

INTRODUCTION A LA DIFFUSION DES NEUTRONS

Sylvain PETIT

Laboratoire Léon Brillouin

CEA – CNRS – Université Paris-Saclay

91190 Gif sur Yvette, France

sylvain.petit@cea.fr





<https://www.neutron-sciences.org/>

Articles de

Eric Ressouche, Mechthilde Enderle, Stéphane Raymond

Et bien d'autres ...

Explorer la matière

Différentes états de la matière:

liquide, solide, gaz, plasmas,
cristaux liquides, smectiques, nématiques,
Conformation de macro-molécules,
phases magnétiques, supraconductrices, Kondo,
liquides de spin, liquides de Luttinger, ...

Quelles corrélations ?

Comment les atomes bougent-ils ?
Comment les moments magnétiques bougent-ils ?
Ces mouvements sont-ils corrélés ?

Transition de phase

brisure spontanée de symétrie, transition de phase quantique,
transition de phase « topologique » .

Explorer la matière

1895 : Découverte des rayons X par Röntgen

1913, Bragg (père et fils) utilisent ce rayonnement pour déterminer la structure cristalline de NaCl puis celle de nombreux autres sels métalliques.
(Prix Nobel 1915)



Explorer la matière avec les neutrons

Peut on faire diffracter les neutrons comme on fait diffracter la lumière ?

Oui si $\lambda \approx d$

Cool : λ des neutrons thermiques $\approx$ qqs Å

Explorer la matière avec les neutrons

Peut on faire diffracter les neutrons comme on fait diffracter la lumière ?

Complémentaire des RX car l'interaction neutron-matière est différente de l'interaction X-matière:

- + sensibilité isotopique
- + magnétisme
- + sonde de volume

ET :

$E \approx$ énergie typique des excitations (qq's meV):
spectroscopie résolue dans l'espace réciproque

Explorer la matière avec les neutrons

Plus généralement, la diffusion des neutrons permet de mesurer :

Les corrélations dans le temps et l'espace entre atomes

Les corrélations dans le temps et l'espace entre moments magnétiques.

Où sont les atomes ?

Que font-ils ?

Qu'est ce qu'un neutron ?

- Non chargé

- Particule massive

$$mv = \hbar k \quad E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$$

- Spin $\frac{1}{2}$

$$S = 1/2$$

$$S_z = \pm 1/2$$

- En vertu de la dualité onde corpuscule, c'est aussi une onde de matière

Qu'est ce qu'un neutron ?

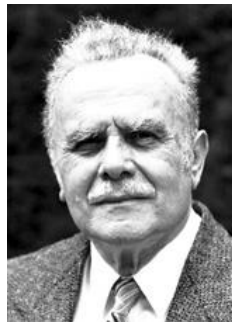
1911 : noyau atomique (Rutherford)

1913 : modèle planétaire de l'atome (Bohr)

1932 : découverte du neutron (J. Chadwick)

1940-1950 : construction des réacteurs aux US et au Canada
(Chalk River's NRX reactor, ORNL's graphite reactor)
Travaux de E. Wollan et C. Shull en diffraction

1956: construction du 1er spectromètre 3 axes
à Chalk-River par B. Brockhouse.



Bertram N. Brockhouse



Clifford G. Shull

Produire les neutrons

En Europe:

Reacteurs

ILL-Grenoble (France)

~~LLB-Saclay (France)~~

FRMII-Munich (Germany)

~~HMI-Berlin (Germany)~~

Source à spallation

ISIS-Didcot (UK)

PSI-Villigen (Switzerland)



Et ailleurs :

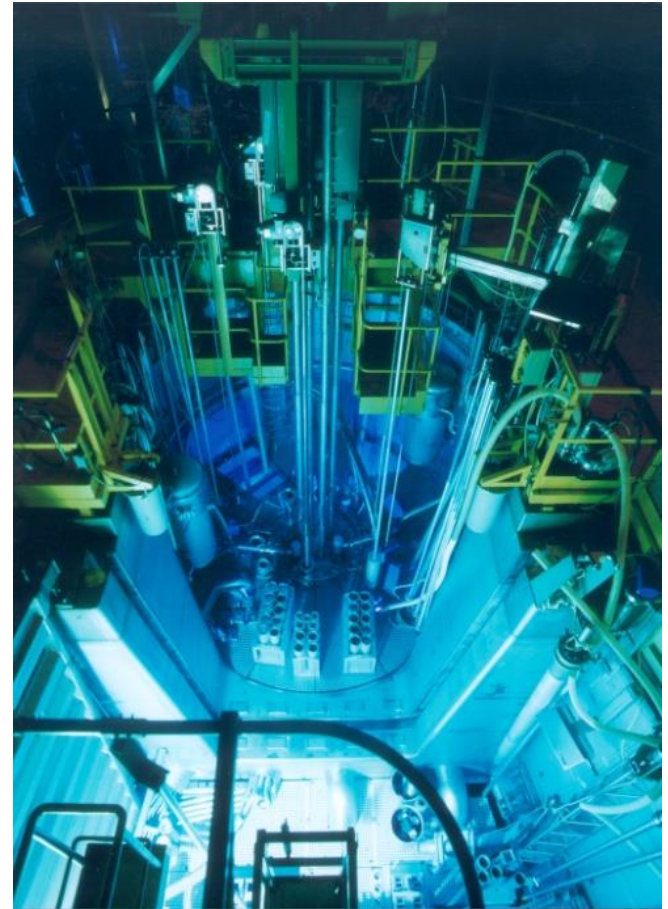
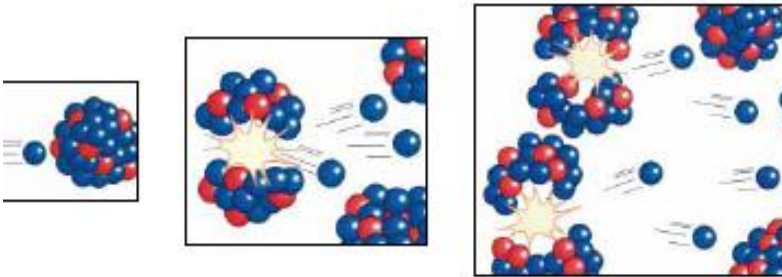
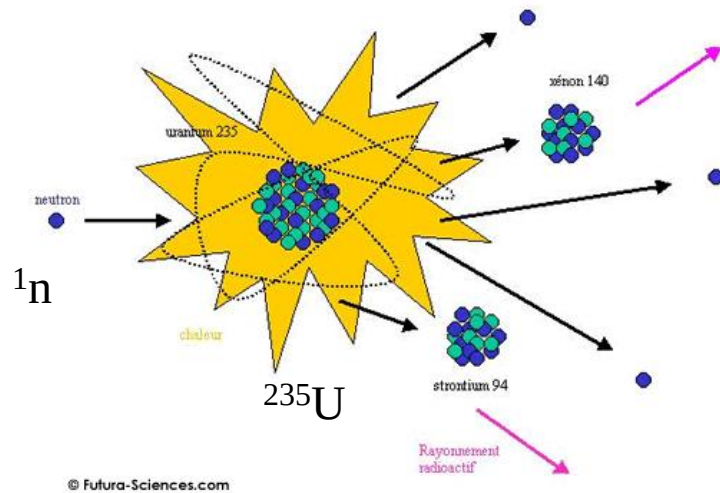
Dubna (Russia), JPARC (Japan)

SNS, DOE labs (USA), ANSTO
(Australia)

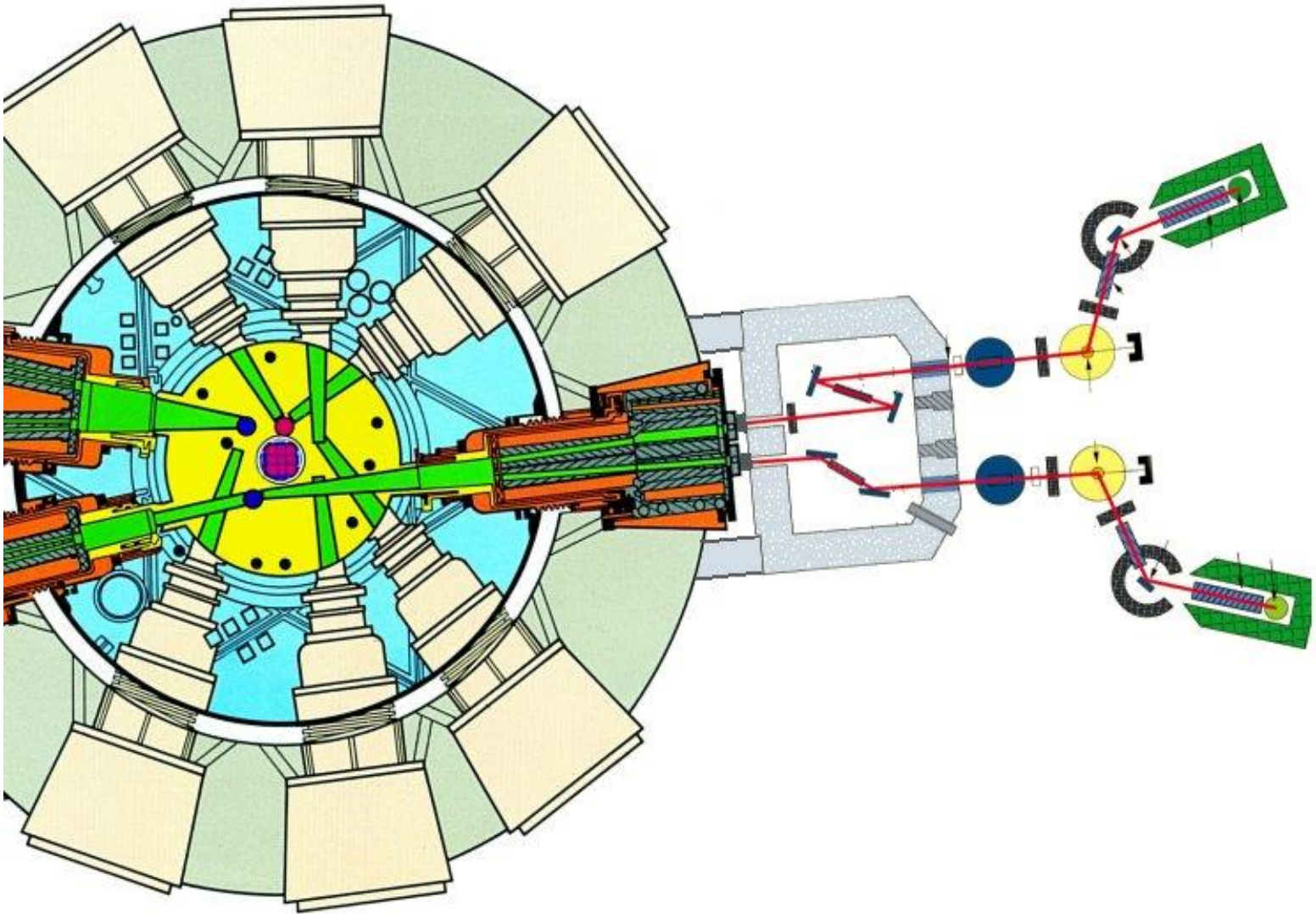
Canada, India, ...



Produire les neutrons



Produire les neutrons



Produire les neutrons



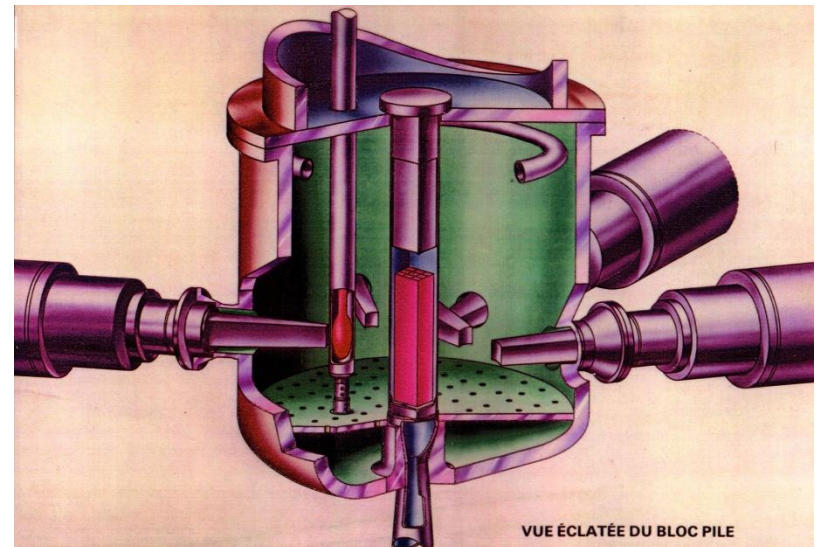
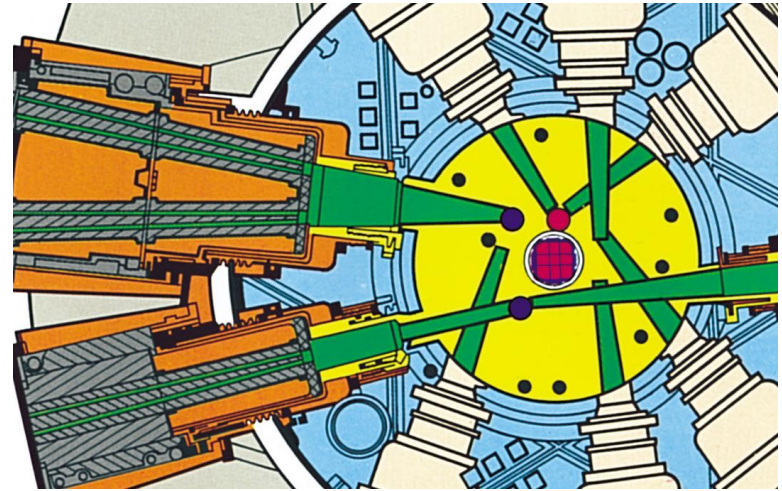
Produire les neutrons

Réacteur Orphée

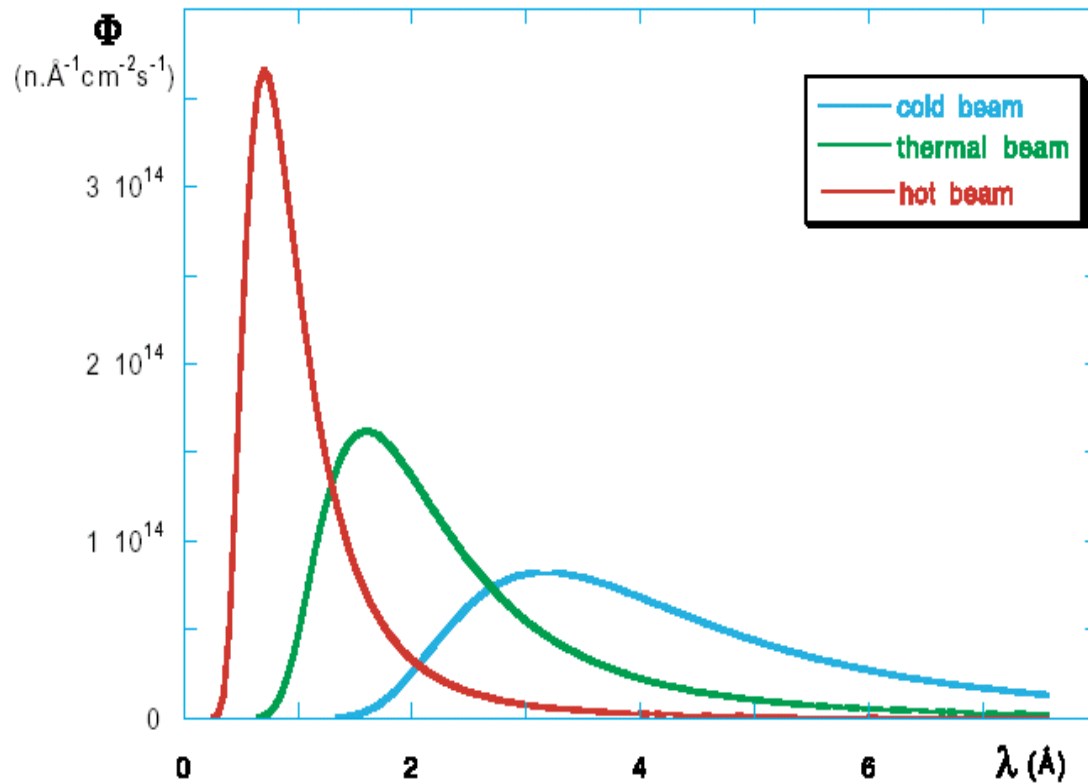
4 sorties de faisceau thermique

2 chauds

3 froids



Produire les neutrons



Differential flux (per $\text{\AA}$) given by local moderators

Neutrons chauds

Structure des liquides et cristaux

Neutrons thermiques

Matière condensée

Neutrons froids

Matière condensée

Interaction neutron-matière

Interaction forte : le neutron entre au cœur du noyau (et forme un « noyau composé »), avant de s'évaporer.

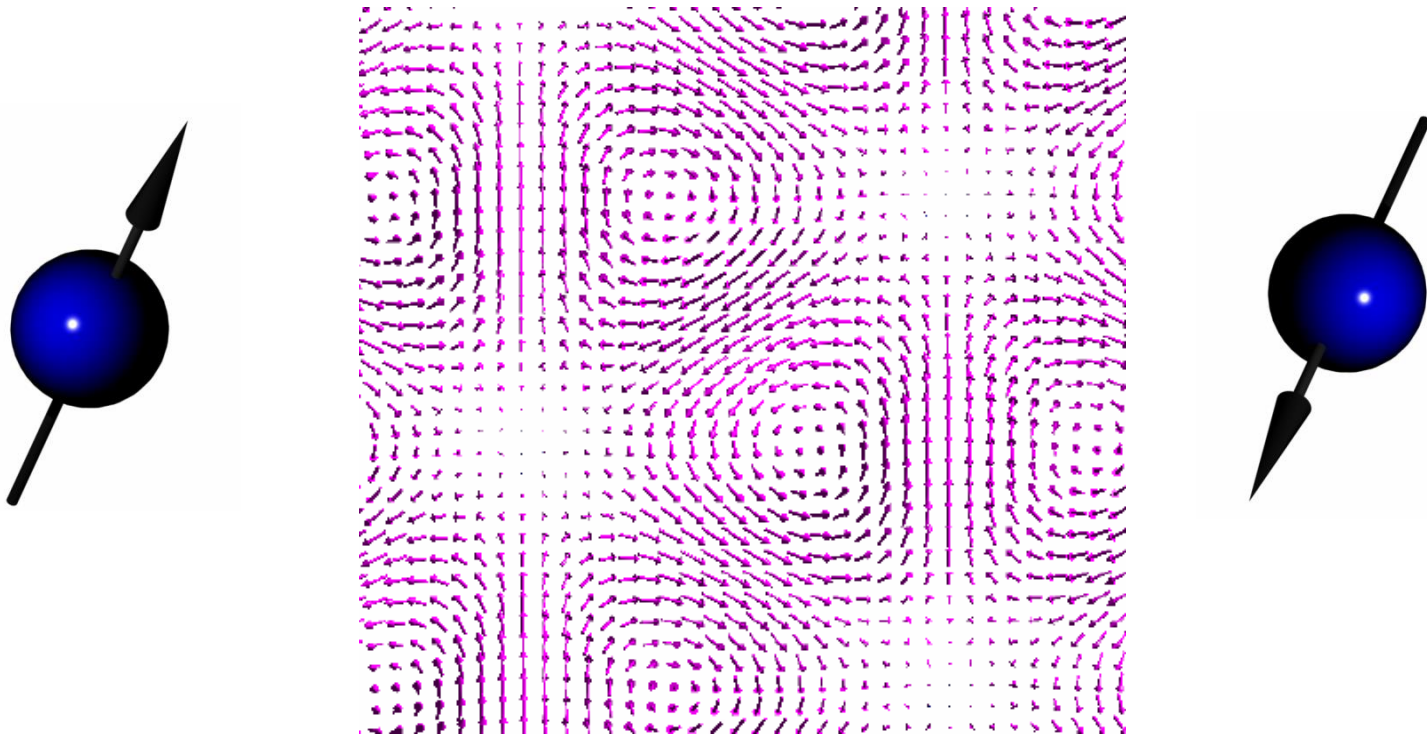
$$\hat{V}_n(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{M} b \delta(\vec{r} - \vec{R}).$$

b = « longueur de diffusion »
positive ou négative
dépend de l'isotope

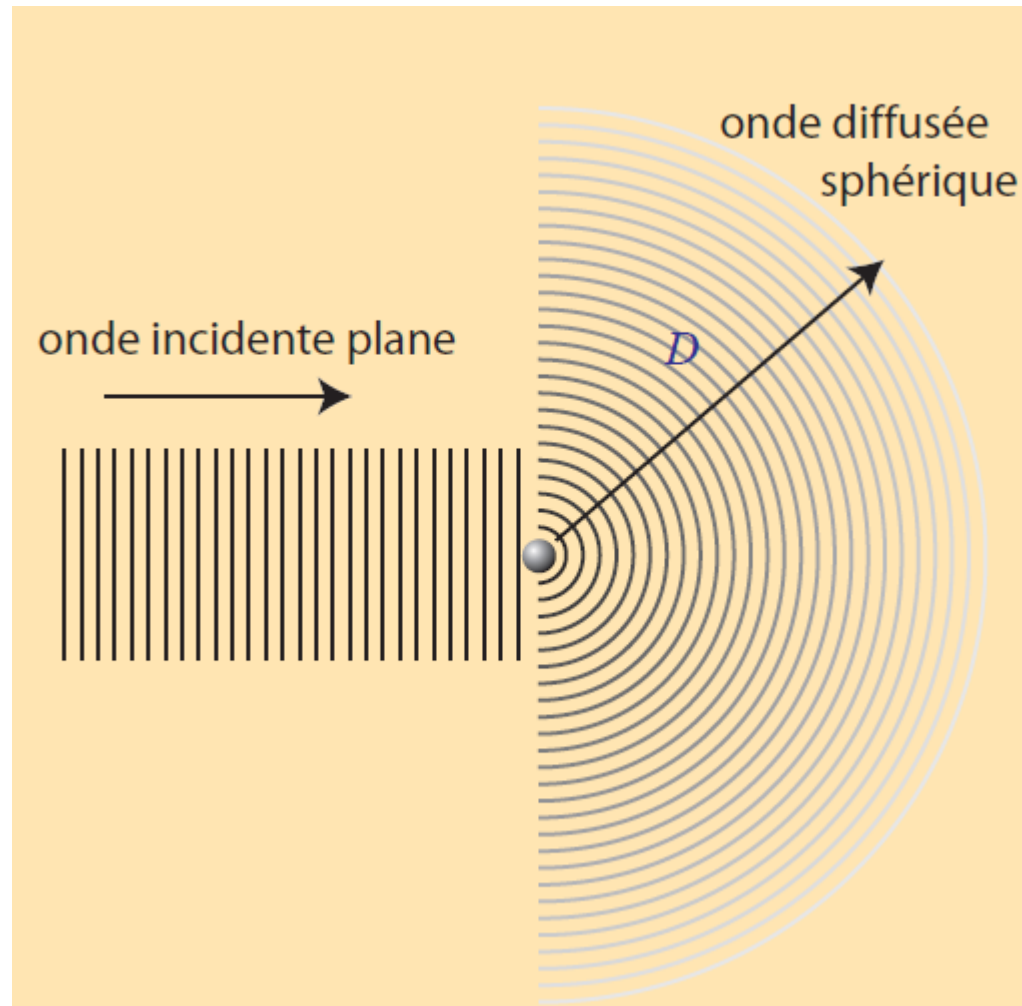
Interaction neutron-matière

Interaction magnétique dipolaire entre le spin du neutron et les moments magnétiques au sein de l'échantillon

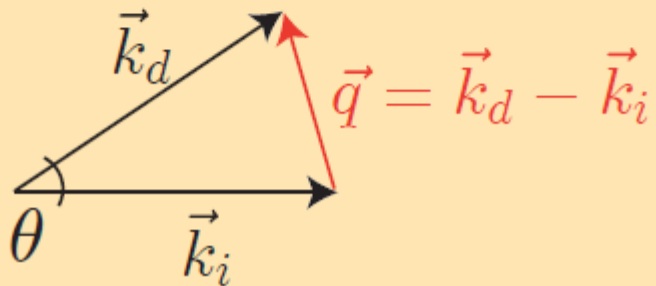
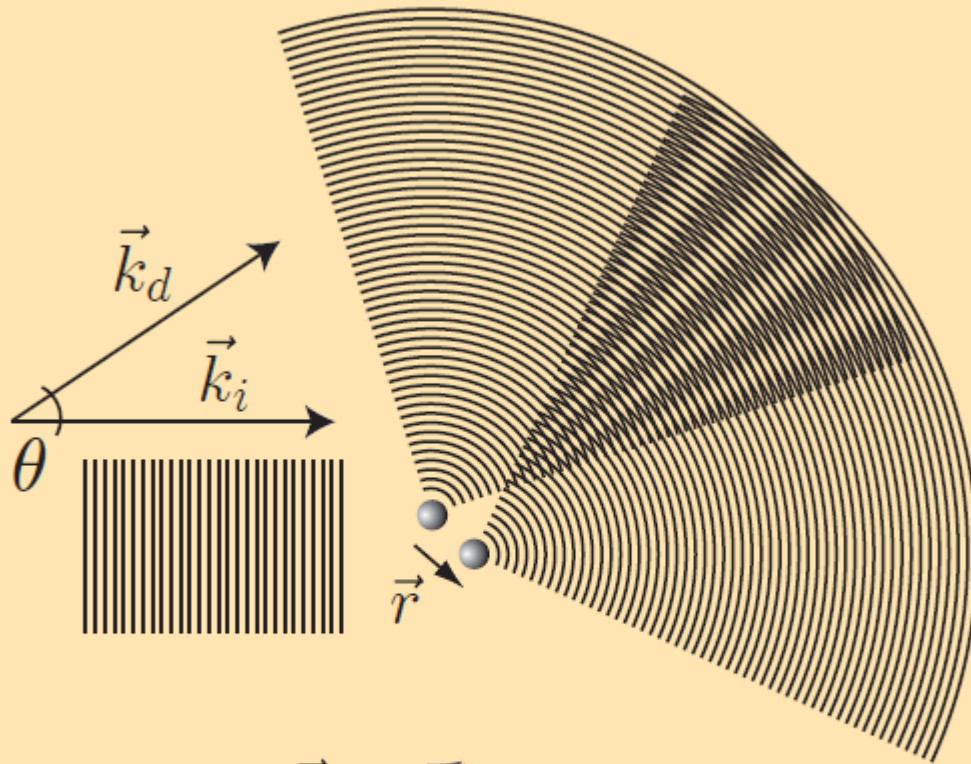
$$E_{ne} = -\mu_n \cdot B_e \quad B_e(R) = \frac{\mu_o}{4\pi} \left(\text{rot}\left(\frac{\mu_e \times R}{R^3}\right) - e v_e \times \frac{R}{R^3} \right)$$



