \int \left[\int \rho(\mathbf{u}) \rho(\mathbf{u}+\mathbf{r}) d\mathbf{u} \right] \exp(i \mathbf{q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} = F_r \langle \rho(\mathbf{u}) \rho(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$$

et apparaît comme la transformée de Fourier de la fonction de corrélation position-position, puisque $\langle \rho(\mathbf{u}) \rho(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$ est la probabilité, un atome se trouvant en \mathbf{u} , d'en trouver un en $\mathbf{u}+\mathbf{r}$.

Si l'atome porte un moment magnétique \mathbf{m} , la grandeur que retient la diffraction neutronique est \mathbf{m}_\perp , projection de \mathbf{m} sur le plan perpendiculaire au vecteur de diffusion \mathbf{q} . Un atome se trouve alors caractérisé par sa position \mathbf{r} et les trois composantes de \mathbf{m}_\perp . Les fonctions de corrélation auxquelles on cherche à avoir accès sont donc du type:

Types de terme	Fonctions de corrélation:
$F_r \langle \rho(\mathbf{u}) \rho(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle = \sigma_N$	nucléaire - nucléaire
$F_r \langle \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$	magnétique-magnétique entre mêmes composantes

$F_r \langle \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp y}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$	magnétique-magnétique entre composantes orthogonales
$F_r \langle \rho(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$	nucléaire - composante magnétique
$F_r \langle \mathbf{m}_{\perp}(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$	magnétique-magnétique entre vecteurs

Les techniques de neutrons polarisés permettent effectivement d'avoir accès à ces informations, avec néanmoins une hiérarchie d'accessibilité. Comme montré dans les références [1] et [2] et résumé au tableau ci-après, le nombre d'informations accessibles passe de 1 à 16 selon la technique utilisée.

Technique	Nombre d'informations	Type d'informations
Faisceau non polarisé	1	$\sigma_N + \sigma_M$ avec $\sigma_M = F_r \langle \mathbf{m}_{\perp}(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$
Faisceau incident polarisé suivant un axe Oz, sans analyse de polarisation	2	$\sigma_N + \sigma_M$ $F_r \langle \rho(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$
Faisceau incident polarisé avec analyse de faisceau diffusé suivant le même axe Oz	4	σ_N σ_M $\langle \rho(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$ $\langle \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}) \mathbf{m}_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$
Faisceau incident polarisé et mesure du vecteur de polarisation (tridimensionnel) du faisceau diffusé.	16	Ensemble des fonctions de corrélation+ (avec information sur l'état en domaine de l'échantillon)

Si les trois premières techniques sont désormais classiques et bien établies, la technique d'analyse tridimensionnelle est en pleine émergence et, vu les progrès récents et la pertinence des informations accessibles, tout porte à croire qu'elle deviendra une des techniques essentielles des quelques prochaines années.

La grandeur centrale mesurée avec cette technique est le vecteur de polarisation du faisceau et l'information accessible est contenue dans sa transformation lors de l'interaction avec l'échantillon

L'écriture matricielle liant le vecteur de polarisation \mathbf{P} du faisceau diffusé au vecteur de polarisation \mathbf{P}_0 du faisceau incident prend la forme matricielle:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} * \\ * \\ * \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} * & * & * \\ * & * & * \\ * & * & * \end{pmatrix} \begin{pmatrix} P_x^0 \\ P_y^0 \\ P_z^0 \end{pmatrix}$$

où les étoiles "*" représentent les diverses fonctions de corrélation caractérisant la structure magnétique de l'échantillon. Leurs valeurs sont déterminées une à une par les mesures de \mathbf{P} avec une variété de \mathbf{P}_0 .

II- Les techniques de la polarimétrie

II-1 Techniques de polarisation

Les techniques de polarisation consistent à ne conserver du faisceau que les neutrons dont le résultat de mesure de la composante de spin donne l'une des deux valeurs possibles. Si on retient $+1/2\hbar$, on dira que l'on a sélectionné les neutrons de spin up.

Un monochromateur en alliage de Heusler effectue cette opération de façon très efficace par diffraction sur la raie (111) qui ne réfléchit que des neutrons up. Un tel cristal présente la particularité d'effectuer simultanément la monochromatisation et la polarisation du faisceau, ce qui est manifestement avantageux lorsque l'on dispose d'un réacteur. Un tel polariseur est inutilisable avec une source à spallation, du moins si on veut l'utiliser dans un mode temps de vol, sans monochromatisation du faisceau.

Les supermiroirs présentent l'avantage de réfléchir les neutrons de spin up sans analyse en énergie ou plutôt avec une fenêtre de transmission très large. Il sont d'autant plus efficaces que l'angle de réflexion totale est élevé, c'est-à-dire que les neutrons sont de grande longueur d'onde. Les supermiroirs sont techniquement au point, mais la polarisation

de neutrons par réflexion sur supermiroir est peu envisageable lorsque la longueur d'onde devient inférieure à 1.5 Å.

Le système multicouche complémentaire est celui qui ne laisse passer que les neutrons d'un seul type de polarisation. Il est concevable mais demande une sérieuse mise au point.

Le système idéal serait un filtre à polarisation insensible à la longueur d'onde du faisceau. Le filtre à hélium 3 est certainement le polariseur qui se rapproche le plus de ce système idéal. Il présente cependant l'inconvénient d'une dégradation de son efficacité à l'échelle de quelques jours. En pratique, il faut procéder à la repolarisation de l'hélium chaque jour.

A la question: est-on capable de polariser un faisceau polychromatique? La réponse est nettement oui. On est prêt à payer le prix de la difficulté si le flux utilisable est augmenté d'un facteur 10 par rapport à ce que fournit l'ILL aujourd'hui.

II-2 Analyse du faisceau diffusé

L'analyse de polarisation du faisceau diffusé est une opération en principe tout à fait semblable à celle de la polarisation du faisceau incident, sauf que dans un mode temps de vol, il est souhaitable de disposer de multidétecteurs, c'est-à-dire de traiter un signal de sortie très divergent.

Dans une telle situation, le supermiroir devient inutilisable, sauf à disposer d'un supermiroir devant chaque canal du multidétecteur comme sur l'actuel D7 de l'ILL!

Les instruments d'analyse à transmission sont clairement les mieux adaptés, par exemple en disposant d'un filtre à hélium-3 sous forme de haricot.

II-3 Champ guide

Le champ guide joue un rôle crucial car c'est lui qui maintient la polarisation du neutron. Mieux, s'il varie lentement dans l'espace, il sert de direction de référence à la polarisation qui le suit adiabatiquement. Ainsi des neutrons polarisés up peuvent attaquer l'échantillon en polarisation horizontale le long du vecteur de diffusion, si on applique un champ vertical sur le polariseur et horizontal sur l'échantillon, et que, entre ces deux positions, le champ varie lentement et continûment. Il y a peu de discrimination en

longueur d'onde et le système est utilisable aussi bien avec une source continue qu'avec une source pulsée.

II-4 Flipper

Si le polariseur ou l'analyseur sélectionnent les spins up, c'est le long d'une direction (et avec un sens positif fixe) généralement verticale et perpendiculaire au plan de diffusion.

Pour attaquer l'échantillon avec des neutrons polarisés down il faut faire appel à des flippers dont la fonction est de retourner le spin des neutrons, ou plus généralement de changer l'orientation du vecteur polarisation du faisceau.

Le flipper le plus simple à mettre en œuvre est le flipper de Mezei. Dans cet élément, les neutrons polarisés up et guidés dans un champ vertical, rencontrent soudainement un champ horizontal. La transition n'est plus adiabatique et le spin des neutrons se met à précesser autour du champ horizontal avec une période de Larmor T . Si à la sortie de l'élément, ils ont précessé d'un demi-tour, ils continuent leur chemin polarisés down. Le renversement est exactement réalisé si la vitesse des neutrons est telle que ceux-ci restent plongés dans le champ horizontal pendant un temps $T/2$. Si leur vitesse était supérieure ou inférieure, ils effectueraient respectivement plus ou moins d'un demi tour. Un tel flipper n'est donc utilisable qu'en faisceau monochromatique, même si pour certaines expériences qualitatives, une dispersion de longueur d'onde de 10% est tolérable.

Le cryoflipper constitue un second type de flipper. Il s'agit d'une feuille supraconductrice séparatrice de champs magnétiques (écran magnétique). Un neutron polarisé le long d'un champ dirigé vers le haut en amont de la plaque traverse la zone de champ strictement nul de la plaque et se retrouve polarisé antiparallèlement à un champ dirigé vers le bas de l'autre côté de la plaque. Le retournement adiabatique du champ entre le point de sortie et l'analyseur conduit alors au retournement du spin qui reste à tout moment antiparallèle au champ. Le cryoflipper n'est pas sélectif en énergie et peut donc être aussi bien utilisé avec les sources polychromatique et monochromatique. Il présente en outre l'avantage d'être insensible au champ de fuite de l'aimant échantillon.

II-5 Mesure des 3 composantes du vecteur de polarisation

L'analyse tridimensionnelle de la rotation de la polarisation nécessite, un vecteur de polarisation incident étant donné, d'accéder aux trois composantes du vecteur de

polarisation du faisceau diffusé. Pour cela, il faut effectuer une rupture d'axe de quantification entre l'amont et l'aval de l'échantillon. Ainsi, un axe de quantification amont étant donné, les intensités I^+ et I^- seront mesurées successivement selon trois axes de quantification aval. La composante de la polarisation sur chacun de ces axes sera obtenue par la relation:

$$P_{\text{axe}} = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$$

Comme nous l'avons vu avec le cryoflipper, une rupture d'axe de quantification nécessite une rupture de champ magnétique. La meilleure méthode pour l'obtenir consiste à placer l'échantillon dans une chambre à parois supraconductrices. Les polarisations d'entrée et de sortie sont ensuite canalisées et orientées par une succession de rotateurs et nutateurs, comme cela a été développé sur cryopad [3].

II-6 Diverses solutions pour sources pulsées

Le filtre à ^3He pour la polarisation et le cryoflipper pour le flipping semblent constituer des éléments tout à fait adaptés à la polarimétrie sur source pulsée. Ces deux éléments sont certainement satisfaisants pour la maîtrise de la polarisation du faisceau collimaté incident, surtout lorsque sa direction de polarisation est verticale.

Leur adéquation aux faisceaux diffusés est moins évidente, le problème étant qu'il n'y a pas un mais des faisceaux diffusés, et que si l'on veut rentabiliser au mieux l'intensité de la source, il faut les traiter simultanément. Si certaines géométries ne posent pas de problèmes, d'autres sont très problématiques.

La géométrie qui ne pose pas de problème est celle d'analyse de polarisation longitudinale suivant un axe vertical. L'analyseur en forme de haricot est déjà opérationnel et rien n'empêche de façonner un cryoflipper demi-circulaire qui permet une analyse de polarisation simultanée de tous les faisceaux diffusés.

La géométrie d'analyse de polarisation longitudinale avec axe de quantification le long du vecteur de diffusion est plus délicate parce que le vecteur de diffusion n'est pas le même pour tous les faisceaux diffusés. On peut considérer à la place une analyse de polarisation dans deux directions fixes x et y du plan de base et reconstituer par le traitement informatique les composantes de la polarisation parallèle et perpendiculaire au faisceau. On peut considérer également des techniques de temps de vol avec une rotation

rapide du champ magnétique sur l'échantillon qui tiendraient compte de l'instant d'arrivée des neutrons sur l'échantillon.

Le problème se pose pratiquement dans les mêmes termes pour la polarisation sphérique où il faut pouvoir traiter les polarisations de chacun des faisceaux diffractés.

III- Mise en œuvre des configurations de mesure

III-1 Diffusion sans analyse de polarisation

Le terme croisé $F_r \langle \rho(\mathbf{u}) m_{\perp z}(\mathbf{u}+\mathbf{r}) \rangle$ a permis d'établir bon nombre de cartographies spatiales des densités d'aimantations avec une résolution de $0.01 \mu_B/\text{\AA}^3$. Pour effectuer cette mesure, il n'est point besoin d'analyse de polarisation et l'axe de quantification est dirigé vers le haut. Une source à spallation à forte intensité intégrée pourrait donc être utilisée avec la meilleure efficacité. Des distributions de moments plus faibles et surtout sur de plus petits échantillons pourraient être mesurées à trois conditions:

- disposer d'une source chaude intense, ce qui ne semble pas acquis
- être capable de traiter les flux avec grande précision
- améliorer le rapport signal sur bruit.

La taille de l'échantillon étant essentielle à la fois pour des questions de faisabilité et lors du processus d'analyse où les corrections d'extinction peuvent être tout à fait critiques.

III-2 Diffusion avec analyse de polarisation longitudinale

Comme nous l'avons vu, l'analyse de polarisation longitudinale avec axe de quantification vertical est techniquement la plus facile mais elle est insuffisante. Il faudra également analyser la polarisation selon deux directions du plan horizontal pour reconstituer, pour chaque neutron diffusé, la composante parallèle au vecteur de diffusion. On pourra ainsi éliminer les effets de bruit de fond et faire la part entre la diffusion magnétique atomique et nucléaire.

Ici des neutrons froids, thermiques et chauds sont nécessaires, et de nouveau, il faudra être capable de tenir compte de toutes les corrections, pour ne pas parler des problèmes de stabilité de multidétecteurs et de rapport signal/bruit.

III-3 Polarimétrie sphérique

Cette technique nécessite encore plus d'efforts car il faudra analyser la direction de polarisation selon trois directions de l'espace et la reconstituer dans le repère favorable de chaque neutron diffusé. Même si ces directions ne sont pas optimisées pour chaque processus de diffusion, comme elles le sont actuellement avec un faisceau monochromatique, le bilan global sera largement positif. Par ailleurs, un cryopad fonctionnant à 50 hertz, qui serait à inventer, permettrait d'optimiser les mesures.

IV Conclusion

La diffusion de neutrons polarisés est une technique unique de détermination des structures et des cartographies de densités magnétiques dans la matière, et aucun projet de nouvelle source de neutrons ne peut négliger cette dimension, aussi bien pour la diffusion élastique qu' en diffusion inélastique.

La construction d'un réacteur délivrant une intensité de neutrons 10 fois plus importante que l'ILL enflammerait très certainement la communauté des neutrons polarisés, dont les ambitions sont bien souvent limitées par un manque de flux.

La mise à disposition d'une source pulsée de forte intensité est certainement la bienvenue, mais elle laisse entrevoir un grand nombre de difficultés techniques et même de principe.

Une barre minimale s'impose: la nouvelle source doit fournir sur toute la gamme de longueurs d'ondes 0.3 Å -10 Å un flux moyen au moins égal à celui de l'ILL, car il est évident que les montages les plus sophistiqués, tels que ceux de la polarimétrie sphérique, ne sont pas prêts à s'adapter aux sources pulsées.

A partir de cette situation on peut entrevoir des gains en polarimétrie longitudinale et plus encore en seule polarisation incidente.

Néanmoins, un énorme travail de maîtrise des faisceaux, de traitement des données et d'élimination du bruit de fond devra être effectué. Cela ne pourra être mené à bien que dans le cadre d'une véritable stratégie de développement des neutrons polarisés, avec des moyens financiers, et plus encore humains, très importants.

Si l'on projette d'investir dans cette source, il est urgent de former de jeunes spécialistes de neutrons polarisés. Si le fil était coupé, la prochaine génération pourra s'autoformer (même si c'est avec difficulté) à la polarimétrie sur réacteur; elle se formera aux techniques des sources pulsées, mais il faudra bien longtemps avant qu'elle ne devienne performante en neutrons polarisés sur source pulsée.

Références

- [1] J. Schweizer
Magnetic scattering of neutrons: a technique with a real future
in "Magnetism and Synchrotron Radiation, Mittelwihl 1996" Edité par E. Beaurepaire, B. Carrière et J.P. Kappler, pp 275-284, Les Editions de Physique 1997
- [2] F. Tasset
Structure magnétiques et polarimétrie neutronique
Ecole de magnétisme et neutrons-JDN9- Colleville sur mer -20-22 mai 2000
(à paraître Journal de Physique)
- [3] F. Tasset P. J. Brown, E. Lelievre-Berna, T. Roberts, S. Pujol, J. Allibon, E. Bourgeat-Lami
Spherical neutron polarimetry with Cryopad-II
Physica B **267-268**, p69-74 (1999)
P.J. Brown, J.B. Forsyth and F. Tasset
Proc. R. Soc. London A 442,p147-160 (1993)

SESSIONS

THEMATIQUES

Après un premier examen par technique instrumentale, l'influence d'une source comme l'ESS a été discutée pour chacune des thématiques suivantes : « Dynamique moléculaire – Catalyse – Cinétiques de transformation », « Physique du Solide – Magnétisme », « Chimie du Solide – Matériaux – Métallurgie », « Matière molle », « Liquides et Systèmes désordonnés » et « Sciences de la Vie ». Les contributions qui suivent ont été rédigées par les chairmen des différentes sessions. Pour la plupart, elles présentent les conclusions d'un groupe de travail dont la composition est donnée en introduction ; d'autres reflètent un point de vue plus personnel. Nous avons fait le choix de préserver la diversité des présentations, tant dans la forme que dans le contenu.

Résumés des rapports des sessions thématiques.

➤ Physique du solide - Magnétisme (Jacques Flouquet)

La diffusion neutronique est l'outil de choix pour des études microscopiques structurales et magnétiques. En quelques années les expériences sur les sources à spallation ont donné des résultats maintenant complémentaires à ceux obtenus sur les réacteurs classiques. On souligne l'importance d'accentuer les expériences croisées, de former de jeunes instrumentalistes et de leur proposer une structure de projet leur permettant de se lancer vers une nouvelle génération d'expériences. On indique aussi la nécessité de concevoir un développement des moyens en amont notamment dans l'élaboration des matériaux et leur caractérisation par des techniques légères et d'ouvrir les perspectives à des complémentarités plus larges que celles entre synchrotron et neutrons.

➤ Les neutrons et les Sciences de la Vie (Peter Timmins)

L'utilité des neutrons en biologie tient, pour une grande part, à la différence des longueurs de diffusion cohérente et incohérente de l'hydrogène et du deutérium. Ceci est vrai en cristallographie à haute résolution, diffraction des fibres et des membranes, diffusion aux petits angles et réflectométrie ainsi que pour les études de la dynamique des macromolécules. Ces différences permettent d'étudier le rôle clé des protons dans les protéines et les acides nucléiques ainsi que celui de l'eau d'hydratation. A plus basse résolution spatiale elles permettent l'utilisation de la méthode de variation de contraste. Les quantités d'échantillon disponibles pour de telles études sont et resteront toujours limitées, ce qui fait que la diffusion des neutrons est une technique limitée par le flux disponible. L'arrivée d'une nouvelle source telle que l'ESS permettra d'étudier des systèmes jusqu'à maintenant inaccessibles à cause d'une quantité trop faible d'échantillon, solutions trop diluées ou cristaux trop petits. La structure temporelle de la source permettra aussi de réduire le bruit et de profiter au maximum au faisceau blanc.

➤ Matière molle, rayonnement neutron et source à spallation (François Boué)

La matière molle reste un sujet de choix pour le rayonnement neutronique, complémentaire à l'imagerie par la globalité de sa réponse et sa simplicité, et aux rayons X grâce au marquage de l'hydrogène omniprésent dans les matériaux étudiés. La deutériation est en effet une technique très utile pour l'étude des systèmes mixtes de polymères, des tensioactifs et/ou des particules, des nanomatériaux mais également en pharmacie, biomimétique, tous sujets hautement d'actualité tant dans la recherche que dans l'industrie.... Ces études bénéficieraient indiscutablement de l'existence d'une source comme l'ESS: gain, dans l'option « pulse long » de 10 pour la DNPA, et env. 50 pour le temps de vol, et la réflectivité par temps de vol. Cette augmentation de flux liée à la source sera évidemment amplifiée par celle engendrée par des développements techniques développables dès maintenant sur les réacteurs (optique neutronique, ...). Ainsi, on peut espérer une réelle avancée qualitative qui ferait de la diffusion neutronique un outil extrêmement concurrentiel dans le domaine de la matière molle :

- la mesure de très petits échantillons constituerait une réelle révolution, en particulier en réflectivité (surfaces petites qui seraient bien plus homogènes).
- l'intérêt d'un accès rapide simultané à une grande gamme de longueur d'onde revêt un intérêt évident (par exemple en DNPA, mais aussi en Spin Echo où le temps sondé varie comme λ^3)
- de nombreuses études bénéficieraient de la possibilité de réaliser des expériences très sensibles (marquage très sélectif), ou très courtes: systèmes complexes pendant situations très évolutives, cinétiques sous champ ou température, chimiques (stop flow), RMN, éventuellement associées à la structure temporelle du faisceau.

Il faut néanmoins souligner l'importance de ne pas négliger les grandes longueurs d'onde (pour les petits q, modérateur ultra froid ?), et également d'assurer une période suffisamment longue de coexistence réacteurs/sources à spallation.

➤ **Chimie du Solide, Matériaux, Métallurgie (D. Fruchart)**

La réflexion menée les domaines de la Chimie du Solide, des Matériaux, et de la Métallurgie, montre que les sources neutroniques restent un outil incontournable quant à la caractérisation structurale, cinétique et dynamique de bon nombre de matériaux et de leurs propriétés physico-chimiques. Le débat mené lors de la Table Ronde, a plus particulièrement porté sur la comparaison entre les techniques développées auprès de réacteurs à fission et celles implantées (ou à développer) près d'une source à spallation. Les avantages et inconvénients du principe de flux continu ou pulsé ont été répertoriés, autant que la valeur du flux maximal ou du flux intégré de neutrons disponibles. Parmi les éléments de la comparaison faite entre les deux types de sources, un autre paramètre important a été pris en compte. Il s'agit de l'étendue du domaine de Q accessible (ou du réseau réciproque), selon que l'on utilise la distribution énergétique d'un spectre de réacteur ou celle d'un spectre de spallation. Enfin, la discussion a également porté sur la maîtrise à acquérir en termes de nouvelles stratégies instrumentales et des procédures numériques spécifiques nécessaires à l'interprétation de densités de données très fortement accrues.

Les interventions ont été successivement centrées autour des sous-thèmes suivants :

- La détermination structurale précise : évolution du réseau et caractéristiques des liaisons
- Les expériences cinétiques réalisées in situ (temps, température, pression, potentiel...)
- L'observation de phénomènes très rapide et les mesures stroboscopiques

- La diffractométrie sur monocristaux
 - L'instrumentation lourde : haute pression, haute température
 - Les matériaux à dimensions réduites : surface et interface, diffusion aux petits angles...
 - Les défauts du réseaux cristallins : analyse des contraintes, la texture, l'ordre local...
- Par ailleurs, les phénomènes chimiques résolus par l'analyse d'énergie (inélastique, quasi-élastique...) sont essentiellement examinés dans le cadre des autres Tables Rondes.

➤ **Liquides et systèmes désordonnés (René Vacher)**

Les problèmes encore largement ouverts posés par la structure et la dynamique vibrationnelle et relaxationnelle des liquides et solides désordonnés peuvent très fortement bénéficier de l'apport de nouvelles possibilités dans le domaine de la diffusion neutronique. Un flux plus important et un élargissement du domaine de vecteurs d'onde permettra des progrès significatifs dans la détermination de l'organisation structurale, ainsi que dans la compréhension de nombreux mécanismes comme la transition vitreuse, la diffusion et l'organisation coopérative dans les liquides.

➤ **Dynamique moléculaire - Catalyse – Cinétiques de transformation (Hervé Jobic)**

Dans le domaine de la dynamique moléculaire, les différentes méthodes de diffusion neutronique sont devenues indispensables. Ces méthodes ont ainsi permis d'observer des espèces actives en catalyse, de tester la validité des méthodes ab initio pour le calcul des vibrations de molécules biologiques, et de mesurer la mobilité de surface de molécules adsorbées. Une source de neutrons 10 à 100 fois plus intense, telle que l'ESS, permettrait de suivre des réactions catalytiques in situ, d'enregistrer les spectres vibrationnels de molécules biologiques en phase aqueuse, et d'étudier la liaison hydrogène dans des monocristaux. Un flux plus important rendrait l'utilisation de neutrons polarisés plus abordable et permettrait d'éliminer les pics de Bragg lors des mesures de diffusion incohérente, ou au contraire d'analyser les phénomènes coopératifs en diffusion cohérente.

PHYSIQUE DU SOLIDE. MAGNETISME

Jacques FLOUQUET

DRFMC/Service de Physique Statistique Magnétisme et Supraconductivité
CEA-Grenoble

La diffusion neutronique est bien adaptée à l'étude des propriétés structurales et magnétiques des solides. Les atouts sont la visualisation des atomes légers comme les atomes lourds, une forte interaction magnétique comparable à l'interaction nucléaire et une faible absorption. On trouvera dans les différents rapports l'intérêt que présentera une nouvelle génération de source à spallation (SS) (technique de temps de vol, augmentation du transfert d'énergie et de moment, utilisation du spectre complet du faisceau, synchronisme possible avec les pulses neutroniques, ...). Dès à présent, certains résultats publiés sur une SS sont concurrentiels par rapport à ceux obtenus sur un réacteur continu (RC). En consultant les rapports annuels de l'ILL (RC) et d'ISIS (SS) il est symptomatique de voir que les faits marquants cités touchent des thématiques très similaires ; pour le lecteur non averti il est même difficile de juger l'importance des facteurs instrumentaux.

La première remarque simple est que pour convaincre la communauté scientifique, il est essentiel de multiplier les expériences croisées avec une délocalisation réelle des physiciens experts. Les meilleures démonstrations de la nécessité de l'ESS seront données lorsqu'un responsable reconnu d'un excellent spectromètre sur un RC trouvera crucial de réaliser un prolongement d'expériences sur un spectromètre utilisant les possibilités d'une SS. Un exemple frappant est celui des études dynamiques faites en magnétisme où pour l'instant les équipes françaises se limitent aux grandes possibilités de RC en France.

Une deuxième remarque est la fâcheuse tendance de limiter les comparaisons instrumentales aux grandes installations (diffusion neutronique, rayonnement synchrotron) en sous estimant de développer en parallèle des efforts de fond sur des aspects majeurs

comme ceux de l'élaboration ou sur de nouvelles techniques légères (microcalorimétrie, micromécanique, micro-sonde de l'espace réel (STM, AFM, effet Hall). La diffusion neutronique est bien adaptée à l'étude des nouveaux matériaux massifs. Maîtriser leur élaboration est primordial pour la maîtrise des enjeux scientifiques et aussi la pertinence des expériences. Pourtant très peu d'embauches de physiciens axés sur l'élaboration ont été faites en France au CNRS, au CEA ou à l'Université.

Ces dix dernières années, les thématiques abordées suivent l'évolution des nouveaux problèmes souvent apparus grâce à des expériences macroscopiques. Citons :

- 1/ l'étude des nanostructures magnétiques grâce aux grands progrès de la réflectométrie. Un moteur important est l'électronique de spin,
- 2/ recherche de nouveaux composés magnétiques intermétalliques. Rappelons ici l'importance de la diffraction neutronique dans la compréhension des propriétés du $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ qui supplante souvent le SmCo_5 comme aimant permanent,
- 3/ l'étude des systèmes électroniques fortement corrélés recouvrant : les oxydes à propriétés remarquables (supraconducteurs à haute T_C , manganites, les transitions isolant métal), les fermions lourds (composés exotiques de terre rare ou de transuranien, les liquides quantiques comme ^3He et ^4He).
- 4/ le magnétisme à basse dimension : étude exhaustive de la dimérisation (transition de spin Peierls) dans CuGeO_3 , conjoncture de Haldane dans YbNiO_5 dualité charge et spin dans NaV_2O_5 ,
- 5/ ordre orbital. Ce domaine relancé par les nouvelles possibilités d'expériences complémentaires du rayonnement synchrotron est un aspect très débattu dans les deux points précédents (notamment manganite, NaV_2O_5) mais aussi dans certains composés intermétalliques de terre rare (CeB_6 , TmTe , NdMg) etc,
- 6/ les amas et composés moléculaires avec l'importance d'une vision microscopique pour comprendre des phénomènes tels que l'effet tunnel macroscopique ou la matière du couplage magnétique dans des composés à radicaux libre.

L'amélioration de l'instrumentation neutronique (multidétecteur, supermiroir, polariseur par cristaux (Heussler) ou par cible polarisée (^3He)) mais aussi dans

l'environnement des échantillons (cryogénie ($T \sim 10$ mK), champ magnétique ($H = 12$ T), pression (3 GPa) a permis un taux important de réussites expérimentales. Comme exemple citons le rôle important joué par la diffusion neutronique dans les supraconducteurs à haute T_C . Les études de diffraction ont permis de préciser leurs structures cristallographiques et notamment l'ordre des oxygènes et de réaliser une description détaillée du magnétisme dans leur phase isolante (ordre antiferromagnétique, évaluation des constantes d'échange, dimensionnalité). Les phases dopées (présumées métalliques) ont d'abord été caractérisées par de fortes fluctuations magnétiques dynamiques singulières aussi dans leur phase normale ($T > T_C$), (observation de pseudo gap, effet d'incommensurabilité avec la dualité actuelle "stripes" - "nesting"), et caractéristiques de la nature même du paramètre d'ordre avec l'apparition d'une résonance caractéristique au dessous de T_C . Les progrès faits dans les techniques de petits angles (SANS) ont permis l'observation directe de la structure des vortex et ainsi de donner un élément de référence dans le débat de la fusion du réseau de vortex et les différents états de la matière vortex par rapport au domaine d'existence de l'état supraconducteur (champ critique supérieur H_{C2} - température).

Dans le cas des supraconducteurs à haute T_C , les retombées majeures des expériences ont été théoriques. La nécessité de comparer ces résultats à ceux obtenus par d'autres techniques (notamment RMN, calorimétrie) a conduit à des mesures en valeurs absolues. Paradoxalement, la phase supraconductrice est mieux comprise que la phase normale. Quel serait l'état fondamental d'une phase normale stable jusqu'aux plus basses températures est encore débattu (discussion dite du protectorat quantique).

Le couplage avec les applications est fort dans le domaine des nanostructures magnétiques et des manganites pour comprendre le lien entre arrangements magnétiques et transport électronique (magnétorésistance). Dans les composés moléculaires l'espoir est bien sûr de trouver un composé organique ferromagnétique.

La conjugaison de problèmes expérimentaux nouveaux issus souvent de systèmes complexes où la dispersion du signal est large en fréquence et vecteur d'onde et les progrès continus faits en instrumentation a permis grâce à la diffusion neutronique une vision

souvent qualitative des phénomènes. Améliorer la statistique et l'étendue d'exploration en énergie et vecteur d'onde doit permettre une meilleure confrontation quantitative entre expérience et théorie, un gain d'ordre de grandeur dans l'étude du désordre structural ou magnétique et aussi dans la sensibilité de détection (faible magnétisme ...). Dominer les nouvelles techniques liées au SS est un bon challenge instrumental où il est important de contribuer. Il est ici prioritaire de former de jeunes expérimentateurs de talent, ouverts sur l'extérieur. Paradoxalement, le système français, malgré l'existence d'excellent réacteurs, forme peu d'instrumentalistes. Cette dernière remarque recoupe l'importance à considérer le volet humain. Récemment, l'accent a surtout été mis sur le financement des installations et peu sur la nécessité de renouveler les équipes ou de constituer des équipes avec des enjeux nouveaux. Renforcer le présent pour préparer le futur est la première étape.

