



1/ SOLEIL et
le rayonnement synchrotron

2/ Les lignes de lumière

3/ exemples : expériences sur
DIFFABS, LUCIA, GALAXIES

Très Grande Infrastructure de Recherche (TGIR)

Principales missions :

Promouvoir la recherche dans le domaine des sources de RS et des dispositifs expérimentaux associés.

- **Production du rayonnement**
- **Accueil de la communauté scientifique**
- **Activité de recherche interne**
- **Développement d'une instrumentation de pointe**

Plus de 4000 utilisateurs (académiques, industriels)

6000 visiteurs (tous publics)

- 314 jours de faisceau délivré en 2016

~ 500 publications / an

~ 70 projets industriels en 2014

Société civile

Membres : le CNRS (72 %) et le CEA (28 %)

Budget annuel : ~ 58 M€

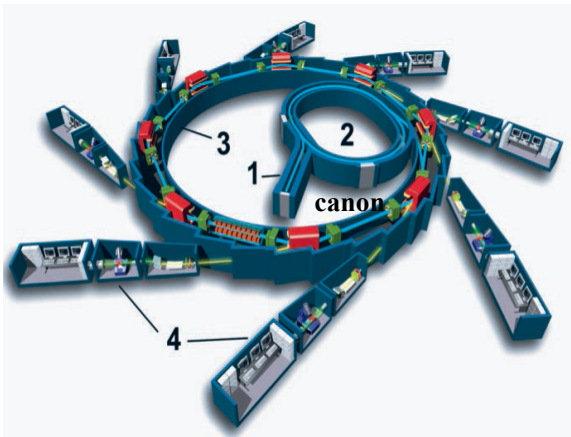
Personnel permanent : 358

Personnel non-permanent :

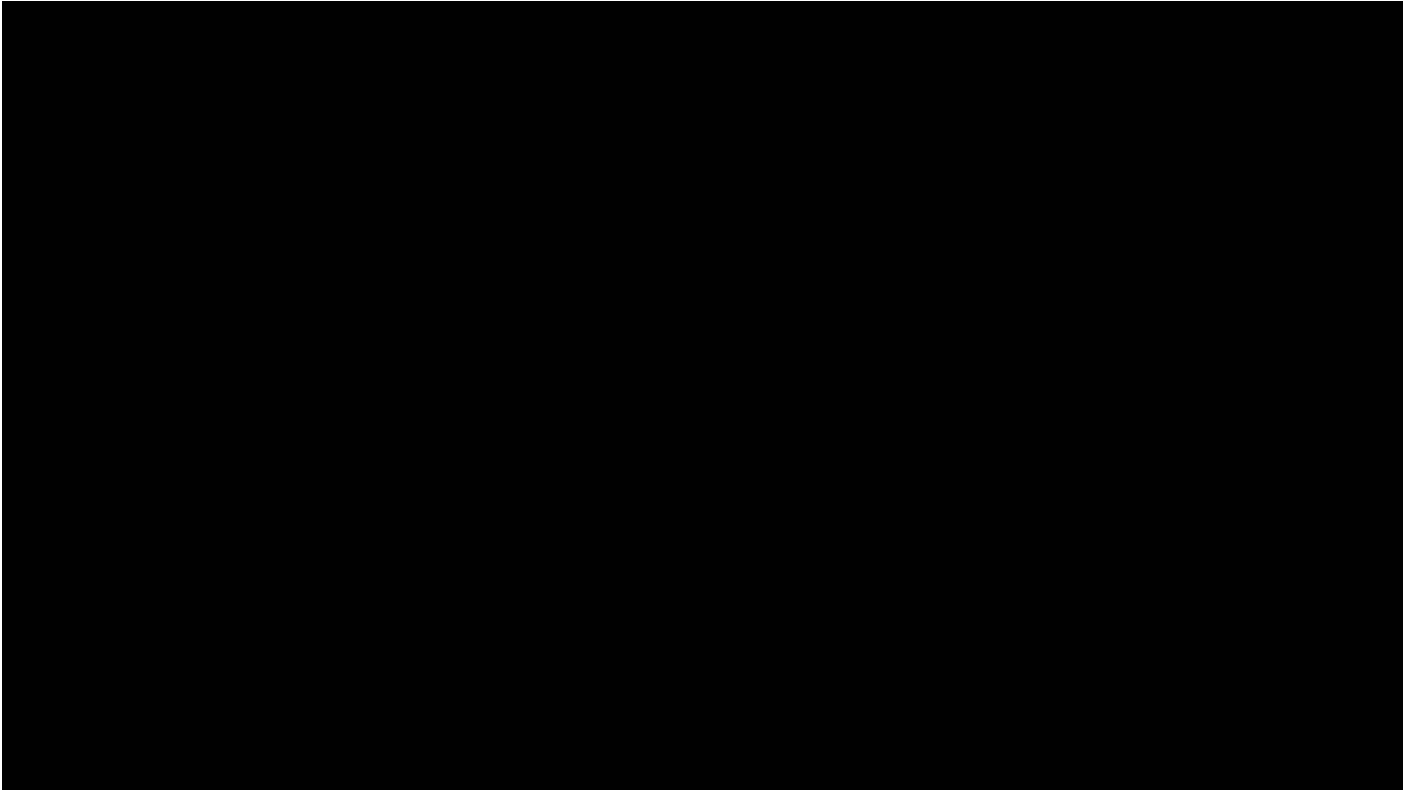
 Doctorants : 31

 Post-doctorants : 25

+ chercheurs associés : 96



- 1- Linac
- 2- Booster
- 3- Anneau de stockage
- 4- Lignes de lumière

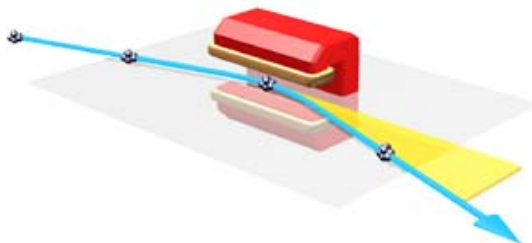


$E = 2.75 \text{ GeV}, I_e = 500 \text{ mA}$

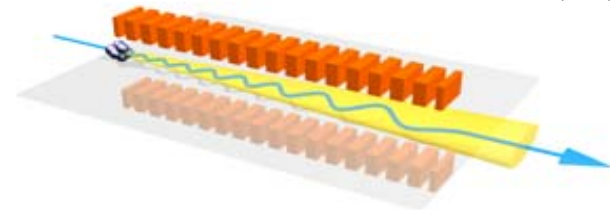
Circonférence de l'anneau = 354 m

Sections droites : 24 / Aimants de courbure : 32

Aimants de courbure (22)

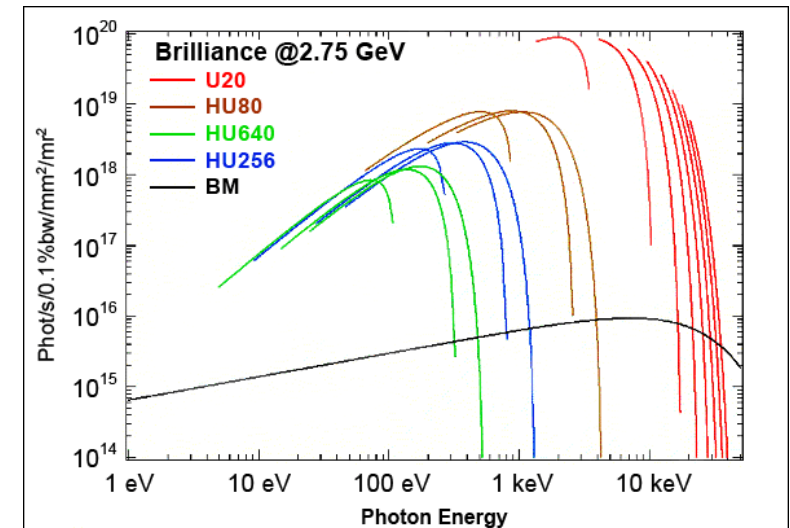


Eléments d'insertion (21)



- Source « **blanche** », continue et accordable (de l'infrarouge aux rayons X)
- Source **brillante**
- **Haut flux**
(permet de réduire les temps d'acquisition ou bien étudier une quantité de matière plus faible)
- Lumière **polarisée** (linéaire / circulaire)
(symétrie des molécules, phénomènes magnétiques)
- Source **pulsée**
(phénomènes dynamiques)
- Degré de cohérence
- Grande stabilité en position & en intensité
(importance pour petits échantillons et fiabilité des résultats)

La brillance



Instrumentation connexe

Taille de la sonde (en lien avec l'optique)

Équipements spécifiques (ex: diffractomètre 6/8 cercles)

Utilisation de détecteurs de plus en plus performants (détecteurs 2D, détecteurs multiéléments)

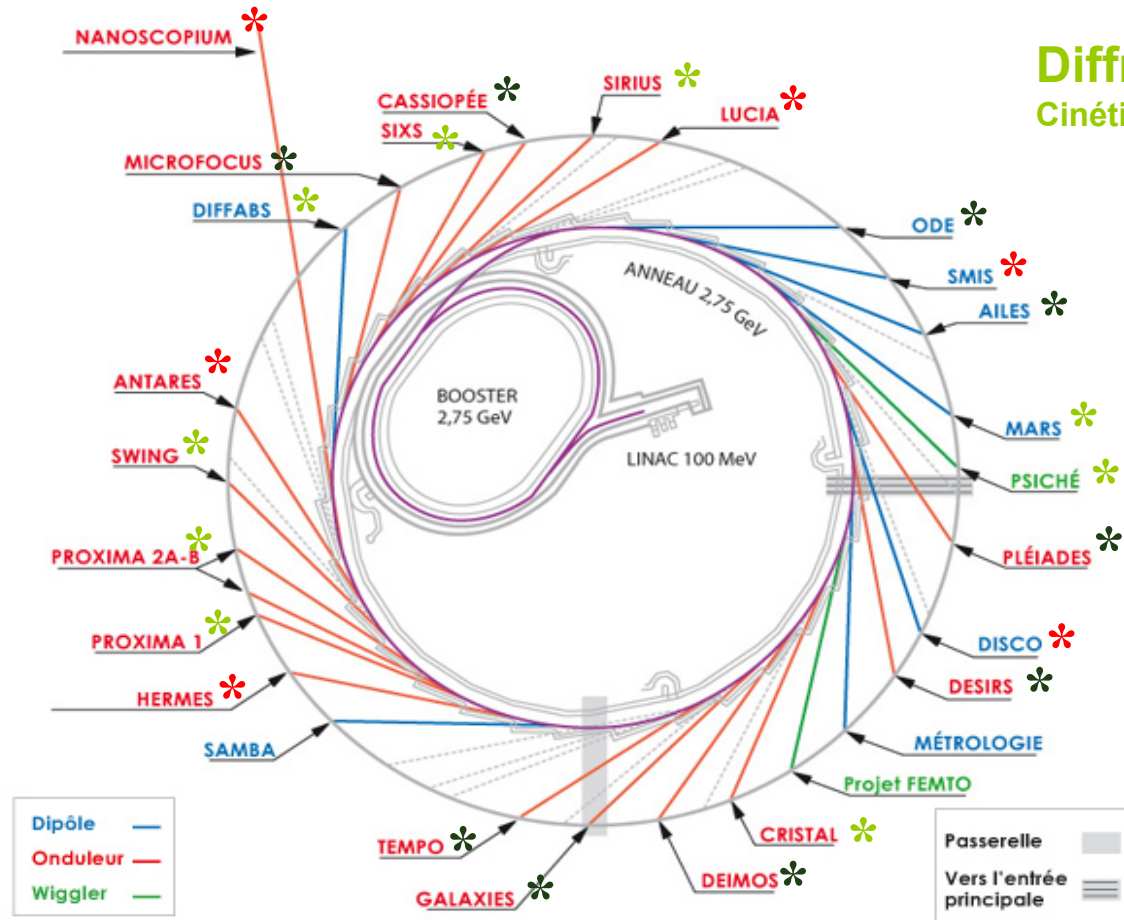
29 lignes de lumière

Chaque ligne de lumière est un « petit laboratoire »

- optimisée dans une gamme spectrale
- dédiée à une ou plusieurs techniques d'analyse
- couvrant le plus souvent plusieurs disciplines

