HAL
open science

# Aspects du programme scientifique à l'ERSF

M. Belakhovsky

## To cite this version:

M. Belakhovsky. Aspects du programme scientifique à l'ERSF. École thématique. Ecole Joliot Curie "Les noyaux en 1993 : une nouvelle façon d'exister", Maubuisson, (France), du 13-18 septembre 1993 : 12ème session, 1993. cel-00651937

**HAL Id: cel-00651937**

**https://cel.hal.science/cel-00651937v1**

Submitted on 14 Dec 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

*Ecole Internationale Joliot-Curie de Physique Nucléaire (sept. 1993)*

# Aspects du programme scientifique à l' ESRF

M. Belakhovsky

*DRFMC - Service de Physique des Matériaux et Microstructures*
*CENG 17, rue des Martyrs 38054 Grenoble Cédex 9*

Résumé

L' ESRF (Grenoble) est la première multi-source de rayons X de sa génération au monde. Après un rappel des principales orientations scientifiques, le cours développe les 3 volets suivants :
- l' instrumentation, qui associe le tryptique source, optique, détection
- les lignes de lumière qui seront disponibles en 1994-96 ; un accent particulier est mis sur le projet de physique nucléaire GRAAL
- quelques uns des premiers résultats scientifiques (1993) obtenus dans des domaines variés de l' étude de la matière condensée.

Chacun des thèmes est assorti d' un rappel des connaissances de base.

*Abstract*

*The ESRF (Grenoble) is the first multi-source of X-rays of its generation in the world. After recalling its main scientific objectives, the course develops into 3 chapters :*
- *the instrumentation, regrouping the tryptic source, optics, detection*
- *the beam lines, that will become available within 1994-96 ; an emphasis will be put on the nuclear physics project GRAAL*
- *some of the first experimental results (1993) obtained in various fields of the study of condensed matter.*

*Each theme will be documented with a recall of basic knowledge.*

# *PLAN DU COURS*


**A. Introduction et orientations scientifiques à l' ESRF**

1. Introduction
2. Domaines scientiques

**B. Instrumentation**

1. La Source
1.1 Le rayonnement synchrotron et sa production
1.2 Rappel de physique des accélérateurs circulaires
1.3 Le système d' accélérateurs de l' ESRF

2. L' Optique X
2.1 Rappel de diffraction et réflectivité des rayons X
2.2 Problèmes optiques spécifiques

3. La Détection X pour l' imagerie
Besoins de détection X et développements à l' ESRF

**C. Lignes de lumière 94-96**

1. Généralités
2. Les lignes 94-96
3. La ligne de physique nucléaire (projet GRAAL)

**D. Quelques résultats scientifiques et perspectives**

1. Microfocalisation X et applications
2. Diffraction superficielle : interface eau-alcool
3. Diffusion magnétique résonnante
4. Haute pression et sciences de la Terre
5. Cristallographie macromoléculaire
6. Diffraction nucléaire

**Références**

**Annexes**
1. Formulaire de rayonnement synchrotron
2. Cohérence
3. Ligne "Interfaces"

**Remerciements**

# A. Introduction et orientations scientifiques à l' ESRF

## 1. Introduction

L' ESRF est la première source synchrotron au monde qui soit véritablement optimisée pour le domaine des rayons X. Cet équipement de 3 milliards de francs, associant 12 pays européens, est installé à Grenoble (fig. 1).
L' historique du projet remonte à 1977, suite à un état des moyens en rayonnement synchrotron en Europe, et sa confrontation à la demande potentielle. Le tableau 1 (réf.1) se limite aux jalons marquants, depuis la décision de construction prise en fin 1985. Après le document technique de fondation de l' ESRF, élaboré en 1986-87 ("RedBook"), quelques articles ou rapports plus synthéthiques sont disponibles (réfs. 1-4 ).

Il y a quelques années, l' ESRF ne pouvait être décrit qu' en perspective plutôt qu' en réalité. A présent, il est possible de s' appuyer sur l' existant : la machine a atteint ses performances nominales, plusieurs "lignes de lumière" commencent à fonctionner. Il est même possible dans certains cas d' asseoir sur des résultats scientifiques déjà acquis les potentialités de l' équipement.

S' agissant ici d' une présentation à visée pédagogique, les différents chapitres commenceront par introduire les concepts utiles, avant de traiter spécifiquement de l' ESRF.

Seront ainsi passés en revue, parfois de manière succincte :
- l' instrumentation générale, c' est-à-dire le tryptique source, optique, détection ;
- les différentes "lignes de lumière" en préparation pour 1994-96 ;
- quelques expériences réalisées à l' ESRF au cours du premier semestre 1993.

Enfin, s' adressant en premier lieu à un public de physiciens nucléaires, un accent particulier sera mis - dans les limites de compétences de l' auteur, sur le projet Graal.

Compte tenu de l' ampleur du sujet et pour éviter des redites inutiles, certains domaines d' application ne seront pas abordés et d' autres très partiellement ; le lecteur sera alors renvoyé à des références spécifiques.

## 2. Orientation scientifique

L' ESRF est une multisource optimisée pour la production de rayons X autour de l' Å, avec une gamme spectrale large (typiquement 40 Å -0,04 Å, soit 300 eV-300 keV). Différents processus d' interaction X-atome peuvent être rencontrés selon le rapport entre l' énergie du photon et l' énergie au repos de l' électron (table 2).