Diffraction



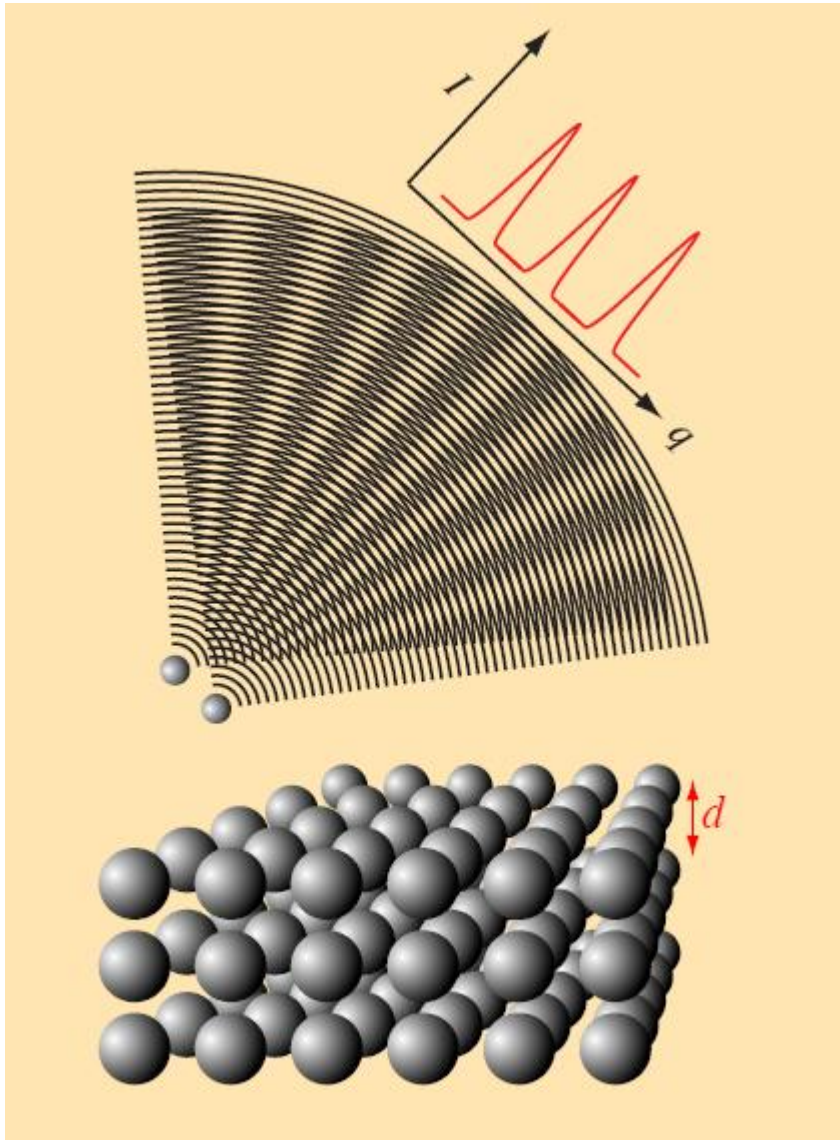
Diffraction



Différence de phase :

$$\Delta\phi = \vec{r}(\vec{k}_d - \vec{k}_i)$$

Diffraction



Somme des amplitudes
des ondes partielles

$$\psi = \frac{\psi_0}{D} \times \sum_{i=1}^n b_i e^{iqr_i}$$

Intensité diffusée : $\psi^2 = \psi\psi^*$

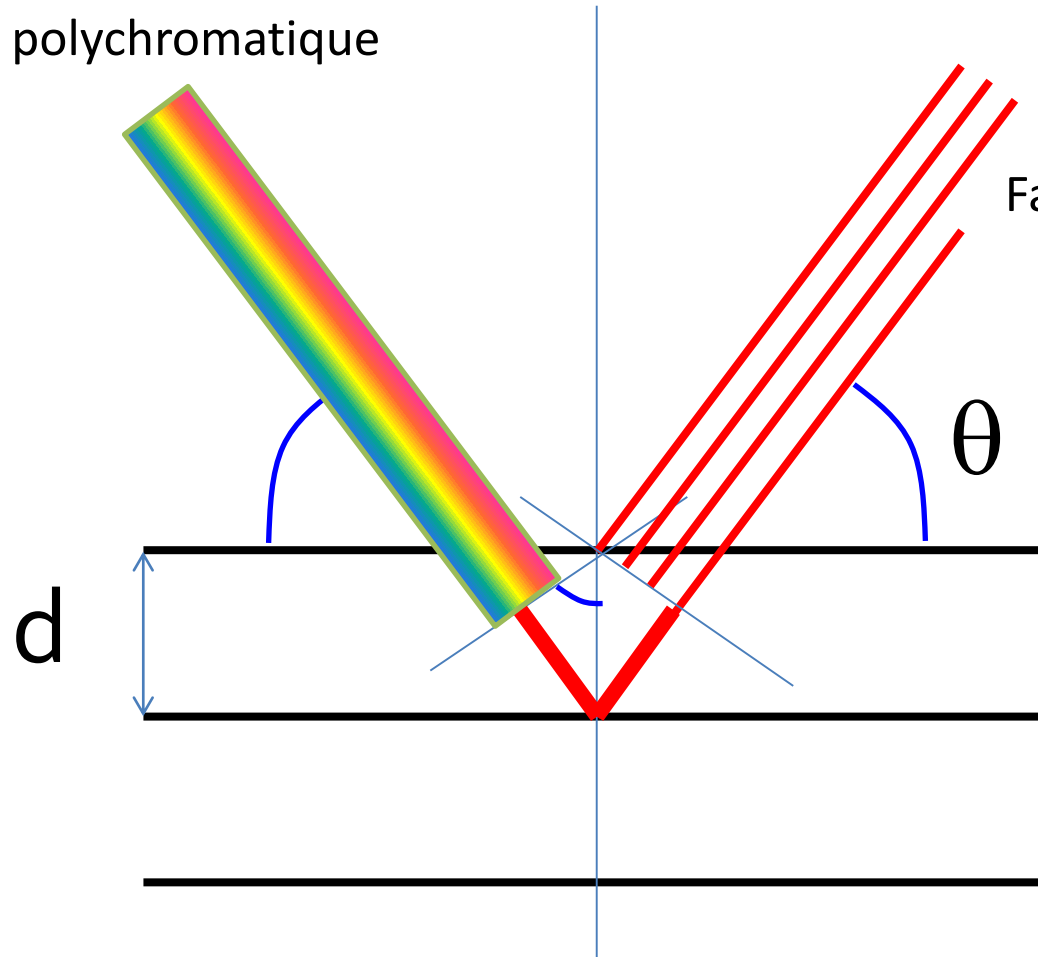
$$\begin{aligned} \psi^2 &= \frac{\psi_0^2}{D^2} \times \left[\sum_i^n b_i e^{iqr_i} \times \sum_j^n b_j e^{-iqr_j} \right] \\ &= \frac{\psi_0^2}{D^2} \times \sum_i^n \sum_j^n b_i b_j e^{iq(r_i - r_j)} \end{aligned}$$

CONSEQUENCE 1:

*Il est possible de préparer un faisceau
monochromatique*

Flux monochromatique de neutrons

Faisceau incident polychromatique



Faisceau monochromatique

$$\lambda = 2d \sin \theta$$

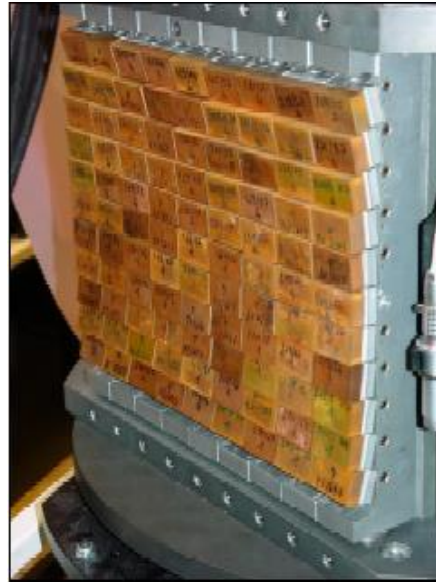
Flux monochromatique de neutrons



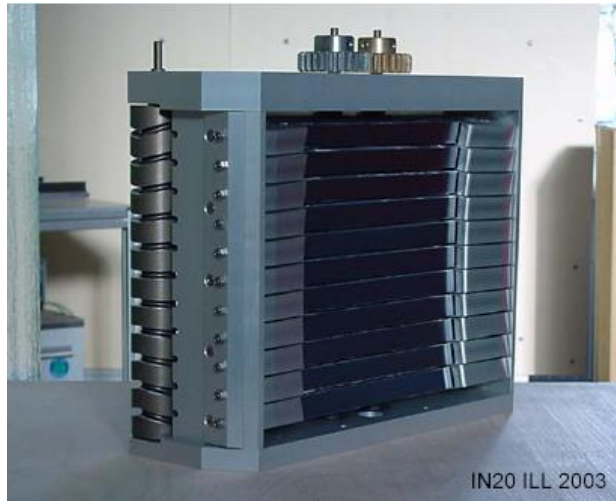
Graphite

- Faible absorption
- Forte réflectivité
- d-spacing adapté
- Monocristaux
- Coût

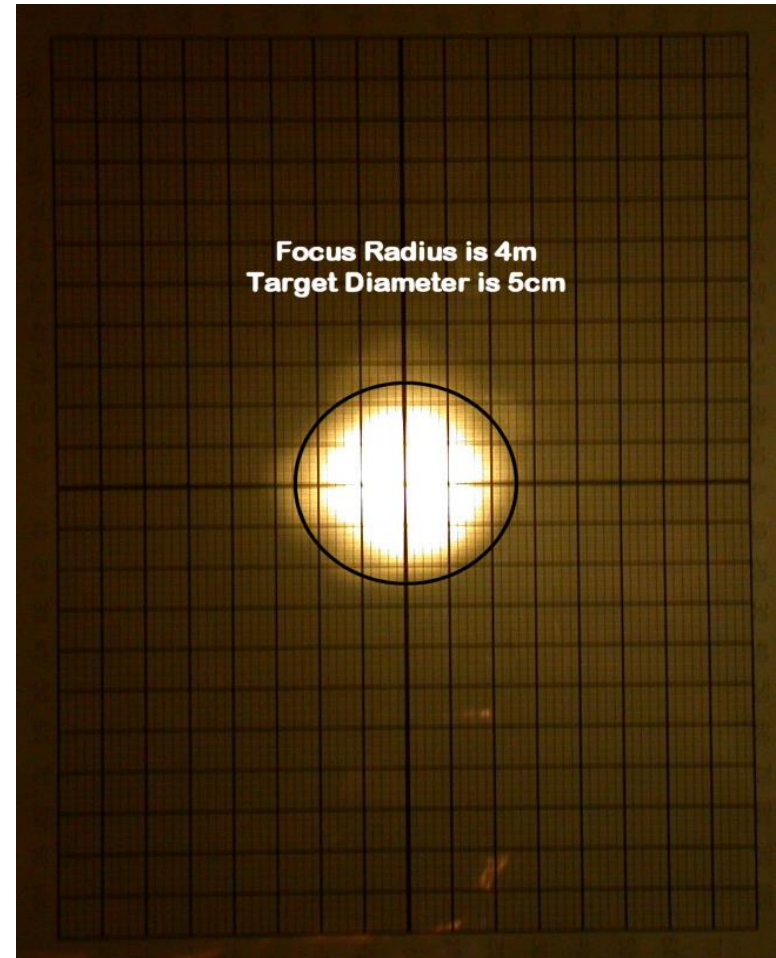
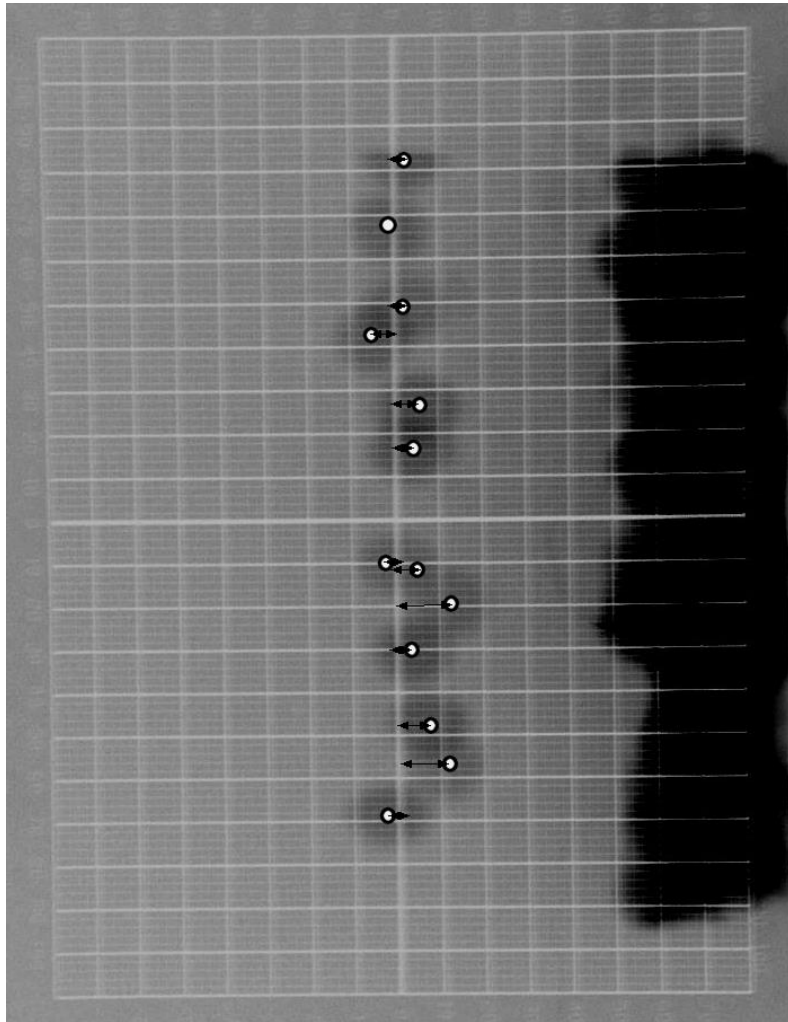
Cu



Flux monochromatique de neutrons

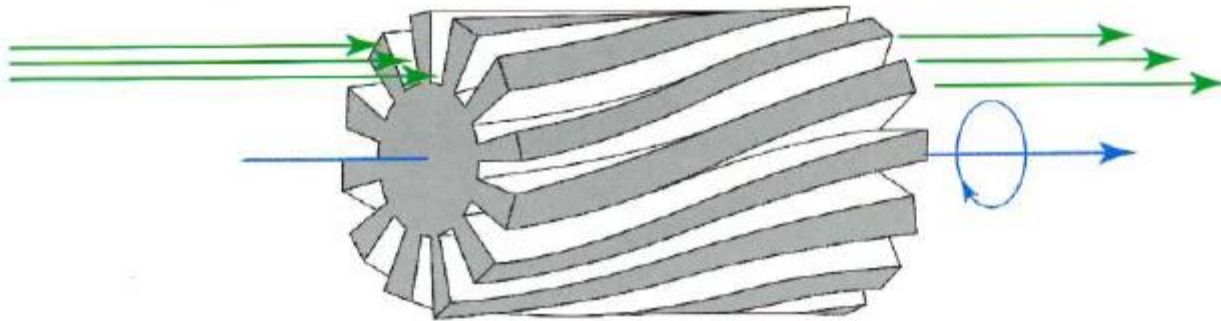


Flux monochromatique de neutrons



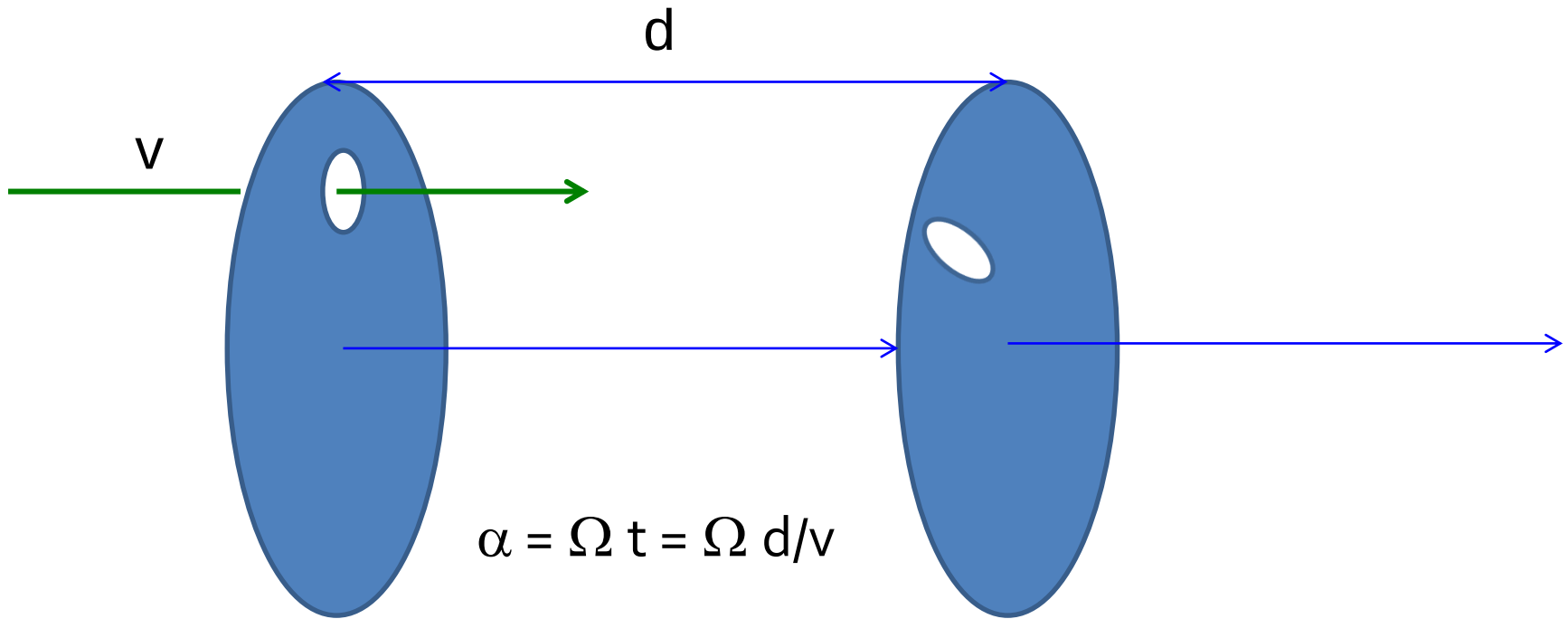
Flux monochromatique de neutrons

Sélecteur de vitesse



Flux monochromatique de neutrons

Disk Chopper

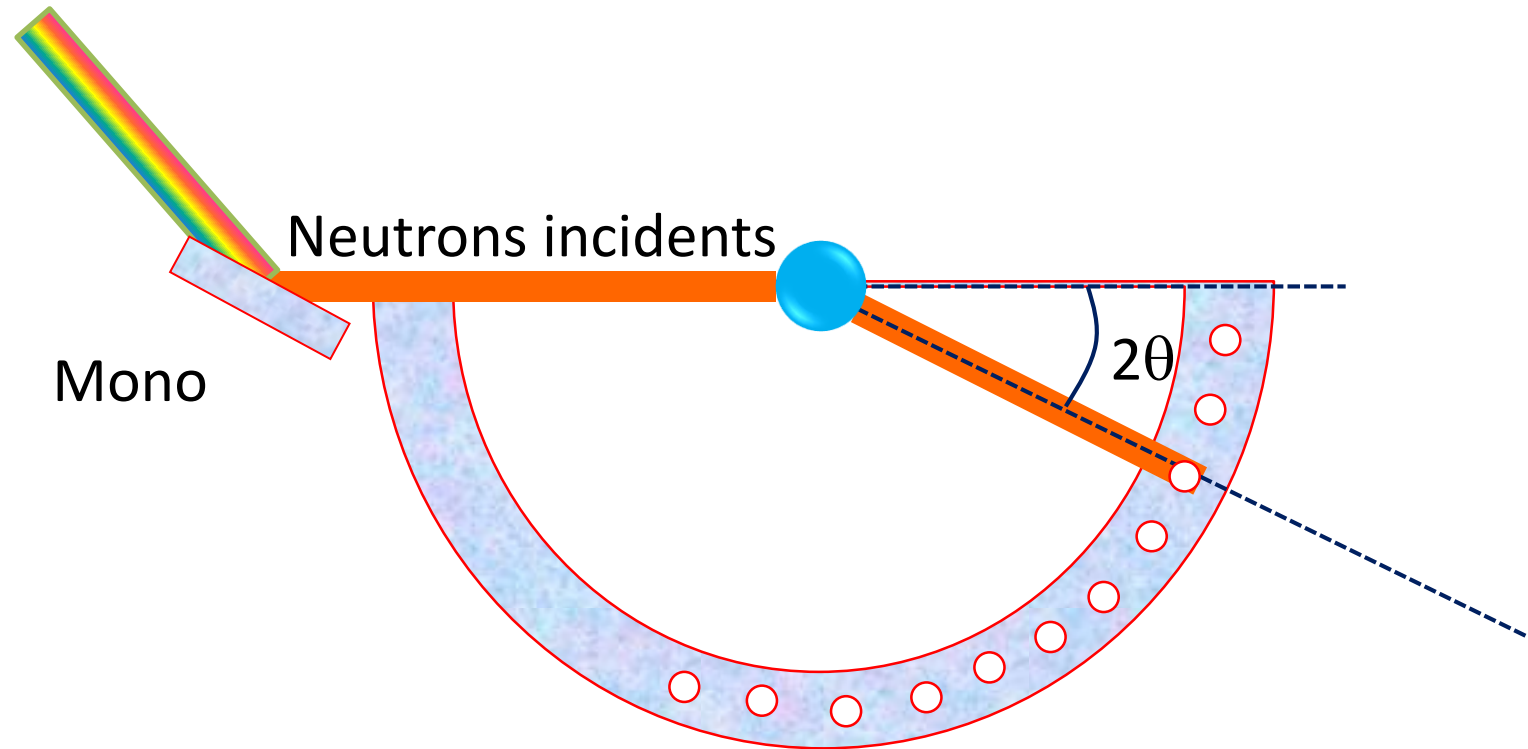


Produit un pulse de neutrons d'énergie donnée

CONSEQUENCE 2

diffractomètre

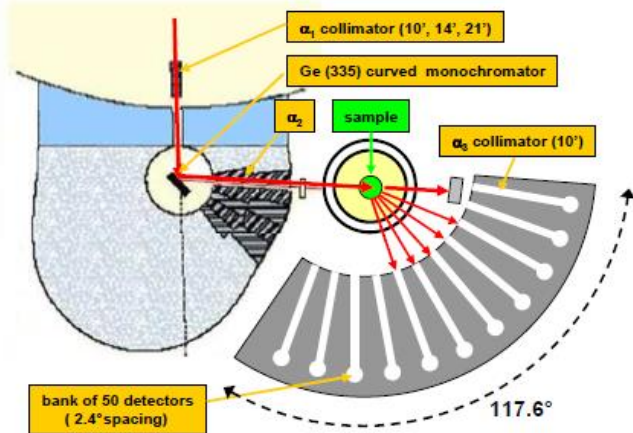
Diffractomètre



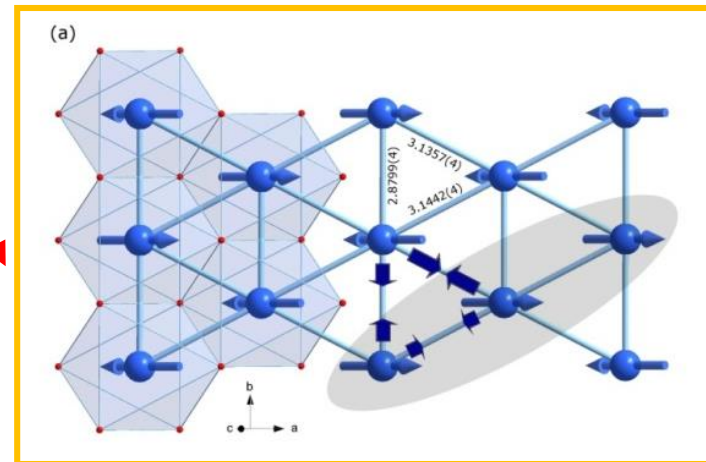
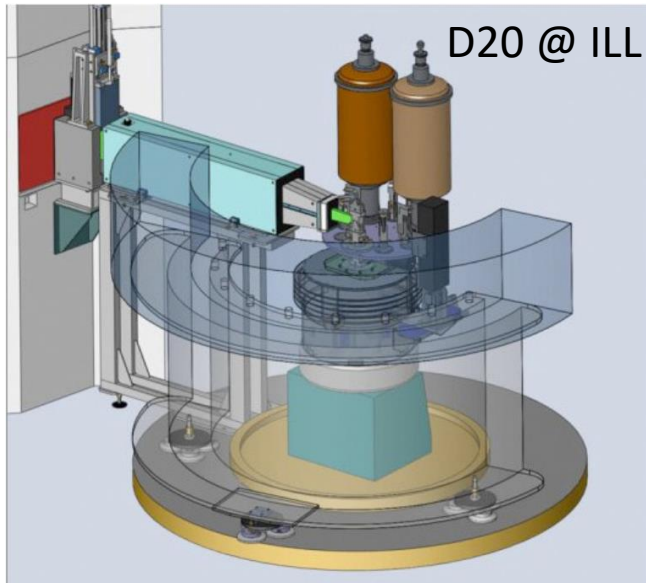
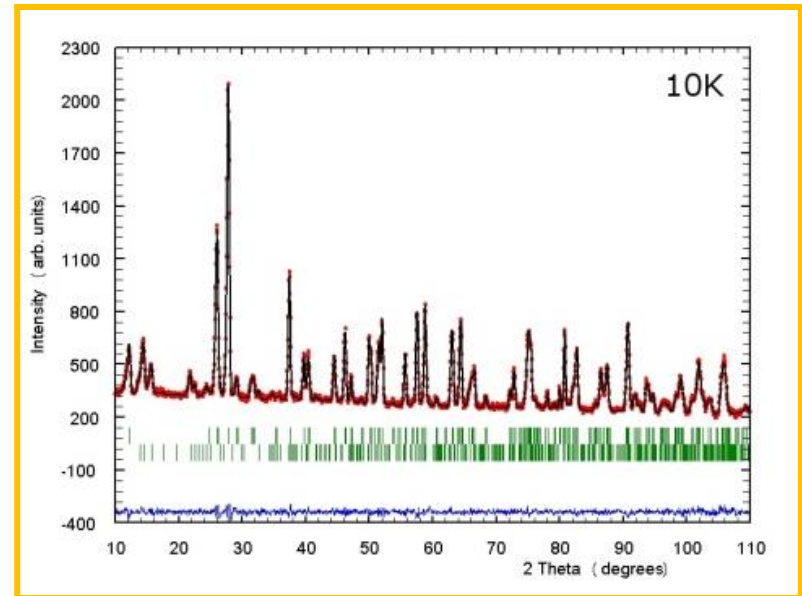
Diffractomètre de poudre

High Resolution Powder Diffractometer

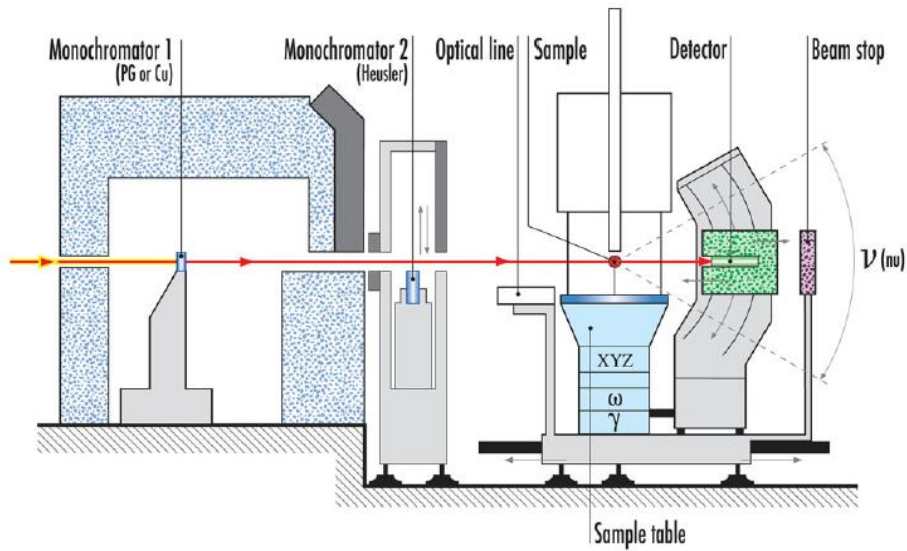
3T2 @ LLB



Modèle FP ...