Si on suit l'évolution du jugement sur les possibilités d'une SS on observe une forte motivation par rapport à la réunion de l'ESF d'Autrans faite il y a cinq ans. La communauté neutronique française apparaît convaincue, elle doit donc accentuer ses études sur les SS existantes ou celles qui vont exister prochainement (Tokai, Oak Ridge). En physique du solide et sans ambiguïté en magnétisme la diffusion neutronique reste l'outil de choix des études microscopiques des matériaux dans une configuration de plus bien adaptée aux mesures complémentaires. Gagner de l'expertise sur les mesures dans le contexte des nouvelles SS est sûrement une priorité, puis fédérer rapidement autour d'un projet concret (spectromètre) de jeunes physiciens motivés est un excellent objectif (voir intervention de J.P. Pouget, Directeur du SPM au CNRS).

Les neutrons et les Sciences de la Vie

Peter Timmins

Institut Laue Langevin

Grenoble

Ce rapport a bénéficié des contributions de M.-C. Bellissent-Funel (Saclay), C. Bon (Toulouse), D. Myles (EMBL, Grenoble), J. Parello (Montpellier), J. Zaccai (IBS, Grenoble), J.-M. Zanotti (Saclay).

Introduction

Les dernières années du 20^e siècle ont été marquées par des avancées importantes en biologie moléculaire et cellulaire alimentées par des progrès dans les méthodologies biologiques aussi bien que physico-chimiques. Les techniques de la biologie moléculaire ont conduit en particulier au séquençage de génomes entiers de plusieurs organismes et d'une grande partie du génome humain. La biologie en tant que science est en effet entrée dans l'ère "post séquençage des génomes" (post genome sequencing era, en anglais). Le défi actuel est d'identifier les fonctions des protéines qui sont les produits des gènes du génome—de les exprimer, de les purifier pour caractériser leurs activités, éventuellement de les cristalliser pour étudier leurs structures, leurs interactions avec des ligands dans un but pharmacologique. Cela, cependant, ne représente qu'un début. Le protéome caractérise l'ensemble des protéines exprimées dans une cellule dans des conditions données. Même si (ou lorsque) les structures de ces protéines sont connues, les grandes questions subsisteront si on veut faire le lien entre biologie structurale et cellulaire. Quelle est la dynamique de ces protéines sur plusieurs grandeurs d'échelle de temps? Comment interagissent-elles entre elles? Quelles sont les structures et la dynamique des grands complexes et des machines moléculaires impliqués dans la fonction cellulaire. Ces questions importantes ne peuvent être abordées que par toute la panoplie des méthodes complémentaires biologiques et physico-chimiques. Les neutrons ont un rôle important à jouer dans ce contexte.

I- Les acquis des neutrons en biologie

Les expériences de diffraction et diffusion de neutrons ont permis d'obtenir des renseignements précieux et souvent uniques sur la structure et la dynamique de divers systèmes biologiques. Les raisons pour cela sont liées aux propriétés mêmes des neutrons, notamment leur sensibilité aux noyaux H et D, et la relation entre longueur d'onde et énergie uniquement adaptée aux études de dynamiques moléculaire. Parmi les systèmes étudiés, nous retrouvons ceux associés aux processus fondamentaux du stockage, de la transcription et de la traduction de l'information génétique, de la transduction d'énergie dans les membranes, du repliement et de la stabilisation des protéines, du rôle essentiel de l'eau et des interactions entre macromolécules et solvant.

La cristallographie neutronique a apporté des résultats importants pour les protéines. Cependant jusqu'à récemment le nombre de structures résolues a été limité par le flux relativement faible des faisceaux et la petite taille des cristaux à des protéines de faible masse moléculaire. Une belle illustration de ce type de résultat est constituée par la structure de la trypsine, montrant l'état de protonation des résidus impliqués dans le site actif de cette protéase à serine et permettant de préciser le mécanisme d'action de cette famille enzymatique. Grâce aux progrès dans la technologie des détecteurs, et à l'exploitation de faisceaux multi-longueur d'onde par les méthodes Laue, il est maintenant possible d'appliquer la cristallographie neutronique à des protéines de masse moléculaire plus élevée avec des cristaux de taille plus raisonnable. Un bel exemple d'un résultat récent est constitué par le mécanisme d'action de l'aspartate protéase, endothiapepsin, résolu grâce à la structure obtenue par cristallographie neutronique.

La cristallographie neutronique a contribué aussi à obtenir des informations essentielles sur des structures à faible résolution, en exploitant la méthode de variation de contraste. La définition de la répartition acide nucléique-protéine dans les virus de structure icosaédrique, et de la distribution de détergent dans des cristaux de protéines membranaires constituent des exemples de résultats par cette approche. L'analyse de la diffraction à une résolution de 3 à 8 Å, en présence de marquage H-D, a apporté des informations importantes sur des systèmes partiellement ordonnés, comme les fibres ou les membranes. Plusieurs études aux neutrons de la membrane pourpre de *Halobacterium*

salinarum contenant la bactériorhodopsine, pompe à protons activée par la lumière, ont permis de spécifier des aspects de sa structure pour participer à la définition de la structure à haute résolution en complémentarité avec la microscopie électronique, mais surtout pour définir des composantes importantes de la membrane qui sont "invisibles" dans les structures à haute résolution obtenues par microscopie électronique ou cristallographie RX. Ainsi, les neutrons ont permis de définir la localisation et l'orientation du chromophore (le rétinol) dans le cœur actif de la protéine, d'identifier les hélices, de quantifier les molécules d'eau dans le canal à protons, de localiser des glyco-lipides et de définir leur rôle dans l'organisation structurale de la membrane, de mettre en évidence pour la première fois les changements conformationnels associés à la fonction. Le marquage H-D, notamment en utilisant des méthodes de biosynthèse *in-vivo*, a été essentiel pour ces études.

Le marquage H-D a également joué un rôle important dans des études par diffusion centrale de neutrons sur des macromolécules et des complexes en solution. La triangulation de la petite sous-unité du ribosome bactérien, pour définir les positions de protéines dans la particule en constitue un exemple frappant. La méthode était basée sur la reconstitution en incorporant des protéines individuelles deutériées au sein même de la particule.

La méthode de variation de contraste par échange H₂O-D₂O est aussi très puissante pour certains types d'étude, notamment celle des interactions acide nucléique et protéine. En effet, cette méthode permet de faire la différence entre l'acide nucléique et la protéine dans des complexes sans avoir recours à la deutériation spécifique. Elle a apporté les premières informations sur l'enroulement de l'ADN autour des histones dans les nucleosomes, sur la répartition radiale (quantitative) d'acide nucléique et protéine dans les virus sphériques, ainsi que sur les interactions des aminoacyl-ARNt synthétases avec l'ARNt sous diverses conditions de milieu.

Les couches de solvation qui entourent les macromolécules jouent un rôle important sur les interactions entre macromolécules. La diffusion centrale de neutrons a contribué de façon unique à la caractérisation de ces couches. La densité d'amplitude de diffusion de H₂O est proche de zéro, et une particule dans H₂O est observée par les neutrons comme si elle était dans le vide; la couche d'hydratation est essentiellement invisible. Par contre dans un solvant contenant du D₂O, l'amplitude de diffusion est très

élevée et le contraste de la couche d'hydratation devient très sensible à sa composition et à sa densité.

Un domaine de l'application des neutrons en Biologie qui a joui récemment d'un essor majeur concerne la dynamique des protéines. Les forces qui contribuent à la stabilité thermodynamique des protéines sont associées à des mouvements atomiques d'amplitude de l'ordre de l'Å et à des énergies d'environ kT (fréquences de $10^9 - 10^{12} s^{-1}$) à la température physiologique. Un faisceau de neutrons de longueur d'onde proche de 1 Å présente une énergie proche de kT , et constitue ainsi un outil expérimental unique pour sonder la dynamique associée aux forces qui maintiennent les structures tertiaires et quaternaires, par la caractérisation simultanée des amplitudes et des fréquences des mouvements. L'analyse de la diffusion incohérente des neutrons (au lieu de la diffusion cohérente, analysée dans les études structurales) permet de profiter de la section efficace très importante de H. Le marquage H-D joue un rôle important aussi pour les études de dynamique, car la section efficace incohérente de D est faible. Les résultats concernent les mouvements des atomes H d'une structure qui, dans la gamme de fréquences des expériences, reflètent les mouvements significatifs pour la fonction biologique, des groupements auxquels ils sont liés, comme, par exemple, les chaînes latérales des acides aminés. Les expériences de neutrons ont permis de quantifier la dynamique de différentes protéines solubles et membranaires dans différents milieux, de mettre en évidence des relations dynamique-fonction et dynamique-stabilité.

II- Les problèmes à l'avenir

Dans les années récentes, la biologie structurale a rejoint un degré d'avancement tel, que des structures complexes de grande taille ont été résolues, bien au-delà des espérances qui avaient été énoncées à ses débuts. Les exemples frappants sont la structure de virus et la structure du ribosome, qui sont actuellement connues à une résolution proche de la résolution atomique. La cristallographie des rayons X connaît un essor extraordinaire, dû essentiellement au rayonnement synchrotron. Des progrès conséquents sont aussi enregistrés dans le domaine de la préparation des échantillons, ainsi que dans celui des autres méthodes structurales comme la RMN ou la microscopie électronique. La frontière

entre la biologie moléculaire et structurale devient de plus en plus floue. La ligne conductrice est constituée par le besoin de comprendre la fonction au niveau moléculaire. Dans l'ère actuelle de la biologie, l'information obtenue du séquençage des génomes sera enrichie des résultats sur les structures (moyennes et "statiques") des protéines concernées (par la génomique structurale). Comme cela a été détaillé dans l'introduction, cette information ne sera pas suffisante et des questions importantes sur les détails des mécanismes, sur les interactions entre les protéines et leur dynamique devront être abordées. Par exemple, dans le cas de l'activité enzymatique, le rôle joué par les protons est essentiel. Les phénomènes d'hydratation et de solvatation sont fréquemment évoqués mais encore mal appréhendés. Il faudra comprendre comment les structures répondent et sont régulées en fonction de *stimuli* extérieurs. Ceci pourrait être dû à un simple changement de pH ou à la liaison d'un ion de Ca^{++} ou de Mg^{++} , ou encore à l'interaction avec une autre macromolécule, de grande ou petite taille, comme pour la régulation de la transcription de l'ADN par des facteurs protéiques, ou comme pour l'interaction entre récepteur et hormone peptidique. L'importance de mouvements anharmoniques, permettant une protéine d'occuper plusieurs états conformationnels a aussi été démontrée pour la fonction et l'activité biologique, d'où la nécessité d'accomplir une compréhension fine de la dynamique. Ces aspects, qui vont bien au delà d'une simple visualisation de structures moyennes de protéines, d'autres macromolécules ou complexes, posent des défis importants pour l'avenir. Quelques exemples, pris d'études récentes, illustrent ce point. Bien que les mécanismes d'action du muscle des vertébrés soient actuellement bien élucidés, les mécanismes de régulation sont toujours incompris. Cette régulation s'effectue par la liaison du Ca^{++} à une protéine trimérique, la troponine, qui est associée au petit filament. Le Ca^{++} induit un changement conformationnel au niveau de l'une des trois sous-unités de la troponine qui mène à l'ouverture du site de liaison pour la myosine sur le filament. Ce type d'interaction représente un exemple du fonctionnement d'un moteur moléculaire, dont la compréhension est une des enjeux prioritaires de la biologie cellulaire actuelle. Une approche est d'examiner les structures en présence et en absence de Ca^{++} . Il est évident, néanmoins, que cela ne suffira peut-être pas. Dans le cas de la myoglobine par exemple, il est impossible de comprendre l'accès de O_2 à l'hème, uniquement à travers des structures cristallographiques (même à résolution atomique) en présence et en absence de

ce ligand. En effet, ce sont des expériences de neutrons qui ont démontré la flexibilité dynamique de la protéine qui permet cet accès. Il est actuellement admis que la dynamique est essentielle pour l'activité biologique des macromolécules, mais il reste encore beaucoup de travail pour la comprendre. : Le nucléosome joue un rôle central dans les processus de transcription et de réplication dans les cellules des eucaryotes. Les problèmes topologiques et conformationnels associés avec de tels processus au niveau des interactions ADN-protéine et protéine-protéine sont loin d'être résolus. Sans doute, la détermination, au cours de la dernière décennie, de deux structures tertiaires essentielles par cristallographie aux rayons X, celle de l'octamère des histones (1991) et celle de la " nucleosome core particle " (1997), ouvre-t-elle la voie à une étude de la chromatine avec une perspective structure-fonction plus précise. Les neutrons peuvent contribuer de façon décisive à une telle connaissance, comme cela est apparent dans le cas des régions N-terminales des histones qui sont le siège de modifications post-synthétiques variées et de variations conformationnelles reliées à la fonction de la chromatine. On peut s'attendre à ce que la production *in vitro* d'assemblages moléculaires ayant le nucléosome pour partenaire commun puissent être étudiés de façon productive par les méthodes de la diffusion neutronique (petits et grands angles) si l'on connaît de par ailleurs la structure tertiaire des différentes composantes moléculaires (méthodes de " docking " moléculaire sous contrainte expérimentale à basse résolution). De telles méthodes de " docking " moléculaire sous contrainte expérimentale devraient s'appliquer de façon très efficace au cas des récepteurs transmembranaires à sept hélices couplés aux protéines G (RCPG, représentant environ 5% des séquences codantes du génome des organismes supérieurs) si l'on peut disposer, comme c'est déjà le cas (récepteurs des leucotriènes), de tels récepteurs recombinants stabilisés en milieu micellaire (ou dans des bi-couches lipidiques ou dans des vésicules) et pouvant mimer diverses interactions protéine-protéine et protéine-lipide observées *in vivo*.

D'autre part, la pharmacologie moléculaire pourra bénéficier de l'apport des méthodes de la diffusion neutronique au travers de l'étude d'assemblages moléculaires complexes et souvent de grande taille dont la topologie est fortement dépendante des interactions avec des petites molécules effectrices (cas de la dimérisation des RCPG par liaison d'un agoniste).

En conclusion, les structures obtenues par cristallographie des rayons X et par RMN ne représentent qu'un point de départ pour la compréhension de la fonction

biologique, et l'avenir nécessitera la mise en place et l'utilisation de différentes méthodes fortement complémentaires pour avancer vers ce but.

L'utilisation d'une source de neutrons améliorée

La diffusion de neutrons restera une méthode dont l'application à la biologie est limitée par le flux des sources. Les échantillons biologiques diffusent les neutrons (et les RX) faiblement, à forte dilution ou en petits volumes, car ils sont rarement disponibles en quantités importantes. Dans le cas des RX, contrairement aux neutrons, la forte intensité des sources compense ces inconvénients. Notre discussion ici se base principalement sur les expériences que l'on pourrait faire si on avait une augmentation effective d'un facteur dix dans le flux disponible. A l'ESS, il y aura de plus la possibilité d'exploiter, dans certaines configurations, la structure temporelle des faisceaux ainsi que des améliorations importantes au niveau des diffractomètres/spectromètres primaires et secondaires.

Pour la cristallographie à haute résolution, on s'attend à une augmentation appréciable dans les rapports signal/bruit par l'utilisation d'un faisceau "blanc" à résolution temporelle. Cela permettra d'utiliser des cristaux de taille $<0.1\text{mm}^3$ se rapprochant des tailles utilisées en RX, et ouvrant la voie à des études de quasi-routine pour identifier des protons et des molécules d'eau fonctionnels. L'application en parallèle de la deutériation contribuera aussi à augmenter la qualité des données en réduisant de façon significative le bruit de fond incohérent.

Actuellement le domaine de diffraction de fibres (ADN, collagène) souffre pas de limitation de taille d'échantillon. Cependant, la mosaïcité et le degré d'alignement de ces "grands" échantillons laissent souvent à désirer, et la qualité de la diffraction en souffre. La possibilité d'étudier des fibres individuelles constituerait un énorme avantage. Seront envisageables également des études de liaison de petites molécules marquées au deutérium à des fibres d'ADN, par exemple.

Les études cristallographiques à basse résolution pour étudier les interactions entre composantes de grands complexes profitera de l'utilisation de cristaux plus petits. Ce type d'étude (à une résolution de 6-8 Å) pourra aussi être utilisé pour définir une enveloppe moléculaire, pour faciliter la résolution d'une structure inconnue par RX.

Les systèmes membranaires posent toujours un défi majeur aux méthodes structurales. Les neutrons sont bien adaptés à leur étude, à cause du fort contraste entre les

différentes composantes de ces systèmes complexes—protéines, lipides, eau—enrichi de plus par l'échange $H_2O:D_2O$ et le marquage H-D. Les progrès viendront aussi de l'élaboration des échantillons et un effort important est prévu dans cette direction. Nous rappelons que la membrane pourpre de *Halobacterium salinarium*, pour des raisons de qualité et quantité d'échantillon, est aujourd'hui la seule membrane naturelle complète dont on a pu étudier la structure. La microscopie électronique et la cristallographie RX ont défini la structure de sa protéine unique à haute résolution ; un apport important des neutrons a été de définir les interactions de cette protéine avec son environnement lipidique et les molécules d'eau impliquées dans l'activité. Les échantillons de membranes reconstituées (bicouches lipidiques et autres composantes) constituent une des approches à l'étude des membranes. Dans ce cadre, la technique de réflectométrie, qui a été peu exploitée en biologie, ouvre des perspectives intéressantes. Un des avantages de cette approche, c'est qu'elle nécessite des quantités très faibles de matériel (couches moléculaires). La réflexion spéculaire contient de l'information sur la distribution de densité d'amplitude de diffusion perpendiculaire à la couche. Les réflexions dans les directions non-spéculaires seront d'intérêt particulier car elles renseignent sur les interactions entre molécules dans le plan de la couche.

La diffusion centrale (ou aux petits angles) est une composante importante de l'application des neutrons en biologie—probablement celle qui est le moins limitée par les flux des faisceaux actuels. Au contraire ce sont plutôt les détecteurs sur les appareils de petits angles qui ne peuvent pas suivre l'intensité diffusée. Cependant, on peut s'attendre à des progrès conséquents dans ce domaine technique d'ici la mise en route de l'ESS. Les avantages d'un flux plus élevé pour les expériences de diffusion aux petits angles sont les suivants :

- (i) Cela deviendra possible de mesurer la cinétique de processus comme l'auto-assemblage ou l'interaction entre macromolécules sur des temps de l'ordre de la seconde ou moins. Des instruments existants sont déjà capables de cette résolution, mais les expériences ne peuvent se faire que sur des systèmes cycliques, pour pouvoir accumuler une information statistiquement significative. De plus ce sont des expériences qui nécessitent des quantités importantes de matériel.
- (ii) On pourra mesurer des systèmes dilués. La limite actuelle pour les solutions se situe vers 0.5 mg/ml (en fonction de la masse moléculaire). Ce sera très intéressant de

diminuer cette valeur d'un ordre de grandeur, pour des raisons physico-chimiques associées aux lois régissant les interactions mais aussi dans le cadre de la complémentarité puissante entre neutrons et autres techniques comme la centrifugation analytique.

(iii) On pourra étudier par variation de contraste la conformation d'une macromolécule qui serait associée à une autre de taille beaucoup plus importante.

Les études de dynamique des macromolécules seront aussi appréciablement facilitées auprès de l'ESS. La diffusion de neutrons avec analyse en énergie a contribué de façon significative à ce domaine dans les années récentes. En France, LLB et récemment ILL avec la mise en CRG de l'appareil IN13 dédié à ces mesures, jouent un rôle important pour le développement de cette méthodologie. La limitation principale est évidemment due à la masse d'échantillon nécessaire pour une expérience (>100 mg). Un flux élevé permettra des expériences dans de bien meilleures conditions, ouvrira largement le spectre des systèmes qu'on pourra examiner, mais permettra surtout des mesures fines de dynamique locale par marquage H-D de parties sélectionnées de systèmes complexes.

MATIERE MOLLE, RAYONNEMENT NEUTRON ET SOURCE

A SPALLATION

François Boué

Laboratoire Léon Brillouin / CEN-Saclay

Gif-sur-Yvette

Introduction

Les études sur la matière molle constituent une fraction importante de l'utilisation du rayonnement neutron : par exemple, 90 % pour la réflectivité à ISIS.

D'autre part la diffraction, en d'autres mots l'observation dans l'espace de Fourier, bien que récemment confrontée sévèrement aux améliorations énormes en imagerie - dans l'espace direct, donc- reste incontournable. Elle donne une réponse globale, rapide, pour laquelle il existe une grande maîtrise de l'interprétation, dans toutes sortes de conditions expérimentales, à des échelles assez petites où l'imagerie reste limitée, et qu'il reste difficile de simuler par des systèmes de tailles plus grandes où la dynamique Brownienne est moins importante.

Parmi les techniques de diffraction, celles utilisant les neutrons ont été pour leur part confrontées aux progrès des rayons X. Elles restent cependant très avantageées par les possibilités de marquage. Leur faiblesse - le flux, disparaîtrait si l'on gagnait un gros facteur en flux, comme le facteur 10 à 50 escompté sur les cibles de l'ESS, voire plus en combinant avec d'autres améliorations.

Reste le prix, mais il ne faut pas oublier que ces techniques sont très applicables à la recherche et développement technologique ; ce texte insistera même sur le fait que ceci s'impose dès maintenant.

I- Prospectives sur les champs d'application des neutrons en matière molle.

Comme annoncé en introduction, c'est la toute puissance du marquage (la deutériation est de plus en plus accessible, commercialement ou parce que de nombreux chimistes sont maintenant impliqués dans les projets), qui domine le domaine : la matière molle implique à la fois l'hydrogène (remplaçable par le deutérium) et des systèmes « ternaires », voire multiples, c'est-à-dire des mélanges de plus de deux types d'objets. Ils impliquent souvent des arrangements entre objets différents, par exemple des polymères et des particules, ou des tensioactifs, ce qu'on appelle des systèmes mixtes. Comme complexe ne veut pas dire vague, la grande précision des données est très appréciable.

Des problèmes fondamentaux sont posés dans ces « systèmes mixtes » : => forme de chaînes greffées sur une particule, potentiel d'interaction entre colloïdes, fluctuations de membranes modifiées par la présence d'un polymère...

Mais il existe aussi une dimension appliquée, dans la grande course aux nouveaux matériaux :

- nanomatériaux d'une part, faits d'objets de dizaines / centaines de nanomètres, conçus pour améliorer les propriétés ultimes (mécaniques, opto-électroniques, chimiques), ou pour préserver l'environnement (systèmes dans l'eau, marquables par l'eau lourde)...

- biomatériaux : produits à vocation biologique, médicale, comme en pharmaceutique (encapsulation pour la vectorisation par exemple) d'une part, et d'autre part, « biomimétique » (intérêt à nouveau de l'eau lourde).

On s'oriente ainsi vers des systèmes mixtes de plus en plus complexes, dont nous donnons rapidement quelques exemples :

- pharmaceutique, biomimétique : ADN plus polymère cationique, vésicules de tensioactifs (lipides) + polymère

- systèmes mixtes en milieux aqueux, avec des polymères éventuellement d'origine naturelle : tensioactifs plus polysides (Rhodia Cranbury)

- matériaux : composites, petites particules greffées, copolymères hyperbranchés

- interfaces mixtes : membranes, couches lipides + protéines,

- interfaces et propriétés mécaniques: problèmes d'adhésion

- mélanges de polymères : études de leur dynamique pour comprendre leurs propriétés mécaniques

- systèmes confinés, dans des milieux poreux (aléatoires ou calibrés comme les mésoporeux)

D'autre part un des avantages bien connus, le pouvoir pénétrant des neutrons trouve dans ce domaine de grands champs d'utilisation, à chaque fois que l'environnement échantillon est lui-même complexe :

- rhéologie : on connaît le succès récent de toute sorte de « rhéo- DNPA », mais on peut aller plus loin encore, comme pour la chimie réactive dans une vis à extrusion.

- excitations électriques ou magnétiques

- réflectivité sur des surfaces enterrées, etc.

Or l'usage de machines est justement fréquent sur ces systèmes complexes. Bien sûr, ces problèmes industriels n'en font pas moins ressortir des problèmes fondamentaux, parfois considérés comme trop difficiles mais très importants en pratique, comme la forme d'une chaîne dans les polymères sous très fort cisaillement.

II- Avantages d'une source à spallation à haut flux dans les différentes techniques.

Nous avons choisi de faire un bilan par techniques, car celles-ci ne s'intéressent pas toujours aux mêmes domaines de la matière molle. Dans chaque cas le maître mot est le flux et le temps de comptage. Nous nous appuyons sur les estimations disponibles, en particulier les bilans des calculs sur les modérateurs froids présentés à TRESSES par Ferenc Mezei. Le point clé étant l'obtention d'un flux global identique à l'ILL en neutrons froids (Fig. 1), ce qui amène via les avantages du temps de vol, à un gain minimum de 10, voire 50 pour certaines techniques.

L'autre point clé est la possibilité de combiner ce gain avec d'autres gains, de 10 à 100 suivant les techniques, accessibles sur un réacteur à flux continu, mais d'autant plus avantageux (vu leur prix) que l'on gagne en flux de base, en modernité, en durée de vie de l'installation... Tout compris on peut prévoir, avec optimisme certes, un gain de 1000. Ce

serait alors un véritable avancée, et les neutrons deviennent très performants comparés aux synchrotrons, avec un prix plus élevé que justifie leur complémentarité.

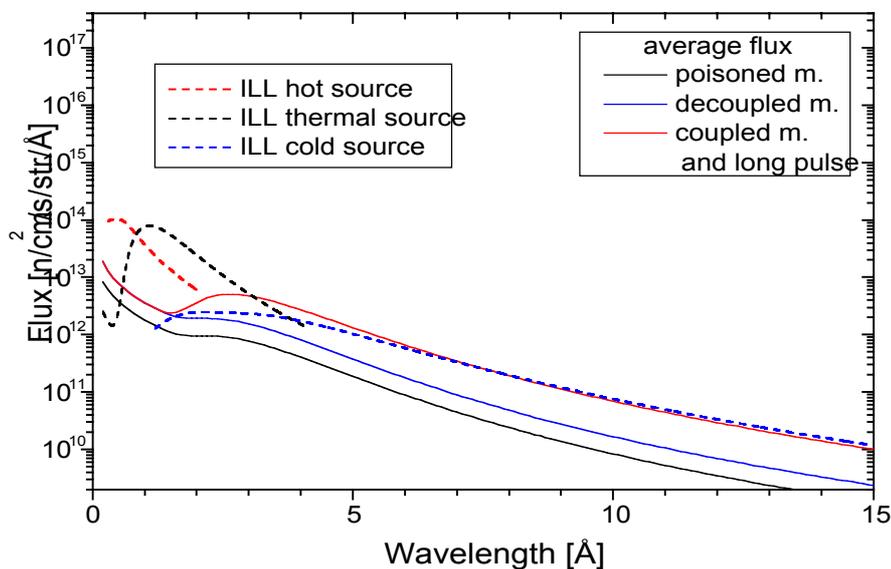


Figure 1 : comparaison de flux entre les modérateurs de l'E.S.S. (empoisonné, découplé, couplé avec impulsion longue) et les sources (froide, chaude et modérateur général « thermique ») de l'ILL, d'après Ferenc Mezei et al. .

Nous détaillons maintenant ci-dessous les applications prospectives pour les quatre techniques essentielles. En fait, le texte consacré à la DNPA sera le plus détaillé sur les aspects techniques entre particulier, en partie à cause de l'auteur, en partie à cause du nombre important d'utilisateurs : mais certaines propositions sur les systèmes sont valables pour les autres techniques.

II-1 DNPA

II-1-a Capacités escomptées.

Dans cette technique, l'utilisation d'une analyse en temps de vol est évidemment la plus avantageuse, en combinaison avec le pulse long qui permet d'obtenir le flux moyen de l'ILL. L'analyse en temps de vol permet d'utiliser toute la distribution en longueur d'onde, soit un gain d'un facteur 10 par rapport à un sélecteur mécanique, et donc par

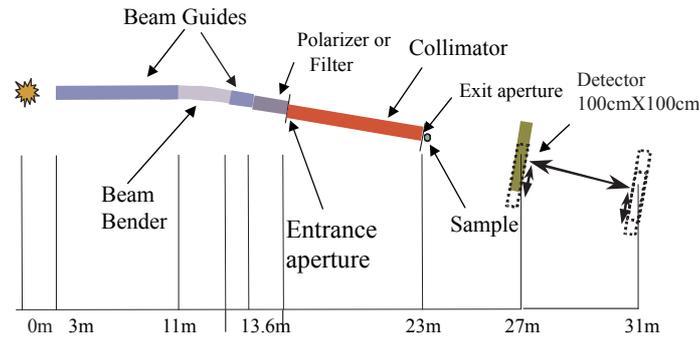
rapport à l'ILL. A cause du pulse long, la définition en longueur d'onde ne sera pas inférieure à $\Delta\lambda/\lambda \sim 10\%$, ce qui est comparable aux sélecteurs mécaniques, donc tout-à-fait convenable. Un pulse court permettrait une meilleure résolution ($\Delta\lambda/\lambda \sim 1\%$), mais les applications semblent pour l'instant moins nombreuses (nous les développons ci-dessous). Dans tous les cas, comme illustré par Jean-Pierre Cotton, on est limité en gammes de distance et/ou de longueur d'onde mesurable en une fois (typiquement 5 à 15 Angströms à 15 m distance totale parcourue depuis le modérateur ; il faut éviter le recouvrement des pulses -frame overlap). Comme il est prévu d'utiliser de grands multi-détecteurs (1m par 1m), la gamme de q accessible en une fois est néanmoins très grande, et cela est extrêmement utile à un utilisateur pour affiner rapidement sa stratégie.

Nous pouvons nous référer à une autre estimation, celle des concepteurs des spectromètres Petits Angles pour la source à spallation américaine (S.N.S.), sous l'égide annoncée de J. Carpenter, qui en est un spécialiste reconnu. La Figure 2 montre un gain de plus de 10 par rapport au spectromètre D22 (le plus haut flux actuel au monde) de l'ILL. Notons aussi l'usage d'un grand multi-détecteur (supérieur à 1 m de côté), et aussi de détecteurs grands angles sur les côtés.

Bien sûr toutes ces estimations dépendent grandement de la collimation angulaire $\Delta\theta$, c'est-à-dire de la taille des diaphragmes utilisés et des distances échantillon - détecteur, etc.. choisies. Or l'intensité varie en $\Delta\theta^4$...

On peut combiner ces gains d'intensité avec d'autres comme ceux produits par un miroir focalisant (qui nécessite néanmoins un plus grand échantillon), ou des lentilles : les lentilles à indice ne permettent pas une analyse en temps de vol (il reste à vérifier, de plus, la qualité du faisceau), les lentilles magnétiques sont à l'étude.

Scattered flux at BRIMS and D22 (Thiyararajan - Carpenter)



SNS -> ESS : 2->5 Mw + pulse-> long.

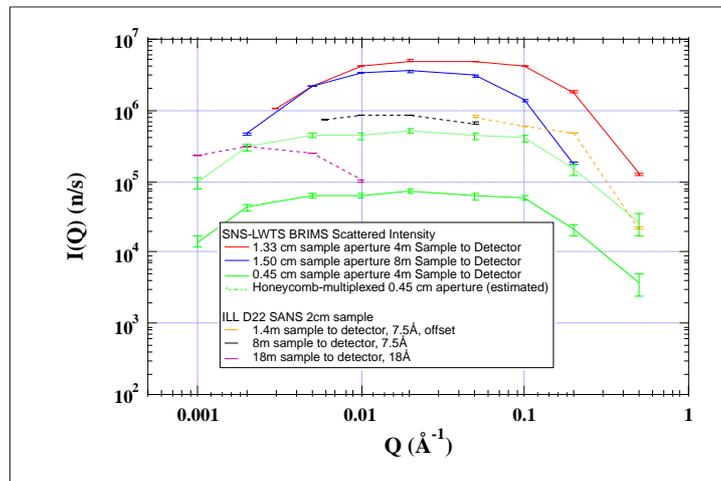


Figure 2 : schéma d'un spectromètre (« BRIMS ») prévu pour la source américaine SNS, et estimation du flux comparée à celles de D22 à l'ILL, d'après Thiyararajan et Carpenter.