*Table 2. Processus d'interaction rayons X-matière*

| 1. $E_X << m_e c^2$ | 2. $E_X = m_e c^2$ | 3. $E_X > m_e c^2$ |
|---|---|---|
| - Photoémission<br>- Diffusion Thompson | Diffusion Compton | - Absorption photonucléaire<br>- Production de paires |

L' ESRF se situe au niveau des 2 premières colonnes de la table 2, et permet donc les techniques X de *spectroscopies* (absorption / photoémission), de *diffusion élastique* et de*diffusion inélastique.*

Les rayonnements $\gamma$ de hautes énergies (du MeV au GeV) se rencontrent seulement lors de perturbations du faisceau d' électrons soit voulue (projet Graal, § chap. C-3), soit subie (brehmstrahlung dû au vide résiduel de l' anneau).

Table 1

## Important events in the history of ESRF

| | |
|---|---|
| 1976 | September: First meeting of a Working Group on "Synchrotron Radiation" created by the European Science Foundation (ESF); Chairman : H. Maier-Leibnitz. |
| 1977 | December: "Synchrotron Radiation, a Perspective View for Europe" (Black Book). |
| 1979 | May: "European Synchrotron Radiation Facility - The Feasibility Study" (Blue Book ), (editor: Y. Farge). |
| 1982 | December: "The Case for a European Synchrotron Radiation Facility" (Yellow Book), (editor: J. Als-Nielsen) |
| 1984 | October: "Report of the European Synchrotron Radiation Project" (Green Book), (editors: B. Buras & S. Tazzari). |
| 1985 | April: Decision on the site: Grenoble,<br>June: First meeting of the provisional ESRF Council,<br>December: Memorandum of Understanding concerning the Preparatory Phase of the ESRF signed by France, Germany, Italy, UK. and Spain. |
| 1986 | April: Start of work of the ESRF project in Grenoble. |
| 1987 | January-June: First prolongation of the Preparatory Phase,<br>February: Foundation Phase Report (Red Book) submitted to the Council,<br>July-December: Second prolongation of the Preparatory Phase,<br>December: Protocol giving permission for the next phase of the project to proceed, signed by France, Germany, Italy, UK, Spain, Switzerland, and 4 Nordic countries (Denmark, Finland, Norway, Sweden). |
| 1988 | January: Start of construction,<br>December 16: Convention. Statutes and Final Act signed by France, Germany, Italy, UK. Spain, Switzerland, Belgium and 4 Nordic countries (Denmark, Finland, Norway, Sweden). |
| 1989 | January: Establishment of the ESRF company (Societe Civile),<br>February-Sept.: Execution of building construction contract A: Excavation, drainage,<br>December : Signing of building construction contract B: Machine utility buildings, storage ring tunnel, experimental hall, technical utility buildings. |
| 1990 | April: Start of building construction; 60% of equipment for the accelerator ordered,<br>November: Start of installation of the booster synchrotron,<br>December 9: Accession of the Netherlands to the ESRF in the framework of a consortium with Belgium, already a contracting party to the ESRF,<br>December: Signing of building construction contract C: central building (for laboratories and offices), joint ESRF/ILL building, landscaping. |
| 1991 | January : Delivery of pre-injector (linear accelerator); Experimental confirmation (by ESRF team in collaboration with NSLS, Brookhaven) of the potential of cryo-cooled silicon single crystals to preserve the high brilliance of ESRF's X-ray beams,<br>May : First electron beam in the pre-injector,<br>September: First electron beam (200 MeV) in the Booster Synchrotron.<br>November: Acceleration to 6 GeV. |
| 1992 | February: First electrons circulating in the storage ring.<br>June: Target values of energy (6 GeV) and current (100 mA) reached,<br>July: First X-rays from an undulator (machine diagnostics beamline ID 6) in the experimental hall,<br>November: First photons in BL1 (small angle scattering: undulator) and BL 2 (materials science, diffraction: first wiggler beamline),<br>December: First photons in BL 9 (open "Troika" beamline).<br>All target values of the source achieved including electron-beam lifetime. |

L' ESRF est un outil pluridisciplinaires, dont les applications scientifiques sont très vastes (réfs. 1 et 3). Il contribue tant aux disciplines de base (physique, chimie, biologie, géologie) qu' à leur retombées (microélectronique, médecine etc.).

La table 3 rappelle - de manière nécessairement arbitraire, quelques grands domaines d' utilisation.

*Table 3. Domaines d' utilisation de l' ESRF*

| *Physique* | *Chimie* | *Biologie* | *Applications* |
|---|---|---|---|
| Matière condensée | Polymères | Protéines | microélectronique et microtechnologies |
| Position-vibration atomique<br>Structure électronique | Réactivité in-situ, surface états interméd. | Cycle enzymatique | Catalyse hétérogène |
| Dimensionalité 2D/3D-Interfaces | μ-fluorescence | Fibre unique | Science des Matériaux<br>Environnement |
| Cond. extrêmes : pression ; cinétiques | Chiralité | Gel | - Instrumentation<br>- Métrologie |
| - Atome, Molécule<br>- Noyau | | Solutions | Recherche Médicale |

L' ESRF apporte à ces domaines une contribution spécifique par la qualité inégalée de ses faisceaux X de très haute stabilité (fait d' expérience), et dont les 3 caractéristiques principales sont indiquées ci-dessous.

1. Brillance

Par définition, la brillance est la densité de photons dans l' espace de phase et pour une bande passante relative donnée. D' après le théorème de Liouville, c' est la quantité qui se conserverait le long des lignes de lumière en l' absence de phénomènes dissipatifs (ceci est vrai aussi bien pour les électrons dans l' anneau que pour les sources de rayons X émis par ces électrons)
Les onduleurs de l' ESRF ont déjà atteint, dans la gamme de l' Å, une brillance de $10^{17}$ photons/s/mm$^2$/ mrad$^2$ pour $\Delta E/E = 0{,}1$ % et devraient dépasser $10^{18}$ (fig. 2).
La brillance est la quantité spécifique pour des domaines comme les très hautes pressions (cf § D-4) ou l' étude des surfaces et interfaces par diffraction (cf § D-2).