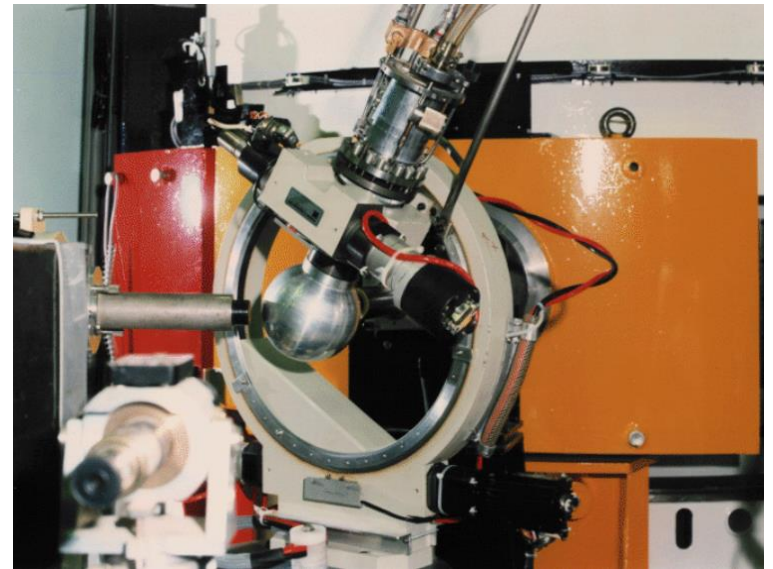
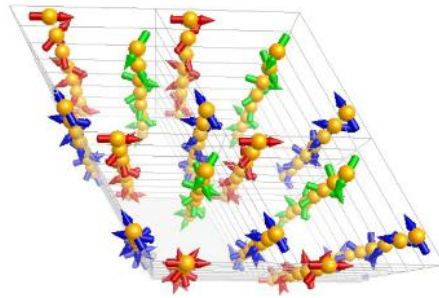
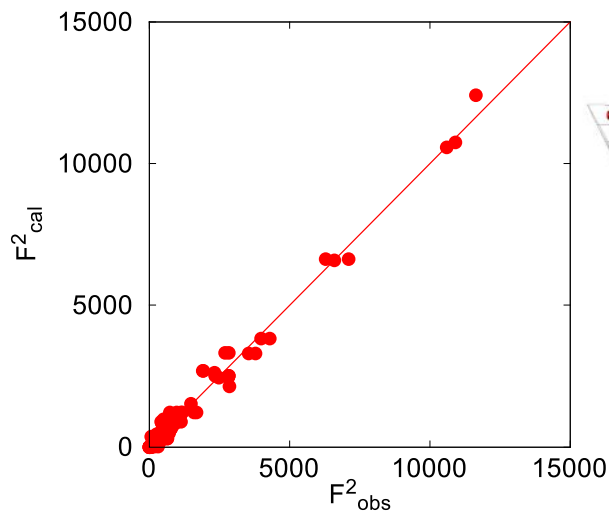


Diffractomètre monocristaux

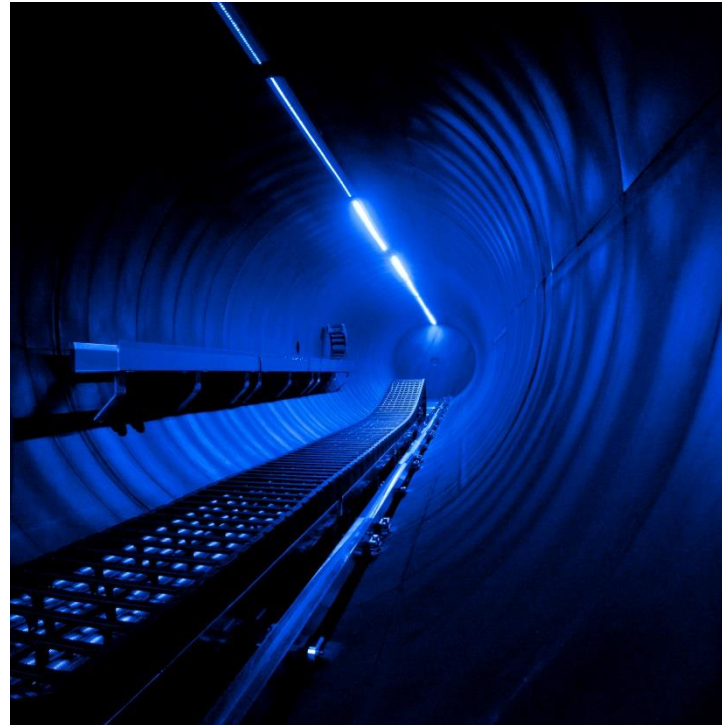


D23 (CRG CEA, ILL)
Bras levant (lifting arm)

D9 (ILL)
Cercle d'Euler (Eulerian cradle)



Diffractomètre SANS



Diffractomètre SANS

Compressibilité, forme des macromolécules, interfaces :
rayon de giration, forme en bâtons, sphères,...
Interactions et cristallisation des protéines
Repliement des protéines

C. Loupiac et al. (2002), *Eur. J. Biochem.*, 269 : 4731-4737

(PACE, LLB, Saclay)

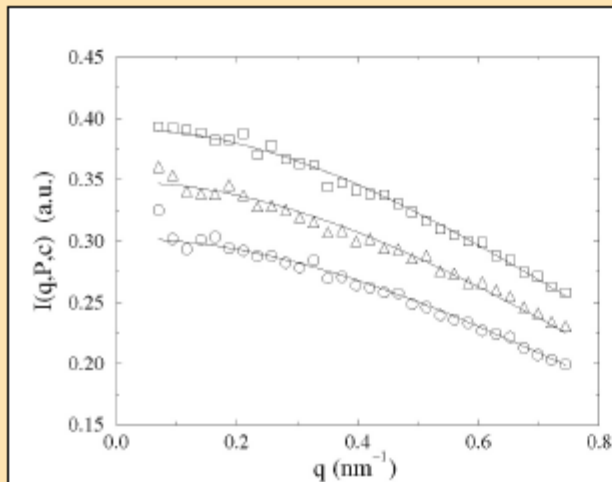


Fig. 1. Scattering spectra $I(q, P, c)$ of MbN₃ at pH 6.6, as a function of the wave-number transfer q . The measurements were performed at room temperature. The protein concentration, c , at atmospheric pressure is 11.7 mg cm^{-3} and the pressures, P , are: 54 (○), 154 (△), and 302 (□) MPa. Fits of Eqn 6 to the data are shown as full lines.

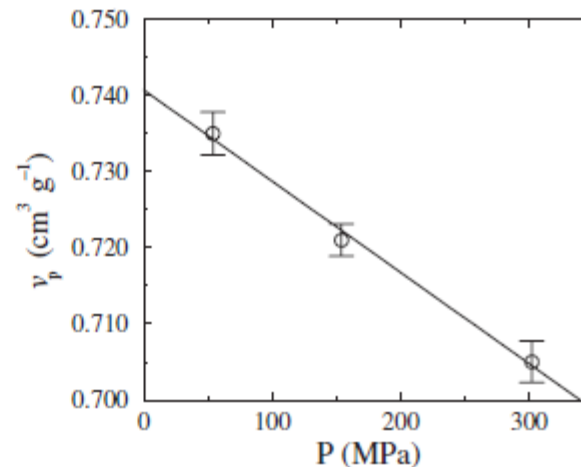


Fig. 7. Partial specific volume $v_p(P)$, of MbN₃ as a function of pressure, P . The almost linear variation of $v_p(P)$ with P allows the isothermal compressibility of the hydrated protein to be computed: $\kappa_{T,P} = (1.6 \pm 0.1) 10^{-4} \text{ MPa}^{-1}$.

A retenir jusqu'à là...

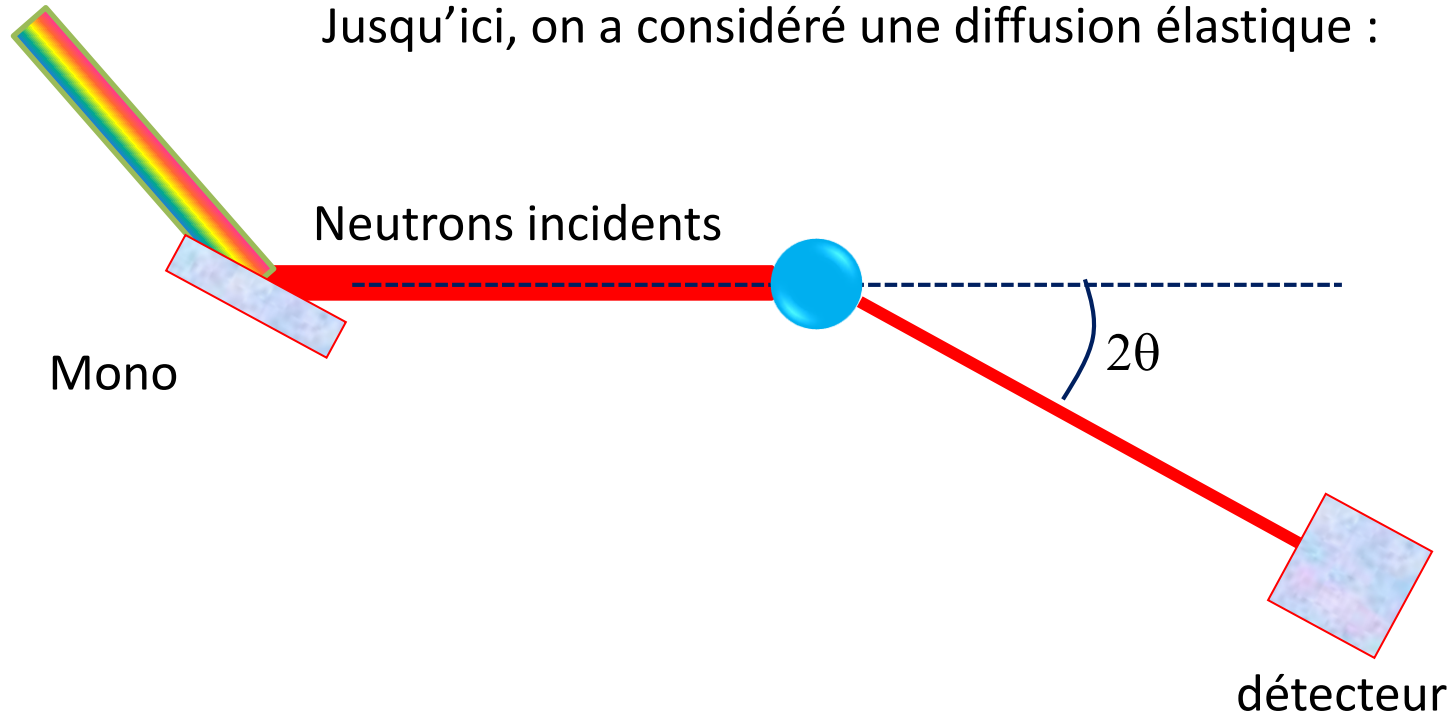
1. La diffraction des neutrons permet d'étudier la structure cristalline et magnétique de la matière.
2. On peut ainsi étudier toutes sortes de systèmes relevant de la physique de la matière condensée ou diluée : macromolécules, biologie, cristaux
3. Sensible au volume et non à la surface
4. Ne dégrade pas l'échantillon (sauf radioactivité)

CONSEQUENCE 3

La diffusion inélastique des neutrons

Diffusion inélastique des neutrons

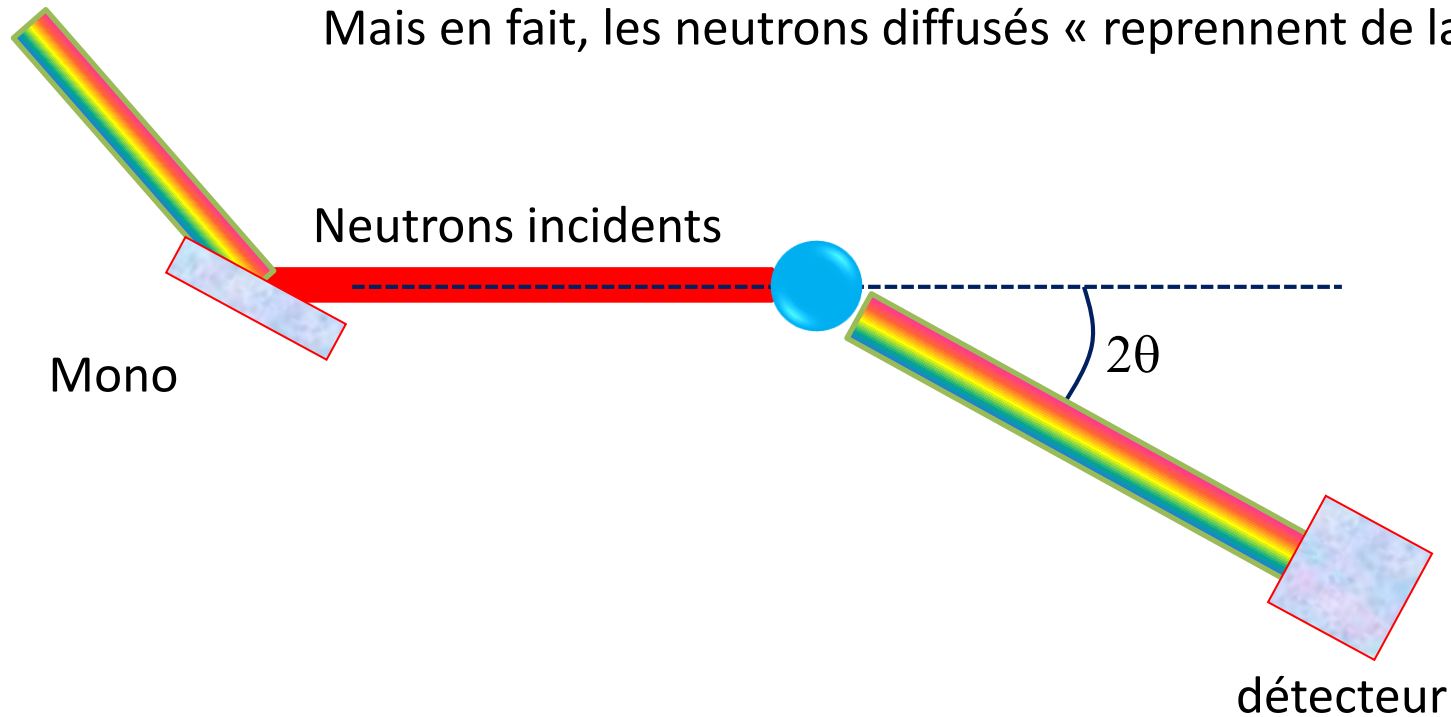
Jusqu'ici, on a considéré une diffusion élastique :



Nombre de neutrons dans le détecteur $\approx \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E}$

Diffusion inélastique des neutrons

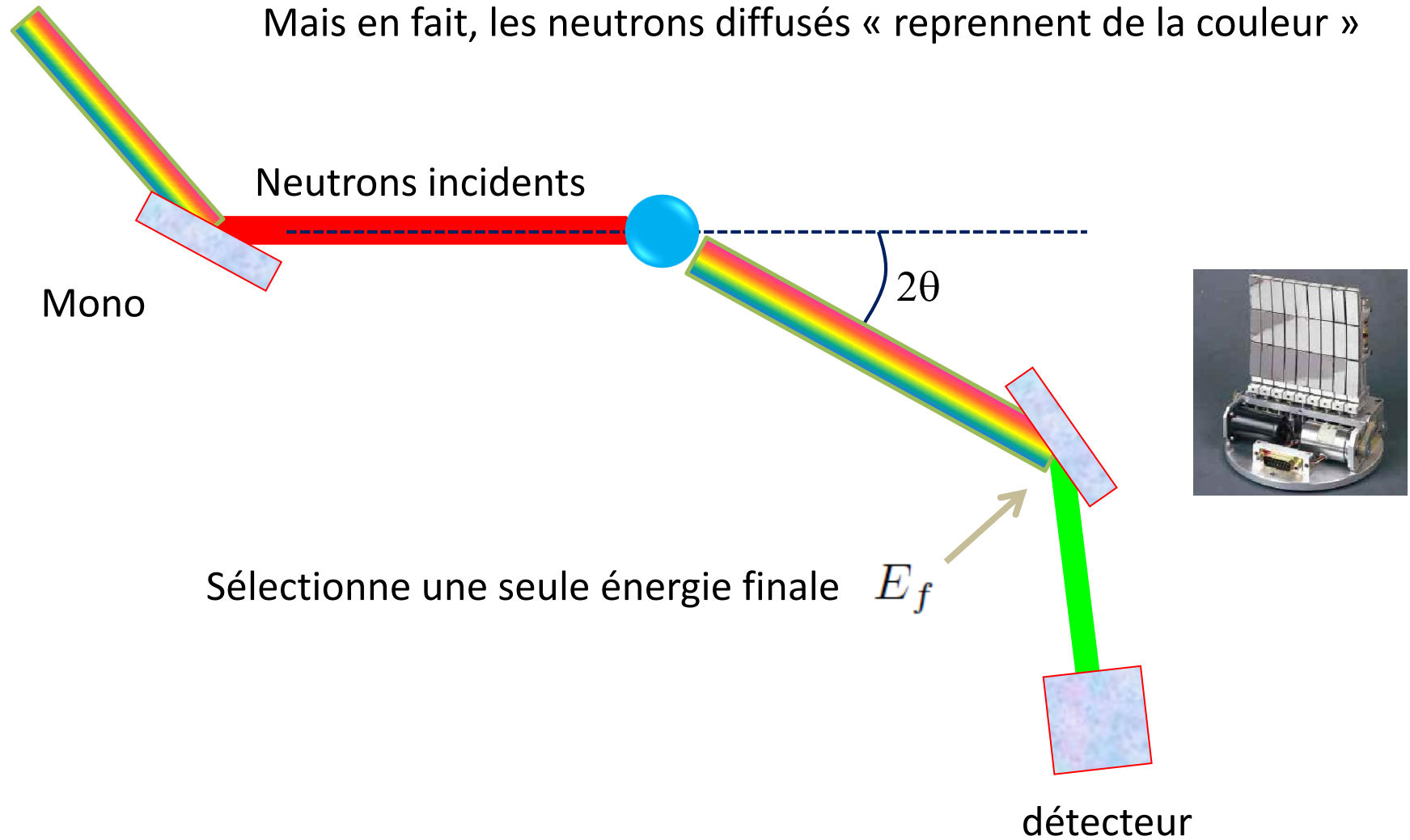
Mais en fait, les neutrons diffusés « reprennent de la couleur »



Nombre de neutrons dans le détecteur $\approx \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E}$

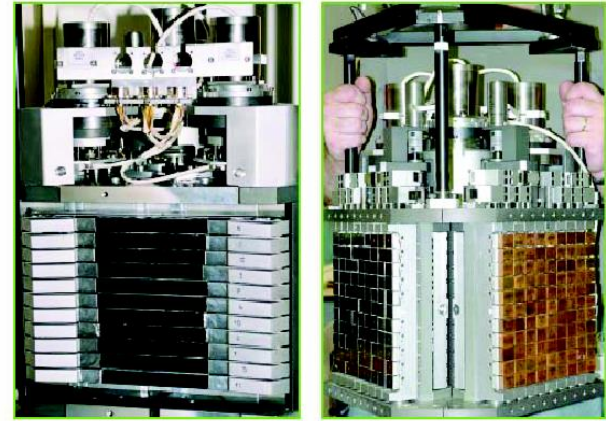
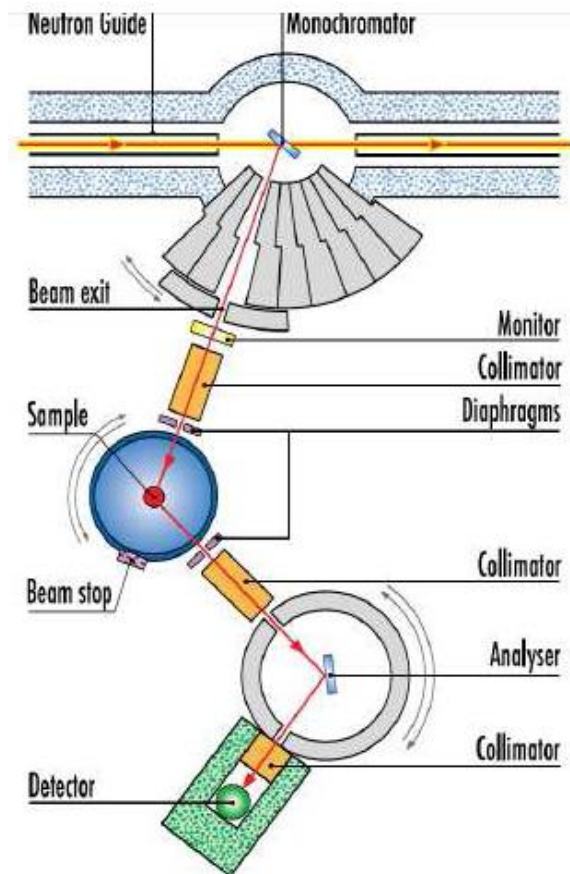
Diffusion inélastique des neutrons

Mais en fait, les neutrons diffusés « reprennent de la couleur »

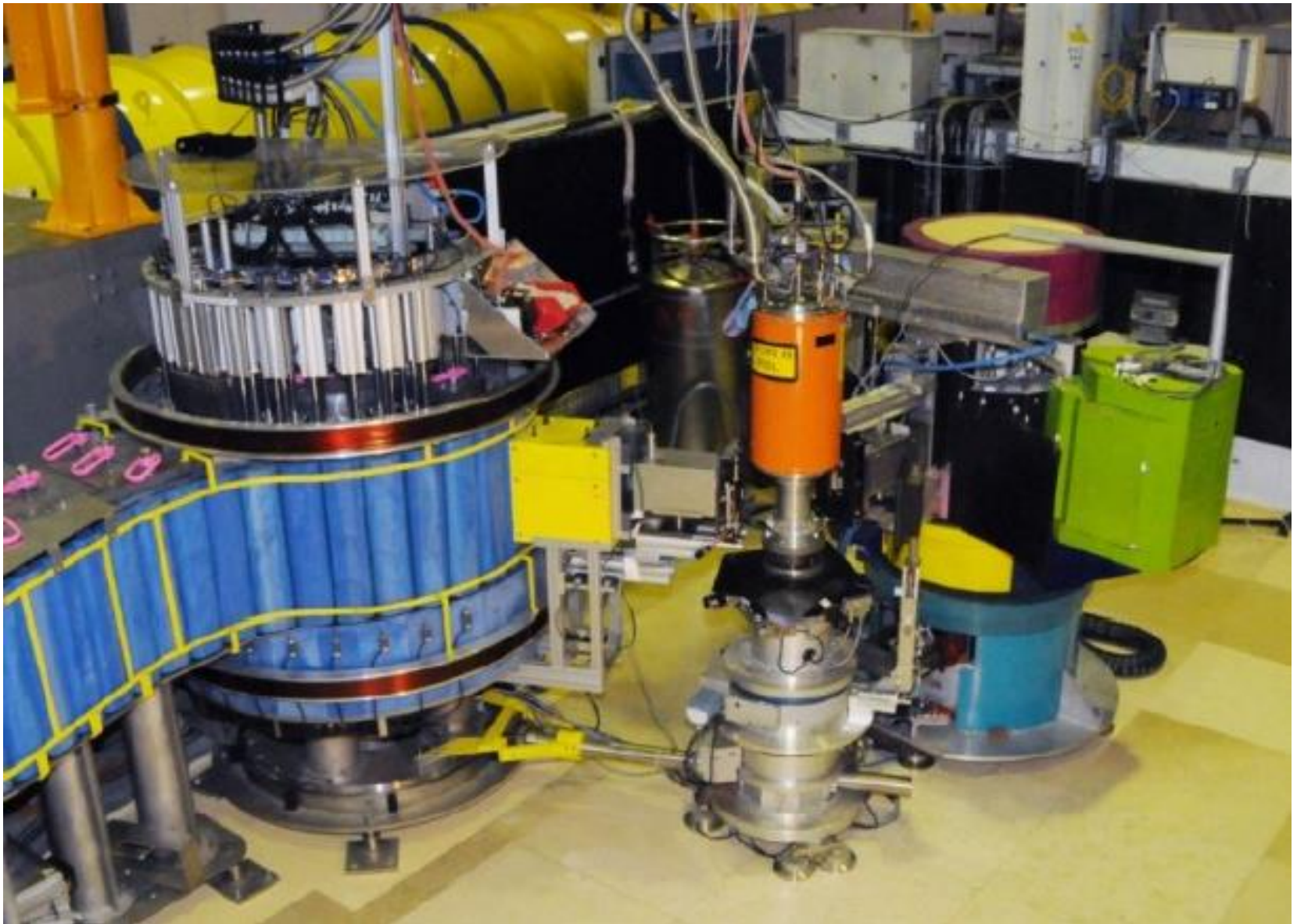


Diffusion inélastique des neutrons

Spectromètre 3 axes
(IN8, IN20, IN12, IN22 @ ILL)

