

Une brève histoire de la diffusion de neutrons en France

Résumé Les premières expériences de diffraction de neutrons ont été réalisées en 1944 à Oak Ridge (TN, E.-U.), douze ans après la découverte du neutron. Le premier réacteur de recherche français a été construit en 1952 à Saclay. C'est le démarrage de l'Institut Laue-Langevin en 1971 à Grenoble qui a permis le développement de la diffusion de neutrons, laquelle est devenue une des plus puissantes méthodes d'étude de la matière. Actuellement, les réacteurs nucléaires sont graduellement remplacés par des sources à spallation ou par des sources à faible flux, début d'une nouvelle ère pour la diffusion de neutrons.

Mots-clés Diffusion de neutrons, histoire, réacteurs de recherche, sources à spallation, thermalisation des neutrons, grandes installations.

Abstract A brief history of neutron scattering in France

The first neutron diffraction experiments were performed in 1944 at Oak Ridge (TN, USA), twelve years after the discovery of the neutron. The first French research reactor was built in 1952 in Saclay. It was the start of the Laue-Langevin Institute in 1971 in Grenoble that enabled the development of neutron scattering, which has become one of the most powerful methods for studying matter. Currently, nuclear reactors are gradually being replaced by spallation sources or by low-flux sources, the beginning of a new era for neutron scattering.

Keywords Neutron scattering, history, research reactors, spallation sources, neutron thermalisation, large facilities.

Partout dans le monde, l'histoire de la diffusion de neutrons est étroitement liée à celle du développement des réacteurs nucléaires, qui a pris son essor après la Seconde Guerre mondiale.

Le neutron est une particule neutre et avec un moment magnétique (spin), ce qui le rend très intéressant pour sonder la structure et la dynamique de la matière condensée, à condition de ramener son énergie à des valeurs comparables à celles de l'agitation thermique. En effet, l'énergie du neutron est inversement proportionnelle au carré de la longueur de l'onde associée. À température ambiante, la longueur d'onde est égale à environ 0,18 nm. En cela, il se distingue des rayons X pour lesquels les longueurs d'onde de l'ordre du nm sont associées à des énergies très grandes.

L'origine de la diffusion de neutrons : l'époque des pionniers

Les premières idées d'expériences de diffraction sont apparues dès la découverte du neutron par James Chadwick en 1932, couplée à la découverte en 1923 par Louis de Broglie de la relation qui lie la vitesse d'une particule en mouvement à la longueur de l'onde associée, dans le cadre de la dualité onde-particule. C'est Enrico Fermi qui le premier a parlé de la thermalisation des neutrons. Les neutrons thermalisés à la température ambiante sont capables de sonder la matière condensée puisque leur longueur d'onde est comparable aux distances interatomiques et leur énergie est, par définition, celle de la dynamique du réseau cristallin. Pourtant, les premières expériences de diffraction n'ont été réalisées qu'en 1944 au réacteur X-10 à Oak Ridge (Tennessee, E.-U.), en marge du projet Manhattan, par Ernest Wollan, rejoint en 1946 par Clifford Shull, prix Nobel de physique en 1994 (voir encadré).

En France, suite à la pile Zoé, construite dès 1948 à Fontenay-aux-Roses au sein du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) par Lew Kowarski et Frédéric Joliot-Curie, c'est à Saclay qu'est né en 1952 le premier réacteur de recherche sous le nom