Imagerie 2D/3D

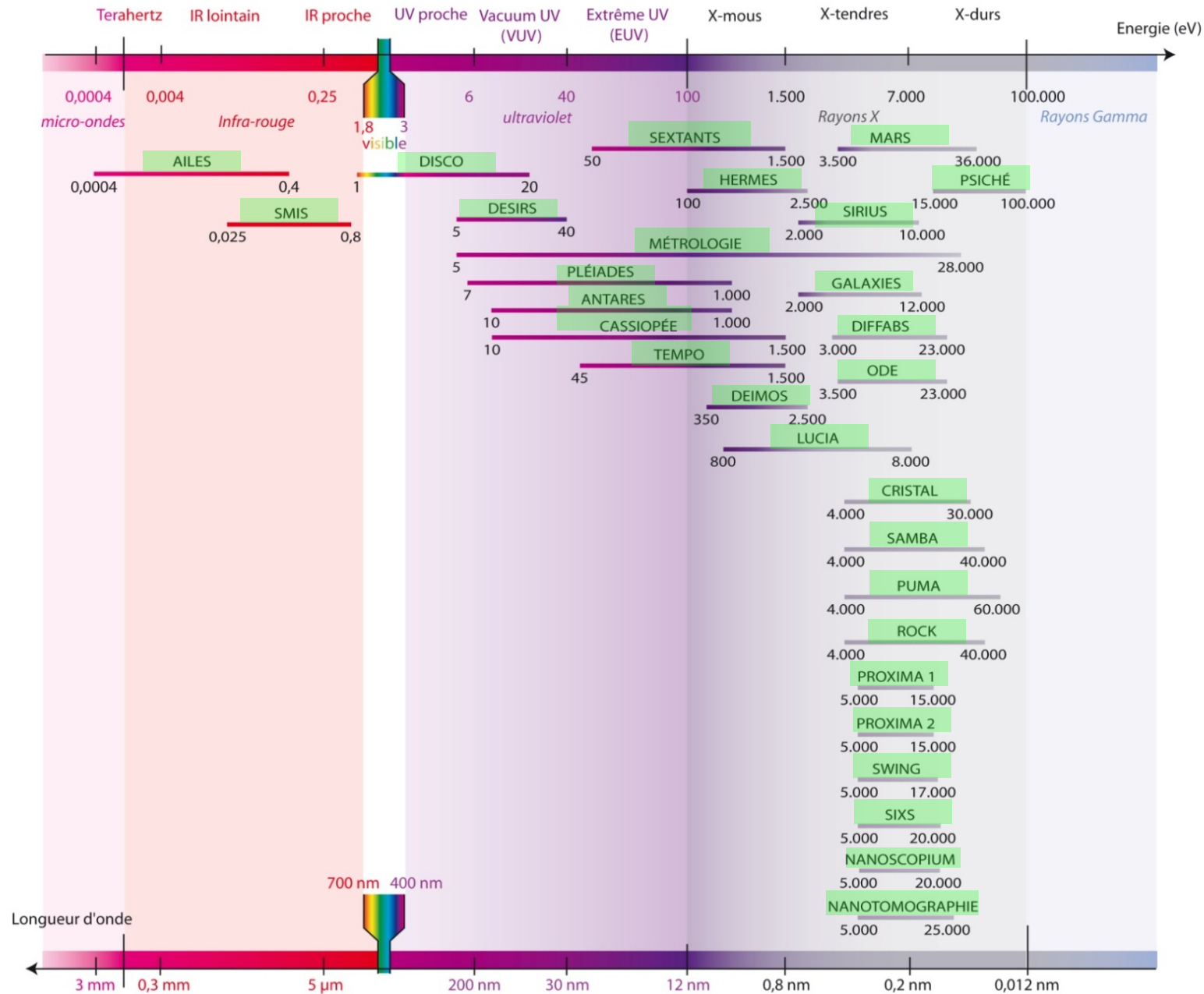
Haute résolution
Contraste de phase
Multi-échelle
Multi-technique



Diffraction/Diffusion
Cinétiques, cohérence

Spectroscopies
Temps résolu (ps, ms)
Très haute résolution
In-situ

Les lignes de lumière en fonction du domaine spectral



Les techniques de diffraction/diffusion des rayons X : information structurale

Diffraction	CRISTAL , DIFFABS , PSICHÉ , MARS , PROXIMA 1 , PROXIMA 2A , SEXTANTS , SIRIUS , SIXS
Diffusion	GALAXIES , MARS , SEXTANTS , SIRIUS , SIXS , SWING
Réflectivité	SEXTANTS , SIRIUS , SIXS , MÉTROLOGIE

Les techniques de spectroscopie IR, UV et X : information chimique

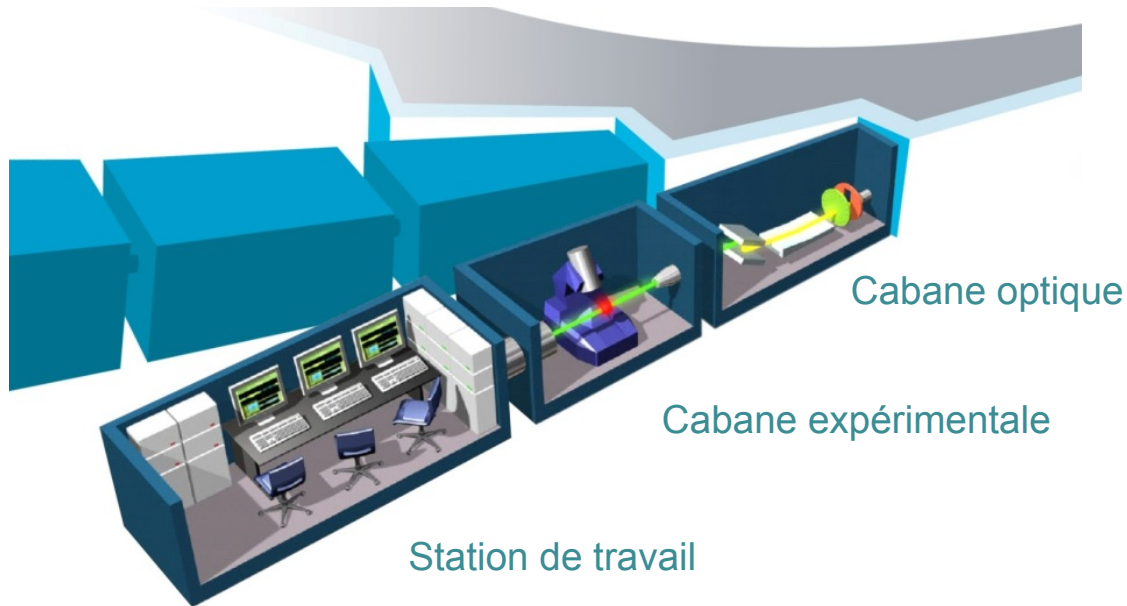
Spectroscopie IR	AILES , SMIS
Spectroscopie UV-VUV	DESIRS , DISCO , PLÉIADES
Spectroscopie X	CASSIOPÉE , DEIMOS , DIFFABS , GALAXIES , HERMES , LUCIA , MARS , NANOSCOPIUM , ODE , PLÉIADES , ROCK , SAMBA , SEXTANTS , TEMPO

Les techniques d'analyses électronique et magnétique

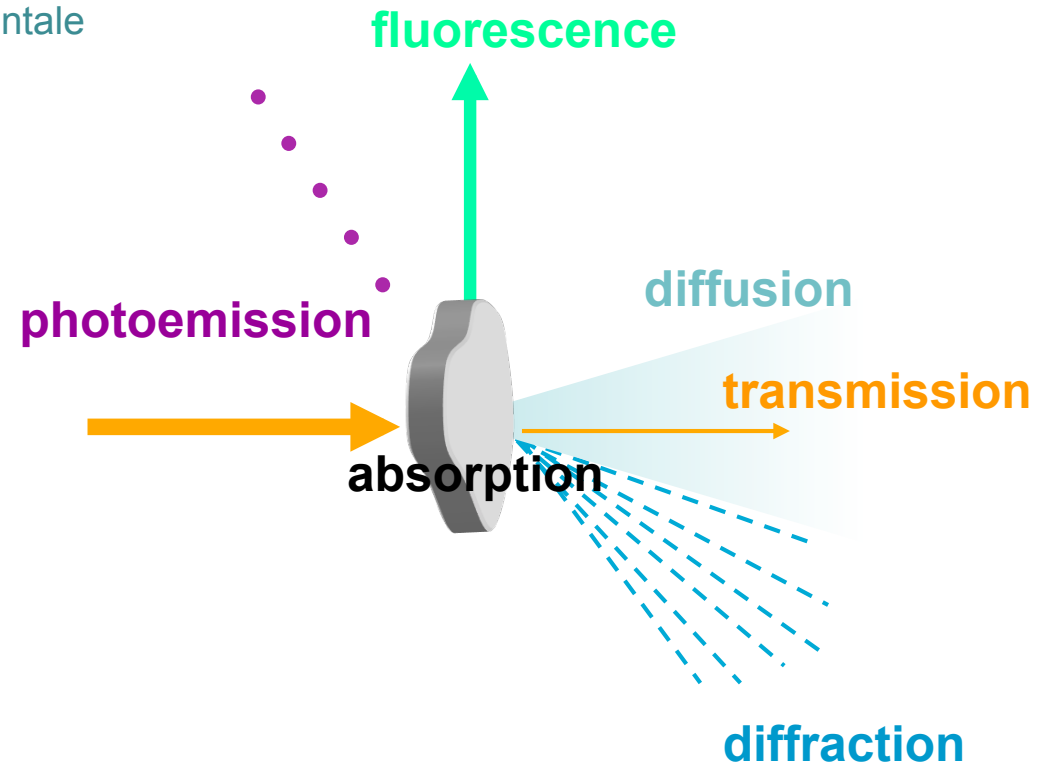
Etudes électroniques et magnétiques	ANTARES , CASSIOPÉE , DEIMOS , DESIRS , GALAXIES , HERMES , ODE , PLÉIADES , SEXTANTS , SIRIUS , TEMPO
-------------------------------------	--

Les techniques d'imagerie et de radiographie : morphologie

Imagerie	ANTARES , DISCO , DIFFABS , HERMES , LUCIA , NANOSCOPIUM , SEXTANTS , SMIS
Tomographie	PSICHÉ , PUMA



Les interactions lumière-matière



Informations obtenues

- chimiques (constituants), en 1, 2 ou 3 D
- structurales (organisation moléculaire), en 1, 2 ou 3 D
- morphologiques (détails, défauts, densité...), radiographie 2 / 3 D
- électroniques / magnétiques (spins, niveaux électroniques, fermi..)