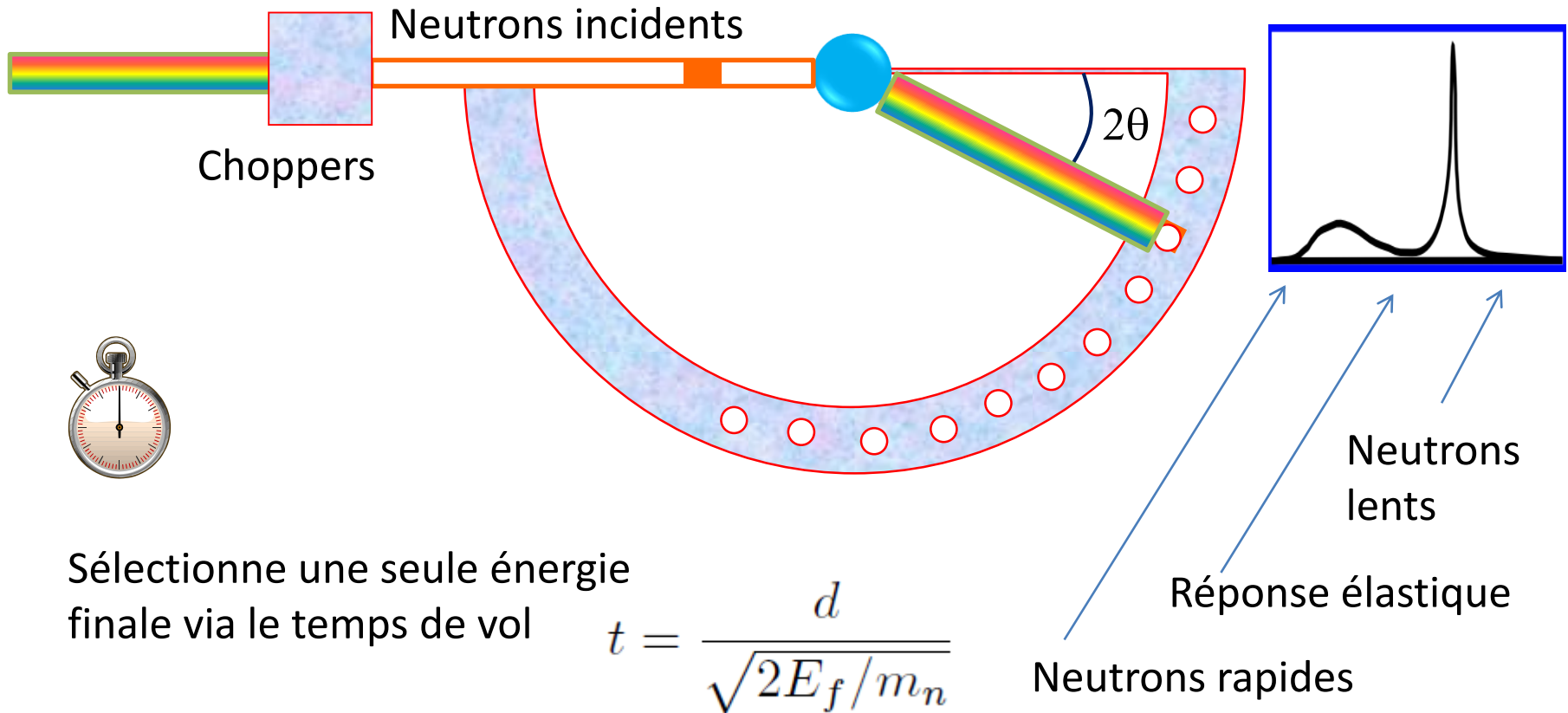


Diffusion inélastique des neutrons



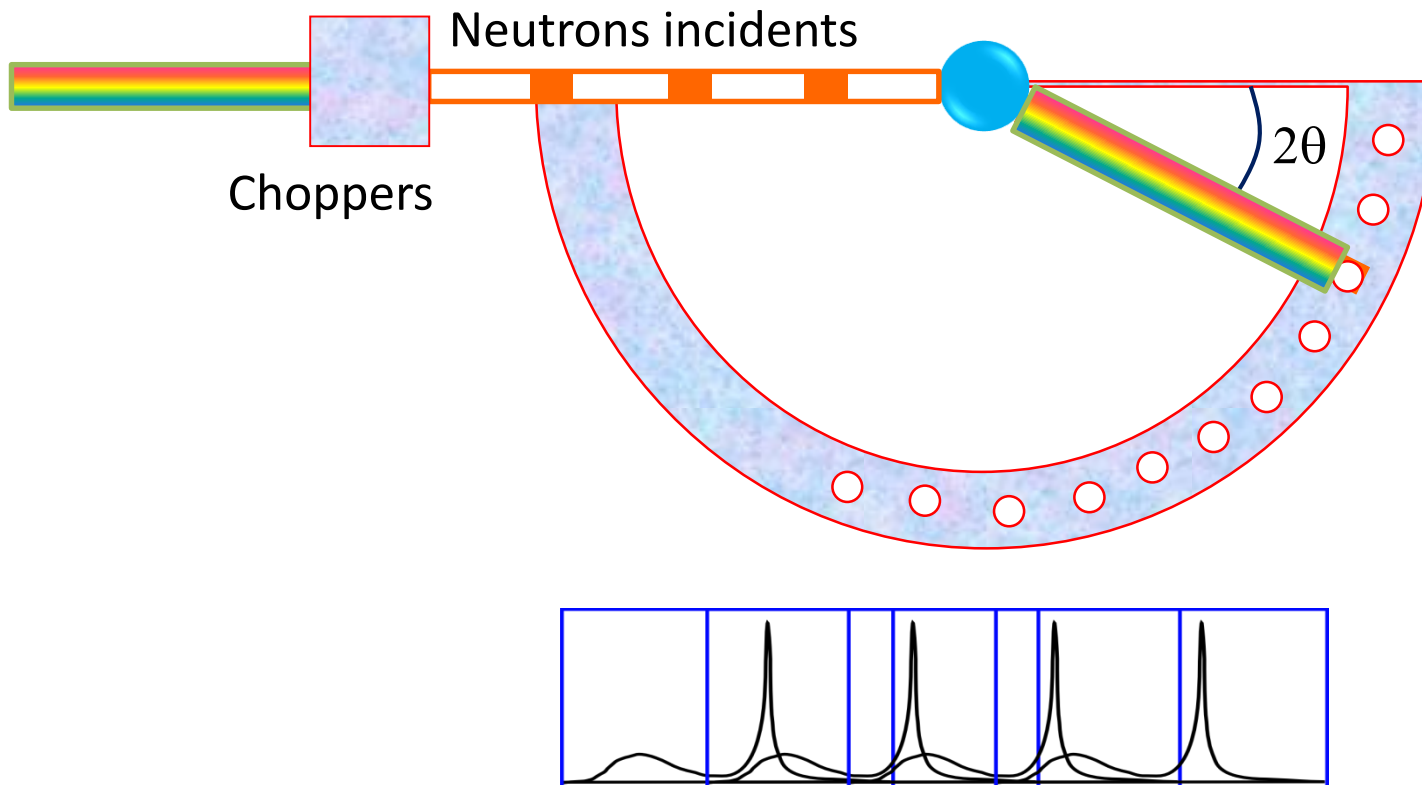
Diffusion inélastique des neutrons

Les neutrons diffusés « reprennent de la couleur »



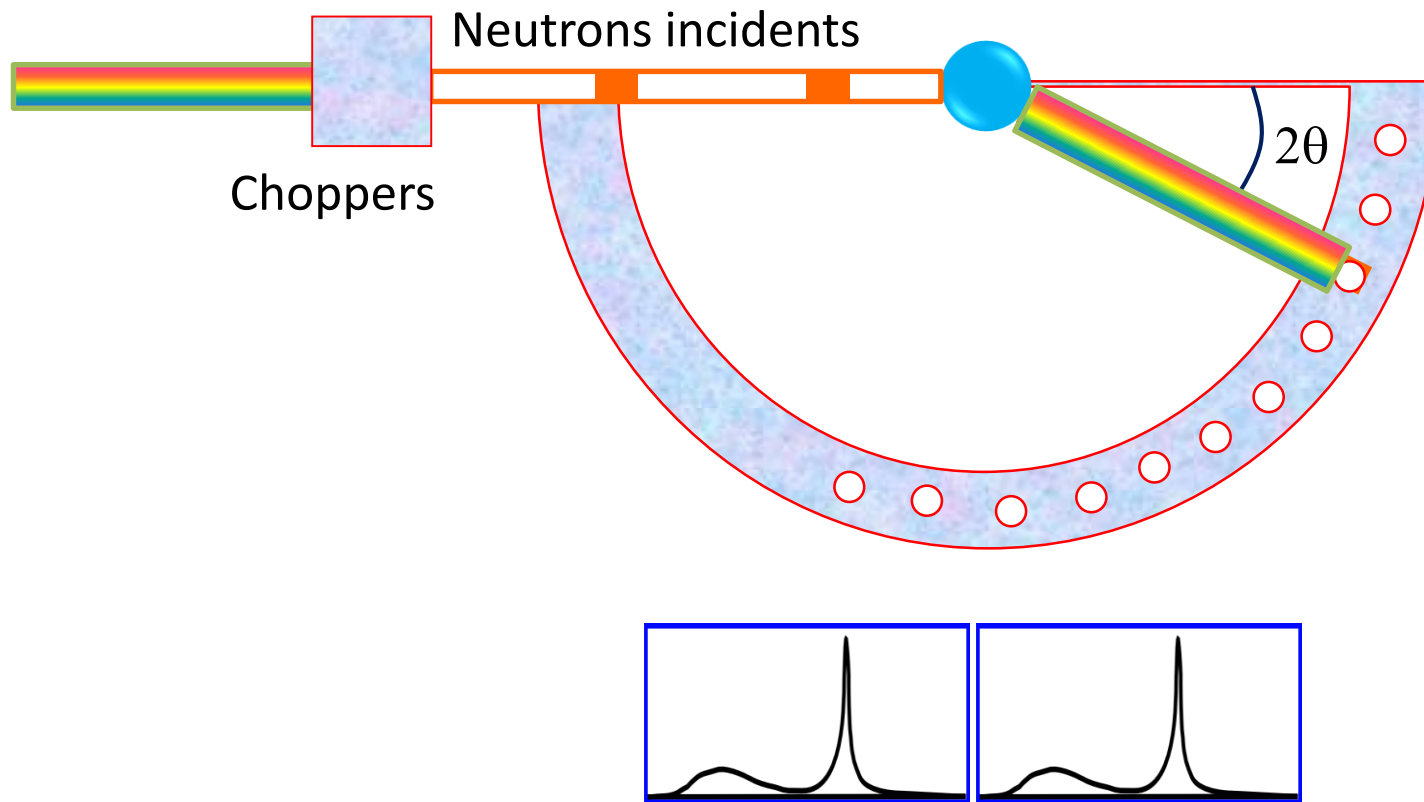
Diffusion inélastique des neutrons

On « chop » (hache)
le faisceau



Diffusion inélastique des neutrons

On « chop » (hache)
le faisceau



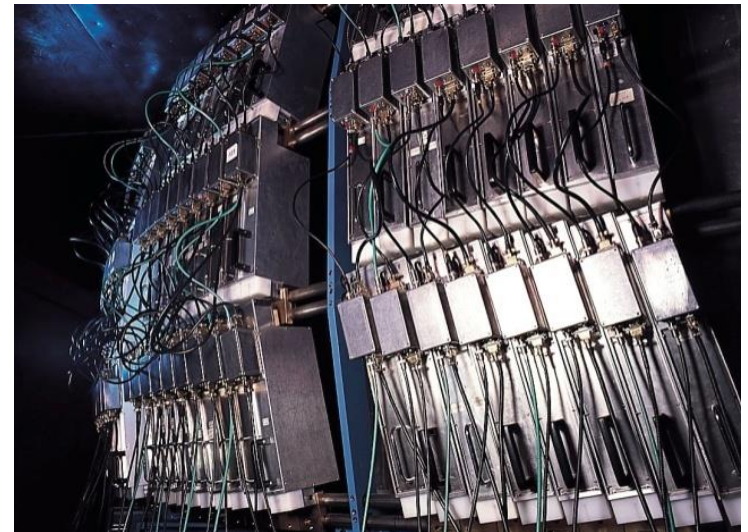
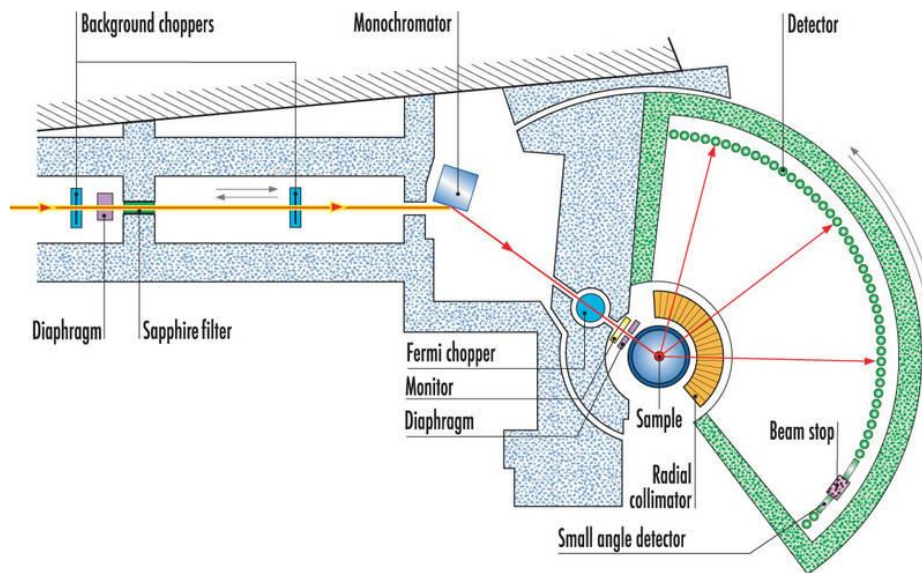
Diffusion inélastique des neutrons

Spectromètres « Temps de vol »

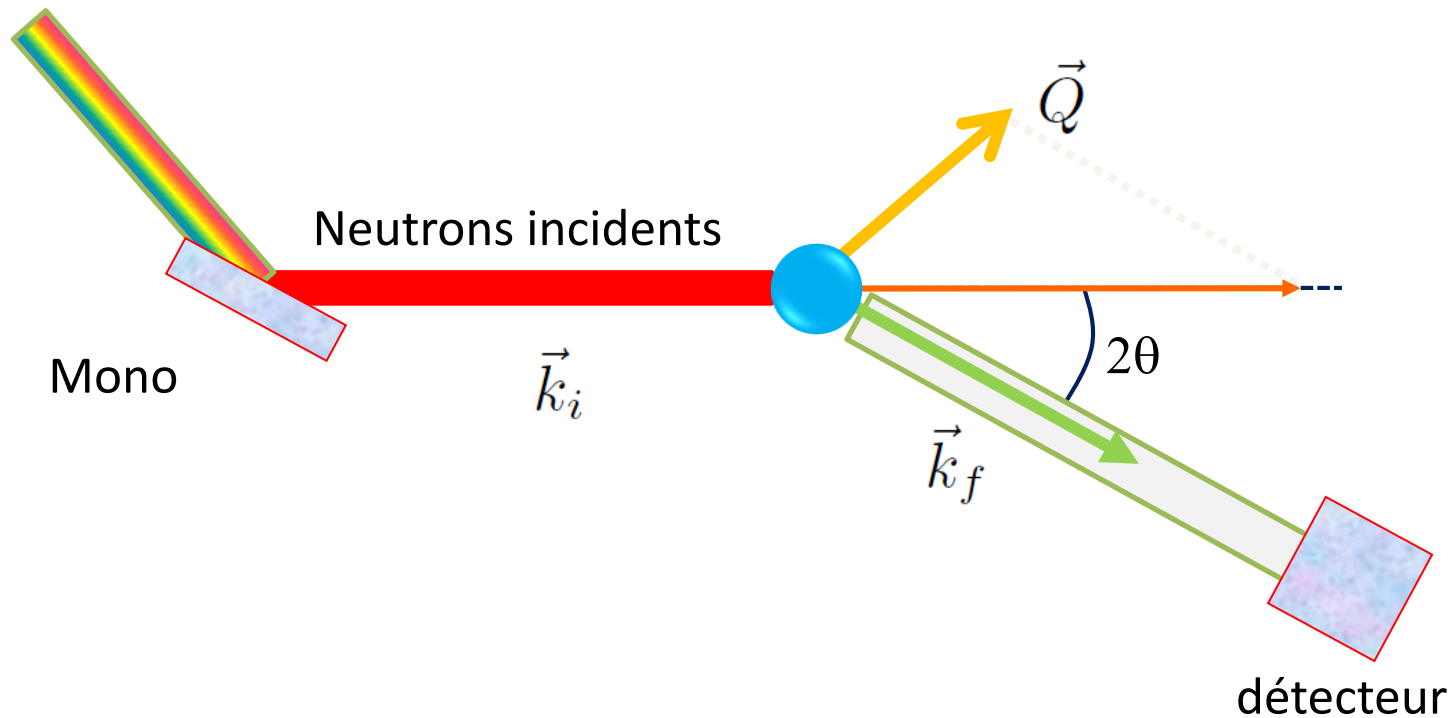
IN4, IN5, IN6-Sharp @ ILL

FOCUS @ PSI

...



Remarques



Vecteur de diffusion

$$\vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$$

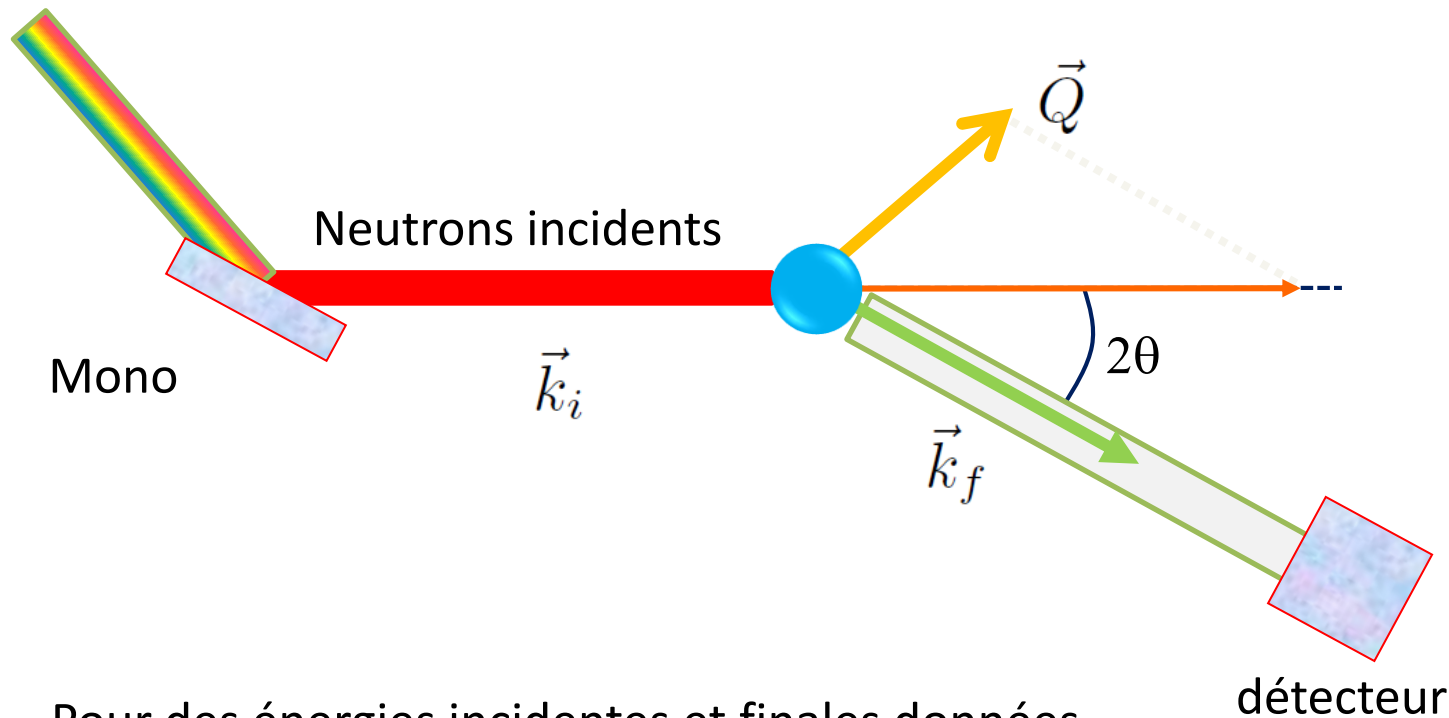
Conservation de l'énergie

$$E_\lambda + E_i = E_{\lambda'} + E_f$$

Transfert d'énergie

$$E = \hbar\omega = E_i - E_f = E_{\lambda'} - E_\lambda$$

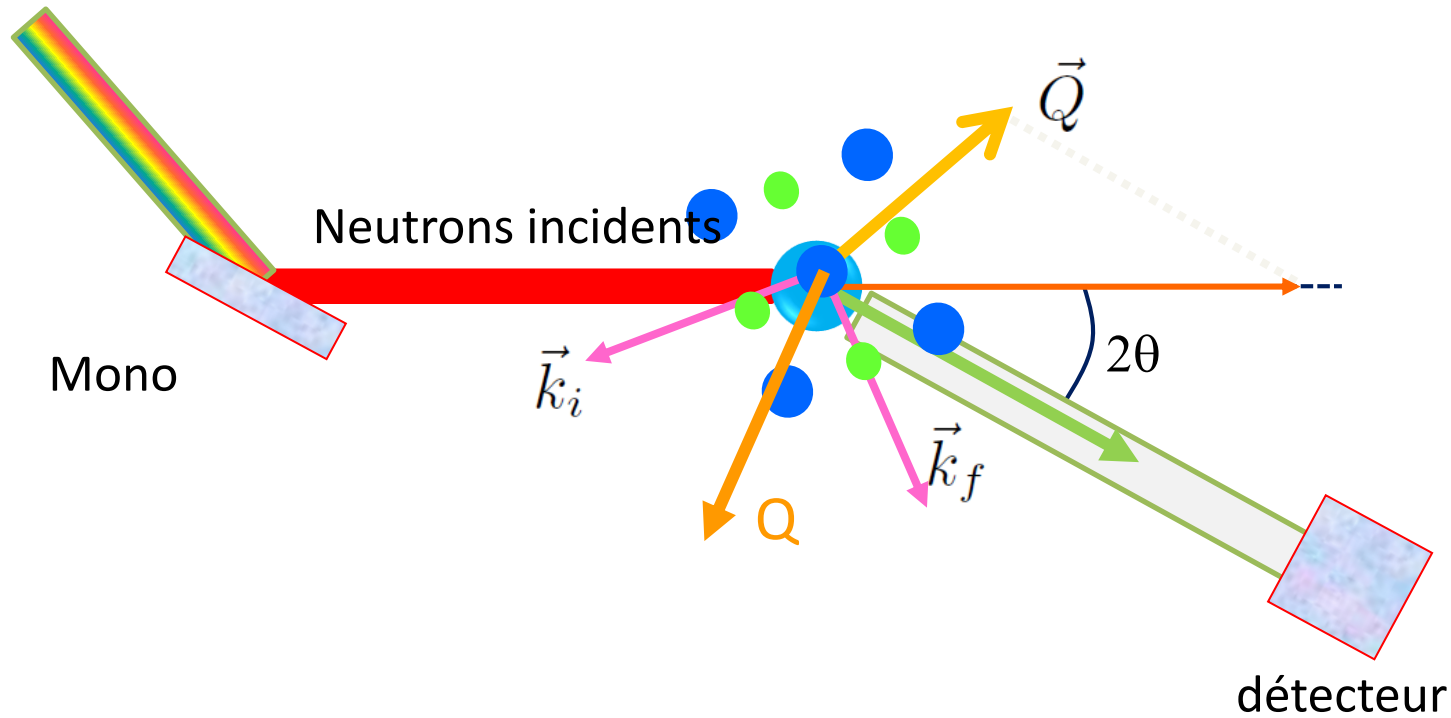
Remarques



Pour des énergies incidentes et finales données,
 θ impose $|\vec{Q}|$ mais pas le vecteur $\vec{Q}$

$$\begin{aligned}\vec{Q} &= \vec{k}_i - \vec{k}_f \\ Q^2 &= k_i^2 + k_f^2 - 2k_i k_f \cos 2\theta\end{aligned}$$

