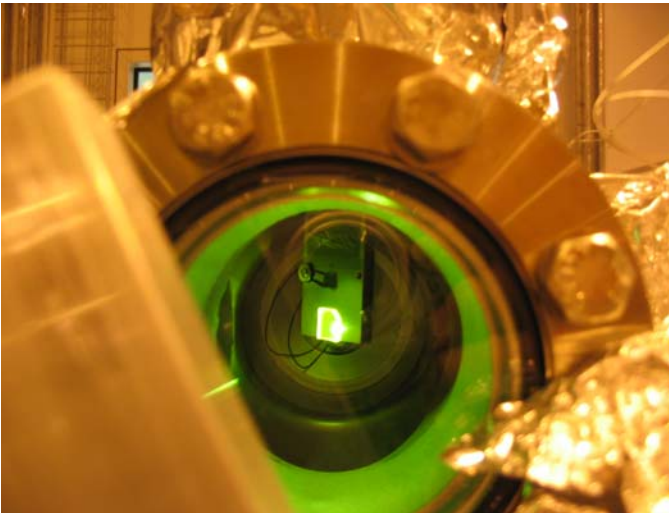


Le 22 juin 2004,

LUCIA, la première ligne de lumière SOLEIL est ouverte à SLS, en Suisse



Equipe française

Anne-Marie Flank

Scientifique

Delphine Vantelon

Scientifique

Pierre Lagarde

Scientifique

Stephane Bac

Ingénieur (5310)

Gilles Cauchon

Conception des optiques

Jean-Michel Dubuisson

Ingénieur

Equipe Suisse

Markus Janoush

Scientifique

Reto Wetter

Technicien

Contacts

+41 (56)310 5307

LUCIA, (*Line for Ultimate Characterizations by Imaging and Absorption*), ligne de caractérisation par imagerie et absorption, est le résultat d'efforts conjugués des communautés synchrotron suisse et française pour la construction d'une ligne de lumière de spectroscopie d'absorption X sur l'anneau de rayonnement synchrotron suisse (Swiss Light Source - SLS). LUCIA a été conçue pour délivrer une tache lumineuse extrêmement brillante de la taille du micromètre, dans le domaine d'énergie intermédiaire des rayons X. La spectroscopie d'absorption X et les techniques d'imagerie ont des applications dans de nombreux domaines allant de la science des matériaux, à l'environnement en passant par les sciences de la vie, l'archéologie, l'analyse d'objets d'art et diverses applications industrielles, l'accent étant mis sur la résolution spatiale.

Le partenaire suisse (SLS) a mis en place l'onduleur, la tête de ligne et l'infrastructure. Les composants de la ligne de lumière et la station expérimentale sont fournis par les collaborateurs français (LURE et SOLEIL). Fin 2007, la ligne de lumière devrait être transférée à SOLEIL.

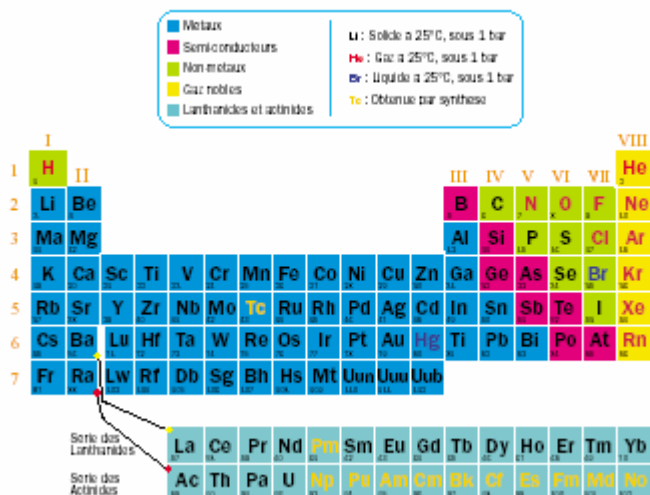
Aujourd'hui, LUCIA est en phase d'essais, avec pour objectif d'atteindre, au cours de l'été 2004, ses performances nominales en ce qui concerne le flux des photons et la taille du faisceau.

Les premières propositions peuvent déjà être soumises au Bureau des Utilisateurs du SLS (SLS Users Office) jusqu'au 15 septembre, le prochain comité de programme ayant lieu en novembre pour un temps d'attribution de faisceau commençant en décembre 2004.

Pourquoi une ligne de micro-spectroscopie d'absorption X et de micro-imagerie?

