

SONATE : un projet de source compacte de neutrons à haute brillance en France

Résumé Après l'arrêt définitif du réacteur Orphée fin 2019, la France ne dispose plus sur son sol que de la source internationale de l'Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble pour étudier la matière condensée par diffusion de neutrons. La source de l'ILL devant elle aussi s'arrêter vers 2033, la construction d'une nouvelle source de neutrons, d'un type nouveau, a été proposée, pour garantir aux chercheurs français un accès durable à ce type de mesures.

Mots-clés **Source de neutrons, diffusion des neutrons, diffraction, CANS, matériaux.**

Abstract **SONATE: a compact high-brilliance neutron source project in France**

After the final shutdown of the Orphée reactor end of 2019, the international source of the Institut Laue Langevin (ILL) in Grenoble remains the only source providing neutron scattering to study condensed matter in France. As the ILL source should have its final shutdown around 2033, the construction of a new type of neutron source to offer a sustainable access to this type of measurement to French researchers has been proposed.

Keywords **Neutron source, neutron scattering, diffraction, CANS, materials studies.**

Depuis sa divergence en décembre 1980 jusqu'à son arrêt définitif fin octobre 2019, le réacteur Orphée du centre de Saclay a fourni à la communauté scientifique française environ la moitié du temps de faisceau auquel elle avait accès. Dès 2015, une réflexion a été menée par les équipes du Laboratoire Léon Brillouin (LLB) pour proposer une alternative permettant de continuer d'offrir un nombre important de jours de faisceau ; le projet de source compacte SONATE est le résultat de cette réflexion.

Pour faire des mesures de diffusion de neutrons, il faut disposer d'une source d'une intensité élevée. Les réacteurs nucléaires comme Orphée sont jusqu'à aujourd'hui les sources les plus intenses de neutrons. Ils sont cependant d'un coût de construction élevé (> 1 G€), et l'évolution prévisible des exigences de sécurité ne peut que faire augmenter ce coût dans le futur. Les sources à spallation permettent d'obtenir des flux de neutrons équivalents. N'utilisant pas de réaction nucléaire en chaîne pour produire les neutrons, elles sont plus sûres que les réacteurs et leur acceptation sociétale est meilleure. Cependant, la nécessité de construire un accélérateur de haute énergie conduit à un coût final similaire à celui d'un réacteur.

On sait qu'avec un accélérateur de protons, dès une énergie de 3 MeV, on peut extraire des neutrons par « stripping » avec certains matériaux. Le coût énergétique par neutron produit est plus grand que par spallation car la réaction d'extraction est peu efficace. Cependant, la faible énergie des protons incidents fait que les neutrons sont produits dans un volume beaucoup plus petit. Si l'intensité totale de la source est plus faible, sa brillance est tout à fait raisonnable pour alimenter un appareil de diffusion de neutrons. Une telle source utilisant un accélérateur de basse énergie est appelée source compacte de neutrons. Son nom vient du fait qu'elle utilise un accélérateur court et que son efficacité va dépendre de la capacité de ses concepteurs à rendre la source la plus compacte possible pour transporter un maximum de la brillance de la source jusqu'à l'échantillon. Suivant les performances souhaitées, le coût d'une telle source est dix à cent fois plus faible que celui d'un réacteur ou d'une source à spallation. L'exemple le plus

connu d'une telle source est celle du LENS de l'Université d'Indiana aux États-Unis démarrée en 2003 [1].

Depuis 2003, trois progrès techniques majeurs permettent d'envisager d'obtenir sur les instruments installés autour d'une telle source des performances similaires à celles obtenues autour d'un réacteur. Tout d'abord, on sait aujourd'hui construire des accélérateurs capables de travailler à des courants allant jusqu'à 100 mA au lieu des 10 mA du LENS. Ensuite, l'amélioration des techniques d'optique neutronique permet le transport de la brillance de la source jusqu'à l'échantillon, et enfin les performances des ordinateurs actuels permettent d'exploiter complètement les mesures de diffusion de neutrons par temps de vol faites sur ces sources. En 2019, un groupe japonais a démontré qu'il était possible, sur la source compacte RANS du RIKKEN, de réaliser des expériences de diffraction de neutrons de qualité similaire à celles réalisées sur des appareils installés sur des sources au meilleur niveau mondial comme J-Parc ou LANSCE [2].

Si la démonstration de l'efficacité d'une telle source a été faite, la définition détaillée de la source compacte idéale reste un sujet difficile. Elle est l'aboutissement de nombreux compromis antagonistes.