II-1-b Difficultés.

Il existe plusieurs difficultés à surmonter :

- la fabrication de multi - détecteurs de grande taille rapides (très haut taux de comptage) : bonne nouvelle, celle-ci est en nette amélioration à l'I.L.L. depuis récemment (10^6 Hz), pour les mesures à très forte diffusion en cinétique par exemple.

- les bruits de fond :

- d'une part les neutrons épicaudmiques etc., imposant la NECESSITE d'une EXCELLENTE PROTECTION.

- d'autre part l'estimation du bruit de fond incohérent (surtout en matière molle à cause des noyaux hydrogène), qu'il faut soustraire (et qui exacerbent les problèmes d'inélasticité évoqués quelques lignes plus bas). Il faut donc distinguer à cet égard :

- les systèmes à faible diffusion qui bénéficieraient d'un haut flux mais présentent hélas aussi un mauvais rapport signal/bruit (exemple d'un polyélectrolyte dans un mélange eau lourde/ eau légère).

- les systèmes à fort rapport signal / bruit comme un aérogel de silice, un gel de protéine dans l'eau lourde, ou une phase lamellaire de tensioactif dans l'eau lourde, qui ne posent aucun problème à ce niveau.

- la normalisation par l'eau qui doit être mesurée en fonction de λ elle aussi, ce qui semble faisable, tout comme pour la transmission du faisceau, en fonction de λ également.

- les problèmes d'inélasticité (à nouveau très pertinents pour tous ces matériaux contenant de l'hydrogène), qui sont, clairement, à étudier de près. Au même q peuvent correspondre des angles différents avec des longueurs d'onde différentes, qui ne sont pas sensibles de la même façon à l'inélasticité. Mais, comme le fait remarquer Claude Fermon, il faut reconnaître que ces problèmes existent aussi sur les sources continues, à l'état caché, et que l'on peut somme toute espérer une amélioration dès lors qu'on fait face au problème, ce qui est impératif en temps de vol sur une source à spallation.

- la stabilité de la cible, spatiale et temporelle, qui conditionne en particulier la distribution en longueur d'onde $P(\lambda)$ est à vérifier en permanence, comme remarqué par C. Fermon.

II-1-c Développements techniques.

Au point de vue de la technique, l'amélioration évidente serait le passage à de très petits q , permettant le lien ou les mêmes performances que la diffusion de lumière. Pour cela il faut viser de Très Petits Angles (TPA, ou en Anglais Ultra SANS). On peut penser à la solution « pine hole » (cf. Saclay), avec éventuellement un miroir focalisant (Jülich). Il n'est pas clair que le gain en flux à l'E.S.S. soit suffisant, mais il permettra de passer au moins à un régime confortable. Une autre solution est celle d'un double monochromateur silicium (Double Cristal Diffractometer), correspondant à la caméra Bonze et Hart en Rayons X. Cette dernière technique peut être rendue plus performante en flux par

l'utilisation de plusieurs faisceaux à la fois, départagés ensuite grâce au temps de vol. Vu la faiblesse des signaux, le bruit de fond est ici un problème grave.

II-1-d Nouvelles expériences.

Pour ce qui est de nouveaux types de mesures, on peut penser exploiter un faisceau (pulse court) à bonne résolution ($\Delta\lambda/\lambda \sim 1\%$) : ainsi les pics de structure sont bien mieux définis et peuvent être séparés même si ils sont plus nombreux, ou plus faibles ; cela concerne beaucoup de système auto - organisés en phases cristal liquide, ou autres : savons, copolymères, systèmes auto- associatifs. Des particules de forme simple peuvent être mieux analysées, la polydispersité prise en compte...En rhéophysique de telles phases, on peut accéder à beaucoup plus d'information, mais ces systèmes sont malheureusement rarement des cristaux parfaits, et rarement des poudres parfaites. L'interprétation est souvent difficile, même s'il existe des cas exemplaires.

Une autre application évidente est celle des études cinétiques, rendues possibles par fort flux. Déjà, sur le spectromètre de DNPA D22 à l'ILL Isabelle Grillo a mis au point une cellule de stop flow et observé des cinétiques de 100 msec. On peut aussi poursuivre des études en température (T-jump pour la démixtion de polymères, Imperial College), en pression (application d'une pression osmotique également), en cisaillement : le « Hashimoto project » d'étude du « phasing », c'est-à-dire de la création de nouvelles phases (nouveaux matériaux) sous cisaillement bénéficierait beaucoup d'études in situ. En biologie on peut espérer étudier des phénomènes transitoires comme le repliement des protéines. En appliquant des champs (magnétique sur des part. magnétiques, électrique sur gels), on peut sonder les structures de matériaux adaptatifs.

On peut également songer à utiliser la structure temporelle du faisceau (H. Glattli, C. Fermon). Mais il nous semble que cela impose la fenêtre de temps, qui est celle du pulse (1/16 ou 1/50 de seconde).

Un projet un peu science fiction, mais très séduisant serait de coupler les bouffées de neutrons (« pulses ») avec des impulsions de type résonance magnétique (RMN). On peut espérer (cf. H. Glattli à nouveau) polariser sélectivement le spin de certains noyaux, ce qui reviendrait à un marquage ad hoc via une fréquence RMN bien définie. D'une façon

moins sophistiquée, on peut envisager d'autres « marquages » cinétiques : chimie, photochimie.

En restant dans l'utilisation du hachage du faisceau pour des phénomènes transitoires, rappelons la technique de focalisation en temps (Gahler, Munich) qui permet d'atteindre des temps assez courts (microsecondes).

Notons que les techniques sophistiquées : obtention de signaux croisés, triangulations, restent peu utilisées, en partie sans doute à cause de l'erreur statistique, et pourraient être développées avec un flux plus grand.

II-1-e Programmes de traitement.

Il est clair également que le développement d'un arsenal complet de logiciels de dépouillement aisés (« user friendly ») contribuerait beaucoup aux performances accessibles en pratique.

II-2 Réflectivité

Le gain est ici comme pour toute technique utilisant déjà le temps de vol sur un réacteur continu, assez important (voir Figure 3 due à A. Menelle), environ 30 fois l'I.L.L.

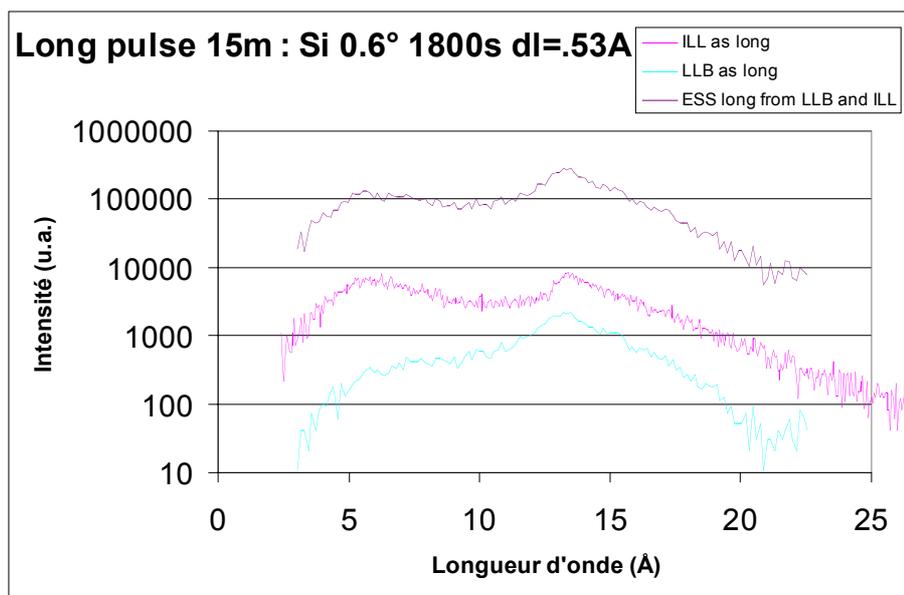


Figure 3 : comparaison de flux pour un réflectomètre à temps de vol, d'après Alain Menelle.

Cela permettra :

- l'utilisation de petites superficies, donc des échantillons beaucoup plus homogènes, et beaucoup plus faciles à fabriquer.

- l'étude de cinétiques de construction, de restructuration d'une surface : adsorption progressive, déplacement d'une espèce par une autre, relaxation en contrainte, cycles de compression/décompression par piston de Langmuir. De telles cinétiques sont fréquentes pour les interfaces complexes (plusieurs constituants, plusieurs couches) qui sont justement celles où les neutrons sont intéressants grâce aux jeux sur les contrastes et à la précision des mesures.

- les mesures en « hors- spéculaire », pour observer ce qui se passe dans le plan de l'échantillon : homogénéité, ou distance répétitive entre agrégats de surface.

- l'accès aux très faibles réflectivités (si le bruit de fond le permet), donc à des très grands k_s , soit des petites distances (quelques Angströms), qui peuvent dominer certains processus, comme l'adhésion.

Dans cette technique, le gain pour la matière molle est tout-à-fait clair, au moment où les utilisateurs y redécouvrent les avantages du marquage qui rend l'ajustement des profils- un art délicat - plus facile qu'aux rayons X.

II-3 Temps de Vol

Puisque cette technique de diffraction inélastique utilise bien sûr un faisceau haché sur réacteur continu, le gain à puissance globale égale, est (comme pour la réflectivité à temps de vol) important par rapport au réacteur continu : un facteur 30, qu'il faut combiner avec les gains de 50 escomptés dans l'avenir du flux continu sur les prochaines machines de l'I.L.L. Il faudra rester très vigilants sur le rapport signal / bruit neutronique.

Les mesures inélastiques par Temps de Vol (ajoutons-y la Rétrodiffusion) concernent des temps très courts, donc en général des échelles courtes. Ils sont néanmoins importants en Matière Molle où la connaissance du phénomène à petite échelle conditionne celle des échelles plus grandes. Quelques études y sont reconnues : polymères, polymères cristaux liquides, transition vitreuse. Elles devraient être plus nombreuses (ex : polymères conjugués dopés, transition vitreuse en couches minces). Le

passage d'un comportement de vibration à un comportement de relaxation, de mouvements locaux à des mouvements à longue portée, cohérents est intéressant du point de vue fondamental. La densité d'état reste une information de haute qualité pour une étude approfondie d'une situation. Le marquage par deutériation peut permettre de voir quelle zone est impliquée et comment (séquences d'une espèce polymère dans un mélange par exemple).

L'étude des interfaces, des membranes, des films de Langmuir – Blodgett serait très intéressante. On peut envisager, en termes futuristes, une analyse inélastique par temps de Vol aux Petits Angles, ou en réflectivité hors –spéculaire.

II-4 Spin echo

Les gains escomptés pour cette technique peuvent à mon sens (et comme l'a démontré à TRESSES Bela Farago) surmonter les limitations présentes, qui sont les suivantes :

- les mesures restent actuellement longues (ex. une semaine),
- la fenêtre de temps est actuellement étroite : ainsi d'une part pour étudier un processus dynamique donné, le système doit être soigneusement choisi et risque de ne pas être celui qui est disponible. D'autre part pour un système donné, il faudra pour toute information dynamique à d'autres échelles d'autres techniques, avec des raccordements difficiles.

Grâce à des flippers modulés en temps, le gain en flux sera voisin de celui de la DNPA, mais surtout on peut explorer à la fois une plus grande gamme en temps caractéristique (qui varie en λ^3) et en vecteur de diffraction q (dont les temps dépendent souvent très fortement). Le potentiel de la technique me semble ainsi fortement augmenté.

D'une part donc un simple gain de 10 pourrait être décisif pour une utilisation plus large, du type de celui de la DNPA actuellement. D'autre part, d'un point de vue purement temporel, l'accès à des temps aussi longs que 10^{-6} secondes ouvre en fait un accès aux propriétés mécaniques, électriques, électronique macroscopique du même système. En combinant avec d'autres gains (multi - détecteurs, focalisation), on pourrait obtenir un saut qualitatif décisif. Il faudrait, dans ce cas extrême, revoir tout l'abord du domaine, réfléchir

à nouveau aux systèmes à étudier. Bien sûr l'aspect matériaux, jusqu'à présent un peu complexe pour cette technique se fait dans ce cas plus attractif.

En restant dans l'hypothèse de gains raisonnables, on peut citer comme exemples ceux de la DNPA, version dynamique : systèmes à faible section efficace (polyélectrolytes), systèmes mixtes, exemple dynamique d'un polymère ancré dans une membrane de tensioactif, greffé sur une particule, environnement complexe : polymère confiné dans un poreux.

Il faut aussi citer le Spin Echo sans champ, qui permet l'accès à des temps plus courts intermédiaires entre NSE en champ et Temps de vol (Muses au LLB à Saclay).

II-5 Une très grande gamme de Q en même temps

La possibilité de mesure sur une assez grande gamme de q existe déjà aux petits angles, par la gamme de longueur d'onde et d'angles sur multi-détecteur, auxquels il est possible d'adjoindre des détecteurs de côté. En étendant ceux-ci aux plus grands angles possibles, tout ceci étant combiné au temps de vol, il serait possible d'atteindre une gamme quasi-complète. Cela permettra une étude simultanée de cinétiques, de matériaux complexes + ou - hors équilibre, dont les échantillons sont difficiles à reproduire à l'identique, de systèmes en machines... Dans ces matériaux multi-échelles, il existe des processus à la fois à grands q et petits q . Citons la transition vitreuse, l'associativité, les polyélectrolytes (les distances concernées par la condensation, la longueur de persistance, l'écrantage peuvent être différentes), les nanocomposites (interphase de taille faible, réarrangement des particules à plus grande taille), les mousses (adsorption d'additifs, épaisseur de la membrane).

De même, des études simultanées de statique et de dynamique seraient très productives : DNPA et spectroscopie par temps de vol. Reste, par exemple, que les formes usuelles d'échantillons sont pour l'instant différentes pour chaque technique.

III- Conclusion et ultimes desiderata.

La diffusion et la réflectivité de neutrons, élastique et inélastique, restent des techniques de choix en matière molle, où de nouveaux problèmes émergent particulièrement dans le domaine des systèmes mixtes et complexes développables pour les matériaux. Si l'on admet les dernières estimations en flux, le gain avec une source à spallation, combiné à d'autres gains indépendants de la spallation, est une avancée forte.

Les techniques restent limitées aux plus petits q s (ou k s). Un progrès que beaucoup souhaitent, serait une cible ultra- froide (e. g. 25 K) donnant accès à de plus grandes longueurs d'onde.

Pour s'assurer de toute la faisabilité, il faudra des simulations approfondies des spectromètres, allant jusqu'au signal final pour un système donné, ce qui est en principe en cours. Il faudra affiner ensuite la construction des appareils sans priver la communauté d'utilisateurs classiques,- essentiellement opportunistes dans ce domaine de la matière molle, c'est-à-dire intéressés aux résultats plus qu'aux développements techniques-d'activité pour une durée trop longue. **Pour cela il faudra conserver en activité au moins un réacteur continu en parallèle pendant longtemps.**

Chimie du Solide, Matériaux, Métallurgie

Daniel Fruchart

Laboratoire de Cristallographie du CNRS

Grenoble

Le présent rapport a bénéficié de la contribution des nombreux intervenants et des discussions prolongées qui ont fait suite. Les informations résultent autant des séances plénières dédiées aux différents types d'instrumentations, que des rapports finaux issus des sessions thématiques. Mais l'essentiel des arguments concernant ce rapport a été présenté et discuté lors du Forum Thématique "Chimie du Solide, Matériaux, Métallurgie" avec des interventions largement documentées faites successivement par J. Rodriguez-Carvajal (CEA), O. Isnard (Université) en collaboration avec M. Latroche (CNRS), T. Hansen (ILL) en collaboration avec P. Convert (ILL), I. Gorochenko (LLB & Dubna) en collaboration avec I. Mirebeau (LLB), A. Menelle (LLB), M.C. Bellissent-Funel (LLB), M. Ceretti (LLB). La participation de P. Radaelli (ISIS) et C.H. de Novion (LLB) ainsi que celle des 15 à 20 personnes qui ont assisté à la Table Ronde a été également constante et solidement argumentée.

Introduction

La Chimie, avec ses nombreuses spécialités couvre de vastes domaines à la spécificité bien établie, néanmoins souvent complémentaires. C'est une science qui pour une large part tire ses bases du fait expérimental, autant par l'observation de l'état de la liaison des éléments que par l'établissement du bilan des échanges d'énergie. C'est ainsi que pour de nombreuses branches de la Chimie, on analyse les liaisons interatomiques en termes statiques (distance, coordination, volume...) d'une part et dynamiques d'autre part (vibration, diffusion saut...) en ayant très spécifiquement recours aux techniques variées de la Diffusion Neutronique. Outre les secteurs ou disciplines qui sont expressément considérées dans le présent rapport, on peut citer de façon non exhaustive la Chimie des polymères, la Chimie des colloïdes, la Chimie du vivant, la Chimie atomique, la Thermodynamique et les équations d'états, la Chimie Physique, la Chimie réactionnelle et

la Catalyse..., qui toutes peuvent avoir intérêt à la Diffusion des Neutrons. Ces autres branches de la Chimie sont pour la plupart évoquées dans le cadre des autres Tables Rondes. En fait, aucune autre technique expérimentale ne peut proposer un panel aussi large de méthodes d'investigation aussi diverses. Cela découle des multiples aspects de l'interaction et de la diffusion du neutron par la matière : propriétés des interactions nucléaire, magnétique (électronique), élastique, inélastique, cohérente ou incohérente; aspects ordonné ou diffus ; possibilités de contraste des sections efficaces d'interaction et enfin grande pénétration du rayonnement neutronique observé pour la plupart des matériaux. La diffusion des neutrons thermiques permet de sonder "l'ordre" atomique de la matière solide pour deux caractéristiques fondamentales, **la métrique** (~ distance interatomique) et les **énergies** correspondant à la stabilité des assemblages atomiques ou moléculaires. Ainsi l'exploration de la liaison chimique peut se faire en analysant les paramètres d'ordre pertinents en chimie, comme en appliquant des contraintes telles la température, la pression, un potentiel électrochimique...

La matière considérée "stable" à basse température, sera finement sondée en utilisant les techniques variées de la "cristallographie" neutronique avec les avantages certains de la pénétration et de larges contrastes des sections efficaces. A des températures plus élevées, on remettra en cause certains des équilibres collectifs, moléculaires ou atomiques, alors l'interaction neutron-matière permettra de suivre la cinétique, la dynamique des transitions comme par exemple les transformations de phases à l'état solide, les vibrations moléculaires (harmoniques à anharmoniques) ou encore la diffusion de "particules" (protons par quasi-élastique)... En remettant plus en cause encore la stabilité du solide, les techniques neutroniques sondant par échange d'énergie ou non, suivront les processus majeurs intervenants lors des réactions chimiques, sinon les changements d'états de la matière. En retour, la cinétique de mise en forme des matériaux (trempe, hypertrempe...) conditionne la qualité de l'ordre atomique ou (et) l'existence de "défauts" à courte, moyenne ou longue distance. Là encore les techniques neutroniques apportent des renseignements uniques grâce à des techniques spécifiques (diffusion aux petits angles, diffusion diffuse, réflectométrie ...). La plupart des quantités mesurées relèvent du domaine de la chimie, dont par exemple les intérêts peuvent être élargis de la mesure des vibrations harmoniques ou enharmoniques, jusqu'aux propriétés mécaniques ou de la corrosion des matériaux.

Cependant le nombre d'Avogadro reste encore souvent le chiffre de référence de l'expérience. Et si les outils neutroniques sont à la fois puissants et uniques grâce à leurs multiples caractéristiques, il faut souvent constater que des flux neutroniques plus intenses encore que ceux des RHF sont éminemment souhaitables ($\sim 10^6$ - 10^9 n/cm²/s sur échantillon). De nos jours, le développement de flux neutroniques plus denses s'impose de manière critique en rapport à l'évolution marquée de la taille des systèmes étudiés vers les échelles micrométriques voir nanométriques. Les techniques neutroniques seront particulièrement efficaces en opérant avec de plus hauts flux, car la conception de meilleurs instruments, d'optiques et de détecteurs plus performants, de nouveaux algorithmes et méthodes d'analyse... est dès à présent engagée ou envisageable.

En matière de Chimie du Solide, Métallurgie et Matériaux, les communautés concernées sont donc en double attente :

- de flux neutroniques et de techniques éprouvées pour mener à bien des expériences dites "conventionnelles", mais pour obtenir des résultats uniques, inaccessibles par d'autres moyens,

- tout autant de flux et d'appareillages puissants adaptés à une recherche de pointe, sans cesse plus efficaces, en rapport avec les ambitions de la connaissance fondamentale et de la demande technologique de plus en plus exigeante (ex : petits systèmes, phénomènes fins, nombreux paramètres...).

La réflexion menée tout au long de TRESSES a permis de souligner que dans le domaine de la Chimie du Solide, les Matériaux, la Métallurgie, le recours à deux types de sources neutroniques permettra de pourvoir à cette double demande. Le débat mené lors de la Table Ronde résumée ici, a plus particulièrement porté sur la comparaison (ou des simulations) entre les techniques développées auprès de réacteurs à fission et celles implantées (ou à développer) près d'une source à spallation. Les avantages et inconvénients du principe de flux continu ou pulsé ont été répertoriés, autant que la valeur du flux maximal ou du flux intégré de neutrons disponibles. Ces chiffres ont fait l'objet d'exposés plus spécifiques en séance plénière, ils sont rapportés ici parallèlement. Dans les éléments de la comparaison faite entre les deux types de sources, un autre paramètre important a été pris en compte. Il s'agit de l'étendue du domaine de Q accessible (ou par ailleurs le volume du réseau réciproque), selon que l'on utilise la distribution énergétique d'un spectre de réacteur ou un spectre de spallation. Enfin, la discussion a également porté

sur la maîtrise à acquérir pour de nouvelles stratégies instrumentales et des procédures numériques spécifiques pour la mise en forme et l'interprétation de données, en densité très fortement accrue.

Les interventions ont été successivement centrées autour des sous-thèmes suivants :

- La détermination structurale précise : réseau et liaisons
- Expériences cinétiques réalisées in situ (temps, température, pression, potentiel...)
- L'observation très rapide et les mesures stroboscopiques
- La diffractométrie pour monocristaux
- Instrumentations lourdes : haute pression, haute température
- Matériaux à dimensions réduites : surface et interface, diffusion aux petits angles
- Défauts du réseaux cristallins : analyse des contraintes, texture, diffusion diffuse

Les phénomènes chimiques résolus en analyse d'énergie (inélastique, quasi-élastique...) sont essentiellement traités par ailleurs, dans le cadre des autres Tables Rondes.

I- La détermination structurale précise: maille et distances interatomiques

Les instruments de diffraction neutronique à haute résolution subissent partout une très forte pression de la part des utilisateurs cherchant à relier des détails fins mais très pertinents de la structure des matériaux à leurs propriétés physiques poussées à des niveaux inattendus voir extrêmes (ex : oxydes supraconducteurs à haut T_c , aimants permanents, matériaux GMR...). Il importe de combiner une excellente résolution en moment Q et un flux important sur l'échantillon, les formes mathématiques de profil et (ou) d'intégration assurant alors une haute résolution en intensité. La résolution en Q apporte le double avantage de la meilleure mesure des paramètres de réseau et de la meilleure séparation des pics de Bragg lors de l'intégration. La haute résolution est obtenue par exemple aux réacteurs de l'ILL sur D2B (1,594 Å) et du LLB sur G42 (2,34 Å) tous deux assortis de monochromateurs et de fentes de Soller sur les bancs multi-compteurs. Cependant le flux de neutrons utiles n'est pas des plus intenses, l'obtention d'un "bon" diffractogramme nécessite une pose minimale de 3 à 6 heures. La très haute résolution est obtenue par exemple auprès des sources à spallation d'Argonne (ANL) ou

d'ISIS sur le HRPD, sur des instruments dotés de choppers très rapides, donnant des pulses courts séparés d'un temps de vol suffisant. Des diffractogrammes très finement résolus tels que celui présenté à la **Figure 1**, peuvent être obtenus dans des temps sensiblement plus courts, ou alors sur des échantillons nettement plus petits. Cet avantage provient du fait que tous les neutrons du pulse sont des neutrons "utiles" et diffractés par l'échantillon, contrairement à ceux restés en dehors de la fine (résolution oblige) bande passante sélectionnée par le monochromateur. Un second avantage de la géométrie pulsée est la plus grande étendue de lecture dans l'espace des Q, et pour une comparaison des appareils performants, une meilleure résolution en Q sur une plus large gamme comme présenté à la **Figure 2**. Il en est ainsi qu'un spectromètre à temps de vol de résolution moyenne (POLARIS à ISIS) peut conduire à un facteur d'agrément R tout à fait équivalent à celui déduit des données obtenues sur un diffractomètre de bonne résolution (3T2 au LLB) - **Figures 3a et 3b**-, essentiellement pour le premier grâce à une plus grande fenêtre sur le réseau réciproque.

Cependant tout n'est pas aussi simple, et pour des raisons évidente d'encombrement et de géométrie autour de l'échantillon ce large domaine d'ouverture en Q n'est pas couvert par un détecteur (ensemble à pixels scintillateurs) unique. Il peut s'ensuivre de réelles difficultés dans l'indexation des très grosses structures ou les structures complexes (modulées) à partir des données poly-compteurs issues d'appareillages à temps de vol. Il y a aussi perte de qualité dans l'affinement des paramètres de maille, d'où une certaine limitation dans l'appréciation des distances interatomiques, alors que par ailleurs les positions atomiques (relatives) peuvent être déterminées plus finement.

La définition des profils de réflexions de Bragg à fin d'intégration et pour la détermination des facteurs de structure, passe par le lissage d'une forme mathématique, qu'on utilise un programme d'affinement de type profil (*) ou bien un logiciel d'intensités intégrées (MXD**). Les fonctions utilisées restent relativement simples dans le cas du diffractogramme conventionnel (Gaussienne, Lorentzienne, pseudo-Voigt, Cauchy..) et permettent de quantifier assez directement les causes expérimentales de l'élargissement des pics (résolution instrumentale, fautes d'empilement, contraintes dans l'échantillon...). Le lissage mathématique des profils non symétriques des raies de spectres de spallation est réellement plus ardu à mener avec jusqu'à 7 paramètres expérimentaux à introduire (au lieu des 3, U- V-W, cas du diffractomètre). A présent les experts assurent que l'on peut

également accéder à la nature physique de l'élargissement dû à l'échantillon, ce qui ne devra pas apparaître lors de l'exploitation de routine par des utilisateurs non avertis, comme un fourre-tout de confort pour structures approximativement affinées.

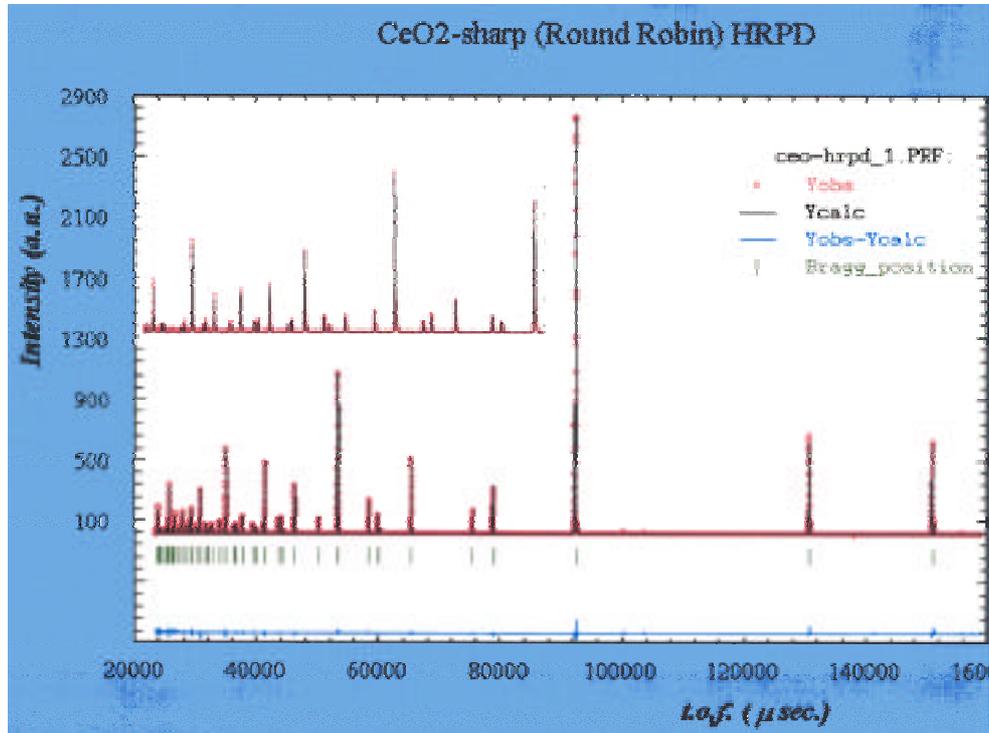


Figure 1.