Le développement récent, à l'échelle mondiale, de dispositifs micro-faisceaux, correspond à des besoins scientifiques importants : l'étude de systèmes de taille de plus en plus réduite et de systèmes hétérogènes qui pourraient avoir des comportements différents à de très petites échelles. Dans le même temps, cet objectif s'accorde avec les nouvelles opportunités (en particulier flux des photons et taille du faisceau) offertes par les sources synchrotron de troisième génération, telles SLS et SOLEIL. Dans ce contexte, LUCIA est destinée à la spectromicroscopie dans la gamme d'énergie de 1-8 keV dits « rayons X tendres ». Ce domaine couvre les seuils K des éléments légers (du sodium au fer), les seuils L du nickel au gadolinium, et les seuils M des lanthanides et actinides.

Classification périodique des éléments



Elle permettra un accès unique aux principaux éléments constituant les minéraux (éléments légers) ainsi qu'aux éléments lourds qui agissent souvent – par exemple dans les géosciences et les sciences de l'environnement – comme des polluants. En conséquence, avec une taille de faisceau sur l'échantillon de l'ordre du micromètre, avec des balayages en énergie étendus et un flux de photons très élevé, cette ligne sera capable de fournir, à l'échelle du point focal de photons, de nouvelles informations sur les structures électroniques et atomiques de systèmes hétérogènes et complexes.

Communauté scientifique

Parmi les laboratoires intéressés par la spectroscopie d'absorption X dans cette gamme d'énergie, se trouvent 12 groupes de recherche appartenant à des laboratoires de recherche nationaux suisses (PSI, EAWAG, EMPA, WSL, et Cam), ainsi que plusieurs universités suisses et ont tous apporté une contribution à la définition de la ligne.

Côté français, il y a 39 groupes, en particulier IPG-Paris, le LMC-Paris, le Laboratoire des Géomatériaux (Uni. Marne-la-Vallée), le CEREGE (Marseille), le LEM (Nancy), auxquels viendront se joindre le CeFsa (Centro di Fisica degli Stati Aggregati-Trento) et le Département de Physique (Uni. Bologna).

Tous ces groupes seront parmi les utilisateurs de LUCIA au SLS.

Pour quelles applications ?

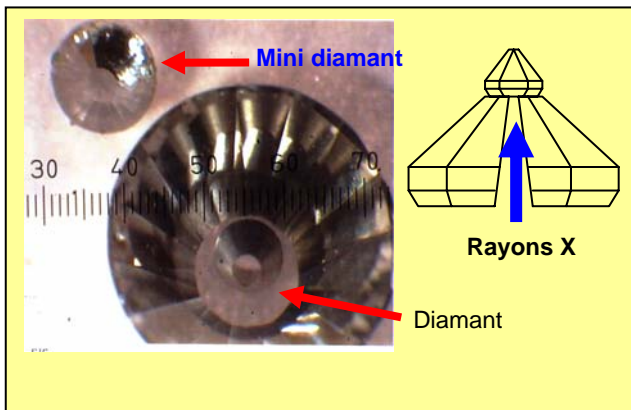
La taille du point focal de quelques micromètres² sur l'échantillon et le flux élevé de photons dans la tache lumineuse sont les paramètres clés de plusieurs types d'études.

Parmi les techniques qui seront disponibles sur LUCIA, la principale est la spectroscopie d'absorption X utilisant tous les modes habituels, c'est-à-dire transmission, mesure des électrons émis (rendement électronique) ou fluorescence. Dans le même temps, grâce à l'utilisation d'un détecteur de fluorescence avec une résolution en énergie élevée et un positionnement de l'échantillon très précis (0,1µm), on pourra mettre en œuvre sur LUCIA des techniques d'imagerie, qui visent à décrire – toujours à cette échelle du micron – la localisation spatiale d'un élément donné au sein d'un échantillon. Dès lors, l'utilisation de LUCIA sera très intéressante dans des domaines scientifiques très variés dont voici un aperçu.



Géosciences

L'aluminium, le magnésium, le silicium et le soufre sont les éléments les plus abondants dans la croûte terrestre ; ils se trouvent le plus souvent dans des composés mal cristallisés et concernent dans des échantillons multi-phasés ou hétérogènes avec une taille de grain en moyenne de $50\mu\text{m}$ (verres naturels, magmas). L'état physico-chimique de ces éléments est d'une importance majeure pour la connaissance de l'évolution des minéraux. Par exemple, l'étude d'inclusions de silicates piégés à haute température pendant la croissance des roches est l'une des manières d'aborder les conditions d'oxydo-réduction du magma avant une éruption volcanique. Ces types d'études nécessitent des expériences de micro-XAS couplées à une technique d'imagerie permettant de visualiser les régions concernées ; on peut ainsi accéder aux effets cinétiques, aux phénomènes de transports, et de rétention des éléments.



