

## Calibration absolue par la mesure du faisceau direct

### 1- Introduction

Les différentes méthodes permettant de faire des mesures absolues en diffusion de neutrons aux petits angles (DNPA) sont décrites<sup>1,2</sup> dans des articles de revue assez anciens.

La plus simple est d'utiliser la diffusion de l'eau déjà utilisée pour normaliser les réponses des différentes cellules du multidétecteur. Pour des raisons de diffusions multiples, expliquées ailleurs,<sup>3</sup> l'eau ne peut être utilisée que comme un étalon secondaire<sup>4</sup> ce qui nécessite que chaque spectromètre soit étalonné pour la longueur d'onde utilisée. En outre, la température de l'eau ne doit pas être trop différente de celle utilisée lors de l'étalonnage.<sup>5</sup> En fait tout échantillon hydrogéné comme le plexiglas ou le cyclohexane (dont la section efficace incohérente est très voisine de celle de l'eau) pourrait être utilisé. Il aurait l'avantage de ne pas avoir de liaison hydrogène et donc d'avoir une diffusion moins sensible à la température.

Si ces conditions ne sont pas réunies, la méthode la plus rapide consiste à faire une mesure directe du nombre de neutrons dans le faisceau incident en évitant la saturation de l'électronique du détecteur. Cette deuxième méthode est rappelée dans le chap. 2. La procédure à suivre avec ses spécificités pour PACE, PAXE et PAXY est décrite chap. 3. Chapitre 4, les objections à cette méthode qui ont été soulevées sont discutées. En conclusion il est montré que la précision sur les mesures absolues ainsi obtenues est inférieure à 5%.

### 2- Principe de la méthode<sup>2</sup>

La section efficace différentielle (par unité d'angle solide) et par unité de volume  $\sigma(q)$  d'un échantillon, de section supérieure à celle,  $A$ , du faisceau de neutrons incident, est reliée à l'intensité diffusée  $I_N(q)$ , débarrassée du bruit de fond, par la relation :

$$I_N(q) = \Phi \varepsilon A \Delta \Omega \cdot T \cdot e \cdot \sigma(q) = C(\lambda) \cdot T \cdot e \cdot \sigma(q) \quad (1)$$

où  $q$  est le vecteur de diffusion,  $\Phi$  le flux de neutrons en  $\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon$  l'efficacité du détecteur,  $\Delta \Omega$  l'angle solide de la cellule du compteur,  $T$  et  $e$  (cm) la transmission et l'épaisseur de l'échantillon. Les paramètres  $\Phi$  et  $\varepsilon$  dépendent de la longueur d'onde  $\lambda$ .

Du point de vue dimension si  $A$  est en  $\text{cm}^2$ ,  $I_N(q)$  un nombre de neutrons par seconde\*,  $T$ ,  $\varepsilon$  et  $\Delta \Omega$  sont sans dimension,  $\sigma(q)$  est en  $\text{cm}^{-1}$  soit la dimension du carré d'une longueur de diffusion  $a_i$  par unité de volume  $V$  :

$$\sigma(q) = \frac{1}{V} \sum a_i a_j e^{iq(\tau_i - \tau_j)}$$

Faire une mesure absolue revient à mesurer  $C(\lambda)$ . La procédure rapide, décrite ici, consiste à calculer  $\Delta \Omega$  et à mesurer  $\Phi \varepsilon A$ , le nombre de neutrons tombant directement sur le compteur placé dans le faisceau direct **sans le saturer**.

---

\* Dans la pratique l'unité de temps sera remplacée par l'unité moniteur.

### 3- Procédure pratique

Maintenant nous allons déterminer  $\Delta\Omega$ , décrire la mesure de  $\Phi\varepsilon A$  et introduire ces données dans les programmes de traitement de DNPA.

a- Le calcul de  $\Delta\Omega$  ne pose pas de problème pour un multicompteur normal au faisceau de neutrons. C'est le rapport de la surface  $s$  d'une cellule au carré de la distance échantillon détecteur  $D$

$$\Delta\Omega = s/D^2$$

Si  $D$  est exprimée en cm, la valeur de  $s$  est  $0.25 \text{ cm}^2$  sur PAXY,  $1 \text{ cm}^2$  pour PAXE et de  $2\pi.r.\Delta r$  pour l'anneau  $r$  de largeur  $\Delta r$  de PACE. Pratiquement dans le cas de PACE, comme  $\Delta r=1 \text{ cm}$  et que les programmes de traitement divisent systématiquement les intensités par  $r$ , il suffit de prendre  $s=2\pi \text{ cm}^2$ .