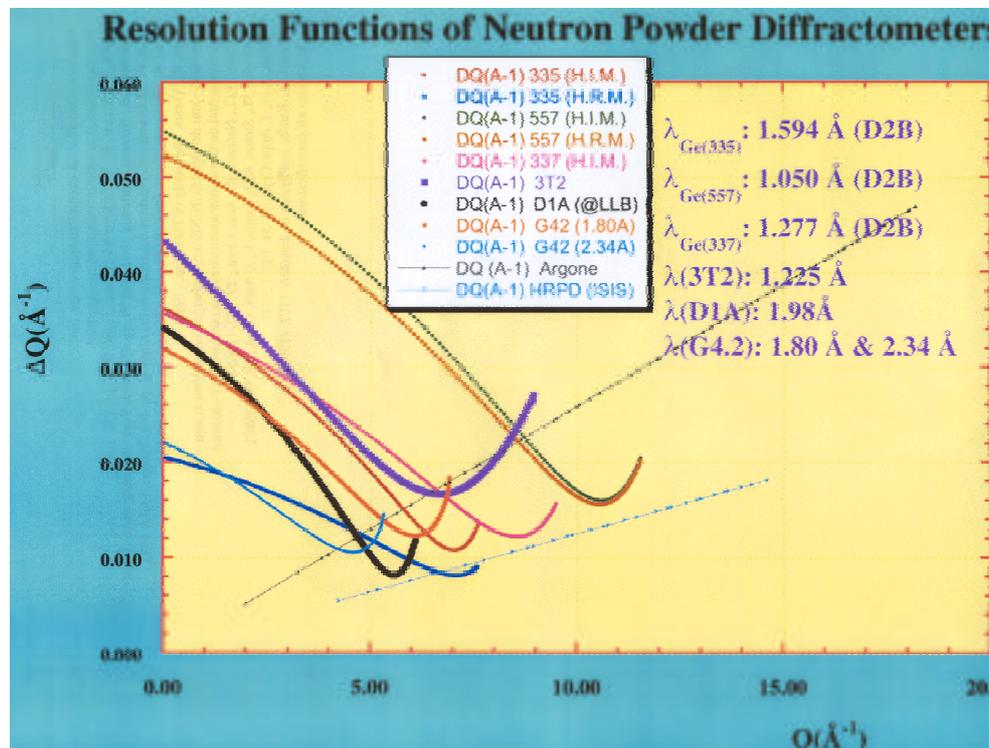
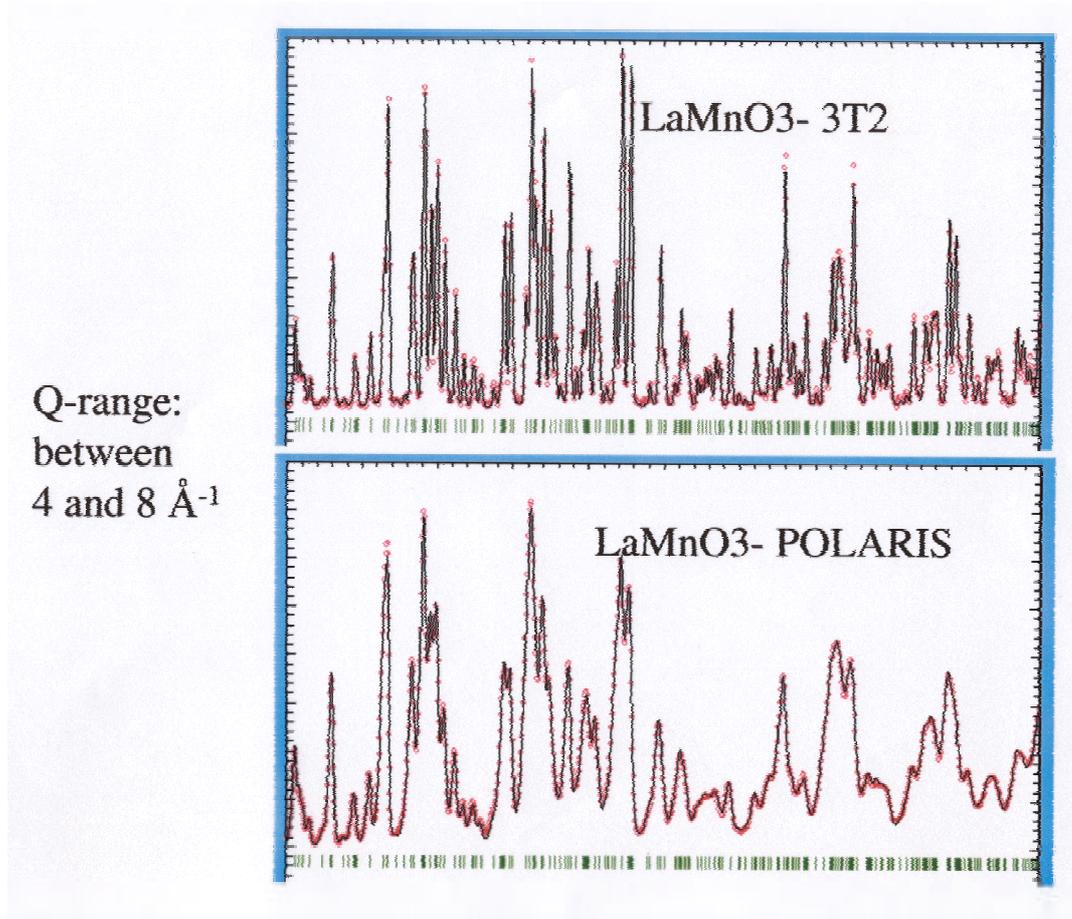


Figure 2.



Figures 3a-3b.

II- Expériences cinétiques réalisées in situ

Les expériences réalisées in situ au cours de transitions structurales ou de transformations de phases requièrent dans tous les cas le flux le plus important possible. La très moyenne résolution d'un multidétecteur comme D1B à l'ILL ou comme G4.1 au LLB résulte d'un choix réfléchi pour disposer d'un flux relativement élevé à 2,5 Å (~ 6 10⁶ n/cm²/s) à partir d'un monochromateur focalisant, ce qui ne renforce certes pas la résolution en Q. La bonne dynamique d'acquisition a permis de réaliser de multiples études cinétiques très riches en informations, en fonction du temps (ex : prise de ciments...), de la température (ex : formation d'alliages métastables, ordre magnétique...), de la pression (ex : transformations structurales...), d'un potentiel électrochimique (ex :

charge/décharge de batteries...), de réactions solide/gas (ex : hydrures intermétalliques...), de réactions de chimie-sorption... Actuellement la collecte d'informations pertinentes sur de tels diffractomètres appelés Position Sensitive Detectors (PSD) ne descend pas au dessous de quelques 3 à 5 minutes selon le type d'échantillon et son environnement. Une caractéristique importante du PSD est l'absence de déplacement mécanique lors de l'acquisition ce qui permet d'exploiter l'excellente stabilité de l'électronique de comptage ($\sim 10^{-4}$). Ce type d'appareillage est particulièrement utilisé par la communauté des physico-chimistes (solide, liquide, catalyse...) car il est tout à fait unique dans le monde de la neutronique. Cependant il importe de pouvoir ?

L'appareillage performant D20 installé à l'ILL près du réacteur bénéficie d'un flux plus élevé de plus d'un ordre de grandeur, d'un PSD à microstripes (meilleurs pas de résolution et dynamique d'acquisition). Selon l'échantillon et le phénomène étudiés, les temps d'enregistrement peuvent être inférieurs à 10^{-3} seconde. Il sera présenté et discuté plus en détail dans le paragraphe suivant.

Déjà, auprès de la source à spallation ISIS, un nouveau type de spectromètre en temps de vol tel que GEM a été mis au point, il est spécialement adapté aux études in-situ. Pour un flux initial comparable à celui de D1B par exemple, il permet de descendre à des temps d'acquisition inférieurs à la minute (ou d'explorer des échantillons de l'ordre de qq mg), avec une meilleure résolution angulaire et une plus large gamme de Q analysée (~ 1 à 20 \AA^{-1}) -**Figure 4**-. C'est probablement une instrumentation d'avenir pour les études in-situ de phénomènes "chimiques" rapides. La comparaison des flux effectifs des instruments D1B, D20 et GEM, est faite avec la **Figure 5** en fonction de la métrique réciproque. Il est clair qu'avec un flux initial plus important (ESS), un appareillage de type GEM, deviendra tout à fait concurrentiel à D20 pour beaucoup d'applications. Cependant, la nature discrète des zones de comptage ne permet pas un affinement de maille (voire l'indexation) aussi sûr qu'à partir des données d'un PSD construit d'un seul tenant.

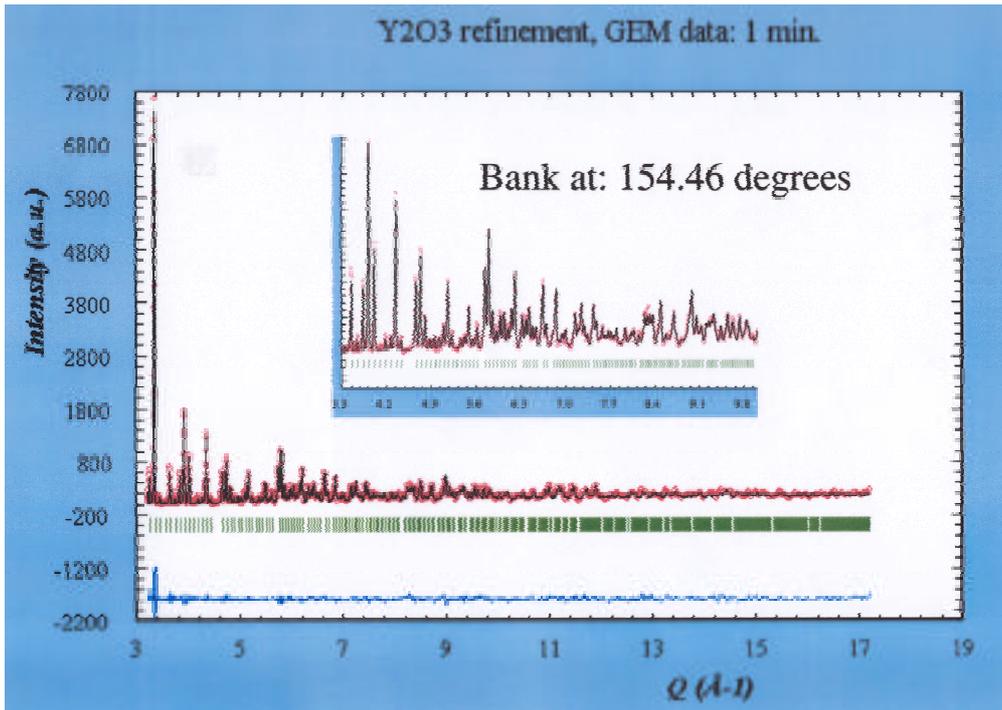


Figure 4.

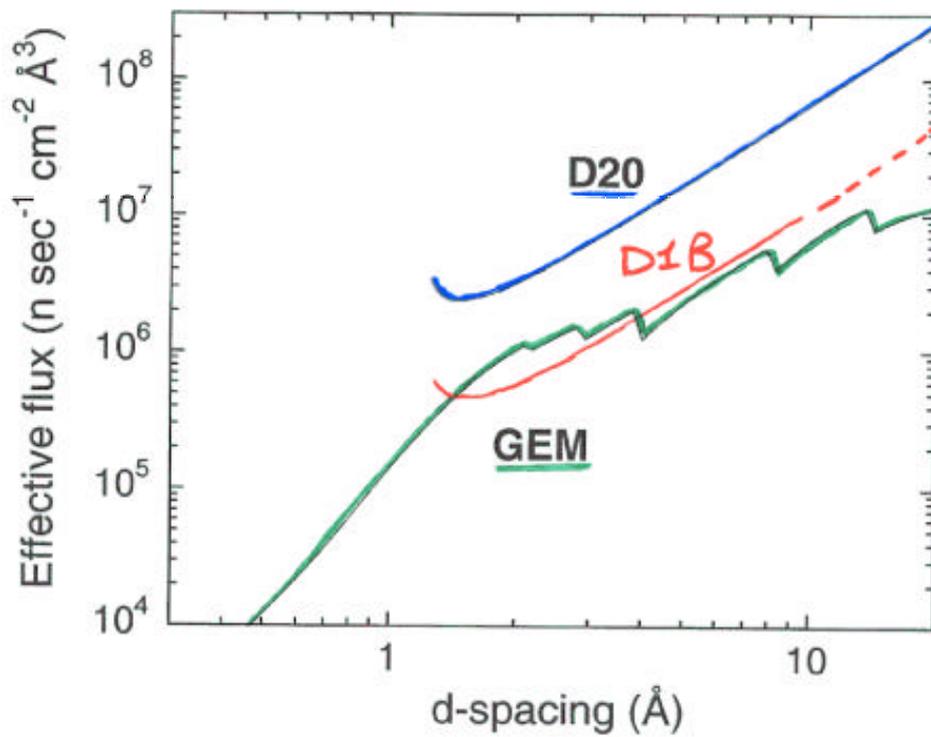


Figure 5.

III- L'observation très rapide et les mesures stroboscopiques

En fait l'intérêt de D20 en temps que PSD, outre de pouvoir procéder à des expériences cinétiques très fines (ex : cinétique de corrosion de surface sur 2_m pendant 48h dans des conditions "extrêmes"), est de permettre des mesures extrêmement rapides telles que les "one shot" (transformations irréversibles ou non) et les expériences réellement stroboscopiques (multicycles). Pour le premier type d'expériences, il est clair que les potentialités des spectromètres en temps de vol seront sans doute un peu au delà de ce qui peut être réalisé sur un PSD comme D20, tout dépendra du flux disponible auprès de la machine. Il est vrai que pour étudier ceux des phénomènes cycliques pouvant être mis en phase avec le pulse neutronique, l'intensité instantanée qui pourrait être de 2 ordres de grandeur supérieure à celle issue d'une source continue, se révélera constituer un avantage définitif. La **Figure 6** illustre une réaction d'hydratation (ciment), transformation complète en quelques dizaines de secondes, suivie pendant 10 mn au total sur D20.

Dans le cas des expériences stroboscopiques on peut penser que les expériences en phase avec les pulses de temps de vol seront largement favorisées, si de plus on dispose d'un flux intégré au moins 10 fois supérieur à ce que donne actuellement le RHF. En fait, pour des temps d'acquisition compris entre la ms et la μ s, la structure du pulse (distribution temporelle des énergies) devra elle même être questionnée : le temps initial de l'analyse spectroscopique devra être successivement déplacé d'une fraction significativement petite par rapport au pulse -**Figure 7**-. Ainsi après avoir finement partitionné la structure temporelle du pulse, l'analyse stroboscopique d'un phénomène très rapide pourra être reconstruite en intensités absolues à partir du mixage d'informations partielles stockées sous forme matricielle. Ce qui amène à considérer que les deux techniques "flux constant" et "temps de vol" doivent conduire approximativement à la même limite qui est de quelques μ s.

Egalement pour atteindre ce degré de "lecture" rapide, l'amélioration des deux approches technologiques nécessitera de pouvoir disposer de puissances de transfert et de stockage d'information bien plus importantes que celles dont on dispose actuellement.

- Hydratation *in situ* de ciments (Barnes, Cockroft et al.)
 - Hydratation et conversion du tri-calcium aluminate (Portland)

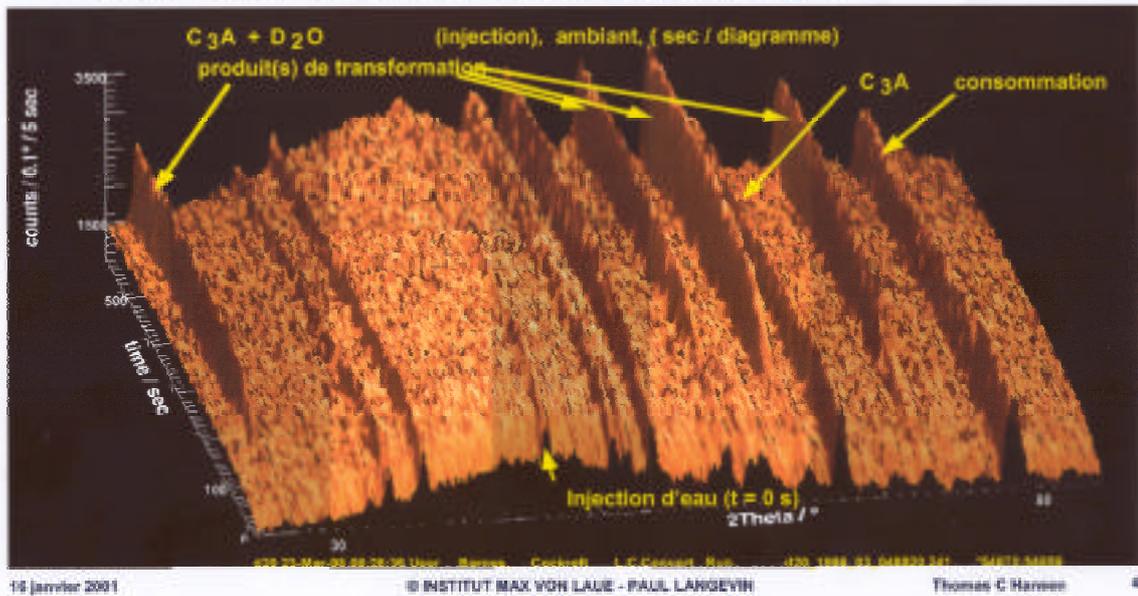


Figure 6.

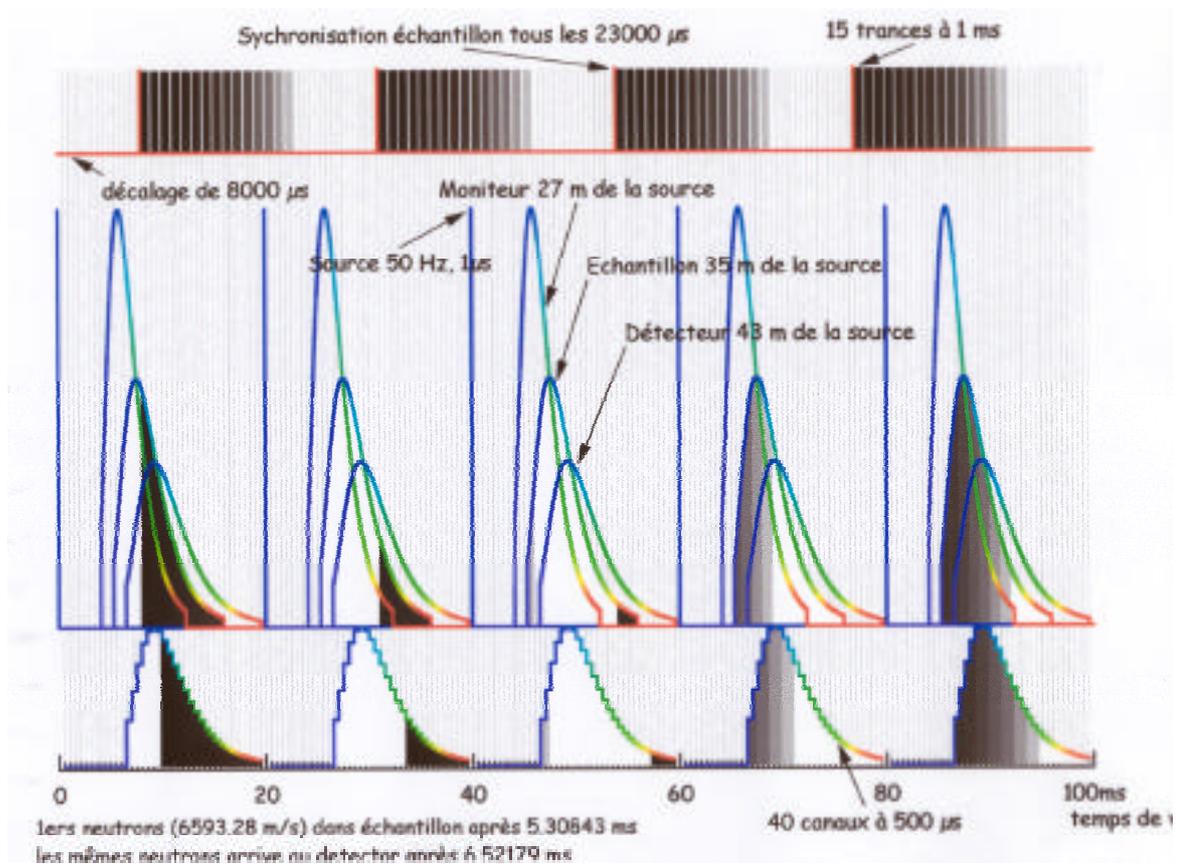


Figure 7.

IV- La diffractométrie pour monocristaux

Dans ce domaine, de grands progrès sont en cours avec l'avènement des techniques dérivées de la méthode de Laue, avec comme exemple l'appareillage de type LADI et de larges surfaces d'enregistrement (Image Plate). Plusieurs ordres de grandeur en temps d'acquisition sont ainsi gagnés par rapport à la technique classique du 4-cercle uni-compteur. Ces techniques implantées auprès de réacteurs à flux continu sont également valables lorsque mises en place sur des faisceaux pulsés, l'analyse en énergie réalisée à partir des détecteurs à scintillateurs permet alors de suivre la succession des ordres harmoniques de la diffraction en faisceau "blanc".

Cependant outre l'intérêt pour une meilleure dynamique d'acquisition, il importe de soigner le rapport signal/bruit, ce qui n'est pas forcément évident dans toutes les zones de l'espace réciproque lorsque l'on travaille en détecteur tout ouvert.

On doit également tenir compte du fait que par rapport à la mosaïque moyenne présentée par la majorité des échantillons monocristallins (matériaux solides), la monochromaticité et la divergence des faisceaux réacteurs peuvent être largement optimisées; la résolution supérieure fournie par la source à spallation ne constitue par un avantage de fait. Dans ce dernier cas, il conviendra également d'écrire des algorithmes puissants permettant de traiter efficacement les données entachées des phénomènes d'absorption, d'extinction secondaire, et encore de poly-diffraction lorsque l'on devra traiter un cristal maclé, maclage variable avec la température par exemple.

Par ailleurs, le diffractomètre classique implanté auprès de la source chaude d'un réacteur continu (ex : $\sim 0.8 \text{ \AA}$ = large domaine explorable en Q) et pourvu d'un détecteur 2D (ex : 64x64 pixels) reste un outil particulièrement puissant et précis car il permet d'intégrer globalement la tache de Bragg comme un objet 3D du réseau réciproque, pour une mesure optimale des facteurs de structures, données qui se prêtent bien alors aux corrections imposées par la qualité du cristal.

V- Instrumentations lourdes: haute pression, haute température...

Actuellement, l'instrumentation implantée auprès de G6.1 au LLB permet de réaliser des expériences sous pression (ou dans des conditions chargées d'environnement échantillon) d'excellente qualité en particulier grâce au montage de type "Paris-Edimbourg", au flux de neutrons froids (large dispersion) très propre issu d'un guide de neutron et à l'acquisition rapide par PSD. Des échantillons aussi petits que 0.01 mm^3 ont ainsi pu être mesurés, la pression pouvant être amenée à près de 30 GPa. La **Figure 8a** décrit la situation actuelle auprès des sources les plus performantes équipées pour les hautes pressions. Il va sans dire que pour atteindre des pressions plus élevées, les techniques qui s'imposent cumulent l'avantage des enclumes diamants et du faisceau neutronique transverse en temps de vol. Si un tel ensemble se révèle d'un rapport signal/bruit moins performant, le développement de plus hautes pressions et l'avènement de bien plus hauts flux permettent d'espérer une réelle compétition avec les techniques mises en place auprès du rayonnement synchrotron. La **Figure 8b** montre un schéma prospectif par rapport à la situation actuelle.

Pour résumer la situation il faut dire que les études sous pression trouveront des avantages tout à fait complémentaires au recours à l'un ou l'autre des deux types des sources neutroniques intenses. La petite taille de l'échantillon demande dans tous les cas de disposer du plus haut flux possible. Un faible bruit de fond (souvent en rapport avec la petite taille!) sera facilement réalisé en aval d'un guide neutronique (réacteur). Les transformations cristallographiques demandent la disposition de grandes valeurs de Q , et le contraire pour suivre l'évolution du magnétisme (ou des structures incommensurables). Ainsi, actuellement 98% des études réalisées au delà de 5 GPa sont faites en réacteurs conventionnels. Le domaine des pressions extrêmes ne pourra être abordé que sur des faisceaux temps de vol (très haute pression entraîne une forte collimation instrumentale). Il importe donc de considérer l'avènement d'une nouvelle source à très haut flux type ESS, sachant que de très nombreuses expériences fines seront avantageusement réalisées auprès des meilleurs réacteurs.

Dans le cas d'expériences à hautes ou très hautes températures, l'environnement-échantillon pourra être simplifié avec la géométrie en ligne propre au temps de vol, et l'utilisation de dispositifs de chauffage peu encore utilisés comme le four à induction ou le four à image.

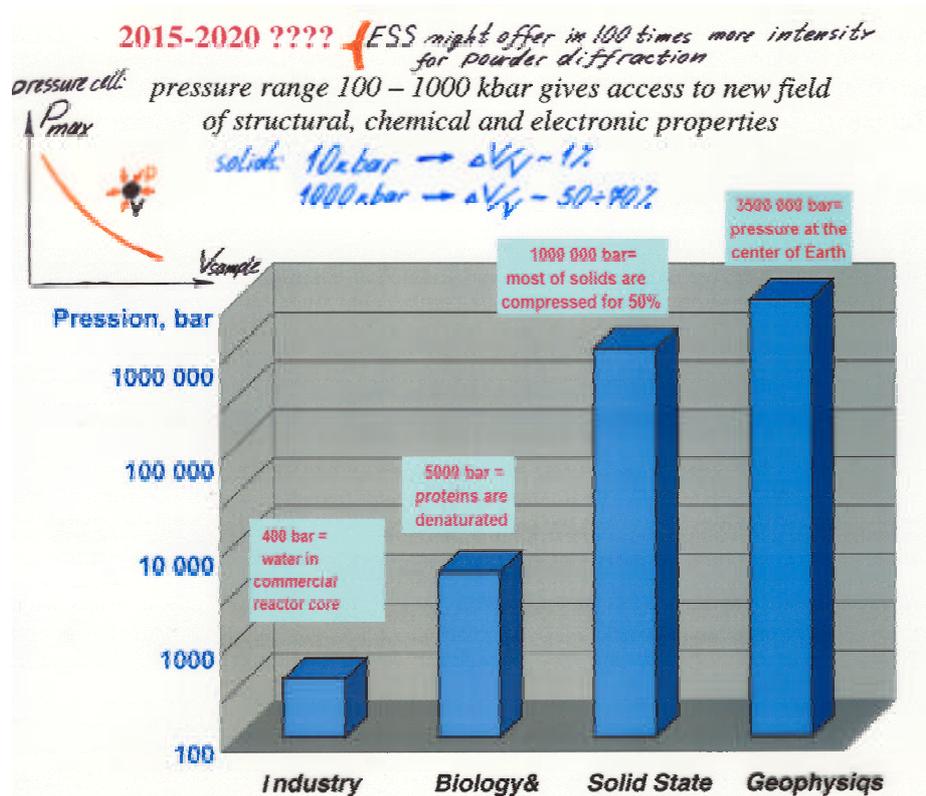


Figure 8a.

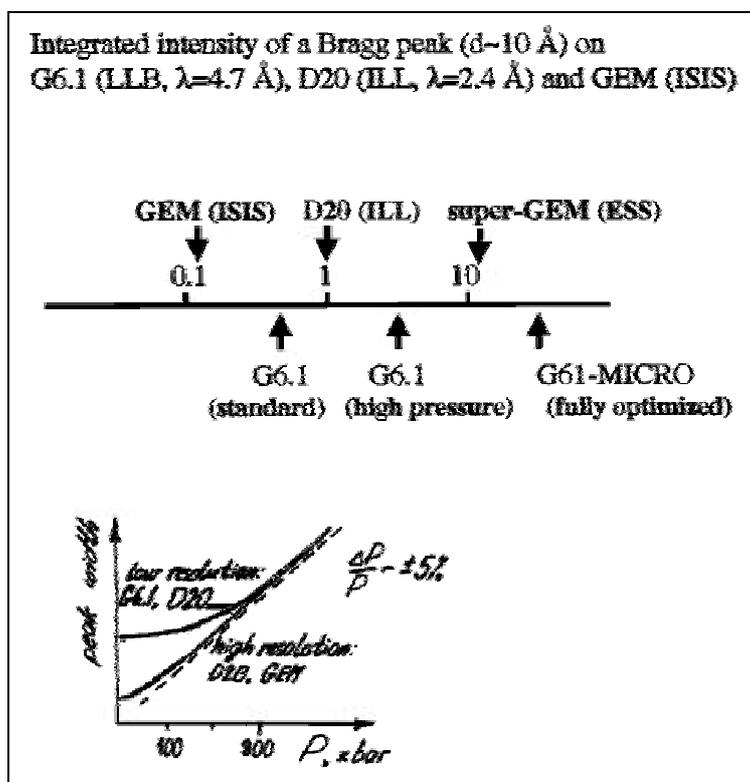


Figure 8b.

VI- Matériaux à dimensions réduites : surface et interface, petits angles (DPNA)

Dans le domaine des matériaux 2D, la quantité de matière sondée est le point critique qui impose de rechercher le meilleur flux. Il est aussi recommandé d'analyser les échantillons les plus petits possibles (en surface) car les plus homogènes et représentatifs, ce qui rejoint l'impératif de flux intense. Outre la caractérisation fine mais classique, les études s'orientent vers les phénomènes dépendant du temps (inélastique, in situ...). Dans tout ce domaine d'activités, viennent l'analyse des surfaces réactives (catalyse, migration, corrosion...) et les phénomènes aux interfaces (exemple liquide/solide, interdiffusion...).

Une autre question qui s'impose est de pouvoir mesurer des objets de plus en plus petits c'est à dire plus en détail (diffraction de surface), et avec les grandes valeurs de Q on n'observe que des objets assez larges, d'où intérêt à élargir le domaine exploré en Q .

Pour ce qui est de la DPNA, on retiendra que la source à spallation offre à priori le plus large domaine en Q . Cependant les options de base prises en tête de ligne (fréquence, pulse long ou pulse étroit, choix du modérateur) conditionnent à la fois le niveau de résolution et l'intensité du flux intégré sur l'échantillon. En fait, la solution pratique ne peut être qu'un compromis. Par exemple, la limitation de la durée des pulses afin d'éviter les recouvrements des signaux à la détection entraîne une perte de résolution. Pour atteindre de "bons" flux dans la gamme des tous petits angles (ex : détecteur à 20m, $\sim 5 \text{ \AA}$ _ modérateur froid), il sera espéré de pouvoir pulser la source à 5 Hz, ce qui n'est pas la fréquence la plus optimale pour le reste.

Il s'ensuit qu'il ne peut y avoir une solution unique, une machine pulsée ne peut résoudre tous les cas de figure, en tout cas un instrument global n'existera pas, et dans de nombreux cas le recours aux appareillages installés auprès de réacteurs apportera encore les informations les plus complètes et les plus fiables.

VII- Défauts du réseaux cristallins : contraintes, texture, diffusion diffuse

L'analyse des contraintes demande le meilleur flux pour la meilleure qualité de l'information (on sonde un petit volume, 1 à 10 mm³, dans un échantillon souvent épais de plusieurs cm), et la question de l'intensité du signal se pose en terme d'absorption massique -**Figure 9**-. Il est aussi nécessaire de disposer d'une excellente résolution car on travaille par déviation (différenciation) de la loi de Bragg. La déformation sera perçue comme une dispersion de position par technique monochromatisée, et comme une dispersion en longueur d'onde par technique de temps de vol. Le traitement des données est assez simple dans le premier cas puisqu'il s'agit de l'analyse d'un pic de Bragg, dans le second cas, il faut s'attendre à sonder temporellement plusieurs plans de diffraction à la fois, et savoir ainsi définir le volume sondé - **Figure 10**-. Cependant un haut flux (ex : détecteurs à 15 m, source à 50 Hz) permettrait d'analyser un volume aussi petit que 0.1mm³, et avec une haute résolution (ex : détecteurs à 50-75 m, source à ~ 10 Hz) on pourrait suivre des transitions de phases ou analyser des matériaux polyphasés.

Dans le cas des textures, l'intérêt de disposer de hauts flux est évident, outre l'analyse statistique améliorée, le temps de mesure reste souvent très important voir prohibitif avec des flux modérés. Cependant la définition du volume sondé comme l'analyse non univoque en terme de plan de Bragg, laisse aux instruments à faisceau continu un avantage indéniable quant au traitement des informations.

Dans le cas de la diffusion diffuse (liquides, amorphes, quasi-cristaux...), le faisceau neutronique doit être intense avec un excellent rapport signal/bruit. D'où la nécessité de disposer de sources chaudes. Déjà les spectromètres en temps de vol sont caractérisés par un plus large bruit que sur les diffractomètres à monocristaux, par ailleurs les premiers analysent de plus larges domaines en Q (0.1 à 60 Å⁻¹ avec SANDALS à ISIS). Cependant la couverture de ce large domaine angulaire est actuellement réalisée par un ensemble discret de détecteurs. Il s'ensuit déjà une difficulté d'ajustement ou recoil de ces détecteurs les uns avec les autres. La courbe de résolution de l'ensemble est donc plus délicate à établir. La stabilité du spectre lors de l'expérience doit être optimale, ce qui semble être plus facile à obtenir à partir d'un flux constant. Enfin, il faut noter que les corrections d'absorption se révèlent plus compliquées à appliquer dans le cas des appareillages en temps de vol, étape importante pour une bonne définition des facteurs de structure partiels.

