ERICSON-GALULA M.

Rapport CEA n° 1 189

ETUDE DE FLUCTUATIONS D'AIMANT DANS LE FER AU VOISINAGE DE LA TEMPERATURE DE CURIE PAR DIFFUSION DES NEUTRONS.

Sommaire :

La diffusion critique des neutrons dans le fer est due aux fluctuations d'aimantation qui existent dans les substances ferromagnétiques au voisinage de la température de Curie.

Les fluctuations peuvent se décrire en termes de corrélations ; on définit une fonction de corrélation :

$$\gamma_{\vec{R}}(t),$$

$$\gamma_{\vec{R}}(t) = \langle \vec{S}_0(o)\, \vec{S}_{\vec{R}}(t) \rangle,$$

valeur moyenne du produit scalaire d'un spin de référence et d'un spin situé à la distance (R) du premier et considéré à l'instant t.

Dans le chapitre I nous rappelons les généralités sur les sections efficaces de diffusion des neutrons ; nous donnons un bref résumé de la théorie de VAN HOVE qui a montré que la section efficace de diffusion magnétique des neutrons est la transformée de FOURIER de la fonction de corrélation.

Dans le chapitre II nous étudions la dépendance spatiale de la fonction de corrélation, supposée indépendante du temps. On peut alors la caractériser par deux paramètres K_1 et r_1 qui permettent de calculer respectivement la portée et l'intensité des corrélations.

Après avoir exposé le principe de la mesure de ces paramètres, nous décrirons l'appareillage expérimental. Les valeurs expérimentales obtenues sont en bon accord avec celles calculées, l'accord est meilleur si on suppose que ce sont les deuxièmes et non les premiers voisins d'un atome de fer qui sont magnétiquement actifs, ainsi que l'a proposé NEEL.

ERICSON-GALULA M.

Report CEA n° 1 189

STUDY BY NEUTRON DIFFUSION OF MAGNETIC FLUCTUATIONS IN IRON IN THE CURIE TEMPERATURE REGION.

Summary :

The critical diffusion of neutrons in iron is due to the magnetisation fluctuations which occur in ferromagnetic substances in the neighbourhood of the Curie temperature.

The fluctuations can be described in correlation terms ; a correlation function

$$\gamma_{\vec{R}}(t) \text{ is defined,}$$

$$\gamma_{\vec{R}}(t) = \langle \vec{S}_0(o)\, \vec{S}_{\vec{R}}(t) \rangle$$

mean value of the scalar product of a reference spin and a spin situated at a distance (R) from the first and considered at the instant t.

In chapter I we recall the generalities on neutron diffusion cross-sections ; a brief summary is given of the theory of VAN HOVE, who has shown that the magnetic diffusion cross section of neutrons is the FOURIER transformation of the correlation function.

In chapter II we study the spatial dependance of the correlation function, assumed to be independant of time. It can then be characterised by two parameters K_1 and r_1, by means of which the range and intensity of the correlations can be calculated respectively.

Dans le chapitre III nous étudions l'évolution dans le temps de la fonction de corrélation ; cette évolution est caractérisée par un paramètre A dépendant de la température qui intervient dans l'équation de diffusion à laquelle obéissent les fluctuations d'aimantation

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = A \nabla^2 \vec{M}$$

Nous donnons le principe de la mesure de A, puis nous décrivons les modifications apportées à l'appareillage expérimental décrit dans le chapitre II.

Nous discutons ensuite les résultats obtenus et nous les comparons aux prévisions théoriques de DE GENNES faites en utilisant le modèle de Heisenberg et un modèle simple de bandes ; nos valeurs sont en bon accord avec celles calculées dans le modèle de Heisenberg ; elles excluent le modèle de bandes utilisé.

Enfin dans le chapitre IV, nous rappelons les principaux résultats obtenus.

1959 48 pages.

Is characterised by a parameter A depending on the temperature which occurs in the diffusion equation obeyed by the magnetisation fluctuations

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = A \nabla^2 \vec{M}$$

The principle of the measurement of A is given, after which the modifications carried out on the experimental apparatus mentioned in chapter II are described.

The results obtained are then discussed and compared with the theoretical forecasts of DE GENNES made by using the Heinsenberg model and a simple band model ; our values in good agreement with those calculated in the Heisenberg model and exclude the band model used.

Finally, in chapter IV we recall the chief results obtained.

1959 48 pages.

PRÉSIDENCE DU CONSEIL

COMMISSARIAT A
L'ÉNERGIE ATOMIQUE

ÉTUDE DES FLUCTUATIONS D'AIMANTATION DANS LE FER AU VOISINAGE DE LA TEMPÉRATURE DE CURIE PAR DIFFUSION DES NEUTRONS

par

Magda ERICSON-GALULA

Rapport C.E.A. n° 1189

1959

CENTRE D'ÉTUDES
NUCLÉAIRES DE SACLAY
SERVICE DE DOCUMENTATION
Boite postale n° 2 — Gif-sur-Yvette (S.-et-O.)

Série A, N° 3393
N° d'ordre :
4265

THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ES SCIENCES PHYSIQUES

PAR

Magda ERICSON-GALULA

PREMIÈRE THÈSE :

Étude des fluctuations d'aimantation dans le fer au voisinage de la température de Curie par diffusion des neutrons.

DEUXIÈME THÈSE :

Propositions données par la Faculté

Soutenues le 17 Décembre 1958 devant la Commission d'examen

MM.	PERRIN	Président
	GUINIER, FRIEDEL	Examinateurs
	NEEL, HERPIN	Invités

CHAPITRE I

GÉNÉRALITÉS SUR LA DIFFUSION DES NEUTRONS SECTIONS EFFICACES

L'objet de notre travail est l'étude des fluctuations locales de l'aimantation dans le fer, au voisinage de la température de Curie. Cette étude a été faite par diffusion des neutrons thermiques.

Rappelons que les neutrons issus des piles à neutrons thermiques ont des vitesses réparties dans un spectre de Maxwell dont la température est celle du modérateur, c'est-à-dire de l'ordre de 300° K, la vitesse la plus probable est de 2 200 m/s, ce qui correspond à une énergie de $2,5.10^{-2}$ eV. Les flux que l'on obtient couramment sont de l'ordre de 10^{13} à 10^{14} neutrons par cm^2 et par seconde, à l'intérieur de la pile.

Les longueurs d'onde des neutrons thermiques sont du même ordre de grandeur que les distances interatomiques. Les neutrons permettent donc d'effectuer des études cristallographiques comme les rayons X.

Il existe deux différences importantes entre les études effectuées au moyen des neutrons et au moyen des rayons X, qui permettent aux neutrons de fournir des renseignements que les rayons X sont incapables de fournir.

A - Le neutron possède un moment magnétique de 1,91 magnéton nucléaire.

Il interagit de ce fait avec les moments magnétiques dans les substances magnétiques. Les sections efficaces de diffusion magnétique des neutrons thermiques sont du même ordre de grandeur que les sections efficaces nucléaires. Pour l'ion ferrique par exemple, dont le spin est de 5/2, la section efficace par ion et par stéradian pour un angle de diffusion nul est de :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 1,7 \text{ barn/ stéradian pour un ion isolé}$$

La même quantité pour la diffusion nucléaire par noyau de fer est :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = 1 \text{ barn/ stéradian}$$

On peut donc effectuer des études sur les substances magnétiques à l'aide des neutrons, par exemple déterminer des structures magnétiques.

B - Contrairement aux photons, le neutron a une masse non nulle.

A longueur d'onde égale, l'énergie des neutrons est bien inférieure à celle des rayons X. Un neutron de 1,8 Å a une énergie de $2,5.10^{-2}$ eV, un photon X de même longueur d'onde a une énergie de 7 keV. Les neutrons permettent de ce fait de mesurer les niveaux d'énergie des solides. En effet, des neutrons ou des rayons X peuvent être diffusés avec changement d'énergie, ils peuvent soit perdre de l'énergie en excitant un niveau d'énergie, soit en gagner en empruntant de l'énergie au diffuseur. Les changements relatifs d'énergie des neutrons sont importants donc mesurables, dans le cas de la diffusion inélastique

des rayons X au contraire les changements relatifs d'énergie sont trop faibles pour être mesurés. Pour que les changements d'énergie de radiations électromagnétiques soient mesurables, il faut utiliser des radiations d'énergie bien inférieure, dans le domaine du visible. Mais alors les longueurs d'onde sont si grandes que le vecteur d'onde associé à cette énergie est pratiquement nul, et les renseignements obtenus sont plus limités.

Dans notre travail, nous avons exploité ces deux propriétés des neutrons.

SECTIONS EFFICACES.

Lorsque l'on veut calculer la section efficace de diffusion des neutrons par un ensemble d'unités diffusantes, par exemple des noyaux ou des spins, deux problèmes se posent.

Le premier est de savoir comment diffuse une unité isolée de l'ensemble. Ce problème n'est pas toujours aisé. Dans le cas d'un spin, il a été résolu par Halpern et Johnson qui ont montré quelles interactions on doit considérer entre l'ion magnétique et le neutron [1].

Le deuxième problème est le calcul de l'intensité totale diffusée. L'onde totale diffusée par l'ensemble est la superposition des ondes diffusées par les différentes unités. Il peut apparaître des termes d'interférence qui, dans certains cas, annulent la section efficace de diffusion.

On peut effectuer le calcul de l'amplitude de l'onde totale diffusée si on connaît le comportement individuel des unités diffusantes. C'est le cas par exemple dans les solides où l'on peut décrire les mouvements des noyaux diffuseurs comme superpositions d'ondes planes. Mais il est des cas où il n'en est pas ainsi et où l'on connaît seulement un comportement statistique des unités diffusantes. C'est le cas par exemple, des liquides où l'on peut seulement définir des probabilités de présence des noyaux diffuseurs.

Van Hove a développé un formalisme qui permet de calculer la section efficace de diffusion des neutrons à partir de propriétés statistiques. Il introduit une fonction de corrélation de paires, dépendant du temps [2, 3].

Nous parlerons de la théorie de Van Hove dans le cas de la diffusion des neutrons par un ensemble d'atomes magnétiques. On suppose le moment orbital bloqué et les neutrons incidents non polarisés.

Van Hove transforme la formule donnée par Halpern et Johnson en introduisant la fonction de corrélation $\gamma_{\vec{R}}(t)$ entre deux spins.

$$\gamma_{\vec{R}}(t) = < \vec{S}_o (o) \vec{S}_{\vec{R}} (t) >$$

$\gamma_{\vec{R}}(t)$ est le produit scalaire d'un spin de référence à l'instant O et d'un spin situé à une distance $\vec{R}$ du premier et considéré à l'instant t. $\vec{S}$ est un opérateur. La notation $\vec{S}(t)$ signifie : $e^{-\frac{itH}{\hbar}} \vec{S} e^{\frac{itH}{\hbar}}$, H est l'hamiltonien du système.

Le symbole $< A >$ signifie que l'on prend la valeur moyenne de l'opérateur A.

La section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon}$ par unité d'angle solide et unité d'énergie des neutrons diffusés est égale à :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} = \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{1}{3\pi\hbar} \frac{k'}{k} [f(K)]^2 \sum_{\vec{R}} \int e^{i(\vec{K}\vec{R} - \omega t)} \gamma_{\vec{R}}(t)\, dt$$

dans laquelle :

$g = 1,91$ est le moment magnétique du neutron, mesuré en magnétons nucléaires ;
$e^2/m_o c^2$ le rayon classique de l'électron ;
ε l'énergie des neutrons diffusés, $\vec{k}'$ leur vecteur d'onde ;
$\vec{k}$ le vecteur d'onde des neutrons incidents ;
$\vec{K} = \vec{k}' - \vec{k}$ le vecteur diffusion, $K = |\vec{K}|$;
$\hbar\omega$ le changement d'énergie des neutrons lors de la diffusion ;
$f(K)$ le facteur de forme, égal à 1 pour $K = 0$.

La somme $\sum_{\vec{R}}$ est étendue à tous les atomes magnétiques du réseau.

La section efficace différentielle est proportionnelle à la transformée de Fourier à 4 dimensions de la fonction de corrélation.

Remarques.

1) Conditions pour que la diffusion soit élastique.

On constate sur cette formule que si la fonction de corrélation ne dépend pas du temps, l'intégration par rapport au temps donne une fonction $\delta(\omega)$, la diffusion est purement élastique.

Un ensemble rigide de spins diffuse élastiquement les neutrons. L'existence de changements d'énergie est liée à une évolution dans le temps de la fonction de corrélation.

2) Section efficace intégrée sur les énergies finales.

Dans le cas où les changements d'énergie sont très petits devant l'énergie initiale des neutrons, K a une valeur unique pour chaque direction de diffusion θ, indépendante des changements d'énergie :

$$K = 2k \sin \frac{\theta}{2}$$

La section efficace intégrée par rapport aux énergies des neutrons diffusés est alors égale à :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \int \frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} d\varepsilon = \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} [f(K)]^2 \sum_{\vec{R}} e^{i \vec{K} \vec{R}} \gamma_{\vec{R}}(o)$$

Elle ne dépend que de la fonction de corrélation instantanée.

Dans ce chapitre, nous utiliserons cette formule. Elle permet de se rendre compte de l'allure qualitative de la distribution angulaire des neutrons par des arguments très simples. En cas d'application numérique, il faut naturellement s'assurer la validité de l'hypothèse faite.

DIFFUSION CRITIQUE.

Au voisinage de la température de Curie d'un corps ferromagnétique, il existe des fluctuations locale d'aimantation, ainsi que l'a montré Néel [4].

Ces fluctuations sont responsables d'une augmentation de la section efficace de diffusion des neutrons lents, quand la température est voisine de la température de Curie.

Ce phénomène a été découvert expérimentalement par Palevsky-Hughes [5] dans le fer et Squires [6] dans le fer et le nickel. Il a été expliqué par Van Hove qui l'a appelé diffusion critique, par analogie avec l'opalescence critique de la lumière par les fluides au point critique. Les fluctuations d'aimantation jouent le même rôle que les fluctuations de densité dans les fluides.

Le formalisme de Van Hove est très bien adapté dans ce cas puisque nous ne connaissons que des propriétés macroscopiques du système des pins.

Considérons une région du cristal contenant un grand nombre de spins N. Soit $\vec{M}$ le moment magnétique total de cette région :

$$\langle \vec{M}^2 \rangle - \langle \vec{M} \rangle^2 = 3k T \chi N$$

ou χ est la susceptibilité par spin.

A la température de Curie, la susceptibilité est infinie, les fluctuations sont donc également infinies. La section efficace de diffusion est maximum à la température de Curie.

Allure de la diffusion critique.

A la température de Curie, un spin donné étend son influence sur des voisins même très éloignés, il existe dans le cristal des "amas", c'est-à-dire des régions dans lesquelles les spins sont alignés, de dimensions grandes devant les distances atomiques. La fonction de corrélation $\gamma_{\vec{R}}(o)$ décroit lentement vers 0 quand la distance R augmente.

D'après les propriétés des transformées de Fourier, la section efficace est alors importante pour les petits angles de diffusion et vers les noeuds du réseau réciproque.

A la température de Curie, la diffusion est concentrée vers l'avant et vers les pics de Bragg.

Lorsque la température augmente, la fonction de corrélation décroit de plus en plus rapidement vers 0. Un spin n'influence que ses voisins de plus en plus proches.

Dans la limite des hautes températures, il n'y a plus de corrélation instantanée entre deux spins différents. *La fonction de corrélation $\gamma_{\vec{R}}(o)$ se réduit à une fonction $S(S+1)\,\delta(\vec{R})$.*

$$\frac{d\sigma_p}{d\Omega} = \frac{2}{3}\left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 [f(K)]^2 S(S+1)$$

Au facteur de forme près, la diffusion paramagnétique est donc isotrope.

Lorsque la température augmente à partir de la température de Curie, la diffusion qui était concentrée autour de certaines directions de l'espace se répartit dans des régions de plus en plus larges jusqu'à devenir isotrope.

Section efficace.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} [f(K)]^2 \sum_{\vec{R}} \gamma_{\vec{R}}(o) e^{i\vec{K}\vec{R}}$$

$$= \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} [f(K)]^2 \sum_{\vec{R}} \int \gamma_{\vec{r}}(o) e^{i\vec{K}\vec{r}} \delta(\vec{R} - \vec{r})\, d\vec{r}$$

$$= \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} \frac{[f(K)]^2}{(2\pi)^3} \sum_{\vec{R}} \iint \gamma_{\vec{r}}(o) e^{i\vec{K}\vec{r}} e^{i\vec{p}(\vec{R}-\vec{r})}\, d\vec{r}\, d\vec{p}$$

La sommation par rapport à $\vec{R}$ introduit une fonction $\sum_{\vec{\tau}} (\vec{p} - 2\pi\vec{\tau})$, $\vec{\tau}$ est un vecteur du réseau réciproque.

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} \frac{[f(K)]^2}{v_o} \sum_{\vec{\tau}} \int \gamma_{\vec{r}}(o) e^{i(\vec{K}-2\pi\vec{\tau})\vec{r}}\, d\vec{r}$$

v_o est le volume occupé par un atome magnétique.

Si on opère sur un corps polycristallin, il faut moyenner sur toutes les directions du vecteur $\vec{K}$ par rapport aux axes du réseau réciproque.

Forme asymptotique de la fonction de corrélation.

Van Hove a montré que pour les grandes distances, la fonction de corrélation instantanée était représentée par la formule :

$$\gamma_R(o) = \frac{v_o\, S(S+1)}{4\pi r_1^2} \frac{e^{-K_1 R}}{R}$$

Cette formule est valable au voisinage de la température de Curie.

$$\frac{T - T_c}{T_c} \ll 1$$

r_1 a les dimensions d'une longueur et K_1 de l'inverse d'une longueur ; r_1 et K_1 permettent de calculer respectivement l'intensité et la portée des corrélations .

Cette formule est analogue à la formule donnée par Ornstein et Zernike pour la fonction de distribution de paires pour les fluides près du point critique [7].

Si on remplace la fonction de corrélation par cette expression dans la formule donnant la section efficace, on trouve :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{2}{3}\left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{S(S+1)}{r_1^2} \sum_{\vec{\tau}} \frac{1}{|\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2 + K_1^2}$$

Remarques sur les paramètres K_1 et r_1. Les paramètres K_1 et r_1 sont liés par la relation :

$$(K_1 r_1)^2 = \frac{\chi_o}{\chi}$$

dans laquelle χ_o est la susceptibilité d'un atome isolé, ($\chi_o = \frac{\mu^2}{3kT}$, μ est le moment magnétique de l'atome), χ la susceptibilité effective par atome.

On peut démontrer cette relation en écrivant l'expression du moment magnétique total :

$$\vec{M} = 2\beta \sum_i \vec{S}_i$$

β est le magnéton de Bohr.

On calcule alors :

$$\langle \vec{M}^2 \rangle - \langle \vec{M} \rangle^2 = N\, 4\, \beta^2 \sum_{\vec{R}} \gamma_{\vec{R}}(o) = 3 k_B T \chi$$

On remplace la sommation par une intégration et $\gamma_{\vec{R}}(o)$ par son expression asymptotique et on trouve la relation donnée (1).

A la température de Curie, la fonction de corrélation s'étend très loin dans l'espace, le paramètre K_1 est nul.

Le paramètre r_1 au contraire varie peu avec la température. L'étude de la fonction $\gamma_{\vec{R}}(o)$ a été effectuée par De Gennes [8], et Elliott-Marshall [9] qui ont calculé les paramètres K_1 et r_1.

Ces calculs ont été effectués dans l'approximation du champ moléculaire par De Gennes, par la méthode de Bethe-Peierls pour des spins classiques par De Gennes et pour des spins 1/2 et 1 par Elliott-Marshall.