La première difficulté est liée à la compacité de la source : jusqu'où la diminution de la taille caractéristique de la source augmente son efficacité ? Il est admis aujourd'hui que pour fournir un flux de neutrons suffisant, une telle source doit avoir une puissance de l'ordre de 100 kW. Toute cette chaleur se dissipe dans la cible. La technologie actuelle permet d'évacuer au maximum 1 kW/cm². Cette contingence impose donc une cible d'environ 100 cm², c'est-à-dire une taille caractéristique de l'ordre de 10 cm.

La seconde difficulté est le choix de l'énergie des protons. À faible énergie, la production de neutrons est faible et le choix des matériaux cibles très limité. Si l'on augmente l'énergie, à courant de protons égal, la quantité de neutrons produite augmente considérablement et le choix des matériaux possible pour les produire s'élargit ; à 100 MeV, quasiment

tous les métaux peuvent être utilisés. Cependant, dès que l'énergie des protons dépasse 10 MeV, des quantités importantes de radioéléments sont créées et les cibles deviennent radioactives. Ceci complique leur gestion et augmente le coût de fonctionnement de l'installation. S'agissant d'un phénomène à effet de seuil, il est important de bien choisir le couple énergie du faisceau de protons/matériaux cible de façon à obtenir le meilleur compromis performances/coûts.

La troisième difficulté est liée au choix du matériau cible. Celui-ci doit non seulement produire un maximum de neutrons et ne pas s'activer, mais il doit également évacuer la chaleur produite par l'arrêt des protons et résister sans se dégrader au bombardement du faisceau pendant au moins une semaine, temps nécessaire pour pouvoir réaliser des expériences de diffraction de façon routinière. Différentes solutions ont été proposées pour y parvenir : cibles à haute température, multicouches absorbant les protons, rotatives ou liquides. Des résultats prometteurs ont été obtenus, mais à ce jour, aucune de ces technologies n'a été installée sur une source à haute intensité en fonctionnement opérationnel permettant d'avoir un retour d'expérience suffisant.

Pour utiliser tous les neutrons disponibles, les instruments en temps de vol sont préférables. La source doit donc être pulsée. Afin de pouvoir mesurer suffisamment de points entre deux pulses successifs, le cycle utile ne doit pas dépasser 4 %. Le courant de protons fourni par l'accélérateur doit être le plus élevé possible, soit 100 mA, le maximum qu'on sache faire aujourd'hui. L'énergie du faisceau doit être supérieure à 10 MeV pour produire une quantité significative de neutrons, mais pas trop élevée de façon à ne pas trop rendre les structures radioactives. Un faisceau de 10 MeV, d'intensité 100 mA de cycle utile 4 %, c'est déjà 40 kW ; pour rester sous les 100 kW imposés par les limites de refroidissement et la compacité de la cible, l'énergie du faisceau de protons ne doit pas dépasser 25 MeV.

Jusqu'à 25 MeV, seuls le lithium et le béryllium produisent des quantités importantes de neutrons. Le lithium ayant une température de fusion faible (450 °C), avec une puissance à évacuer de 1 kW/cm², il sera très difficile de le refroidir pour le maintenir solide. Le béryllium ne fond qu'à 1 250 °C. On peut donc plus facilement le garder solide. Malheureusement, son usinage produit des poussières toxiques et il tolère mal le bombardement par des protons. Ceux-ci se recombinaient en atomes d'hydrogène qui restent piégés dans le métal et forment des bulles qui font éclater le matériau. Pour SONATE, nous avons choisi de laisser travailler la cible de béryllium à haute température afin d'augmenter la mobilité de l'hydrogène pour qu'il migre hors de la cible. La face recevant le faisceau est ainsi chauffée à environ 600 °C (figure 1).

L'interaction des protons sur la cible produit des neutrons de haute énergie (> 1 MeV) ; ils sont dits neutrons rapides. Pour pouvoir être utilisés en diffusion de neutrons, ils doivent être ralentis jusqu'à une énergie d'agitation thermique de l'ordre de 25 meV. C'est le processus de thermalisation ou modération qui se fait par chocs successifs sur les atomes environnants. Les matériaux contenant beaucoup d'atomes d'hydrogène comme l'eau, le polyéthylène, l'hydrogène liquide ou le méthane sont de bons modérateurs. Il suffit de les placer au voisinage du béryllium émettant les neutrons



Figure 1 - Cible de béryllium sur son support en cuivre. L'ensemble est refroidi par un circuit d'eau sous pression. En fonctionnement, la face avant du béryllium soumise au bombardement des protons est à une température de l'ordre de 600 °C.

rapides pour obtenir des neutrons dits « thermiques » utilisables en diffusion.