b- La détermination de  $\Phi\varepsilon A$  pose plus de problème car dès que le nombre de neutrons arrivant sur les cellules de comptage est trop élevé l'ensemble électronique détecteur du LLB sature et perd déjà 1.5% des coups dès que ce nombre dépasse  $10^5$  coups par minute. Pour éviter cette saturation, il est nécessaire d'atténuer le faisceau d'un facteur  $T_a$  et de mesurer d'une part, le faisceau direct atténué  $I_N^a(0)=T_a\Phi\varepsilon A$ , et d'autre part  $T_a$ .

Les atténuateurs utilisés au LLB sont des lames de plexiglas (polyméthyle méthacrylate ou PMMA) de différentes épaisseurs (1 à 15 mm pour  $20 > \lambda > 3.5 \text{ \AA}$ ). Ce matériau est choisi pour sa facilité de mise en oeuvre, sa non-absorption de l'hydrogène et une atténuation qui produit peu de rayonnement  $\gamma$ . Son épaisseur est déterminée de telle sorte que le faisceau atténué délivre un nombre de coups par minute inférieur à  $10^5$ .

Comme chaque configuration du spectromètre et chaque longueur d'onde nécessite une mesure différente, une bonne mesure de  $T_a$  doit être rapide. C'est pourquoi la méthode choisie consiste à mesurer la somme de l'intensité diffusée, hors du faisceau direct, sur tout le multidétecteur par un diffuseur secondaire puissant avec ou sans atténuateur. En effet, l'intensité diffusée dans une cellule est au mieux  $10^5$  fois plus faible que celle délivrée par le faisceau direct. Ce diffuseur doit délivrer une intensité suffisante pour négliger le bruit de fond quand le faisceau est atténué et ne pas saturer l'électronique lorsque le faisceau n'est pas atténué. C'est le cas d'un graphite fritté, d'environ 2 cm d'épaisseur, bien adapté aux flux d'Orphée (LLB) et sans doute aux réacteurs de flux moindre.

c- Dans les programmes de traitement des mesures de DNPA, PARESU ou PASIDUR, il suffit d'introduire ces données sous la forme d'un facteur multiplicatif  $F$  pour obtenir  $\sigma(q)$  en  $\text{cm}^{-1}$  :

$$F = \frac{T_a \cdot I_{\text{H}_2\text{O}}}{I_N^a(0) \cdot \Delta\Omega \cdot e'}$$

$I_N^a(0)$  est la somme des neutrons du faisceau direct atténué, normée au moniteur. Notons que pour PACE cette mesure doit être effectuée sur les anneaux qui n'ont pas la même réponse que les cellules centrales ce qui exige de tourner la base du détecteur.

$I_{\text{H}_2\text{O}}$  est l'intensité du spectre plat de l'eau, bruit de fond soustrait, utilisée pour la normalisation des cellules du détecteur. Comme les programmes norment les spectres

des échantillons par celui de l'eau, il faut bien en tenir compte dans F. L'idéal serait d'utiliser pour  $I_{H_2O}$  la valeur trouvée à l'endroit où  $I_N^a(0)$  a été mesurée. C'est possible sur PACE mais c'est plus compliqué sur PAXE ou PAXY car cette mesure est faite sous le piège du faisceau direct. Comme ces compteurs ont un gradient d'efficacité du centre au bord, l'erreur sera minimisée en mesurant l'eau à l'endroit le plus proche du piège où le signal de l'eau est déjà plat.

'e' doit avoir la valeur 1 si dans les programmes l'épaisseur des échantillons est entrée en cm et 0.1 si elle est entrée en mm ce qui est souvent le cas.

### .3- Discussion

Une critique complète de cette méthode a été faite par P. Lindner.<sup>6</sup> Elle est rappelée ci-dessous :

42

*P. Lindner*

#### 4.1. Direct determination of $C(\lambda)$

.....

Some problems are associated, however, with the described method for determining  $C(\lambda)$  (Lindner, 1998b). The attenuation factor  $T_a$  is difficult to evaluate precisely: the scattering measurement with a strong scatterer (step a) might be affected by multiple scattering. Furthermore, there might be a wavelength change when using a protonated absorbent (e.g. PMMA in neutron scattering), due to inelastic effects. The absorbent (attenuator) might also increase the intensity due to higher harmonics of the wavelength  $\lambda$ , relative to the 1st order. Inherent mechanical imprecision (moving attenuator and collimating guides IN and OUT) might affect the quality of the measurement. In any case, a correction for dead-time losses is crucial.