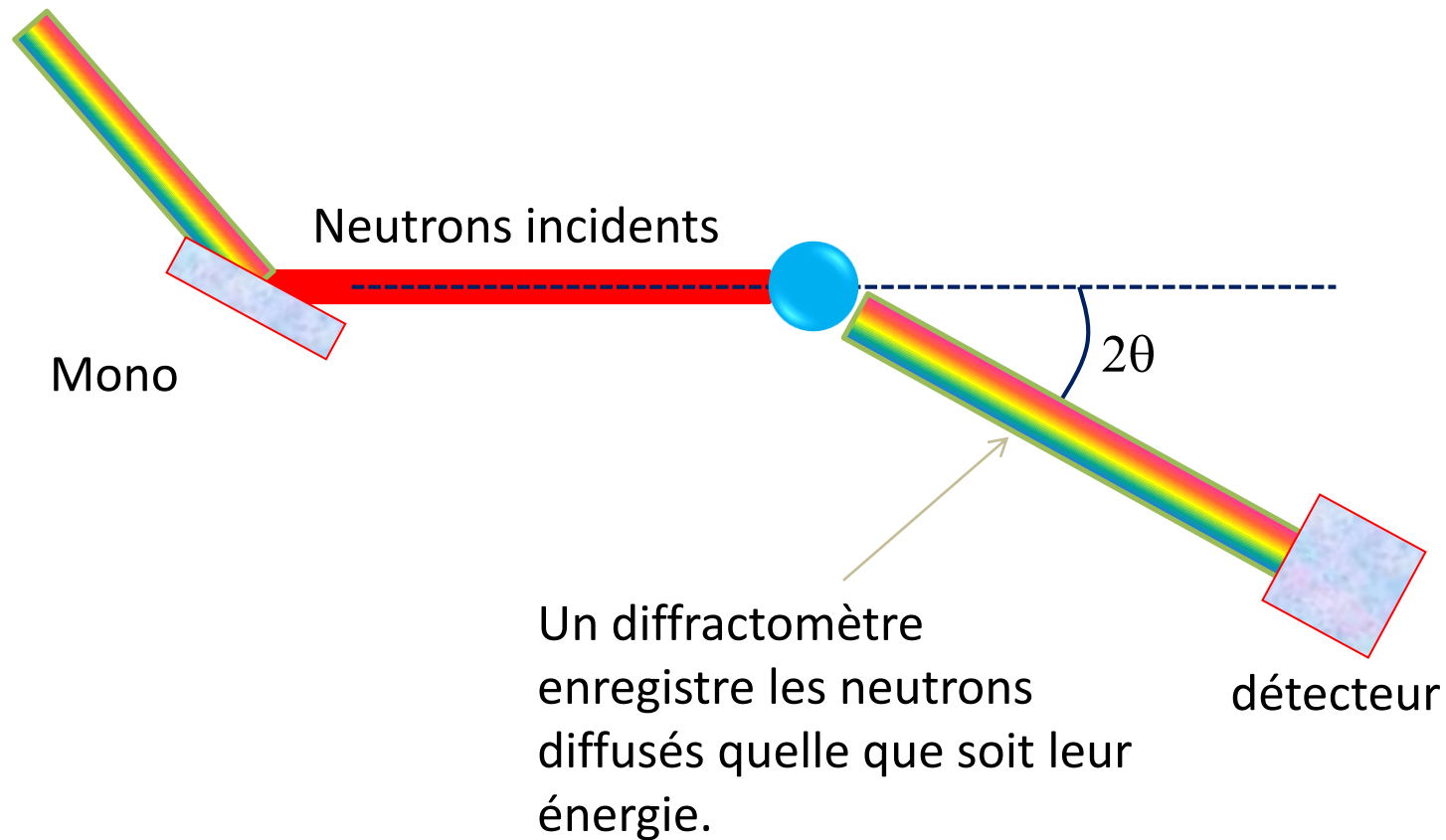
Remarques



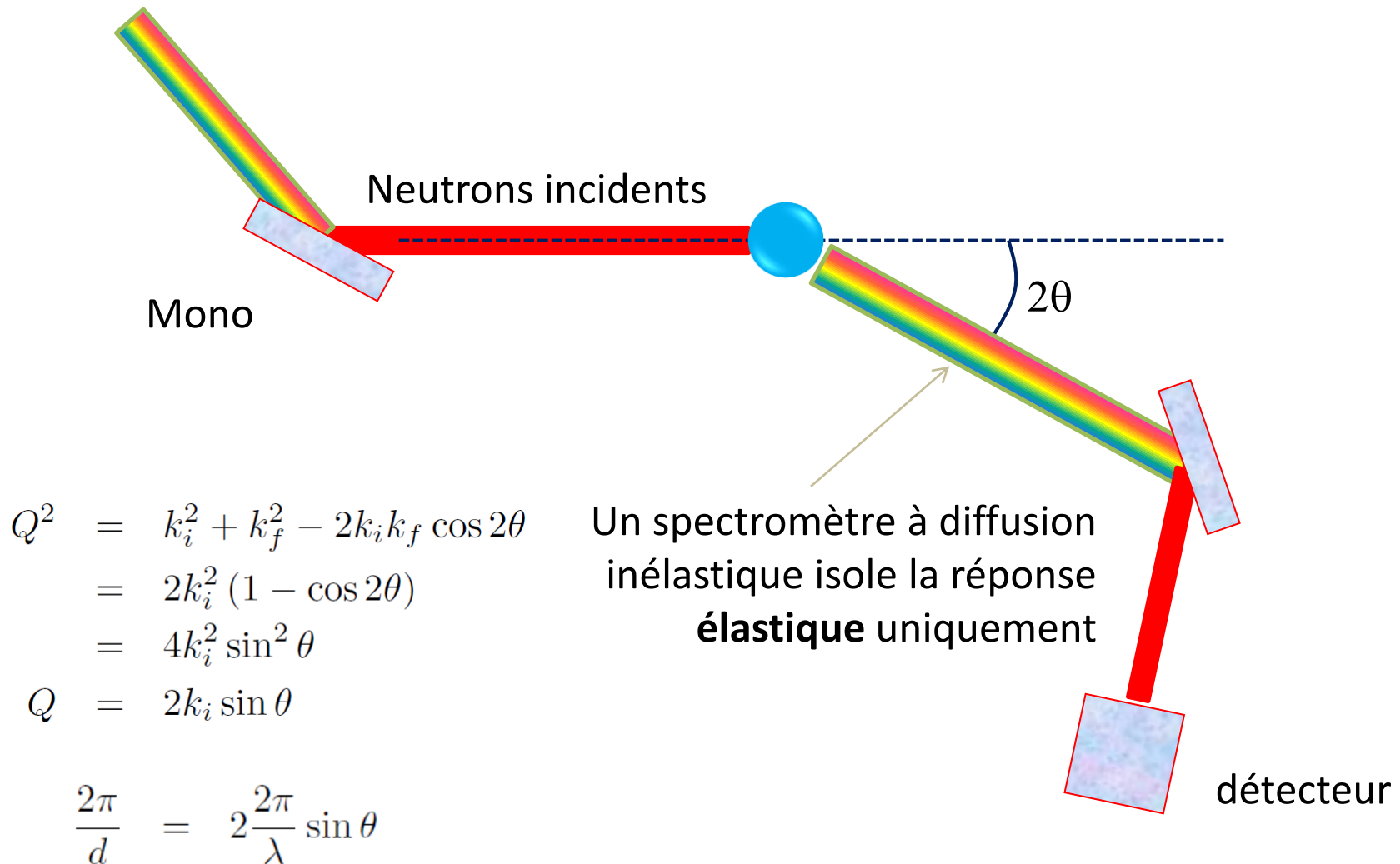
Attention : le vecteur de diffusion est défini dans le repère du laboratoire

$$\vec{Q} = \vec{k}_i - \vec{k}_f$$

Lien avec la diffraction



Lien avec la diffraction

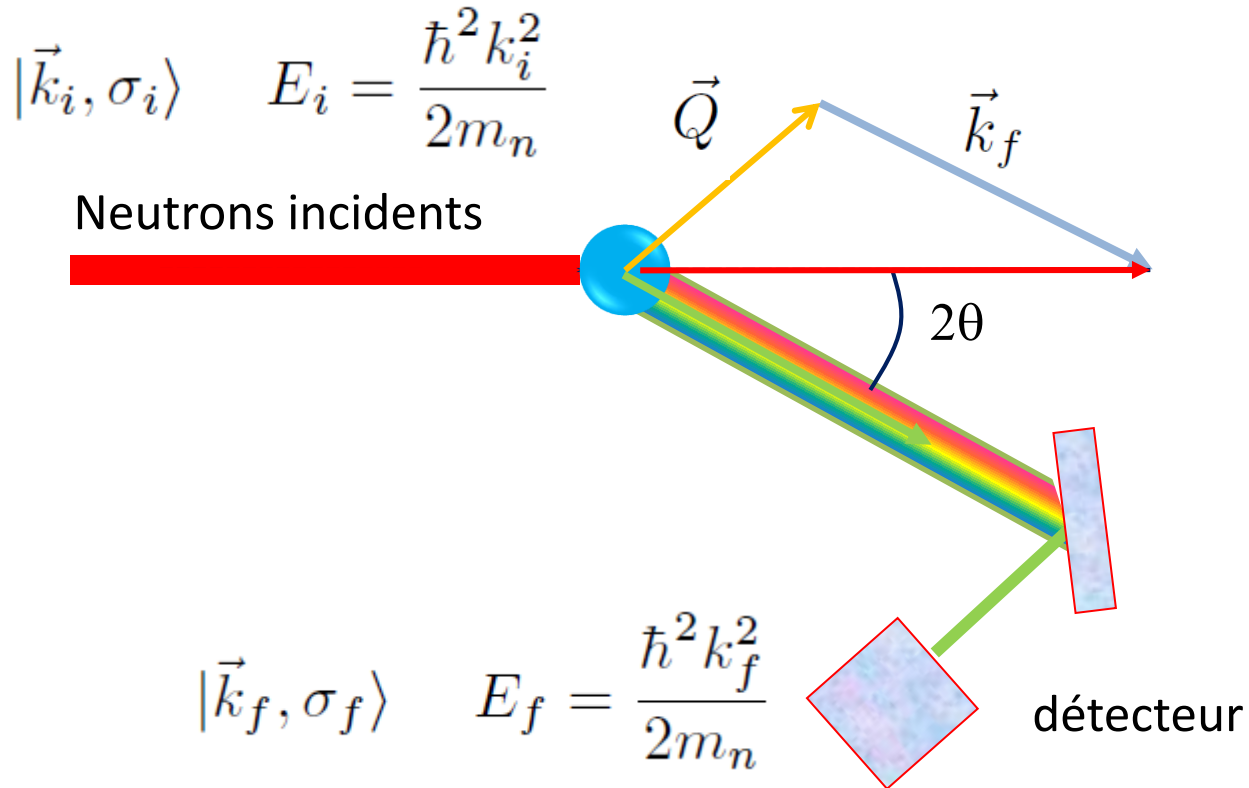


Quid du spin du neutron ?

*Est-ce qu'on peut le
manipuler ?*

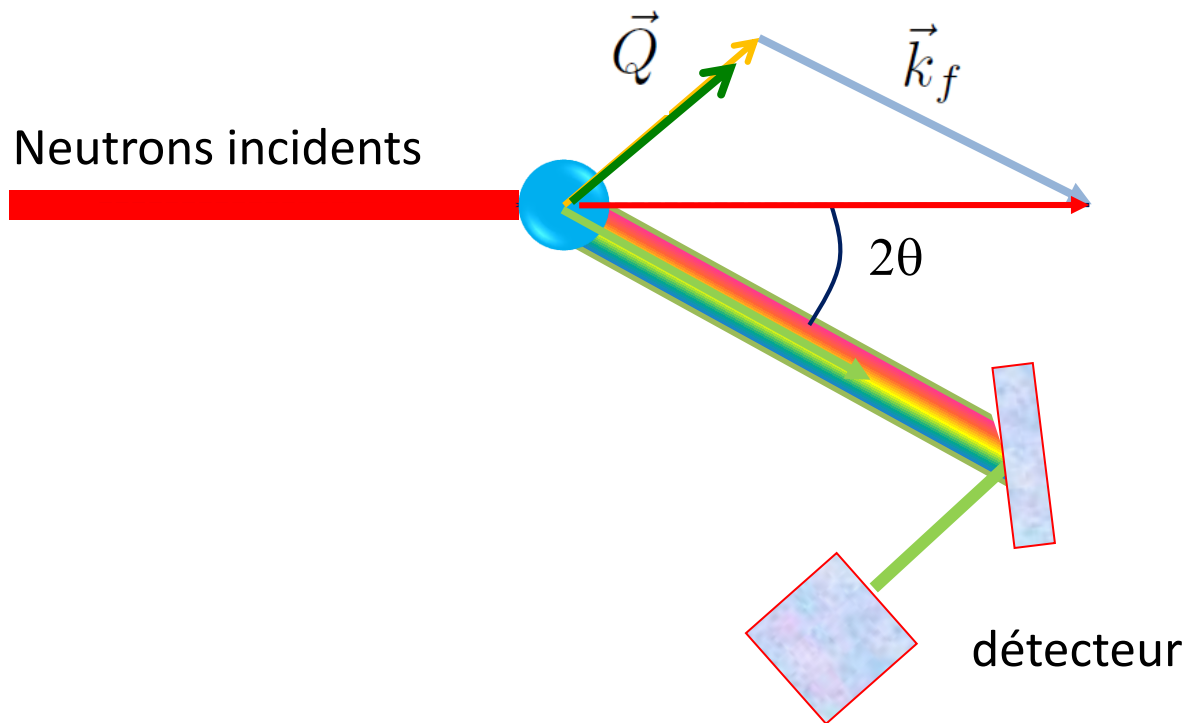
*Est-ce que l'on obtient de
nouvelles informations ?*

Manipuler le spin du neutron



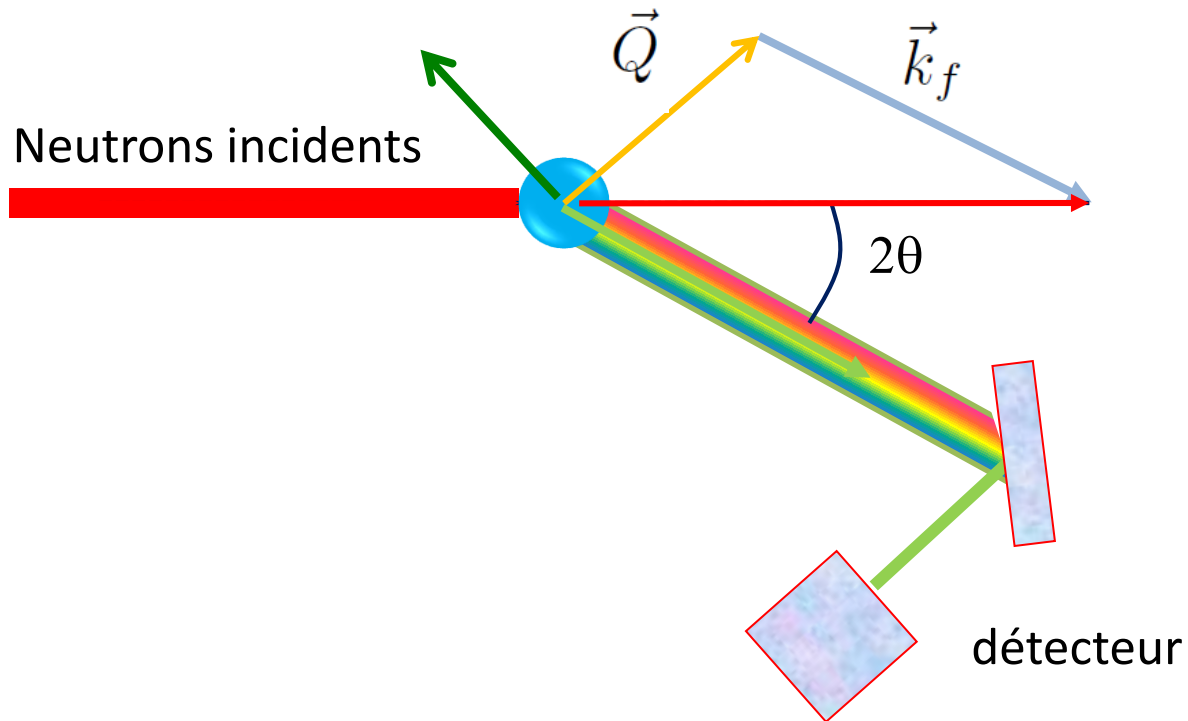
$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E}$ dépend de la direction du spin des neutrons

Manipuler le spin du neutron



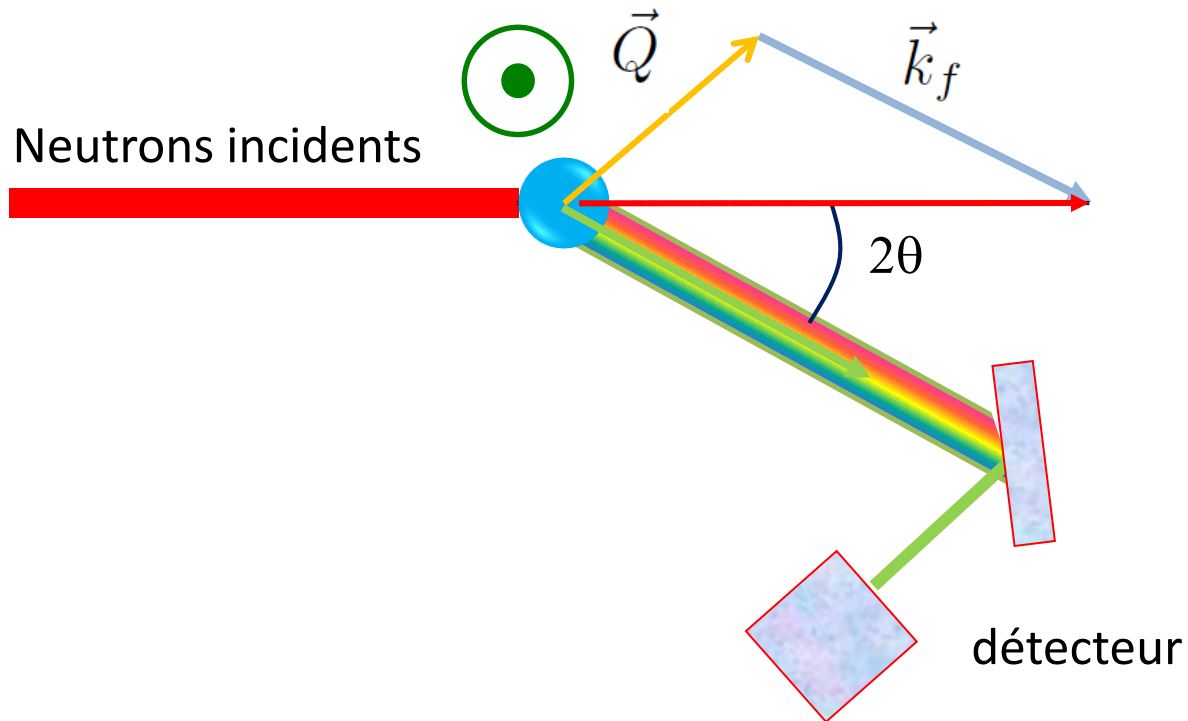
Spin des neutrons parallèle à $\vec{Q}$ (« x »)

Manipuler le spin du neutron



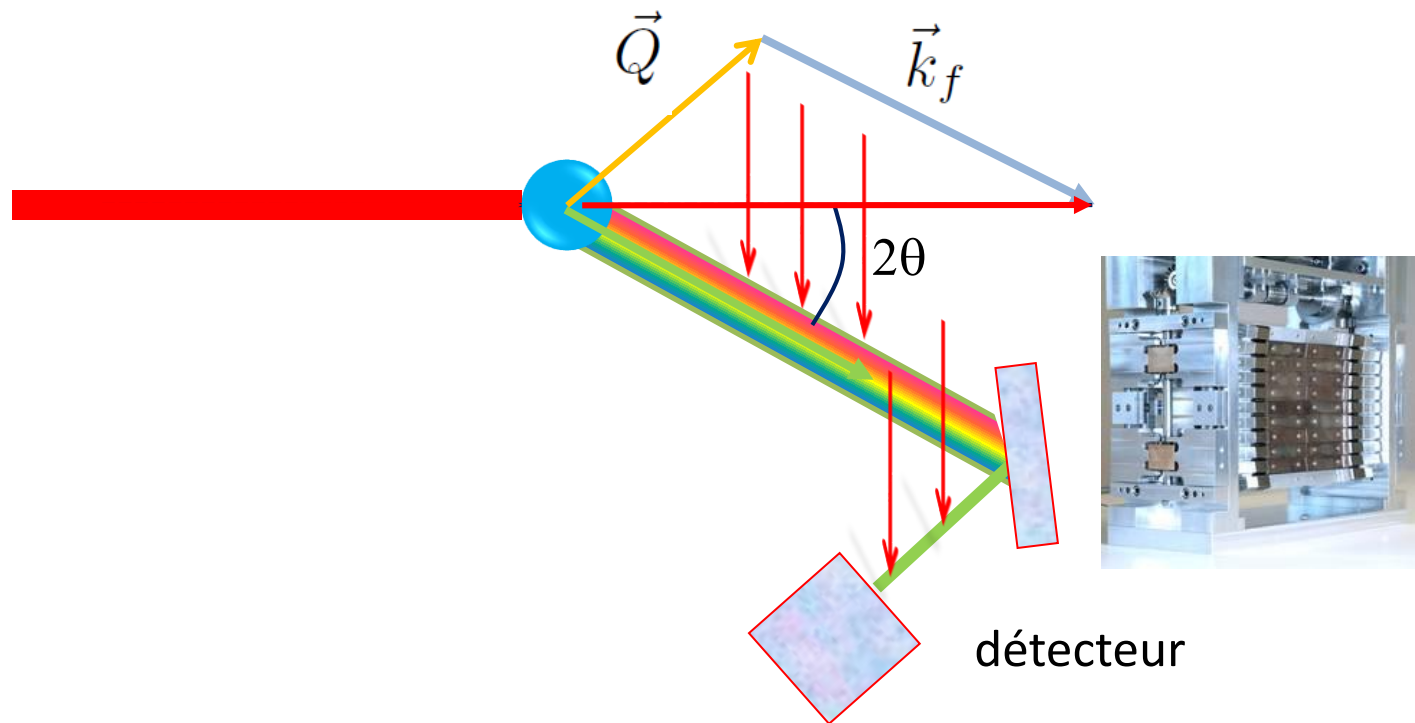
Spin des neutrons perpendiculaire à $\vec{Q}$ dans le plan de diffusion (« y »)

Manipuler le spin du neutron



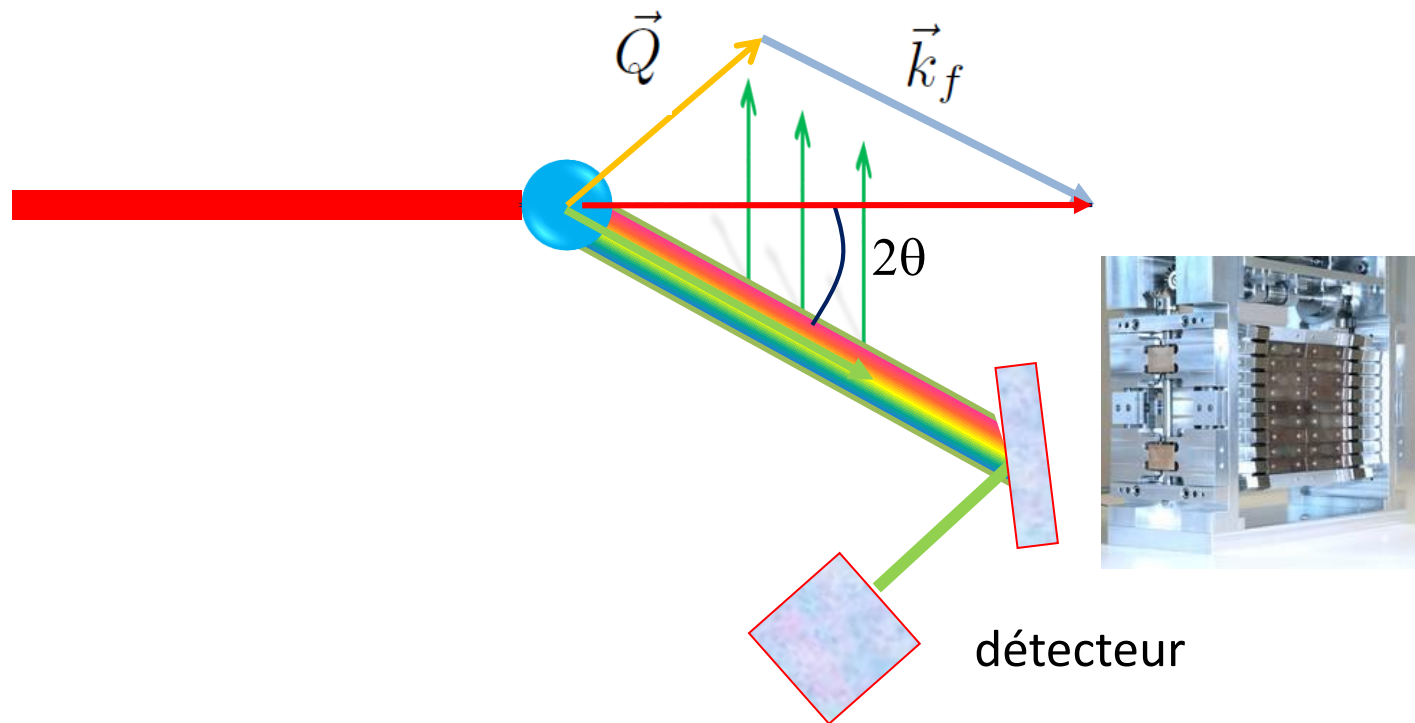
Spin des neutrons perpendiculaire à $\vec{Q}$ et
au plan de diffusion (« z »)

Analyser la direction finale du spin



L'analyseur analyse aussi la polarisation finale : il projette sur un état de spin donné (fixé une fois pour toutes par construction).

Analyser la direction finale du spin



L'analyseur analyse aussi la polarisation finale : il projette sur un état de spin donné (fixé une fois pour toutes par construction).