Les résultats de ces calculs sont peu différents.

Avec l'approximation du champ moléculaire, De Gennes trouve :

$$r_1^2 = \frac{b^2}{6}$$

$$K_1^2 = \frac{6}{b^2} \frac{\chi_o}{\chi}$$

b est la distance entre voisins magnétiques.

Dans cette approximation, r_1 est indépendant de la température. L'approximation de Bethe donne pour $(r_1^2)_{T_c}$ dans le cas des spins classiques :

$$(r_1^2)_{T_c} = \frac{b^2}{6} \frac{z - 1}{z - 2}$$

z est le nombre des voisins magnétiques.

Evolution dans le temps de la fonction de corrélation.

Van Hove a suggéré qu'une fluctuation d'aimantation évolue dans le temps suivant une équation de diffusion :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = \Lambda \nabla^2 \vec{M}$$

Une onde plane d'aimantation de vecteur d'onde $\vec{K}$ décroit suivant une loi en $e^{-\Lambda K^2 t}$. Le paramètre Λ varie avec la température. La formule donnant la section efficace différentielle $\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon}$ est alors :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\epsilon} = \left(\frac{ge^2}{m_0 c^2}\right)^2 \frac{2}{3\pi\hbar} \frac{S(S+1)}{r_1^2} [f(K)]^2 \sum_{\vec{\tau}} \frac{1}{|\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2 + K_1^2} \frac{\Lambda |\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2}{\omega^2 + \Lambda^2 |\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^4}$$

A la température de Curie, Van Hove et De Gennes ont montré que le temps de relaxation des fluctuations est infini. La diffusion est alors élastique.

De Gennes a calculé les valeurs du paramètre Λ qui intervient dans l'équation de diffusion. Il a montré que les temps de relaxation sont grands donc la diffusion faiblement inélastique [8].

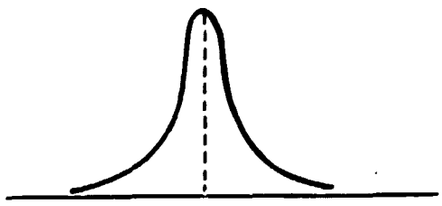
La section efficace est une fonction de l'énergie des neutrons diffusés, elle varie de la façon représentée dans la figure ci-après.

Le maximum de la courbe correspond à un changement d'énergie nul. Pour un petit angle de diffusion θ, l'ordonnée à mi-hauteur de cette courbe correspond à un changement d'énergie approximativement égal à :

---

(1) Cette démonstration implique deux approximations. De Gennes a montré que cette relation est rigoureuse.

$$\Delta E = E \times \frac{2 m \Lambda}{\hbar} \theta^2$$



Energie des neutrons diffusés

Dans le cas de la diffusion par le fer, pour des neutrons incidents de 4.10^{-3} eV, une température supérieure de 50°C à la température de Curie, et un angle de diffusion de 3°, cette quantité varie de 2.10^{-5} à 10^{-4} eV suivant l'hypothèse faite dans le calcul de Λ.

Les changements d'énergie prévus sont donc très faibles et difficiles à détecter.

Le but de notre travail était l'étude de la fonction de corrélation entre les spins $\gamma_{+}^{g}(t)$ dans le fer au voisinage de la température de Curie.

Nous avons étudié la dépendance spatiale de la fonction de corrélation et son évolution dans le temps.

Le choix du fer s'explique aisément. C'est un métal usuel, facile à obtenir dans un état de pureté suffisant. Le moment magnétique par atome est élevé, 2,2 magnétons de Bohr. La section efficace de diffusion magnétique qui varie comme S(S + 1) est donc importante.

Le choix du fer a un autre intérêt. On sait que les électrons porteurs de magnétisme dans les métaux sont considérés suivant deux modèles :

- le modèle de Heisenberg, non polaire.

Dans ce modèle, on suppose qu'il n'existe pas de configurations dans laquelle le nombre d'électrons magnétiques par cellule de Wigner-Seitz est plus grand que le nombre moyen d'électrons magnétiques par atome. Le ferromagnétisme provient alors de l'échange entre les atomes.

- le modèle des bandes de Stoner, polaire.

Dans ce modèle, les électrons magnétiques sont itinérants et participent à la conduction. Le ferromagnétisme provient alors de l'échange intra-atomique.

Les mécanismes de relaxation sont différents dans ces deux modèles. L'étude expérimentale de cette relaxation est alors intéressante pour la compréhension du magnétisme des métaux.

Les expériences ont été effectuées au moyen des neutrons issus de la pile à eau lourde EL2 de Saclay.

REMARQUE I.

Si la température reste voisine de la température de Curie, nous avons vu que la diffusion est concentrée vers l'avant et les pics de Bragg.

Mathématiquement, ceci signifie que K_1 est petit et que chaque terme $\frac{1}{|\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2 + K_1^2}$ décroit rapidement lorsque le vecteur diffusion s'écarte du vecteur $2\pi\vec{\tau}$ correspondant. Autour de chaque pic de Bragg, la contribution des termes autres que le terme $\frac{1}{|\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2 + K_1^2}$ correspondant à ce pic de Bragg est négligeable.

Dans nos expériences, nous avons utilisé de petits angles de diffusion, nous négligeons alors tous les termes en :

$$\frac{1}{|\vec{K} - 2\pi\vec{\tau}|^2 + K_1^2} \quad (\vec{\tau} \neq 0)$$

Cette approximation est légitime car nous sommes restés au voisinage de la température de Curie $T - T_c | \leq 80°$ C et la valeur maximum du vecteur diffusion est 0,17 $(\text{Å})^{-1}$ ce qui est bien inférieur à la valeur 3,1 $(\text{Å})^{-1}$ qui correspond au premier pic de Bragg.

Donc par la suite nous écrirons la formule de Van Hove sous la forme

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\varepsilon} = \left(\frac{ge^2}{m_e c^2}\right)^2 \frac{2}{3\pi\hbar} \frac{S(S+1)}{r_1^2} \frac{k'}{k} \frac{1}{K^2 + K_1^2} \frac{\Lambda K^2}{\omega^2 + \Lambda^2 K^4}$$

étant entendu que cette formule n'est applicable qu'aux petits angles de diffusion.

Nous avons posé $f(K) = 1$, puisque K est petit.

REMARQUE II.

On sait qu'on peut caractériser l'énergie d'un neutron par son énergie, sa vitesse, sa longueur d'onde, son vecteur d'onde, ou le temps qu'il met à parcourir une distance donnée qu'on appelle son temps de vol. Nous donnons ici quelques relations entre ces quantités (dans le cas non relativiste).

E énergie ; $\vec{k}$ vecteur d'onde ; λ longueur d'onde ; t temps de vol.

$$E = \frac{\hbar^2}{2m} k^2 \quad , \quad k = \frac{2\pi}{\lambda}$$

$t = 253\lambda$ (si t est mesuré en μs/m et λ en Å)

$E = \frac{5227}{t^2}$ (si t est mesuré en μs/m et E en eV)

Ainsi un neutron dont l'énergie est $2,5.10^{-2}$ eV a une vitesse égale à 2 200 m/s, une longueur d'onde de 1,8 Å, un vecteur d'onde de 3,5 $(Å)^{-1}$ et un temps de vol de 457 μs/m.

CHAPITRE II

ÉTUDE DE LA DÉPENDANCE SPATIALE DE LA FONCTION DE CORRÉLATION

Dans toute cette étude, nous négligeons la variation de la fonction de corrélation avec le temps ; nous supposons qu'à toutes les températures étudiées, le temps de relaxation des fluctuations d'aimantation est infiniment long, donc la diffusion parfaitement élastique. L'effet de l'existence de changements d'énergie dans la diffusion s'introduit comme une correction que nous pouvons effectuer, puisque nous avons, dans une deuxième série d'expériences, mesuré ces changements d'énergie.

Si on suppose la diffusion parfaitement élastique, la formule de Van Hove devient :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{C}{r_1^2} \frac{1}{K^2 + K_1^2}$$

$$C = \frac{2}{3}\left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 S(S+1) \ , \quad K^2 = \frac{4\pi^2\theta^2}{\lambda^2}$$

où θ est l'angle de diffusion supposé petit.

L'étude de la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ permet la détermination des paramètres K_1 et r_1 qui définissent le comportement spatial de la fonction de corrélation.

Cette étude de $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ peut se faire :

- soit en envoyant sur l'échantillon de fer des neutrons de longueur d'onde fixe et en étudiant la distribution angulaire des neutrons diffusés. On fait alors varier K en faisant varier θ. Cette méthode est celle utilisée par Wilkinson-Shull-Gersh [10, 11] ;
- soit en étudiant la section efficace de diffusion à un angle constant pour différentes longueurs d'onde des neutrons. On fait alors varier K par l'intermédiaire de λ. Nous avons utilisé cette méthode dans nos expériences [12].

Comme l'angle de diffusion reste fixe pendant nos mesures, nous remplacerons par la suite le symbole $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ par σ^{Ω}.

Principes de nos expériences.

Un faisceau pulsé de neutrons de diverses vitesses comprises entre 0 et v_m tombe sur un échantillon de fer chauffé à des températures voisines de la température de Curie.

Les neutrons sont diffusés par le fer à un petit angle fixe. On étudie par une méthode de temps de vol l'intensité des neutrons diffusés, en fonction de leur longueur d'onde.

1) Etude à la température de Curie.

A la température de Curie, la théorie prévoit que $K_1 = 0$. La section efficace est alors $\sigma^{\Omega} = \frac{C}{r_1^2}\frac{\lambda^2}{4\pi^2\theta^2}$. Elle est proportionnelle au carré de la longueur d'onde. Nous l'avons vérifié en étudiant l'intensité des neutrons diffusés en fonction de la longueur d'onde, ramenée à un même nombre de neutrons incidents.

D'autre part, la mesure de la valeur absolue de la section efficace permet la détermination de $(r_1)_{T_c}$. Nous avons fait une détermination de ce paramètre.

2) Etude à une température T voisine de T_c.

$$\sigma^{\Omega} = \frac{C}{r_1^2} \frac{1}{K^2 + K_1^2}$$

La mesure de la section efficace à différentes longueurs d'onde permet de vérifier cette loi de variation avec la longueur d'onde et de déterminer les paramètres K_1 et r_1 qui interviennent dans la formule

Nous n'avons pas procédé cependant exactement de cette façon.

En effet, la mesure de la valeur absolue de la section efficace est assez imprécise. Par contre, nous pouvons déterminer avec une très bonne précision les variations relatives de la section efficace avec la longueur d'onde ou avec la température. Il est donc préférable d'utiliser, dans la mesure du possible, des variations relatives.

Nous pouvons déterminer ainsi :

- la valeur de $(K_1)_T$;
- la variation relative de r_1 avec la température.

Formons en effet, le rapport des intensités des neutrons de longueur d'onde λ donnée, diffusés pendant le même temps à la température de Curie et à une température T.

$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{\sigma_{Tc}^{\Omega}(\lambda)}{\sigma_T^{\Omega}(\lambda)} = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{Tc}} \left| 1 + \frac{K_1^2}{4\pi^2\theta^2} \lambda^2 \right|$$

Ce rapport a une variation linéaire en fonction du carré de la longueur d'onde. Nous l'avons vérifié.

L'ordonnée à l'origine de la droite représentant cette variation est égale à $(r_1^2)_T / (r_1^2)_{Tc}$ et la pente de cette droite permet de déterminer la valeur de K_1 à la température T.

Nous évitons donc d'introduire dans la mesure de ces deux quantités l'erreur sur la mesure de la valeur absolue de la section efficace.

DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE EXPERIMENTAL.

Schéma général (fig. 1).

Un faisceau pulsé de neutrons issus d'un spectromètre mécanique tombe sur un échantillon de fer chauffé. Les neutrons diffusés par le fer à un angle de quelques degrés sont détectés dans un ensemble de compteurs.

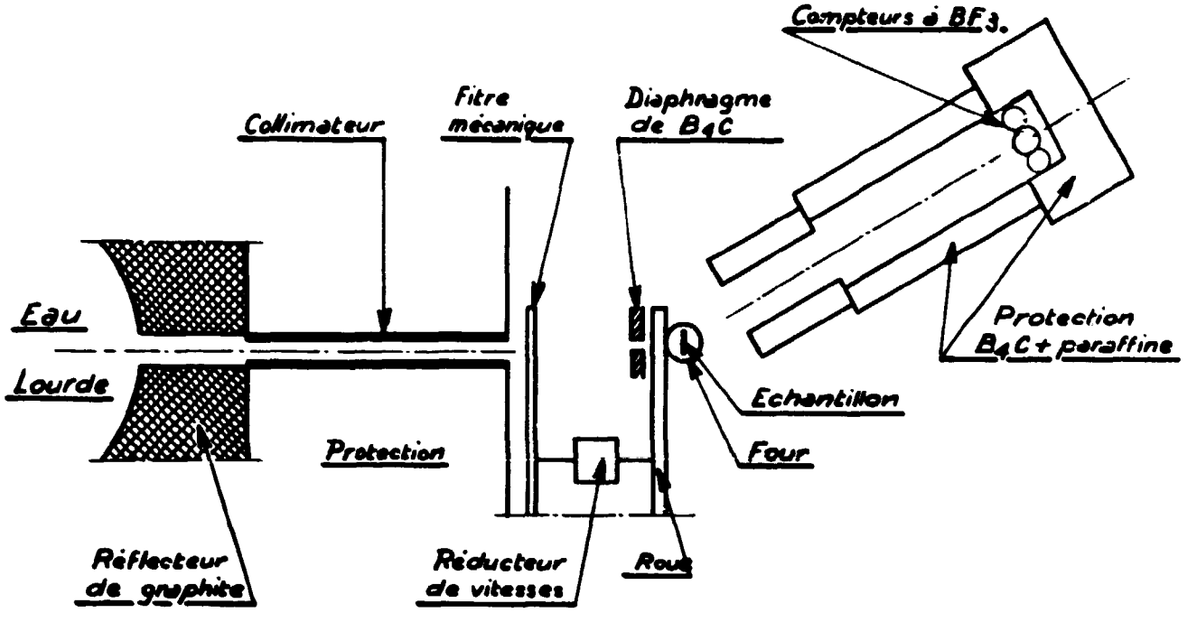


Fig. 1 - Schéma général du dispositif expérimental.

Un système électronique permet de mesurer le nombre de neutrons ayant un temps de vol donné, c'est-à-dire de mesurer l'intensité des neutrons diffusés en fonction de leur longueur d'onde.

A - Description du spectromètre à temps de vol.

Principe de la spectrométrie à temps de vol.

Un faisceau collimaté de neutrons tombe sur la partie périphérique d'une roue tournante faite d'un matériau absorbant les neutrons. La partie périphérique de la roue est percée d'une fente. Les neutrons ne peuvent donc traverser la roue qu'au moment où la fente passe à l'endroit du faisceau. L'instant de passage de la fente mobile devant le faisceau est repéré par un signal optique. On laisse aux neutrons une base de parcours suffisante pour que, partis tous de la fente au même instant, ils arrivent sur le détecteur à des instants différents suivant leur vitesse. Un sélecteur en temps classe les neutrons dans des canaux correspondant aux divers temps de vol.

Description de la partie mécanique. [13].

Sa conception est due à Monsieur Netter.

La roue a 1 m de diamètre ; elle est en acier. Elle porte une couronne périphérique faite d'un mélange de carbure de bore et d'araldite polymérisée à froid. Ce mélange a l'avantage d'arrêter tous les neutrons dont l'énergie est inférieure à environ 1 000 eV.

La roue tourne à une vitesse de 3 000 tours par minute. La roue porte un petit miroir sur le même rayon que la fente. Lorsque la fente passe à l'endroit du faisceau, le miroir réfléchit un pinceau lumineux dans un photomultiplicateur. On a donc un signal électrique à chaque passage de la fente devant le faisceau.

Résolution.

L'émission des neutrons du spectromètre n'est pas instantanée. La roue laisse passer partiellement le faisceau pendant un intervalle de temps Δt.

L'intensité des neutrons émis en fonction du temps est la figure de résolution. Suivant les dimensions comparées de la fente et du faisceau, on a différentes figures de résolution. Dans nos expériences, la figure de résolution est un triangle dont la largeur à mi-hauteur est 100 μs.

Filtre mécanique. [14]

Nous avons adjoint au spectromètre mécanique un dispositif qui élimine du faisceau les neutrons dont la vitesse est supérieure à une valeur réglable v_M.

Le filtre mécanique est composé d'un disque situé dans un plan frontal, à 80 cm en avant de la roue, et tournant à une vitesse moitié de la vitesse de la roue. Ce disque porte deux secteurs de cadmium opposés par le sommet. Les neutrons qui rencontrent du cadmium sur leur trajet sont éliminés du faisceau (1); parmi ceux qui traversent le filtre, une fraction est absorbée par le bore de la roue. Finalement ne traversent l'ensemble que ceux dont le temps de vol est supérieur à une valeur t_m, donc la vitesse inférieure à une valeur v_M. On choisit la valeur de v_M, en réglant la position angulaire des secteurs de cadmium.

B - Description du sélecteur en temps électronique à 100 canaux.

Il est dû à Messieurs Guillon et Thenard [15], avec la collaboration de Monsieur Katjard.

Le sélecteur électronique compte le nombre de neutrons dont le temps de vol est compris entre $(n-1)\tau$ et $n\tau$.

τ est la largeur d'un canal, (2)
n est un entier compris entre 1 et 100.

Le sélecteur fonctionne par cycles de durée $100\,\tau$, le départ de chaque cycle étant commandé par l'impulsion qui repère le passage de la fente devant le faisceau.

Le sélecteur est composé essentiellement d'un ensemble de bascules. Une bascule est un système susceptible de deux états d'équilibre a et b. Elle comprend trois bornes, 1, 2 et 3. Toute impulsion sur la borne 1 fait passer la bascule à l'état a, toute impulsion sur la borne 2 fait passer la bascule à l'état b et fournit une impulsion sur la borne 3.

---

(1) Rappelons que la section efficace d'absorption des neutrons par le cadmium présente un maximum pour une énergie des neutrons de 0,176 eV. Cette section efficace est supérieure à 1 000 barns pour des neutrons d'énergie inférieure à 0,3 eV et décroît rapidement lorsque l'énergie des neutrons croît au-delà de cette valeur. Une faible épaisseur de cadmium arrête donc tous les neutrons d'énergie inférieure à quelques dixièmes d'eV.

(2) Dans notre appareil, τ peut prendre des valeurs comprises entre 10 et 160 μs.

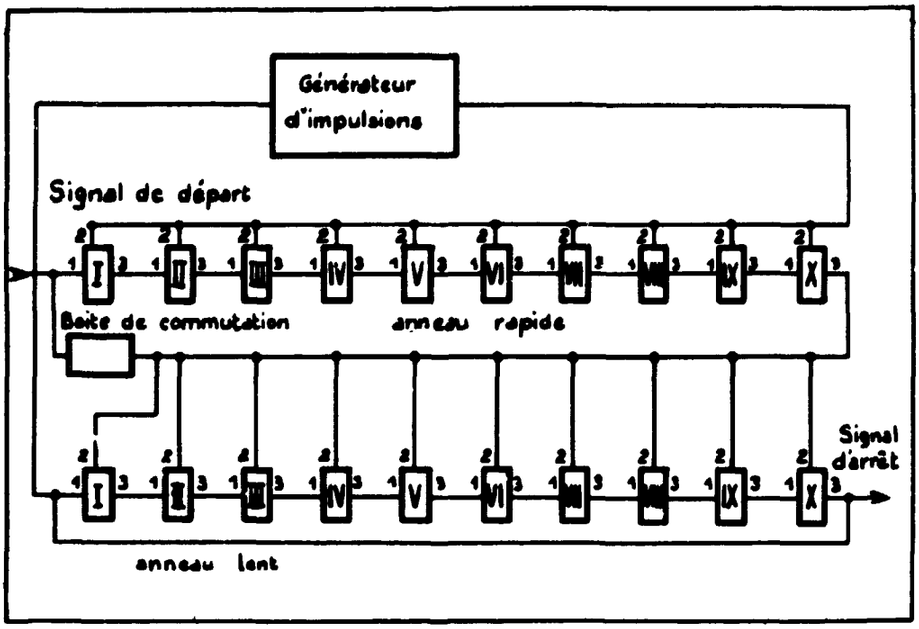


Fig. 2 - Schéma du sélecteur en temps.