Techniques d'analyse sur DiffAbs

Processus	Techniques	Informations
Absorption	Spectroscopie d'absorption X EXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) XANES (X-ray Absorption Near Edge Structure) en transmission, en fluorescence, en polarisation, en incidence rasante	Coordinence, géométrie de site, distorsion de site, valence, propriétés électroniques, distances interatomiques, nature, désordre.
	Spectroscopie de fluorescence XRF (X-Ray Fluorescence)	Nature, teneur, Localisation (cartographie)
Diffusion élastique	Diffraction des rayons X XRD (x-ray diffraction)	Détermination de structures Reconnaissance des phases cristallines Microstructure, déformations...
	Diffusion des RX aux grands angles WAXS (Wide-Angle X-ray Scattering)	Distances interatomiques, nombre de voisins
	Réflectométrie X XRR (X-ray reflectivity)	Épaisseur, rugosité

+ **Diffraction résonante :**
$$f(q, E) = f_0(q) + f'(E) + if''(E)$$

- soit diffraction X / diffusion X, avec **effet anomal** (AXRD ou AWAXS)

- soit **spectroscopie en condition de diffraction** (DAFS, DANES)



First steps in the nucleation/crystallization of the $\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$

D.-R. Neuville¹, E. Strukelj¹, B. Cochain¹, P. Richet¹, M. Roskosz²,
M. Comte³, B. Guillot⁴, L. Hennet⁵, D. Thiaudière⁶

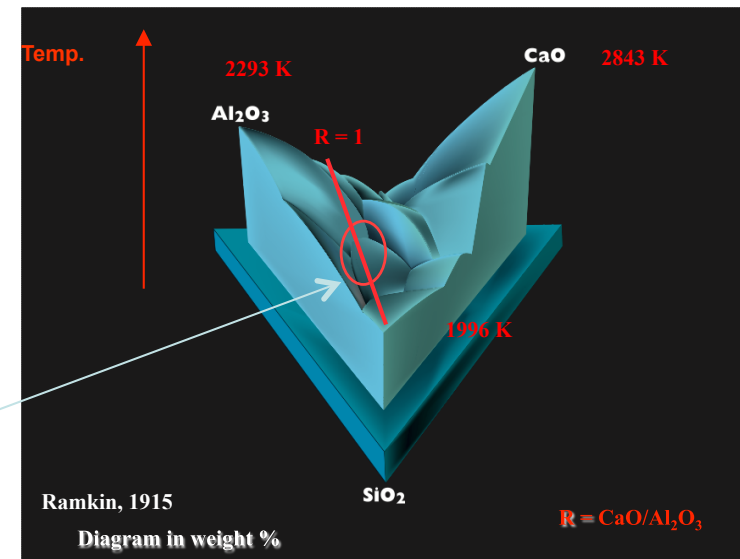
¹ Physique des minéraux et magmas, CNRS-IPGP, ² LSPES-Lille, ³ Corning SAS CETC,
⁴ LPTMC, ⁵ CEMHTI, ⁶ Synchrotron SOLEIL

**Best knowledge of the liquid crystallization in natural and industrial process.
Fundamental aspects for materials sciences and earth science**



Ivoclar - Vivadent

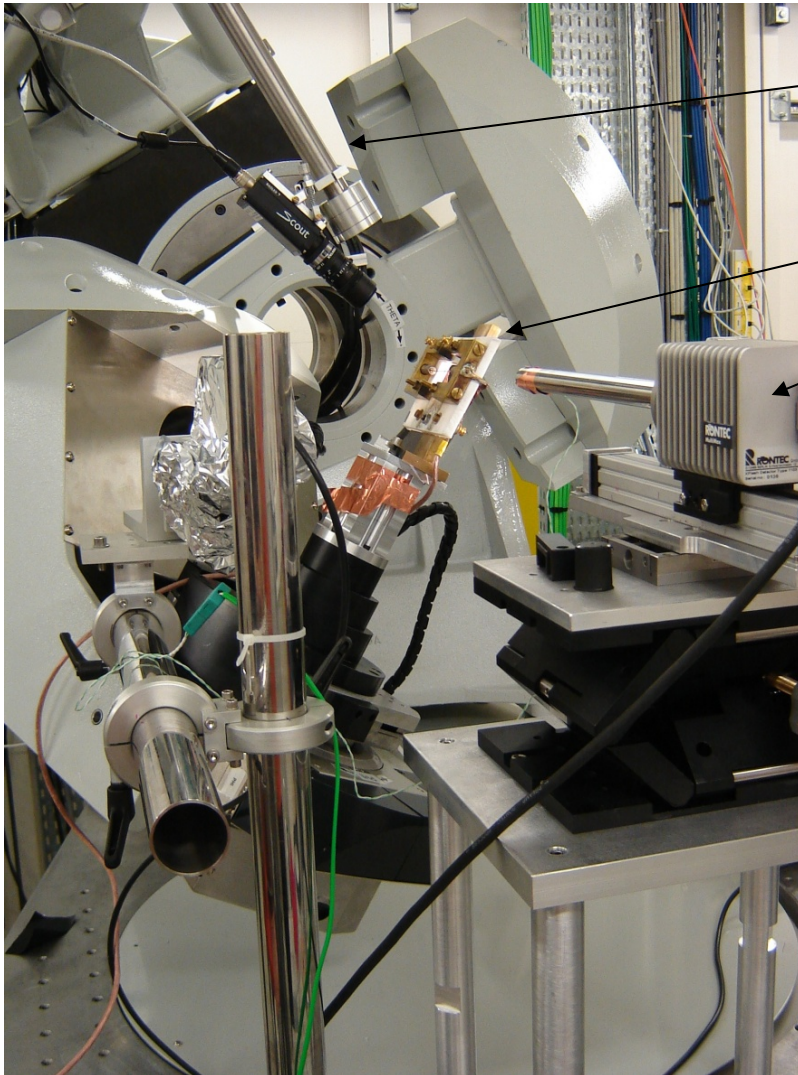
Yochiokaite



**$\text{CaO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ composition including 7% of ZrO_2
(Nucleating agent)**

Experimental set-up for *in situ* XAS / WAXS measurements at high temperature

Diffractometer

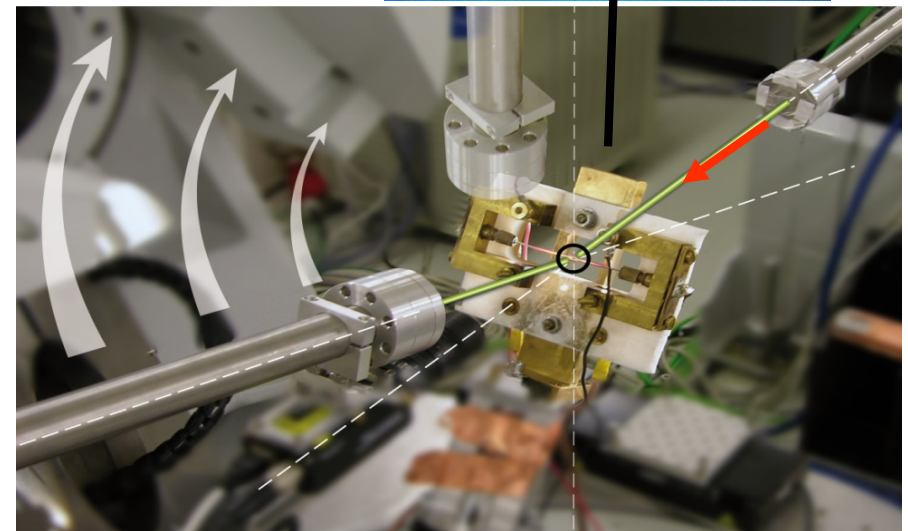
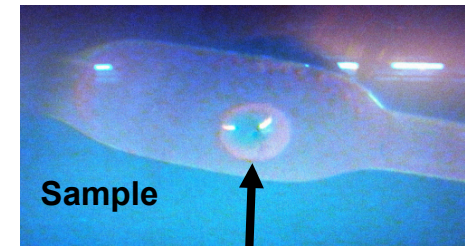


Detector arm including

- YAP detector for WAXS @ 17.5 keV
- Si-CsI detector for XAS @ Zr K-edge (transmission mode)

Heating system : Pt/Ir 10% wire (T max 1700°C)

- SDD detector for XAS @ Zr K-edge (fluorescence mode)

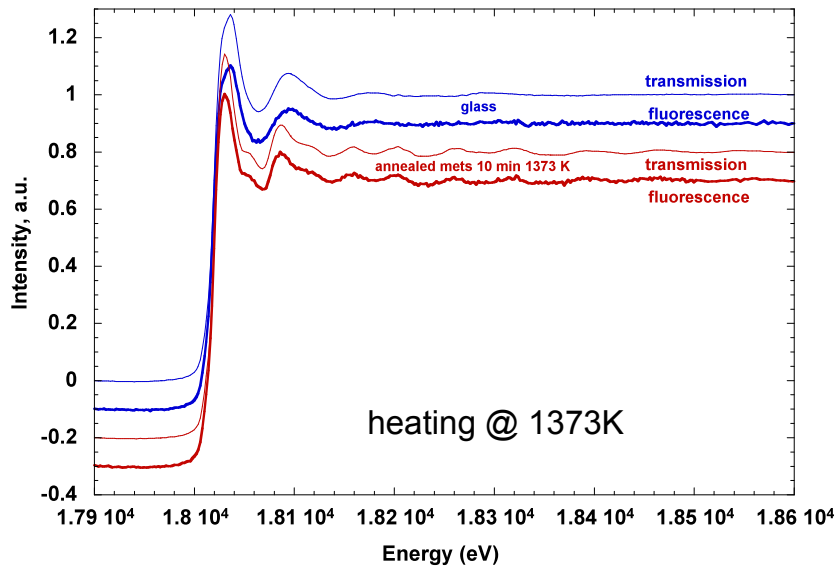




XAS measurements @ high temperature

EXAFS measurements @ Zr K-edge

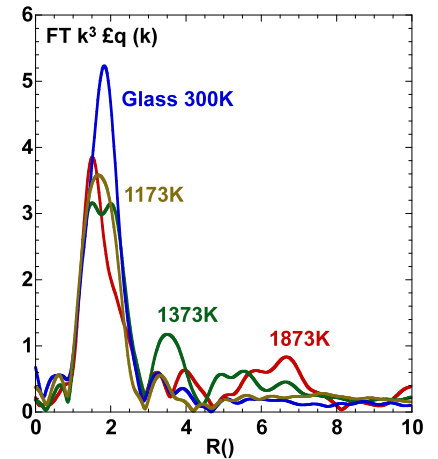
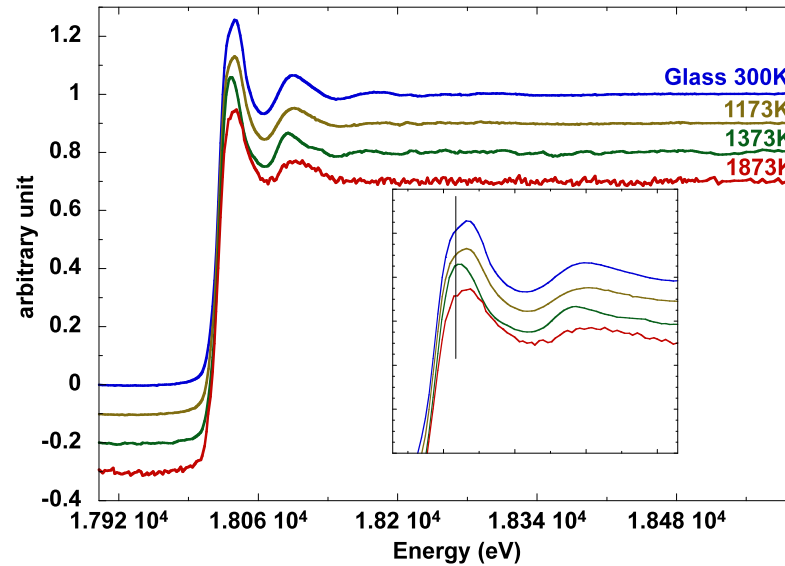
XAS in transmission and fluorescence mode



Similar signal between the two modes
→ crystallization in all the sample

Heating from Room Temperature

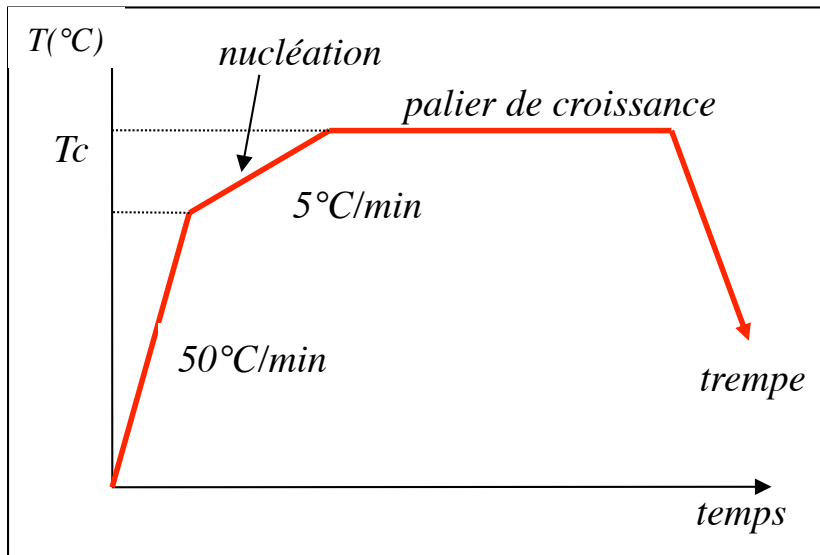
Glass at RT
Nucleation at 1173 K
Crystallization at 1373 K
Liquid at 1873 K