Les dates principales

- 1923 - Louis de Broglie établit la relation entre longueur d'onde et vitesse d'une particule
- 1932 - Découverte du neutron par James Chadwick
- 1944 - Premières expériences de diffraction par Ernest Wollan à Oak Ridge
- 1948 - Premier réacteur français : Zoé, à Fontenay-aux-Roses
- 1952 - Premier réacteur de recherche français : EL2 à Saclay
- 1957 - Réacteur EL3 à Saclay comprenant une source froide
- 1963 - Réacteur Siloé à Grenoble
- 1971 - Réacteur ILL à Grenoble
- 1980 - Réacteur Orphée à Saclay
- 1984 - Débuts de la source à spallation ISIS
- 1994 - Création de la Société Française de Neutronique
- 1997 - Arrêt du réacteur Siloé
- 2014 - Début de la construction de la source européenne à spallation (ESS) à Lund (Suède)
- 2019 - Arrêt du réacteur Orphée
- 2021 - Premières expériences de diffraction sur la source SONATE à Saclay

d'EL2, le L désignant, non sans ambiguïté, l'eau lourde choisie comme modérateur au lieu de l'eau légère. Le but des expériences était l'obtention de données sur les sections efficaces des isotopes ou l'étude des propriétés du neutron, donc essentiellement dans le domaine de la physique nucléaire.

C'est en 1957 que, toujours à Saclay, le réacteur EL3 a remplacé la pile EL2. Le combustible y était l'uranium naturel. Au-delà d'une puissance sept fois supérieure (17,5 MW au lieu de 2,5 MW pour EL2), et d'un flux dix fois plus élevé, la grande innovation était la présence d'une source froide d'hydrogène liquide qui, installée en 1959, permettait de diminuer les vitesses des neutrons, donc de déplacer la distribution de longueurs d'onde vers des valeurs plus élevées.

L'utilisation de sources capables de thermaliser les neutrons à 20 K (neutrons « froids ») ou 2 000 K (neutrons « chauds »)

augmente de manière substantielle le domaine des longueurs d'onde disponibles. Des dispositifs mécaniques, issus des techniques de temps de vol, permettent aussi de trier les neutrons suivant leur vitesse, donc de sélectionner leur longueur d'onde et leur énergie. De cette manière, la gamme des longueurs d'onde disponible s'étend de 0,05 à 2 nm. D'après Bernard Jacrot, l'installation d'une source froide dans le réacteur EL3 était le résultat de discussions avec Peter Egelstaff, un autre pionnier de la technique.

La diffusion de neutrons devient une méthode générale de recherche

Dans l'ambiance optimiste qui prévalait au cours des deux à trois décennies après la guerre, les réacteurs et l'énergie nucléaires étaient plébiscités. Aussi bien à l'ouest qu'à l'est de l'Europe, de nombreux réacteurs ont été construits dans presque tous les pays, souvent financés par les États-Unis d'Amérique ou par l'Union soviétique. Dans certains cas, des tubes d'extraction de neutrons étaient installés de manière à pouvoir y réaliser des expériences de diffraction.

Les spécificités de la diffusion neutronique ont fait apparaître cette technique comme complémentaire des rayons X, surtout à cause de la plus grande pénétration de la matière par les neutrons, de leur moindre énergie, de leur discrimination isotopique et de leur interaction magnétique. Ce riche potentiel était malheureusement compromis par les faibles flux de particules qui arrivent à interagir avec les échantillons. D'une part, un faisceau monochromatique n'est qu'une infime fraction des neutrons issus des réactions nucléaires au niveau du cœur du réacteur. D'autre part, la quasi-impossibilité de focalisation ainsi que la relativement faible interaction des neutrons avec la matière impliquent d'utiliser des faisceaux de grande section et, par conséquent, des échantillons assez grands. Il en résulte de grandes installations qui doivent être optimisées de manière à utiliser au mieux les flux disponibles. Il faut, en particulier, réduire de manière drastique le niveau des bruits de fond et développer des détecteurs très sensibles et de grandes dimensions de manière à couvrir des angles solides suffisamment grands.

Or, la plupart des réacteurs qui étaient construits à cette époque avaient des puissances modestes. Le flux disponible à la sortie des tubes d'extraction (quand ils existaient) ne permettait qu'un nombre très limité d'expériences, surtout de diffraction par des cristaux ou des poudres. Dans le contexte européen, le réacteur EL3 se singularisait par une puissance et des flux d'un ordre de grandeur supérieur à ceux de la plupart des autres sources.