Anneau rapide.

L'anneau rapide comprend 10 bascules dont les bornes sont reliées entre elles de la façon indiquée dans la figure 2.

Toutes les bornes 2 sont reliées à un générateur d'impulsions de période τ.

A l'instant 0, une des bascules que nous appellerons bascule I est à l'état a, toutes les autres à l'état b.

L'arrivée au temps τ d'une impulsion du générateur fait passer la bascule I à l'état b. L'impulsion qui en résulte sur la borne 3 de la bascule I fait passer la bascule suivante II à l'état A.

L'arrivée de l'impulsion suivante du générateur au temps 2τ fait passer la bascule III à l'état a et la bascule II revient à l'état b. etc.

Anneau lent.

C'est un ensemble de bascules identique au précédent, mais les bornes 2 sont reliées à la borne 3 de la bascule X de l'anneau rapide, borne qui fournit une impulsion de période 10τ.

On peut donc repérer un canal par le numéro de la bascule de l'anneau lent et le numéro de la bascule de l'anneau rapide qui sont dans l'état a.

Arrêt et départ des cycles.

On arrête les anneaux après la fin d'un cycle : la borne 3 de la bascule X de l'anneau lent est reliée à un dispositif qui arrête le générateur d'impulsions et remet toutes les bascules à l'état a chaque fois que la bascule X de l'anneau lent revient à l'état a. Le lancement des cycles est commandé par l'impulsion du photomultiplicateur. Un signal en corrélation avec cette impulsion met en marche le générateur à impulsions et fait passer à l'état b les bascules I des deux anneaux.

Comptage des neutrons.

Chaque neutron dont le temps de vol est situé à l'intérieur d'un canal donné, est compté sur un numérateur correspondant à ce canal. Le numérateur est attaqué par un système à triples coïncidences ; grâce à ce système, un coup n'est enregistré dans un canal que lorsque les bascules de l'anneau lent et de l'anneau rapide correspondant à ce canal sont dans l'état a.

C - Faisceau de neutrons.

Les neutrons proviennent de la cuve contenant l'eau lourde de la pile à travers un collimateur prismatique.

Le collimateur est en béton barytiné. Il a 250 cm de longueur. Le canal par lequel passent les neutrons a les dimensions suivantes : 110 x 50 mm sur la face du collimateur la plus proche de la pile ; 28 x 50 mm sur l'autre face.

De plus, un bloc de carbure fait d'un mélange de carbure de bore et d'araldite percé d'une fente de 15 x 50 mm limite les dimensions du faisceau à l'endroit de la roue du spectromètre mécanique.

D - Détecteurs.

Les détecteurs sont des compteurs proportionnels remplis de trifluorure de bore gazeux, sous une pression de 660 mm de mercure.

Le bore des compteurs est enrichi à 95 pour cent en isotope de masse 10. Les neutrons y sont dé-

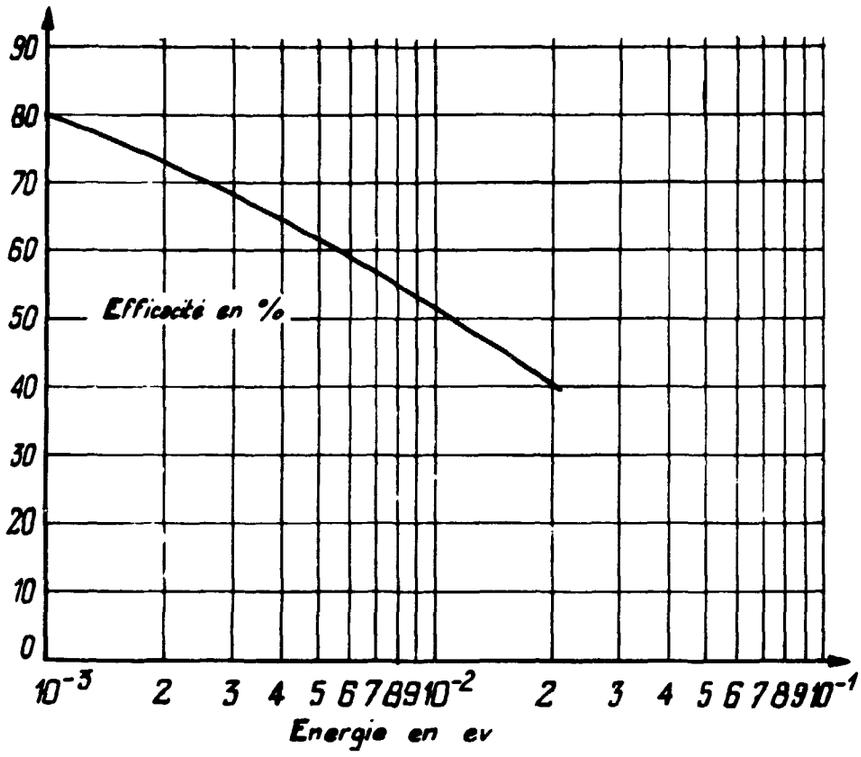


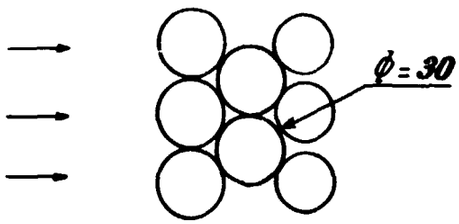
Fig. 3 - Efficacité calculée de l'ensemble des compteurs en fonction de l'énergie des neutrons.

tectés grâce à la réaction $B^{10}(n, \alpha)$. L'énergie libérée dans cette réaction est 2,5 MeV. La section efficace de B^{10} pour cette réaction est 4 010 barns pour des neutrons de vitesse 2 200 m/s, et elle est inversement proportionnelle à la vitesse des neutrons.

Les compteurs sont cylindriques, leur paroi est en laiton de 0,5 mm d'épaisseur. Nous avons utilisé un ensemble compact de 8 compteurs. Les neutrons les traversent perpendiculairement à l'axe des cylindres.

Un tel ensemble a une efficacité voisine de 70 pour cent pour des neutrons de quelques Å de longueur d'onde. L'efficacité varie peu avec l'énergie des neutrons (fig. 3).

Toutes les coques des compteurs sont reliées entre elles et portées à une haute tension négative de - 2 500 V. Les fils centraux sont mis à la masse par l'intermédiaire d'une résistance de 50 kΩ. Les électrons libérés par l'ionisation dans le fluorure de bore sont recueillis sur ces fils centraux.



Les impulsions ainsi produites sont transmises à un pré-amplificateur, puis à un amplificateur à bande passante de 2 méga-cycles. Elles sont ensuite discriminées, et analysées par le sélecteur en temps.

Les amplificateurs, discriminateurs, alimentation haute tension et les échelles sont de type standard C.E.A.

E - Protection des compteurs.

Les compteurs doivent être soigneusement protégés des neutrons autres que ceux provenant du diffuseur. Ils sont pour cela placés dans un manchon de 4 cm d'épaisseur empli de carbure de bore et entouré d'une chemise de paraffine de 15 cm d'épaisseur. Le manchon de carbure et la paraffine sont percés d'une fenêtre pour l'entrée des neutrons. La paraffine a pour but de ralentir les neutrons rapides. Le bore du carbure les absorbe ensuite. De plus, un tuyau protège des neutrons parasites l'espace compris entre les compteurs et le diffuseur. Ce tuyau contient une épaisseur de paraffine de 5 cm à l'extérieur et de 3 cm de carbure de bore à l'intérieur.

F - Echantillon de fer et four. (fig. 4)

L'échantillon est en fer Armco polycristallin. Nous l'avons chauffé sous vide pour éviter son oxydation.

L'échantillon de fer est un cylindre de 11 cm de longueur et 2,3 cm de diamètre. Sa partie centrale, soumise au flux, est amincie jusqu'à l'épaisseur voulue, 5 - 3,5 - ou 2,5 mm suivant les expériences.

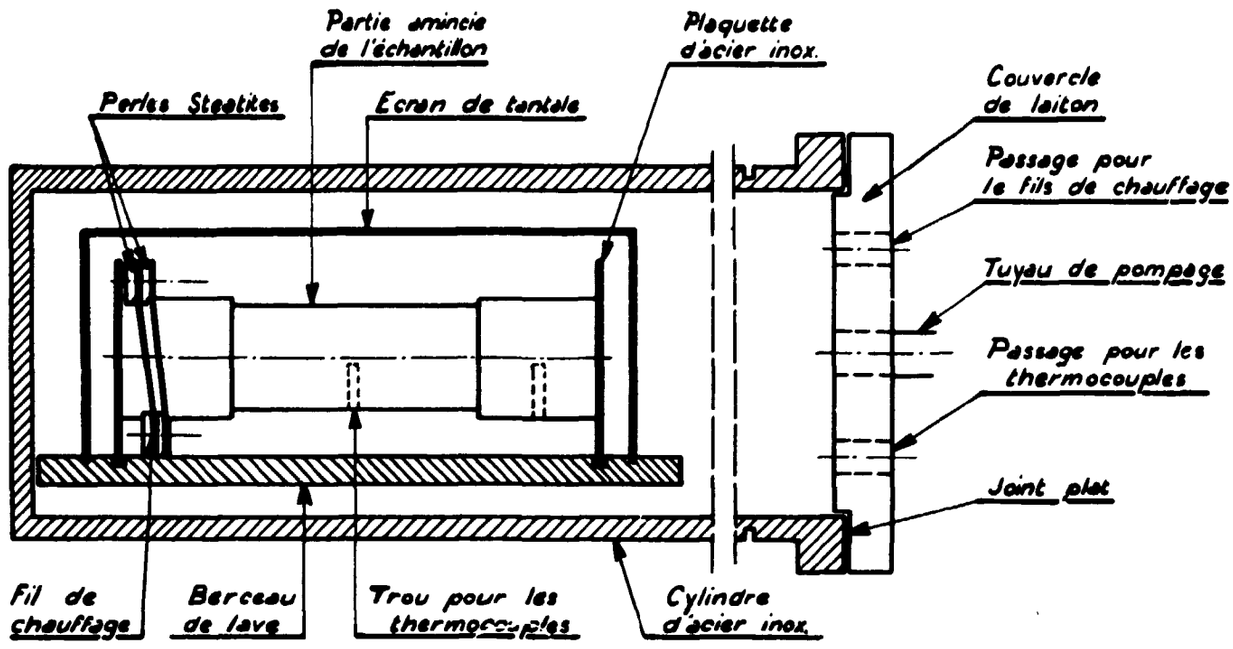


Fig. 4 - Echantillon de fer et four.

L'échantillon de fer est chauffé essentiellement par ses extrémités, par le rayonnement d'un fil enroulé sur des perles de stéatite. L'ensemble repose sur un berceau de lave. Le tout est placé dans un cylindre d'acier inoxydable dans lequel règne un vide dynamique de 10^{-2} mm de mercure. Les parois du cylindre ont 5 mm d'épaisseur ; elles sont amincies à 5/10 mm dans les parties traversées par les neutrons.

Un écran de tantale protège le cylindre extérieur du rayonnement du fil de chauffage.

Nous avons adopté comme fil de chauffage un fil de tungstène, qui s'est avéré, de diverses substances essayées, résister le mieux à des temps de chauffage prolongés. Le fil utilisé à 5/10 mm de diamètre.

Un couvercle de laiton ferme l'enveloppe cylindrique. Sur ce couvercle sont soudés à l'étain des passages pour les thermocouples et les fils d'amenée du courant de chauffage. Un joint plat de caoutchouc assure l'étanchéité. Le couvercle est refroidi par un serpentin de cuivre dans lequel circule de l'eau.

La température est mesurée par des thermocouples chromel alumel de 5/10 mm de diamètre.

Le courant de chauffage est du courant alternatif à 50 périodes. La tension 110 V du secteur est d'abord stabilisée, puis rendue réglable par un autotransformateur, et enfin réduite d'un facteur 5 par un transformateur. La puissance maximum dépensée dans le four est de 250 W, pour la température de 850 °C.

Nous avons au préalable, étudié l'homogénéité de la température dans la partie de l'échantillon soumise au flux. Nous avons soudé électriquement 4 fils de constantan en divers points de la partie amincie de l'échantillon. Chacune de ces soudures forme un thermocouple. La différence de potentiel qui apparaît entre deux fils de constantan permet la mesure directe de la différence de température qui existe entre les deux soudures correspondantes. La plus grande différence de température était égale à 2 degrés à la température de 750°C.

G - Valeurs des paramètres réglables de l'appareillage dans ces expériences.

Base de parcours des neutrons	: 282 cm
Angle de diffusion	: 3°
Largeur des canaux du sélecteur en temps	: 80 µs
Vitesse maximum des neutrons	: v_M = 1 500 m/s

RESULTATS.

Remarques générales. Nous mesurons expérimentalement le nombre de neutrons détectés par les compteurs pendant un intervalle de temps donné, dont les temps de vol sont compris entre $(n-1)\tau$ et $n\tau$.

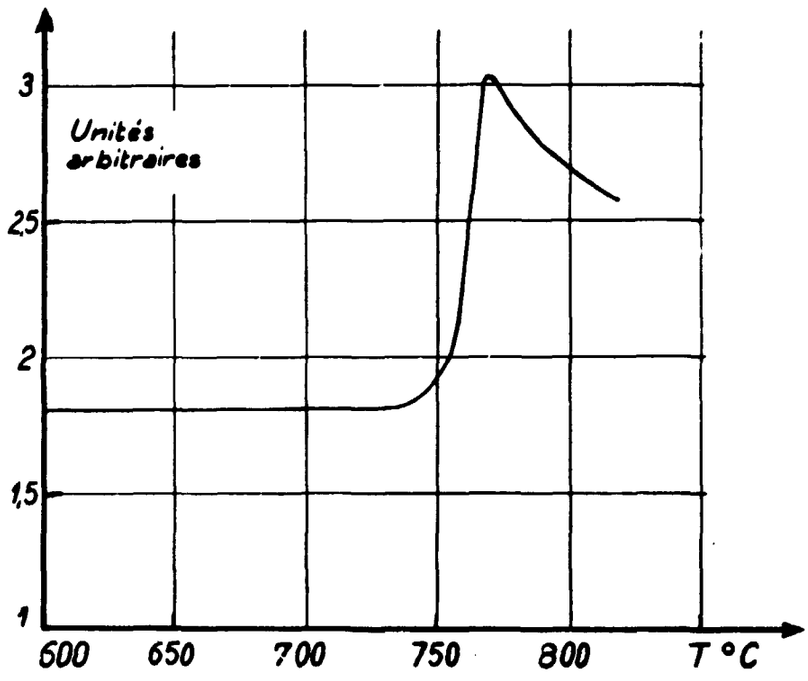


Fig. 5 - Variation en fonction de la température du nombre de neutrons détectés par les compteurs.

Neutrons parasites.

Parmi les neutrons détectés, certains sont dus à d'autres causes que la diffusion critique dans le fer. Ces neutrons parasites comprennent :

- des neutrons rapides qui traversent la protection des compteurs. Ces neutrons ne sont pas pulsés et se répartissent également dans tous les canaux du sélecteur en temps.
- des neutrons lents pulsés par le spectromètre. Ces neutrons sont dus à la diffusion par les parois du four, par l'air, ou à la diffusion incohérente dans l'échantillon de fer lui-même.

On doit retrancher du spectre mesuré la contribution des neutrons parasites. Cette séparation est aisée. On constate que le nombre total de neutrons détectés par les compteurs pendant un intervalle de temps donné, varie très peu avec la température entre la température ambiante et 730°C

Pour séparer la contribution des neutrons parasites, on retranche alors du nombre de neutrons diffusés à la température T le nombre de neutrons diffusés à une température de l'ordre de 700°C, avant l'apparition de la diffusion critique. On néglige en faisant cela, la variation du nombre de neutrons parasites entre 700°C et la température T, ce qu'on peut faire puisque ce nombre varie très peu avec la température.

Normalisation.

Nous avons dit que notre méthode consiste à comparer les intensités des neutrons diffusés pendant le même temps, à la température de Curie et à la température T.

Il est légitime d'utiliser le temps comme facteur de normalisation à deux conditions :

- que la puissance de la pile reste constante pendant la durée des mesures ;
- que l'efficacité de l'ensemble de comptage reste également constante.

Le mouvement propre dû aux neutrons rapides est un moyen de contrôler la constance de ces termes, car il est proportionnel au produit (puissance de la pile) x (efficacité de l'ensemble de comptage).

On a une mesure du mouvement propre dû aux neutrons rapides dans les canaux qui correspondent aux vitesses de neutrons $v > v_M$, puisque le filtre mécanique élimine du faisceau incident les neutrons de vitesse $v > v_M$. Par la suite, lorsque nous parlerons de comparaison d'intensités diffusées pendant des temps égaux, il sera sous-entendu que nous nous ramenons en fait à un même nombre de neutrons rapides comptés.

A - Etudes effectuées à la température de Curie.

Cette étude nous a permis de montrer que la section efficace à cette température est proportionnelle au carré de la longueur d'onde, donc $(K_i)_{T_c}$ nul.

La figure 6 représente le spectre $I_{T_c}(\lambda)$ des neutrons diffusés par l'échantillon de 5 mm d'épaisseur. en fonction de la longueur d'onde. La contribution des neutrons parasites est retranchée.

On remarque une brusque augmentation de l'intensité au-delà de 4 Å environ. Cette augmentation est due à un effet de filtre dans l'échantillon de fer. La section efficace du fer décroit brusquement pour les longueurs d'onde supérieures à 4,05 Å. Nous parlerons des effets de filtre à propos du filtre de béryllium.

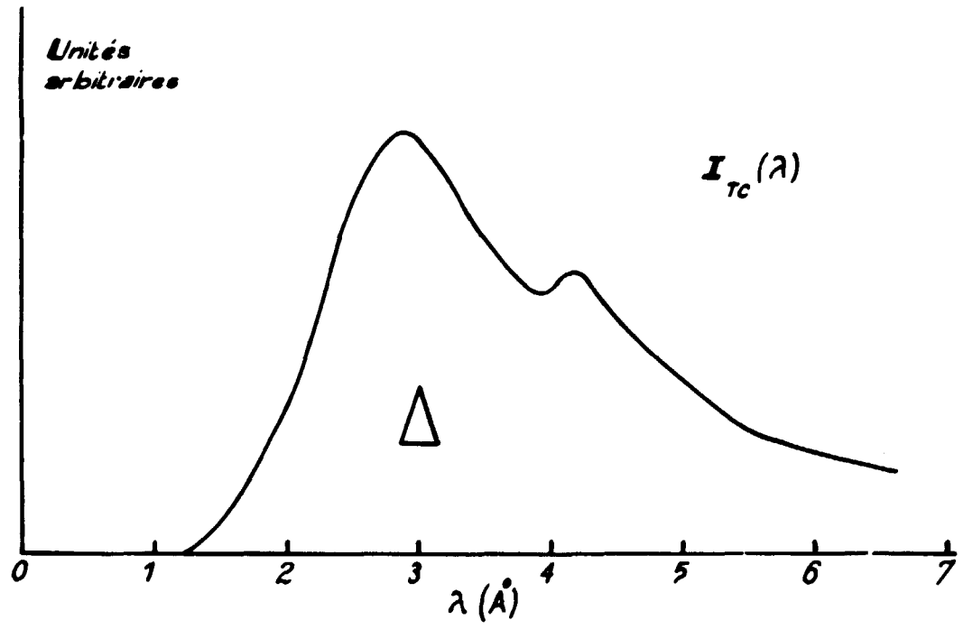


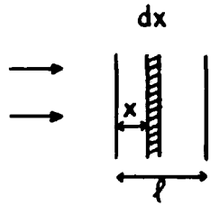
Fig. 6 - Spectre des neutrons diffusés par le fer à la température de Curie.

