

Le rayonnement synchrotron dans le domaine XUV présent et futur

I. Nenner

*LURE, Laboratoire mixte CNRS, CEA et MENJS, Centre Universitaire, Bâtiment 209D,
91405 Orsay Cedex, France
DRECAM, Service des Photons, Atomes et Molécules, Centre d'Etudes de Saclay,
91191 Gif sur Yvette Cedex, France*

The ultra-violet up to the X ray range is the optimized domain of synchrotron radiation produced by electron (or positron) storage rings. The main characteristics of the beam from bending magnets and undulators are described. The main streams of applications rely on the absorption or diffusion/diffraction of light by matter. In the XUV range i.e. below a few keV radiation, the electronic properties of matter and the structural properties of light elements (2nd to fourth rows of the periodic table) are of central interest. Many fields of fundamental and applied research are concerned : atomic physics, molecular physical chemistry, surfaces and interfaces, solid state physics and chemistry and material sciences, biology, earth science, lithography, microscopy, metrology. Finally, future trends are outlined and the project of a new XUV machine "SOLEIL", complementary of the ESRF machine at Grenoble is briefly presented.

I- Généralités et caractéristiques du rayonnement synchrotron

Le rayonnement synchrotron est un rayonnement émis par des électrons (ou des positrons) soumis à une accélération centripète et circulant à une vitesse proche de celle de la lumière. En pratique, ces particules sont injectées de préférence à l'énergie nominale dans un anneau de stockage constitué d'un ensemble de sections droites et d'aimants de courbure formant ainsi une orbite fermée. Un rayonnement est émis au niveau des aimants dipolaires de courbure, tangentiellement à la trajectoire des particules et avec une très faible ouverture angulaire verticale, définie par l'angle $\psi = 1/1957 \cdot E$ (voir Figure 1a) où E est l'énergie en GeV des particules dans la machine. La courbe universelle du spectre de rayonnement synchrotron fourni par des particules d'un GeV est représenté sur la figure 1b. On définit une telle courbe par sa longueur d'onde critique λ_c (en nm)

$$\lambda_c = 0.56 R/E^3 = 1,86/BE^2$$

où B est l'induction magnétique en Teslas, R le rayon de la trajectoire en mètres. Pour une énergie donnée des électrons, la longueur d'onde critique sépare en deux parties égales la puissance émise. Plus l'énergie des électrons est élevée, plus le spectre est déplacé vers les courtes longueurs d'onde. Par exemple, la machine Super ACO de LURE fonctionne avec des positrons de 0,8 GeV et a une longueur d'onde critique de 1,9 nm (650 eV). La machine DCI de LURE avec 1,85 GeV d'énergie a une valeur de λ_c de 0,3 nm (4,1 keV), tandis que la machine ESRF en construction à Grenoble, fonctionnant à un maximum de 6 GeV a une valeur de λ_c de 0,065 nm (19,2 keV).

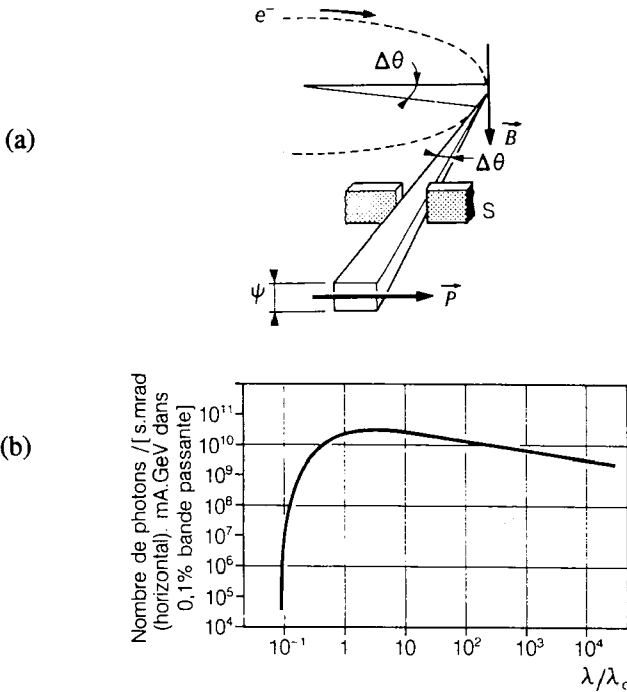


Figure 1 : (a) Principe de l'émission du rayonnement synchrotron. L'induction B est de 1,5 T, valeur maximum pour un électro-aimant. L'ouverture horizontale $\Delta\theta$ est généralement inférieure au milliradian.