2. Cohérence

L' annexe 1 fournit quelques rappels sur la cohérence. L' ESRF n' est pas un laser X , il est encore très loin de la limite de diffraction en ce qui concerne la gamme de l' Å. Cependant, une ligne de microscopie dans le domaine des X mous est programmée, qui repose sur un certain degré de cohérence de l' ESRF pour la microscopie à balayage. La fraction cohérente passe de 1 pour $E \approx 100$ eV à $10^{-3}$ au niveau du keV et $\approx 10^{-6}$ à 10 keV. Même en perdant 6 ordres de grandeur, le flux cohérent reste suffisant pour être utilisable (cf annexe 2 : $\geq 10^7$ dans une bande passant de $10^{-4}$) pour ouvrir de nouvelles perspectives pour l' étude des fluctuations dans les solides, par exemple.

3. Polarisation

Les caractéristiques de polarisation à l' ESRF sont liées à la nature du rayonnement, au faisceau d' électrons (cf annexe 1 : formulaire de rayonnement synchrotron) et au type de dispositif d' insertion servant de source X. La haute pureté de la polarisation doit ensuite être conservée au mieux jusqu' à l' expérience (cf § B-2.2). Les sources ESRF présentent une variété de types de polarisation, ce qui permet l' étude des systèmes *anisotropes* ; les applications concernent les cristaux, les molécules chirales, les cristaux liquides et les matériaux magnétiques (§ D-3) ; la combinaison du haut flux et du choix de l' énergie (seuils d' absorption atomique) rend l' utilisation de la polarisation unique à l' ESRF.

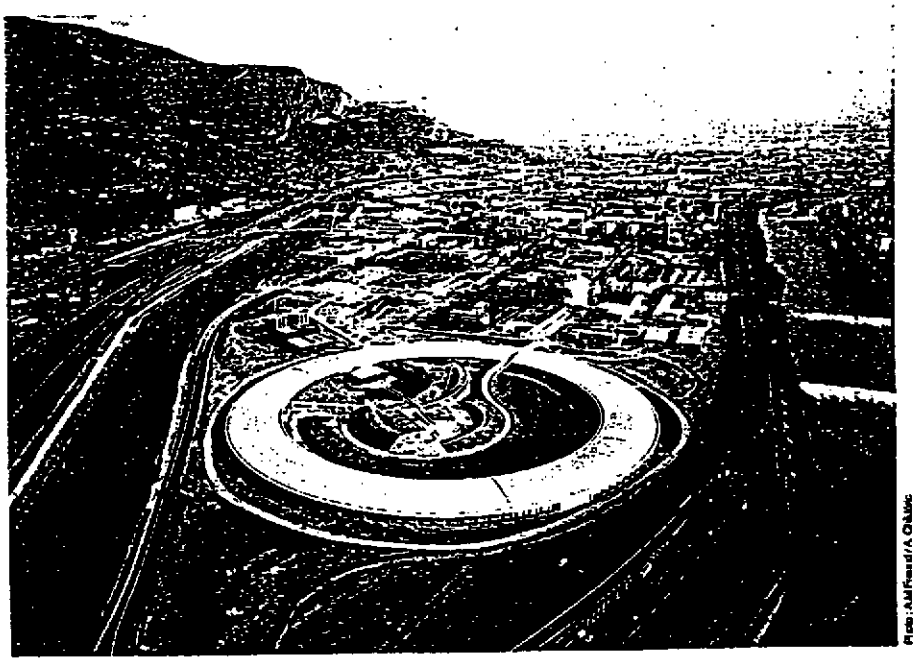


Fig.1. Photographie aérienne de l' ESRF à Grenoble.
L' anneau de stockage et le hall d' expérience sont sous la couronne circulaire ; le système d' injection se trouve dans la partie centrale, d' autres bâtiments sont à la périphérie. L' ensemble des installations - CENG, ILL, CNRS, SNCI, ISN etc. situées au confluent des 2 rivières (Isère et Drac) constituent le polygone scientifique Louis Néel.