Peu d'années plus tard, en 1963, le CEA construisait à Grenoble le réacteur Siloé de 35 MW.

Comme aux États-Unis, les débuts de la diffusion neutronique en France ont eu pour cadre des installations protégées, parfois sous des contraintes imposées par des autorités militaires, donc à l'écart du milieu universitaire. C'est encore le cas dans de nombreux pays où des sources de neutrons thermiques ont été construites mais dont l'accès reste limité, malgré les efforts de quelques universitaires et la pression de l'Agence internationale de l'énergie atomique (AIEA).

Paradoxalement, c'est en Allemagne, contrainte aux applications civiles du nucléaire, que la recherche en diffusion neutronique s'est épanouie très tôt dans le milieu universitaire. Ainsi, la première source y a été construite en 1957 à Garching par l'Université Technique de Munich.

En France, l'interaction de la recherche pratiquée dans les réacteurs nucléaires avec les universités s'est faite plus graduellement. C'est à Grenoble que la collaboration entre le réacteur Siloé du CEA, l'université et le CNRS s'est naturellement bien établie. Ceci était dû à la proximité géographique des trois entités et, surtout, à Louis Néel, prix Nobel de physique en 1970, à l'origine de l'essor scientifique de la ville depuis son arrivée à Grenoble en 1945. Créateur du CEA à Grenoble, Néel a été à la tête de tous les organismes scientifiques de Grenoble et a impulsé un grand nombre de projets. Très intéressé par l'apport potentiel de la diffusion neutronique au magnétisme, Néel a promu l'implantation à Grenoble d'une source de neutrons à haut flux, entouré d'autres grands scientifiques tels que Félix Bertaut (Erwin Lewi), Louis Weil ou Noël Félici. Les performances des sources froides des réacteurs de recherche sont dues aussi en grande partie à Albert Lacaze, constructeur du premier liquéfacteur d'hélium français à Grenoble.

Malgré les puissances relativement élevées des réacteurs du CEA, EL3 à Saclay et Siloé à Grenoble, les flux disponibles restaient insuffisants pour des études de la structure et, surtout, de la dynamique dans de larges domaines de la physique de la matière condensée, en particulier le magnétisme et les systèmes désordonnés.

L'essor de la diffusion neutronique : les grandes installations

C'est dans ce contexte que la construction en 1971 à Grenoble de l'Institut franco-allemand Laue-Langevin (ILL), sous l'impulsion de Louis Néel et de Heinz Maier-Leibnitz, représente un progrès décisif (figure 1). Le combustible nucléaire hautement enrichi, le cœur très compact, la puissance élevée (56 MW), la présence de deux sources froides installées successivement et d'une source chaude ont créé les conditions d'un grand saut qualitatif et ouvert la voie à de nouvelles techniques, à la construction de nouveaux appareils, à la mise en œuvre de projets qui n'existaient que sur le papier. H. Maier-Leibnitz et Bernard Jacrot ont été, ensemble, les premiers directeurs de l'ILL.

Politiquement, l'ILL était une des retombées du Traité de l'Elysée signé en 1963 par la France et l'Allemagne, qui avait pour objectif le renforcement de la coopération scientifique entre les deux pays.

L'ILL a attiré un nombre important de chercheurs, ingénieurs et techniciens dont, dans les deux derniers groupes, beaucoup de Français issus des laboratoires grenoblois.



Figure 1 - L'Institut Laue-Langevin à Grenoble, créé en 1971, reste aujourd'hui l'installation phare de la neutronique européenne, gérée par la France, l'Allemagne et le Royaume-Uni, en partenariat avec onze autres pays européens. © Cedrine Tresca.