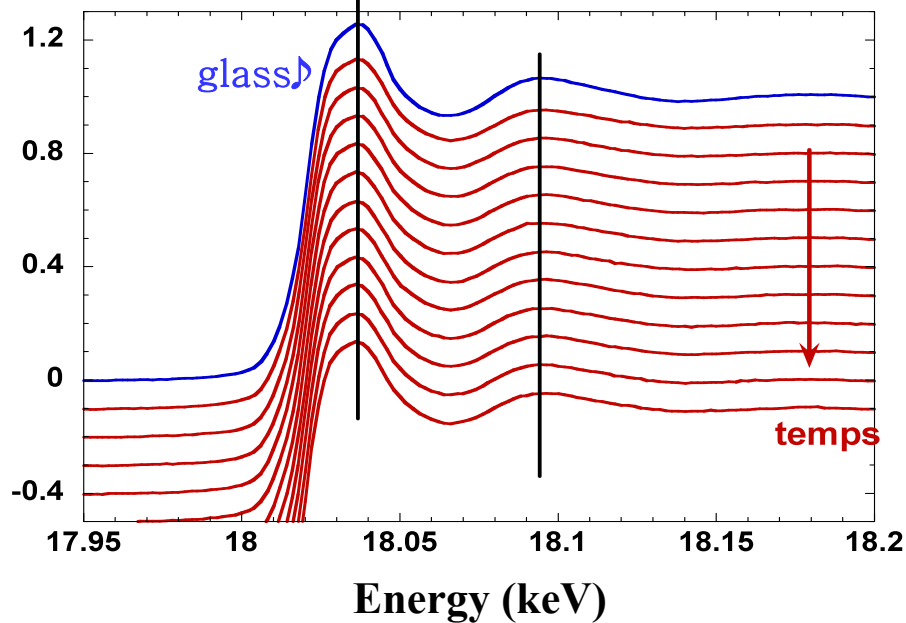


XAS measurements @ high temperature

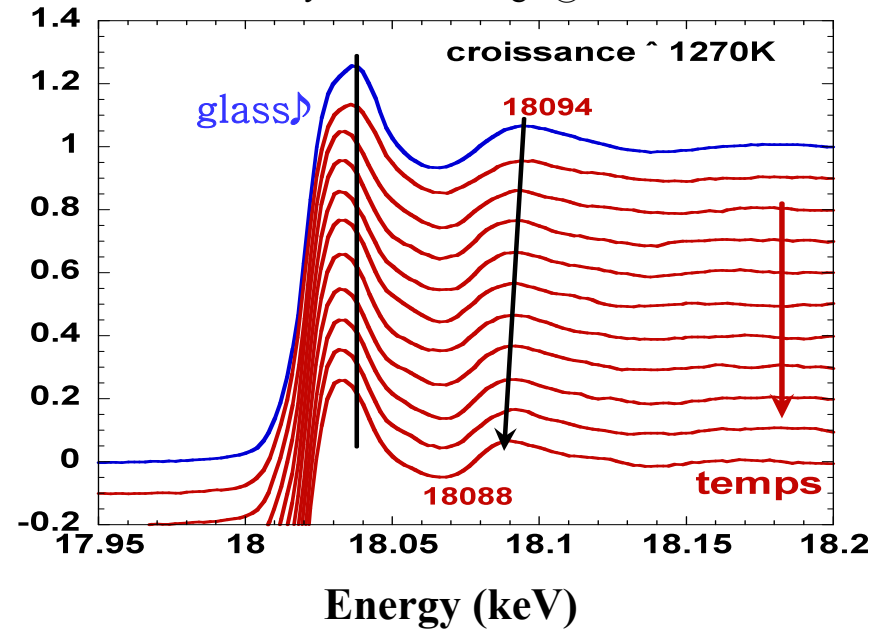
Evolution of XAS signal as a function of the time for nucleation and crystallization stages

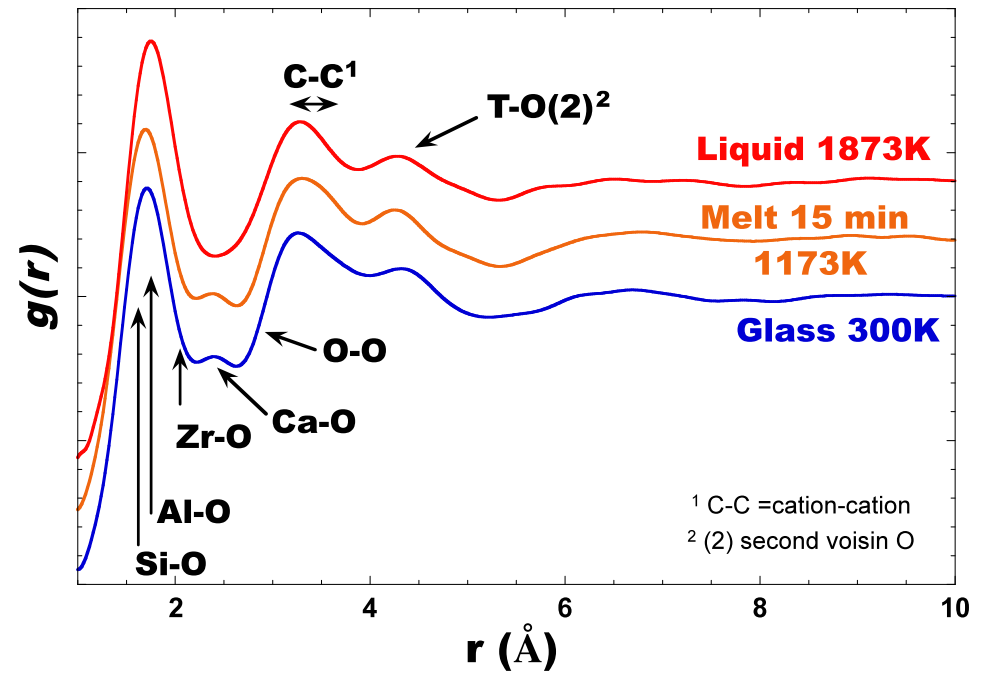
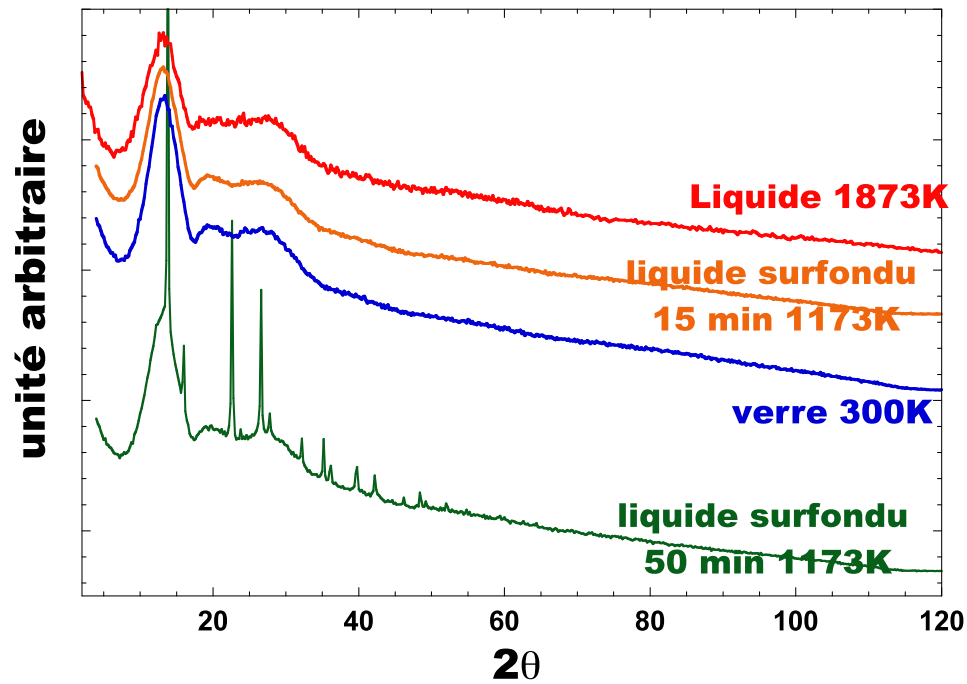


Nucleation stage @ 1170 K

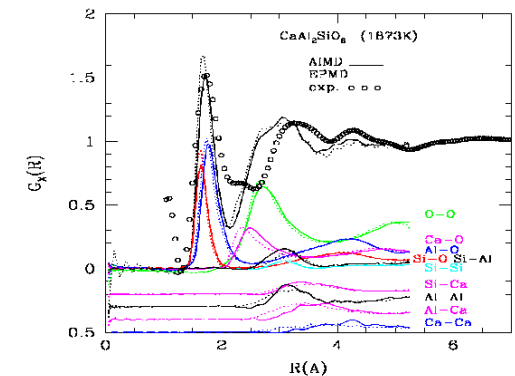


Crystallization stage @ 1270 K





- Shift of the first peak - Modification of the short range order
- Appearance of the Ca-O correlation (Increased order in the supercooled and glass states.





Anomalous X-ray scattering on levitated Yttrium Aluminate melts

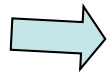
L. Hennet, S.Brassamin, J. Drewitt, D. Zanghi : CEMHTI – Orléans

Thomas Farmer, Adrian Barnes : Bristol University

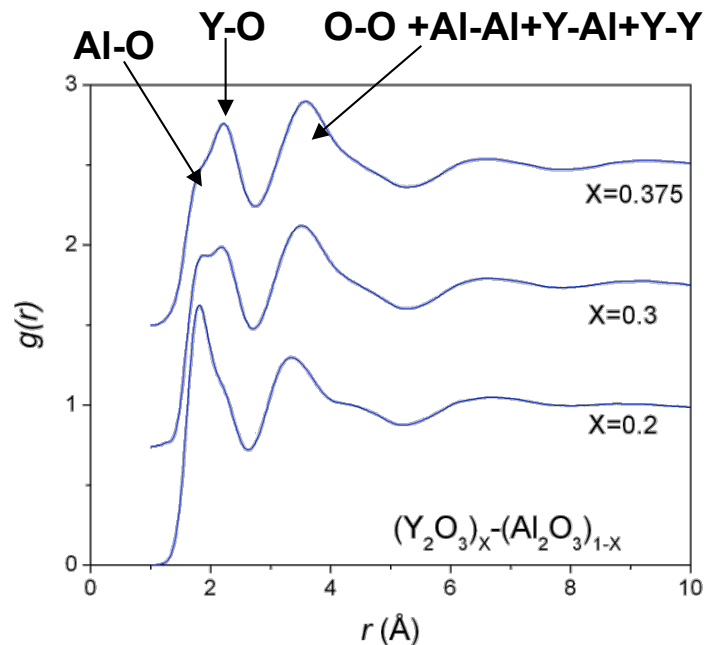
C. Mocuta, S. Réguer, D. Thiaudière : Synchrotron SOLEIL



- ◆ Well known compounds obtained from the melt : YAP ($x=0.5$), YAG ($x=0.375$) ↗ • Lasers
↘ • Detectors
- ◆ Polyamorphism observed at various compositions around $x=0.2$
- ◆ glass formers in a wide range of compositions



Interesting to study the liquid structure



Problems:

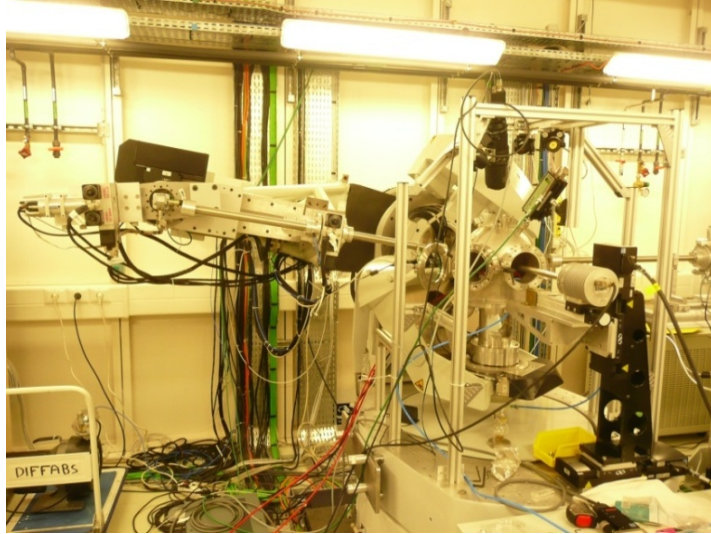
3 atoms (Al, Y, O) → 6 atomic pairs → Overlaps

- ◆ Difficult to separate Al-O and Y-O correlations
- ◆ Cation-cation contributions hidden by O-O pairs

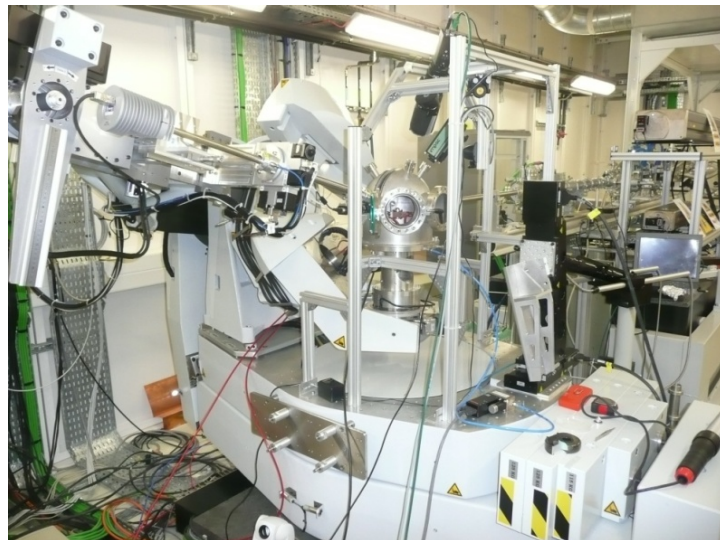


2 options for the detection part

$$I(\mathbf{Q}) = I_{coh}(\mathbf{Q}) + I_{air}(\mathbf{Q}) + I_{mult}(\mathbf{Q}) + I_{compt}(\mathbf{Q}) + [I_{fluo}(\mathbf{Q})]$$



graphite analyzing crystal



SDD detector mounted on the 2θ arm.