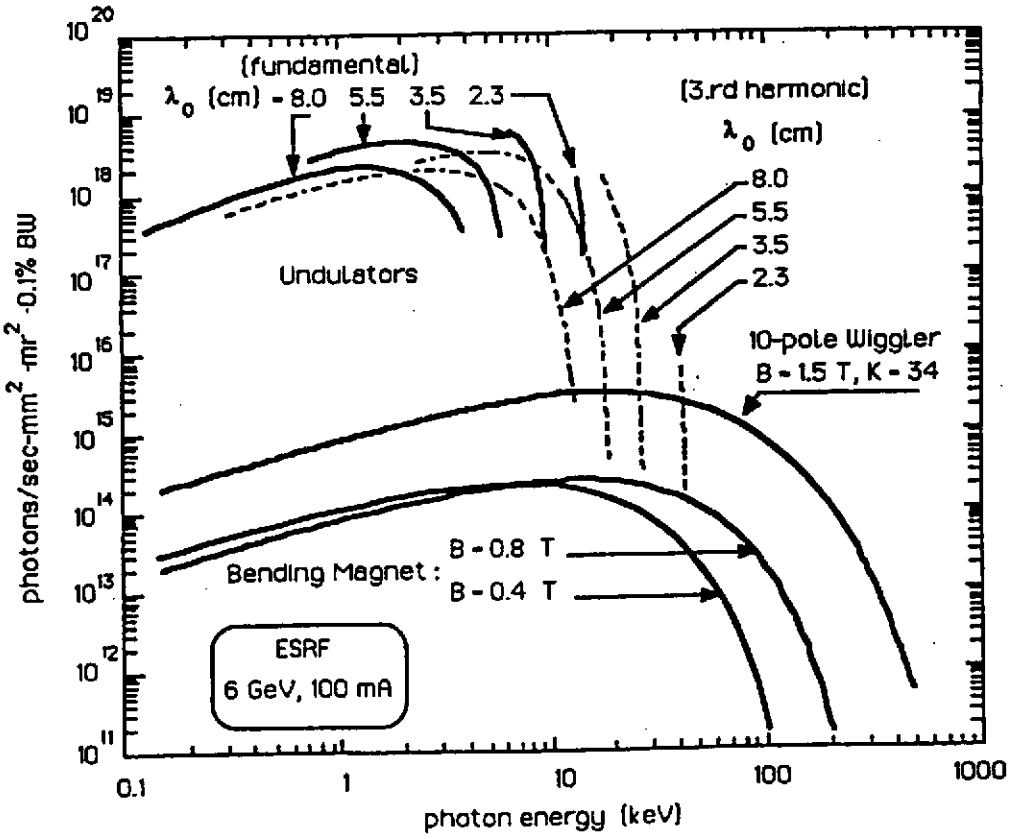



Fig.2 Brillance théorique des différentes sources de l' ESRF; la situation expérimentale est déjà voisine

## B. Instrumentation

Une expérience générique de rayons X comprend une source de rayonnement, une optique pour conditionner le faisceau X - en spectre ou en géométrie, un échantillon (dans un environnement donné) positionné à l' aide d' un goniomètre et la détection des "produits" de l' interaction X-matière. L' optimisation de chaque expérience spécifique requière donc un ajustement de qualité comparable pour le "tryptique" source-optique-détection ; l' ESRF n' échappe pas à cette règle.

### 1. La source

#### *1.1 Le rayonnement synchrotron*

On examinera ici brièvement le cas d' une orbite circulaire et d' une orbite périodique.

Emission d' un électron tournant à vitesse constante sur une orbite circulaire

Une particule chargée électriquement et soumis à une accélération émet un rayonnement électromagnétique (dipolaire); c' est le cas du "brehmstrahlung" (freinage par un champ électrique) ou du rayonnement synchrotron, noté "RS" (accélération centripète d' un champ magnétique). On utilisera ici plus précisément le terme "RS" pour l' émission *vers l' avant* par des particules *relativistes*, et son observation *à grande distance*.
La trajectoire de l' électrons et le point d' observation sont représentés sur la fig.1, qui donne aussi les notations utilisée dans le texte. Celle-ci est quasi-circulaire (sur la portion utile) dans le repère du laboratoire et présente un point de rebroussement dans le repère mobile qui se déplace à la vitesse instantanée de l' électron ; d' où une accélération forte et une émission à peu près isotrope dans le repère mobile. En revenant au repère du laboratoire, un photon émis sous l' effet de cette accélération apparaîtra avec un angle $1/\gamma$ par rapport à l' axe z : l' émission synchrotron est géométriquement très focalisée, à l' intérieur d' un *cône d' angle au sommet* $\approx 1/\gamma$.
La *fréquence* du rayonnement est accrue par effet Doppler relativiste ; on peut l' estimer comme l' inverse de l' impulsion temporelle reçue par un observateur : celui-ci verra la particule entre 2 instants correspondants aux positions A et B dont la tangente fait un angle $1/\gamma$ avec la direction d' observation (fig. 2a,b) :

$$\Delta t = t_e - t\gamma = \frac{2\varrho}{\beta\gamma c} - \frac{2\varrho \sin(1/\gamma)}{c} \approx \frac{4\varrho}{3c\gamma^3}$$

Enfin, l' accélération étant selon une direction (axe x), la polarisation sera surtout linéaire, avec la composante champ électrique dans le plan de l' orbite.

Le calcul complet du rayonnement synchrotron est long, et nous en donnerons seulement un aperçu (cf réf. 1 pour les calculs détaillés). Les potentiels V, A à l' instant d' observation t sont causés par des densités de charge et courant aux temps d' émission antérieurs $t' = t - \mathbf{n}.\mathbf{r}(t')/c$ ; ce processus représente une sphère mince convergent vers P à la vitesse c ; les charges en déplacement vers le point d' observation P étant comptées plus longtemps, contribuent davantage aux potentiels.

Le résultat fait intervenir le *changement d' échelle de temps* relativiste :

$$\varkappa(t') = \frac{dt}{dt'} = 1 - \mathbf{n}(t') \bullet \beta(t') = 1 - \beta\cos\theta \approx \frac{1}{2}\left(\frac{1}{\gamma^2} + \vartheta^2\right)$$

Les potentiels sont "retardés" i.e. doivent être évalués au temps t' de l' électron :

$$V(t) = \frac{-e}{4\pi\varepsilon_0 \cdot r(t') \cdot \varkappa(t')} \quad ; \; A(t) = \frac{-e \cdot \mathbf{v}}{4\pi \cdot r(t') \cdot \varkappa(t')}$$