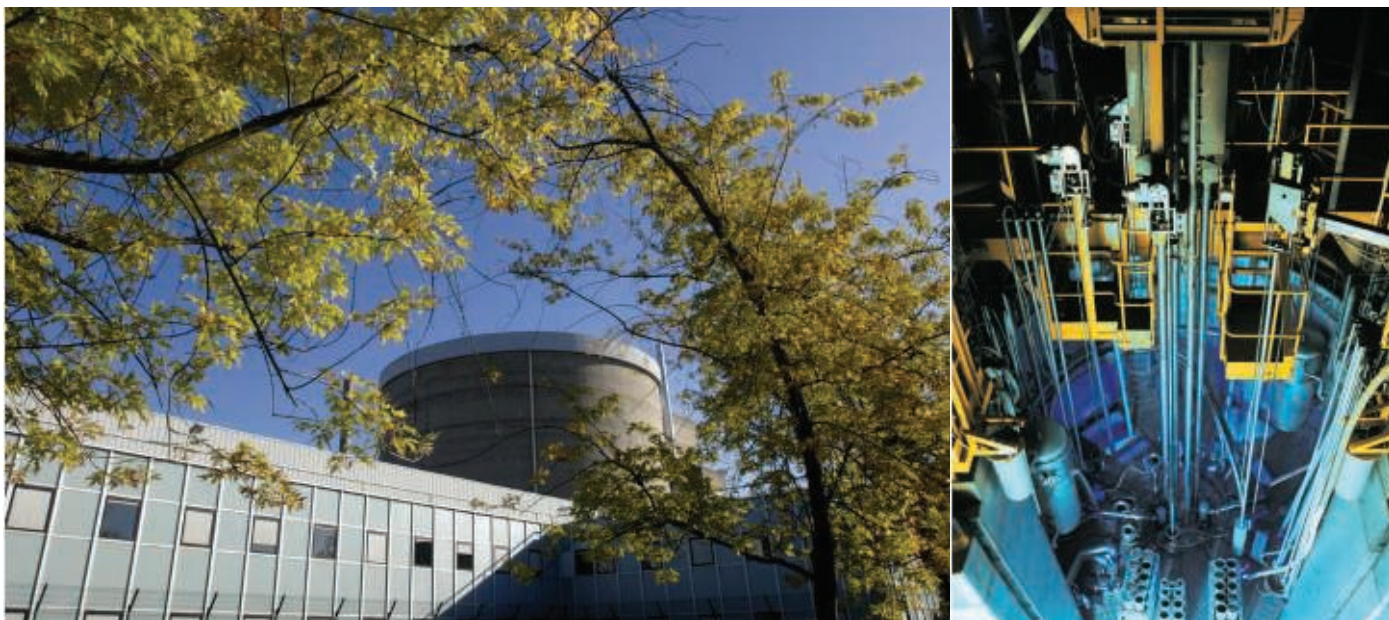


Figure 2 - Le réacteur Orphée à Saclay (à gauche) et son cœur entouré par une piscine d'eau (à droite). Orphée a divergé en 1980 et, en lien avec le Laboratoire Léon Brillouin (LLB, CEA-CNRS), constituait la source nationale française jusqu'en 2019. © LLB.

En 1974, la Grande-Bretagne a rejoint l'ILL, contribuant à parts égales avec la France et l'Allemagne au budget de l'Institut. Les années 1970 ont été une nouvelle ère pour la diffusion de neutrons en Europe et dans le monde. Les potentialités de la technique ont été développées et mises à profit dans de nombreux domaines de la recherche fondamentale et appliquée. Des innovations techniques importantes sont nées ou mises en œuvre pour la première fois à Grenoble, dont les sols en marbre des aires expérimentales permettant le déplacement précis d'appareils sur coussin d'air. Les guides de neutrons, déjà présents à Saclay et à Garching, y ont été installés à grande échelle. De nouveaux instruments ont été développés, dont les spectromètres à rétrodiffusion et à écho de spin. De nouvelles méthodes d'analyse de données sont apparues, profitant aussi de l'essor des moyens de calcul accessibles aux petits ordinateurs émergents à la même époque.