Si le concept de modérateur est relativement simple, sa mise en œuvre sur une source comme SONATE impose à nouveau des choix et compromis. Choix du matériau modérateur tout d'abord : un solide est plus facile à gérer qu'un liquide, mais se détériore sous irradiation. Choix de la température de fonctionnement ensuite : si la température ambiante est très simple à mettre en œuvre, elle fournit peu de neutrons d'énergie inférieure à 25 meV, indispensables pour mesurer les grosses molécules comme les plastiques. Pour les obtenir, il faut baisser la température du modérateur jusqu'à 20 K où le seul liquide hydrogéné stable est l'hydrogène. Cependant, si l'hydrogène modère bien les neutrons, il les absorbe aussi. Pour l'hydrogène, la taille caractéristique à partir de laquelle on perd plus qu'on ne gagne est de l'ordre du centimètre. Pour obtenir une bonne modération sans trop perdre en intensité, on doit jouer sur la forme du modérateur, ce qui impose de nombreuses simulations pour trouver la géométrie la plus efficace. L'utilisation de deutérium liquide en lieu et place de l'hydrogène permet de s'affranchir de l'absorption des neutrons. Cependant, avec une taille caractéristique pour le deutérium de l'ordre de 20 cm et une activation sous rayonnement, on perd en compacité et on augmente les coûts de gestion de la source.

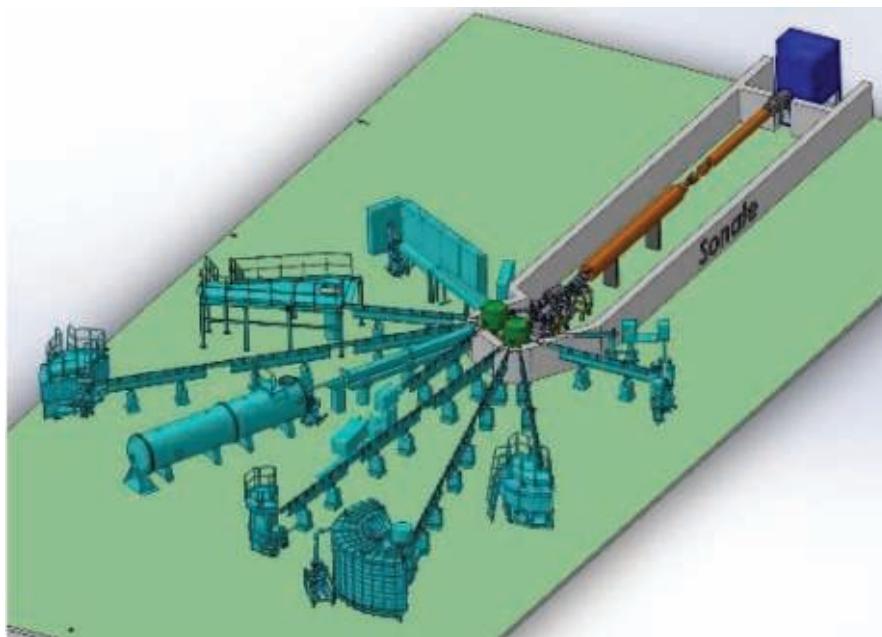


Figure 2 - Projet SONATE avec une source d'ion (bleu) et un accélérateur de protons (brun) bombardant deux cibles différentes (vert), ce qui alimente en neutrons les dix instruments (turquoise).

Le nombre important de paramètres à prendre en compte impose souvent une optimisation par itérations successives. C'est d'autant plus vrai que différentes familles d'instruments vont demander des optimisations différentes.

On a tout d'abord les appareils travaillant à des résolutions meilleures que 1 %. Ceux-ci vont demander à avoir une source ayant des pulses courts de moins de 100 μs pour avoir une bonne détermination de l'énergie des neutrons par la méthode du temps de vol, et des taux de répétition élevés de plus de 100 Hz pour avoir une bonne intensité. Dans cette famille, l'appareil le plus classique est le diffractomètre de poudre qui permet la détermination des structures cristallines complexes. Les spectromètres pour les mesures de diffusion quasi-élastique utiliseront également ces faisceaux. Ils permettent de mesurer la vitesse de diffusion des molécules à l'échelle atomique.