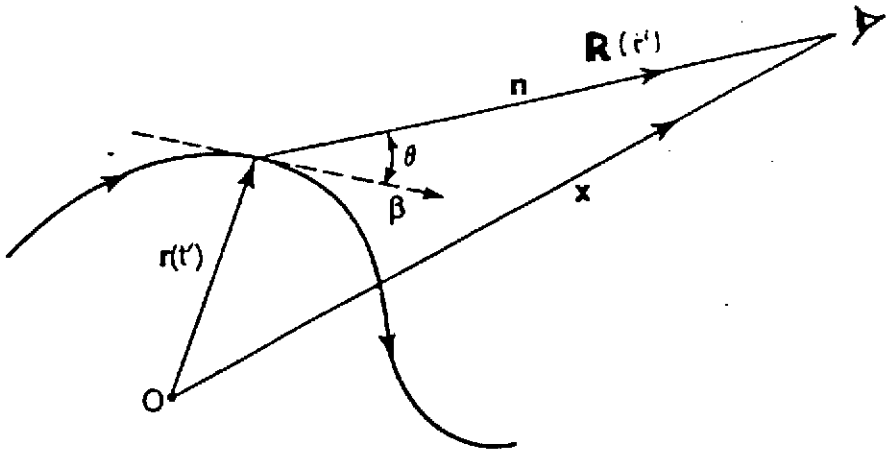



Fig. 1 Trajectoire de la particule électriquement chargée (électron ou positron ici) dans le repère du laboratoire, et observateur stationaire; les notations indiquées seront utiles pour le texte.

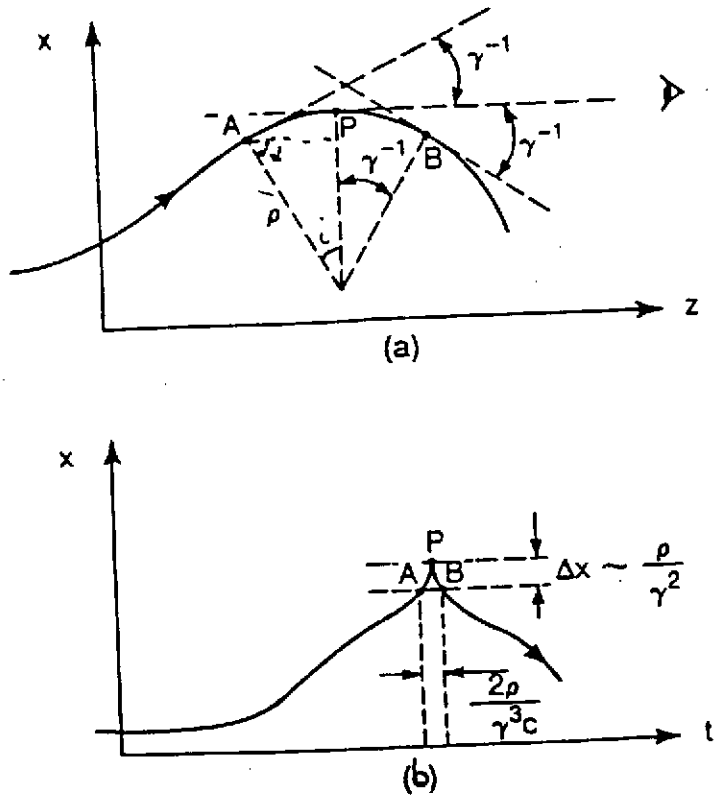



Fig. 2 a) Trajectoire circulaire dans le plan local (x,z). L' observateur voit l' électron sur l' arc AB sous-tendu par l' angle au sommet 2 γ

b) déplacement transverse de l' électron en fonction du temps t de l' observateur

En utilisant les équations de Maxwell de l' électrodynamique classique, on arrive finalement à l' énergie totale rayonnée par un électron et par unité de fréquence et d' angle solide :

$$\frac{d^3W}{d\omega d^2\Omega} = \frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0}\frac{1}{c}|A(\omega)|^2 \quad \text{avec} \quad A(\omega) = \frac{\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{\infty} dt'\, n \wedge [n \wedge \beta(t')]e^{i\omega t(t')}$$

Le flux spectral dans la bande passante $\Delta\omega$ s' écrit :

$$\frac{d^2F}{d\omega d^2\Omega} = \alpha\frac{\Delta\omega}{\omega}\frac{I}{e}|A(\omega)|^2 \quad (\alpha = 1/137)$$

<u>Rayonnement synchrotron d' une trajectoire périodique</u>

On suppose à présent la trajectoire de l' électron dans un champ magnétique périodique, de période $\lambda_u$ et d' amplitude assez faible pour que la pente maximale de la trajectoire par rapport à l' axe soit :

$\theta < 1/\gamma$ (régime *onduleur*)

Le signal émis sera aussi périodique dans le temps, et sa longeur d' onde contractée par le changement d' échelle relativiste, soit :

$$\lambda_1 = \lambda_u \bullet \varkappa(t') = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \bullet (1 + \gamma^2\langle\theta^2\rangle)$$

où $<\theta^2>$ est une moyenne sur la période $\lambda_u$ . Le spectre de rayonnement est ainsi une série de pics harmoniques des fréquences correspondant à $\lambda_1$. L' expression précédente peut aussi être retrouvée en considérant que les émissions produites par le même électron en 2 points séparés par la période $\lambda_u$ interfèrent.

Pour N périodes, l' intensité émise sera $\approx$ 2N fois celle de la trajectoire circulaire ; de plus, le cône de rayonnement à une longueur d' onde donnée est plus petit d' un facteur $\approx \sqrt{N}$ en raison de l' effet d' interférence, donc au total une intensité par unité d' angle solide $\approx N^2$ fois supérieure.