(b) Courbe universelle de rayonnement synchrotron pour un électron se déplaçant le long d'une trajectoire circulaire, par GeV, dans un aimant de courbure. L'unité choisie pour l'intensité de l'émission, est exprimée en nombre de photons, rapportée à l'énergie des particules stockées dans la machine (énergie en GeV, intensité en mA), aux facteurs géométriques de la source tels que l'ouverture en milliradians, à sa continuité spectrale (la bande passante $\Delta\lambda/\lambda$ est fixée à 0,1 %), à son taux de répétition de l'ordre de 10 à 100 MHz (l'intensité de l'émission est donnée par seconde et non pas par pulse).

Dans chaque section droite d'une machine, on peut installer une structure magnétique périodique, appelée onduleur ou wiggler, selon le nombre de périodes et la force du champ magnétique. Le faisceau de particules ondule dans le plan perpendiculaire au champ magnétique de l'insertion et un rayonnement est également émis dans le plan tangentiel à la trajectoire courbe de chaque ondulation (Figure 2)

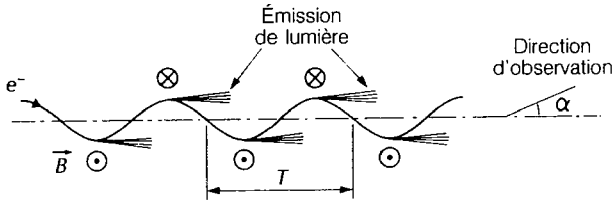


Figure 2 : Rayonnement synchrotron émis par un électron relativiste circulant sur une trajectoire sinusoidale dans un champ magnétique périodique de période T .

Dans le cas d'un champ magnétique faible (obtenu avec des aimants permanents), la lumière émise dans l'axe de l'onduleur résulte de l'interférence de ces faisceaux. Le spectre est émis sous forme d'harmoniques (la longueur d'onde de la raie fondamentale et donc des harmoniques sont généralement beaucoup plus grande que λ_c) avec une intensité généralement beaucoup plus élevée (un à plusieurs ordres de grandeur) que celle émise dans un aimant de courbure. Dans le cas d'un champ fort (obtenu avec des aimants supraconducteurs), le spectre est continu mais déplacé vers les courtes longueurs d'onde par rapport au spectre émis au niveau d'un aimant de courbure. Pour une machine donnée, c'est à dire E fixée, on peut obtenir localement des rayons X plus durs que ceux émis au niveau des aimants de courbure. Ainsi pour un anneau de stockage donné, chaque aimant de courbure et chaque onduleur (ou wiggler) constitue une source de lumière et un machine peut permettre le fonctionnement simultané d'un grand nombre d'expériences.

La caractéristique principale du rayonnement synchrotron est donc la **continuité spectrale** depuis l'intra-rouge jusqu'aux rayons X, c'est à dire dans un très large domaine de longueur d'onde souvent totalement inaccessible au laboratoire. Les faibles dimensions transverses du paquet d'électrons (ceux-ci se trouvent sous forme de paquets en nombre fini et distribués le long de la trajectoire) de l'ordre de quelques millièmes à quelques dixièmes de mm en font une source plus **brillante** que les tubes à rayons X ou des lampes à décharge.

Bien que le rayonnement synchrotron ne rivalise pas avec les lasers dans le domaine visible ou proche UV, il reste une source privilégiée dans le **domaine de l'ultra-violet sous vide, les rayons X mous et les rayons X**. C'est aussi une source plus intense que le corps noir dans le domaine de **l'infra-rouge lointain**. Le rayonnement synchrotron est fortement **polarisé** linéairement dans le plan de l'orbite des particules. De part et d'autre de ce plan, cette polarisation linéaire diminue fortement et la lumière est polarisée circulairement. Les particules stockées dans un anneau étant groupées en paquets, la lumière est **pulsée** avec des largeurs d'impulsion dans le domaine de la subnanoseconde avec des taux de répétition dans le domaine du MHz ou quelques dizaines de MHz, selon la longueur de la machine et le nombre de paquets stockés. La très **grande stabilité temporelle et spatiale** du rayonnement permet, après injection des particules, une utilisation continue sur une échelle de quelques heures à quelques dizaines d'heures.