In summary,  $C(\lambda)$  only can be measured with a relative precision of typically 5–10%. But its determination does not 'cost' much time and it is a rapid quality check of the instrument

.....

Discutons ces remarques point par point.

**The attenuation factor  $T_a$  is difficult to evaluate precisely: the scattering measurement with a strong scatterer (step a) might be affected by multiple scattering.**

La diffusion multiple d'un échantillon est un phénomène propre à l'échantillon (libre parcours moyen, épaisseur, longueur de diffusion etc.) et non à l'intensité du faisceau. Si on double le flux incident, on double l'intensité diffusée par l'échantillon, diffusion multiple ou pas.

**Furthermore, there might be a wavelength change when using a protonated absorbent (e.g. PMMA in neutron scattering), due to inelastic effects.**

1- Au premier ordre, une mesure de la transmission par un échantillon hydrogéné par temps de vol montre que la longueur d'onde incidente reste inchangée. En effet une telle mesure est effectuée en quelques minutes, les effets inélastiques (seulement

visibles, hors du faisceau direct, après des heures de comptage) ne touchent qu'un nombre de neutrons totalement négligeable par rapport au nombre de ceux transmis sans collision. Ce n'est pas parce que la valeur de la transmission dépend de la longueur d'onde que cette dernière est changée (voir l'annexe).

2- Au deuxième ordre, il faut considérer la largeur en longueur d'onde ( $\sim 0.1\lambda$ ) du faisceau délivré par un sélecteur mécanique. Comme l'atténuation est d'autant plus grande que la longueur d'onde est élevée, le spectre transmis comporte moins de grandes longueurs d'onde ce qui au pire correspond à une sous-estimation inférieure à 2% du produit  $\Phi\varepsilon$  (voir annexe).

Notons que toute méthode d'atténuation du faisceau incident conduit à une déformation du spectre transmis. C'est le cas pour un absorbant réel car la section efficace d'absorption dépend de la longueur d'onde. C'est aussi le cas d'un absorbant total percé de petits trous. En effet après un guide et (ou) un sélecteur mécanique il y a toujours une corrélation entre l'angle de sortie de neutrons et leur longueur d'onde; ce qui fait que le spectre dépend de la disposition des trous. Mais ce sont des effets du deuxième ordre à ne considérer que si on vise une précision bien supérieure à 5%.

**The absorbent (attenuator) might also increase the intensity due to higher harmonics of the wavelength  $\lambda$ , relative to the 1<sup>st</sup> order.**

La longueur d'onde est obtenue à l'aide d'un sélecteur mécanique. Sa mesure faite par temps de vol ne montre pas l'existence d'harmoniques. Si tel était le cas il faudrait modifier le sélecteur ou disposer un filtre les éliminant.

**Inherent mechanical imprecision (moving attenuator and collimating guides IN and OUT) might affect the quality of the measurement.**

C'est vrai, mais nos mesures n'ont jamais permis de montrer une influence de ces imprécisions mécaniques sur la reproductivité des résultats. Car ces imprécisions donnent lieu à des erreurs inférieures à celles dues à la statistique sur les comptages. Si ce n'était pas le cas, il faudrait refaire les calibrations à chaque retour sur une configuration quelle que soit la méthode utilisée.

**In any case, a correction for dead-time losses is crucial.**

C'est parfaitement exact. C'est la raison pour laquelle un diffuseur secondaire est nécessaire pour mesurer l'atténuation. Le choix de ce diffuseur secondaire correspond au maximum d'intensité diffusée permettant de négliger les effets de saturations de l'électronique du détecteur utilisé. Si un échantillon de graphite fritté est bien adapté aux appareils de DNPA autour d'Orphée (LLB), il sature D22 (modèle 1997) par exemple. Pour l'ILL, il faut sans doute trouver un diffuseur secondaire moins intense.

Au LLB nos mesures ont montré que si l'intensité dans le faisceau direct était inférieure à 100 000 coups par minute la saturation était limitée à 1.5%. C'est la valeur maximum à considérer lors des mesures absolues.