Pour $\theta > 1/\gamma$ (régime *wiggler*), on peut montrer que les harmoniques augmentent pour former un spectre quasi-continu ; le wiggler à N périodes peut être assimilé à 2N aimants de courbure, avec une divergence horizontale (ltmh) $\approx \sqrt{3}\ \theta$.

En annexe 1 sont rassemblées les formules de base des caractéristiques spectro-géométriques et de polarisation, tant pour une trajectoire circulaire que périodique.

## *1.2 Rappel de physique des accélérateurs circulaires* (réf. 2)

Un anneau de stockage consiste en une succession d' arcs et de sections droites, dont l' arrangement périodique s' appelle le *réseau*. Ce réseau et la structure d' accélération radiofréquence sont les composants de base pour la dynamique des particules. L' arc contient une séquence d' aimants dipolaires pour la courbure et d' aimants quadrupolaires pour la focalisation. Une période est appellée cellule et contient au moins un quadrupole focalisant et un défocalisant.

### 1.2.1 Mouvement transversal

Le mouvement transversal des particules est bien décrit en terme de déviation par rapport à l' "orbite d' équilibre". Cette orbite fermée est la solution périodique unique des équations de mouvement de la particule d' énergie nominale E (ou moment associé $p_0$). Elle est fermée sur elle-même et est caractérisée par une courbure locale $\Omega(s) = 1 / \varrho(s)$, où s est l' abscisse curviligne. Une trajectoire générale peut-être décrite par x(s) et y(s), écarts transverses horizontal et vertical à l' orbite fermée.
Au premier ordre, les équations du mouvement pour une particule de moment $p = p_0+\Delta p$ sont :

$$\frac{d^2x}{ds^2} + K_x(s)\cdot x = \frac{1}{\varrho(s)}\frac{\Delta p}{p_0}\ ;\ \frac{d^2y}{ds^2} + K_y(s)\cdot y = 0$$

où $K_x$ et $K_y$ sont déterminés par les éléments du réseau et sont constants par morceau.
Les propriétés optiques de l' anneau sont commodément décrites par des fonctions de réseau : la fonction amplitude (ou "$\beta$") et la fonction de dispersion (ou "$\eta$") .

Les fonctions $\beta_{x,y}$ (s) fournissent les propriétés de focalisation en fonction de la coordonnée longitudinale s. Un électron proche de l' orbite nominale et soumis à cette focalisation oscille autour d' elle : c' est l' *oscillation bétatron*. La déviation horizontale, solution pseudo-harmonique de l' équation du mouvement dans le plan horizontal, s' écrit :

$x(s) = A\sqrt{\frac{\beta(s)}{\beta_0}}\cos[\phi(s)+\phi_0]$ , où $\phi(s)$ est la phase bétatron, reliée à la fonction $\beta$ par :

$\frac{d\phi(s)}{ds} = \frac{1}{\beta(s)}$ . Les constantes A et $\phi_0$ sont les amplitude et phase relatives au point où la fonction $\beta$ prend la valeur $\beta_0$. L' enveloppe de la trajectoire sur un grand nombre de tour est proportionnel à $\sqrt{\beta_x(s)}$. Le nombre d' oscillations bétatrons par tour (*"tune"* ou accord), noté $\nu_x$, est donné par l' avance de phase : $2\pi\nu_x = \phi(s+L) - \phi(s)$ , où $L = 2\pi R$ est la circonférence (et R le rayon moyen). C' est un concept importante puisqu' il exprime la "force" de la focalisation. De plus, sa valeur ne peut être quelconque : pour éviter l' excitation résonante de l' électron par les imperfections du réseau, on doit avoir dans les 2 directions transverses : $\nu \neq p / q$ (avec p et q entiers assez petits).

On peut montrer que la valeur moyenne de la fonction $\beta$ est approximativement : $\overline{\beta_{x,y}} \approx \frac{L}{2\pi\nu_{x,y}}$

Le déplacement transverse de l' orbite d' équilibre pour une particule d' énergie E+ΔE, seulement horizontal pour un anneau plan, s' écrit : $\Delta x_E(s) = \eta_x(s)\cdot\frac{\Delta E}{E}$. Cette orbite à une longueur $\frac{\Delta L}{L} = \alpha\frac{\Delta E}{E}$ (dilatation $\alpha$ notée "facteur de compaction des moments"). En focalisation forte, les fonctions optiques $\beta$ et $\eta$ (ainsi que $\alpha$) sont petits : $\alpha \approx \frac{1}{\nu_x^2}$ et $\overline{\eta_x} = \alpha\frac{L}{2\pi} \approx \frac{L}{2\pi\nu_x^2}$ .

### 1.2.2 Mouvement longitudinal

La perte d' énergie RS est compensée par un système radiofréquence, qui limite de plus la dispersion en énergie ("focalisation de phase") en accélérant davantage les électrons plus lents, et inversement. Les électrons oscillent donc autour de l' énergie nominale E. Le mouvement longitudinal associé s' appelle l' *oscillation synchrotron.* ; le nombre de ces oscillations par tour est << 1. La tension RF est une fonction sinusoïdale multiple de la fréquence de révolution $f_r$ :
$V(t) = V_0 \sin(h f_r t)$ , où l' entier h est appelé "nombre harmonique".

L'accélération par la radiofréquence induit non seulement un amortissement de l' oscillation synchrotron, mais aussi de l' oscillation bétatron en ne restaurant que la composante longitudinale du moment. On peut montrer que les 3 taux d' amortissement sont reliés :

$$\frac{1}{\tau_E}+\frac{1}{\tau_x}+\frac{1}{\tau_y}=\frac{\Delta E_t \cdot f_r}{E}$$ , avec $\Delta E_t = \frac{2}{3} r_e m_0 c^2 \gamma^4 \frac{2\pi}{\varrho}$ est la perte par tour (cf annexe 1 ) .