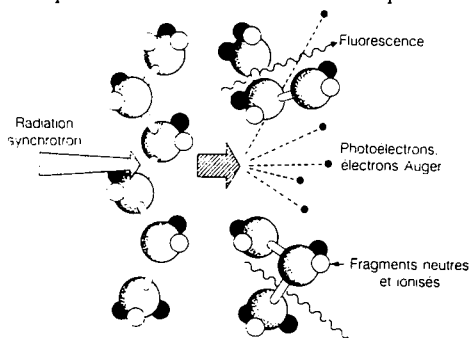
II- Applications

Les applications du rayonnement synchrotron sont extrêmement vastes et touchent de très nombreux domaines depuis la recherche fondamentale à la recherche appliquée et à la technologie. On peut citer les axes suivants

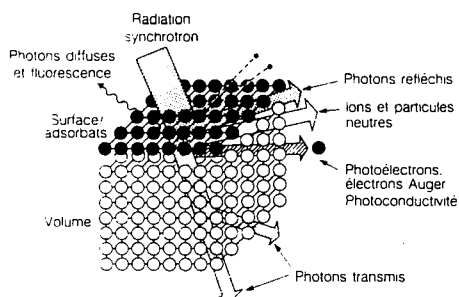
- a) Physique : matière condensée et surfaces, atomes et molécules
- b) Chimie, analyse et caractérisation de matériaux
- c) Biologie
- d) Sciences de la terre
- e) Astrophysique spatiale
- d) Technologie (microscopie, lithographie, étalonnage et standard d'intensité, optique des rayons X etc...)

Pour simplifier, on distingue les applications qui mettent à profit l'**absorption** du rayonnement de celles qui exploitent la **diffusion ou la diffraction** du rayonnement. La figure 3 montre schématiquement les différentes spectroscopies et expériences possibles avec le rayonnement synchrotron. L'absorption de la lumière dans la matière résulte de l'excitation électronique de valence (ultra-violet proche et sous vide) ou de l'excitation d'électrons de cœur (ultra-violet lointain, X mous ou X durs selon le numéro atomique de l'élément). L'intérêt des applications relève de l'étude des **propriétés électroniques** de la matière. Lorsque le rayonnement est diffusé ou diffracté, (cas du domaine des rayons X durs, conventionnels et mous), les applications concernent l'étude des **propriétés structurales**. Un aspect particulièrement intéressant de la diffraction avec le rayonnement synchrotron est l'EXAFS (Extended X ray Absorption Fine Structure). Un spectre d'absorption X d'un

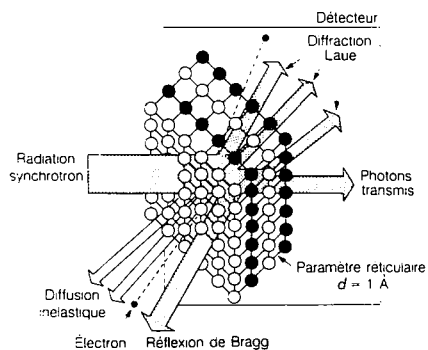
matériau quelconque (molécule en phase gaz, matière condensée liquide ou solide, ordonnée ou non) au voisinage d'un seuil d'excitation d'un électron interne montre un signal abrupt à la longueur d'onde caractéristique de l'élément Z considéré. Chaque élément Z absorbe le



a) interaction du rayonnement synchrotron avec une molécule



b) interaction du rayonnement synchrotron avec les solides et les surfaces.



c) interaction de la partie rayons X du rayonnement synchrotron avec les solides

Figure 3 : Différentes spectroscopies et expériences possibles avec le rayonnement synchrotron

rayonnement à une longueur d'onde spécifique de sa couche K, L etc.; dans le domaine XUV, sont concernés les éléments de la 2 et 3^{ème} ligne (couche K) et 4^{ème} ligne (couche L) du tableau périodique. Dans la région de ce seuil, on observe généralement des pics (ou résonances) résultant de transitions électroniques d'un niveau de coeur vers des niveaux de valence inoccupés. Cette région appelée XANES (X ray Absorption Near Edge Structure) donne des informations sur la symétrie locale, la nature des liaisons chimiques, etc... A quelques dizaines d'eV au dessus du seuil et sur des centaines d'eV, on observe des oscillations. Celles-ci sont dues à la diffraction de l'électron de couche interne issu de la photoionisation de l'atome absorbant, sur les atomes voisins. En d'autres termes l'onde associée à cet électron sortant interfère avec l'onde réfléchiée par les atomes voisins. La transformée de Fourier du signal fournit la distribution radiale (distances, coordinence) de l'atome absorbant, sur plusieurs couches d'atomes voisins. L'EXAFS constitue une méthode de diffraction locale, particulièrement puissante pour sonder l'environnement local autour d'un élément choisi dans toutes sortes de matériaux sous n'importe quelle forme physique.