Matériaux biologiques

LUCIA donnera accès aux seuils K des divers éléments légers de grande importance biologique ainsi qu'aux seuils de métaux communs dans les métalloprotéines.

Sciences de l'Environnement

De même, dans le domaine des sciences de l'environnement ou de l'écotoxicologie (sols irradiés et contaminés, plantes poussant sur ces sols, pollution et traitement de l'eau), une sonde qui associe micro-fluorescence et micro-absorption X est un outil tout à fait remarquable. En ce qui concerne le traitement de l'eau, il sera intéressant par exemple d'étudier les colloïdes et les particules riches en Aluminium qui apparaissent lors du traitement.



Etudes sous hautes pressions

En raison du flux élevé de photons, LUCIA pourra accueillir des expériences sous haute pression au seuil du silicium (environ 2 keV) sur des matériaux aussi importants pour les études géophysiques que la silice et les silicates, constituants principaux des roches terrestres. Au seuil K du silicium, l'absorption du joint en Beryllium de la cellule à haute pression (épaisseur typique $300\mu\text{m}$) réduit la transmission de signal à 10^{-5} . Il faut donc un faisceau incident avec un très haut flux de photons (10^{12} photons/sec) pour obtenir des mesures avec un signal significatif. Cette expérience reste néanmoins difficile à réaliser et pourrait être précédée par plusieurs autres études haute pression à des énergies plus élevées en restant dans le domaine d'énergie de LUCIA. Par exemple, l'absorption X donne un accès direct aux couches 4f des terres rares et aux 5f des actinides, et donc à l'étude de leur comportement sous pression. Ces expériences nécessitent également une très bonne focalisation du faisceau en raison de la petite taille des échantillons dans les cellules haute pression.

Des éléments comme le silicium, le soufre, le phosphore et le calcium jouent aussi un rôle important dans les problématiques liées à la pollution des eaux souterraines ou des rivières : par exemple l'interaction des polluants comme l'arsenic avec des phosphates ou des silicates n'est pas encore bien comprise et nécessite, en raison des très faibles concentrations des éléments étudiés, un flux élevé de photons. En effet, on sait maintenant que la toxicité et le comportement volatil de nombreux composés dépend non seulement de leur nature et de leur concentration mais plus encore de leur distribution dans l'espace et de leur spéciation. C'est l'un des principaux objectifs de LUCIA.

Science des matériaux

Dans le domaine des sciences des matériaux, un micro-faisceau est indispensable pour étudier des échantillons où plusieurs phases sont présentes avec des tailles de l'ordre de quelques dizaines de microns. Ceci est le cas des ciments, des composites et des céramiques qui ont typiquement cette taille de grain. L'altération du ciment est une question qui met en jeu d'importants intérêts socio-économiques. Les ciments sont composés principalement d'aluminium, silicium, soufre et calcium, et le processus d'altération semble dépendre des sulfates contenus dans l'eau à laquelle on le mélange.

De même, les réactions alkali-silice dans le béton pourraient aussi être responsables de la dégradation structurelle de ces matériaux. Dans ce domaine, c'est par un effort conjoint des laboratoires de recherche et de l'industrie que la compréhension de ces processus fondamentaux pourra progresser. Ici comme dans le cas précédent, c'est la taille des cristallites qui rend les études de micro-absorption X particulièrement intéressantes.

Dans d'autres domaines scientifiques qui sont très présents dans la physique de l'état solide et la physique atomique, la taille ultime du point lumineux sur l'échantillon ne sera pas le plus important des paramètres. Ces expériences mettront à profit le flux très élevé d'un faisceau de très haute qualité.

Etudes de surfaces et de systèmes hautement dilués

Dans le cas d'études de surface et de systèmes hautement dilués, le flux de photons est le paramètre important mais, la plupart du temps, la taille de la tache lumineuse est là aussi essentielle. Les études de surface réalisées sur des substrats bien cristallisés utilisent des expériences en polarisation : pour un échantillon d'une taille totale de quelques millimètres, la configuration en incidence rasante exige un faisceau de très petites dimensions.