AY20 (x=0.2): (Al_{1.6}Y_{0.4}O₃) @ 2100°C

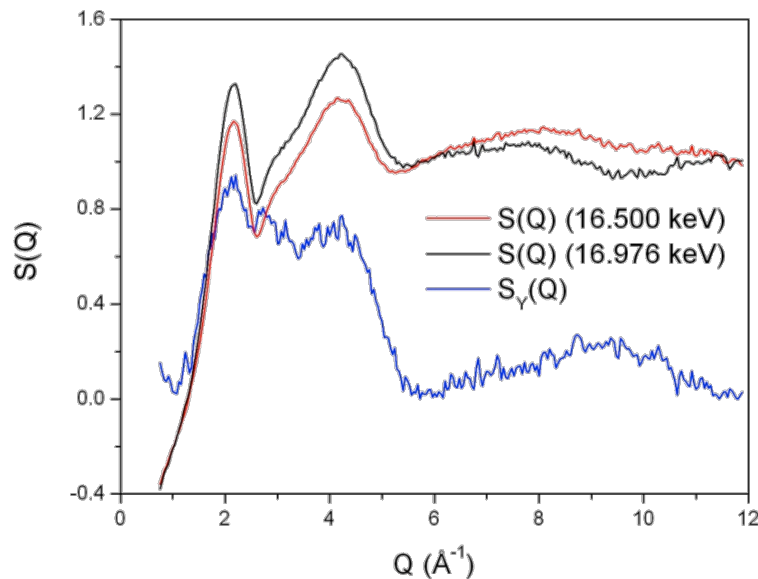
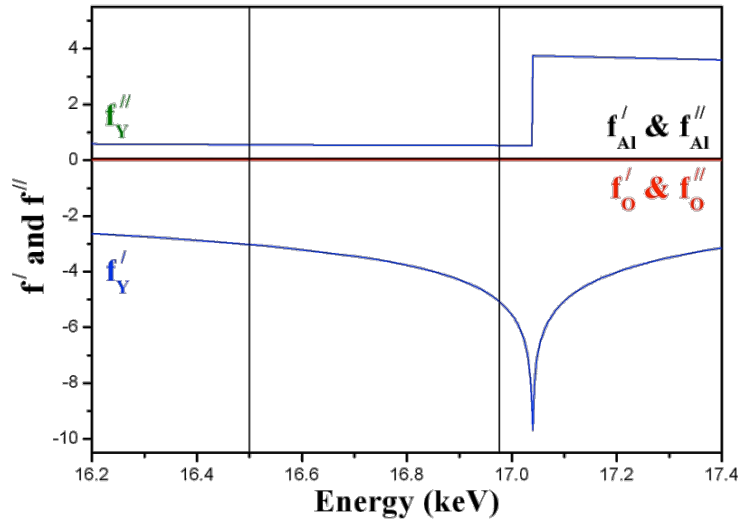
◆ Principle : XRD measurements à 2 energies: E₁ (16.500 keV) & E₂ (16.976 keV)

$$f_i(Q, E) = f_i^0(Q) + f_i'(E) + if_i''(E)$$

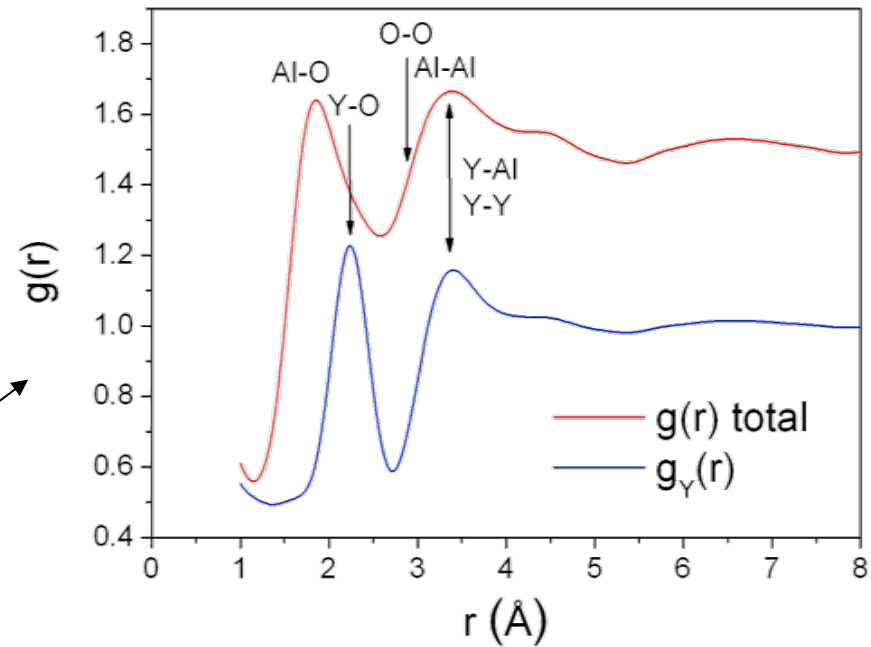
$$I_{coh}(Q) = \sum_{i,j} c_i c_j f_i f_j^* (S_{ij}(Q) - 1) + \sum_i c_i f_i f_i^*$$

$$\Delta I(Q) = (S_Y(Q) - 1) \cdot \Delta \langle |f(Q)|^2 \rangle + \Delta \langle |f(Q)|^2 \rangle$$

$$S_Y(Q) = 0.47S_{YO}(Q) + 0.28S_{YY}(Q) + 0.25S_{YAl}(Q)$$



FT



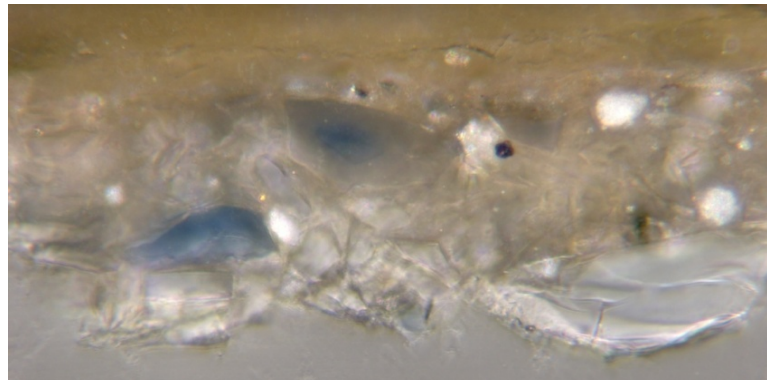
r_{Y-O} : 2.24Å, CN (Y-O) ~ 5.6, <r_{Y-Al}, r_{Y-Y}> : 3.44Å

Laurianne Robinet¹, M. Spring², Sandrine Pagès-Camagna³,
Delphine Vantelon⁴ & Nicolas Trcera⁴

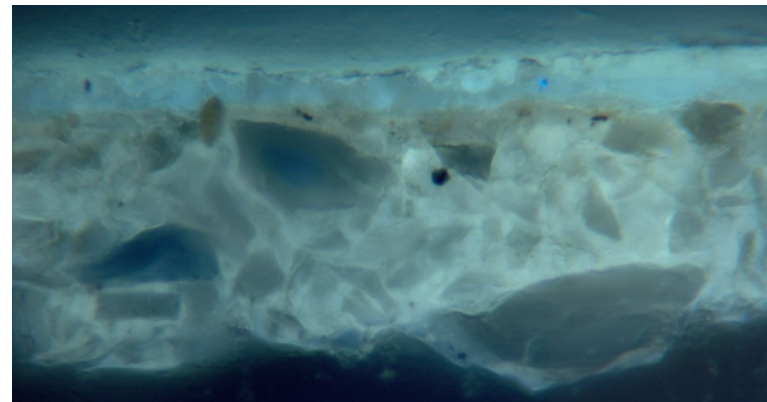
¹ IPANEMA, ² National Gallery – London, ³ CRRMF - Paris, ⁴ Synchrotron SOLEIL



Bartolomé Esteban Murillo, *The Heavenly and Earthly Trinities*, c. 1675–82, National Gallery London



Normal light

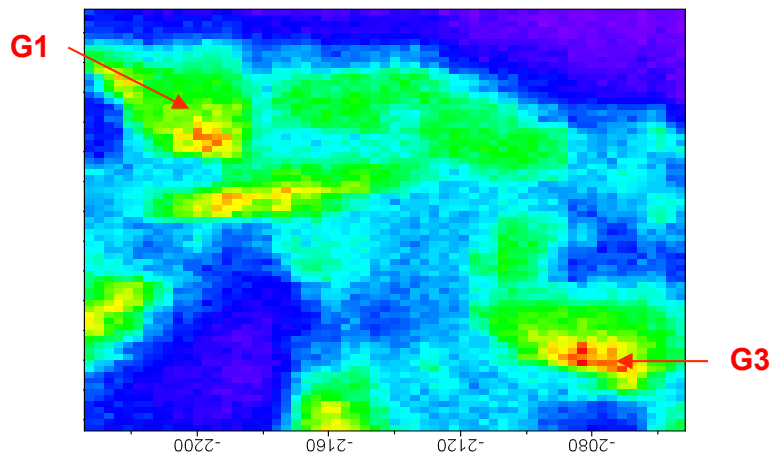
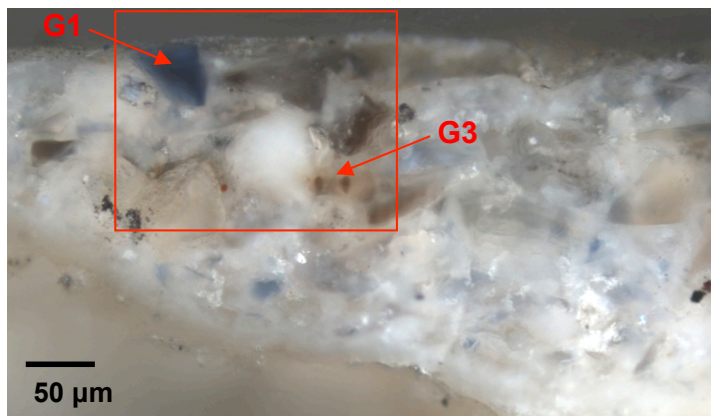