Sans traiter en détails les autres expériences de la figure 3, (voir aussi les articles de biologie, lithographie, microscopie, de physique atomique dans ce volume), citons ici quelques aspects d'autres applications spécifiques du domaine XUV.

Dans le domaine de l'étude des propriétés électroniques de surface, le choix illimité de la longueur d'onde permet de sélectionner dans une expérience de photoémission, l'énergie du photoélectron et donc son libre parcours moyen. On peut effectuer soit des mesures du spectre d'énergie des électrons dans des conditions de sensibilité maximum de la surface par rapport au volume. Les possibilités d'effectuer les mesures de photoémission avec une bonne résolution angulaire (direction polaire ou azimuthale) avec éventuellement la mesure de la polarisation de spin permet une vaste gamme d'études des propriétés électroniques, structurales et magnétiques de surfaces et interfaces.

En photochimie et photophysique de molécules en phase gaz et en phase chimisorbée, toutes les caractéristiques du rayonnement (accordabilité, polarisation, structure pulsée) sont exploitées. Les expériences sont aussi nombreuses car les particules émises après l'absorption d'un photon XUV dans le système sont variées : fluorescence, électron, ions, fragments neutres et résultent de cascades de processus à l'échelle de la femtoseconde à la microseconde. Ainsi une grande variété d'expériences de coïncidences sont couramment effectuées pour "trier" un type d'évènement particulier. On réalise aussi couramment des expériences de réactivité en phase gaz, comme des réactions ions-molécules.

La combinaison du rayonnement synchrotron avec des sources externes comme des lasers (visible ou infra-rouge) offre des possibilités nouvelles de sonde de la matière dans des situations hors d'équilibre. Le rayonnement peut être la sonde ou la pompe. Selon les cas on peut étudier des phénomènes lents ou même comparables à la période interpulse du rayonnement (100 ns typiquement). Dans ce dernier cas, la synchronisation des deux sources doit être réalisée. Les applications concernent la photochimie, la biologie et la physique des surfaces.

III-Le futur des sources de rayonnement synchrotron en France

Les besoins de la communauté scientifique et des industriels croissent en nombre d'expériences et temps d'accès aux machines de rayonnement synchrotron. Au laboratoire LURE, où sont exploités deux anneaux de stockage Super ACO (rayons X mous, ultra-violet et infra-rouge lointain) et DCI (rayons X) avec 40 expériences simultanées, la demande double tous les cinq ans et atteint 750 projets/an (soit plus de 1500 utilisateurs/an) en 1992. La machine européenne ESRF de 6 GeV en voie d'achèvement à Grenoble permettra dès 1993 de satisfaire une bonne partie des besoins dans le domaine des rayons X, surtout au dessus de 10 keV d'énergie de photons. Très peu d'expériences sont prévues au dessous de cette énergie et aucune au dessous de 1 keV parce que le rayonnement est impossible à utiliser pour des raisons technologiques, (la nature des matériaux de l'optique de transport du faisceau UV ou XUV ne pourrait supporter la puissance émise dans le domaine des rayons X). Or 45 % des projets de LURE requièrent de la lumière dans ce domaine.

En 1991, un comité national de "prospective pour l'utilisation du rayonnement synchrotron en France" présidé par le Professeur Henri Benoit a recommandé, pour les besoins de la communauté Française, la construction d'une source à rayonnement synchrotron d'énergie intermédiaire, complémentaire d'ESRF, avec une implantation dans la région parisienne. Le laboratoire LURE a élaboré un projet dit "SOLEIL" (Source Optimisée de Lumière d'Energie Intermédiaire de LURE) qui devrait préfigurer un nouveau laboratoire de rayonnement synchrotron à l'échelle nationale. Dans la perspective de la mise en service de l'ESRF, se pose le problème des besoins de lumière au dessous de 10 keV et donc des performances de l'anneau SuperACO en tenant compte de la concurrence d'autres machines très performantes actuellement en construction dans le monde et en Europe.