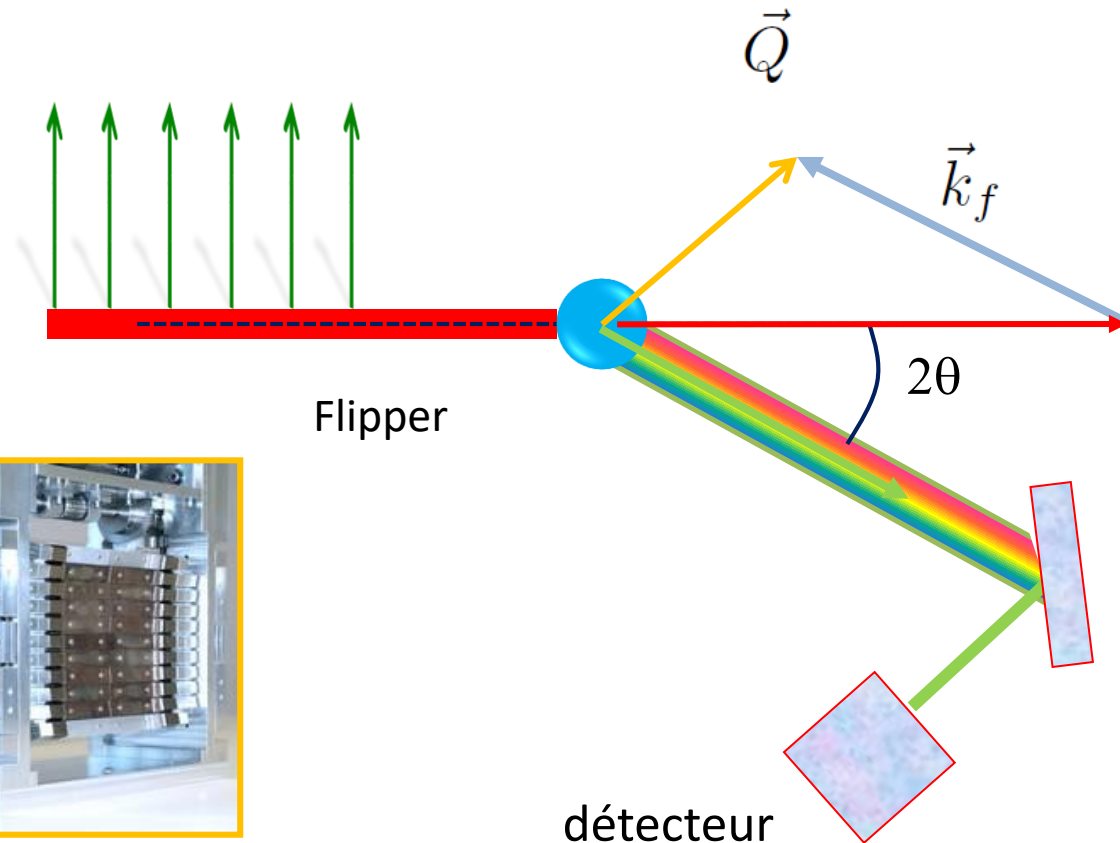
Exemple



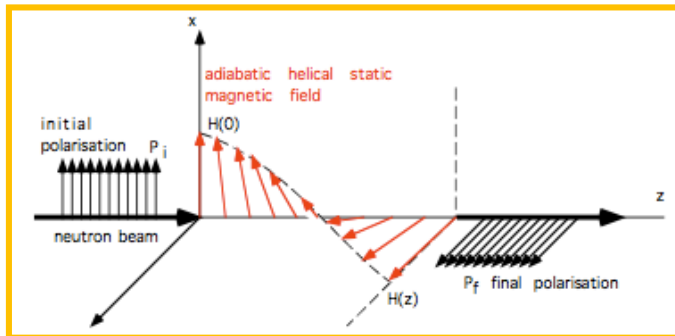
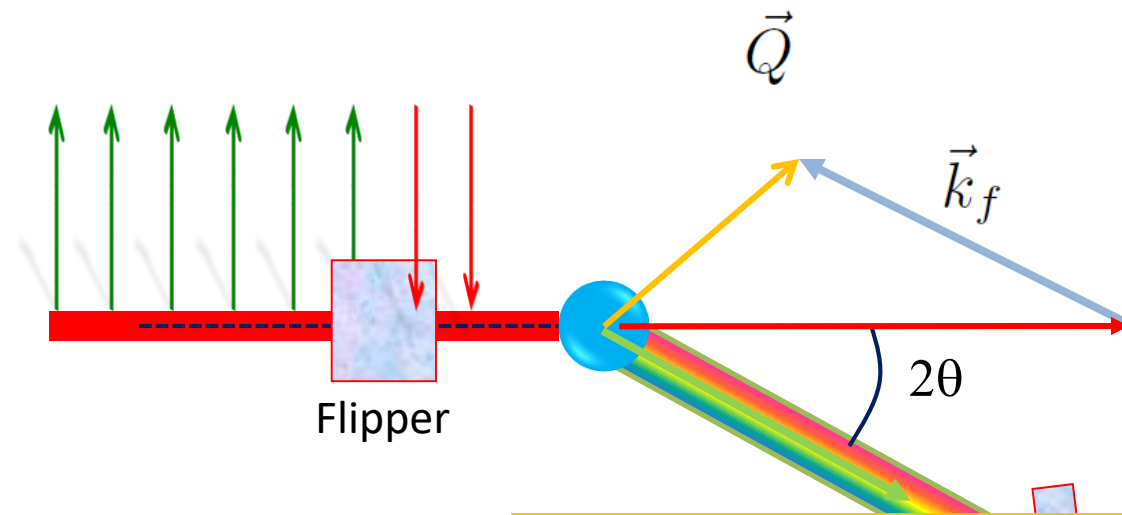
Bender



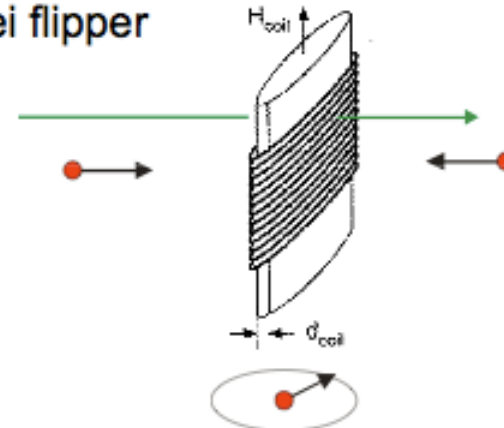
Mono
Heussler



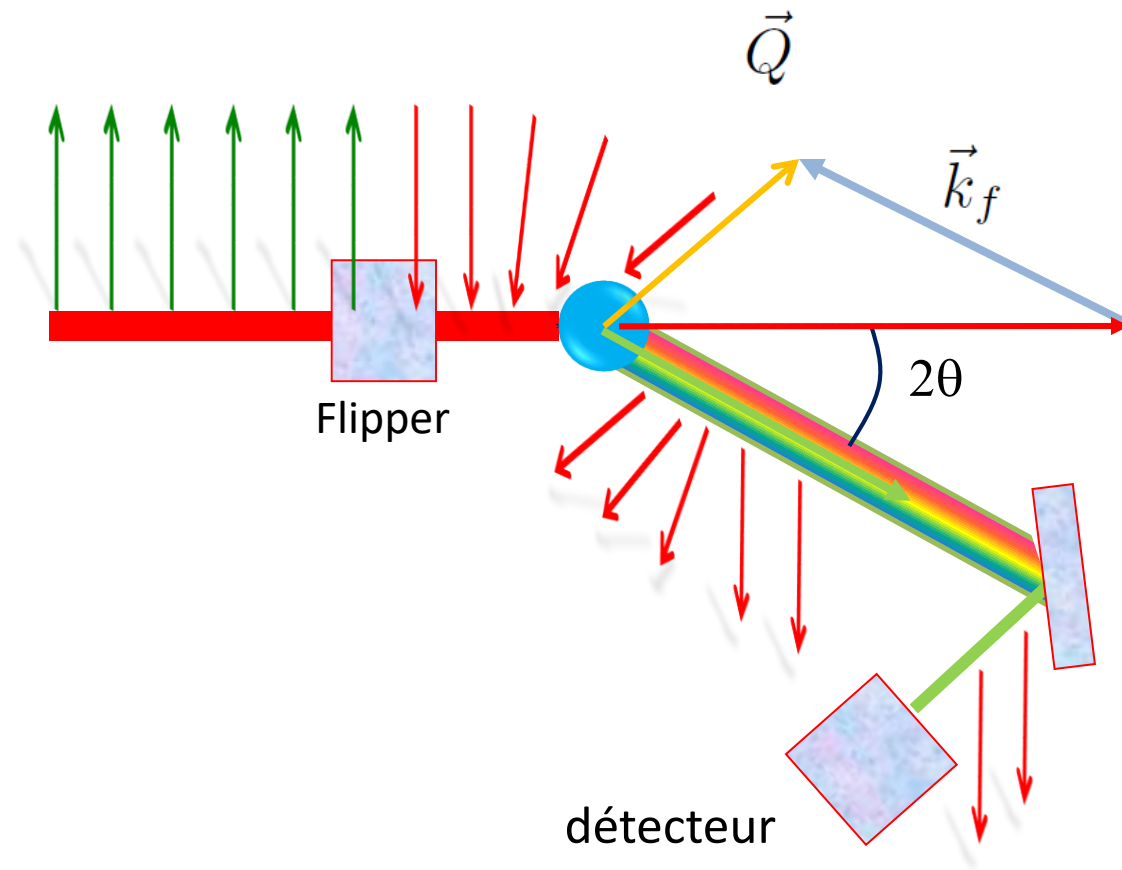
Example



• Mezei flipper

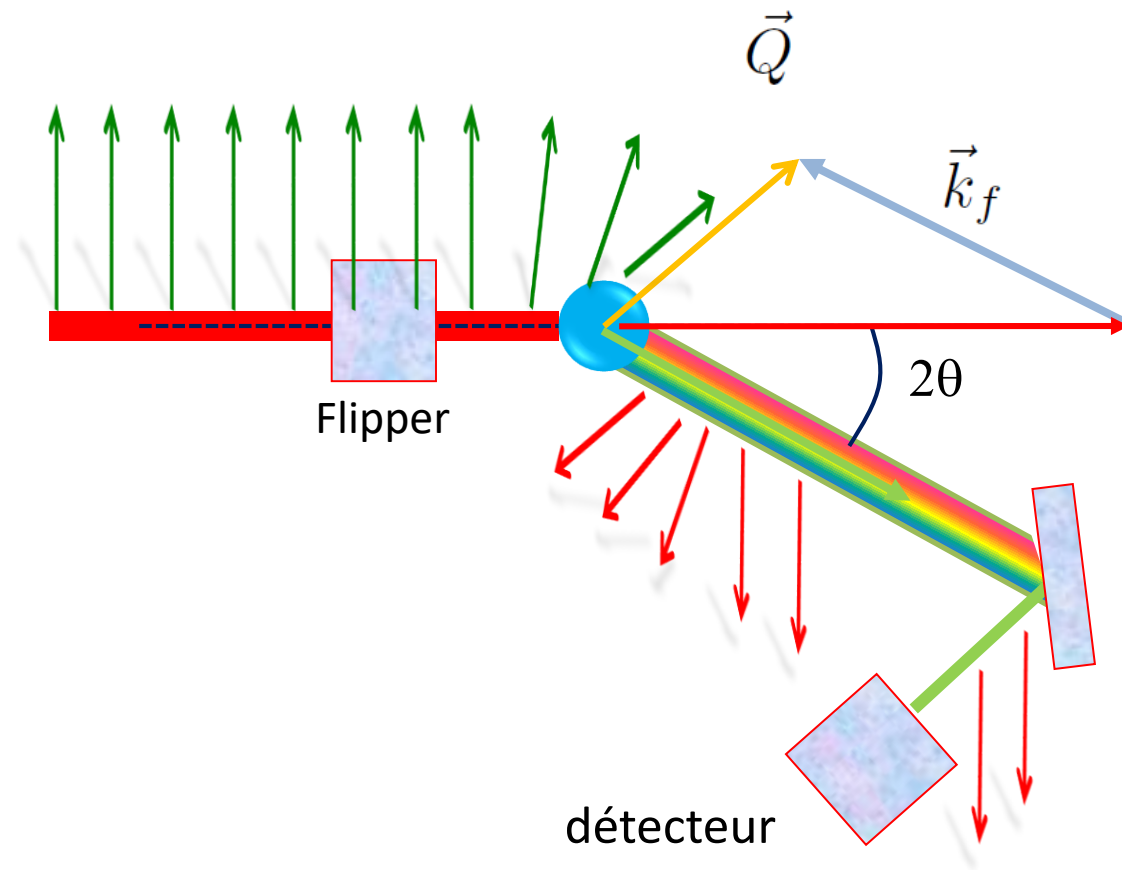


Exemple



Processus I^-_x

Exemple



Processus I_x^{+-}

De nouvelles informations

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

En fonction de l'état de spin
des neutrons incidents et
diffusés, de nouvelles
fonctions de corrélation
apparaissent

M^z

De nouvelles informations

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

En fonction de l'état de spin
des neutrons incidents et
diffusés, de nouvelles
fonctions de corrélation
apparaissent

M^y

De nouvelles informations

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

En fonction de l'état de spin
des neutrons incidents et
diffusés, de nouvelles
fonctions de corrélation
apparaissent

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}^z + \mathbf{M}^y$$

De nouvelles informations

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

En fonction de l'état de spin
des neutrons incidents et
diffusés, de nouvelles
fonctions de corrélation
apparaissent

« termes d'interférence »

$$M_{ch} = i (M_{\perp}^{z*} M_{\perp}^y - M_{\perp}^{y*} M_{\perp}^z)$$

$$R_y = N M_{\perp}^{y*} + N^* M_{\perp}^y$$

$$R_z = N M_{\perp}^{z*} + N^* M_{\perp}^z$$

La technique classique

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

$$R = \frac{|N|^2 + |\mathbf{M}_{\perp}|^2 + P(NM_{\perp}^Z* + N^*M_{\perp}^Z)}{|N|^2 + |\mathbf{M}_{\perp}|^2 - P(NM_{\perp}^Z* + N^*M_{\perp}^Z)}$$

- ILL : D3, D23
- LLB : 5C1, 6T2

Méthode dite du
« rapport de flipping »:

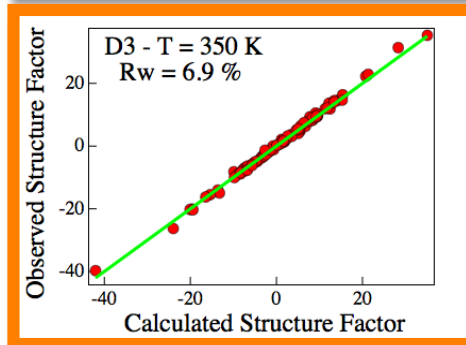
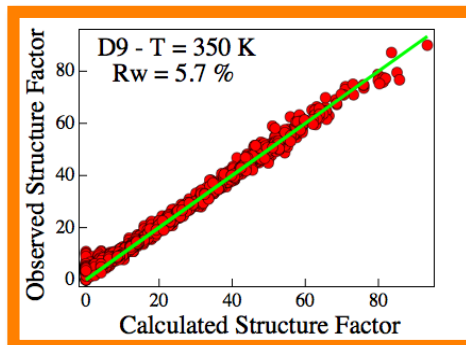
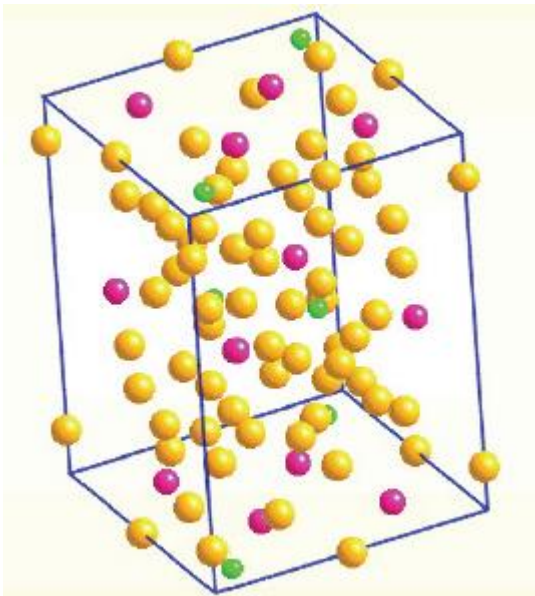
On n'analyse pas la
polarisation des
neutrons diffusés mais
on prépare le faisceau
soit **up** soit **down**.
Le champ H sélectionne
le processus « z ».



La technique classique

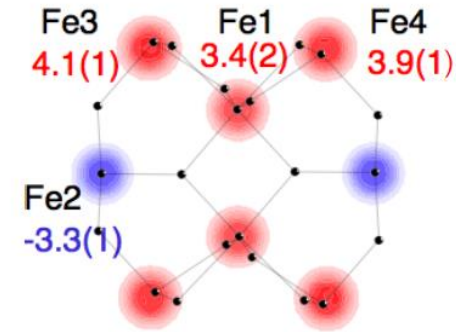
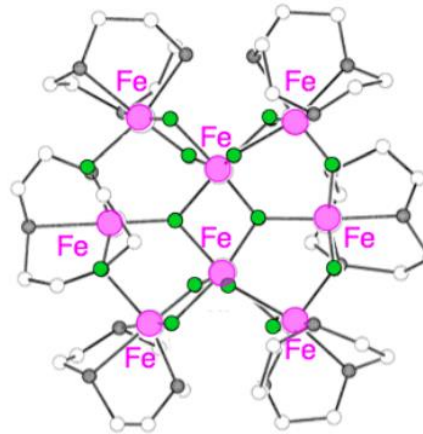
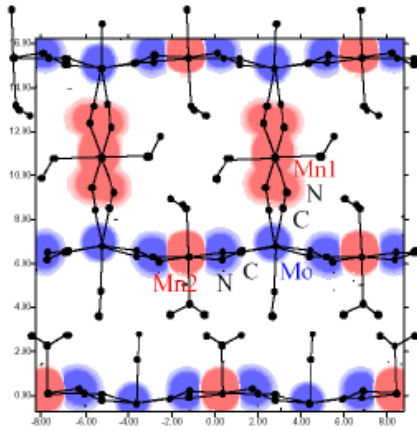
$$R = \frac{|N|^2 + |\mathbf{M}_\perp|^2 + P(NM_\perp^{Z*} + N^*M_\perp^Z)}{|N|^2 + |\mathbf{M}_\perp|^2 - P(NM_\perp^{Z*} + N^*M_\perp^Z)}$$

Améliore la précision car R est linéaire en Mz



T(K)	350 K	400 K	450 K
Nd1	1.62(3)	1.37(3)	1.13(2)
Nd2	1.65(3)	1.50(3)	1.24(2)
Fe1	1.95(5)	1.80(5)	1.63(4)
Fe2	2.16(5)	2.23(5)	1.99(4)
Fe3	2.12(4)	2.02(4)	1.78(3)
Fe4	3.01(4)	2.99(4)	2.79(4)
Fe5	2.29(2)	2.18(3)	2.04(2)
Fe6	2.31(3)	2.19(4)	2.03(3)

Densité d'aimantation



Mn(CN)Mo (B. Gillon et al, Inorg. Chem. **46**, 1090 (2007).

Fig. 3. View of the Fe_8 molecular cluster (left) and experimental magnetization distribution (right) as measured by polarized neutron diffraction. From Ref. [23].

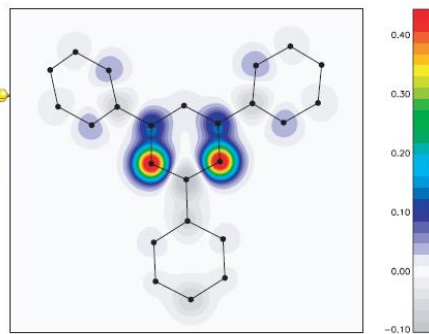
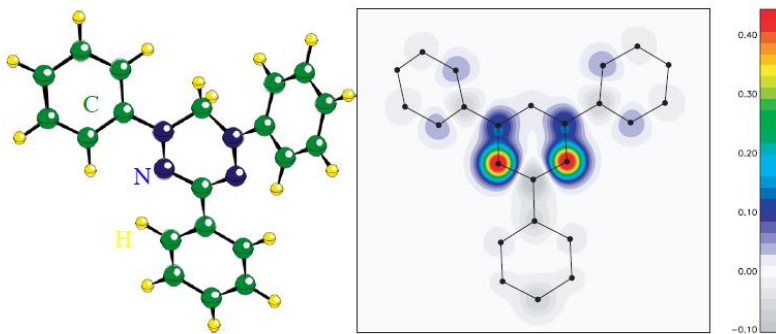


Fig. 4. View of the TPV molecule (left) and experimental magnetization distribution (right) as measured by polarized neutron diffraction.

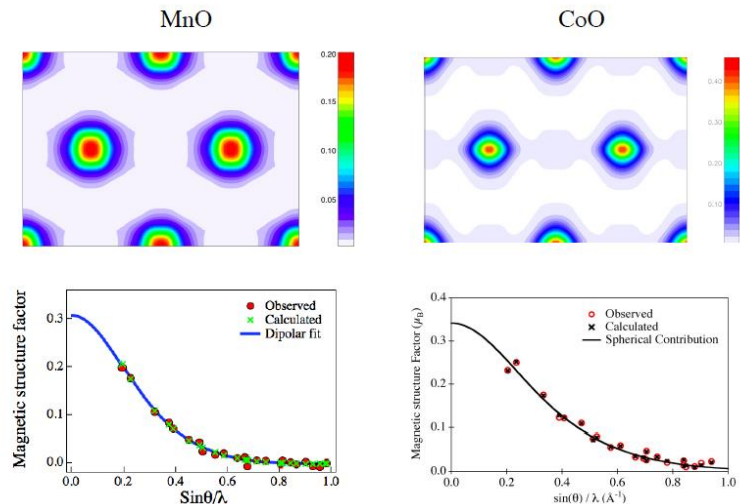
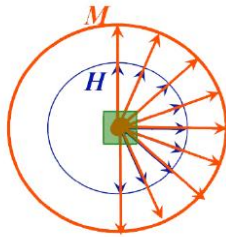


Fig. 5. Magnetization distribution in direct space (up) and form factor in reciprocal space (bottom) for MnO (left) and CoO (right). From Refs. [19] and [30].

Susceptibilité locale

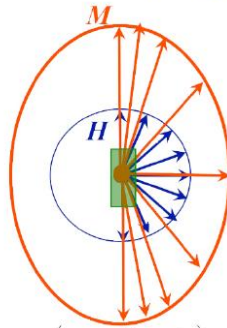
Forme du tenseur d'anisotropie locale

CUBIC, $\chi_{11} = \chi_{22} = \chi_{33}$



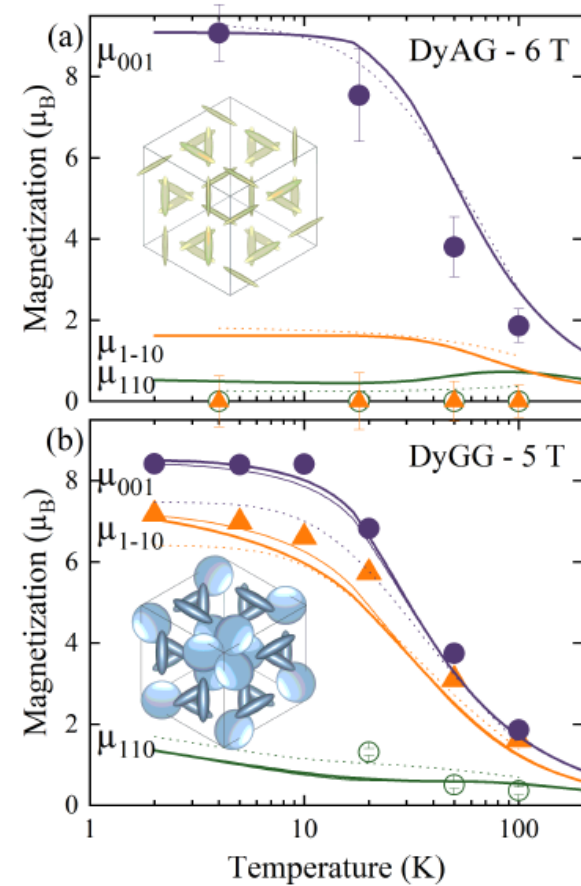
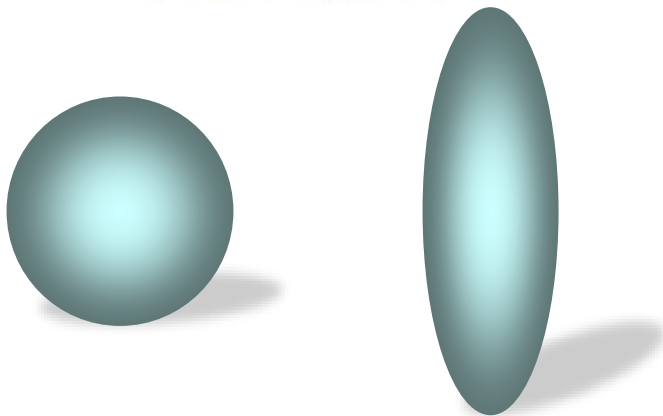
$$\chi_{ij} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{11} \end{pmatrix}$$

UNIAXIAL $\chi_{11} = \chi_{22} < \chi_{33}$



$$\chi_{ij} = \begin{pmatrix} \chi_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \chi_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \chi_{33} \end{pmatrix}$$

Fig. 6. Atomic site susceptibility tensor.



Kibalin et al, PRR (2020)

$$I_x^{++} \propto |N|^2$$

$$I_x^{--} \propto |N|^2$$

$$I_x^{+-} \propto |M_{\perp}|^2 - M_{ch}$$

$$I_x^{-+} \propto |M_{\perp}|^2 + M_{ch}$$

$$I_y^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 + R_y$$

$$I_y^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^y|^2 - R_y$$

$$I_y^{+-} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_y^{-+} \propto |M_{\perp}^z|^2$$

$$I_z^{++} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 + R_z$$

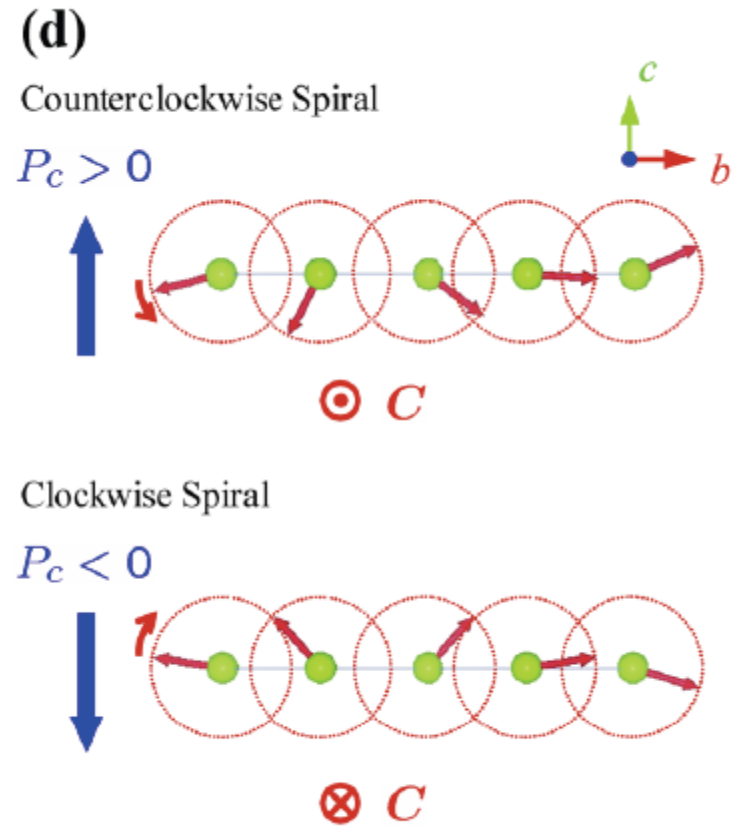
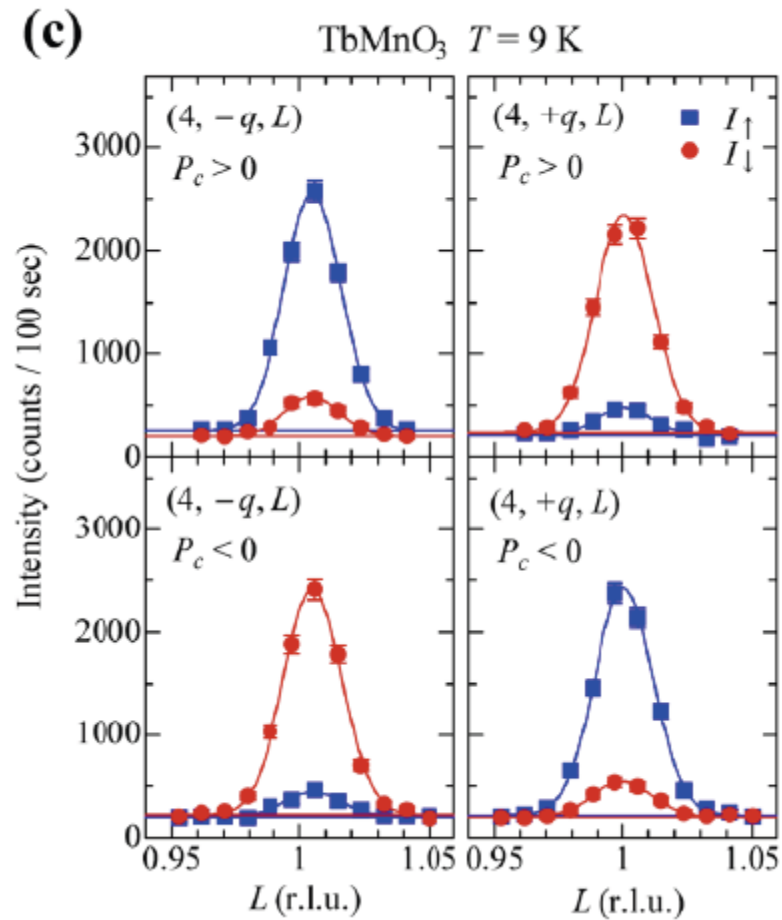
$$I_z^{--} \propto |N|^2 + |M_{\perp}^z|^2 - R_z$$

$$I_z^{+-} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

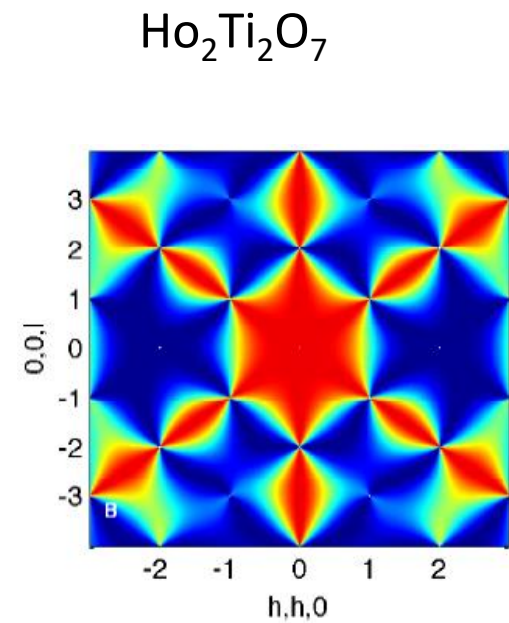
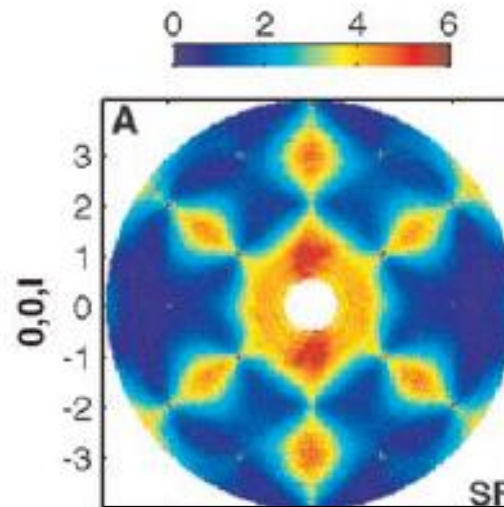
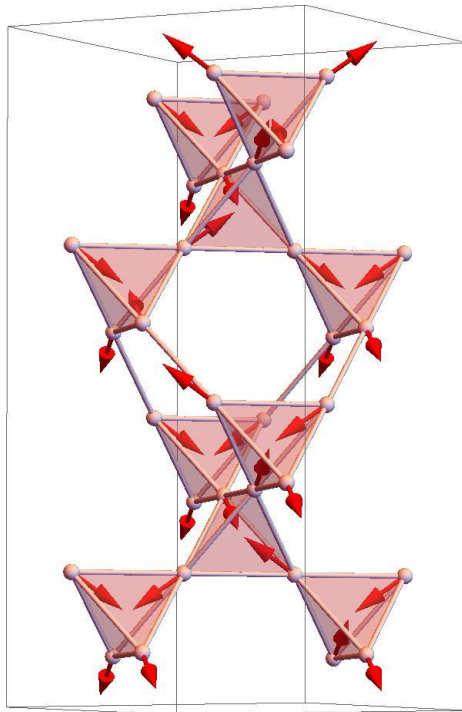
$$I_z^{-+} \propto |M_{\perp}^y|^2$$