En physique atomique et moléculaire, plusieurs études concernent l'interaction des photons avec les molécules dans un jet ultrasonique. Ici encore, en raison de la faible densité du jet, un flux élevé est requis sur des tailles latérales de l'ordre de quelques dizaines de microns.

Spectroscopies à deux photons et techniques résonantes

Des expériences récentes sur des systèmes dopés de terres rares et sur du silicium luminescent poreux ou nanocristallin ont montré que la détection du rendement photoluminescent (PLY- Photoluminescent yield) par absorption X pouvait être non seulement sélective en matière d'élément mais aussi en matière de géométrie, car la longueur d'onde de la luminescence peut dépendre de l'environnement local de l'élément. Dans la technologie du silicium, ces systèmes luminescents sont d'un intérêt croissant pour le développement de matériaux pour l'électronique et l'optoélectronique intégrées. Ces études PLY tireraient grand parti d'une sonde de rayons X très intense et focalisée, en raison de la taille des structures et des techniques d'acquisition de données. En effet, l'efficacité de la détection augmente lorsque la brillance de la source (l'échantillon luminescent visible) augmente.

La Diffusion Inélastique X Résonante connue sous le nom de RIXS (*Resonant X-ray Inelastic Scattering*) ainsi que tous les procédés résonants (Auger et Raman) concernant la décroissance radiative ou non-radiative de l'élément excité, sont également considérés comme des outils très puissants pour comprendre la structure électronique de la matière. Cependant, les procédés dits à « deux photons » sont des techniques très consommatrices de photons. De plus, d'un point de vue technique, l'impact du faisceau de rayons X sur l'échantillon est la véritable source de l'analyseur de la fluorescence X ; dès lors on comprend aisément l'importance d'une technique de micro-focalisation pour améliorer l'efficacité de la détection.

Principaux paramètres de LUCIA

Gamme d'énergie	0.8 - 8 keV
Flux sur l'échantillon	2×10^{12} ph/s/400 mA
Taille du point lumineux sur l'échantillon	$1.2 \times 1 \mu\text{m}^2$
Polarisation	linéaire horizontale
	circulaire gauche & droite
Résolution de l'énergie des photons	0.02%

Table 1 Principaux paramètres de la ligne de lumière LUCIA.
Les valeurs spécifiques sont pour une énergie de 2 keV.

Caractéristiques de la source

L'utilisation de la polarisation en spectroscopie d'absorption X est très efficace pour l'analyse d'échantillons orientés. C'est là que réside le principal l'avantage de l'ondulateur de type APPLE-II construit à SLS (utilisant une conception de Bessy II en Allemagne) comme source de photons. Ce dispositif peut émettre une lumière polarisée linéairement avec une orientation variable ainsi qu'une lumière polarisée circulairement. Il est fait d'aimants permanents et comprend 32 périodes magnétiques, chacune de 54 mm de long. La longueur de la période a été définie afin qu'aucun trou n'apparaisse entre la première et la troisième harmoniques dans aucun état de polarisation, menant à un spectre presque continu au sein de la gamme complète d'énergies. L'entrefer minimum sera de 15 mm.

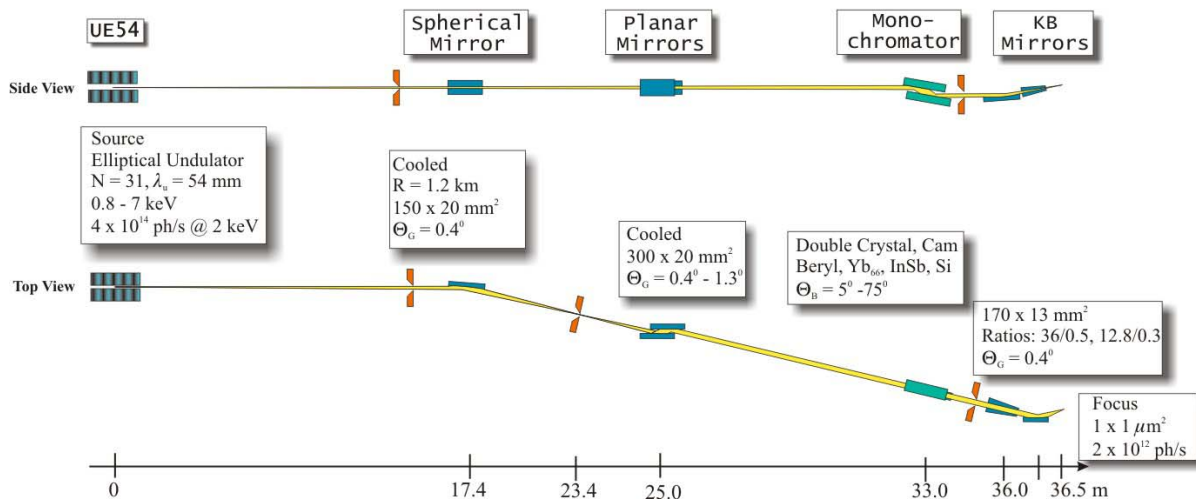
Type:	Ondulateur Apple II UE54
Longueur de la période:	54 mm
Nombre de périodes:	32
Gap:	15 - 150 mm
Polarisation:	Lineaire(-5° to 185°) Circulaire (droit ou gauche)
Valeur K :	0.8 - 2.5
Fonctionnant sur les harmoniques:	3 - 15
Champ maximum:	0.83 T / 0.66 T (H / V)
Gamme d'énergie:	0.8 - 8 keV