Ultraviolet light

40 μm

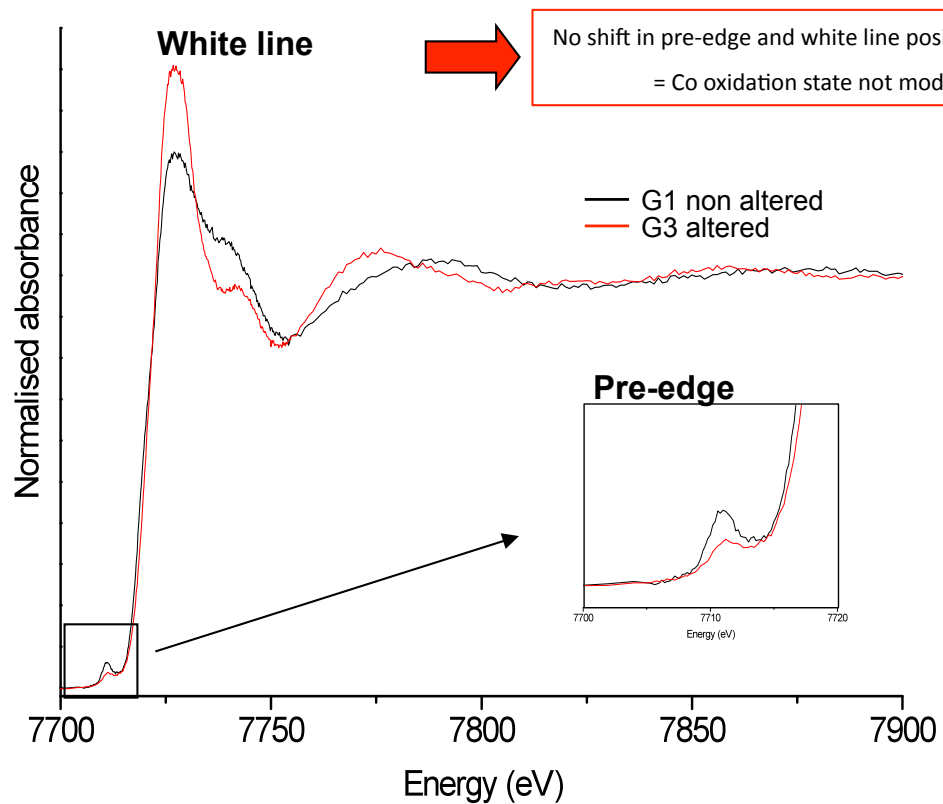
SEM-EDX analysis

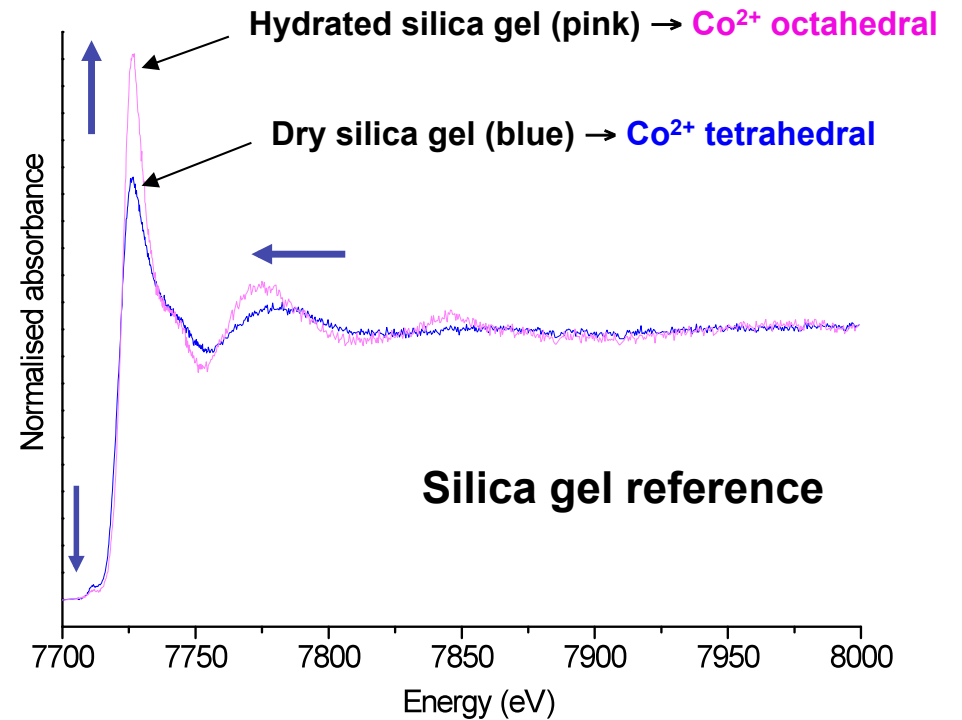
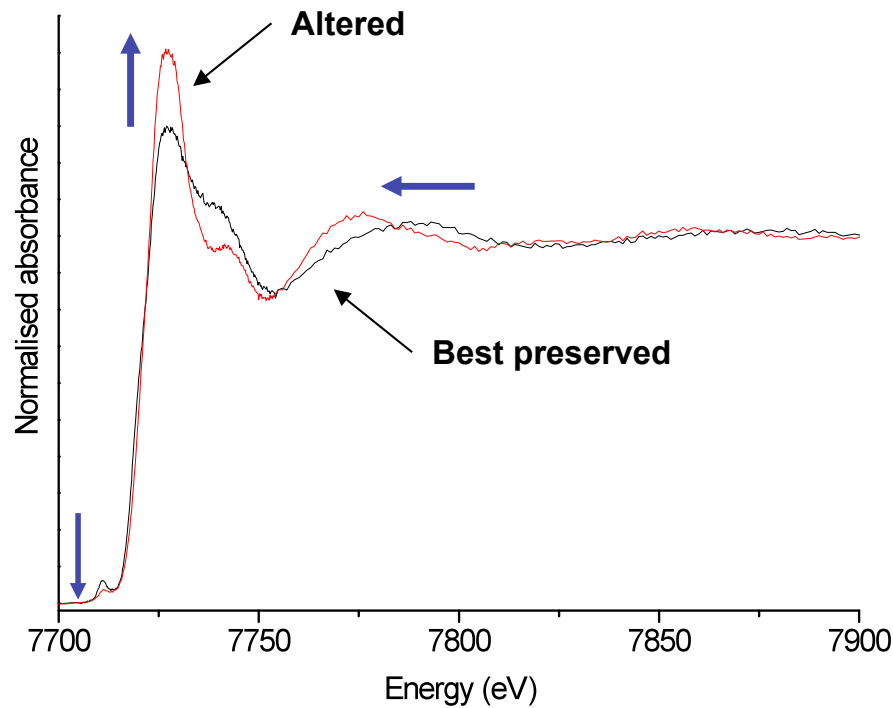
Weight %	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Na ₂ O	K ₂ O	CaO	MgO	FeO	CoO	As ₂ O ₃	NiO	PbO
G1 well-preserved	64.4	1.8	1.2	16.0	7.0	0.8	2.0	2.1	4.2	0.1	0.4
G3 altered	76.2	0.7	0.4	1.8	6.0	0.5	2.2	4.1	7.0	0.9	0.2



Co K-edge micro X-ray absorption spectroscopy LUCIA beamline at SOLEIL

- Fluorescence mode
- Beam size of 4 × 2 µm





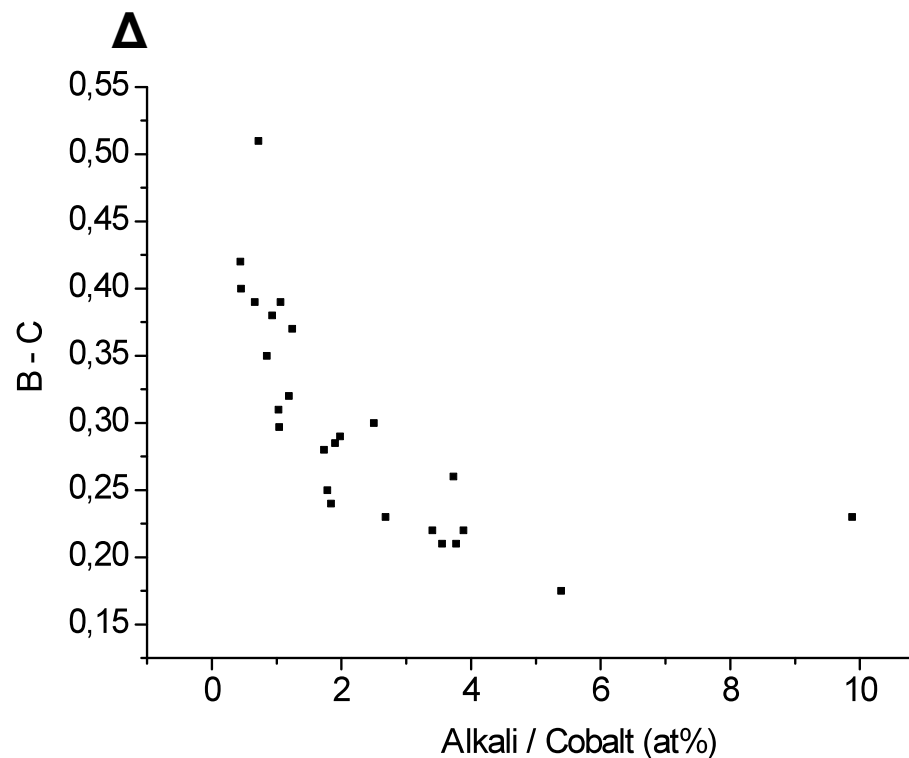
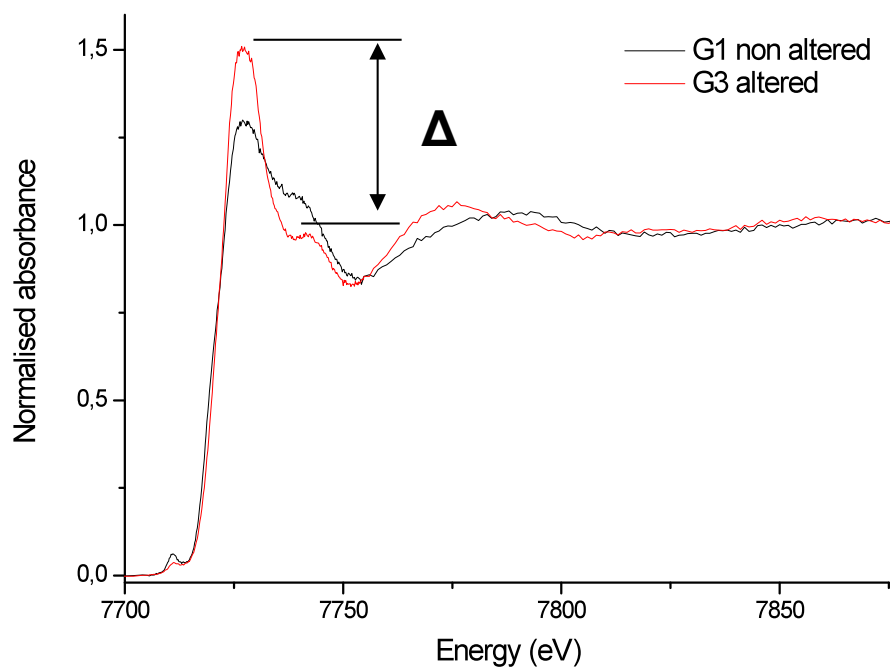
Co–O distance from EXAFS region

Sample	State	R (Å)	N (dN)
Veronese L2925	Unaltered	1.95	4.4 (2)
	Altered 1	2.03	5.5 (2)
	Altered 2	2.06	6.0 (3)
Murillo NG13S8	Unaltered	1.95	4.7 (2)
	Altered 1	1.97	5.5 (2)



Colour change = modification of Co^{2+} environment from mostly tetrahedral towards octahedral coordination