Terme chiral

La chiralité



La diffusion diffuse magnétique



Tom Fennell, Science (2009)

Sections efficaces,
Intensités diffusées



Section efficace, intensité diffusée

Approche quantique du calcul de la section efficace:

Règle d'or de Fermi

$$W = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle k_f, \sigma_f, \lambda' | V | k_i, \sigma_i, \lambda \rangle|^2 \delta((E_i + E_\lambda) - (E_f + E_{\lambda'}))$$



Section efficace, intensité diffusée

Probabilité pour que le neutron soit dans l'état de spin σ_i

Densité d'états finaux k_f

$$\begin{aligned} D &= \frac{V}{(2\pi)^3} \partial \vec{k}_f \\ &= \frac{V}{(2\pi)^3} \partial \Omega k_f^2 \partial k_f \\ &= \frac{V}{(2\pi)^3} k_f \frac{m_n}{\hbar^2} \partial \Omega \partial E_f \end{aligned}$$

$$\partial \sigma = \frac{1}{F_i} \sum_{\sigma_i, \sigma_f} p_{\sigma_i} \sum_{\lambda, \lambda'} p_{\lambda} W D$$

Flux incident

$$F_i = \frac{1}{V} \frac{\hbar k_i}{m_n}$$

Probabilité pour que la cible soit dans l'état initial λ

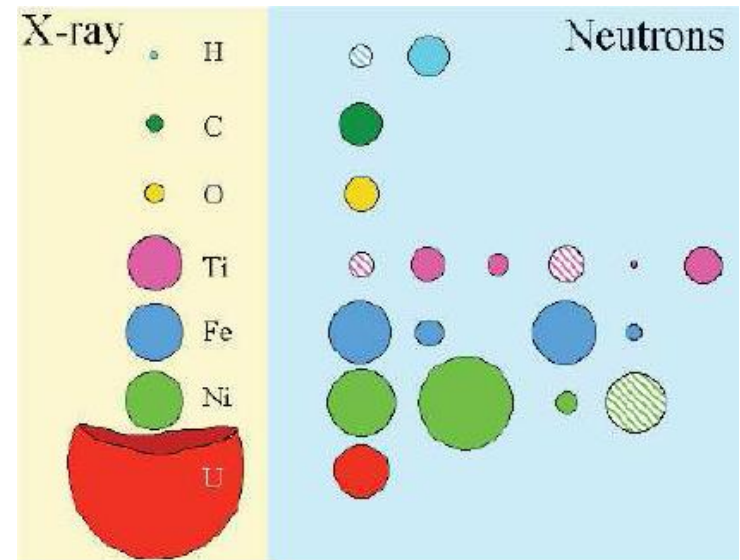
$$p_{\lambda} = \frac{e^{-E_{\lambda}/T}}{\sum_{\lambda} e^{-E_{\lambda}/T}}$$

Section efficace, intensité diffusée

Interaction avec les noyaux

$$\hat{V}_n(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{M} b \delta(\vec{r} - \vec{R}).$$

b = longueur de diffusion
positive ou négative
Dépend de l'isotope



$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \frac{k_f}{k_i} \sum_{i,j} b_i b_j \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle e^{iQ \cdot R_i} e^{-iQ \cdot R_j(t)} \rangle e^{-i\omega t}$$

Section efficace, intensité diffusée

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \frac{k_f}{k_i} \sum_{i,j} b_i b_j \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle e^{iQ \cdot R_i} e^{-iQ \cdot R_j(t)} \rangle e^{-i\omega t}$$

Frozen lattice

$$R_i(t) = R_m^o + r_\ell$$

Rien ne bouge

Maille

Atome dans la maille

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} &= \frac{k_f}{k_i} \delta(\omega) \sum_{m,n,\ell,\ell'} b_\ell b_{\ell'} e^{iQ \cdot (R_m^o + r_\ell - R_n^o - r_{\ell'})} \\ &= \delta(\omega) \sum_{m,n} e^{iQ \cdot (R_m^o - R_n^o)} \sum_{\ell,\ell'} b_\ell b_{\ell'} e^{iQ \cdot (r_\ell - r_{\ell'})} \\ &= \delta(\omega) \sum_{m,n} e^{iQ \cdot (R_m^o - R_n^o)} |F(Q)|^2 \end{aligned}$$

définition « simple »
du facteur de
structure :

$$F(Q) = \sum_{\ell} b_\ell e^{iQ \cdot r_\ell}$$

FORMULE FONDAMENTALE

$$F(Q) = \sum_{\ell} b_{\ell} e^{iQ \cdot r_{\ell}}$$

Section efficace, intensité diffusée

Les longueurs de diffusion dépendent de l'isotope:

$$b_i = \langle b \rangle + \Delta b_i$$

$$b_i b_j = \langle b \rangle^2 + \langle b \rangle (\Delta b_i + \Delta b_j) + \Delta b_i \Delta b_j$$

$$\langle \Delta b_i \rangle \equiv 0$$

$$\langle \Delta b_i \Delta b_j \rangle = \langle \Delta b_i \Delta b_j \rangle \delta_{i,j} = \langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2$$

$$|F(Q)|^2 = \sum_{\ell, \ell'} \langle b \rangle^2 e^{iQ(r_\ell - r_{\ell'})} + N(\langle b^2 \rangle - \langle b \rangle^2)$$

Diffusion cohérente

Diffusion incohérente

Section efficace, intensité diffusée

Values of σ_{coh} and σ_{inc}

Nuclide	σ_{coh}	σ_{inc}	Nuclide	σ_{coh}	σ_{inc}
^1H	1.8	80.2	V	0.02	5.0
^2H	5.6	2.0	Fe	11.5	0.4
C	5.6	0.0	Co	1.0	5.2
O	4.2	0.0	Cu	7.5	0.5
Al	1.5	0.0	^{36}Ar	24.9	0.0

- Difference between H and D used in experiments with soft matter (contrast variation)
- Al used for windows
- V used for sample containers in diffraction experiments and as calibration for energy resolution

Section efficace, intensité diffusée

Réseau vibrant

$$R_i(t) = R_m^o + r_\ell + u_{m,\ell}(t)$$

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \frac{k_f}{k_i} \sum_{m,n} e^{iQ (R_m^o - R_n^o)} \sum_{\ell, \ell'} b_\ell b_{\ell'} e^{iQ (r_\ell - r_{\ell'})} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle e^{iQ u_{m,\ell}} e^{-iQ u_{n,\ell'}(t)} \rangle e^{-i\omega t}$$

Développement en série

$$e^{\langle Q u_{m,\ell} Q u_{n,\ell'}(t) \rangle} \approx 1 + \langle Q u_{m,\ell} Q u_{n,\ell'}(t) \rangle + \dots$$

Terme élastique

$$F(Q) = \sum_{\ell} b_{\ell} e^{iQ r_{\ell}} e^{-W_{\ell}}$$

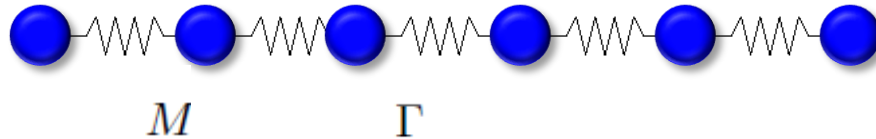
Termes inélastiques (phonons)

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \sum_s A_s [(1 + n(\omega_{Q,s})) \delta(\omega - \omega_{Q,s}) + n(\omega_{Q,s}) \delta(\omega + \omega_{Q,s})]$$

$$F_s(Q) = \sum_{\ell} b_{\ell} e^{iQ r_{\ell}} e^{-W_{\ell}} \frac{1}{\sqrt{M_{\ell} \omega_{q,s}}} (\vec{Q} \cdot \vec{e}_{q,\ell})$$

Excitations collectives dans la matière

Chaine monoatomique



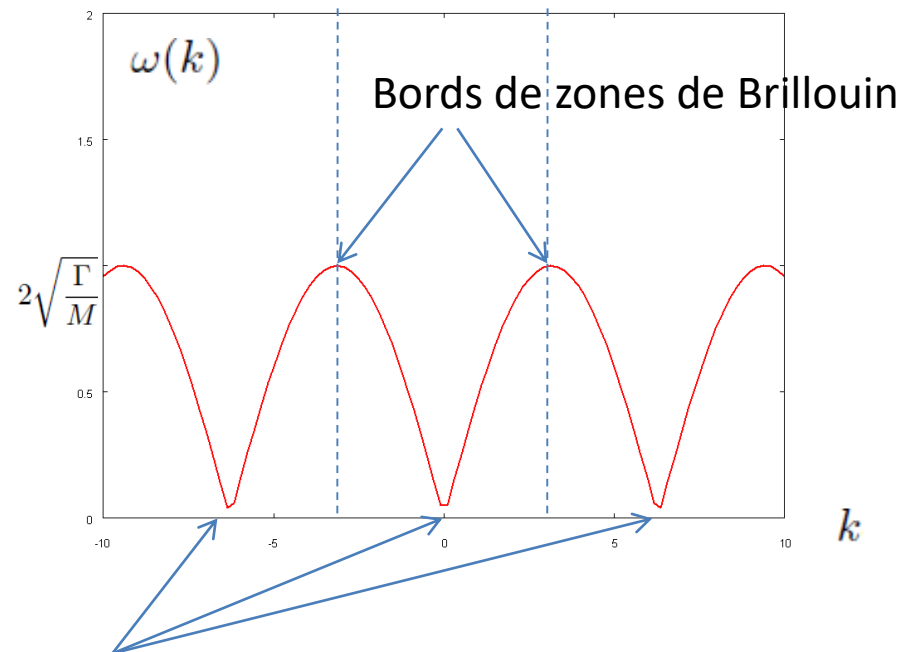
$$M \frac{d^2}{dt^2} u_m = \Gamma (u_{m+1} + u_{m-1} - 2u_m)$$

Transformation de Fourier

$$-M\omega^2 = \Gamma (e^{ika} + e^{-ika} - 2)$$

$$\omega(k) = 2\sqrt{\frac{\Gamma}{M}} \sin \frac{ka}{2}$$

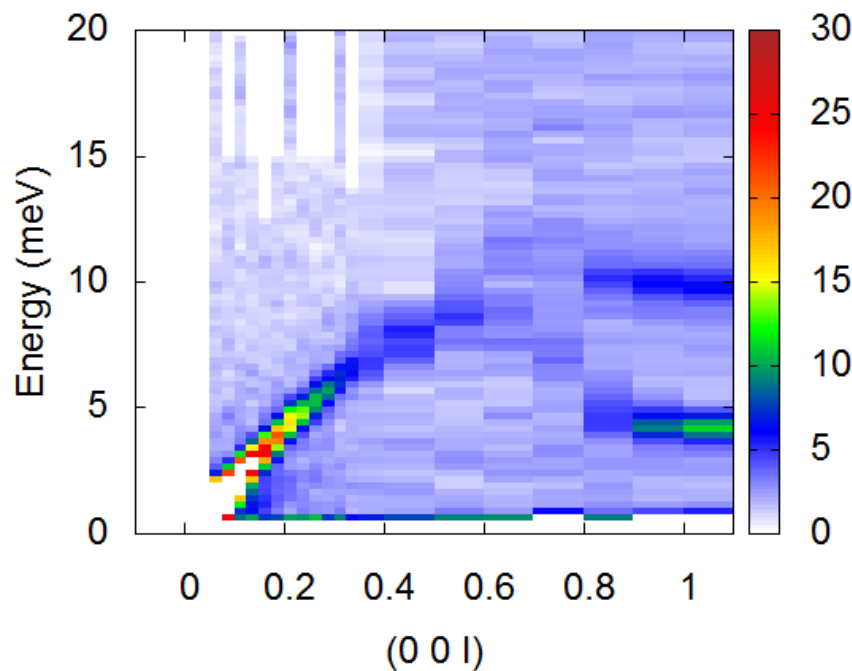
Relation de dispersion



Centres de zone de Brillouin

Excitations collectives dans la matière

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \sum_s A_s [(1 + n(\omega_{Q,s})) \delta(\omega - \omega_{Q,s}) + n(\omega_{Q,s}) \delta(\omega + \omega_{Q,s})]$$



Mesure quasi directe des
constantes de force

Section efficace, intensité diffusée

Interaction magnétique avec le champ dipolaire créé par le spin (et le mouvement orbital) des électrons non appariés:

$$E_{ne} = -\mu_n \cdot B_e$$

$$B_e(R) = \frac{\mu_o}{4\pi} \left(\text{rot} \left(\frac{\mu_e \times R}{R^3} \right) - e v_e \times \frac{R}{R^3} \right)$$

$$\frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} = \frac{k_f}{k_i} (\gamma r_o)^2 \sum_{i,j} \int_{-\infty}^{+\infty} dt \langle \vec{S}_{\perp,i} \vec{S}_{\perp,j}(t) e^{iQ \cdot R_i} e^{-iQ \cdot R_j(t)} \rangle e^{-i\omega t}$$

Section efficace, intensité diffusée

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} &= \frac{k_f}{k_i} (\gamma r_o)^2 \sum_{i,j} e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{R}_i^o - \mathbf{R}_j^o)} \sum_{\ell, \ell'} f_{\ell}(\mathbf{Q}) f_{\ell'}^*(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_{\ell} - \mathbf{r}_{\ell'})} e^{-W_{\ell} - W_{\ell'}} \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} dt \left\langle \sum_{a,b} S_{i\ell}^a \left(\delta_{a,b} - \frac{\mathbf{Q}^a \mathbf{Q}^b}{Q^2} \right) S_{j\ell'}^b(t) \right\rangle e^{-i\omega t} \end{aligned}$$

Spins gelés (indépendant du temps)



$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma}{\partial \Omega \partial E'} &= \frac{k_f}{k_i} (\gamma r_o)^2 \sum_{i,j} e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{R}_i^o - \mathbf{R}_j^o)} \sum_{\ell, \ell'} f_{\ell}(\mathbf{Q}) f_{\ell'}^*(\mathbf{Q}) e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{r}_{\ell} - \mathbf{r}_{\ell'})} e^{-W_{\ell} - W_{\ell'}} \langle \mathbf{S}_{\perp, i\ell} \mathbf{S}_{\perp, j\ell'} \rangle \delta(\omega) \\ &= \frac{k_f}{k_i} (\gamma r_o)^2 \left| \sum_{i, \ell} e^{i\mathbf{Q} \cdot (\mathbf{R}_i^o + \mathbf{r}_{\ell})} f_{\ell}(\mathbf{Q}) e^{-W_{\ell}} \mathbf{S}_{\perp, i\ell} \right|^2 \delta(\omega) \end{aligned}$$

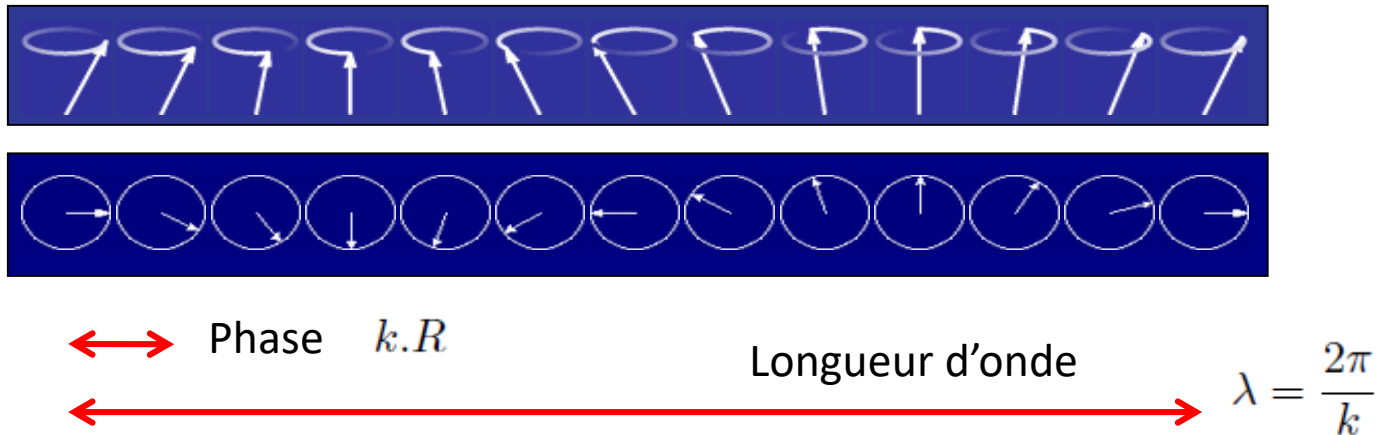
Facteur de structure magnétique

FORMULES FONDAMENTALES

$$F_N(\mathbf{Q}) = \sum_{\ell} b_{\ell} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}_{\ell}} e^{-W_{\ell}}$$

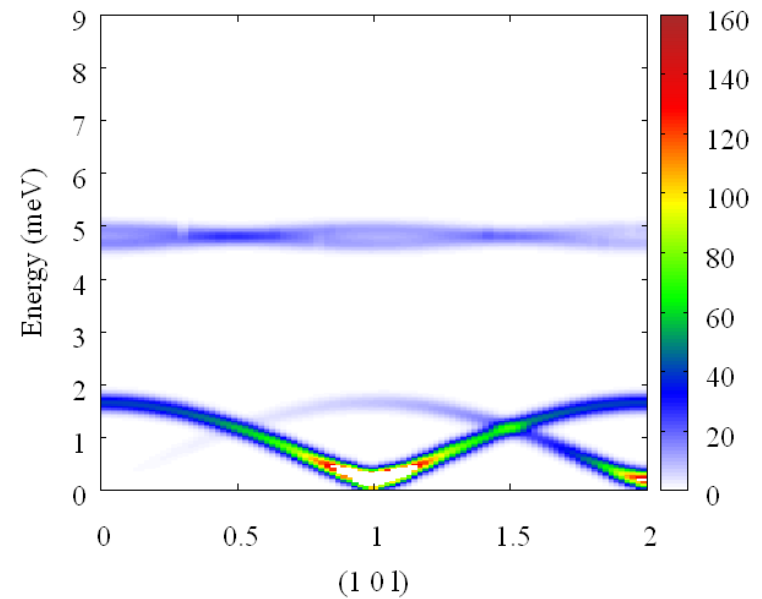
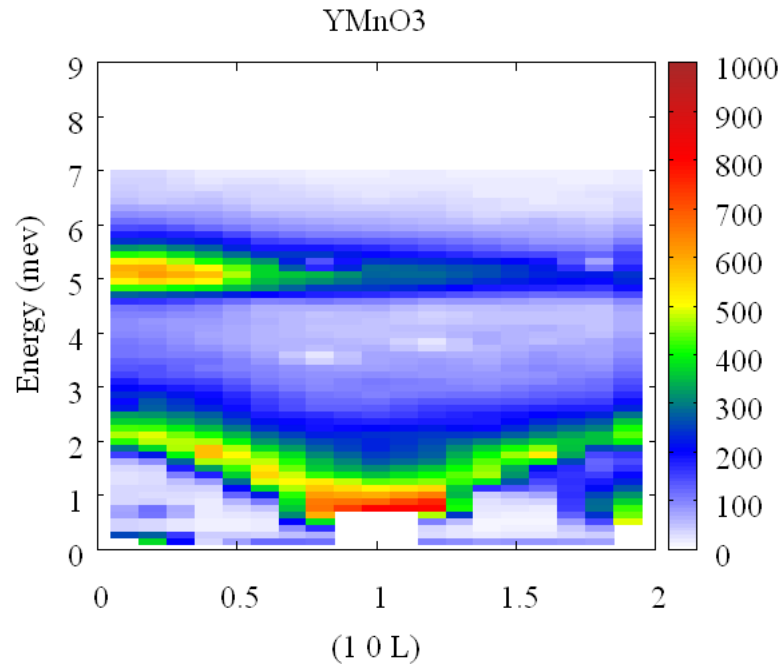
$$\mathbf{F}_M(\mathbf{Q}) = \sum_{\ell} \mathbf{S}_{\ell\perp} e^{i\mathbf{Q}\mathbf{r}_{\ell}} e^{-W_{\ell}}$$

Excitations collectives dans la matière



- Les ondes de spin sont des ondes de précessions du spin dans les systèmes magnétiques conventionnels
- Elles sont décrites par des particules bosons de spin $S=1$
- La diffusion des neutrons permet de mesurer la dispersion de ces particules.

Excitations collectives dans la matière



Les ondes de spins dans un matériau
multiferroïque YMnO₃
Modèle théorique à droite

Mesure quasi directe de
l'échange

1. La diffusion des neutrons permet d'étudier les corrélations dans le temps et dans l'espace des particules qui constituent la matière.
2. On peut ainsi étudier toutes sortes de systèmes relevant de la physique de la matière condensée : macromolécules, biologie, structures cristallines et magnétiques,
3. ne dégrade pas l'échantillon
4. sensible au volume et non à la surface
5. sensible au magnétisme

Structures magnetiques et
cristallines

Excitations élémentaires



Structures à grande échelle

Diffusion quasi-élastique

Réflectométrie (surface)

Aujourd'hui : ILL



D20, D2B, D1B

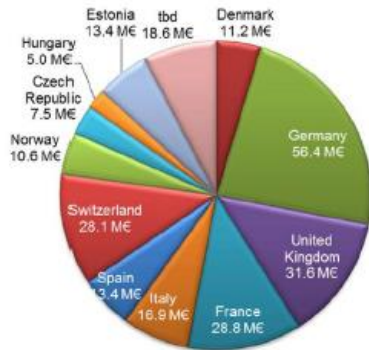
D23, D3, D9, D10

IN4, IN5, IN6

IN8, IN29, IN12, IN22

Et demain, l'ESS (Lund, Suède)

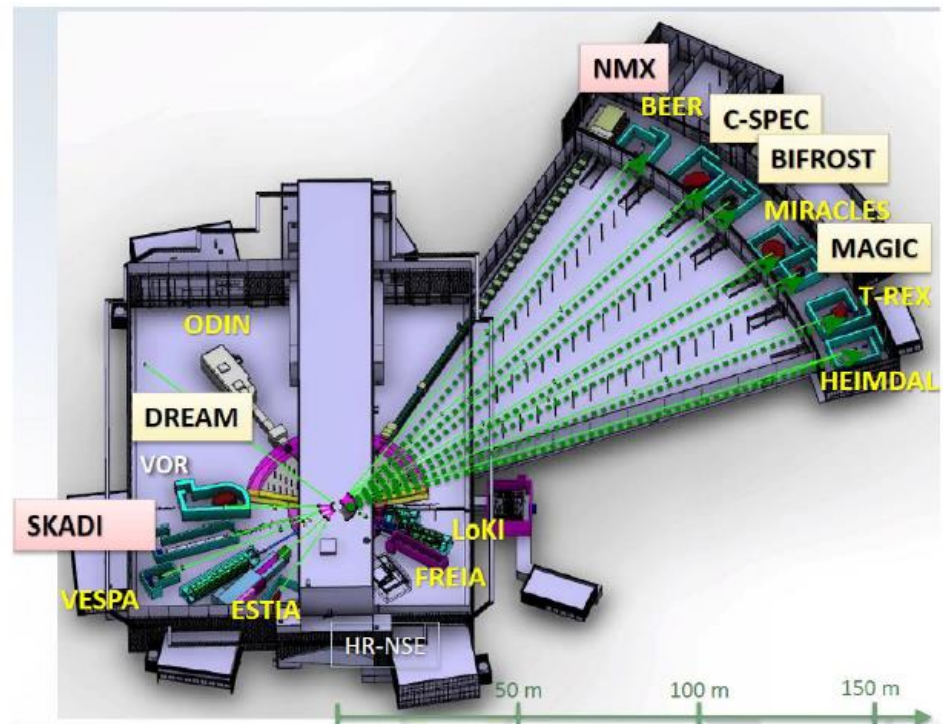
NEW EUROPEAN FACILITY : READY IN 2024 ...