Usuellement, la partition entre les 3 modes est : $\tau_x = \tau_y = 2\ \tau_E$. Si $eV_0 > \Delta E_t$, le faisceau d' électrons peut être capturé en h paquets stables autour de la circonférence de l' anneau.

La perte d' énergie RS s' effectue dans les régions dispersives ; elle est quantique et aléatoire. La combinaison de ces excitations et de l' amortissement décrit ci-dessus conduit à un équilibre avec une distribution gaussienne en énergie $\sigma_E$, donc aussi en position longitudinale : les électrons sont regroupés en paquets de longueur $\sigma_s$ ; ces distributions sont données par :

$$\left[\frac{\sigma_E}{E}\right]^2 \approx \frac{55}{32\sqrt{3}}\frac{\lambda_{ce}}{2\pi}\frac{\gamma^2}{2\varrho}\ ;\ \frac{\sigma_s}{R}=\frac{\alpha}{\nu_s}\cdot\frac{\sigma_E}{E}$$ où $\lambda_{ce}=\frac{\hbar}{m_e c}$ est la longueur d' onde Compton.

Le changement d' énergie sous l' effet de l' émission RS déplace l' orbite d' équilibre de $\Delta x_E(s)$, et la particule exécute une oscillation bétatron autour de cette nouvelle orbite; d' où une distribution également gaussienne en position ($\sigma_{x\beta}$) et angle ($\sigma_{x\beta}'$) dans le plan horizontal. La quantité :

$$E_x = \frac{\sigma_{x\beta}^2}{\beta_x} \approx \frac{2\alpha R}{\nu_x}\bullet\left[\frac{\sigma_E}{E}\right]^2$$ est appellée l' *émittance* du faisceau ; c' est un *invariant* (i.e. indépendant de l' abscisse curviligne s et donc caractéristique de l' anneau). L' excitation quantique des oscillations bétatrons verticales étant négligeable, l' émittance verticale est une fraction de l' émiitance horizontale, déterminée par le couplage entre les 2 plans via les imperfections du réseau (typiquement quelques pourcents).

L' étalement angulaire $\sigma'_{x\beta}$ dû aux oscillations synchrotrons est lié à l' étalement en position $\sigma_{x\beta}$ ; en un point où $\beta$ ne varie pas : $\sigma'_{x\beta} = \sigma_x / \beta_x$ ; de plus, l' effet de la dispersion en énergie sur l' étalement angulaire étant faible, $\sigma'_{x\beta} \approx \sigma'_x$.

Les anneaux pour la physique des hautes énergies ont des sections droites longues contenant les régions d' interaction où électrons et positrons entrent en collision. Des quadrupoles puissants focalisent le faisceau pour accroitre la *luminosité* (i.e. la probabilité d' interaction). Cette luminosité, limitée par l' effet faisceau - faisceau (qui entraine un changement de l' accord $\nu$), peut être amélioré en augmentant l' émittance. Ce n' est pas l' intérêt des utilisateurs du RS, qui veulent au contraire une émittance minimale.

### 1.2.3 Mécanismes de perte de faisceau

Le stockage du faisceau pour un temps assez long nécessite d' éviter différents mécanismes de perte. On distingue les mécanismes à une particule et les effets collectifs.

*a) Pertes à une particule*

Elles sont principalement dues aux *résonances linéaires et non-linéaires*, qui grossissent le faisceau jusqu' à sa perte. Les paramètres de l' anneau doivent être choisis en conséquence, et la construction doit être précise.
Un aspect connexe est la correction de la variation de l' accord avec la dispersion d' énergie, ou *chromaticité naturelle* , définie par $\xi = p\, dv / dp$. Cette correction est réalisée au moyen de sextupoles - lesquels agissent comme des quadrupoles pour des particules d' énergie différente de l' énergie nominale.
La diffusion par le gaz résiduel conduit également à la perte de particules, d' où la nécessité d' un très bon vide sur toute la circonférence.

*b) Pertes dûes à des effets collectifs (cohérents ou incohérents)*

- *effets incohérents :*
* action défocalisante des charges d' espace (dont les charges images) ; si des *ions* sont piégés dans le potentiel du faisceau, les forces électriques et magnétiques - qui s' annuleraient autrement, jouent un rôle.
* mécanismes de diffusion coulombienne dans un paquet dense : le moment transverse peut être transféré au mouvement longitudinal lors d' une collision (effet *Touschek*) et la particule sort du potentiel du paquet ; également, des collisions multiples accroissent l' émittance si leur temps caractéristique est inférieur à celui de l' amortissement.
- *effets cohérents* :
* instabilités "paquet-paquet", transverses ou longitudinales, dûs aux interactions avec l' environnement ; chaque paquet oscille dans un puit de potentiel en étant couplé aux autres par l' environnement, d' où résonance possible. Le remède est d' étaler les fréquences ou d' agir sur l' environnement et ses effets (impédance de l' anneau, asservissements)
* instabilités "intrapaquet", plus délicat ; pour les modes transverses, la chromaticité naturelle peut être annulée par des sextupoles.
Les pertes cohérentes sont de façon générale combattus par une chambre à vide lisse (afin de réduire l' impédance aux hautes fréquences) et par la diminution du courant crête.