Les succès scientifiques et la demande croissante de temps de faisceau à l'ILL ont mené à la construction d'une source nationale, à l'instar de l'Allemagne et de la Grande-Bretagne qui disposaient déjà de plusieurs sources de moyen flux, complémentaires de l'ILL. La contrepartie financière de la participation de la Grande-Bretagne à l'ILL a favorisé la concrétisation du projet de construction du réacteur Orphée à Saclay. Pour la première fois, le CNRS et le CEA, mais sans l'université, participaient à parts égales à la direction et au financement du Laboratoire Léon Brillouin (LLB), créé pour être à la fois un laboratoire mixte de recherche et un laboratoire d'accueil et de service accessible à des chercheurs universitaires suivant le modèle de l'ILL.

Le réacteur Orphée était un réacteur de 14 MW disposant, à l'image de l'ILL, de deux sources froides d'hydrogène liquide et d'une source chaude de graphite (figure 2). Comme pour l'ILL, le combustible était l'uranium hautement enrichi. Le projet a été porté par Daniel Cribier, et lui et Marianne Lambert en ont été les premiers directeurs.

Le réacteur EL3 avait été définitivement arrêté en 1979 et le réacteur Orphée a divergé en 1980, quoique, suite à quelques problèmes techniques, le fonctionnement normal n'a débuté qu'en 1983.



Figure 3 - Un spectromètre de neutrons du type trois axes (IN8 à ILL) pour l'étude du magnétisme, des vibrations du réseau dans les solides et des excitations dans les liquides. © L. Thion.

À une moindre échelle que pour l'ILL, le LLB a attiré des chercheurs et des techniciens d'autres laboratoires qui, contrairement à l'ILL, restaient membres de leur organisme, soit du CNRS, soit du CEA.

Au cours des années fastes pour les neutrons de la coexistence de l'ILL et du LLB, la demande française de temps de faisceau s'est répartie à parts presque égales entre les deux organismes. La production scientifique issue de l'ILL et du LLB était au plus haut niveau international, en quantité et en qualité (figure 3).

Malgré cette activité soutenue et la proximité de l'Université d'Orsay, le LLB a pâti de la quasi-absence d'interaction directe avec le monde universitaire, une situation que le CNRS a essayé de corriger mais sans succès. Cela s'est traduit par un déficit dans la formation des jeunes chercheurs au sein de l'université, compensé partiellement par des cours de formation proposés par l'ILL et le LLB, parfois en collaboration avec l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF), le synchrotron européen à Grenoble. C'est le cas des cours HERCULES, des FAN du LLB, des chaires itinérantes ou des écoles thématiques proposées par la Société Française de Neutronique (SFN).

Tableau - Liste des principales sources européennes en activité. (* : sources à spallation).
Source : Neutron Users in Europe: Facility-based Insights and Scientific Trends (BrighnESS, 2018).

ILL	Institut Laue-Langevin	Grenoble (France)	58,3 MW
ISIS*	ISIS Neutron and Muon Source	Didcot (Grande-Bretagne)	200 kW
MLZ FRM II	Forschungs-Neutronenquelle Heinz Maier-Leibnitz Zentrum	Garching (Allemagne)	20 MW
SINQ*	Swiss Spallation Neutron Source	Villigen (Suisse)	1 MW
BNC	Budapest Neutron Centre	Budapest (Hongrie)	10 MW
NPL	Nuclear Physics Laboratory	Řež (Tchéquie)	10 MW

Cette dernière, créée en 1994, regroupe la majorité des chercheurs français de l'ILL et du LLB, ainsi que d'autres chercheurs utilisateurs des moyens des deux installations.