#### **4- Conclusion : précision des mesures.**

Les causes principales d'erreur sont la saturation de l'électronique qui peut être limitée à 1.5% et l'erreur sur la mesure du faisceau direct qui est au pire de 2% (cf.

annexe). Il est donc raisonnable de conclure à une erreur totale inférieure à 5%, chiffre donné<sup>1</sup> pour les autres méthodes utilisées en DNPA.

## Annexe

### Effet sur la longueur d'onde d'un atténuateur en plexiglas

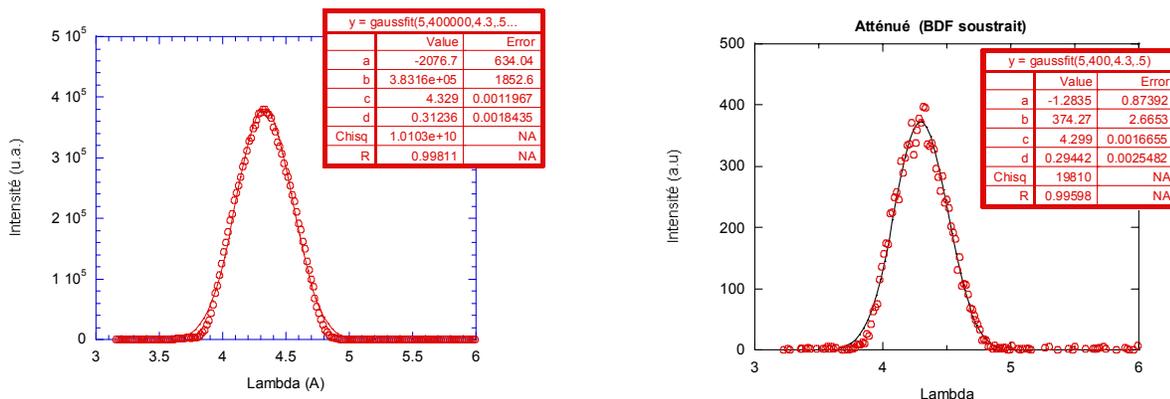
A. Brûlet, D. Lairez, J.P. Cotton, LLB, décembre 2003.

L'objet de la mesure est de voir si dans un absorbant hydrogéné, il n'y a pas un déplacement du spectre des longueurs d'onde vers les plus grandes suivant un phénomène de thermalisation des neutrons à l'ambiante suivant un phénomène analogue à celui rencontré dans les sources à hydrogène liquide. L'épaisseur de ces sources étant supérieure à 100 fois le libre parcours moyen  $\Lambda$ , ce sont les neutrons qui ont subi un grand nombre de diffusions multiples qui sont majoritaires dans le faisceau.

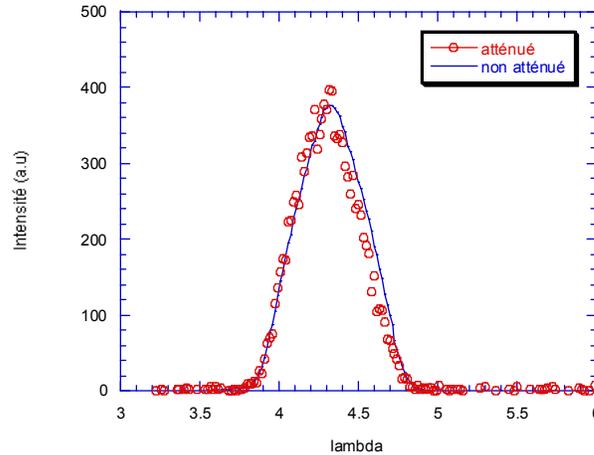
La mesure est faite par temps de vol sur le spectromètre PACE. Comme dans le plexiglas  $\Lambda$  dépend peu de la longueur d'onde, nous avons utilisé le plus épais (14mm) utilisé sur PACE pour atténuer les faisceaux les plus intenses qui sont obtenus avec les longueurs d'onde les plus courtes. La longueur d'onde est de  $4.3 \pm 0.5 \text{ \AA}$  c'est la plus courte définie par le sélecteur mécanique dans une configuration standard.

## Résultats

La figure ci-dessous montre les faisceaux obtenus, atténué et non atténué, et le résultat de leur ajustement par une gaussienne.