Optiques

La configuration générale de la ligne de lumière est montrée dans la figure ci-dessous. Tous les miroirs sont recouverts de nickel. Pour obtenir un point lumineux de l'ordre du micron dans les deux directions, la taille de la source horizontale ($200 \mu\text{m}$) a dû être réduite d'un facteur supérieur à cent.

Afin d'obtenir une distance de travail suffisamment grande après le dernier miroir, étant donné que la longueur totale de la ligne de lumière ne pouvait être supérieure à 40 m, la convergence horizontale est réalisée en deux étapes. Après la tête de ligne équipée d'un système de fentes de précision, le faisceau de photons est réfléchi sur un miroir sphérique fixe. Ce dispositif réduit la taille de la source horizontale d'un facteur 3 environ. La convergence finale est réalisée à l'aide d'un système de miroirs en configuration Kirkpatrick-Baez (KB) qui produit horizontalement une image de cette source intermédiaire, tandis qu'il produit verticalement une image du paquet d'électrons. Ce système KB est basé sur une conception ESRF, modifiée pour être compatible avec l'ultraviolet.

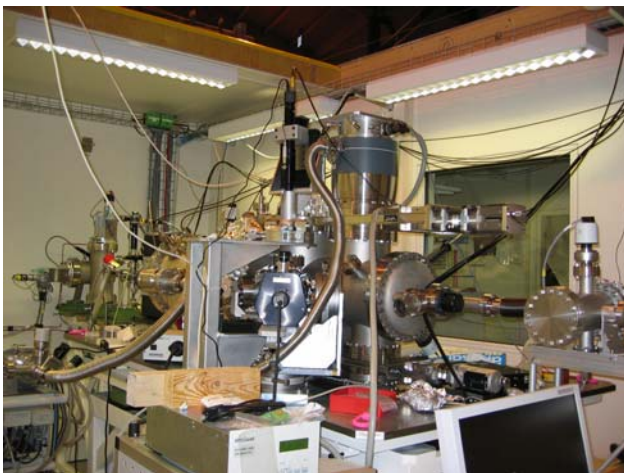
Schéma de la ligne



Un ensemble de deux miroirs plans parallèles constitue un filtre « passe bas » qui supprime les harmoniques d'ordre supérieur. Son angle d'incidence peut varier de 0.4° à 1.3° .

Le monochromateur à double cristal est fabriqué par Kohzu. Sa conception est basée sur une double came qui fournit une géométrie à sortie fixe et permet un vaste domaine angulaire ($5^\circ - 70^\circ$). Jusqu'à cinq cristaux différents, notamment des Beryl, KPT, YB₆₆, InSb(111) et Si(111) tiennent dans les supports refroidis à l'eau, afin de couvrir le domaine d'énergie complet de la ligne de lumière. Ils peuvent être échangés par une simple translation de l'ensemble du monochromateur.

Deux images de la ligne de lumière pendant la phase de construction (Nov-Déc 2003). A gauche, la cabane optique de radioprotection. Sur l'image de droite on peut voir le monochromateur à l'extrémité de la ligne.



La dernière cabane de la ligne de lumière LUCIA (Mai 2004). De gauche à droite on voit le moniteur de position du faisceau, l'enceinte du KB, la station expérimentale avec les microscopes optiques utilisés pour l'alignement des échantillons, et enfin une partie du système optique (analyseur Schreck-Hartman) utilisé pour aligner le KB automatiquement.