LLB teams are heavily involved in several ESS instruments:

DREAM	diffractometer	24% LLB
SKADI	SANS	50% LLB
MAGIC	diffractometer	59% LLB
BIFROST	INS spectrometer	24% LLB
CSPEC	INS spectrometer	50% LLB
NMX	biocrystallography	15% LLB/IBS

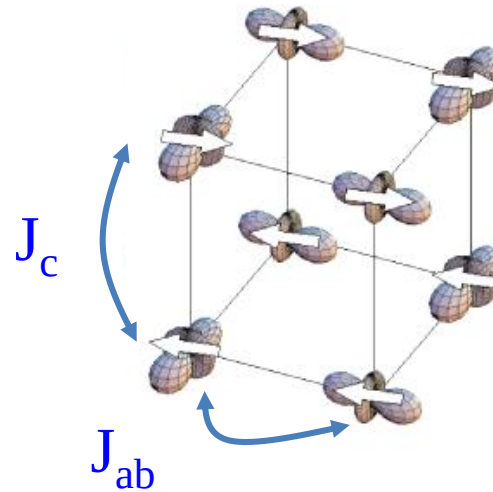
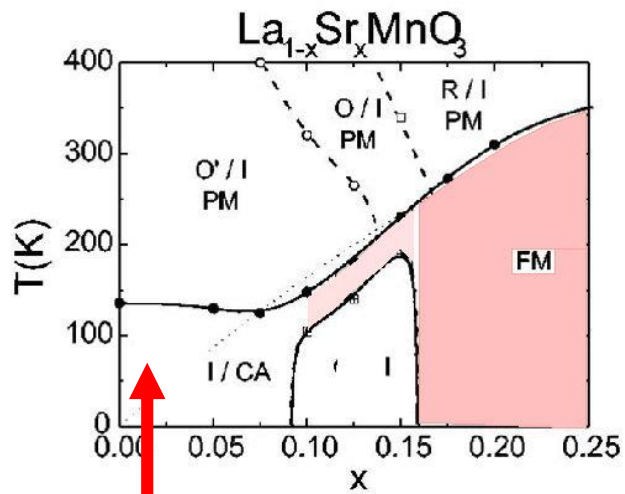
LLB Budget : 35M€ for instruments



EXAMPLES

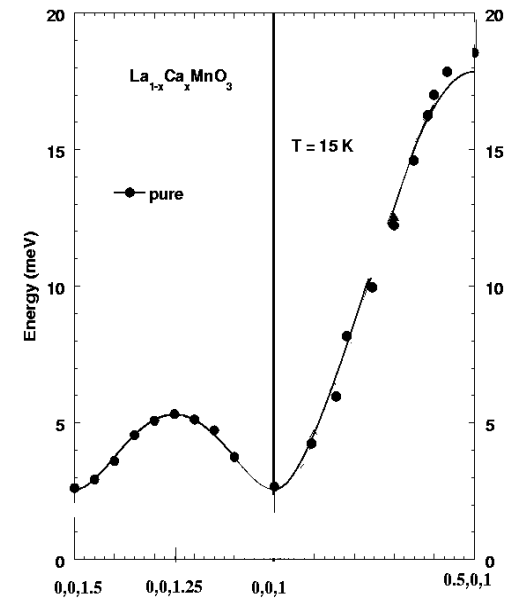
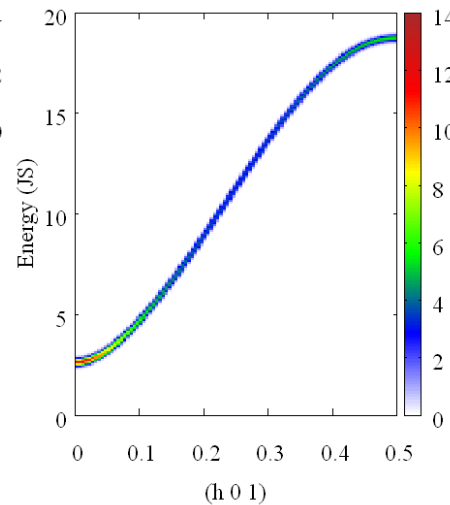
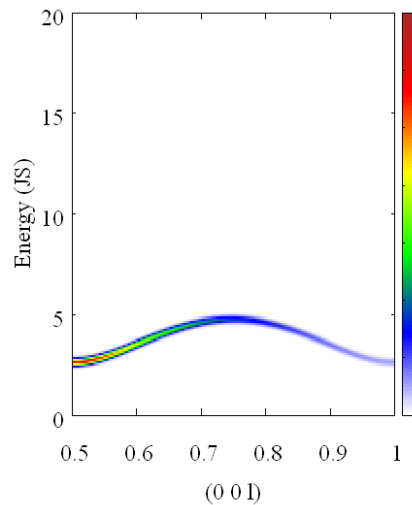


Manganites



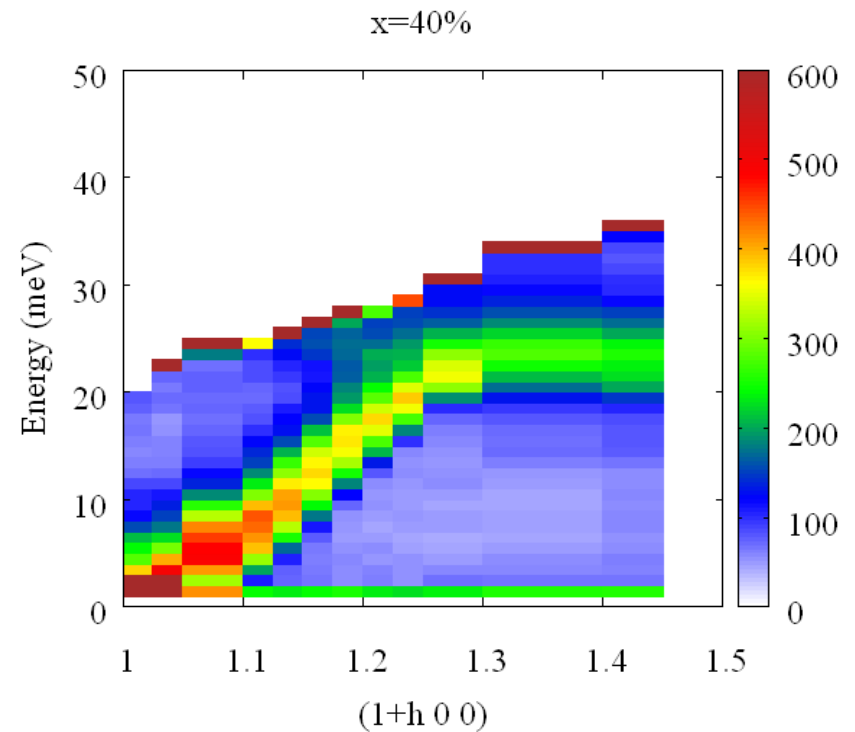
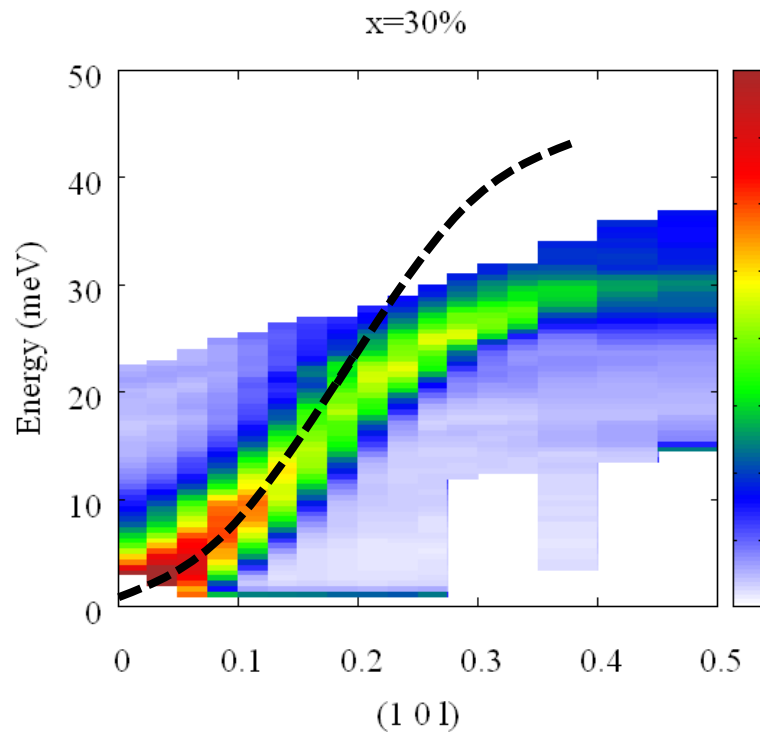
$$J_c \sim 0.5 \text{ meV}$$

$$J_{ab} \sim -0.8 \text{ meV}$$



Manganites

Ondes de spin dans les manganites à CMR



Pyrochlore ferromagnet $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

QUANTUM EXCITATIONS IN QUANTUM SPIN ICE

PHYS. REV. X 1, 021002 (2011)

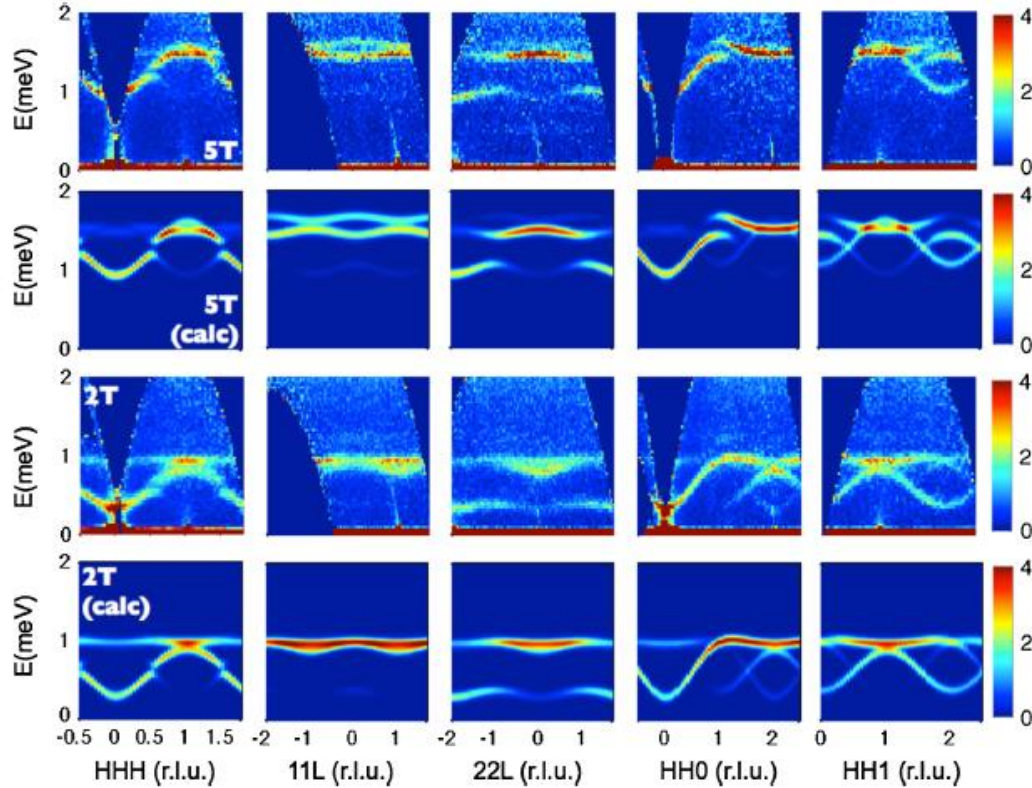


FIG. 1. The measured $S(\mathbf{Q}, \omega)$ at $T = 30$ mK, sliced along various directions in the HHL plane, for both $H = 5$ T (first row) and $H = 2$ T (third row). The second and fourth rows show the calculated spectrum for these two field strengths, based on an anisotropic exchange model with five free parameters (see text) that were extracted by fitting to the 5 T data set. For a realistic comparison to the data, the calculated $S(\mathbf{Q}, \omega)$ is convoluted with a Gaussian of full-width 0.09 meV. Both the 2 T and 5 T data sets, composed of spin wave dispersions along five different directions, are described extremely well by the same parameters. (Note that r.l.u. stands for reciprocal lattice units.)

Pyrochlore antiferromagnet $\text{Er}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

PRL **109**, 167201 (2012)

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending
19 OCTOBER 2012

Order by Quantum Disorder in $\text{Er}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

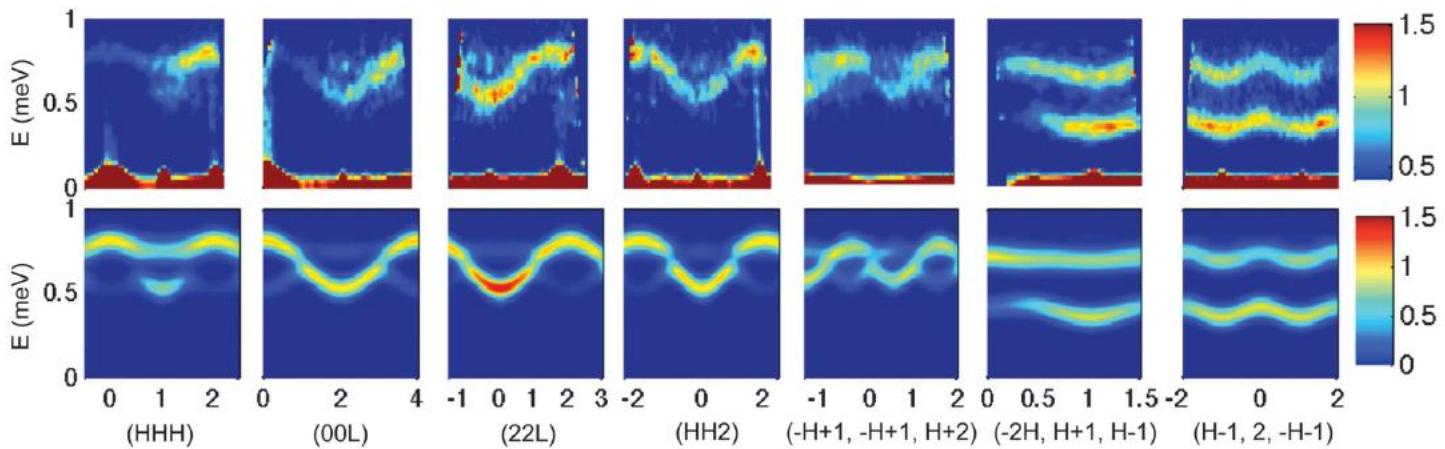
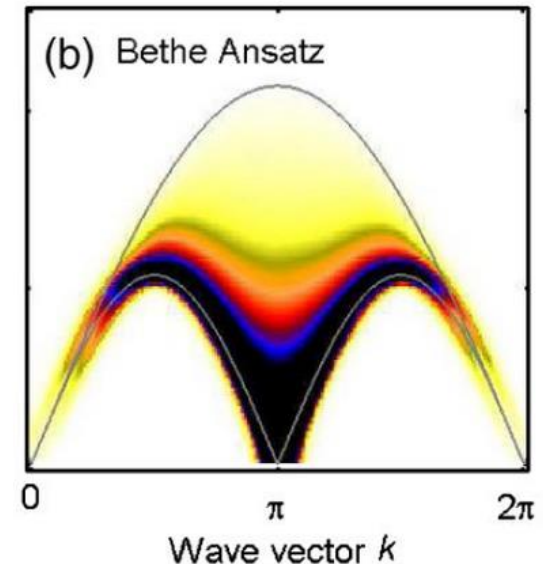
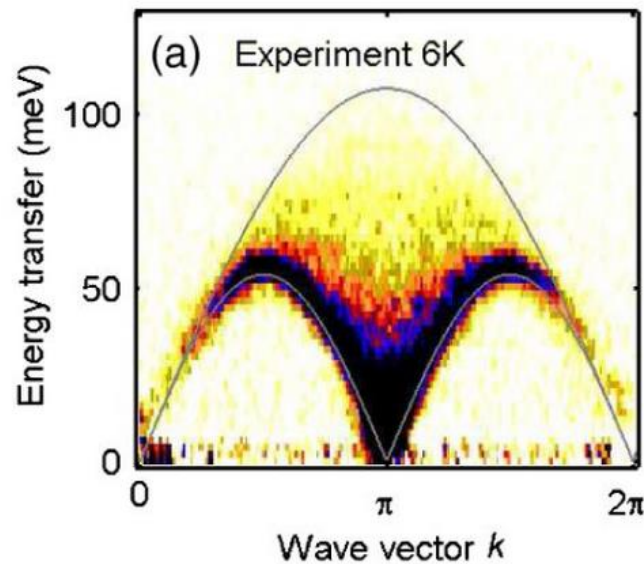
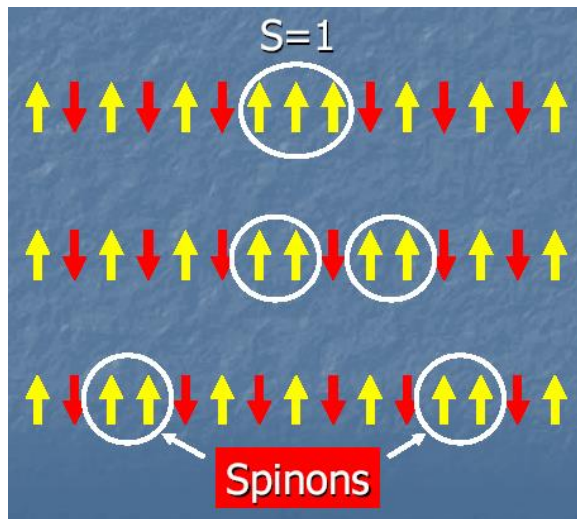


FIG. 1 (color). The measured $S(\mathbf{Q}, \omega)$ at $T = 30$ mK, $H = 3$ T sliced along several directions. The first five columns show $S(\mathbf{Q}, \omega)$ in the HHL plane, with the field applied along $[1\bar{1}0]$, while the last two columns show $S(\mathbf{Q}, \omega)$ for the field along $[111]$. Top row: measured $S(\mathbf{Q}, \omega)$. Bottom row: calculated $S(\mathbf{Q}, \omega)$, based on an anisotropic exchange model with six free parameters (see text) that were extracted by fitting to the measured dispersions.

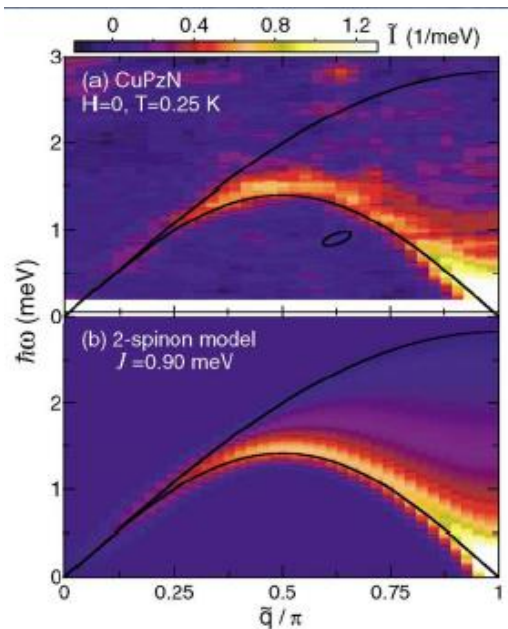
Quantum magnets

Dans certains systèmes, les fluctuations empêchent l'ordre magnétique de s'installer. Les excitations ne sont plus du tout des ondes de spin ...

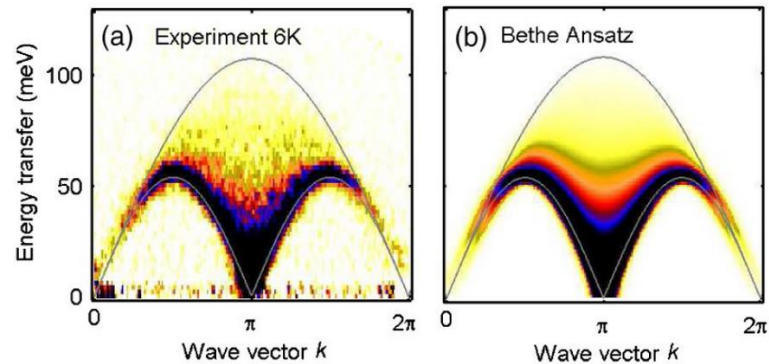
Frustration, basse dimension, spin quantique = 1/2, 1



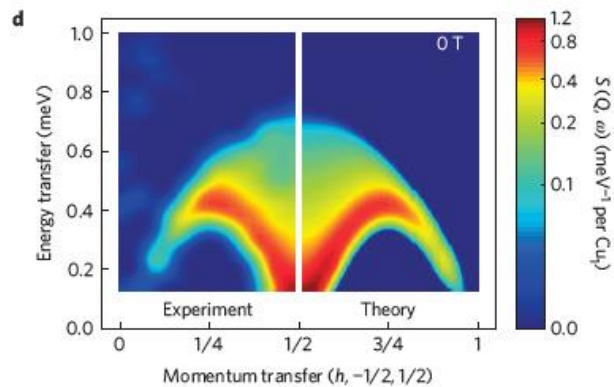
Quantum magnets



CuPzN, Stone et al, PRL 2003



KCuF₃, Lake et al, Nature Materials 2005



CuSO₄ 5D₂O Mourigal et al, Nature Physics 2013

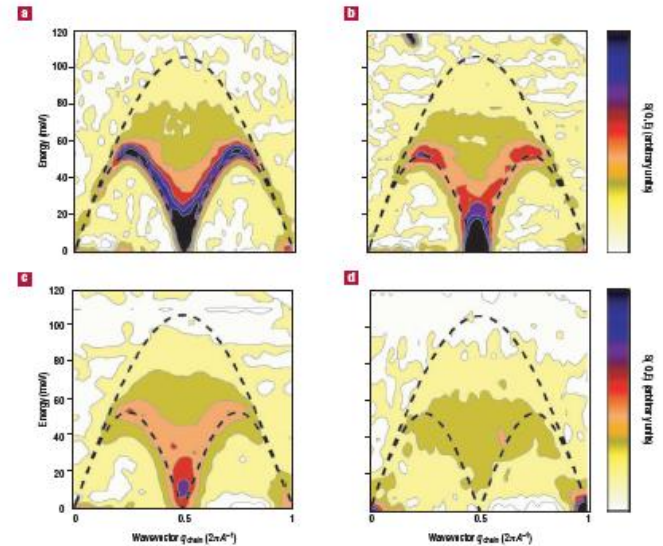
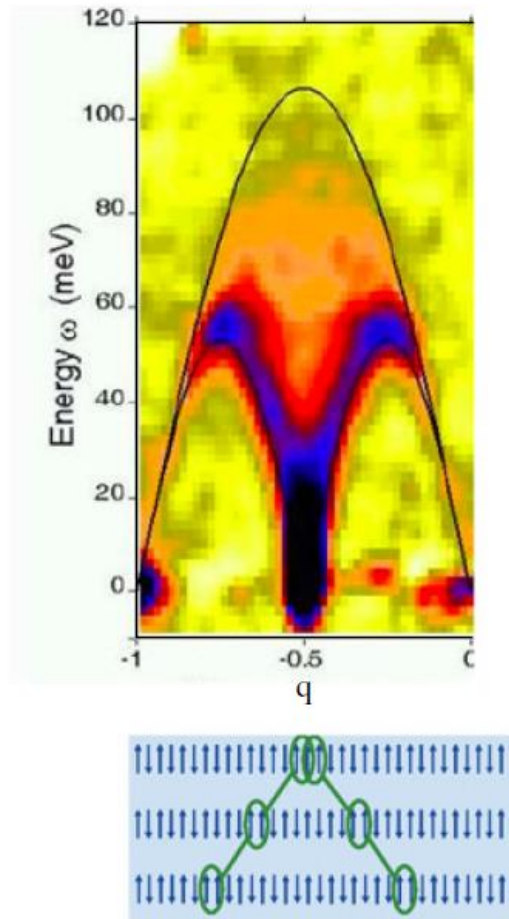


Figure 1 Inelastic neutron scattering data for KCuF₃. The data is plotted as a function of E and q parallel to the chains for the temperatures a, T=6 K, b, T=50 K, c, T=150 K and d, T=300 K. The colours indicate the size of the neutron scattering cross-section S(q,E) and the superimposed black dashed lines indicate the region where the multi-phonon continuum is predicted at T=0 K by the Muller Ansatz equation (1). The data was collected using the MAPS time-of-flight spectrometer at ISIS, Rutherford Appleton Laboratory, UK.

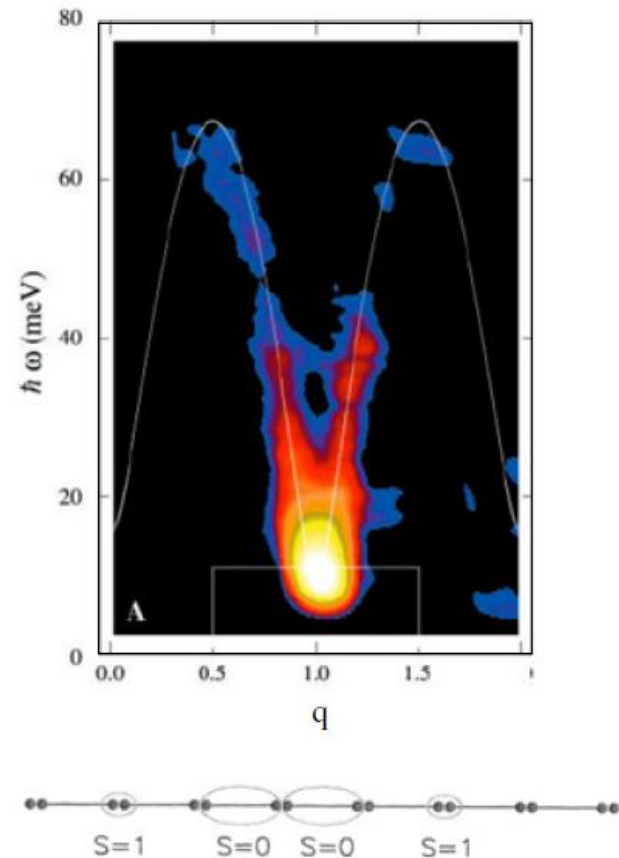
Quantum magnets

$S = \frac{1}{2}$ KCuF_3



Spin correlations decay as power law
Spin $\frac{1}{2}$ particles : continuum
gapless

$S = 1$ Y_2BaNiO_5



Spin correlations decay exponentially
Spin 1 excitation : well defined mode
(Haldane) Gapped spectrum