Ces ajustements indiquent que la longueur d'onde moyenne diminue très faiblement avec l'atténuation passant de 4.33 à 4.30 Å (-0.7%) tandis que l'écart quadratique moyen diminue de 0.31 à 0.29 Å (-7%). Les erreurs relatives sur ces paramètres sont inférieures à  $10^{-3}$ . Une légère déformation de la distribution en longueur d'onde du faisceau transmis est visible, ci-dessous, lorsque les spectres atténués ou non sont tracés sur la même figure.



Cette comparaison est obtenue en divisant l'intensité du faisceau non atténué par 1025, ce facteur étant le rapport des maxima des deux gaussiennes.

### Discussion

1- Comme le faisceau atténué n'est pas élargi, ce phénomène ne peut pas être attribué à de la diffusion quasi-élastique. Comme le faisceau n'est pas déplacé du côté des faibles longueurs d'onde, il ne peut s'agir d'une thermalisation des neutrons (réchauffement dans le plexiglas des neutrons froids issus de la source à hydrogène). En fait, il doit s'agir d'un effet secondaire de la section efficace de diffusion inélastique dans le PMMA qui est d'autant plus élevée que la longueur d'onde est grande : les neutrons transmis, eux, ne subissent pas un changement de longueur d'onde mais ils sont d'autant moins nombreux que la longueur d'onde est grande.

La mesure faite ici montre que si on admet comme négligeable la largeur en longueur d'onde du faisceau (hypothèse adoptée dans pratiquement toutes les expériences de diffusion de neutrons aux petits angles), l'atténuation par le plexiglas ne pose pas de problème.

2- Par contre, si on considère que le flux délivré par le sélecteur mécanique  $\Phi(\lambda)$  a une largeur en longueur d'onde non négligeable, il faut également considérer la dépendance en longueur d'onde de l'efficacité  $\varepsilon(\lambda)$  et de l'atténuation  $T_a(\lambda)$ . L'atténuation vraie  $T_a^v$  du nombre de coups au niveau de l'échantillon doit alors s'écrire :

$$T_a^v = \frac{\int T_a(\lambda)\Phi(\lambda)\varepsilon(\lambda)d\lambda}{\int \Phi(\lambda)\varepsilon(\lambda)d\lambda} \quad (A1)$$

Alors que dans la procédure expérimentale, l'atténuation  $T_a^g$  est mesurée par le rapport de l'intensité intégrée diffusée par le graphite avec et sans atténuateur (cf. annexe). C'est une moyenne différente, soit :

$$T_a^g = \frac{\int S_g(\theta, \lambda)T_a(\lambda)\Phi(\lambda)\varepsilon(\lambda)d\lambda}{\int S_g(\theta, \lambda)\Phi(\lambda)\varepsilon(\lambda)d\lambda} \quad (A2)$$

où  $S_g(\theta, \lambda)$  est la section efficace de diffusion du graphite. La différence entre  $T_a^g$  et  $T_a^v$  est la principale source d'erreur de cette méthode. Dans cette expérience nous avons mesuré  $T_a^v$  en utilisant l'éq. A1 et obtenu  $8.95 \cdot 10^{-4}$ . Ce nombre est à comparer à  $9.09 \cdot 10^{-4}$ , valeur de  $T_a^g$  déduite des courbes d'atténuation du plexiglas obtenues<sup>7</sup> avec le graphite. Ce qui conduit à une erreur inférieure à 2% pour le plexiglas le plus épais.

## Références

---

<sup>1</sup> G.D. Wignall, F. Bates, J. Appl. Cryst. **20**(1987)28

<sup>2</sup> J.P. Cotton, - *Introduction to Scattering Experiments*, Chap. II de *Neutron, X-Ray and Light Scattering*, p.19, P. Lindner, T. Zemb Ed., Elsevier, North-Holland, Delta series (1991).

<sup>3</sup> P. Calmettes dans *Diffusion de neutrons aux petits angles*, ch. VI, p.83, J.P. Cotton et F. Nallet Eds, J. Physique IV, Pr1 (1999)

<sup>4</sup> M. Ragnetti, D. Geiser, H. Höcker, R. Oberthür, Makromol. Chem., **186**(1985)1701.

<sup>5</sup> R.P. May, K. Ibel, J. Haas, J. APPL. Cryst., **15**(1982)15.

<sup>6</sup> P. Lindner dans *Neutrons, X-Rays and Light*, P. Lindner and T. Zemb Eds, Elsevier, North-Holland, Delta series (2002).

<sup>7</sup> Données de A. Lapp sur PAXY.