Il y a donc nécessité de pouvoir disposer à la fois d'appareillages à haut flux (ex : petits échantillons, jusqu'à 25 mg à ISIS, temps d'acquisition courts), et d'appareillages peut être moins performants statistiquement parlant, mais plus fins dans l'analyse des facteurs de structure (ex : D4 à l'ILL équipé de plus larges détecteurs 2D).

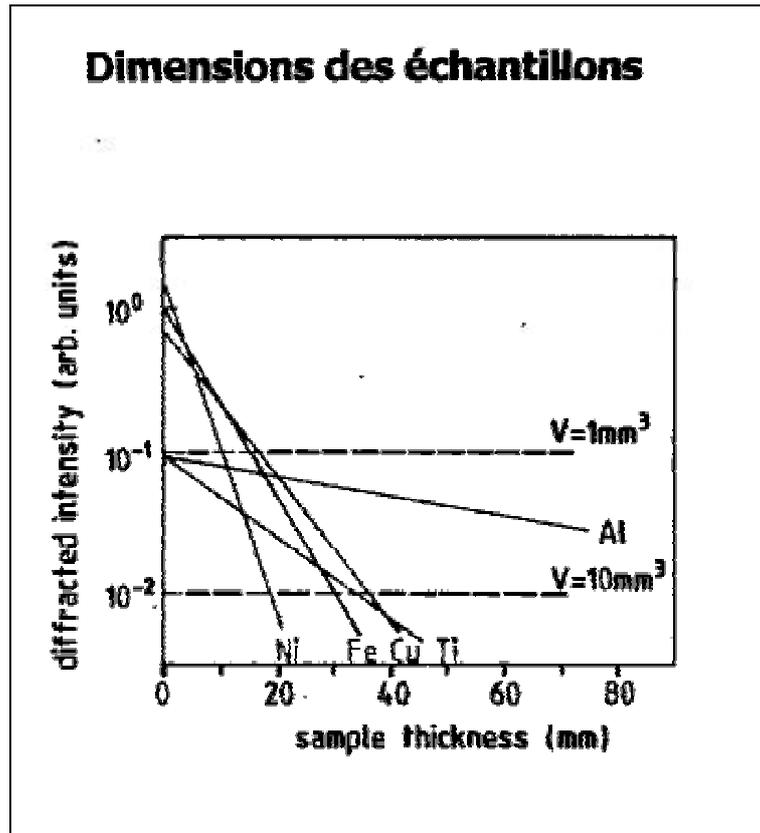


Figure 9.

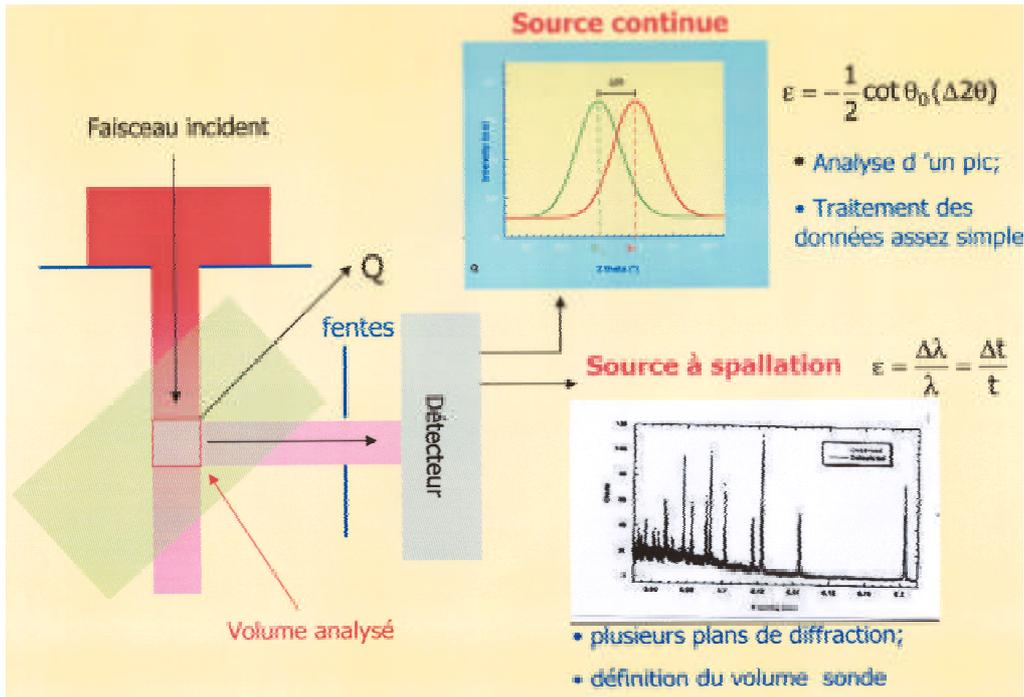


Figure 10.

Conclusions

Selon les options retenues pour la fréquence d'injection, la longueur temporelle des pulses, la nature des modérateurs, on prédit que la source pulsée ESS pourra dégager un flux intégré de l'ordre de 10 à 100 fois celui actuellement disponible à l'ILL, à résolution sensiblement égale. Il est clair que cela représente une option de choix, d'autant plus que le domaine en Q est plus conséquent sur source pulsée que sur réacteur à flux constant. Cependant tous les avantages ne sont pas cumulables simultanément pour bon nombre des techniques neutroniques les plus fréquemment utilisées pour la chimie du solide, la métallurgie et en science des matériaux. Il convient donc de minimiser certaines des limitations qui apparaissent aujourd'hui à la confrontation des expériences réalisées au LLB, à l'ILL et d'autre part à ISIS. Cela passera par des choix techniques (de la source au spectromètre), mais pour une part aussi dans la mise en œuvre de larges surfaces de détecteurs à scintillateurs (à un coût abordable), et enfin dans la mise au point de logiciels plus complexes certes, mais adaptés à la nature du temps de vol (ex : corrections d'absorption...).

Il n'en restera pas moins que des instruments seront spécifiquement plus efficaces lorsque installés sur des flux neutroniques constants. L'utilisateur devra donc orienter et justifier sa demande en fonction de critères plus sélectifs.

Il faut enfin relever qu'aujourd'hui les instruments disponibles dans les réacteurs à haut flux (LLB, ILL), n'ont pas toujours l'optique (guide et sélecteur), ni le système de comptage (détecteur et informatique), ni même la stratégie de mesure (mécanique et équipements auxiliaires) les plus efficaces. Dans certains cas jusqu'à un ordre de grandeur pourrait être gagné.

Mais on peut conclure que nombre des techniques neutroniques utilisées en chimie du solide, en science des matériaux comme en métallurgie, seront rendues largement plus performantes auprès de la source ESS.

Liquides et systèmes désordonnés

René Vacher

Laboratoire des Verres - Université de Montpellier II

Montpellier

Introduction

L'absence de périodicité, donc d'organisation à longue distance, l'évolution temporelle dans le cas des liquides, rendent l'étude de la structure et de la dynamique des systèmes désordonnés particulièrement complexe, ce qui explique que ces milieux aient été relativement peu étudiés jusqu'à un passé récent. Malgré ces difficultés, l'importance des liquides, des polymères et des verres, en particulier dans la science et la technologie des matériaux et des systèmes biologiques, justifie le regain d'intérêt dont leur étude bénéficie actuellement. Toutefois, malgré ces efforts et des succès réels, le chemin à parcourir pour parvenir à une compréhension raisonnable de l'organisation structurale, des mécanismes de diffusion et des modes de vibration reste considérable. La diffusion des neutrons, parce qu'elle est sensible à la position des noyaux, est une technique expérimentale de choix pour l'étude de ces problèmes : par exemple, c'est principalement grâce aux neutrons que l'on peut obtenir des résultats qui peuvent être comparés de façon quantitative aux prédictions théoriques ou aux résultats de simulations numériques.

I- Structure

I-1 Instruments

Les instruments utilisés pour l'étude de la structure des systèmes désordonnés sont principalement les diffractomètres de poudre et les appareils de diffusion aux petits angles.

I-2 Quelques questions ouvertes

Pour les *liquides moléculaires*, il est important de pouvoir séparer précisément les informations provenant de l'organisation intramoléculaire de celles qui traduisent l'arrangement des molécules entre elles. Ceci impose une étude dans une large gamme de vecteurs de diffusion Q , à grand Q pour préciser l'organisation à longue distance, et à petit Q pour permettre d'effectuer les corrections d'inélasticité

Dans les *liquides complexes*, il est indispensable de pouvoir mesurer avec précision les facteurs de structure partiels pour obtenir suffisamment d'information sur la structure. Parmi les processus à étudier, on peut citer la solvation, les cinétiques de réaction, les mécanismes électrochimiques, les changements de phase à l'état liquide, ce qui impose des flux intenses, une grande stabilité et un large domaine de Q . Un flux élevé rendra également possible l'étude des systèmes dilués.

Pour les *métaux et alliages liquides*, il est souhaitable de pouvoir calculer les potentiels interatomiques à partir de l'expérience ce qui impose de pouvoir faire avec précision les corrections indispensables. Il serait également très intéressant de pouvoir étudier la transition métal-semiconducteur.

Dans les *verres*, il faut faire progresser notre connaissance de l'ordre à courte distance. Ceci impose des mesures plus précises de la fonction de corrélation de paires, pour pouvoir obtenir des informations jusqu'à des distances de l'ordre du nanomètre. D'autre part la connaissance des facteurs de structure partiels est très importante. Enfin, la question de l'organisation aux longues distances reste totalement ouverte, et nécessite des études précises de diffusion aux petits angles.

I-3 Aspects techniques

L'ensemble des problèmes ci-dessus nécessite l'analyse d'un large domaine de Q , seul moyen pour permettre d'étendre l'échelle de longueur explorée. D'autre part, les corrections d'inélasticité imposent des mesures à petit vecteur de diffusion, qui sont largement facilitées par l'emploi de détecteurs bidimensionnels.

Dans les mesures aux petits angles, il est important de pouvoir étudier simultanément la structure et la dynamique.

L'une des forces des neutrons dans l'étude des facteurs de structure partiels est la possibilité de substitution isotopique : des informations précieuses sont obtenues par

différence et double différence entre des spectres mesurés sur des échantillons de composition isotopique différente. Une statistique élevée est indispensable pour l'exploitation des résultats.

Des progrès considérables pourront être obtenus avec des sources à flux élevé, et en faisant porter un effort particulier sur la stabilité du flux et de la forme des impulsions, ainsi que sur la précision des moniteurs.

II- Dynamique

II-1 Instruments

L'étude de la dynamique des systèmes désordonnés nécessite l'emploi des instruments de diffusion aux petits angles, des spectromètres en rétrodiffusion, en temps de vol et également des spectromètres trois-axes.

II-2 Quelques questions ouvertes

Pour les *liquides*, l'étude de la diffusion quasi-élastique est un moyen d'accéder aux temps de relaxation, et donc de mieux connaître les mécanismes de diffusion. On peut ainsi caractériser la transition qui apparaît au refroidissement entre un régime de liquide simple et un régime de ralentissement critique. Dans les liquides visqueux, l'étude de la relaxation de diffusion est particulièrement importante pour la compréhension de la transition vitreuse et des mécanismes coopératifs.

Dans les *verres*, la diffusion quasi-élastique renseigne sur les degrés de liberté de diffusion, associés par exemple à la conduction ionique et aux relaxations structurales liées au désordre. La corrélation dynamique-structure est alors particulièrement importante.

La nature des modes de vibration dans les *liquides* et les *verres* est encore mal comprise. Des progrès dans ce domaine peuvent également contribuer à éclairer notre compréhension de la structure. L'étude de la densité d'états vibrationnels doit être développée. D'autre part, la mesure des branches de dispersion acoustiques par diffusion Brillouin des neutrons pourrait fournir des renseignements sur les modes collectifs de vibration et sur la structure à l'échelle de quelques nanomètres.

II-3 Aspects techniques

La mise en œuvre de dispositifs permettant des études à haute température est indispensable.

L'étude essentielle de l'influence de la pression impose de couvrir une large gamme de Q avec une petite ouverture et en utilisant de petits échantillons, condition indispensable pour atteindre des pressions élevées.

Un gain substantiel de flux pourrait permettre d'effectuer l'analyse de la polarisation, en particulier dans le but de séparer les contributions cohérentes et incohérentes à petit Q . Il permettrait également l'étude sélective des facteurs de structure partiels dynamiques.

La réalisation de spectromètres en temps de vol à haute énergie permettrait de développer l'étude de la diffusion Brillouin en l'étendant en particulier aux solides désordonnés dans lesquels la vitesse du son est élevée.

III- Conclusion

Le résumé ci-dessus montre que la construction d'une source à spallation de haute puissance ouvrira des perspectives considérables dans l'étude de la matière condensée désordonnée. Le gain de flux et l'élargissement du domaine de Q sont en eux-mêmes des facteurs déterminants de progrès. D'autre part, les caractéristiques spécifiques d'une source à spallation à haut flux ouvriront la voie à des développements spécifiques de l'instrumentation qui permettront des avancées substantielles dans notre connaissance de ces milieux.

Dynamique moléculaire - Catalyse - Cinétiques de transformation

Hervé Jobic

Institut de Recherche sur la Catalyse
Villeurbanne

Ce rapport a été rédigé avec l'apport des contributions de M. Ghomi (Université P. et M. Curie), M. Johnson (ILL), M. Bée (Université de Grenoble) et F. Guillaume (Université de Bordeaux).

Introduction

Différentes méthodes neutroniques permettent d'étudier les mouvements moléculaires de vibration, de rotation, et de translation. Les applications de ces méthodes sont très variées et vont de la biologie aux nouveaux matériaux en passant par la catalyse et l'environnement. Quelques coups de projecteur sont donnés ici, en indiquant dans chaque cas les améliorations et les percées attendues avec une source de neutrons plus intense.

I- Spectroscopie vibrationnelle avec les neutrons

La *diffusion inélastique des neutrons* constitue une spectroscopie vibrationnelle qui a des caractéristiques uniques par rapport aux spectroscopies infrarouge et Raman : absence de règles de sélection, grande sensibilité par rapport à l'atome d'hydrogène, compréhension des intensités diffusées, etc. Parmi les domaines d'application actuellement étudiés on peut citer : la catalyse, les molécules biologiques, les composés d'insertion et d'intercalation, la liaison hydrogène, le transfert de proton, les matériaux d'électrode, les hydrures, et les nanotubes de carbone.

I-1 Catalyse

En catalyse, cette spectroscopie permet d'étudier les espèces de surface qui résultent de l'adsorption moléculaire, de la dissociation, ou de la réaction chimique. Il a ainsi été possible d'observer différentes espèces d'hydrogène atomique sur des catalyseurs métalliques ou sulfure, et identifier l'espèce active en catalyse. L'acidité de Brønsted dans diverses zéolithes acides a également été caractérisée. Une question fondamentale pour ces systèmes est de savoir si l'acidité est suffisamment forte pour protoner des molécules telles que l'eau ou le méthanol. En comparant les données expérimentales avec des spectres simulés par des méthodes quantiques *ab initio*, il a été montré que la première molécule d'eau se lie au site acide par deux liaisons hydrogène fortes, l'espèce protonée n'étant pas détectée. Par contre, cette espèce protonée (ion hydroxonium) a été observée sur des hétéropolyanions tungstiques, ce qui explique que ces derniers soient actifs dans des réactions d'isomérisation qui nécessitent une acidité forte, comme l'isomérisation du n-butane en isobutane. Une source de neutrons 10 à 100 fois plus intense permettrait d'étudier des composés non hydrogénés, tels que CO, SO₂ ou NO_x, et de diminuer les quantités de catalyseur (plusieurs dizaines de grammes actuellement). Des études cinétiques seraient aussi envisageables. L'idéal serait de pouvoir suivre les réactions catalytiques *in situ*, à haute température, ce qui nécessiterait de s'affranchir de l'influence du facteur de Debye-Waller, et donc de réduire le transfert de moment transféré.

I-2 Molécules biologiques

Au cours des dix dernières années, on note une augmentation constante de l'utilisation de la diffusion inélastique des neutrons dans le domaine des molécules d'intérêt biologique. Les spectres des constituants élémentaires des acides nucléiques (ADN et ARN) ont ainsi été enregistrés en phase solide. Dans un premier temps, les spectres des nucléosides inclus dans la structure de l'ARN et ensuite ceux des nucléosides entrant dans la constitution de l'ADN ont été analysés. Rappelons qu'un nucléoside est une des entités élémentaires des acides nucléiques, constitué d'une base et d'un sucre. Les spectres ont été obtenus à l'ILL, ils complètent ceux des cinq bases majeures des acides (uracile, thymine, cytosine, adénine, guanine) enregistrés à ISIS. A travers la comparaison de ces spectres et de ceux obtenus par des méthodes classiques de spectroscopies optiques

(diffusion Raman et absorption infrarouge), il a été constaté que les spectres de diffusion de neutrons contenaient des informations extrêmement intéressantes quant aux vibrations des sucres (ribose dans l'ARN et déoxyribose dans l'ADN), très mal détectées par spectroscopie optique. Outre leur intérêt expérimental certain, ces spectres ont permis de tester la validité des champs de forces obtenus par des méthodes quantiques *ab initio*. Il a ainsi été mis en évidence que seules les méthodes qui tiennent compte de la corrélation électronique pouvaient permettre d'interpréter les spectres de diffusion de neutrons de manière satisfaisante. C'est la méthode DFT utilisée conjointement avec des bases de fonction d'onde double-zéta polarisées qui a été sélectionnée. L'utilisation des orbitales diffuses est également conseillée dans ces systèmes moléculaires, dans la limite du temps de calcul disponible (des simulations réalisées directement à partir de la structure cristalline sont en cours). Une extension de ces études aux constituants élémentaires des protéines (acides aminés, peptides) ainsi qu'aux interactions acides nucléiques-peptides est prévue. Une source plus intense de neutrons permettrait d'obtenir une meilleure résolution et de travailler sur de plus petites quantités d'échantillon (dérivés deutériés). Avec des spectromètres où le transfert de moment serait réduit, on pourrait enregistrer des spectres en phase aqueuse, qui est le milieu naturel des molécules biologiques.

I-3 Liaison hydrogène

La liaison hydrogène joue un rôle fondamental dans la structure et dans la réactivité des molécules biologiques, ainsi que pour de nombreux systèmes chimiques. La diffusion des neutrons permet non seulement de localiser précisément les atomes d'hydrogène dans ces systèmes, par diffraction, mais aussi de suivre leur dynamique. Le transfert de proton le long d'une liaison hydrogène est l'exemple le plus simple de réaction chimique. La barrière d'énergie potentielle, séparant les deux puits correspondants aux positions d'équilibre de l'atome d'hydrogène, est élevée et le mécanisme de transfert du proton implique un effet tunnel à travers la barrière. Cependant les vibrations moléculaires interviennent également en favorisant ou en gênant le transfert, à cause de la modulation de l'état électronique du squelette moléculaire au cours du transfert du proton. On développe actuellement de nouveaux modèles théoriques pour prendre en compte les effets couplés de l'effet tunnel et des vibrations moléculaires. Ces dernières peuvent être mesurées par diffusion inélastique et simulées par des méthodes

quantiques ab initio en phase solide, ce qui permet de représenter correctement le réseau des liaisons hydrogène. Une amélioration du flux et de la résolution dans la région des elongations O-H est souhaitée (ces modes interviennent dans le transfert du proton et ils sont mal reproduits dans les calculs actuels). Une source plus intense de neutrons permettrait de faire des effets d'orientation sur des monocristaux. Enfin, des mesures dans l'espace (Q, ω) conduiraient à des attributions plus précises. La dynamique de l'effet tunnel peut être suivie en principe par diffusion quasi-élastique, cependant les expériences qui ont été réalisées jusqu'à présent montrent que la résolution et le flux doivent être améliorés pour observer plus nettement la composante quasi-élastique. L'utilisation de neutrons polarisés permettrait de séparer les contributions cohérentes et incohérentes, et exalterait ainsi le signal correspondant à l'effet tunnel.

II- Mouvements moléculaires de diffusion et de rotation

La *diffusion quasi-élastique des neutrons* est utilisée dans la plupart des domaines décrits précédemment, et également pour suivre la mobilité de surface des molécules adsorbées, la dynamique des composés d'inclusion dans des matrices organiques et des polymères conducteurs dopés par différents contre-ions.

II-1 Diffusion dans les matériaux poreux

Les phénomènes de diffusion moléculaire dans les matériaux poreux, tels que les zéolithes, interviennent en catalyse et dans les procédés de séparation. En plus de leur caractère fondamental sur les effets de confinement, l'objectif de ces études est de bâtir des modèles de diffusion valables pour des systèmes complexes. Les effets de diffusion deviennent importants quand la taille de la molécule est comparable à la taille des pores. Les coefficients de diffusion peuvent ainsi être réduits de plusieurs ordres de grandeur par rapport à la phase gazeuse. De nombreuses techniques expérimentales et théoriques sont utilisées pour mesurer ces coefficients de diffusion. On a trouvé que la diffusion quasi-élastique des neutrons était la seule technique qui permettait de déterminer de façon précise les diffusivités dans de nombreux systèmes, par exemple les alcanes linéaires dans une structure zéolithique très répandue : la ZSM-5. On aurait cependant besoin de spectromètres ayant une gamme dynamique plus large, pour obtenir plus rapidement des

informations sur la nature des différents mouvements mis en jeu. Avec plus de flux, on pourrait faire des mesures sur des cristaux de zéolithe et suivre ainsi des phénomènes de diffusion anisotrope : diffusion unidimensionnelle et diffusion à la file indienne.

II-2 Composés d'inclusion, polymères conducteurs

Les études dynamiques réalisées actuellement sur des composés d'inclusion ou des polymères conducteurs sont de plus en plus complexes. Dans chacun des cas il s'agit d'analyser séparément la dynamique de l'espèce hôte et celle de l'espèce incluse. La technique de la deutération sélective s'avère particulièrement utile pour distinguer dans l'intensité diffusée les contributions respectives liées à chacune des espèces. Une analyse précise requiert cependant une analyse quantitative détaillée des diffusions cohérente et incohérente. En outre, ce type d'échantillons est rarement homogène à l'échelle microscopique, mêlant par exemple des régions cristallisées et des régions amorphes. La variété des environnements autour d'un groupement chimique particulier influence sa dynamique et la partie quasiélastique des spectres est une superposition des réponses de groupements soumis à des potentiels différents. Obtenir les paramètres pertinents d'une telle distribution requiert une excellente statistique du signal expérimental. En outre la résolution en énergie d'un spectromètre est souvent limitée et il faut aussi souvent effectuer des expériences avec plusieurs instruments couvrant des échelles de temps différentes. Les simulations de dynamique moléculaire sont désormais suffisamment fiables pour aider à la compréhension des mécanismes microscopiques. L'avantage majeur des simulations est de permettre le calcul des fonctions de diffusion qui sont directement comparables aux signaux mesurés. Pour autant que ceux-ci soient de qualité suffisante, des paramètres microscopiques peuvent être obtenus. L'étude de la dynamique de ces systèmes profiterait beaucoup d'une source à haute intensité. La statistique des mesures en serait directement améliorée et on peut imaginer améliorer la résolution des spectromètres. Une autre possibilité des plus prometteuses concerne l'utilisation de neutrons polarisés, afin de séparer les parties cohérentes et incohérentes de la diffusion. S'affranchir de la diffusion cohérente permettrait l'élimination des pics de Bragg présents aux grands angles avec des polycristaux et celle de la diffusion aux petits angles qui est un obstacle à l'étude des phénomènes translationnels à longue distance. En revanche, l'analyse détaillée de la

diffusion cohérente quasiélastique serait susceptible de fournir des informations sur les phénomènes coopératifs.

III- Conclusion

Pour conclure, il faut souligner que l'apport de l'ILL dans ces domaines de recherche a été crucial. Avant l'ILL, la diffusion quasi-élastique ainsi que la diffusion inélastique en étaient à leurs balbutiements. C'est à l'ILL qu'ont été conçus et développés de nombreux concepts et programmes de calcul qui sont maintenant indispensables aux chercheurs. On peut penser que la construction d'une nouvelle source de neutrons Européenne, de un à deux ordres de grandeur plus puissante que l'ILL, conduirait à des avancées comparables.

UTILISATIONS INDUSTRIELLES ET MEDICALES DES FAISCEAUX DE NEUTRONS

C.H. de Novion

Laboratoire Léon Brillouin, CEA-CNRS

Un certain nombre de techniques, qui ne font pas appel à la diffusion de neutrons, sont actuellement développées sur des sources continues (principalement des réacteurs à flux moyen ou faible). Ces techniques n'ont, jusqu'à présent, guère fait l'objet de discussions dans le cadre de ESS. En général, elles en utiliseraient le flux moyen, c'est-à-dire ne prendraient pas avantage de la structure pulsée du faisceau de neutrons. Les principales d'entre elles sont listées ci-dessous :

- imagerie neutronique (radiographie et tomographie)
- irradiations thérapeutiques
- production d'isotopes radioactifs ou stables
- irradiations technologiques de matériaux
- dopage de silicium par transmutation
- analyse par activation neutronique

L'ESS pourrait d'une part permettre le développement de techniques limitées actuellement pour cause de flux insuffisant (p.e. tomographie neutronique 3D), et d'autre part se révéler nécessaire pour ces techniques, en cas de fermeture de réacteurs.

I- Imagerie neutronique (radiographie et tomographie)

Il s'agit d'un contrôle non destructif par transmission, prenant en compte les différences d'atténuation d'un faisceau de neutrons par les différents éléments et isotopes, ainsi que les différences de densité.

L'imagerie neutronique remplace avantageusement la radiographie par rayons X dans certains cas (par exemple, composés hydrogénés dans des structures métalliques) et bénéficie de la faible absorption des neutrons par la matière.

Neutronographie (statique)

Elle est utilisée comme contrôle de production pour des applications particulières; sur le réacteur Orphée à Saclay, nous citerons le contrôle systématique des dispositifs pyrotechniques d'ARIANE 4 et 5 (un exemple est donné dans la figure 1), la détection de la corrosion humide dans des emplacements d'accès difficile par les techniques usuelles (utilisation actuelle dans l'aéronautique), le contrôle de l'homogénéité et de l'intégrité de collages, etc.

La radiographie neutronique utilise soit des faisceaux de neutrons froids issus d'un guide (ce qui permet de s'affranchir de la pollution par le rayonnement γ issu du réacteur et d'avoir un meilleur rapport signal / bruit de fond, comme dans le cas de l'installation de Saclay), soit des neutrons thermiques ou chauds pour l'étude d'objets épais. Cette technique permet d'obtenir une excellente résolution spatiale (jusqu'à 20 μm), et les durées d'irradiation sont raisonnables (typiquement de l'ordre de 10 minutes pour un objet de 30 cm de large).

Neutronoscopie (cinétique)

Elle permet le contrôle d'écoulements (par exemple huiles dans des moteurs, fluides réfrigérants dans des dispositifs cryogéniques).

Tomographie neutronique

Cette technique nouvelle est surtout développée à l'Université Technique de Munich (Allemagne) et au Paul-Scherrer Institute (Suisse).

Elle permet l'étude de la forme de défauts, de l'homogénéité de chargements, ou d'effectuer une imagerie (Contrôle Non Destructif) de la structure interne de petits dispositifs mécaniques ou électriques (par exemple moteurs). Un exemple est donné dans la figure 2.

Avec les flux dont on dispose actuellement, ces études sont longues, donc coûteuses.

Applications spéciales

Signalons, à titre d'exemple, la détermination de la viscosité à haute température de liquides d'intérêt géophysique, par mesure neutronoscopique *in situ* de la vitesse de descente d'une bille absorbante (technique développée actuellement sur Orphée dans le cadre d'une collaboration entre l'Université de Kiel et le LLB).

Nécessité de l'ESS en imagerie neutronique

Une source à spallation à haut flux telle que l'ESS devrait permettre plusieurs types de développements importants en imagerie neutronique :

- la possibilité d'études tomographiques en temps rapide (\approx 1 heure), donc intéressantes pour les industriels,
- prendre avantage de la structure pulsée du faisceau de neutrons grâce à une synchronisation de la vidéo,
- le développement de la radiographie avec des neutrons d'énergie plus élevée (chauds ou épithermiques), permettant l'étude de matériaux plus épais, et d'obtenir des contrastes différents de ceux donnés par les neutrons froids.

Un instrument de radiographie / tomographie neutronique est actuellement prévu pour l'ESS, sur le modérateur froid à haute résolution de la cible à 50 Hz (instrument "3 e", cf document "Scientific Case" de 1997, p. 74).

II- Irradiations

II-1 Irradiations thérapeutiques

Elles permettent le traitement de tumeurs relativement proches de la surface (en effet, la pénétration des neutrons dans le corps humain est limitée par la forte atténuation par l'hydrogène des tissus biologiques), par exemple les tumeurs des glandes salivaires. Deux principaux types d'irradiations thérapeutiques utilisant des faisceaux de neutrons sont développées actuellement :

- l'irradiation directe aux neutrons rapides

Ce type d'irradiation est plus efficace que la radiothérapie aux RX / gammas pour des tumeurs en situation d'hypoxie (zones faiblement vascularisées).

La radiothérapie par irradiation directe par les neutrons rapides est surtout développée à l'Université Technique de Munich : plus de 1300 patients y ont été traités sur le réacteur FRM-I ; les succès thérapeutiques sont incontestables, avec disparition de la tumeur dans plus de 40% des cas.

- la borothérapie par capture de neutrons (BNCT)

Cette technique consiste à injecter un médicament contenant du bore, qui ira se fixer sélectivement dans une tumeur. Si on expose la région de la tumeur à un flux de neutrons thermiques ou épithermiques, ces derniers sont capturés par les noyaux d'isotope ^{10}B qui se désintègrent immédiatement en donnant des particules ^4He et ^7Li de haute énergie (1,6 et 0,9 MeV respectivement) dont la longueur de parcours dans les tissus biologiques est de l'ordre de 10 μm .

Il est ainsi possible d'irradier localement la tumeur sans endommager les tissus adjacents, et de détruire sélectivement les cellules cancéreuses.

Cette technique est en cours de développement sur le réacteur à haut flux de la Commission Européenne à Petten (Pays-Bas), ainsi qu'au Japon et aux USA. A Petten une installation complète est opérationnelle depuis 1990, et 10 patients (souffrant de glioblastomes) ont été traités depuis 1997. Mais il y a encore des problèmes de toxicologie à résoudre.

La faisabilité et l'autorisation thérapeutique sont donc en cours de démonstration sur les sources continues.

Remarquons qu'il n'est pas évident qu'à flux moyen égal, une irradiation pulsée ait les mêmes effets biologiques qu'une irradiation continue. Mais l'utilisation de neutrons épithermiques permettra d'éviter l'ouverture de la boîte crânienne, indispensable au Japon où l'on utilise des neutrons thermiques, moins pénétrants.

II-2 Production d'isotopes radioactifs ou stables

Il s'agit d'un domaine très important, d'utilisations multiples :

- radio-isotopes pour la médecine, soit pour des diagnostics (par exemple ^{99}Tc) ou dans un but thérapeutique (par exemple ^{131}I),
- isotopes stables ou radioactifs pour la recherche (^3He , ^{57}Fe pour sources Mössbauer,...),
- radio-isotopes utilisés dans l'industrie ou commercialisés dans le grand public (mesures / contrôle d'épaisseurs ou de densités, détecteurs de fumée, etc.).