La machine Super ACO (0.8 GeV) a été conçue en 1981-82 et optimisée au niveau des aimants de courbure autour de 600 eV. Son énergie a été limitée en raison des difficultés technologiques provenant de la faible résistance des optiques pour l'ultra-violet (miroirs et réseaux) aux rayons X. Elle possède cinq sections droites utilisables pour des onduleurs et

wigglers. Ceci lui permet actuellement d'être la seule machine dite de troisième génération en opération dans le monde. Toutefois l'énergie optimale pour un fonctionnement des onduleurs est de quelques centaines d'eV environ). Cette machine fonctionne 50% du temps à 2 paquets pour l'exploitation de la structure pulsée et 50% à l'intensité maximale à 24 paquets. La durée de vie du faisceau est relativement faible (3 heures à 2 paquets et 5 heures à 24 paquets).

La machine "SOLEIL" est prévue pour fonctionner avec des positrons de 2.15 GeV pour concilier :

- *une faible emittance du faisceau de particules (forte brillance de la source)
- *une forte intensité du courant de particules ($I > 300 \text{ mA}$)
- *une grande durée de vie ($\tau > 15$ heures)
- *un faisceau très stable
- *un fonctionnement des onduleurs jusqu'à 1 keV
- *un nombre maximum d'insertions magnétiques

tout en tenant compte des progrès dans les matériaux pour l'optique "chaude" qui permettent de supporter la puissance X sans compromettre les qualités du faisceau. Le choix de 2.15 GeV constitue l'optimum pour obtenir la meilleure machine possible pour de la lumière au dessous de 1,5 keV tout en ayant une excellente machine pour des photons de 10 keV. Les autres caractéristiques sont la forte brillance (comparable à ESRF), le mode de fonctionnement à un faible nombre de paquets (impulsions de 70ps séparés par 110 ns) comme celui de Super ACO. Cette machine aura aussi les spécifications suivantes :

- circonférence : 200 mètres
- nombre d'aimants : 16
- nombre d'insertions magnétiques : 14
- nombre d'expériences simultanées : >40
- possibilité de couplage avec des sources externes (lasers, source d'ions, laser à électrons libres dans l'IR)
- durée de fonctionnement annuel : 5000 h
- nombre d'utilisateurs annuels nominal : 2000

L'ensemble SOLEIL sera constitué d'un accélérateur linéaire de 200 MeV de positrons, d'un anneau dit "booster" pour accélérer les particules à l'énergie nominale de 2.15 GeV et de l'anneau proprement dit. L'état du projet en est à sa phase "Avant-Projet Sommaire". Le personnel permanent de LURE en collaboration avec des spécialistes du CEA-Saclay et du laboratoire du LAL (IN2P3-CNRS) se consacre à cette tâche depuis le mois de février 1992. Une enquête nationale est en cours pour appuyer le document "argumentation scientifique" prévu pour la fin 1992. Le document "machine et instrumentation" est prévu pour l'été 1993. Compte tenu d'une durée de construction de 4 ans et de l'arrêt programmé de l'injecteur actuel des machines de LURE (le LINAC aura plus de

40 ans en l'an 2000), il serait souhaitable que cette machine soit opérationnelle au tournant du siècle et donc qu'une décision soit prise en 1994 environ.

Bibliographie

I. Nenner, H. Dexpert et M. Bessière : "Rayonnement synchrotron et applications"

Les techniques de l'ingénieur, Spectrométrie des rayonnements électromagnétiques, P2700, (1991) et references citées.

Handbook of Synchrotron Radiation, Vol. 1a and vol. 1b, Ed. by E.E. Koch ; General Editors : D.E. Eastman and Y. Farges, Elsevier Science Pub. B.V. 1983

Handbook of Synchrotron Radiation, Vol. 2, Ed. by G.V. Marr and H. Winick ; Series Editors : E.E. Koch, T. Sasaki and H. Winick, Elsevier Science Pub. B.V. 1987

Handbook of Synchrotron Radiation, Vol. 3, Ed G.S. Brown and D.E. Moncton ; Series Editors : E.E. Koch, T. Sasaki and H. Winick, Elsevier Science Pub. B.V. 1991