Diffusion multiple.

Des neutrons peuvent être diffusés plus d'une fois dans l'échantillon. On peut étudier le spectre des neutrons diffusés une seule fois ; on doit donc choisir l'épaisseur l de l'échantillon assez petite pour que la diffusion multiple ne perturbe pas la forme du spectre.

On peut avoir une estimation du nombre de neutrons diffusés plusieurs fois. On admet que tous les neutrons, diffusés ou non, traversent la même épaisseur l_o de fer. Il est possible de faire cette hypothèse car la diffusion critique est une diffusion en avant.

Soit σ_t la section efficace totale de diffusion critique.



Le nombre N_2 de neutrons diffusés deux fois ou plus est :

$$N_2 = N_o n\sigma_t \int_o^{l_o} e^{-n\sigma_t x} \left[1 - e^{-n\sigma_t (l-x)}\right] dx = N_o \left[1 - e^{-n\sigma_t l_o} (1 + n\sigma_t l_o)\right]$$

N_o est le nombre de neutrons incidents ;
n le nombre d'atomes de fer par cm^3.

Le nombre total de neutrons diffusés est :

$$N_1 = N_o \left[1 - e^{-n\sigma_t l_o}\right]$$

Les expériences de Squires donnent σ_t = 5 barns, pour un spectre de neutrons dont la longueur d'onde moyenne est de 7 Å. En utilisant cette valeur, on trouve :

$$\frac{N_2}{N_1} = 0,1 \quad \text{pour } l_o = 5 \text{ mm}$$

Ce calcul nous a indiqué le choix d'une première valeur de 5 mm pour l'épaisseur de l'échantillon. Mais il ne nous donne que la proportion des processus multiples moyennée sur tous les angles de diffusion. A un angle de diffusion donné, nous ne savons quelle est cette proportion. Aussi avons-nous fait une étude expérimentale de la diffusion multiple. Nous avons comparé les formes des spectres des neutrons diffusés par deux échantillons de fer portés à la température de Curie, l'un de 5 mm, l'autre de 2, 5 mm d'épaisseur. Nous avons tenu compte de la différence entre les transmissions des neutrons par les deux échantillons.

Les deux spectres ont la même variation avec la longueur d'onde pour les longueurs d'onde inférieures à 5, 5 Å. Leur forme diffère progressivement au-delà de cette longueur d'onde. Nous attribuons

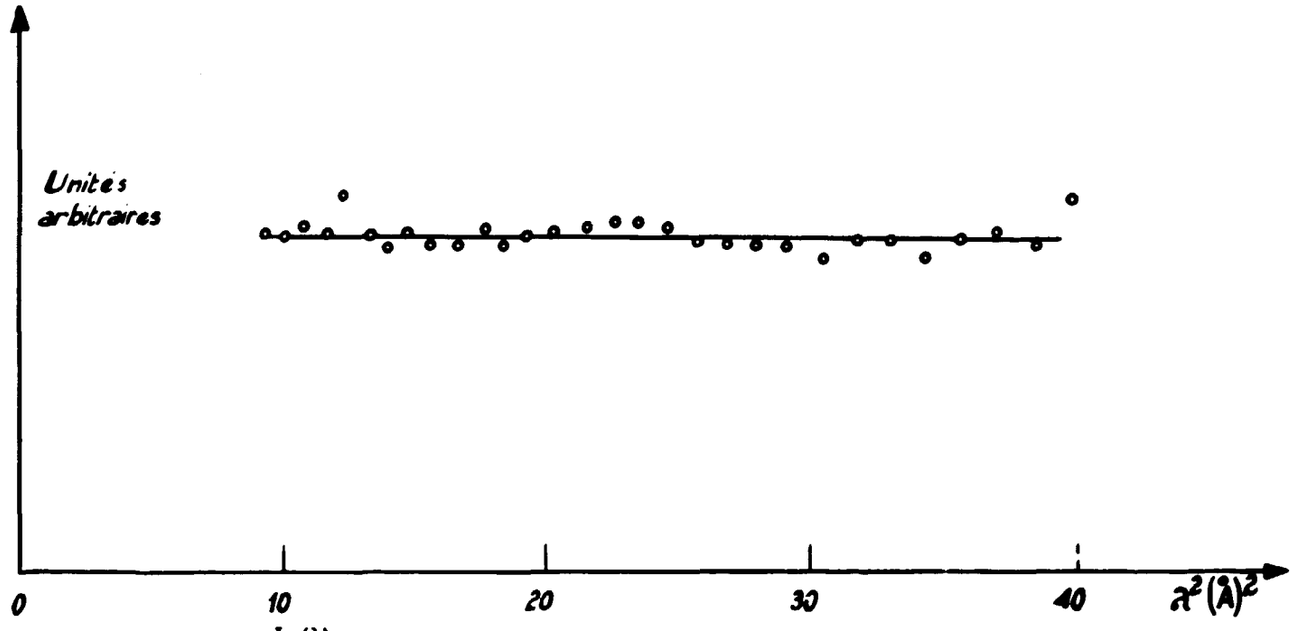


Fig. 7 - $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{S(\lambda)\times\lambda^2}$ en fonction du carré de la longueur d'onde (échantillon de 2 mm, 5).

cette différence à la diffusion multiple. Il est normal que l'effet de celle-ci ne se manifeste qu'au-delà d'une certaine longueur d'onde puisque la section efficace croit avec la longueur d'onde.

Mesure du spectre des neutrons incidents.

Pour mesurer le spectre des neutrons incidents, on place les compteurs dans le faisceau incident, de façon que la base de parcours des neutrons reste la même.

L'intensité est trop forte lorsque la pile est à pleine puissance, à 2 000 kW, les pertes de comptage sont prohibitives. Nous avons mesuré le spectre des neutrons incidents en profitant d'une marche de la pile à une puissance de 60 kW.

Nous mesurons le spectre des neutrons incidents $S(\lambda)$ en fonction de la longueur d'onde, et nous le comparons au spectre des neutrons diffusés par le fer chauffé à la température de Curie. Nous évitons d'avoir à tenir compte, dans cette comparaison, de la transmission des neutrons à travers l'échantillon et le four, en mesurant le spectre des neutrons incidents avec le four en place.

Résultats. Nous formons le rapport : $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{S(\lambda)\times\lambda^2}$. Cette quantité est proportionnelle à : $\frac{\sigma^{\Omega}_{Tc}(\lambda)}{\lambda^2}$

Pour l'échantillon de 5 mm, cette quantité est constante pour les longueurs d'onde inférieures à 5, 5 Å. Pour l'échantillon de 2, 5 mm, cette constance se prolonge jusqu'à 6, 5 Å au moins (fig. 7).

Nous vérifions donc qu'à la température de Curie, la section efficace est proportionnelle au carré de la longueur d'onde.

Nous pouvons assigner une limite supérieure au paramètre $(K_1)^2_{Tc}$.

$$(K_1^2)_{Tc} \leqslant (2 \times 10^{-4}) \ (\text{Å})^{-2}$$

ce qui conduit à des portées au moins égales à 70 Å.

Valeur de $(r_i)_{Tc}$.

Nous avons fait une estimation de la valeur absolue de la section efficace σ^{Ω}_{Tc}. On peut en tirer $(r_1)_{Tc}$ d'après :

$$\sigma^{\Omega}_{Tc} = \frac{C}{(r_1^2)_{Tc}} \quad \frac{\lambda^2}{4\pi^2\theta^2} \quad , \quad C = \frac{2}{3}\left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 S(S+1)$$

Le spectre des neutrons incidents est un spectre étroit obtenu grâce au sélecteur mécanique décrit dans le chapitre III. La longueur d'onde incidente moyenne est 4, 92 Å.

Nous avons mesuré la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ pour 2 angles de diffusion :

$$\theta_1 = 3^\circ \quad , \quad \theta_2 = 4^\circ 15' \quad (\theta_2^2 = 2\,\theta_1^2)$$

On trouve, pour des neutrons de 5 Å :

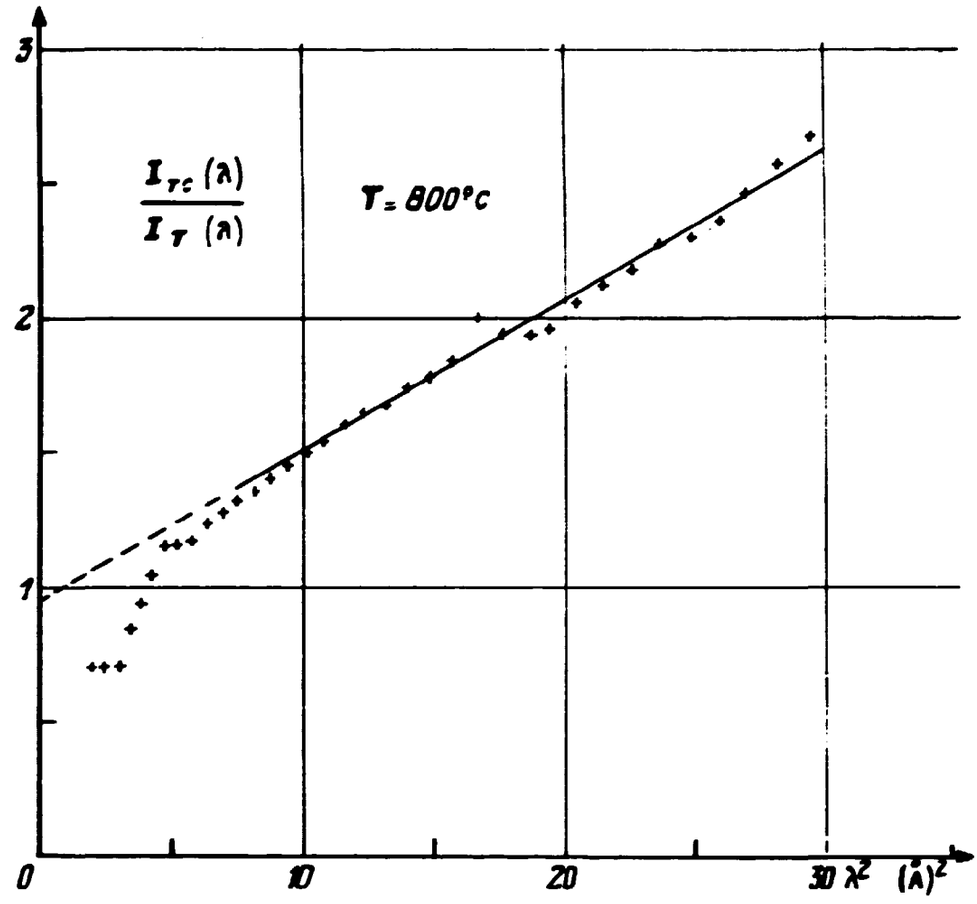


Fig. 8 - Variation en fonction du carré de la longueur d'onde du rapport $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ pour T = 800°C.

$\frac{d\sigma}{d\Omega}$ = 40,3 barn/stéradian pour $\theta_1 = 3°$; $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ = 19 barn/stéradian pour $\theta_2 = 4° 15'$.

Le rapport de ces deux quantités est 2,12, en bon accord avec la valeur théorique 2 prévue d'après la formule écrite ci-dessus.

On en déduit :

$$(r_1)_{Tc} = 1,46 \pm 0,17 \text{ Å}$$

B - Etudes effectuées à des températures $T > T_c$

On mesure le spectre $I_T(\lambda)$ des neutrons diffusés par le fer à une température $T > T_c$.

On forme le rapport :

$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$$

$I_{Tc}(\lambda)$ est le spectre des neutrons diffusés pendant le même temps par le fer à la température de Curie.

$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{\sigma_{Tc}^{\Omega}(\lambda)}{\sigma_T^{\Omega}(\lambda)} = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{Tc}} \left[1 + \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2 \theta^2} \right]$$

La figure 8 représente la variation de ce rapport en fonction du carré de la longueur d'onde pour une température T égale à 800°C.

On constate que :

1) la variation de ce rapport est bien linéaire, comme le prévoit la théorie, pour les longueurs d'onde supérieure à 3 Å ;

2) l'ordonnée à l'origine de la droite est très voisine de 1, donc r_1 varie lentement avec la température.

Calcul de K_1.

La pente de la droite, p, est reliée à K_1 par la relation :

$$p = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}} \frac{K_1^2}{4\pi^2\theta^2}$$

Pour calculer K_1, nous avons admis que r_1^2 est inversement proportionnel à la température absolue. La variation de r_1 étant petite, cette hypothèse n'affecte pas les résultats obtenus pour K_1:

$$p = \frac{T_c}{T} \frac{K_1^2}{4\pi^2\theta^2}$$

On obtient ainsi les valeurs de K_1 à différentes températures, la température maximum étudiée est 820° C (T - T_c = 50°C).

Corrections à effectuer.

1) Correction due à l'étendue des compteurs.

Les compteurs représentent un angle solide qui n'est pas infiniment petit. On mesure donc une section efficace moyennée sur l'angle solide. Nous calculons dans l'appendice I la façon d'effectuer cette correction. Nous donnons ici le résultat des calculs.

$$\frac{I_{T_c}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}} \frac{\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2 + \frac{K_1^2\lambda^2}{4\pi^2}}}{\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2}} \times \frac{\text{Arc tg} \dfrac{y_o}{L\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2}}}{\text{Arc tg} \dfrac{y_o}{L\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2 + \frac{K_1^2\lambda^2}{4\pi^2}}}}$$

$2\,y_o$ est la dimension horizontale de la fenêtre d'entrée des compteurs ;
$2\,x_o$ la dimension verticale ;
L la distance du diffuseur aux compteurs ;
$\Delta\theta = \frac{x_o}{L}$

On opère alors par approximations successives. On détermine une première valeur de K_1 par la simple formule :

$$\frac{I_{T_c}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}} \left| 1 + \frac{K_1^2\lambda^2}{4\pi^2\theta^2} \right|$$

On calcule alors la valeur du rapport $I_{T_c}(\lambda) / I_T(\lambda)$ d'après la formule complète et on la compare à la valeur expérimentale. On en déduit une nouvelle valeur de K_1. En principe on recommence, mais il est suffisant de s'arrêter à ce stade.

2) Correction due à l'élasticité de la diffusion.

Nous avons négligé complètement le caractère inélastique de la diffusion.

Nous calculons la correction à effectuer sur K_1 dans une approximation semi-statique : nous introduisons les changements d'énergie, mais nous supposons que pour chaque longueur d'onde, l'intensité $I_T(\lambda)$ est proportionnelle à la section efficace intégrée sur les changements d'énergie.

Ceci est une bonne approximation, dans les régions de longueurs d'onde où le spectre varie lentement avec la longueur d'onde.

Nous calculons dans l'appendice- $\int \frac{d\sigma^Q}{d\epsilon} d\epsilon$ en tenant compte de la variation de K avec ω. On trouve :

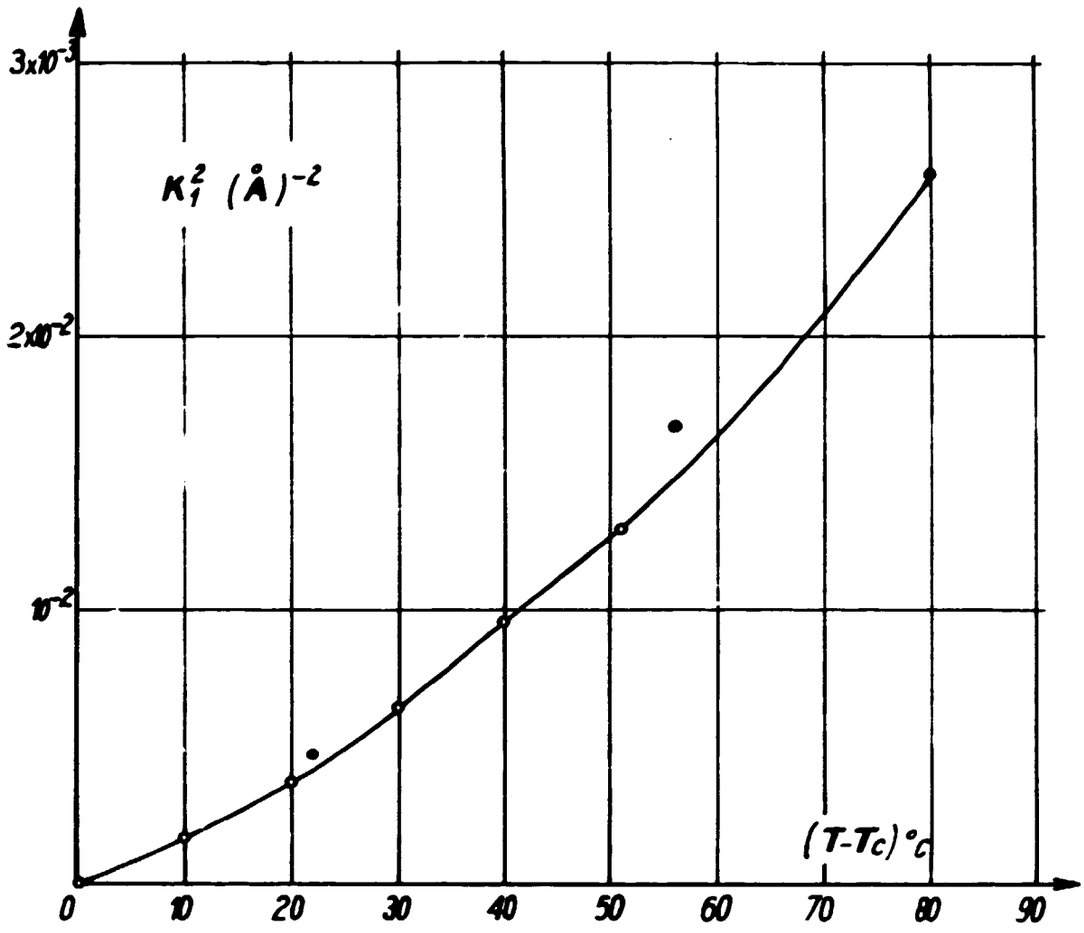


Fig. 9 - Valeurs de K_1^2.
o valeurs déterminées avec un spectre large (chap. II).
• valeurs déterminées avec un spectre étroit (chap. III).

$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{Tc}} \sqrt{1+\theta^2\mu^2} \left[1 + \alpha - \frac{\alpha\theta\sqrt{1+\alpha}}{2\theta\sqrt{1+\alpha} + 2\sqrt{\theta^2 + \frac{1}{\mu^2}}} \right]$$

dans laquelle :

$$u = \frac{2mA}{\hbar} \qquad \alpha = \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2\theta^2}$$

Nous avons mesuré μ dans une autre série d'expérience.

Connaissant alors la valeur de μ et la valeur de K_1 obtenue dans l'approximation élastique, on calcule la valeur de $I_{Tc}(\lambda) / I_T(\lambda)$ en fonction de la longueur d'onde.