Le marché des radio-isotopes en médecine est considérable (20 millions de patients en bénéficient chaque année dans le monde, dont la moitié en Europe), correspondant à un volume financier de l'ordre de 20 GEuros par an. 80 % des radio-isotopes pour la médecine sont produits dans des réacteurs nucléaires, et les prévisions de croissance sont en forte hausse (plusieurs pourcents par an).

La production de radio-isotopes spécifiques de valeur commerciale élevée sur une source à spallation peut être très intéressante, car il est envisageable d'optimiser un modérateur partiel de façon à obtenir le spectre de neutrons nécessaire à une section efficace maximale.

II-3 - Irradiations technologiques de matériaux

Des sources de neutrons spécifiques, capables d'irradiations technologiques à dose élevée, sont indispensables pour tester et prédire le comportement des matériaux pour l'industrie nucléaire (vieillesse des réacteurs à eau sous pression, matériaux pour les futurs réacteurs à fusion ou à fission et sources à spallation, etc.)

Ces installations doivent permettre d'effectuer des tests d'irradiations accélérés dans des conditions (flux, spectre, environnement échantillon, cycle thermique) variées. En France, ces irradiations expérimentales sont actuellement effectuées à Saclay, dans le réacteur OSIRIS.

Plusieurs projets sont envisagés pour remplacer OSIRIS à moyen ou long terme :

- le Réacteur Jules Horowitz (RJH), à Cadarache, pour l'irradiation aux neutrons rapides d'énergie ≈ 1 MeV caractéristiques des réacteurs EDF;
- la source de haute intensité IFMIF de neutrons de 14 MeV produits par cassure de deutons, pour l'irradiation aux neutrons de fusion;

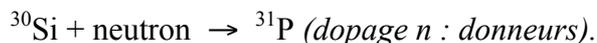
- des dispositifs d'irradiation par des neutrons produits par spallation, soit en installation dédiée (projet SPALLAX), soit au sein d'une installation multi-usages comme le dispositif d'irradiation TIT ("Technical Irradiation Tool") du projet CONCERT produisant des neutrons de spallation dans un large spectre d'énergie s'étendant de 1 à 20 MeV.

Ces dispositifs produisent des taux d'endommagement voisins, de l'ordre de quelques dizaines de d.p.a. (déplacements par atome) par an dans les matériaux, mais différent par le spectre en énergie des neutrons produits.

Notons que le projet TIT a des caractéristiques communes avec l'option ESS / pulses longs (puissance 5 ou 10 MW, durée de pulses 2 ms), et pourrait utiliser la même cible. Une étude de compatibilité est en cours au CEA dans le cadre du projet CONCERT. Une enquête auprès des laboratoires CEA ou CNRS intéressés par la recherche de base sur les effets d'irradiation (transformations de phase, changements de propriétés physiques ou mécaniques) et qui pourraient utiliser TIT, est nécessaire.

II-4 - Dopage de silicium par transmutation

Le dopage de silicium par transmutation en réacteur nucléaire est effectué couramment pour l'industrie électronique. On utilise la réaction nucléaire :



Cette technique présente l'avantage de permettre un dopage très homogène. Elle nécessite un recuit des défauts d'irradiation induits par les neutrons rapides. Actuellement, environ 150 tonnes de Si dopé par irradiation sont produits annuellement dans le monde.

Auprès d'une source à spallation, cette technique requiert des modérateurs spécifiques pour minimiser les neutrons rapides.

II-5 - Analyse par activation neutronique

Il s'agit d'une méthode d'analyse élémentaire dans laquelle on irradie avec des neutrons thermiques (ou rapides) un échantillon, puis on dose par mesure de radioactivité (spectrométrie γ ou β) les radioisotopes créés par transmutation des éléments contenus initialement dans l'échantillon.

L'analyse par activation neutronique est une méthode bien établie, non destructive, multiélémentaire, qui donne des valeurs absolues précises indépendantes de la formule chimique des éléments analysés; elle est extrêmement sensible puisqu'elle permet de détecter pour certains éléments des quantités de l'ordre de 10^{-12} g / g d'échantillon.

Deux techniques sont utilisées :

- l'analyse par activation en pile, le transfert d'échantillon entre le site d'irradiation et le laboratoire de spectrométrie γ/β s'effectuant par pneumatique; cette technique permet des flux d'irradiation élevés et la meilleure sensibilité. Elle permet de doser simultanément la plupart des éléments du tableau périodique à partir de $Z = 11$ (sodium), mais elle est limitée à des isotopes de période de décroissance égale ou supérieure à quelques minutes. En France, elle est développée au Laboratoire Pierre Sue (CEA-CNRS) à Saclay, qui utilise les réacteurs Orphée (pour les neutrons thermiques) ou Osiris (pour les neutrons rapides);

- l'analyse par activation sur faisceaux sortis (PGAA : "Prompt Gamma Activation Analysis"). La spectrométrie γ est effectuée pendant l'irradiation, ce qui permet le dosage d'éléments légers, à période courte. Il n'y a pas d'installation de ce type en France. La technique PGAA est actuellement développée dans plusieurs réacteurs étrangers, en particulier au NIST aux USA, au Hahn-Meitner Institute à Berlin en Allemagne, ainsi qu'au réacteur de Budapest.

Sur une source pulsée telle que l'ESS, l'augmentation de flux moyen permettrait de développer considérablement la technique PGAA; en particulier, on peut envisager de la combiner avec la radiographie neutronique pour obtenir une cartographie chimique des objets étudiés.

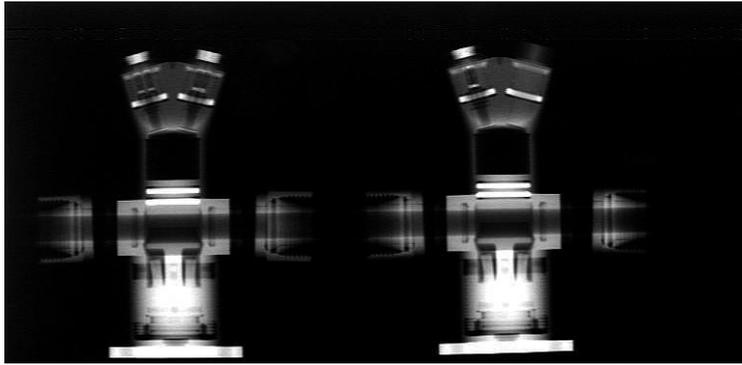


Figure 1 : Neutronographie de deux vannes pyrotechniques destinées à mettre en pression les circuits d'ERGOL qui contrôlent l'altitude d'un satellite pendant son séjour en orbite. Ces circuits ne fonctionnent qu'une fois. Hauteur des vannes : environ 10 cm.
(G. Bayon, Orphée, CEA/Saclay, pour Dassault-Aviation)

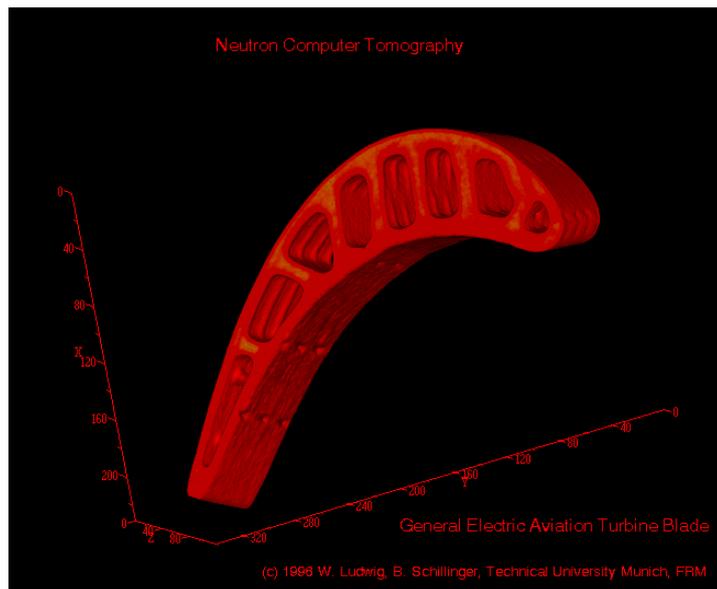


Figure 2 : Tomographie neutronique d'une ailette d'aube de turbine d'un moteur General Electric : coupe simulée, distances indiquées en mm. Matériau : superalliage à base de nickel. Ce moteur fonctionne dans une ambiance supérieure à la température de fusion : les canaux servent pour le refroidissement. (B. Schillinger, Université Technique de Munich).

ANNEXES

Estimation du nombre d'instruments de diffusion de neutrons utilisés par la communauté scientifique française.

Famille de spectromètres	Sous-famille	Appareils au LLB	Appareils à l'ILL	Utilisation française (nb d'appareils)
Diffraction	Poudre	5	4	4.59
	Monocristaux	4	6	4.4
	Syst. désordonnés	2	1	1.68
Structures à grande échelle	Petits angles	4	2	3.36
	Réfectomètres	2	3	2.2
	Diff. Bragg	0	3	0.78
Excitations	3 axes	5	6	5.11
	Temps de vol	1	3	1.49
	Rétro-diffusion	0	3	0.78
	Echo de spin	2	2	1.94
Total:		25	33	26

(chiffre arrondi)

Coefficient d'utilisation du LLB par les français: 0.71 (Scientific Report 97-98)

Coefficient d'utilisation de l'ILL par les français: 0.26 (Annual Report 99)

Utilisation française (nb d'appareils): Calculée en multipliant le nombre d'appareils de chaque institut par le coefficient d'utilisation de l'institut par la communauté française et en faisant la somme des deux chiffres obtenus.

Notes:

A ce tableau il faut ajouter l'utilisation par la communauté française des spectromètres installés sur d'autres sources (ISIS-UK, HMI-D, PSI-CH, ...) qui doit correspondre à environ un appareil supplémentaire.

Ce tableau ne représente qu'une estimation de l'utilisation française (il ne prend pas en compte les chiffres d'utilisation spectromètre par spectromètre).

L'équivalence utilisée dans ce tableau entre un spectromètre installé à l'ILL et un spectromètre au LLB devrait être pondérée par un chiffre d'efficacité d'utilisation de chacun d'eux. Ces chiffres étant difficiles à définir, si en première approximation on utilise comme coefficient correcteur le rapport de flux des sources (ILL/LLB=5), on obtient un nombre total de spectromètres, installés sur une source ayant le flux de l'ILL et utilisés par la communauté française, de l'ordre de 12.

Picture gallery for the ESS reference moderators version 4.12.00.

F. Mezei, ESS Instrumentation Task Leader, mezei@hmi.de

1. Scope

The present collection of figures illustrates various features of the approximate expressions for the ESS reference moderator characteristics defined in document "ESS reference moderator characteristics for generic instrument performance evaluation", F. Mezei, 4.12.00. (in what follows referred to as ESS-Instr.-4.12.00. or [1]) In addition, explicit analytic expressions are also given for the long pulse moderator fluxes by the analytic integration of the equations under 3.c1) and 3.c2) in [1]. The present notice concludes with a summary of the main uncertainties concerning the expected ESS moderator performances, in particular in view of future revisions of [1], and some observations on comparing various types of moderators.

2. Analytic long pulse moderator spectra.

The time t dependence of the pulses is approximated in [1] by combinations of the generic function $F(t, \mathbf{t}, \mathbf{n})$. The relevant "long pulse" integral I of this function is given below.

$$iexp(t, \mathbf{t}, \mathbf{d}) = \begin{cases} 0, & \text{if } t < 0 \\ t[1 - \exp(-t/\mathbf{t})], & \text{if } 0 \leq t \leq \mathbf{d} \\ t[\exp(\mathbf{d}/\mathbf{t}) - 1] \exp(-t/\mathbf{t}), & \text{if } t > \mathbf{d} \end{cases}$$

defines the long pulse response of the exponential decay with time constant \mathbf{t} , where \mathbf{d} is the duration of the long pulse. The long pulse shape function $I(t, \mathbf{t}, \mathbf{n}, \mathbf{d})$ is then defined as

$$I(t, \mathbf{t}, \mathbf{n}, \mathbf{d}) = [iexp(t, \mathbf{t}, \mathbf{d}) - iexp(t, \mathbf{t}, \mathbf{n}, \mathbf{d})] \mathbf{n} / (\mathbf{n} - 1) / \mathbf{t} / \mathbf{d}$$

where the line shape parameter \mathbf{n} is defined in [1]. Finally, the long pulse line shapes are obtained by replacing in the equations in 3.a3) and 3.b3) of [1] the function F by the function I , and taking into account the assumptions that $\mathbf{d} = 2$ ms and the integrated intensity per long pulse is 3 times that per short pulse. Thus:

Long pulse coupled ambient H₂O moderator spectrum:

$$\begin{aligned} \gamma(t, \lambda) = & 13.5 * 10^{11} M(\lambda, 325) [I(t, 80 * 10^{-6}, 20, 2 * 10^{-3}) + I(t, 400 * 10^{-6}, 20, 2 * 10^{-3})] + \\ & + 27.6 * 10^{10} [1 + \exp(2.5 - 2.2)]^{-1} I(t, 12 * 10^{-6}, 2, 2 * 10^{-3}) \end{aligned}$$

Long pulse couples liquid H₂ moderator spectrum:

$$\begin{aligned} \delta(t, \lambda) = & 6.9 * 10^{11} M(\lambda, 50) I(t, 287 * 10^{-6}, 20, 2 * 10^{-3}) + \\ & + 27.6 * 10^{10} [1 + \exp(0.9 - 2.2)]^{-1} I(t, 20 * 10^{-6}, 5, 2 * 10^{-3}) \end{aligned}$$

The figures in the next chapters show examples of these and the short pulse spectra defined in [1] and the wavelength dependence of several properties of these spectra.

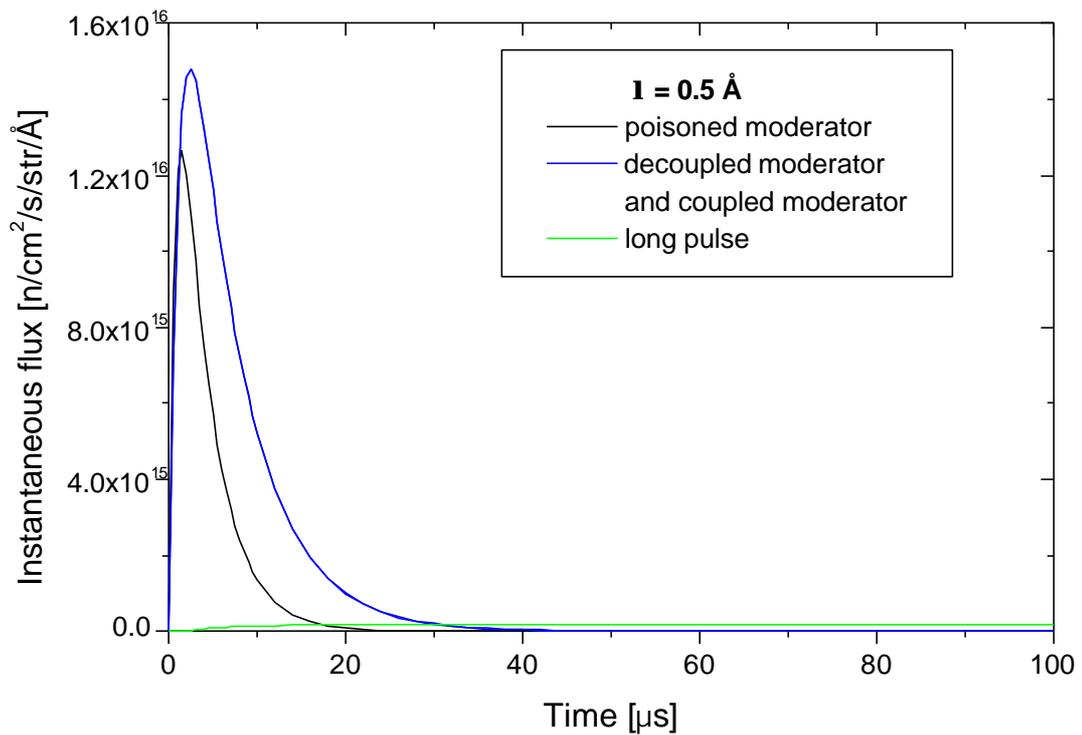
In what follows, the various moderator options are referred to according to the following definitions:

"Thermal moderators":	ambient H ₂ O moderators
"Cold moderators":	liquid H ₂ moderators
"Poisoned moderators":	short pulse de-coupled poisoned moderators
"Decoupled moderators":	short pulse de-coupled un-poisoned moderators
"Coupled moderators":	short pulse coupled moderators
"Long pulse":	long pulse coupled moderators

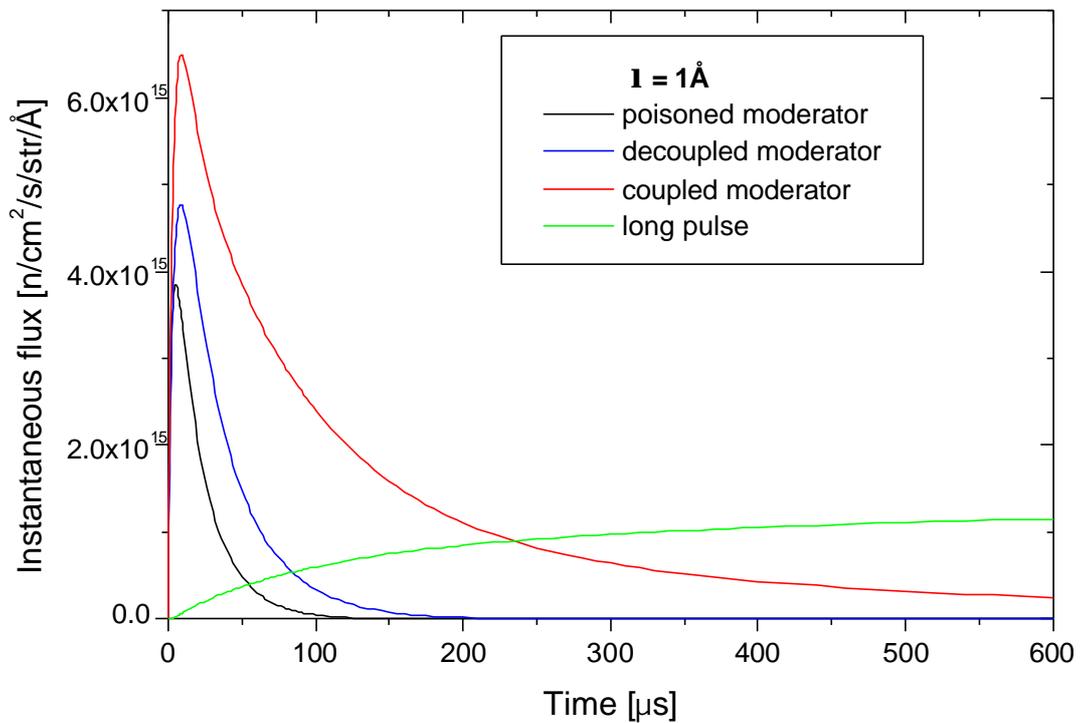
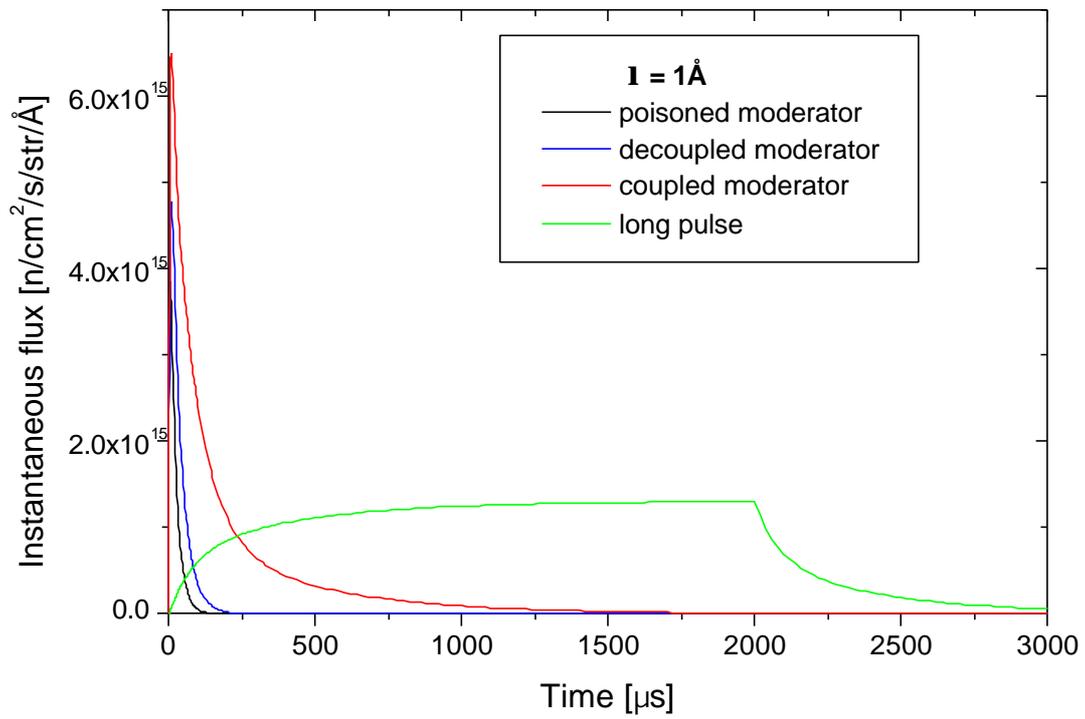
The assumed short pulse proton beam energy is 100 kjoule per pulse, and the long pulse power is 300 kjoule per pulse

3. Line shapes at various wavelengths

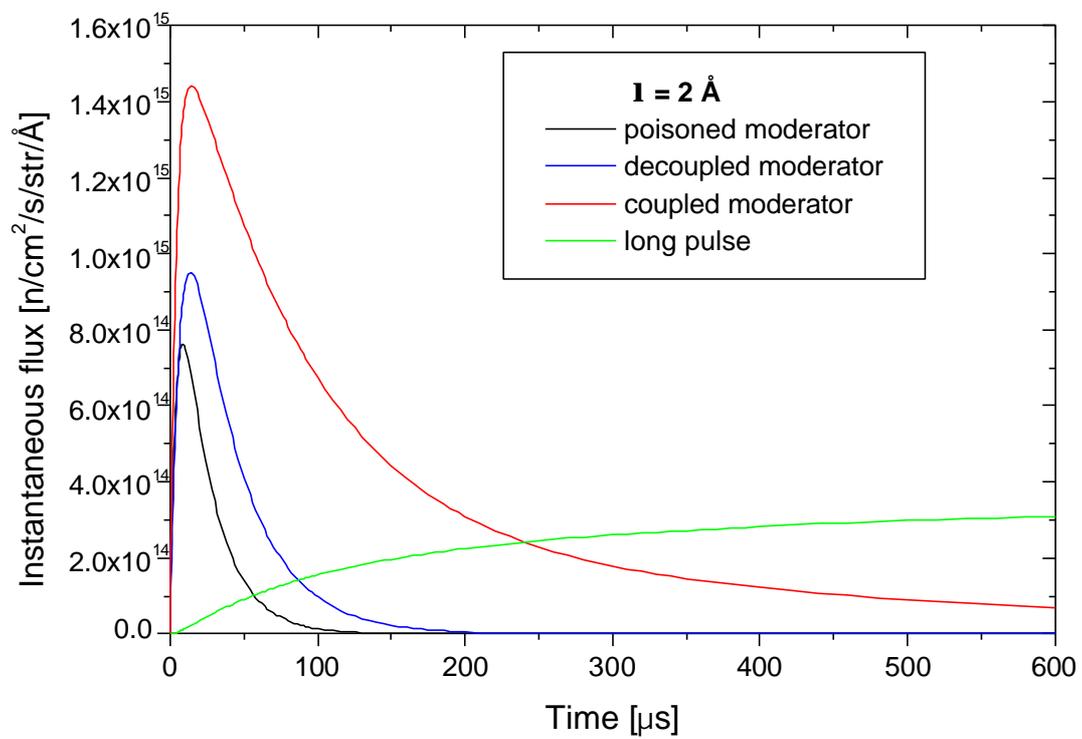
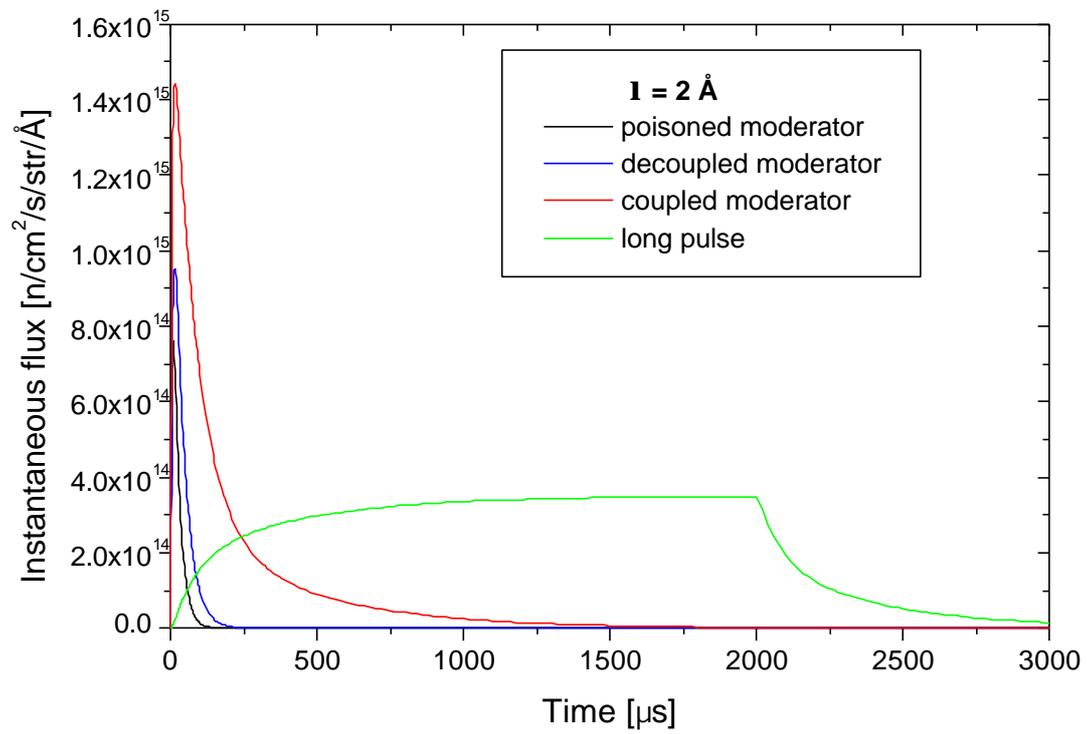
Thermal moderators:



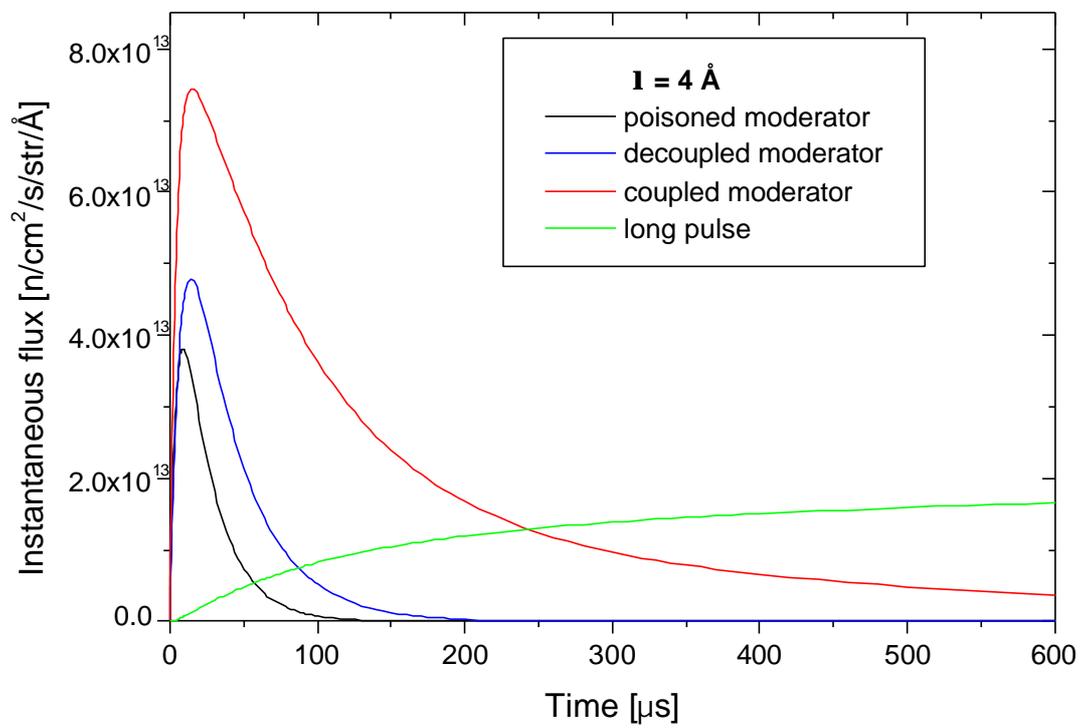
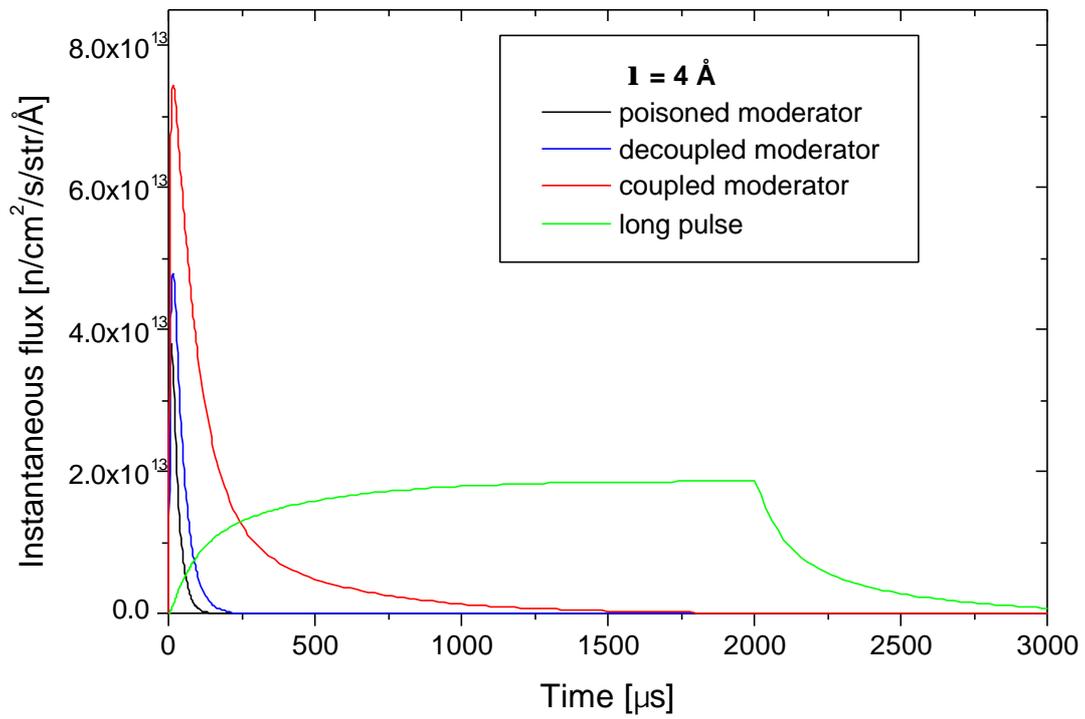
Thermal moderators:



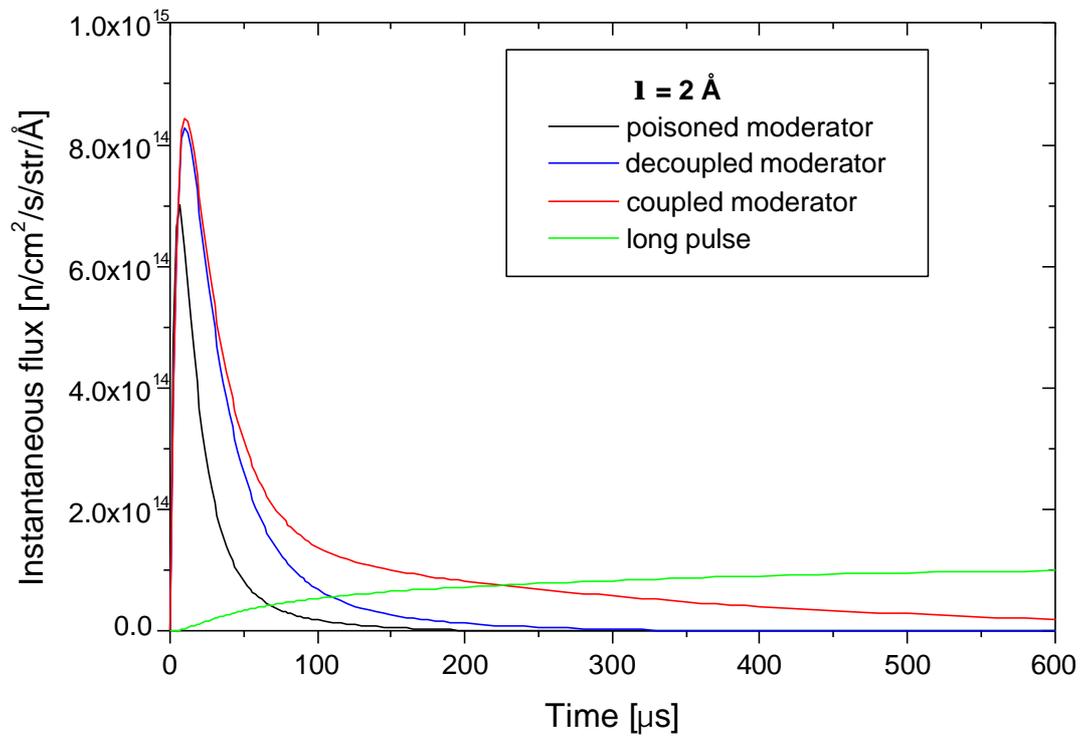
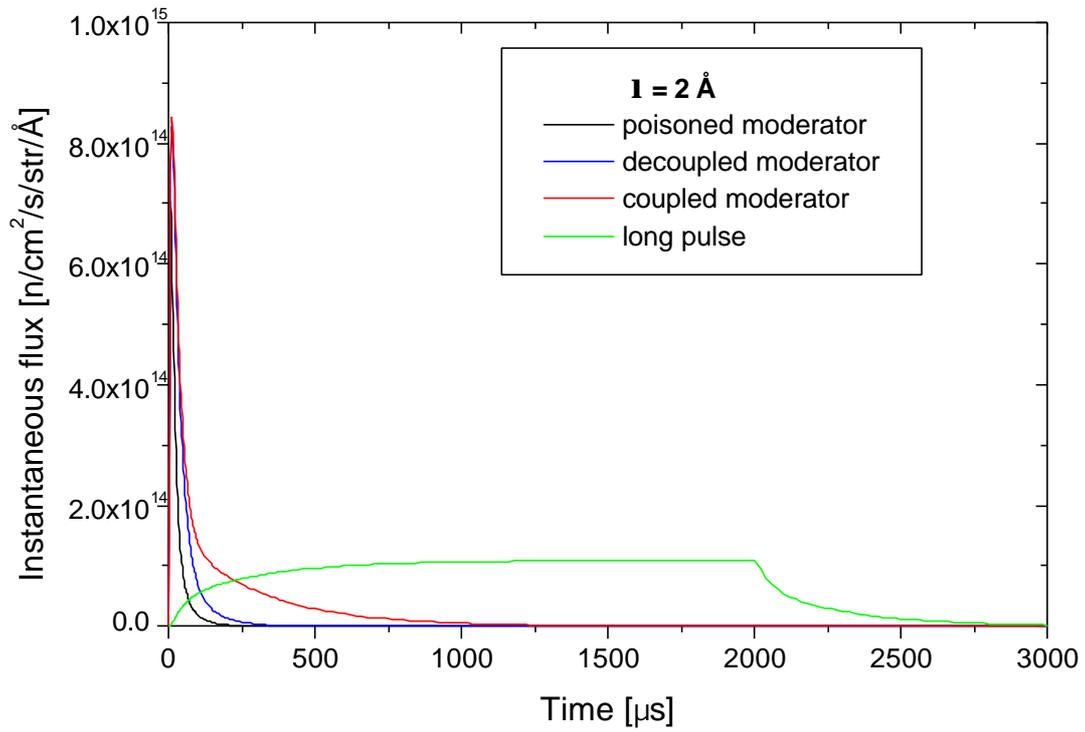
Thermal moderators:



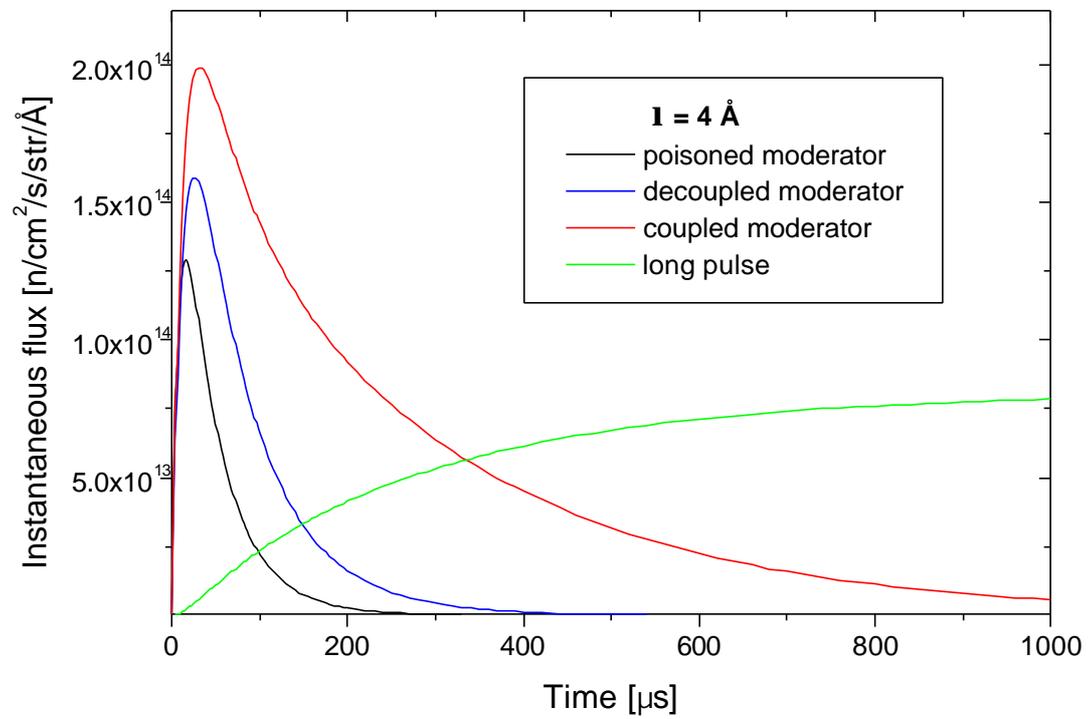
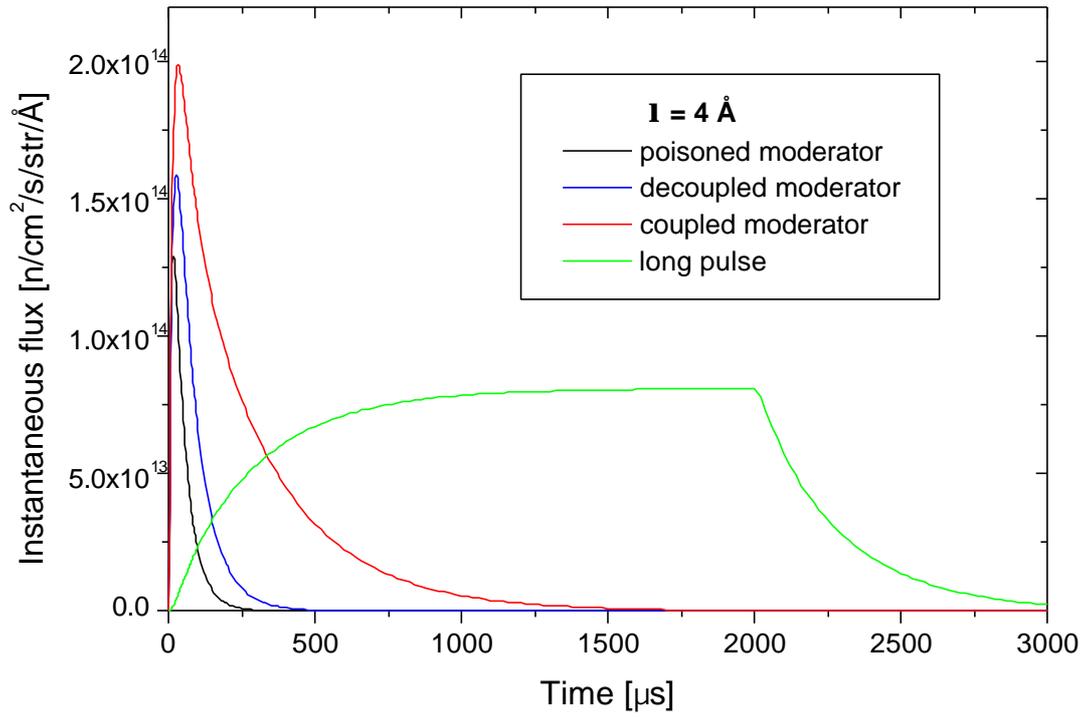
Thermal moderators:



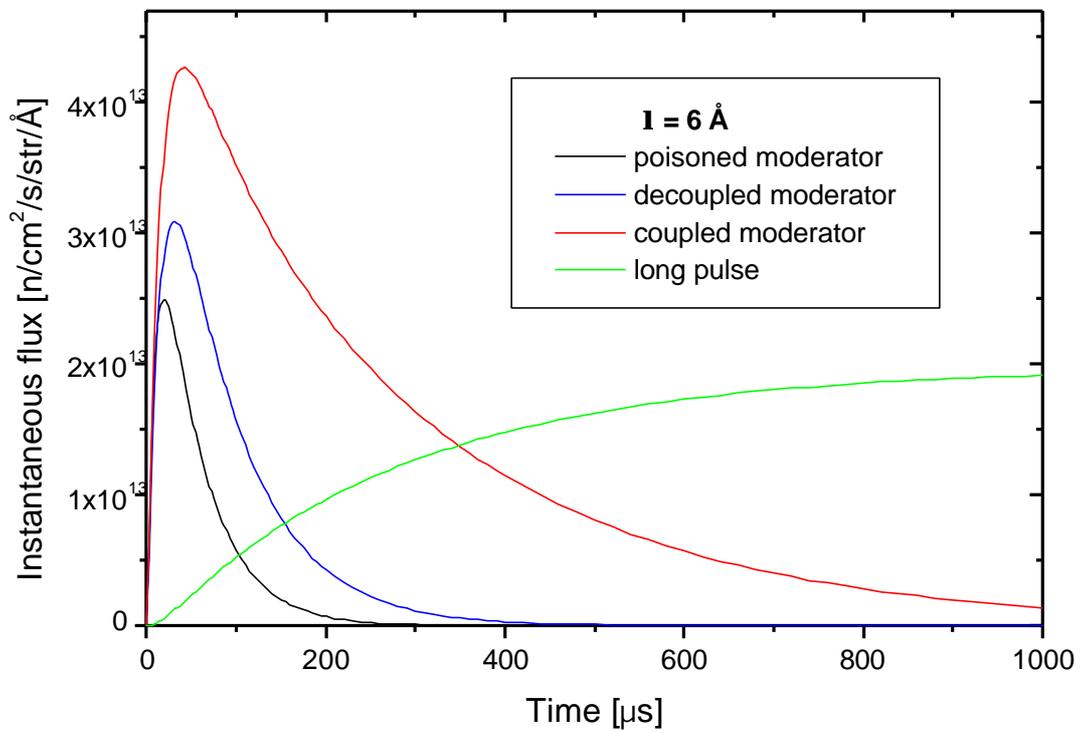
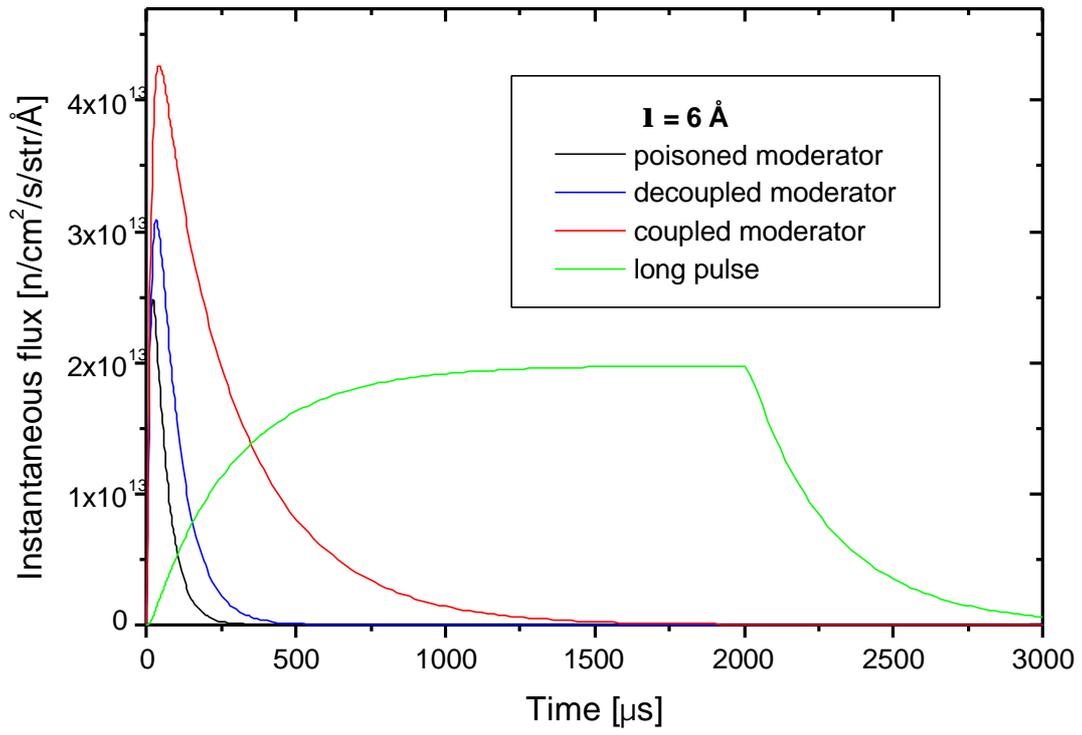
Cold moderators:



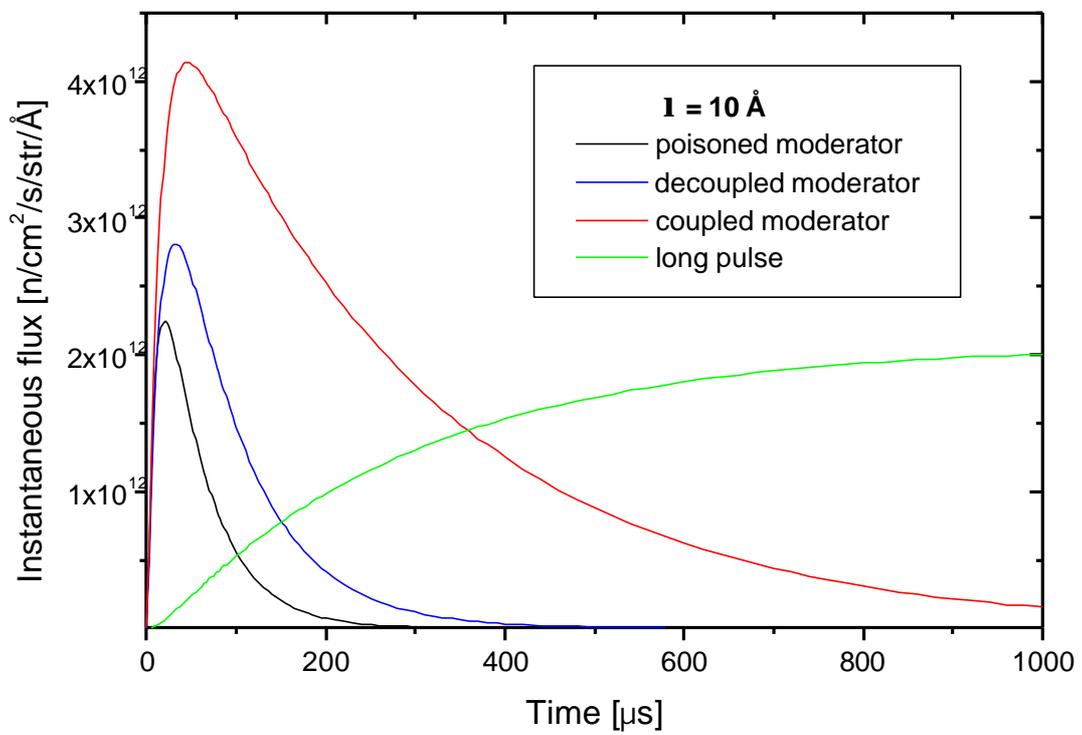
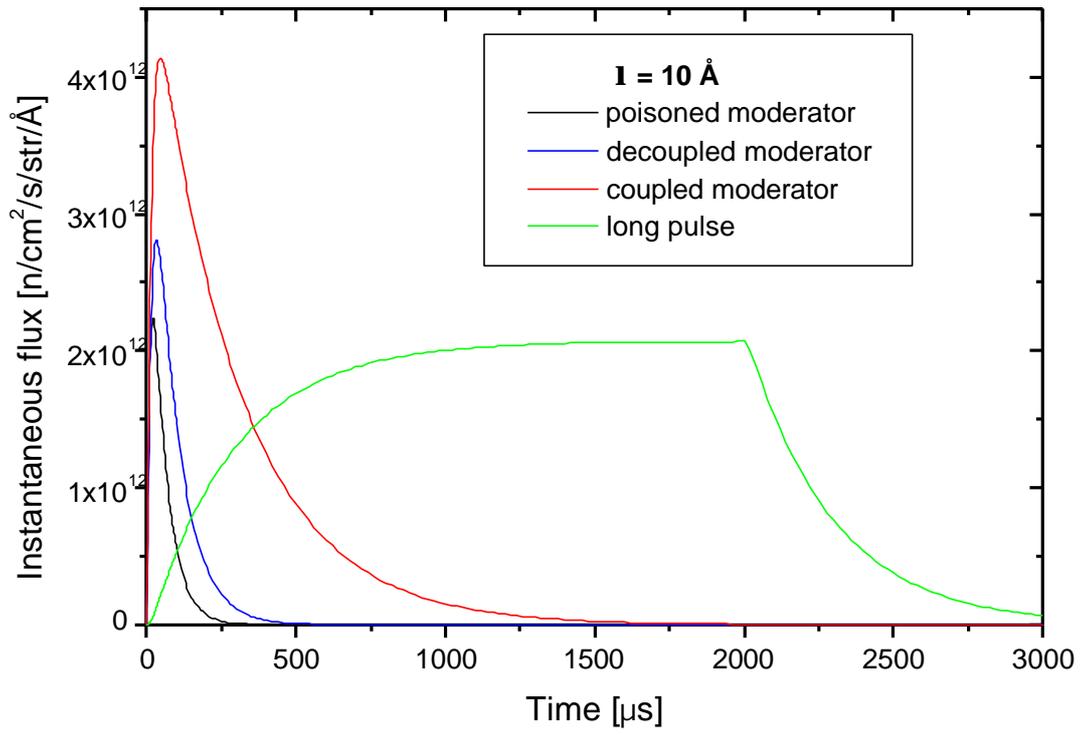
Cold moderators:



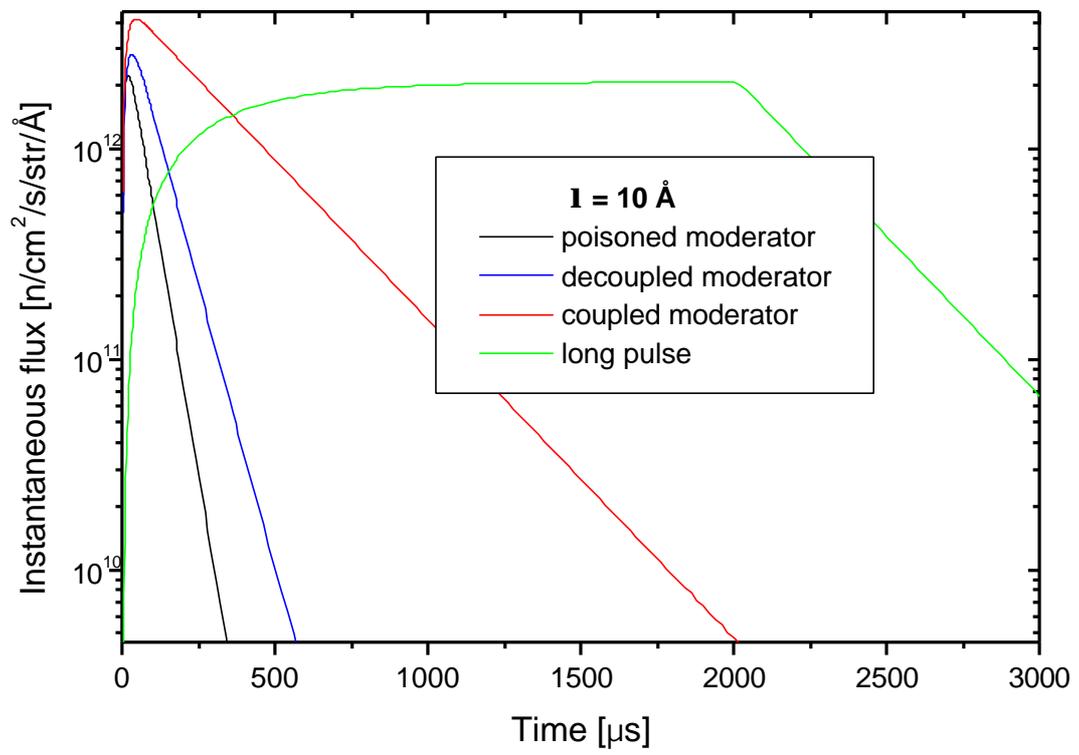
Cold moderators:



Cold moderators:

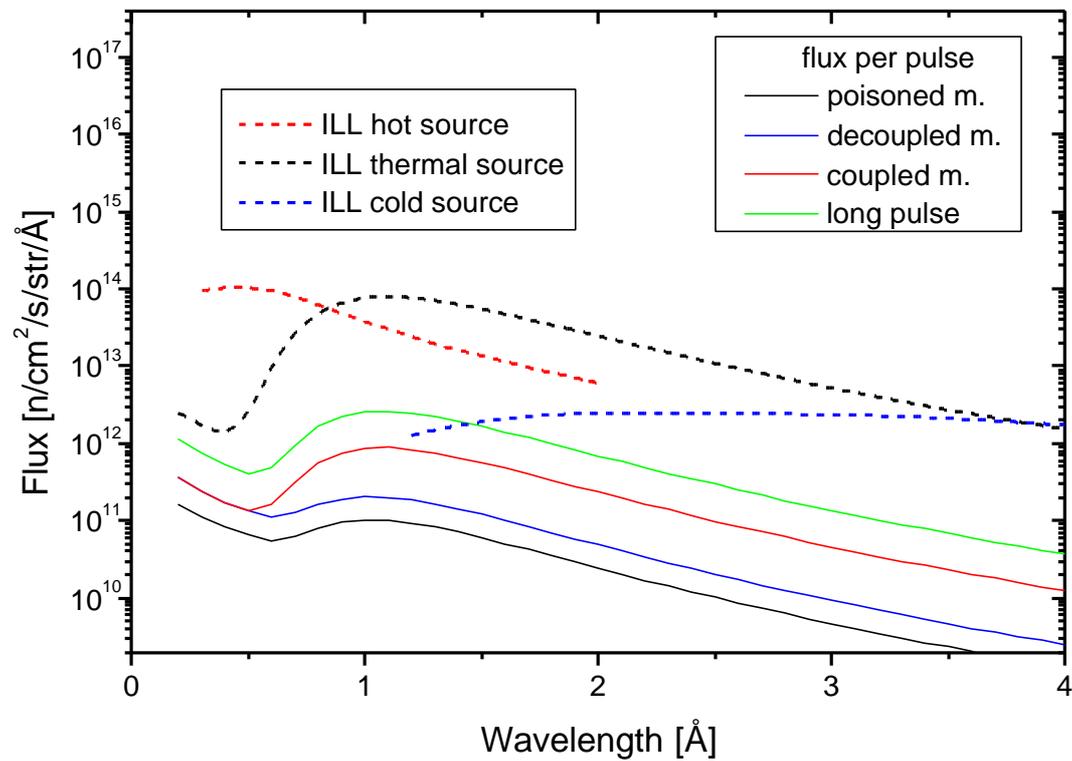
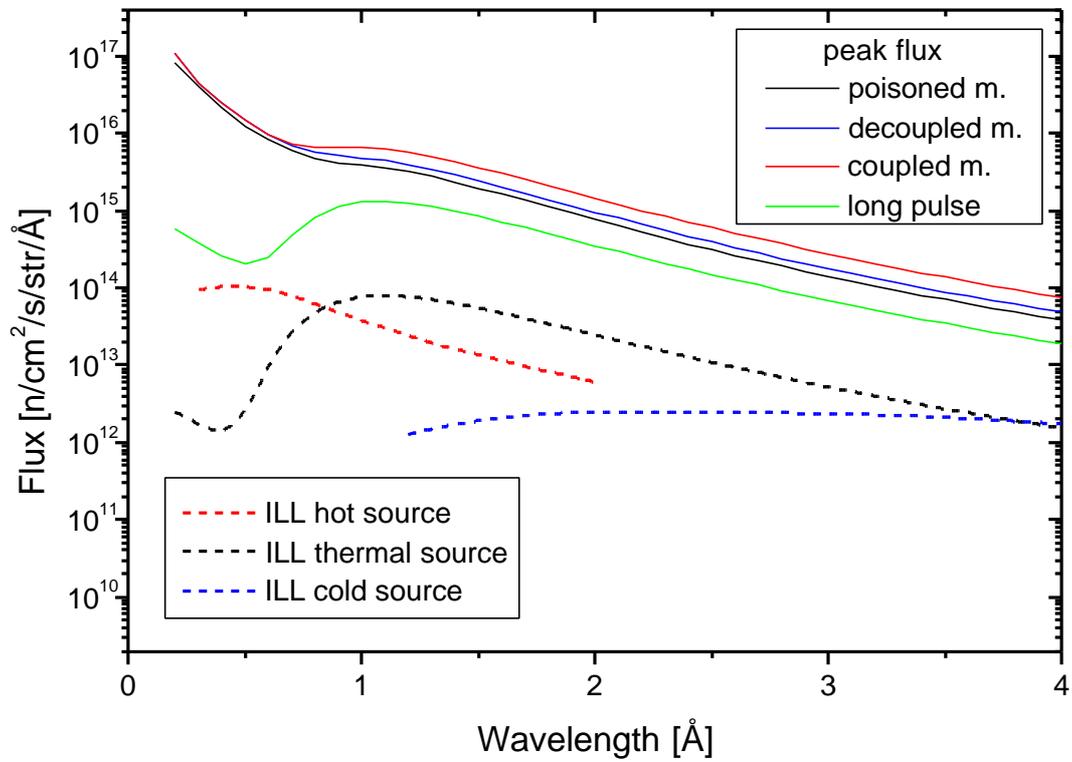


Cold moderators:



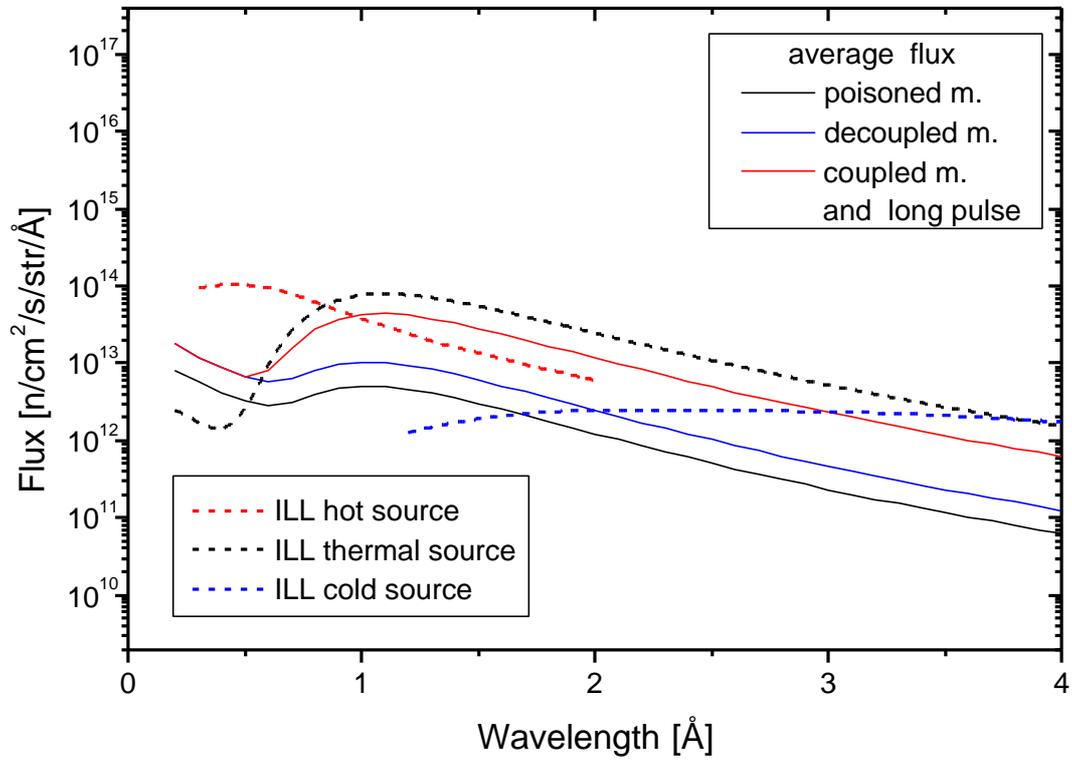
4. Peak, per pulse and time average fluxes

Thermal moderators:

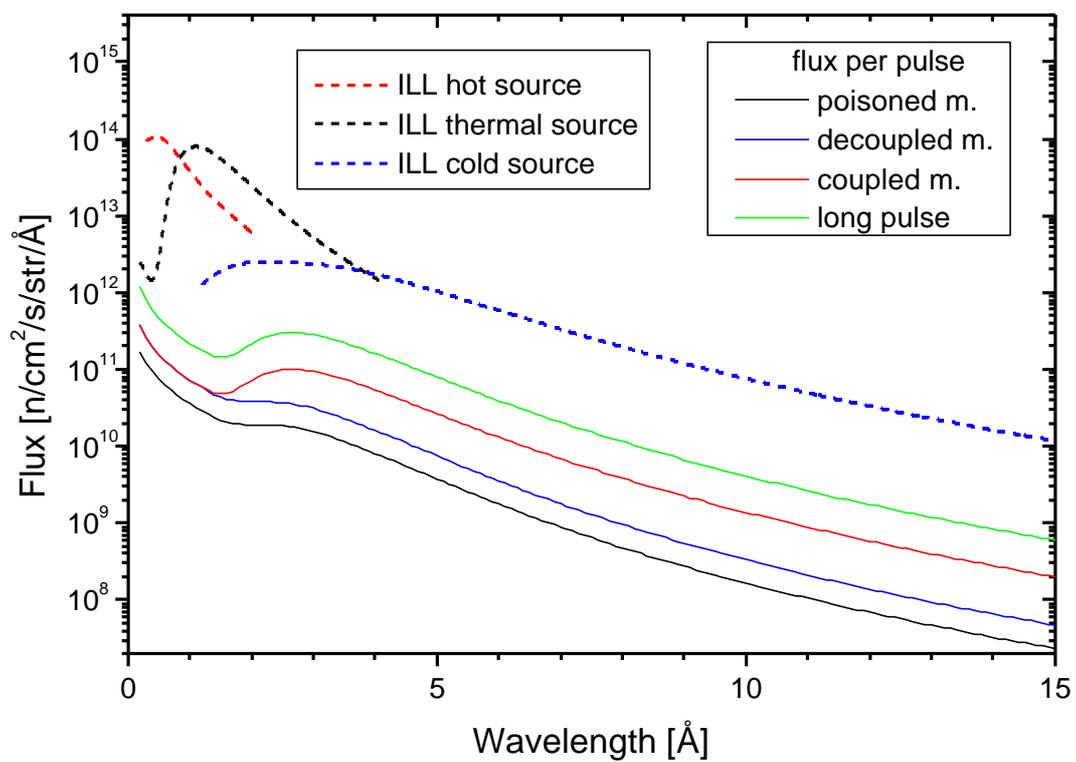
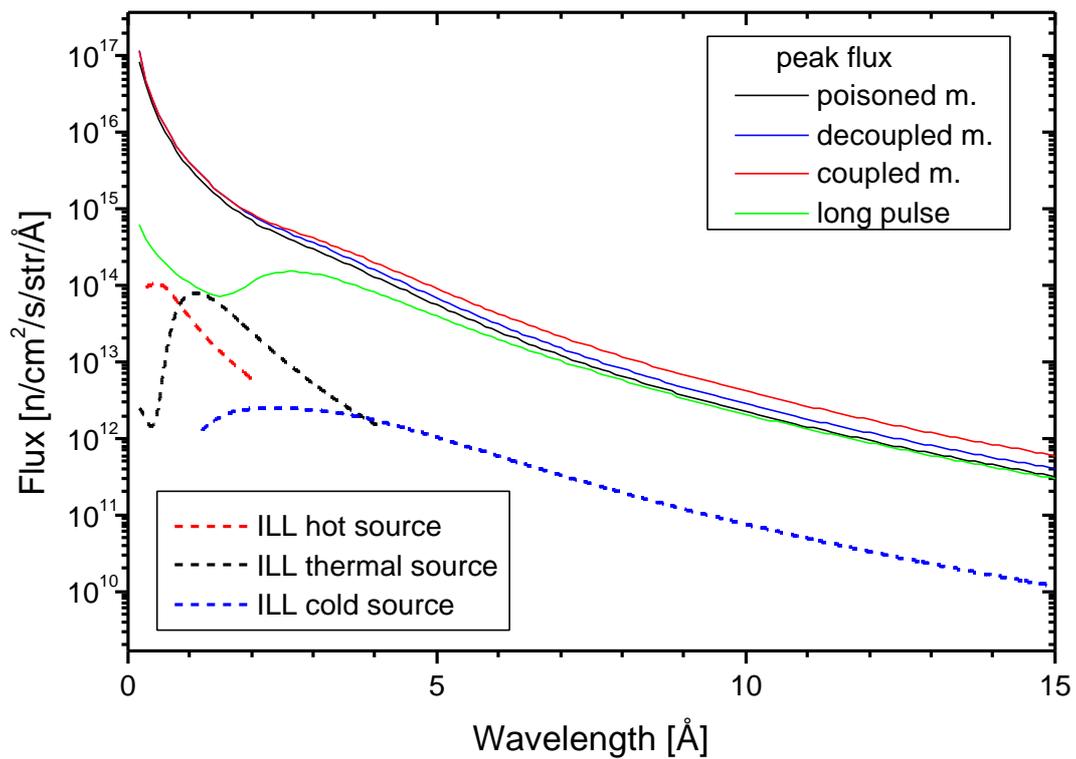


Thermal moderators:

The time average flux is defined for 50 Hz (5 MW total power) operation for the short pulse moderators and 16.667 Hz operation (also 5 MW total power) for the long pulse moderators.

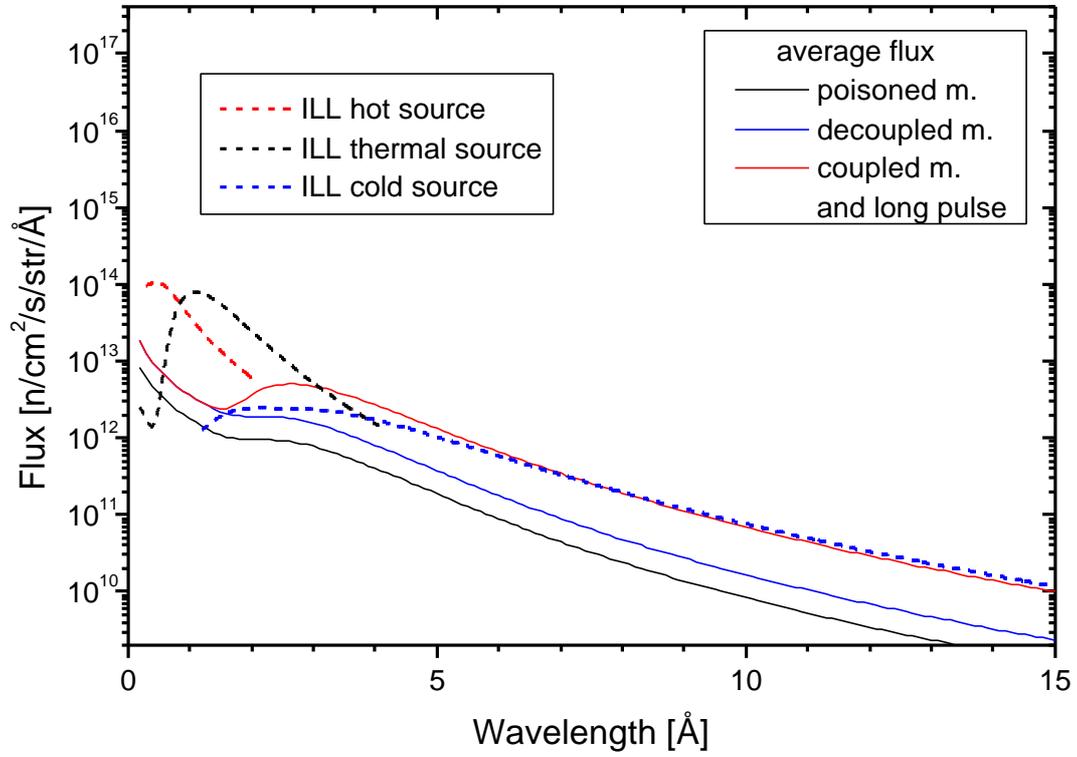


Cold moderators:



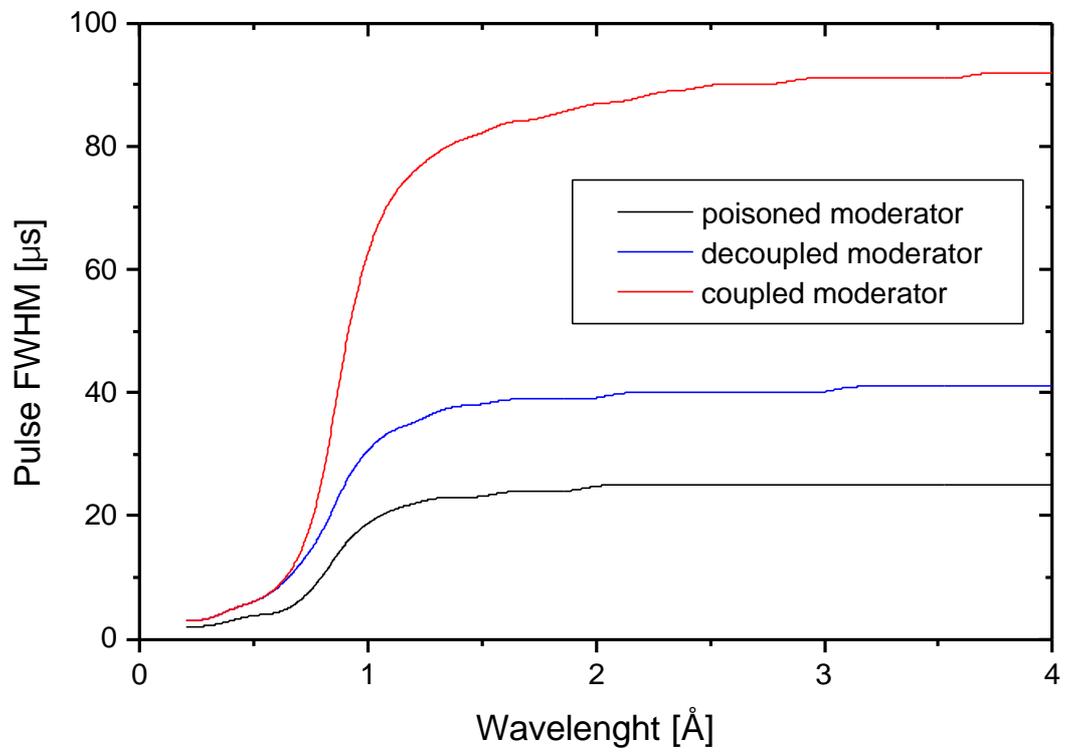
Cold moderators:

The time average flux is defined for 50 Hz (5 MW total power) operation for the short pulse moderators and 16.667 Hz operation (also 5 MW total power) for the long pulse.

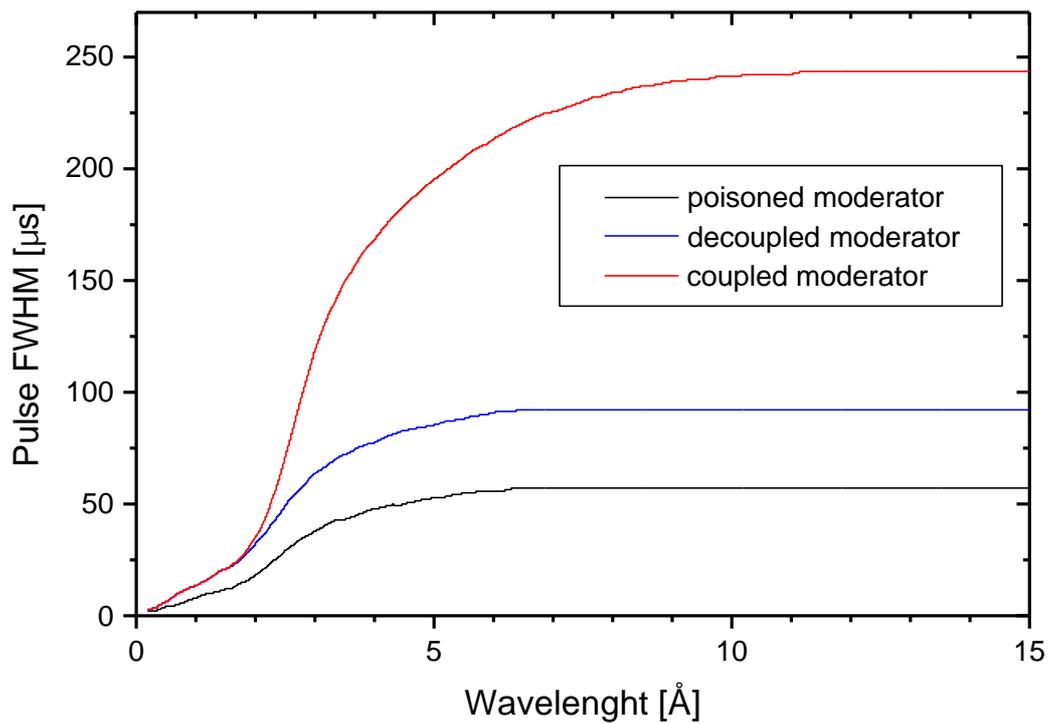


5. Pulse lengths

Thermal moderators:



Cold moderators



6. Observations, uncertainties, revision

A flagrant anomaly of our source data is the far from Maxwellian shape of the ILL cold moderator spectrum in the wavelength range of 2 – 5 Å, i.e. it is too flat around its maximum. Actually this coincides with another inconsistency of the source (the ILL "yellow book"), namely that in this wavelength range one of the two published cold spectra, that of IH1 with direct view of the cold sources, is up to two times superior to that of the other one, the cold neutron guide H13. In the figures above the published spectrum of IH13 was used. An explanation might be, that below 5 Å the guides are not fully illuminated, and the flux measurements were made in a way that below 2 Å only the direct view mattered for the guide too (and the solid angle was erroneously evaluated for IH1 above 5 Å). In any case, since we adopted here the representative, measured spectra of the effectively used ILL neutron guides, the comparison should be correct.

The line shapes and widths of all spectra is probably quite close to the ones which will be obtained at the end, although there are a number of source optimization questions outstanding, which will influence these properties. These questions include the choice of the reflector materials (e.g. Pb only, Be combined with Pb, Ni, or Fe, just to give a few examples of choices considered and/or implemented by now) and many engineering details. The big discrepancies in the literature concern the absolute neutron intensities from the various moderators. For example, the ratio between the average fluxes of coupled and poisoned moderators adopted here (on the basis of the latest calculations at SNS) is about 8.5:1, while the Los Alamos calculations suggest more like 14:1 and recent Japanese results on cold moderators 24:1 (at very similar pulse lengths). This question needs the most urgent attention by the neutronics specialists. In any case, revision of neutron intensity values only will be easily taken into account for the instrument performances by simply scaling. The same will apply to deviations from the here assumed total proton beam energy per pulse, either for the long pulse or the short pulse case.

The major new factor in conceiving instrumentation for future sources is the fact that coupled moderators provide both higher peak flux (about a conservative factor of 2 herein) and an order of magnitude higher average flux. The first coupled moderators ever have just become operational at Los Alamos, and the first instrument to use one of them received the first neutrons exactly 3 weeks ago. While ISIS, IPNS and KENS have achieved outstanding experience with de-coupled moderators, the use of coupled ones is an uncharted territory. The flux advantages of the coupled moderators (which actually can turn out to be much more than assumed here, cf. previous paragraph) puts into question the sense of using de-coupled moderators in many applications at wavelengths above 1 – 1.5 Å.

This lower wavelength limit is determined by the use of supermirror coated neutron guides for beam extraction. On spallation sources the typical closest distances between moderator and sample are 7 – 10 m, which – in view of the practical moderator sizes of some 12 cm x 12 cm – limits the incoming beam solid angle to $(0.7^\circ - 1^\circ)^2$, i.e. to the acceptance angle of commercially available supermirror neutron guides at 1 – 1.5 Å wavelength. Thus for longer wavelengths the moderator to sample distance can be made substantially longer without high intensity penalty and therefore the same resolution can be achieved at the higher flux of coupled moderators. (This happens to the expense of the width of the accessible wavelength band though, but this band is on many current spallation source instruments much too wide anyway.)

A particular consequence is that the peak flux of the long pulse is comparable to the peak flux from poisoned moderator. The shortest pulse width one can achieve with fast disc choppers (eventually using "eye-of-the-needle" geometry, cf. F. Mezei, Proc. ICANS XII, U. Steigenberger et. al. ed. p. I-377) or Fermi choppers is less (especially for cold neutrons) than the pulse width of the poisoned moderators. In addition, the tail free, symmetric pulse shape of choppers translates into an additional gain in data collection rates. Thus for the highest wavelength resolution applications (except for $\approx 1 \text{ \AA}$) the long pulse or coupled moderator plus chopper combination can open up superior or by now inaccessible opportunities.

LISTE DES PARTICIPANTS A TRESSES

Représentants du CEA

Roger BALIAN, Service de Physique Théorique
CEA Saclay Orme des merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
rbalian@cea.fr

Jean Paul DURAUD, DRFMC
CEA Grenoble 17 avenue des Martyrs 38054 GRENOBLE Cedex 09
dureau@cea.fr

Françoise FABRE, Direction des Sciences de la Matière
CEA Saclay Orme des merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
ffabre@dsmdir.cea.fr

J.L. LACLARE, Chef de projet CONCERT
CEA Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
laclare@dapnia.cea.fr

Louis LAURENT, Direction CEA - DRECAM
CEA Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
llaurent@cea.fr

Jacques MARTINO, Direction des Sciences de la Matière
CEN Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
jmartino@cea.fr

Irène NENNER, Direction DSM
CEA Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
inenner@cea.fr

Yves TERRIEN, Direction DSM
CEA Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex
yterrien@cea.fr

Représentants du CNRS

Alain FONTAINE, Directeur adjoint du département SPM - Délégué Matière Condensée
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16
alain.fontaine@cnrs-dir.fr

Amand GEORGE, Président de la Section 05 du CNRS - Dept. SPM
Labo de Physique des Matériaux - Ecole des Mines UMR 7556 Parc de Saurupt 54042 NANCY Cedex –
amand.george@mines.u-nancy.fr

Nathalie GODET, Secrétariat des TGE
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16
nathalie.godet@cnrs-dir.fr

Richard GRIGIE , Représentant du département Sciences de la vie
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16

Patrick HEMERY, Directeur adjoint Sciences Chimiques
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16
patrick.hemery@cnrs-dir.fr

Jean Paul POUGET, Direction Sciences Physiques et Mathématiques
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16
jean-paul.pouget@cnrs-dir.fr

Jean-Claude THIERRY, Directeur adjoint du département Sciences de la vie
CNRS 3, rue Michel Ange 75794 PARIS Cedex 16
jean-claude.thierry@cnrs-dir.fr

Représentants du Ministère

Bernard FROIS, Direction de la technologie -MRT
Ministère de la Recherche et la Technologie 1, rue Descartes 75231 PARIS 05
Bernard.frois@technologie.gouv.fr

Jacques JOFFRIN, Délégué G5
Laboratoire de Physique du Solide Université de Paris Sud PARIS
joffrin@lps.u-psud.fr

Michel LE BELLAC, Direction de la Recherche - MRT
Ministère de la Recherche et la Technologie 1, rue Descartes 75231 PARIS 05

Jean GALLOT, Membre du groupe de travail de l'Office Parlementaire d'Evaluation
des Choix Scientifiques et Technologiques
Jean.Gallot@wanadoo.fr

Représentants européens

Ken ANDERSEN, Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
K.H.Andersen@rl.ac.uk

Kurt CLAUSEN, Central Project Team
c/o Forschungszentrum Jülich Building 09.1 D-52425 JÜLICH – Allemagne
k.clausen@fz-juelich.de

Robert CYWINSKI, Head of Condensed Matter Physics
Dept. of Physics & Astronomy - Univ. of Leeds England LEEDS LS2 9JT
R.Cywinski@leeds.ac.uk

Björn FAK Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
B.Fak@rl.ac.uk

Dave Keen, Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
D.A.Keen@rl.ac.uk

Feri MEZEI, Hahn-Meitner-Institut
Glienicker Str. 100 D-14109 BERLIN
mezei@hmi.de

Paulo RADAELLI, Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
P.Radaelli@rl.ac.uk

Dieter RICHTER, Institut für Festkörperforschung
c/o Forschungszentrum Jülich D-52425 JÜLICH
d.richter@fz-juelich.de

Alan SOPER, Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
aks@isise.rl.ac.uk

Peter TINDEMANS,
Den Haag
peter@tindemans.demon.nl

John TOMKINSON, Rutherford Appleton Laboratory
Chilton, Didcot U.K. Oxfordshire OX11 0QX
J.Tomkinson@rl.ac.uk

Représentants des CRG de l'ILL

* Laboratoire DRFMC/SPSMS/MDN
CEN Grenoble 17 avenue des Martyrs 38054 GRENOBLE Cedex 09

Laboratoire de Cristallographie
UPR 5031 CNRS 25 avenue des Martyrs, BP 166 38042 GRENOBLE Cedex 09

Robert BELLISSENT *
rbellissent@cea.fr

Frédéric BOURDAROT *
bourdarot@cea.fr

Jacques FLOUQUET *
flouquet@cea.fr

Olivier ISNARD #
isnard@polycnrs-gre.fr

Stéphanie POUGET *
spouget@ill.fr

Louis-Pierre REGNAULT *
lpregnault@cea.fr

Jacques SCHWEIZER *
schweizer@drfmc.ceng.cea.fr

Représentants de l'ILL

* Institut Laue Langevin
6, rue Jules Horowitz BP 156 38042 GRENOBLE Cedex 09

Colin CARLILE *
carlile@ill.fr

Roland CURRAT *
currat@ill.fr

Albert-José DIANOUX *
dianoux@ill.fr

Dirk DUBBERS *
dubbers@ill.fr

Bela FARAGO *
farago@ill.fr

Teresa FERNANDEZ *
fernandez@ill.fr

Giovana FRAGNETO *
fragneto@ill.fr

Bernhard FRICK *
frick@ill.fr

Thomas HANSEN *
hansen@ill.fr

Arno HIESS *
hiess@ill.fr

Mark JOHNSON *
johnson@ill.fr

Jiri KULDA *
kulda@ill.fr

Eddy LELIEVRE-BERNA *
lelievre@ill.fr

Garry McINTYRE *
mcintyre@ill.fr

Hannu MUTKA *
mutka@ill.fr

Francis TASSET *
francis.tasset@ill.fr

Peter TIMMINS *
timmins@ill.fr

Christian VETTIER *
vettier@ill.fr

Représentants du LLB

* Laboratoire Léon Brillouin (LLB)
UMR12 CNRS - CEA Bat 563, CE-Saclay 91191 GIF SUR YVETTE Cedex

Lab.Chimie du Solide - UMR 6511 CNRS
LLB Bat 563, CE-Saclay 91191 GIF SUR YVETTE Cedex

@ DRECAM/Service de physique de l'état condensé
CEN Saclay Orme des Merisiers 91191 GIF SUR YVETTE Cedex

Gilles ANDRE *
andre@llb.saclay.cea.fr

Marie-Claire BELLISSENT-FUNEL *
mcbel@llb.saclay.cea.fr

Brigitte BEUNEU *
beuneu@llb.saclay.cea.fr

François BOUE *
boue@llb.saclay.cea.fr

Françoise BOUREE *
bouree@llb.saclay.cea.fr

Philippe BOURGES *
bourges@llb.saclay.cea.fr

Annie BRULET *
brulet@llb.saclay.cea.fr

Monica CERETTI *
ceretti@llb.saclay.cea.fr

Jean-Pierre COTTON *
cotton@llb.saclay.cea.fr

Alain COUSSON *
cousson@llb.saclay.cea.fr

Charles DE NOVION *
chdn@llb.saclay.cea.fr

Jeanine ETRILLARD #
janine.etrillard@univ-rennes1.fr

Claude FERMON @
cfermon@cea.fr

Béatrice GILLON *
gillon@bali.saclay.cea.fr

Hans GLATTLI @
glattli@drecam.saclay.cea.fr

Igor GONCHARENKO *
gonch@llb.saclay.cea.fr

Arsene GOUKASSOV *
gukasov@bali.saclay.cea.fr

Bernard HENNION *
hennion@llb.saclay.cea.fr

Martine HENNION *
mhennion@llb.saclay.cea.fr

Rémi KAHN *
kahn@llb.saclay.cea.fr

Didier LAIREZ *
lairez@llb.saclay.cea.fr

Stéphane LONGEVILLE, *
longevil@llb.saclay.cea.fr

Marie Hélène MATHON *
mathon@llb.saclay.cea.fr

Alain MENELLE *
menl@llb.saclay.cea.fr

Jean-Michel MIGNOT *
jmignot@cea.fr

Isabelle MIREBEAU *
mirebea@llb.saclay.cea.fr

Frédéric OTT *
fott@llb.saclay.cea.fr

Gérard PEPY *
pepy@llb.saclay.cea.fr

Daniel PETITGRAND *
petitg@bali.saclay.cea.fr

Juan RODRIGUEZ-CARVAJAL *
juan@llb.saclay.cea.fr

Ulrich RUCKER *
rucker@llb.saclay.cea.fr

José TEIXEIRA *
teix@llb.saclay.cea.fr

Jean-Marc ZANOTTI *
zanotti@llb.saclay.cea.fr

Utilisateurs

Christiane ALBA-SIMIONESCO, Chimie Physique Matériaux Amorphes
URA 1104 CNRS/Université Paris II Bât 490 91405 ORSAY Cedex
chalba@cpma.u-psud.fr

Marc BEE, Laboratoire de Spectrométrie Physique UMR 5588 CNRS
Université Joseph Fourier BP. 87/BAT E45/140 Rue de la Physique
38402 SAINT MARTIN D'HERES - bee@ujf-grenoble.fr

Cécile BON, CNRS / IPBS – 205 Route de Narbonne
F – 31077 Toulouse Cedex
bon@ipbs.fr

Ulf DAHLBORG, Lab. de Science et Génie des Matériaux Métalliques (LSG2M)
UMR 7584 CNRS/ Ecole des Mines de Nancy
Parc de Saurupt 54042 NANCY Cedex - dahlborg@mines.u-nancy.fr

Pierre-Louis DAMAY, Laboratoire de Spectroscopie Infrarouge et Raman
UMR 8516 (ex UPR 2631) du CNRS/HEI 13, Rue de Toul 59046 LILLE Cedex
pierre.damay@hei.fr

François FILLAUX, LADIR
2 rue Henri Dunant, BP 28 94320 THIAIS
fillaux@glvt-cnrs.fr

Henry FISCHER, LURE - UMR 130 CNRS
Université Paris Sud Campus d'Orsay Bat 209C/D & Bat 490 91405 ORSAY Cedex
fischer@lure.u-psud.fr

Daniel FRUCHART, Laboratoire de Cristallographie
UPR 5031 CNRS 25 avenue des Martyrs, BP 166 38042 GRENOBLE Cedex 09
fruchart@labs.polycnrs-gre.fr

Marie-Pierre GAIGEOT, PhysicoChimie Biomoléculaire et Cellulaire
UPRESA 7033 P/M Curie
gaigeot@lpbc.jussieu.fr

Jean-Georges GASSER, Laboratoire de Physique des Liquides et des Interfaces
Université de Metz 1 Bld Dominique François Arago 57078 METZ Cedex 03
gasser@lpli.sciences.univ-metz.fr

Mahmoud GHOMI, Laboratoire de Physique et Chimie Biomoléculaire et Cellulaire
ESA 7033 CNRS/Université Paris VI 4 Place Jussieu Tour 333 , Case 138
75252 PARIS Cedex 05 - ghomi@lpbc.jussieu.fr

François GUILLAUME, Physicochimie Moléculaire
UMR 5803 CNRS/Université Bordeaux I 351 Cours de la Liberation
33405 TALENCE Cedex - francois@loriot.lsmc.u-bordeaux.fr

Hervé JOBIC, Institut de Recherche sur la Catalyse
UPR 5401 CNRS 2 Avenue Albert Einstein 69626 VILLEURBANNE Cedex
jobic@catalyse.univ-lyon1.fr

Michel LATROCHE, Laboratoire de Chimie et Métallurgie des Terres Rares (LCMTR)
UPR 209 CNRS 2-8 rue Henri Dunant 94320 THIAIS Cedex
latroche@glvt-cnrs.fr

Françoise LECLERCQ, Laboratoire de Spectroscopie Infrarouge et Raman
UMR 8516 (ex UPR 2631) du CNRS/HEI 13, Rue de Toul 59046 LILLE Cedex
francoise.leclercq@hei.fr

Marie-Hélène LEMEE-CAILLEAU, Groupe Matière Condensée et Matériaux
UMR 6626 CNRS/Université de Rennes 1 Campus de Beaulieu/Bât 11B
35042 RENNES Cedex - mhlemee@univ-rennes1.fr

Stéphane LONGELIN , Laboratoire de Spectroscopie Infrarouge et Raman
UMR 8516 (ex UPR 2631) du CNRS/HEI 13, Rue de Toul 59046 LILLE Cedex
stephane.longelin@hei.fr

Philippe MANGIN, Laboratoire de Métallurgie Physique, Sciences des Matériaux
URA 155 CNRS/Université de Nancy I BP 239
54506 VANDOEUVRE LES NANCY - mangin@lps.u-nancy.fr

Pierre MONCEAU, CRTBT
CNRS BP 166 38042 GRENOBLE Cedex 9
monceau@labs.polycnrs-gre.fr

Dean MYLES, EMBL
6 rue Jules Horowitz 38042 GRENOBLE
myles@embl-grenoble.fr

Joseph PARELLO, Chimie biomoléculaire et Interactions Biologiques
ESA 5074 CNRS/Univ-Montpellier II 15 avenue Ch. Flahault
34060 MONTPELLIER Cedex 01 - joseph@pharma.univ-montp1.fr

Werner PAULUS, Lab.Chimie du Solide - UMR 6511 CNRS
Universite de Rennes 1 Av. du Gal Leclerc, Bat 10 35042 RENNES Cedex
werner.paulus@univ-rennes1.fr

Michel RAWISO, Centre de Recherche sur Macromolécules
UPR 22 CNRS Institut Charles Sadron 6, rue Boussingault
67083 STRASBOURG Cedex - rawiso@ics.u-strasbg.fr

Benoît RUFFLE, Laboratoire des verres
UMR 5587 CNRS/Université de Montpellier II Place Eugène Bataillon
Case 069 34095 MONTPELLIER Cedex 5 - ruffle@ldv.univ-montp2.fr

Bertrand TOUDIC, GMCM - UMR 6626 CNRS
Universite de Rennes 1 Bat 11A Campus de Beaulieu 35042 RENNES Cedex
bertrand.toudic@univ-rennes1.fr

Hans Peter TROMMSDORFF, Laboratoire de Spectrométrie Physique
UMR 5588 CNRS/Université Grenoble I/Joseph Fourier BP. 87/BAT E45
140 Rue de la Physique 38402 ST MARTIN D'HERES - trommsdo@ujf-grenoble.fr

René VACHER, Laboratoire des verres
UMR 5587 CNRS/Université de Montpellier II Place Eugène Bataillon Case 069
34095 MONTPELLIER Cedex 5 - rene@ldv.univ-montp2.fr

Giuseppe ZACCAI, Institut de Biologie Structurale (IBS)
UPR 9015 CNRS/CEA 41 rue Jules Horowitz 38027 GRENOBLE Cedex 01
zaccai@ibs.fr

Nous remercions toutes les personnes qui ont contribué à la réalisation de ce rapport.

*Des exemplaires de ce rapport sont disponibles auprès de la
Société Française de la Neutronique
email: sfn@ill.fr
web: www.sfn.asso.fr*

*Editeur: Stéphanie Pouget
avec la collaboration de F. Leclercq, A. Menelle, H. Mutka, J.M. Mignot
Juin 2001*



Société Française de la Neutronique

Web: <http://www.sfn.asso.fr>