Correlation Co²⁺ coordination – alkali leaching

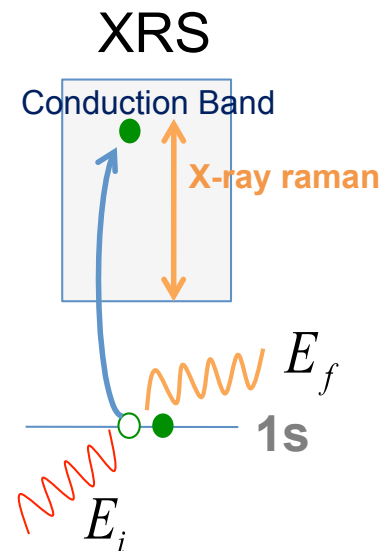
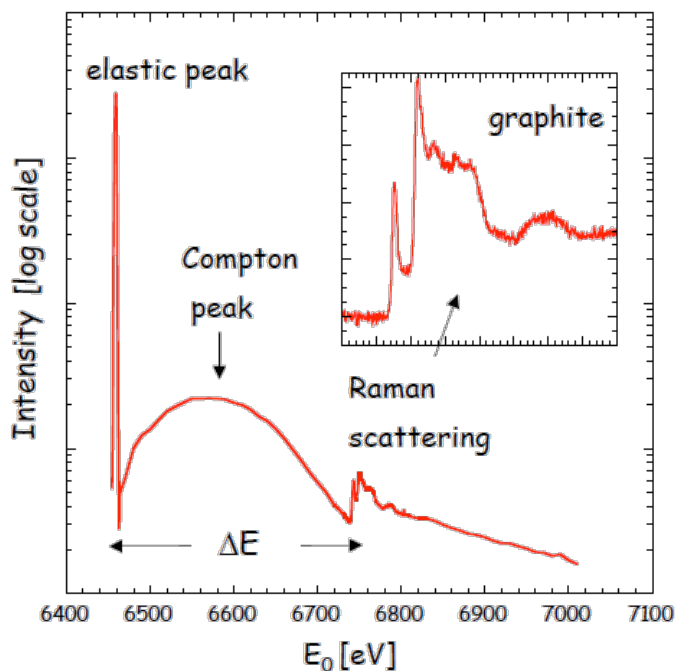


Alkali content affects Co²⁺ coordination
 Leaching of alkali responsible of coordination change

G. Lelong¹, L. Cormier¹, G. Radkte¹, B. Baptiste¹, L. Hennet², G. Monaco³,
 J.-P. Rueff⁴, J. Ablett⁴, G. Rousse⁵

¹ IMPMC - Paris, ² CEMHTI - Orléans, ³ ESRF - Grenoble, ⁴ Synchrotron SOLEIL, ⁵ Collège de France - Paris

Diffusion inélastique Raman des rayons X (X-ray Raman Scattering, XRS)

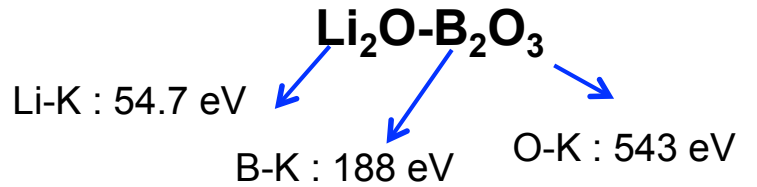


Processus Inélastique

Un photon incident avec une énergie E_i est diffusé avec une énergie plus faible: $E_f = E_i - \Delta E$

Avec le transfert d'énergie, un électron de cœur est excité vers un niveau inoccupé.

Intérêts du système $\text{Li}_2\text{O}-\text{B}_2\text{O}_3$ (vitreux et cristallin)



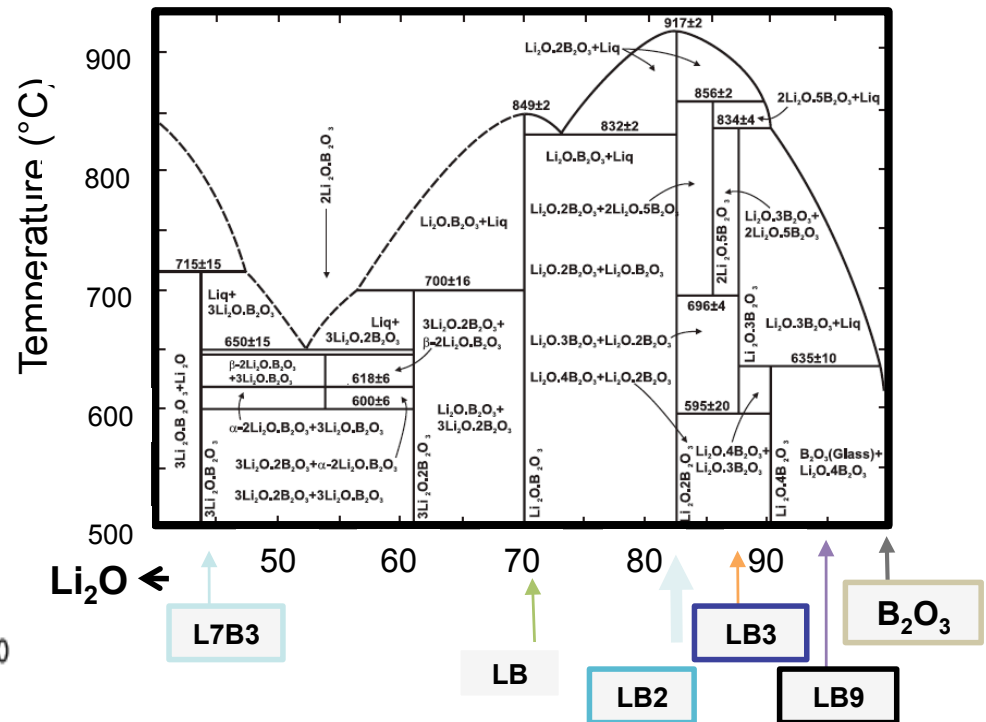
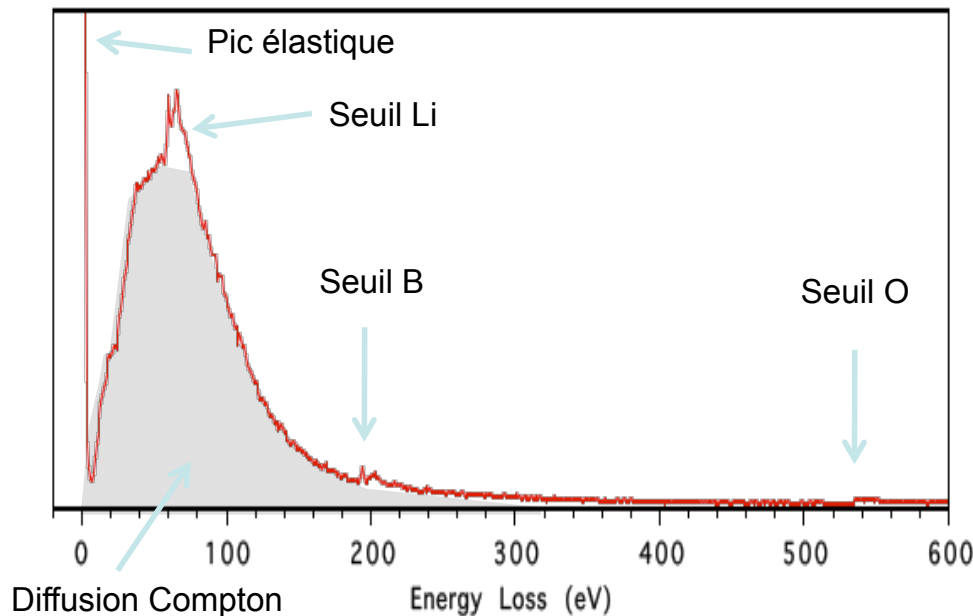
Technologiques :

- Matériaux pour l'optique non linéaire (LiB_3O_5)
- Bonne conductivité. Utilisation potentielle comme électrolytes solides (Li_3BO_3)
- LiMBO_3 (M=Fe, Co, Mn) : Utilisation potentielle comme cathodes

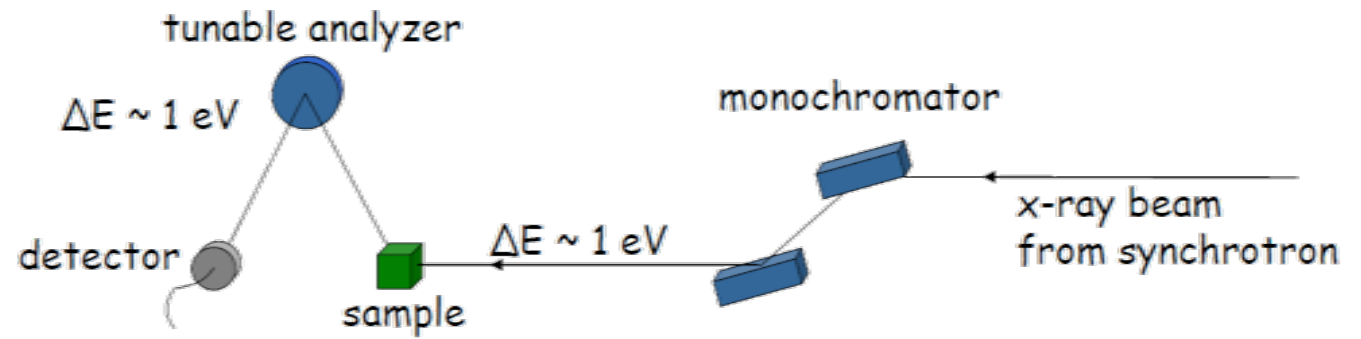
Scientifiques :

- B_2O_3 : Formateur de verre complètement constitué d'unités triangulaires BO_3
- Borates : Excellents matériaux pour étudier l'ordre à courtes et moyennes distances (anneaux Boroxol, superstructures)

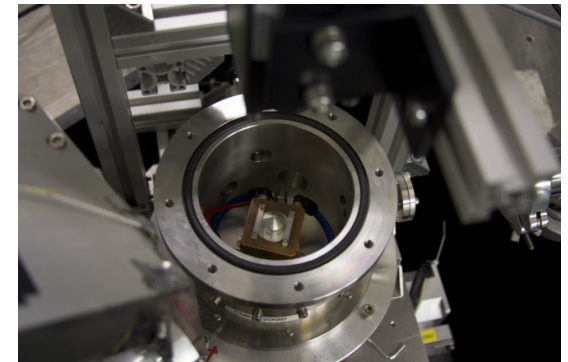
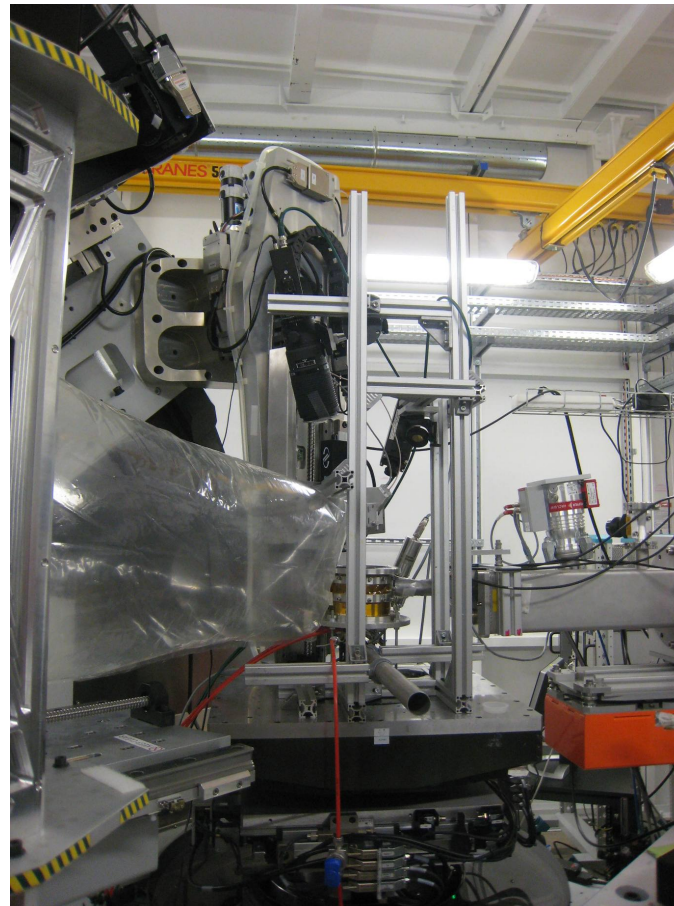
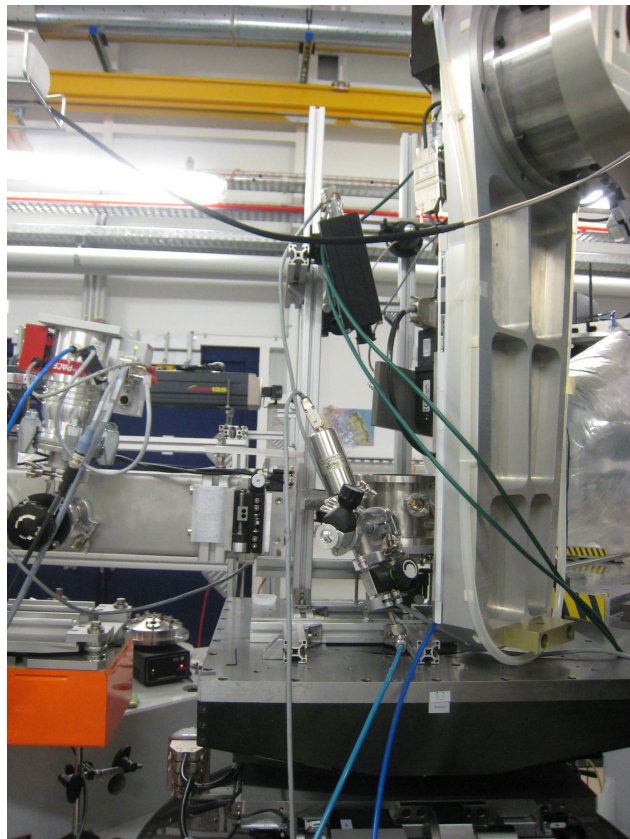
Spectre typique obtenu sur un borate de lithium