On trouve que $I_{Tc}(\lambda) / I_T(\lambda)$ a encore une variation linéaire en fonction du carré de la longueur d'onde, mais la pente et l'ordonnée à l'origine de la droite, sont légèrement modifiées par rapport à leur valeur dans l'approximation élastique. On a donc la correction à apporter à la valeur trouvée pour K_1. Cette correction atteint 3 pour cent au plus.

Résultats. La figure 9 représente les valeurs obtenues pour K_1^2 en fonction de la température, une fois effectuées ces corrections.

Erreur sur la détermination de K_1.

La principale erreur sur K_1 provient de l'incertitude sur l'angle de diffusion qui est connu à 20' près.

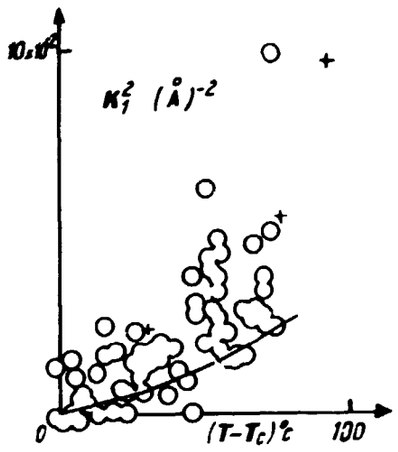


Fig. 10 - Comparaison des valeurs de K_1^2 obtenues par les différents expérimenteurs.
+ Wilkinson
O Lowde
- Valeurs obtenues à Saclay.

Le reste de l'erreur provient de l'erreur statistique sur le facteur de normalisation et de l'incertitude sur le tracé de la droite. Au total, les valeurs de K_1 sont déterminées avec une précision de 15 pour cent.

Résultats obtenus sur r_1.

1) l'ordonnée nous fournit la variation de r_1^2 avec la température. Nous avons effectué les mêmes corrections que pour K_1.

L'erreur provient de l'incertitude sur le tracé de la droite et de l'erreur statistique sur la normalisation.

2) On peut d'autre part calculer r_1^2 d'après la relation :

$$(K_1 r_1)^2 = \frac{\chi_o}{\chi}$$

Connaissant K_1, χ et χ_o on calcule r_1.

Les mesures de la susceptibilité du fer au-dessus de la température de Curie ont été effectuées par Neel [16], Potter [17] et Sucksmith-Pearce [18].

Les trois séries de mesures ne sont pas parfaitement concordantes. De plus, Néel trouve que la susceptibilité d'un même échantillon n'a pas une valeur reproductible.

Il est tout de même intéressant de comparer la variation de r_1 avec la température obtenue par cette méthode et par la méthode précédente.

Les résultats sont résumés dans le tableau suivant.

Colonne 1 : valeurs calculées d'après l'ordonnée à l'origine des droites ;

Colonne 2 : valeurs calculées d'après la relation $(K_1 r_1)^2 = \frac{\chi_o}{\chi}$

(on calcule les valeurs de r_1^2 à différentes températures, on trace la courbe représentant la variation de r_1^2 avec la température, on extrapole cette courbe à $T = T_c$, pour obtenir $(r_1^2)_{T_c}$).

T °C	$\frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}}$ (1)	$\frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}}$ (2)
780	1	0,92
790	0,99	0.97
800	0.95	0 94
810	0,91	0,92
821	0,88	0,89
850 (3)		0,89

On constate sur ce tableau le bon accord entre les valeurs obtenues par ces deux méthodes.

Comparaison avec les résultats obtenus par d'autres expérimenteurs.

L'étude du comportement spatial de la fonction de corrélation a été également effectué par Wilkinson-Shull-Gersch [11] et Lowde [19].

Les valeurs que nous obtenons pour K_1 sont en désaccord avec celles trouvées par ces expérimenteurs (fig. 10)

---

(1) Les valeurs de la colonne 1 sont données avec une précision de 8 pour cent.

(2) L'erreur sur les valeurs données dans la colonne 2 est difficile à évaluer, étant donnée l'incertitude sur la susceptibilité.

(3) Cette température a été étudiée seulement de la manière décrite dans le chapitre III, en utilisant un spectre étroit C'est pourquoi nous n'avons que la valeur calculée d'après la relation $(K_1 r_1)^2 = \frac{\chi_o}{\chi}$.

Wilkinson et al. mesurent la distribution angulaire des neutrons diffusés et obtiennent, par transformée de Fourier, la fonction de corrélation. Il nous semble que cette méthode, plus satisfaisante en principe, est plus difficile à mettre en oeuvre :

En effet, le calcul de la transformée de Fourier exige la connaissance complète de la distribution angulaire, dans des régions en particulier où l'intensité est très faible. On est alors amené à utiliser de grandes ouvertures angulaires et la correction qui en résulte devient très grande, surtout aux faibles angles de diffusion.

Notre méthode par contre, nous permet de vérifier la nullité de K_1 à la température de Curie, indépendamment de toute correction d'ouverture angulaire. Ayant alors vérifié que, à cette température, la section efficace est en $\frac{1}{K^2}$, on peut effectuer sans peine la correction d'ouverture angulaire.

Lowde utilise une méthode qui serait semblable à la notre, il étudie la variation avec la température de l'intensité des neutrons diffusés à un angle donné, mais les neutrons incidents ne sont pas monocinétiques et il n'analyse pas en énergie le spectre des neutrons diffusés, ce qui rend l'interprétation de ses mesures plus délicates.

La faible variation de r_1 avec la température que nous trouvons est également en désaccord avec celle, beaucoup plus rapide, trouvée par Wilkinson (fig. 11).

Comparaison avec les prévisions théoriques.

1) Valeur de $(r_1)_{T_c}$.

Nous avons porté dans le tableau suivant les prévisions théoriques pour $(r_1)_{T_c}$ dans les différentes approximations.

Les résultats obtenus dans le calcul de $(r_1)_{T_c}$ diffèrent suivant que l'on considère comme voisins magnétiques les premiers ou les seconds voisins d'un atome de fer. La structure cristalline du fer est une structure cubique centrée. Les premiers voisins d'un atome de fer sont au nombre de 8, ils sont situés à une distance de 2, 48 Å. Les seconds voisins sont au nombre de 6, ils sont légèrement plus éloignés, ils sont situés à 2, 86 Å. L'hypothèse que les premiers voisins ont une intégrale d'échange nulle et que ce sont les seconds voisins qui contribuent au magnétisme du fer a été faite par Neel [20].

Valeurs de $(r_1)_{T_c}$		
	premiers voisins	seconds voisins
Champ moléculaire	1, 01 Å	1, 17 Å
Bethe classique	1, 09 Å	1, 31 Å
Normalisation à l'origine	1, 18	1, 40

Les valeurs de $(r_1)_{T_c}$ calculées dans l'approximation du champ moléculaire et de Bethe-Peierls ne donnent pas à la fonction de corrélation la valeur S(S + 1) qu'elle doit avoir à l'origine. De Gennes et Grandidier [21] ont calculé les valeurs de $(r_1)_{T_c}$ qui assurent la condition de normalisation à l'origine. Les résultats sont portés dans la 3ème ligne du tableau précédent. Notre valeur expérimentale est $(r_1)_{T_c}$ = 1, 46 Å d'après la mesure directe ; 1, 33 Å d'après la relation entre K_1 et r_1. Ces valeurs sont en très bon accord avec les valeurs calculées en supposant les seconds voisins magnétiquement actifs. Mais les calculs ne sont pas assez sûrs pour permettre de tirer une conclusion. Les approximations utilisées ne rendent pas compte de la valeur expérimentale de la susceptibilité au-dessus de la température de Curie. L'approximation du champ moléculaire donne une valeur de la susceptibilité environ deux fois et demi trop faible ; avec l'approximation du champ moléculaire l'écart est réduit à un facteur deux mais il demeure encore très important.

On peut alors penser qu'une meilleure approximation qui rendrait compte de la valeur expérimentale de la susceptibilité rendrait également compte de la valeur expérimentale de $(r_1)_{T_c}$ sans qu'il soit nécessaire d'attribuer le magnétisme du fer à l'échange entre seconds voisins.

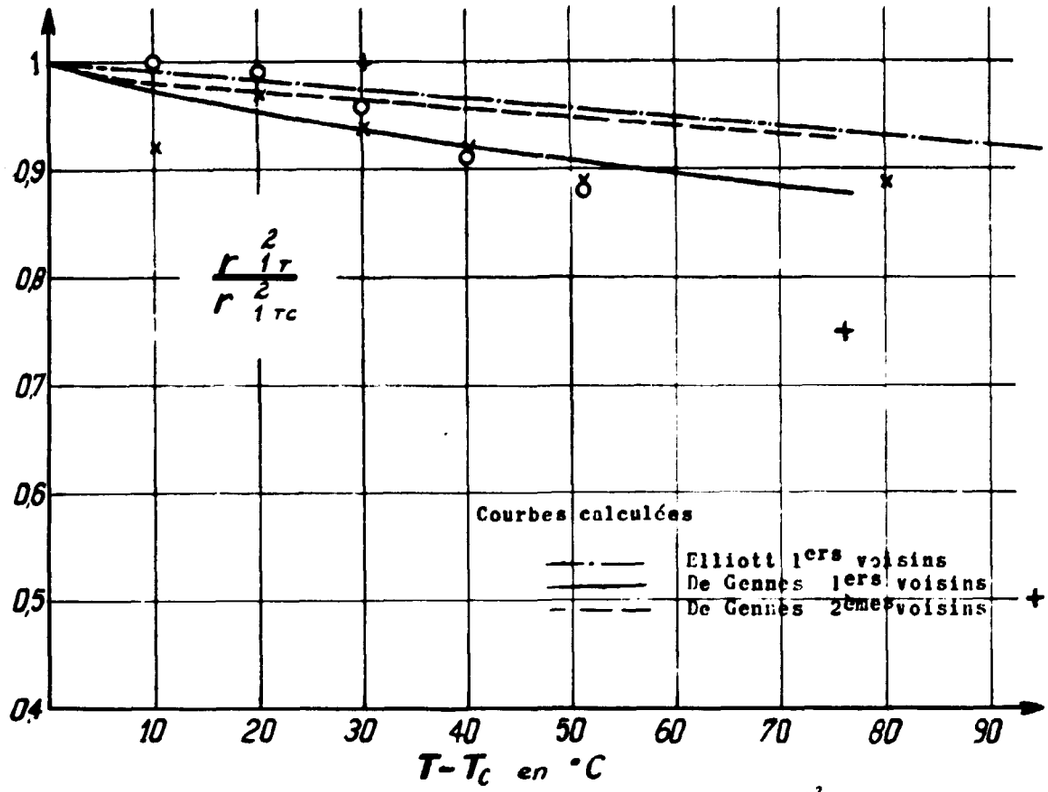


Fig. 11 - Variation avec la température du rapport $\frac{r_{1T}^2}{r_{1Tc}^2}$:
o d'après l'ordonnée de l'origine ;
x d'après la relation $(K_1 r_1) = \frac{\chi_0}{\chi}$.
+ variation obtenue par Wilkinson.

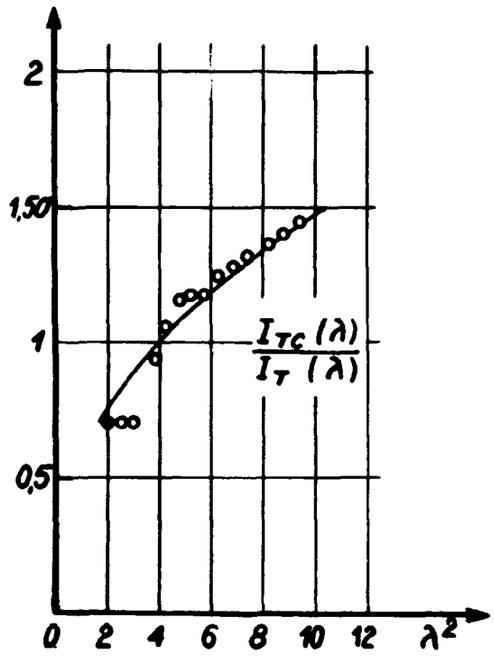


Fig. 12 - Variation du rapport $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ en fonction du carré de la longueur d'onde, T = 800 °C.
o points expérimentaux ;
— courbe calculée en admettant une forme en $\frac{e^{-K_1 r}}{r}(1 - e^{-ar})$ pour la fonction de corrélation, a = 0,17 (Å)$^{-1}$.

2) Variation de r_1 avec la température.

Une estimation de cette variation a été faite par de Gennes et Grandidier [21]. Elliott et Marshall ont également calculé r_1 en fonction de la température [9]. Les deux théories prévoient une faible variation de r_1 avec la température, ce qui est en accord avec nos expériences (fig. 11). La variation prévue diffère légèrement suivant que les interactions magnétiques sont considérées entre premiers ou seconds voisins, mais nos expériences ne sont pas suffisamment précises pour distinguer entre ces deux variations.

Etude du rapport $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ aux faibles longueurs d'onde.

La figure 8 montre, que pour les faibles longueurs d'onde, la variation de $I_{Tc}(\lambda) / I_T(\lambda)$ n'est plus linéaire en fonction du carré de la longueur d'onde, et que l'intensité des neutrons diffusés à la température de Curie devient inférieure à l'intensité des neutrons diffusés à une température supérieure.

Nous attribuons ces phénomènes au comportement de la fonction de corrélation au voisinage de l'origine. En effet, la formule en $\frac{1}{K^2 + K_1^2}$ pour la section efficace est obtenue en remplaçant la fonction de corrélation par sa forme asymptotique en $\frac{e^{-K_1 r}}{r}$. La forme asymptotique n'est plus applicable au voisinage de l'origine, où elle donne à la fonction de corrélation une valeur infiniment plus grande. Donc la section efficace s'écarte de la forme en $\frac{1}{K^2 + K_1^2}$ d'autant plus que K est plus grand, donc la longueur d'onde plus petite.

On peut essayer de remplacer l'expression en $\frac{e^{-\kappa_1 r}}{r}$ par une expression en $\frac{e^{-\kappa_1 r}}{r}(1 - e^{-ar})$ qui reste finie à l'origine. On rend alors compte des courbes expérimentales pour une valeur de a égale à 0,17 $(\text{Å})^{-1}$ (fig. 12).

Cependant, cette expression ne représente pas la véritable forme de corrélation, car elle ne donne pas à celle-ci la valeur S(S + 1) qu'elle doit avoir à l'origine.

Ceci n'a d'autre but que de montrer qu'il est possible d'obtenir pour le rapport $I_{T_c}(\lambda) / I_T(\lambda)$ semblable à celle trouvée expérimentalement.

C - Etudes effectuées à des températures $T < T_c$.

Nous avons analysé les résultats de la même façon que ceux obtenus à des températures supérieures à la température de Curie.

Nous portons le rapport $I_{T_c}(\lambda) / I_T(\lambda)$ en fonction du carré de la longueur d'onde.

La figure 13 représente la variation de ce rapport pour une température de 756 °C.

On constate que la courbe extrapolée vers les petites longueurs d'onde passe par une valeur bien supérieure à 1 pour $\lambda = 0$.

Nous en concluons que r_1 varie beaucoup plus rapidement au-dessous de la température de Curie qu'au-dessus.

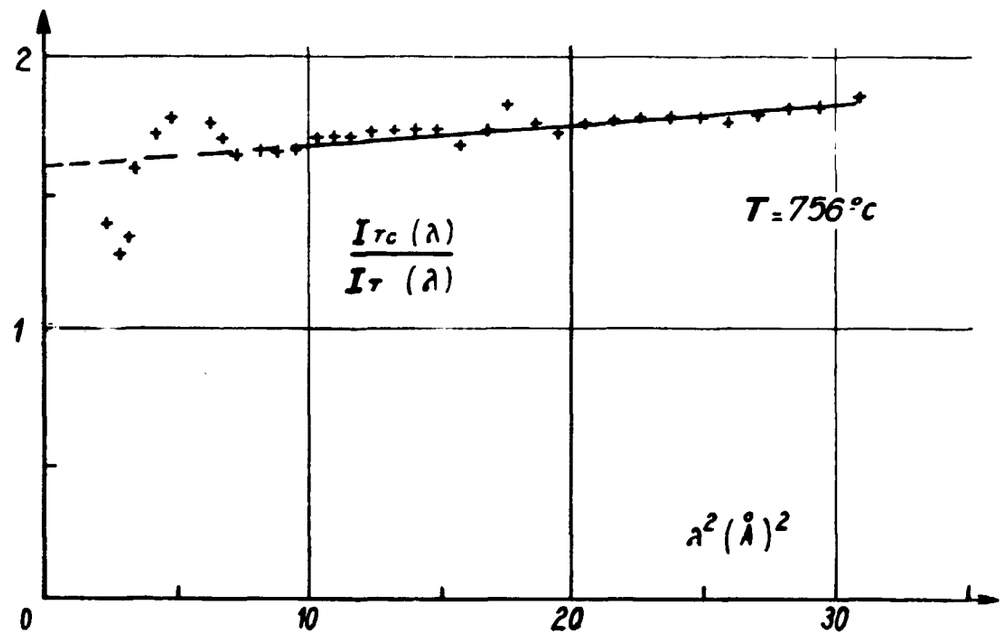


Fig. 13 - Variation en fonction du carré de la longueur d'onde du rapport $\frac{I_{T_c}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ pour T = 756 °C.

On trouve pour le rapport : $\frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}}$

756 °C	$\frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{T_c}}$	= 1,6
745 °C		= 2,6

Comparaison avec les prévisions théoriques.

Les traitements théoriques sont compliqués par le fait que l'on doit considérer les fluctuations longitudinales dirigées suivant la direction de l'aimantation spontanée et les fluctuations transversales.

La section efficace, en l'absence de champ magnétique tient compte des trois directions des fluctuations d'aimantation.

$$\sigma^{\Omega} = c\left[\frac{2}{3}\,\frac{1}{r_{1t}^2}\,\frac{1}{K^2 + K_{1t}^2} + \frac{1}{3}\,\frac{1}{r_{1\ell}^2}\,\frac{1}{K^2 + K_{1\ell}^2}\right]$$

Les prévisions théoriques des différents auteurs sont en désaccord ; selon De Gennes, les corrélations transversales ont une portée infinie, $K_{1t} = 0$, car, en l'absence de forces d'anisotropie, la susceptibilité transversale est infinie. Or, les forces d'anisotropie tendent vers 0 comme $(T_c - T)^5$. Elliott, au contraire, trouve pour K_{1t} une valeur non nulle, peu différente de celle de $K_{1\ell}$.

Les deux auteurs trouvent la même valeur pour $K_{1\ell}$. Ils trouvent que K_{1t} varie deux fois plus rapidement au-dessous de la température de Curie qu'au-dessus.

La variation de l'intensité avec la température, à une longueur d'onde donnée, n'est pas la même suivant les deux théories.

Si la température décroit à partir de la température de Curie, indépendamment de l'effet dû à la variation de r_1 avec la température : selon De Gennes, l'intensité décroit lentement car seule l'augmentation de $K_{1\ell}$ contribue à la diminution de la section efficace, selon Elliott, K_{1t} et $K_{1\ell}$ croissent simultanément et l'intensité décroit donc rapidement.