Lorsque l'on a besoin de mesurer des phénomènes moins précis, on peut utiliser une résolution temporelle plus faible, allant jusqu'à 10 %. Dans ce cas, des pulses longs de 1 ms et des taux de répétition aussi faible que 10 Hz peuvent être utilisés. C'est le cas pour les réflectomètres, appareils destinés à l'étude des surfaces, et les appareils de diffusion de neutrons aux petits angles (DNPA) mesurant les structures dans une gamme de distances de 1 à 100 nm. Les diffractomètres de poudre à basse résolution pourront également utiliser ces faisceaux. Ils permettent de faire rapidement des mesures de variation de structure en fonction d'un paramètre externe comme la température ou le champ magnétique. Les spectromètres de mesures de diffusion inélastique peuvent également utiliser des faisceaux à faible résolution temporelle pour faire des cartographies des excitations vibrationnelles ou magnétiques présentes dans les échantillons.

Pour terminer, il faut mentionner les appareils d'imagerie pour lesquels une détermination sommaire de l'énergie moyenne des neutrons est suffisante. Ces appareils mesurent

la variation de transmission d'un faisceau de neutrons à travers un objet pour en faire une image sensible à d'autres éléments que ceux vus par les photons X ou visibles. En réalisant un seul cliché, on obtient une image classique à deux dimensions ; en réalisant plusieurs images en tournant l'objet dans le faisceau, on obtient une représentation à trois dimensions de l'objet : c'est la tomographie.

L'objectif de SONATE est de fournir une source de neutrons capable de répondre à un maximum de besoins de la communauté scientifique tout en restant d'un coût de construction et de fonctionnement modéré [3]. Comme on l'a vu, excepté l'imagerie, la plupart des appareils s'accommodent d'un fonctionnement, soit à pulses courts et fort taux de répétition, soit à pulses longs et faible taux de répétition. Pratiquement sans surcoût, un même accélérateur peut fournir ces deux types de faisceaux en bombardant deux cibles différentes à des fréquences différentes (figure 2).

Les simulations des performances des appareils installés sur ces cibles ont montré qu'elles seraient du même ordre de grandeur que celles que nous avons sur les appareils installés autour du réacteur Orphée [4]. Ces appareils permettront aux chercheurs français de réaliser toutes les caractérisations neutroniques indispensables pour accéder dans de bonnes conditions aux instruments des sources européennes de haut niveau comme l'ILL (Institut Laue Langevin) et ESS (European Spallation Source).

Comme on l'a vu, si la description globale de ce que doit être une source compacte est assez claire, le détail de sa construction impose de faire des choix. Pour limiter les risques et les coûts, on peut imaginer une construction par étapes avec d'abord un accélérateur limité à 15 MeV bombardant une seule cible pour évaluer plus précisément les performances des appareils et les méthodes de gestion de la cible. Le choix d'une cible à pulses longs paraît naturel car elle peut accueillir tous les types d'appareil et pourra bénéficier directement



Figure 3 - Au CEA Saclay : la casemate de l'accélérateur IPhi sur lequel les tests de la cible de béryllium, du modérateur (à gauche) et de l'appareil de diffusion Diogene sont effectués.

de tous les développements méthodologiques qui seront faits pour les appareils installés sur ESS, source européenne, également à pulsés longs.

Depuis l'annonce de l'arrêt d'Orphée, les équipes du LLB travaillent sur le projet SONATE pour en démontrer la pertinence (figure 3). Nous ne sommes pas les seuls engagés sur cette voie ; d'autres pays comme l'Allemagne suivent exactement la même démarche. Nous travaillons en collaboration avec eux et espérons tous pouvoir rapidement construire une telle source pour en démontrer l'efficacité.

[1] D.V. Baxter, J.M. Cameron, V.P. Derenchuk, C.M. Lavelle, M.B. Leuschner *et al.*, Status of the low energy neutron source at Indiana University, *Nucl. Instr. And Methods, Phys. Research B*, **2005**, 247, p. 209-212.

[2] P.G. Xu, Y. Ikeda, T. Hakoyama, M. Takamura, Y. Otake, H. Suzuki, In-house texture measurement using a compact neutron source, *J. Appl. Crystallogr.*, **2020**, 53, p. 444-454.

[3] F. Ott, A. Menelle, C. Alba-Simionesco, The SONATE project, a French CANS for materials sciences research, *EPJ Web of Conf.*, **2020**, 231, 01004.

[4] S. Böhm, T. Cronert, J.P. Dabrock, X. Fabrèges, T. Gutberlet *et al.*, Neutron scattering instrumentation at compact neutron sources, **2018**, <https://hal-cea.archives-ouvertes.fr/cea-01870227>

Alain MENELLE, adjoint à la direction du LLB, et **Frédéric OTT**, chef du projet SONATE au LLB, Laboratoire Léon Brillouin (LLB), CEA Saclay.

* alain.menelle@cea.fr ; frederic.ott@cea.fr