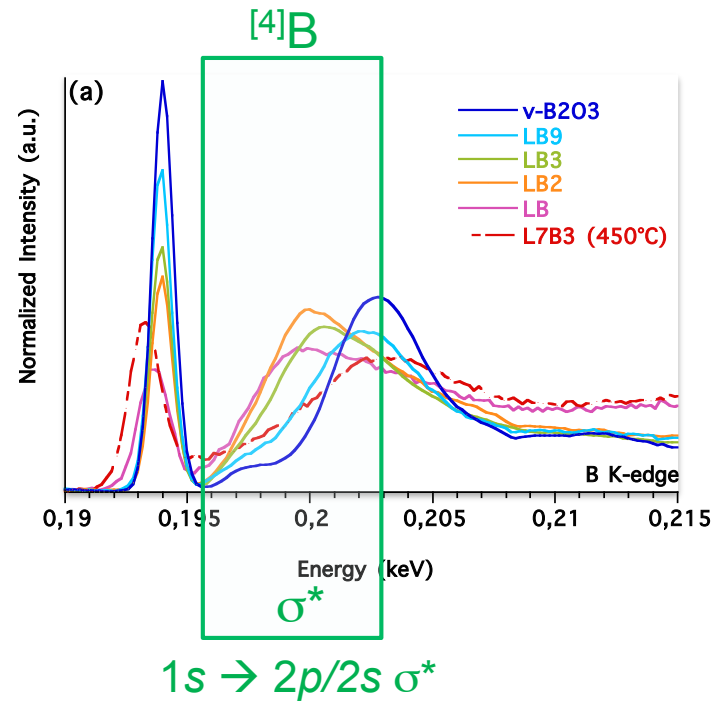
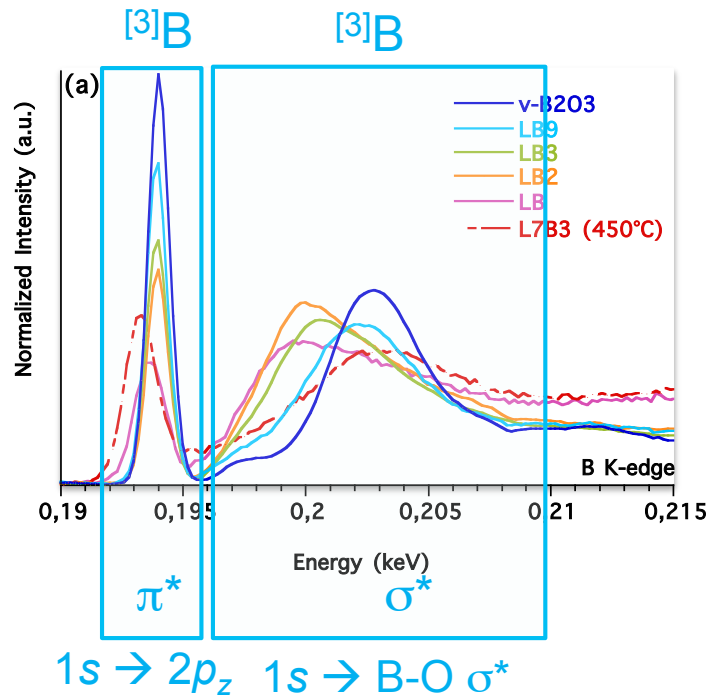
Dispositif expérimental pour des mesures à l'état liquide



$$\Delta E = E_i - E_f$$



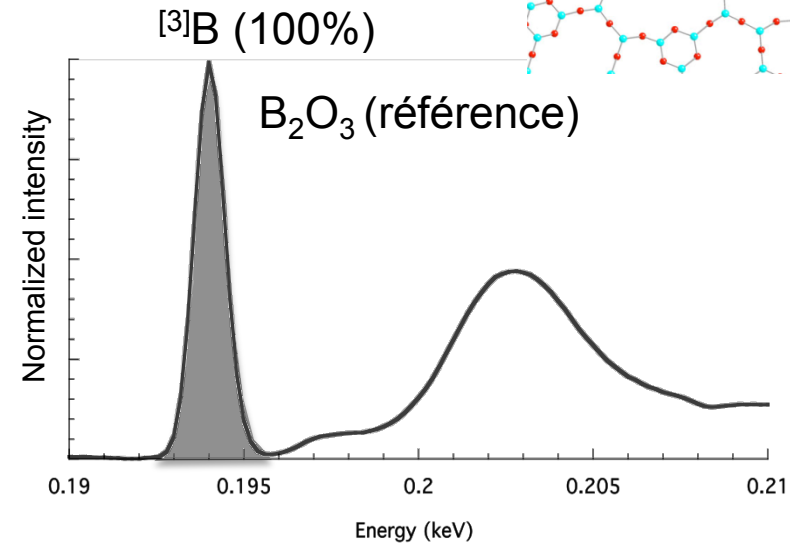
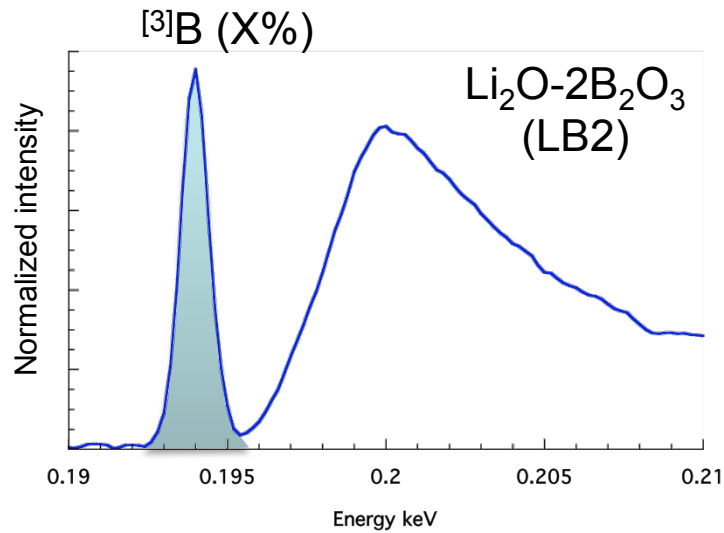
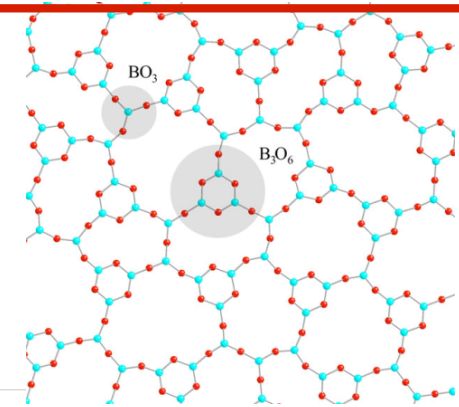
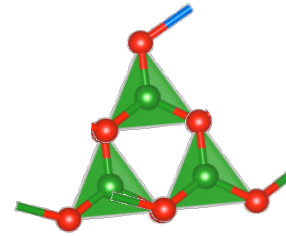
(T ambiante)



→ Modification du seuil due à un changement du rapport BO_3 / BO_4

Référence (100% $^{[3]}\text{B}$) :

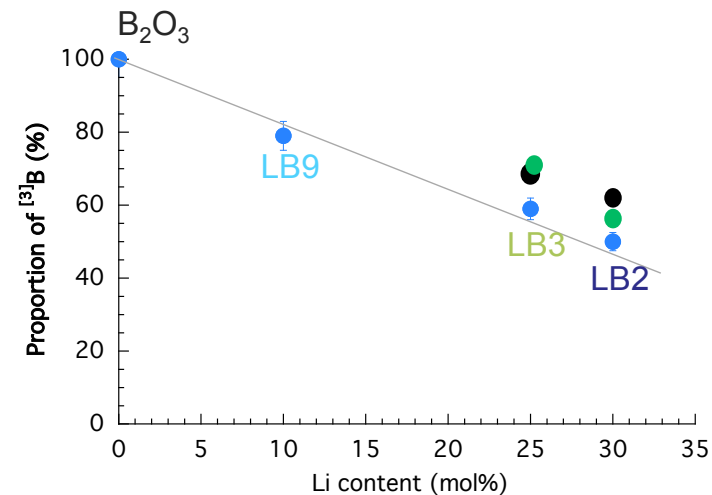
B_2O_3 : Formateur de verre constitué d'unités triangulaires BO_3

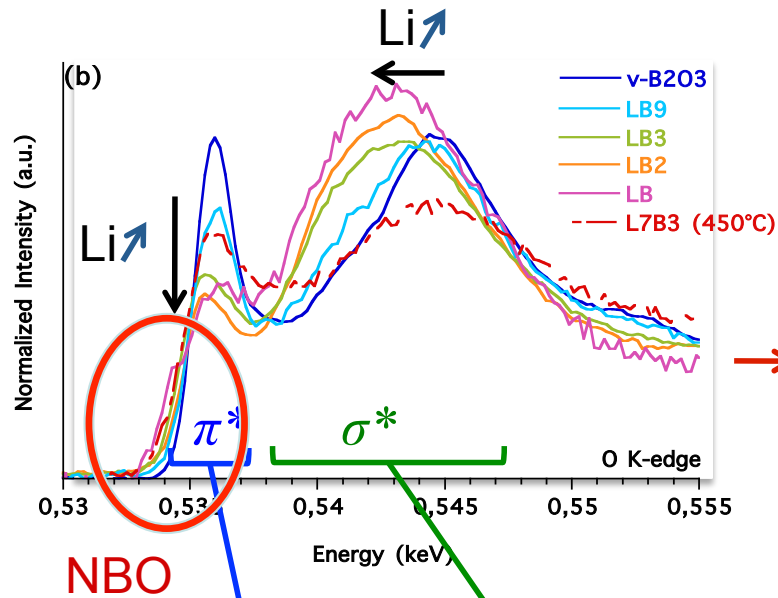


$$\text{Proportion } ^{[3]}\text{B} = \frac{\text{Aire}(LB_2)}{\text{Aire}(B_2O_3)}$$

Evolution avec la teneur en Li

- Cette étude
- ^{11}B NMR – Zhong *et al.* JNCS **111**, 67-76 (1989)
- ^{11}B NMR – Feller *et al.* JNCS **51**, 21-30 (1982)



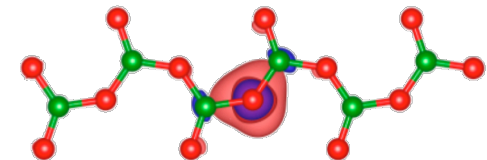


→ Quasiment pas de changement de coordinences

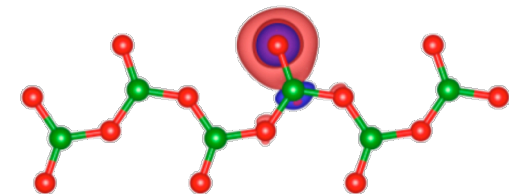
Sensible à : $[3]B-O-[3]B$

$[3]B-O-[3]B$
 $[3]B-O-[4]B$
 $[4]B-O-[4]B$

(a) bridging oxygen



(b) non-bridging oxygen



Mise en évidence des atomes d'oxygène non-pontants
 Quantification possible (Simulations DFT)