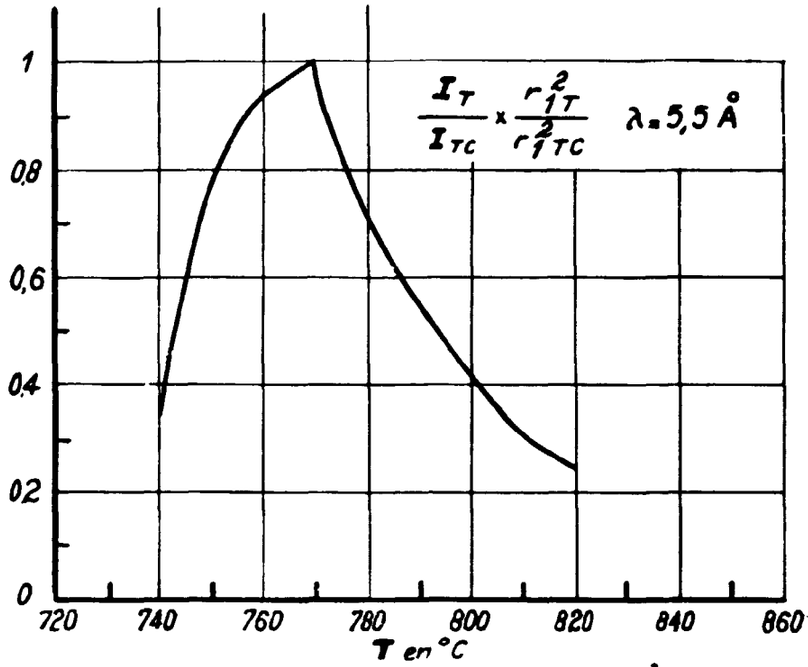


Fig. 14 - Variation avec la température du rapport $\frac{I_T}{I_{Tc}}\frac{r_{1T}^2}{r_{1Tc}^2}$ pour des neutrons de 5,5 Å.

Nous avons éliminé l'influence de la variation de r_1 avec la température en formant le rapport :

$$\frac{I_T(\lambda)}{I_{Tc}(\lambda)}\,\frac{(r_1^2)_T}{(r_1^2)_{Tc}} \qquad (1)$$

La figure 14 représente la variation de ce rapport avec la température, pour la longueur d'onde de 5,5 Å.

On constate que cette quantité décroit d'abord lentement pour $T_c - T < 15°$, puis plus rapidement.

Ceci peut s'interpréter selon De Gennes, la variation d'abord lente devient plus rapide lorsque l'apparition des forces d'anisotropie rend $K_{1t} \neq 0$.

Enfin, la variation rapide de r_1 avec la température au-dessous de T_c n'est prévue par aucun des deux auteurs.

---

(1) Ceci suppose en fait que r_{1t} et $r_{1\ell}$ sont égaux. En l'absence d'application d'un champ magnétique on ne peut séparer expérimentalement les composantes transversales et longitudinales des fluctuations.

CHAPITRE III

ÉTUDE DE LA CINÉTIQUE DES FLUCTUATIONS D'AIMANTATION

Les mesures précédentes effectuées à l'aide de neutrons incidents dont les énergies étaient réparties dans un spectre large n'ont fourni de renseignements que sur la partie spatiale de la fonction de corrélation entre les spins. Mais de telles mesures ne pouvaient donner aucune information sur le caractère inélastique de la diffusion car l'énergie des neutrons incidents était insuffisamment définie. De ce fait, ces mesures ne permettent pas d'étudier la dépendance temporelle de la fonction de corrélation.

Pour étudier cette dépendance temporelle, l'expérience idéale consisterait à envoyer sur l'échantillon de fer des neutrons ayant tous la même vitesse, et à analyser en énergie le spectre diffusé. On obtiendrait directement la section efficace différentielle $\frac{d\sigma^{\Omega}}{d\varepsilon}$ et donc la valeur du paramètre Λ qui, rappelons-le, est le coefficient qui intervient dans l'équation de diffusion qui régit l'évolution dans le temps des fluctuations d'aimantation.

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = \Lambda \nabla^2 \vec{M}$$

Cette expérience est impossible à réaliser. On ne peut obtenir des neutrons monocinétiques en nombre raisonnable.

Nous avons donc cherché à utiliser des neutrons incidents dont les énergies se répartissent dans un spectre suffisamment étroit pour que l'élargissement du spectre des neutrons diffusés par rapport au spectre des neutrons incidents soit mesurable. Une méthode appropriée d'analyse de cet élargissement permet de mesurer indirectement Λ [22].

DESCRIPTION DE L'APPAREILLAGE EXPERIMENTAL.

Principe de la réalisation d'un faisceau de neutrons monocinétiques.

On sélectionne des neutrons de même vitesse par une méthode de temps de vol. Deux disques de cadmium de même axe, situés à une certaine distance L l'un de l'autre tournent à la même vitesse. Chacun de ces disques est percé d'une fente dans sa partie périphérique. Leur axe est parallèle à la direction d'un faisceau collimaté de neutrons.

Nous supposons d'abord :

- que le faisceau de neutrons est un faisceau rigoureusement parallèle ;
- que les dimensions des fentes dans la direction perpendiculaire au rayon sont infiniment petites.

Considérons alors un neutron du faisceau. Soient A et B les points d'intersection de sa trajectoire avec les plans des deux roues. Ce neutron ne peut traverser la roue la plus proche de la pile (que nous appelons première roue) que s'il ne trouve pas de cadmium en A, c'est-à-dire à un instant t_o où la fente de la première roue se trouve en A. S'il a pu traverser la première roue, il est en général arrêté par le

cadmium de la deuxième, sauf s'il a une vitesse telle qu'il arrive en B à un moment où la fente de la deuxième roue passe en ce point. Appelons t le temps minimum qui sépare le passage des fentes des roues en B et A respectivement. Parmi les neutrons qui sont passés en A, peuvent passer en B ceux dont la vitesse est égale à $v_n = \frac{L}{t + nT}$.

T est la durée de révolution des roues, n est un nombre entier.

Le terme en nT s'introduit car les neutrons qui sont passés en A à l'instant t_o peuvent passer en B lorsque la fente de la deuxième roue passe pour la (n + 1)ème fois en B après l'instant t_o.

Les v_n forment une suite de valeurs discrètes décroissantes. Dans nos conditions d'utilisation de la machine T > t (1). Le nombre des neutrons de vitesse $v_1 = \frac{L}{t + T}$, $v_2 = \frac{L}{t + 2T}$ etc. est extrêmement petit devant le nombre des neutrons de vitesse $v = \frac{L}{t}$. En effet, le spectre des neutrons issus de la pile est un spectre de Maxwell dont la température d'équilibre est 300°K. Tous les termes successifs v_n se situent dans une région de la courbe de Maxwell où l'intensité des neutrons est une fonction rapidement croissante de leur vitesse, avec les valeurs que nous avons utilisées pour t, T et L.

On peut donc négliger la contamination par les grandes longueurs d'onde et ne considérer que le terme $v = \frac{L}{t}$.

Le temps t ne dépend pas de la trajectoire particulière choisie, si toutes les trajectoires sont parallèles. Donc, avec les conditions supposées, faisceau de neutrons parallèles et fentes infiniment fines, on obtient à la sortie du sélecteur un faisceau de neutrons parfaitement monocinétiques.

D'autre part, les neutrons sortent du sélecteur par paquets. Ce faisceau est donc pulsé, condition des méthodes de temps de vol.

Causes d'élargissement en énergie de la raie.

1) Influence de la largeur des fentes :

Du fait de sa largeur, la fente de la première roue met un certain temps à défiler en A et celle de la deuxième en B. Appelons t_o et $t_o + t$ les instants où les milieux des fentes passent respectivement en A et B, et $2\Delta t$ le temps que mettent les fentes à défiler en un point.

Un neutron qui a pu traverser la première roue en A à l'instant $t_o - \Delta t$ peut encore passer en B à l'instant $t_o + t + \Delta t$, ce qui correspond à une vitesse $\frac{L}{t + 2\Delta t}$.

De même s'il a passé en A au temps $t_o + \Delta t$, il peut passer en B au temps $t_o + t - \Delta t$.

La raie est donc élargie en énergie. Les vitesses extrêmes possibles sont :

$$\frac{L}{t + 2\Delta t} \quad \text{et} \quad \frac{L}{t - 2\Delta t}$$

2) Influence de la divergence angulaire du faisceau :

Les différentes trajectoires ne sont pas rigoureusement parallèles. C'est une autre cause d'élargissement de la raie.

Considérons en effet, deux neutrons ayant traversé la première roue en A ; l'un a une trajectoire parallèle à l'axe des roues, l'autre a une trajectoire légèrement inclinée. Le premier arrive sur la deuxième roue en B, le second en B'. La fente de la deuxième roue que nous supposons encore infiniment fine met un certain temps τ à aller de B en B'. Le premier neutron peut traverser le sélecteur s'il a une vitesse $\frac{L}{t}$, le second s'il a une vitesse $\frac{L}{t + \tau}$.

Si B et B' sont sur un même rayon le temps τ est nul. Les dimensions du faisceau dans le sens du rayon sont donc sans influence sur la largeur de la raie.

---

(1) En pratique, chacun des disques porte plusieurs fentes, ce qui ne change rien au principe exposé. T est alors le temps qui sépare le passage de deux fentes successives en un même point.

Ces deux effets élargissent d'autant moins la raie que les disques tournent plus vite. Le choix de la largeur des fentes et de la divergence angulaire du faisceau résulte de la nécessité d'obtenir un faisceau suffisamment intense de neutrons approximativement monocinétiques.

Description du sélecteur mécanique.

Le sélecteur mécanique a été conçu et réalisé par Messieurs Jacrot et Gobert [23].

Les deux roues de 1 m de diamètre sont faites d'un alliage d'aluminium. Elles tournent dans un vide de quelques millimètres de mercure à une vitesse qui peut varier entre 0 et 6 000 tours par minute ; le vide a pour but d'éviter une consommation excessive de puissance. Elles sont entraînées par un moteur à courant continu de 6 chevaux.

Elles portent sur leur partie périphérique une couronne de cadmium. Les fentes de 1,5 cm de largeur et 5 cm de longueur sont au nombre de 8 sur chaque roue. Elles sont obturables par du cadmium ; le nombre de paquets de neutrons sortant du sélecteur par tour des disques peut être ainsi réduit à volonté de 8 à 4 ou 2.

Les deux roues sont à 1 m de distance l'une de l'autre. Elles sont reliées par une boîte de vitesse de rapport 1 ; la boîte comporte des trains d'engrenage épicycloïdaux et permet de faire tourner une roue par rapport à l'autre pendant la marche de la machine, par manoeuvre d'un moteur auxiliaire.

La deuxième roue comporte, sur les mêmes rayons que les fentes qui servent au passage des neutrons, et à 25 cm du centre, des fentes de 2/10 mm que nous appellerons fentes optiques. Ces fentes servent à définir optiquement l'instant où le paquet de neutrons sort du sélecteur. A cet effet, un système optique collimateur donne un fin pinceau lumineux qui tombe sur la roue et ne peut la traverser que lorsque la fente optique passe devant le pinceau. Un photomultiplicateur recueille le signal lumineux après traversée de la roue et le transforme en impulsion électrique.

Stabilisation du temps t qui sépare le passage des fentes des deux roues devant le faisceau.

Ce temps définit la longueur d'onde moyenne des neutrons qui sortent du sélecteur. Il est important que cette longueur d'onde reste constante pendant la durée d'une expérience. Elle dépend de la vitesse de rotation des roues qui varie légèrement au cours du temps. On compense les fluctuations de vitesse en faisant tourner légèrement une roue par rapport à l'autre, de façon à maintenir le temps t constant.

Pour cela, la première roue comporte également une fente optique. Cette fente sert, associée à l'une des fentes de la deuxième roue, à définir le temps t qui sépare le passage des fentes des deux roues devant le faisceau comme intervalle de temps qui sépare deux impulsions électriques. On le compare alors à un temps de référence θ. Si le temps t s'écarte de θ, on envoie sur le moteur de la boîte de vitesse une impulsion de façon à retrouver θ. Le temps t est ainsi stabilisé à $\pm 2\,\mu s$.

Dans nos expériences, nous avons choisi les conditions de façon à obtenir un faisceau de neutrons de longueur d'onde moyenne 4,5 Å. La largeur à mi-hauteur de la raie incidente est 0,45 Å, soit 10 pour cent en longueur d'onde.

Modifications apportées au système expérimental utilisé dans les expériences précédentes.

1) Réduction du mouvement propre.

L'étude des changements d'énergie dans la diffusion exige un mouvement propre très réduit, les effets des changements d'énergie se faisant surtout dans les régions du spectre en énergie où l'intensité des neutrons incidents est petite. A cet effet, le chemin suivi par les neutrons depuis la sortie du canal jusqu'à la première roue et entre les deux roues est protégé des neutrons parasites par un tuyau contenant une épaisseur de 4 cm de carbure de bore.

Mais, il s'introduit avec le nouveau sélecteur mécanique une nouvelle cause de mouvement propre : les matériaux constituant les roues, aluminium et cadmium, laissent passer une grande fraction des neutrons rapides issus du canal de la pile. L'échantillon de fer reçoit donc, outre les neutrons lents qui arrivent par paquets du sélecteur, des neutrons rapides qui arrivent continuellement. Il les diffuse partiellement, provoquant ainsi une augmentation du mouvement propre. Nous avons donc éliminé les neutrons rapides du faisceau incident par un filtre de béryllium : la section efficace de diffusion des neutrons par le béryllium polycristallin décroît brusquement lorsque la longueur d'onde des neutrons devient supérieure à 3,96 Å. Cette discontinuité est due à l'impossibilité de satisfaire au-delà d'une longueur d'onde λ_c, appelée longueur d'onde critique, à la condition de Bragg de diffusion cohérente.

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

2θ est l'angle de diffusion ;
d est la distance réticulaire du plan considéré.

Si d_M est la distance réticulaire de la substance :

$$\lambda_c = 2 d_M$$

La section efficace résiduelle pour des substances non magnétiques est due à : la capture, la diffusion incohérente et la diffusion par agitation thermique.

Le béryllium est une substance très favorable :

section efficace de diffusion cohérente :	7, 5	barns
section efficace de capture :	9	millibarns
section efficace de diffusion incohérente :	< 5	millibarns

La section efficace due à l'agitation thermique dépend de la température. On peut la réduire en refroidissant le filtre à la température de l'azote liquide (fig. 15).

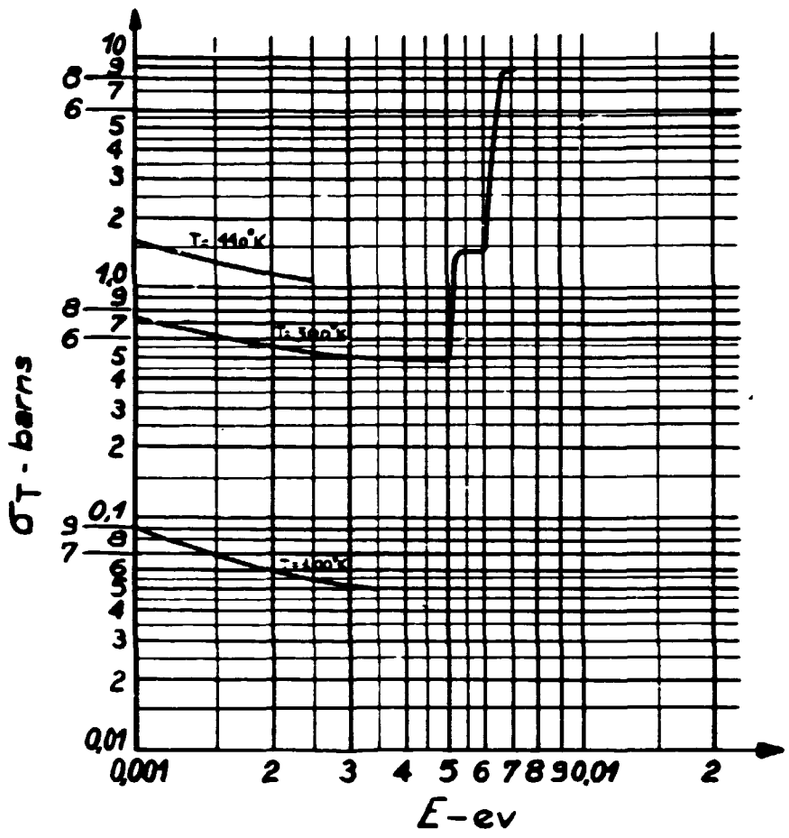


Fig. 15 - Section efficace totale de béryllium en fonction de l'énergie des neutrons d'après BNL 325.

Description du filtre de béryllium.

Un bloc parallélépipédique de béryllium est placé à la sortie du canal de la pile, avant l'entrée du sélecteur mécanique. Ses dimensions sont 60 x 40 x 150 mm ; les neutrons le traversent dans sa plus grande dimension. Il est placé dans un canal de cuivre entouré d'une épaisseur de 6 cm d'un mélange de carbure de bore et paraffine. Le tout est placé dans un récipient contenant de l'azote liquide. Ce récipient est isolé thermiquement par une couche de 8 cm d'épaisseur de polystyrène soufflé, sauf sur le trajet des neutrons où l'isolement thermique est assuré par un ensemble de 8 écrans d'aluminium de 5/100 mm, distants de 5 mm les uns des autres. Ces écrans suffisent à éviter la présence de givre sur le trajet des neutrons. Le mélange de carbure de bore et paraffine qui entoure le béryllium a pour but de ralentir et absorber les neutrons rapides éliminés du faisceau incident par diffusion par le béryllium. L'épaisseur de ce mélange s'est avérée insuffisante et nous avons mis autour du récipient contenant l'azote, une épaisseur supplémentaire de 10 cm.

Le niveau d'azote dans le récipient est maintenu constant grâce à un bulbe rempli d'oxygène sous une pression de 3 kg. Lorsque le niveau d'azote monte jusqu'à toucher le bulbe, l'oxygène se liquéfie ; la chute de pression qui en résulte entraîne la fermeture d'une vanne qui commande la circulation d'azote. Cette circulation se fait à partir d'un dewar de 100 litres dans lequel règne une surpression de 200 g. La consommation d'azote est d'environ 2 litres par heure.

Résultats obtenus. Le nombre de neutrons qui arrivent sur l'échantillon est multiplié par un facteur 1, 8 quand le béryllium est refroidi.

Le mouvement propre dû aux neutrons rapides est réduit à environ 10 coups par minute par la présence du filtre de béryllium.

2) Choix du nombre de fentes et introduction d'une ligne à retard.

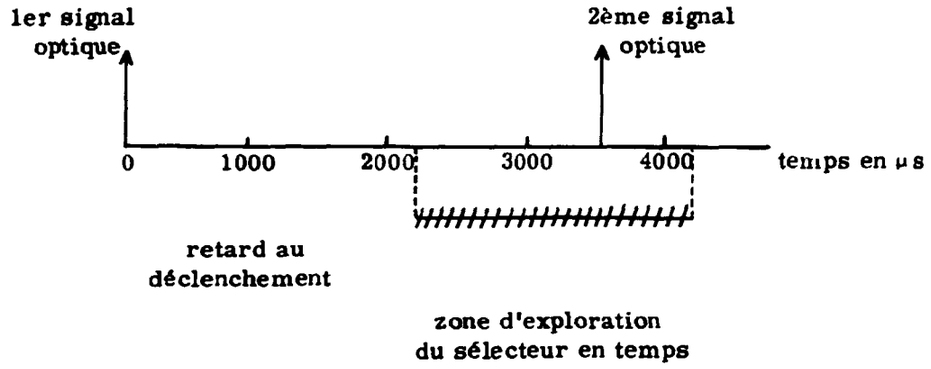
On a intérêt à utiliser le plus grand nombre de fentes possibles pour obtenir l'intensité maximum. Ce nombre est fixé par la condition suivante : l'intervalle de temps qui sépare deux signaux lumineux doit être plus grand que le temps d'exploration du sélecteur électronique. Ce dernier temps est lui même fixé par l'intervalle de longueur d'onde qu'on veut étudier autour de la longueur d'onde moyenne incidente. Par exemple, nous voulions étudier ici un intervalle d'au moins 2, 5 Å autour de la longueur d'onde de 4, 5 Å. Un intervalle de 2, 5 Å correspond à un temps d'exploration de 2, 5 x 253 x 2, 8 µs (la base de parcours des neutrons est de 2, 8 m) soit 1 800 µs environ. Ceci fixe la largeur d'un canal à 20 µs.