Le déclin des réacteurs et la transition vers les sources pulsées

Le réacteur Siloé à Grenoble s'est arrêté définitivement en 1997, suite à la volonté du CEA de dénucléariser le site et d'infléchir ses activités vers de nouvelles technologies. À cette occasion, une partie des équipes de recherche de Siloé se sont déplacées vers l'ILL voisin pour y installer leurs appareils suivant le régime de « Collaborative Research Group » (CRG), qui permet de profiter du haut flux du réacteur tout en assurant la maintenance des appareils et l'accueil des utilisateurs de temps de faisceau suivant les normes de l'ILL.

Vers 1999, dans le contexte polémique de la construction du synchrotron SOLEIL, le ministre Claude Allègre, s'appuyant sur l'avis du prix Nobel Pierre-Gilles de Gennes, remettait en cause l'intérêt des grandes installations et des grands équipements (TGE). Indirectement, l'existence et l'intérêt des activités de recherche au LLB étaient questionnés. Après une longue période d'hésitations et de rapports successifs (d'ailleurs presque toujours favorables aux TGE), dont un établi par une Commission parlementaire en 2000, le réacteur Orphée s'est arrêté définitivement fin 2019.

Plusieurs raisons expliquent cet abandon de la moitié des moyens de la diffusion neutronique à la disposition de la communauté scientifique française. La principale est le coût élevé de la participation française à la nouvelle source européenne en construction à Lund (Suède). Il y a aussi des raisons politiques à cause du combustible très enrichi utilisé par le réacteur Orphée, un problème qui, par ailleurs, est une épée de Damoclès pour l'ILL et pour le réacteur de Garching (Allemagne). Enfin, il y a une tendance générale à connotation écologique qui amène à remplacer les réacteurs nucléaires européens par des sources de neutrons à spallation dont ISIS, à Harwell (Grande-Bretagne), PSI à Villigen (Suisse) et l'European Spallation Source (ESS) déjà mentionnée, en construction à Lund (Suède) (voir *tableau*). Dans un processus

de spallation, un noyau lourd frappé par des particules légères (des protons en général) de haute énergie se désintègre en générant des jets de neutrons.

Par conséquent, depuis l'arrêt du réacteur Orphée, la diffusion de neutrons en France est réduite aux ressources de l'ILL, dans une sorte de « traversée du désert », en attendant que l'ESS dispose d'un nombre significatif d'instruments fonctionnant en vitesse de croisière, ce qui pourra prendre une dizaine d'années. Sans oublier, par ailleurs, les menaces qui pèsent sur l'ILL, à cause de son âge et de la remise en cause globale des réacteurs de recherche.

Cette situation a amené plusieurs chercheurs à travailler sur des projets de sources plus petites utilisant des moyens relativement modestes. Il s'agit d'accélérateurs linéaires qui génèrent des protons pulsés bombardant des cibles d'éléments légers, tels que le lithium ou le béryllium. Le flux de neutrons pulsés dans ces instruments peut être optimisé suivant le type de mesures à faire ou la nature des échantillons. Des projets similaires sont actuellement en cours de développement dans plusieurs pays européens groupés dans l'association ELENA (European Low Energy accelerator-based Neutron facilities Association). Le projet en cours au LLB s'appelle SONATE.

À l'avenir, il est probable que la plus grande partie des expériences de diffusion de neutrons se fera avec ce type de sources qui sont amenées à se multiplier et être construites au sein des universités. En parallèle, les sources à spallation à haut flux, telles que l'ESS ou ISIS, seront réservées à des expériences nécessitant des flux de neutrons très élevés ou à des innovations instrumentales.

Il y a donc de bonnes raisons de penser que la diffusion de neutrons retrouvera une nouvelle période faste après la période de transition actuelle.

José TEIXEIRA,

Directeur de recherche au CNRS, Laboratoire Léon Brillouin, Gif-sur-Yvette.

* jose.teixeira@cea.fr