La condition pour le nombre N de fentes à la vitesse de 4 400 tours/mn est alors :

$$\frac{10^6}{(4\,400/60) \times N} > 2\,000$$

Cette condition limite le nombre de fentes à 4.

La longueur d'onde incidente moyenne de 4, 5 A correspond à un temps de vol de 3 200 µs. Si l'on veut que cette longueur d'onde corresponde au milieu de la zone d'exploration du spectromètre électronique, il faut retarder le signal de déclenchement du sélecteur électronique de 2 200 µs. Il suffit d'interposer entre le signal fourni par le photomultiplicateur et l'entrée du sélecteur électronique une ligne à retard. Nous avons utilisé la plupart du temps des lignes à retard à magnétostriction [24].



Récapitulation du choix des paramètres réglables de l'appareillage.

La température de 850°C a été étudiée dans une expérience distincte, dans des conditions un peu différentes. Nous précisons les conditions de cette étude lorsqu'elles sont différentes des autres.

Vitesse de rotation des roues	4 400 tours par minute
Longueur d'onde moyenne incidente	4, 5 Å
Base de parcours des neutrons	280 cm
Largeur d'un canal	20 µs 25 µs (850°C)
Retard au déclenchement	2 200 µs 2 000 µs (850°C)
Nombre de fentes	4
Angle de diffusion	3° 46' 4° 46' (850°C)

PRINCIPE DES MESURES.

L'échantillon de fer chauffé dans le four est placé aussi près que possible de la deuxième roue du sélecteur mécanique. Nous avons utilisé pour ces expériences un échantillon de 3, 5 mm d'épaisseur.

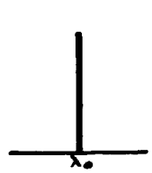
Les neutrons approximativement monocinétiques du faisceau incident sont diffusés par le fer à un angle de quelques degrés. angle qu'on peut choisir mais qui reste fixe pendant la durée d'une mesure.

Nous étudions, en fonction de la longueur d'onde, le spectre des neutrons diffusés par le fer porté à la température de Curie et à des températures voisines.

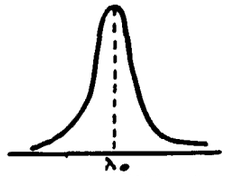
La soustraction de la contribution des neutrons parasites se fait, comme dans les expériences précédentes, en retranchant du spectre des neutrons diffusés par le fer porté à une température T le spectre des neutrons diffusés, pendant le même temps, par le fer chauffé à une température inférieure, avant l'apparition de la diffusion critique.

ANALYSE DES RESULTATS.

La façon la plus simple d'expliquer comment nous avons mesuré le paramètre Λ qui définit l'inélasticité de la diffusion est d'expliquer d'abord quel est l'effet de cette inélasticité, comment elle se manifeste dans le spectre des neutrons diffusés.



Raie incidente



Spectre diffusé.

Pour montrer quel est cet effet, nous supposons d'abord que le faisceau des neutrons incidents est un faisceau rigoureusement monocinétique, appelons λ_o la longueur d'onde des neutrons incidents. La raie incidente s'élargit après diffusion en un spectre étroit autour de λ_o.

L'aire de ce spectre est :

$$I = I_o \int \frac{d\sigma}{d\varepsilon} d\varepsilon = I_o \frac{A}{r_1^2} \int \frac{k'}{k} \frac{1}{K^2 + K_1^2} \frac{\Lambda K^2}{\omega^2 + \Lambda^2 K^4} d\varepsilon$$

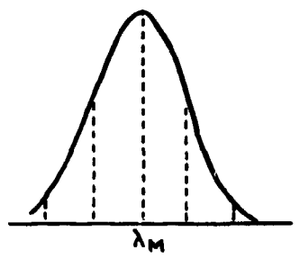
I_o est l'intensité de la raie des neutrons incidents.

Si l'inélasticité est assez petite pour que le changement de moment K ne dépende pas du changement d'énergie, l'intégration est immédiate et donne :

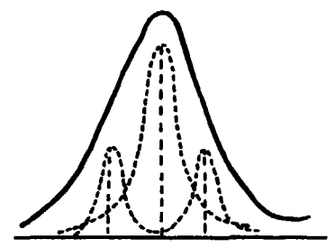
$$I = I_o \frac{A}{r_1^2} \pi \frac{1}{K^2 + K_1^2}$$

Même s'il n'en est pas ainsi, cette formule reste une très bonne approximation (K est alors le changement de moment pour un changement d'énergie nul).

Donc en première approximation, l'aire du spectre des neutrons diffusés ne dépend pas du paramètre d'inélasticité Λ. Nous donnons dans un appendice la formule exacte donnant cette aire en fonction de Λ.



Spectre incident


Spectre diffusé.

Nous pouvons alors considérer maintenant le cas où l'on n'a plus une raie incidente, mais un spectre étroit autour d'une longueur d'onde λ_M. On peut décomposer ce spectre en une série de raies d'intensité différente. Chacune de ces raies s'élargit après la diffusion. Le spectre diffusé s'obtient par la composition de ces raies élargies.

Considérons la raie de longueur d'onde λ_M du spectre incident. Elle contribue à renforcer l'intensité du spectre diffusé dans la région de longueurs d'onde λ_v voisines de λ_M. Mais la partie du spectre diffusé de longueur d'onde λ_M reçoit elle-même peu de contribution de la raie incidente de longueur d'onde λ_v car cette raie est peu intense par rapport à la raie λ_M.

Donc, l'intensité du spectre diffusé est affaiblie dans la région du centre et renforcée dans la région des ailes par l'inélasticité de la diffusion.

Nous voyons donc qualitativement quel est l'effet de l'inélasticité. D'autre part, le même raisonnement qui a été fait pour une raie incidente s'applique ici : l'aire du spectre diffusé est, à une très bonne approximation, indépendante du paramètre d'inélasticité.

L'introduction des effets inélastiques revient à déformer le spectre des neutrons diffusés sans en changer l'aire.

Notre méthode d'analyse s'en déduit :

1) on calcule le spectre des neutrons diffusés à la température T en supposant la diffusion parfaitement élastique.

2) le spectre mesuré expérimentalement s'écarte de ce spectre calculé. Cet écart, dû à l'inélasticité de la diffusion, permet la mesure de Λ.

Le calcul du spectre des neutrons diffusés à la température T, dans l'approximation élastique, se fait à partir du spectre incident et de la connaissance des seuls paramètres r_1 et K_1 qui caractérisent la dépendance spatiale de la fonction de corrélation.

En fait, nous avons utilisé comme spectre de référence le spectre des neutrons diffusés à la température de Curie et non le spectre incident. Les avantages de cette méthode sont les mêmes que ceux exposés dans la partie précédente sur la mesure de K_1.

Nous discuterons plus loin des incidences de cette méthode sur la mesure du temps de relaxation des fluctuations d'aimantation. Pour le moment, nous nous bornerons à admettre que, comme le prévoit la théorie, le temps de relaxation des fluctuations d'aimantation à la température de Curie est défini, et donc la diffusion parfaitement élastique à cette température.

Nous supposons r_1^2 inversement proportionnel à la température absolue. Nous avons redéterminé ici la valeur de $(K_1)_T$. Cette détermination se fait à partir de l'intensité totale diffusée à la température T, $\mathcal{J}_T$ qui, nous l'avons vu, ne dépend pas des changements d'énergie dans la diffusion.

Soit $I_{T_c}(\lambda)$ l'intensité diffusée à la température de Curie en fonction de la longueur d'onde, intensité que l'on mesure expérimentalement.

$\mathcal{J}_T$ est alors égal à :

$$\mathcal{J}_T = \frac{T}{T_c} \int \frac{I_{T_c}(\lambda)}{1 + \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2\theta^2}} d\lambda$$

On trace à priori une courbe donnant $\mathcal{J}_T$ en fonction du paramètre inconnu K_1. La connaissance de $\mathcal{J}_T$ suffit alors à déterminer K_1.

Les valeurs de K_1 ainsi déterminées sont en bon accord avec celles mesurées précédemment (fig. 9)

Le spectre des neutrons diffusés à la température T, dans l'hypothèse d'une diffusion élastique, se calcule à partir de $I_{T_c}(\lambda)$ et $(K_1)_T$.

$$I_T(\lambda) = \frac{T}{T_c} \frac{I_{T_c}(\lambda)}{1 + \frac{(K_1^2)\ \lambda^2}{4\pi^2\theta^2}}$$

On constate que l'intensité mesurée expérimentalement est plus petite que l'intensité calculée dans la région voisine de 4, 5 Å où l'intensité est maximum. et plus grande que l'intensité calculée dans la région des ailes. Ces différences sont conformes aux effets prévus de l'inélasticité de la diffusion (fig. 17).

Mesure de Λ.

On cherche quelle est la valeur de Λ qui rend le mieux compte de la courbe expérimentale par une méthode de moindres carrés.

Il nous faut d'abord calculer l'intensité $I_{T,\Lambda}(\Lambda)$ pour différentes valeurs du paramètre Λ, les calculs ne sont pas simples ; chaque longueur d'onde du spectre diffusé reçoit une contribution de toutes les longueurs d'onde présentes dans le spectre incident.

Nous donnons ici la formule en fonction du vecteur d'onde :

$$I_T(k) = \frac{T}{T_c} \frac{2\theta^2}{\pi} k^3 \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\mu K^2}{K^2 + K_1^2} \frac{}{B + \mu^2 K^4} I_{T_c}(k - x)\ dx$$

avec :

$$\mu = \frac{2 m \Lambda}{\hbar}$$

$$K^2 = x^2 + k^2\theta^2 - k x \theta^2$$

$$B = x^2 (2k - x)^2$$

Les calculs ont été effectués à l'aide d'un calculateur électronique. Pour chaque valeur du para-

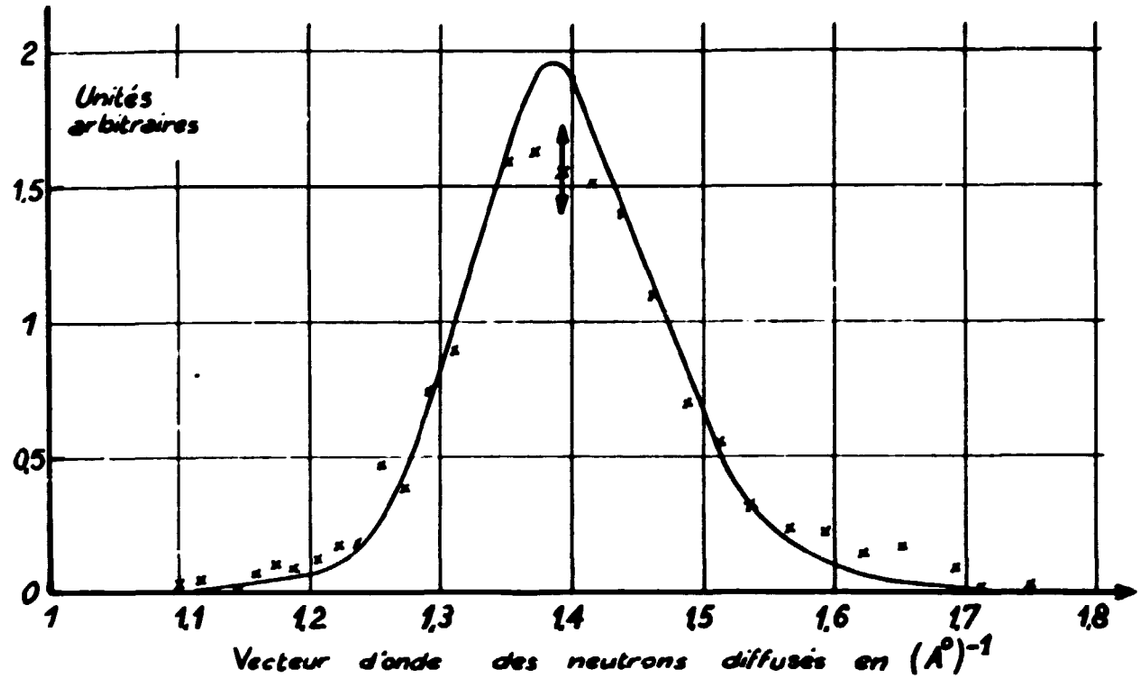


Fig. 17 - Spectre des neutrons diffusés à la température de 850°C.
x points expérimentaux.
– courbe calculée en supposant la diffusion élastique.

mètre A, nous calculons l'intensité $I_{T,A}(k)$ pour 30 valeurs différentes de k. On applique ensuite une méthode de moindres carrés pondérés, on cherche quelle est la valeur du paramètre A qui rend minimum :

$$\Sigma_i \; p_i \; (\Delta x_{i_A})^2$$

Δx_{i_A} est l'écart entre un point expérimental N_i et le point calculé pour la même valeur de la longueur d'onde, et une certaine valeur de A ;

p_i est un poids qui tient compte des erreurs différentes sur chacun des points expérimentaux. L'erreur sur ces points est ici l'erreur statistique sur le comptage, on prend donc :

$$p_i = \frac{1}{N_i}$$

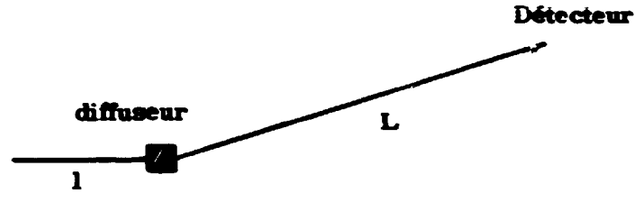
Nous avons effectué une correction pour tenir compte de la légère variation de l'intensité totale avec A. Cette intensité croit légèrement avec A.

Pour que la condition $I_{T,A} = I_{T,exp.}$ soit satisfaite, il faut associer à chaque valeur de A une valeur de K_1 qui diffère légèrement de celle calculé pour A = 0. La correction à effectuer ne dépasse pas 3 pour cent.

Discussion des résultats.

Correction due à la position du diffuseur.

Nous avons supposé que l'échantillon de fer est placé immédiatement après la deuxième roue du sélecteur mécanique. En fait, la distance entre cette roue et l'échantillon de fer est de 50 cm, et la distance entre l'échantillon et le détecteur est de 230 cm (nous avons supposé cette dernière distance égale à 280 cm dans les calculs).



A partir de l'instant 0 ou le paquet de neutrons sort du sélecteur, les neutrons parcourent donc 50 cm avant de subir la diffusion inélastique. On a tendance de ce fait à sous-estimer les changements d'énergie.

Considérons par exemple, un neutron d'énergie E_o qui gagne une énergie ΔE dans la diffusion :

Temps de vol des neutrons par mètre			Energie correspondante
avant	diffusion	T_o	E_o
après	diffusion	$T_f = T_o - \Delta T$	$E_f = E_o + \Delta E$
valeur	apparente	$T_a = T - \delta T$	$E_a = E_o + \delta E$

$$T_a = \frac{lT_o + LT_f}{l + L} \quad \text{donc} \quad \delta T = \Delta T \frac{L}{l + L}$$

$$\frac{\Delta E}{E_o} = 2\frac{\Delta T}{T_o} \qquad \frac{\delta E}{E_o} = \frac{2\delta T}{T_o} \qquad \text{donc :} \quad \frac{\Delta E}{\delta E} = \frac{\Delta T}{\delta T} = \frac{l + L}{L}$$

Il faut donc multiplier le changement d'énergie mesuré par le facteur $\frac{l + L}{L} = 280/230$. Nous avons multiplié les valeurs de Λ trouvées par la méthode des moindres carrés, pour tenir compte de cette correction, par ce même facteur.

Erreur sur les valeurs de Λ.

Il y a une erreur statistique due aux erreurs statistiques sur les points expérimentaux, et une erreur systématique due à l'incertitude sur l'angle de diffusion θ. La formule de Van Hove en effet, fait intervenir Λ par le produit ΛK^2 c'est-à-dire approximativement $\Lambda k^2 \theta^2$. L'erreur possible de 20' sur l'angle de diffusion se traduit donc par une erreur de 19 pour cent sur les valeurs de Λ déterminées avec un angle de diffusion de 3° 46' et de 15 pour cent pour $(\Lambda)_{850}$ déterminé avec un angle de diffusion de 4° 36'.

L'erreur sur Λ due aux erreurs statistiques sur les points expérimentaux a été calculée de la manière suivante : on détermine d'abord Λ par une méthode autre qu'une méthode de moindres carrés mais qui donne pratiquement le même résultat.

On cherche quelle est la valeur de Λ qui annule l'aire $A(\Lambda)$ comprise entre le spectre calculé et le spectre expérimental. Cette aire est composée de 3 parties, une partie centrale et des ailes, dont on ajoute les valeurs absolues. La somme algébrique de ces 3 quantités est nulle puisque tous les spectres ont la même aire totale. Il est alors facile de calculer l'erreur sur Λ, on connait l'erreur ΔA sur $A(\Lambda)$, ΔA est l'erreur statistique sur l'aire totale du spectre expérimental. On en déduit l'erreur statistique sur Λ.

Résultats. La figure 18 représente les résultats obtenus pour les valeurs de Λ, pour les trois températures étudiées.

Discussion de la méthode utilisée.

Les mécanismes de relaxation envisagés par Van Hove et De Gennes, ne tiennent compte que des processus qui conservent le spin total. Le temps de relaxation des fluctuations d'aimantation est alors infini à la température de Curie. Cependant, il existe également la relaxation spin-réseau qui ne conserve pas le spin total. Dans ces conditions le temps de relaxation n'est plus infini à la température de Curie, et il est possible qu'il soit suffisamment petit pour entraîner des changements d'énergie perceptibles des neutrons diffusés à cette température.

Nous allons montrer que notre procédé d'analyse, qui utilise comme spectre de référence, le spectre des neutrons diffusés à la température de Curie, a l'avantage d'isoler les mécanismes de relaxation qui conservent le spin total. Ce que nous mesurons en fait, c'est la différence entre les inverses des temps de relaxation à la température T et à la température de Curie.

Nous allons démontrer ceci avec les hypothèses suivantes :

- les neutrons incidents sont rigoureusement monocinétiques, soit $h\omega_o$ leur énergie. Cette hypothèse n'est nullement restrictive. La démonstration s'étend aisément au cas où l'on a un spectre incident.
- les changements d'énergie sont assez petits pour que les changements de moment soient indépendants des changements d'énergie.
- nous appelons τ le temps de relaxation des fluctuations d'aimantation à la température de Curie. Nous supposons que le temps de relaxation dû à des mécanismes qui ne conservent pas le spin total ne varie pas avec la température. Cette hypothèse est raisonnable puisque nous restons dans un intervalle de température étroit autour de T.

$$I_{Tc}(\omega') \sim \frac{\frac{1}{\tau}}{(\omega' - \omega_0)^2 + \left(\frac{1}{\tau}\right)^2}$$

$\hbar\omega'$ est l'énergie des neutrons diffusés.

A la température T, les fluctuations de l'aimantation évoluent plus rapidement dans le temps, le temps de relaxation dû à des mécanismes qui conservent le spin total est $\frac{1}{\Lambda K^2}$. Le temps de relaxation global τ' est défini par :

$$\frac{1}{\tau'} = \frac{1}{\tau} + \Lambda K^2$$

Les fluctuations d'aimantation évoluent donc suivant la loi $e^{-t\left[\frac{1}{\tau} + \Lambda K^2\right]}$ et le spectre des neutrons diffusés est proportionnel à :

$$I_\tau(\omega') \sim \frac{\frac{1}{\tau} + \Lambda K^2}{(\omega' - \omega_0)^2 + \left(\frac{1}{\tau} + \Lambda K^2\right)^2}$$

Nous allons montrer que cette dernière expression est la même que celle que l'on obtient en partant du spectre diffusé à la température de Curie et en ne tenant pas compte du temps τ, ce qui est notre procédé d'analyse.

$$I_{\tau \text{ calculé}}(\omega') \sim \int I_{Tc}(\omega_1) \frac{\Lambda K^2}{(\omega' - \omega_1)^2 + \Lambda^2 K^4} d\omega_1$$

$$I_{\tau \text{ calculé}}(\omega') \sim \int \frac{\frac{1}{\tau}}{(\omega_1 - \omega_0)^2 + \left(\frac{1}{\tau}\right)^2} \frac{\Lambda K^2}{(\omega' - \omega_1)^2 + \Lambda^2 K^4} d\omega_1$$

$$= \int \frac{\frac{1}{\tau}}{u^2 + \left(\frac{1}{\tau}\right)^2} \frac{\Lambda K^2}{(\omega' - \omega_0 - u)^2 + \Lambda^2 K^4} du$$

$$u = \omega_1 - \omega_0$$

Cette expression est le produit de convolution des transformées de Fourier des fonctions :

$$e^{-\frac{1}{\tau}} \quad \text{et} \quad e^{-\Delta K^2 t}$$

Elle est donc égale à la transformée de Fourier de leur produit :

$$e^{-t\left(\frac{1}{\tau} + \Delta K^2\right)}$$

Cette transformée de Fourier est égale à : $\frac{\frac{1}{\tau} + \Lambda K^2}{(\omega' - \omega_0)^2 + \left(\frac{1}{\tau} + \Lambda K^2\right)^2}$. $I_{\tau \text{ calculé}}(\omega')$ a donc bien la même forme que $I_\tau(\omega')$.

Comparaison avec les prévisions théoriques.

Nous avons porté sur la figure 18, les valeurs obtenues pour Λ expérimentalement, ainsi que les valeurs prévues théoriquement. Les prévisions théoriques ont été faites par De Gennes [8] en utilisant différents modèles :

- le modèle de Heisenberg ;
- un modèle simple de bandes dans lequel on ne tient pas compte des corrélations entre les positions des électrons porteurs de magnétisme.

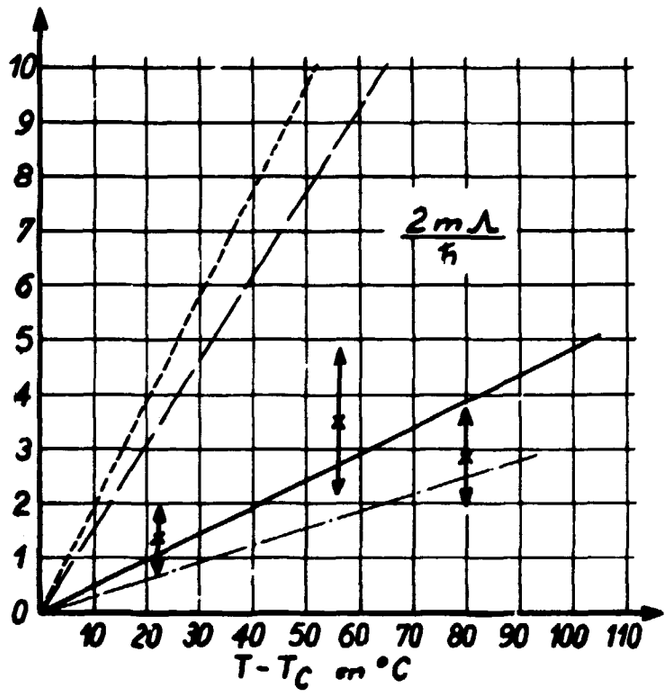


Fig. 18 - Valeurs de $\frac{2m\lambda}{h}$.

x points expérimentaux.
—·— courbe calculée. Modèle de Heisenberg, 1ers voisins.
——— courbe calculée. Modèle de Heisenberg, 2èmes voisins.
— — courbe calculée. Modèle de bandes, 1ers voisins.
- - - - courbe calculée. Modèle de bandes, 2èmes voisins.

Ces deux calculs ont été effectués avec l'approximation du champ moléculaire. Les temps de relaxation sont plus petits dans le modèle des bandes à cause de la mobilité des électrons.

Nos résultats excluent les valeurs trouvées dans ce modèle de bandes. Ils sont en bon accord avec les valeurs obtenues avec le modèle de Heisenberg. Les valeurs prévues diffèrent suivant que l'on attribue le magnétisme du fer à l'échange entre premiers ou seconds voisins. L'accord avec nos valeurs expérimentales est meilleur si l'on considère les seconds voisins, mais les approximations faites dans le calcul sont trop incertaines pour permettre une conclusion.

CHAPITRE IV

RÉSUMÉ ET CONCLUSION

Nous avons étudié expérimentalement, au moyen de la diffusion des neutrons, la fonction de corrélation entre les spins dans le fer a, au voisinage de la température de Curie. Cette étude comprend la dépendance spatiale de la fonction de corrélation, et son évolution dans le temps.

La dépendance spatiale est obtenue en mesurant la variation de la section efficace avec la longueur d'onde des neutrons. Nous avons montré que les valeurs des sections efficaces sont bien représentées par la formule de Van Hove, donc vérifié la forme asymptotique en $\frac{e^{-k_1 r}}{r}$ de la fonction de corrélation.

Nous avons mesuré le paramètre K_1 qui définit la portée des corrélations à des températures allant jusqu'à 80°C, au-dessus de la température de Curie. Nous avons en particulier montré que les corrélations ont une portée infinie à la température de Curie, $(K_1)_{T_c} = 0$. Les valeurs que nous obtenons expérimentalement pour K_1 aux températures supérieures à la température de Curie nous amènent à conclure, si on utilise les prévisions théoriques existantes, que le magnétisme du fer a est dû à l'échange entre seconds voisins. Ce résultat confirmerait une suggestion de Neel. Cependant, avant de se prononcer définitivement, il serait utile de connaître les résultats d'une étude théorique plus détaillée.

Nous avons obtenu l'évolution dans le temps de la fonction de corrélation en déterminant les changements d'énergie que subissent les neutrons lorsqu'ils sont diffusés par le fer porté à des températures voisines de la température critique.

Nous avons mesuré le paramètre Λ qui intervient dans l'équation de diffusion à laquelle obéit l'évolution dans le temps des fluctuations d'aimantation. Nos valeurs expérimentales sont en bon accord avec les valeurs calculées par De Gennes dans le modèle de Heisenberg, et excluent les valeurs calculées par ce même auteur dans un modèle de bandes.

Weiss et de Marco [25] ont mesuré récemment le nombre d'électrons dans la bande 3d des métaux de transition du premier groupe. Pour le fer, ils trouvent le résultat surprenant de $2,3 \pm 0,3$. Ce résultat est en accord avec une théorie de Mott et Stevens [26] selon laquelle le fer et le chrome ont une bande 3d peu remplie, et dans laquelle les électrons magnétiques du fer et du chrome ne participent pas à la conduction. Il serait normal dans ce cas, que nous trouvions les valeurs prévues avec le modèle de Heisenberg.

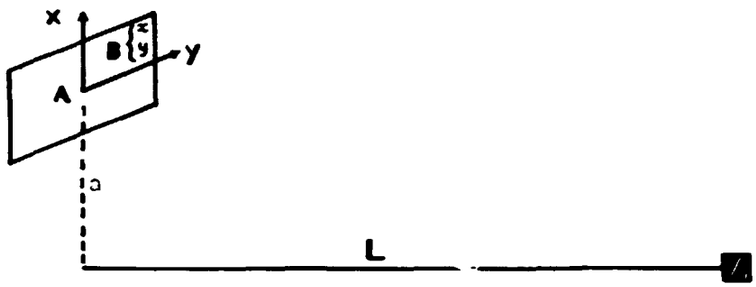
Il sera très intéressant d'effectuer les mêmes expériences dans le cas du nickel. Le nombre d'électrons 3d dans ce métal est selon Weiss égal à $9,5 \pm 0,3$. D'après Mott, les électrons magnétiques du nickel participent à la conduction. Les valeurs des temps de relaxation des fluctuations d'aimantation peuvent être dans ce cas sensiblement différentes. Mais la section efficace de diffusion critique dans le nickel dont le moment magnétique est de 0,6 magnéton de Bohr par atome est beaucoup plus petite que dans le cas du fer et son étude nécessite de très hauts flux de neutrons.

APPENDICE I

Calcul de la correction d'ouverture angulaire.

Pour effectuer cette correction, nous négligeons la divergence angulaire du faisceau incident (2 degrés dans les expériences faites avec un spectre large, 80' dans les expériences faites avec un spectre étroit) devant la divergence angulaire du faisceau de neutrons détectés (2 degrés). En effet, dans le faisceau incident, le nombre de neutrons ayant une trajectoire inclinée décroit avec l'angle d'inclinaison, alors que tout neutron pénétrant dans la fenêtre d'entrée des compteurs est détecté avec une égale probabilité quelle que soit sa position par rapport à la fenêtre.

Nous supposons de plus l'échantillon ponctuel.



Pour chaque point de la fenêtre d'entrée des compteurs, l'angle de diffusion est différent.

Nous prenons comme origine des coordonnées, le point A, milieu de la fenêtre. Soient :

a	la hauteur du point A par rapport au faisceau ;
$2x_o$, $2y_o$	les dimensions de la fenêtre rectangulaire ;
L	la distance du diffuseur aux compteurs ;
x, y	les coordonnées d'un point de la fenêtre, B.
x, y, a	sont petits devant L et $a > x_o$, $a > y_o$.

L'angle de diffusion φ qui correspond au point B est :

$$\varphi = \frac{\sqrt{y^2 + (a + x)^2}}{L}$$

On doit remplacer la section efficace différentielle $\frac{d\sigma}{d\Omega}$ par la moyenne :

$$\sigma_m^{\Omega} = \frac{1}{4x_o y_o} \int_{x=-x_o}^{x_o} \int_{y=-y_o}^{y_o} \frac{d\sigma}{d\Omega}\, dx\, dy = \frac{C}{4x_o y_o} \frac{1}{r_1^2} \iint \frac{1}{K_1^2 + \frac{4\pi^2\varphi^2}{\lambda^2}}\, dx\, dy$$

$$= \frac{B}{x_o y_o} \iint \frac{1}{p^2 + y^2 + (a + x)^2} dx\, dy$$

En posant :

$$n^2 = \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2} L^2$$

$$B = \frac{C}{r_1^2} \frac{\lambda^2}{4\pi^2} \frac{L^2}{}$$

On intègre d'abord par rapport à x. On trouve :

$$\sigma_m^{\Omega} = \frac{B}{4 x_o y_o} \int_{y=-y_o}^{y_o} \frac{1}{\sqrt{p^2 + y^2}} \text{ Arc tg } \frac{2 x_o}{\sqrt{p^2 + y^2}\left[1 + \frac{a^2 - x_o^2}{p^2 + y^2}\right]} dy$$

$$\approx \frac{B}{2 y_o} \int_{-y_o}^{y_o} \frac{dy}{p^2 + y^2 + a^2 - x_o^2}$$

$$= \frac{B}{y_o} \frac{1}{\sqrt{p^2 + a^2 - x_o^2}} \text{ Arc tg } \frac{y}{\sqrt{p^2 + a^2 - x_o^2}}$$

Posons :

$$\frac{a}{L} = \theta \qquad \frac{x_o}{L} = \Delta\theta$$

$$\sigma_m^{\Omega} = \frac{B}{y_o L} \frac{1}{\sqrt{\frac{\lambda^2 K_1^2}{4\pi^2} + \theta^2 - (\Delta\theta)^2}} \text{ Arc tg } \frac{\frac{y_o}{L}}{\sqrt{\frac{\lambda^2 K_1^2}{4\pi^2} + \theta^2 - \Delta\theta^2}}$$

Le rapport $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ est alors égal à :

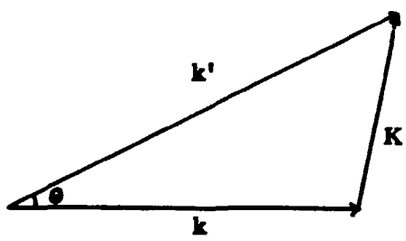
$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)} = \frac{r_1^2}{r_{1_{Tc}}^2} \frac{\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2 + \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2}}}{\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2}} \frac{\text{Arc tg } \frac{y_o}{L\sqrt{\theta^2 - (\Delta\theta)^2}}}{\text{Arc tg } \frac{y_o}{L\sqrt{\theta^2 - \Delta\theta^2 + \frac{\lambda^2 K_1^2}{4\pi^2}}}}$$

APPENDICE II

Calcul de l'expression $\sigma^{\Omega} = \int \frac{d\sigma^{\Omega}}{d\varepsilon} d\varepsilon$.

$$\sigma^{\Omega} = \frac{A}{r_1^2} \int \frac{k'}{k} \frac{1}{K^2 + K_1^2} \frac{\Lambda K^2}{\omega^2 + \Lambda^2 K^4} d\omega \quad , \quad A = \left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3\pi} S(S+1)$$

On tient compte de la variation de K avec les changements d'énergie :



$$k' - k = \Delta k$$

$$K^2 = (\Delta k)^2 + k^2 \theta^2 + k \Delta k \theta^2$$

$$\omega = \frac{\hbar}{2m} (k'^2 - k^2) \approx \frac{\hbar}{2m} \Delta k \, 2k = \left(\frac{2E}{m}\right)^{\frac{1}{2}} \Delta k$$

Posons :

$$\frac{2E\theta}{\hbar} = \alpha_o$$

$$\frac{2EK_1^2}{m} = \beta^2$$

$$\frac{\Lambda^2 m^2}{4E^2} = \frac{1}{\gamma^2}$$

a, B et γ ont les dimensions d'une fréquence :

$$\sigma^{\Omega} = A \frac{\Lambda}{r_1^2} \int_{-\infty}^{\infty} \left(1 + \frac{\omega\theta}{\alpha_o}\right) \frac{\omega^2 + \alpha_o^2 + \alpha_o \theta \omega}{[\omega^2 + \alpha_o \theta \omega + \alpha_o^2 + \beta^2] \left[\omega^2 + \frac{1}{\gamma^2} (\omega^2 + \alpha_o^2 + \alpha_o \theta \omega)^2\right]} d\omega$$

L'intégration donne :

$$\sigma^{\Omega}(\lambda) = \frac{A}{r_1^2} \frac{1}{\mu} \frac{\lambda^2}{2\pi\theta} \frac{1}{\sqrt{(1+\alpha)\left(\theta^2 + \frac{1}{\mu^2}\right)}} \times \frac{\sqrt{1+\alpha} + \sqrt{\theta^2 + \frac{1}{\mu^2}}}{2\theta \sqrt{(1+\alpha)\left(\theta^2 + \frac{1}{\mu^2}\right)} + (2+\alpha)}$$

avec :

$$\alpha = \frac{K_1^2 \lambda^2}{4\pi^2 \theta^2}$$

$$\mu = \frac{2m\Lambda}{\hbar}$$

(On remarque que si μ tend vers 0, l'expression trouvée tend bien vers l'expression :

$$\left(\frac{ge^2}{m_o c^2}\right)^2 \frac{2}{3} \frac{S(S+1)}{r_1^2} \frac{1}{K^2 + K_1^2}$$

obtenue dans le cas élastique).

A la température de Curie, la diffusion est élastique :

$$\sigma_{Tc}^{\Omega}(\lambda) = \frac{\pi A}{r_1^2} \frac{\lambda^2}{4\pi^2\theta^2}$$

Le rapport $\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I_T(\lambda)}$ est égal à :

$$\frac{I_{Tc}(\lambda)}{I(\lambda)} = \frac{\sigma_{Tc}(\lambda)}{\sigma_T(\lambda)}$$

$$= \frac{r_{1T}^2}{r_{1Tc}^2} \sqrt{1 + \theta^2\mu^2} \left[1 + \alpha - \frac{\alpha\theta\sqrt{(1+\alpha)}}{2\theta\sqrt{1+\alpha} + 2\sqrt{\theta^2 + \frac{1}{\mu^2}}} \right]$$

REMERCIEMENTS

Une constante et amicale collaboration avec Monsieur Jacrot a permis de mener à bien les expériences décrites ici. Qu'il veuille trouver ici l'expression de ma reconnaissance.

Il m'est impossible d'énumérer toutes les personnes qui m'ont apporté une aide dans la réalisation de ce travail. Je suis heureuse de leur exprimer ici ma gratitude. Je remercie en particulier les membres du Service de Physique nucléaire, du Service de Physique des Solides, les membres de l'équipe de la pile EL 2 et du Service de Documentation.

Je remercie Monsieur le Professeur F. Perrin, pour l'hospitalité qui m'a été accordée au Commissariat à l'Energie atomique.

BIBLIOGRAPHIE

1 - HALPERN, JOHNSON - Phys. Rev., 1939, 55, 898.

2 - VAN HOVE - Phys. Rev., 1954, 95, 249.

3 - VAN HOVE - Phys. Rev., 1954, 95, 1374.

4 - NEEL - J. Phys. Radium, 1932, 3, 160.

5 - PALEVSKY, HUGHES - Phys. Rev., 1956, 92, 202.

6 - SQUIRES - Proc. Phys. Soc., 1954, 67, 248.

7 - ORNSTEIN, ZERNIKE - Phys. Z., 1918, 19, 134.

8 - DE GENNES - Thèse. Université de Paris.

9 - ELLIOTT, MARSHALL - Rev. Mod. Phys., 1958, 30, 75.

10 - WILKINSON, SHULL - Phys. Rev., 1956, 103, 516.

11 - GERSH, SHULL, WILKINSON - Phys. Rev., 1956, 103, 525.

12 - GALULA, JACROT, MANGIN - Colloque Pierre Weiss de magnétisme, Strasbourg, juillet 1957.

13 - GALULA, JACROT, NETTER - J. Phys. Radium, 1954, 15, 595.

14 - GALULA, NETTER - J. Phys. Radium, 1955, 16, 233.

15 - GUILLON, KADJAR - L'Onde électr., 1958, 38, 641.

16 - NEEL - Ann. Phys., 1932, 18, 5.

17 - POTTER - Proc. roy. Soc., 1934, A 146, 362.

18 - SUCKSMITH, PEARCE - Proc. roy. Soc., 1933, A 167, 189.

19 - LOWDE - Rev. Mod. Phys., 1958, 30, 69.

20 - NEEL - Congrès de magnétisme, Strasbourg, mai 1939.

21 - GRANDIDIER - Rapport S.P.M. n° 458 C.E.N. Saclay.

22 - ERICSON, JACROT - C.R. Acad. Sci., 1958, 246, 1018.

23 - GOBERT, JACROT - J. Phys. Radium, 1958, 19, 51 A.

24 - TARABELLA, BIBRON - L'Onde électr., 1955, 35, 682.

25 - WEISS, DE MARCO - Rev. Mod. Phys., 1958, 30, 59.

26 - MOTT, STEVENS - Phil. Mag., 1957, 2, 1364.

TABLE DES MATIÈRES

Pages

CHAPITRE I -

Généralités sur la diffusion des neutrons, sections efficaces 3

CHAPITRE II -

Etude de la dépendance spatiale de la fonction de corrélation 10

CHAPITRE III -

Etude de la cinétique des fluctuations d'aimantation 27

CHAPITRE IV -

Résumé et conclusion 38

Appendice I 39

Appendice II 41

Remerciements 43

BIBLIOGRAPHIE 44

FIN