## *1.3 Le système d' accélérateurs de l' ESRF* (réf. A-1)

Les accélérateurs de l' ESRF se composent de l' injection (préinjecteur et booster) et l' anneau de stockage proprement dit. On utilisera dans la suite les abréviations suivantes :

| | |
|---|---|
| RSX | : rayonnement synchrotron X |
| D | : aimant de déviation |
| SD | : section droite ; dans laquelle on peut introduire des dispositifs en insertion |
| ID | : dispositif en insertion (wigglers et onduleurs) |
| Q ou QP | : quadrupoles ; F et DF pour focalisant et défocalisant |
| RF | : cavité radiofréquence |
| BPM | : moniteur de position du RSX |
| FE | : partie frontale des lignes de rayons X |

### 1.3.1 Le préinjecteur (Linac)

C' est un accélérateur linéaire de 200 MeV, équipé d' un canon triode de 100 keV ; il comprend une section courte d' onde stationnaire, deux sections accélératrices et deux modulateurs RF (klystrons de 35 MW) opérant à la fréquence de 10 Hz. Les deux modes d' opération (impulsions longue ou courte, cf table 1) correspondent respectivement à l' utilisation de l' anneau en multipaquet (cas standard) ou monopaquet.
La mise en route date de 1991 ; la fiabilité de ce produit commercial, insuffisante, a depuis été améliorée. La sortie du linac consiste en une ligne de transport, dont la structure magnétique de guidage-focalisation comprend 2 dipoles et 7 quadrupoles. Pour la conduite de faisceau, la ligne est équipée de 2 paires d' aimants "steerer" et de moniteurs de position (4 écrans fluorescents).

*Table 1. Les deux modes opératoires du Linac*

| mode opératoire | impulsion longue | impulsion courte |
|---|---|---|
| courant crête (mA) | 25 | 250 |
| longueur d' impulsion | 1 μs | 2 ns |
| étalement en énergie | ± 1 % | ± 0,5 % |

1.3.2 The synchrotron "booster"

Le cyclage à 10Hz et la faible émittance du booster permettent le remplissage rapide de l' anneau. Le réseau magnétique "FODO" (i.e. QDF-D-QF-D) - d'émittance $10^{-7}$ π m.rad à l' énergie nominale de 6 GeV, est conçu pour être peu sensible aux erreurs d' alignement. Les acceptances (table 2) sont supérieures aux émittances maximales du préinjecteur ($\varepsilon_{x,z}$ = 11,5 π mm.mrad) et autorisent des erreurs d' injection jusqu' à 3 mm de l' orbite fermée et une capture par la RF des particules ayant une dispersion d' énergie de 2%.

*Table 2. Ouvertures utiles*

| | taille de l' enceinte (mm) | région de "bon champ" (mm) | fonction amplitude (m) | acceptances (π mm.mrad) |
|---|---|---|---|---|
| QF | $a_x$ = 30 | $\Delta_x$ = 20 | $\beta_x$ = 13,4 m | $A_x$ = 38,5 |
| D | $a_z$ = 14 | $\Delta_{x,z}$ = 23 | $\beta_z$ = 10,8 m | $A_z$ = 18,1 |

Les alimentations de puissance ont des intensités, en continu comme en alternatif, de 800 A pour les dipoles et 250 A pour les quadrupoles. Le circuit du dipole est le "coeur" du système à 10 Hz, sur lequel l' injection comme l' extraction (toutes les 2 réalisées sur un tour) sont synchronisés. La radiofréquence comprend 2 cavités LEP à 352,2 MHz : $V(t) = V_{capture} + \alpha_1\, dE/dt + \alpha_2 E^4$.
La puissance totale varie de 300 W à la capture à 550 W en fin d' accélération (klystrons de 1 MW)
Le système de vide comprend des chambre inox à murs long et fin (0,3 mm) dans le gap des aimants, et des enceintes épaisses et courtes pour le pompage ionique distribué. La pression statique pour chaque secteur du booster est de 5 $10^{-9}$ mbar sans étuvage, sauf dans la zône d' extraction, et de 5 $10^{-8}$ sous faisceau.
La ligne de transfert vers l' anneau, de 66 m de long, comprend 5 dipoles, 14 quadrupoles cc, et 17 "steerers" cc; le faisceau sortant a une taille ≈ 1/10 mm.

1.3.3 L' anneau de stockage

Le réseau magnétique choisi (Chasman-Green) autorise une faible émittance et de nombreuses insertions (tables 3a,b ). Chacune des 32 sections droites est de 6,3 m ; 3 d' entre elles ne sont pas utilisables comme source de rayonnement (2 pour les cavités RF, une pour l' injection). Les sources dipole correspondent aux aimants en aval des section droites.
Avoir une émission fondamentale d' un onduleur $E_1$ =14,4 keV fut la condition de définition pour l' énergie de la machine : soit E= 5 GeV et un gap de 10 mm, soit - et c' est la solution plus conservative choisie, E = 6 GeV avec un gap initial de 20 mm.
L' injection à l' énergie nominale permet l' utilisation exclusive de courant continu et une meilleure reproductibilité au remplissage. L' injection d' un train de paquets de 1 μs du booster est habituellement asynchrone (i.e. remplissage aléatoire des h= 992 paquets.Un système rapide permet d' autre part une injection synchronisée, et donc le remplissage d' un ou plusieurs paquets. Enfin, il est possible d' injecter les 352 paquets du booster dans les même 352 paquets de l' anneau ; ce qui laisse une zône sans électrons, évitant le piégeage d' ions.
Le réseau magnétique (fig. 3) se compose de 32 cellules, chacune comprenant un arc (D - 2 doublets de QP - D) et une SD sans dispersion. Les doublets de quadrupoles sont ajustés pour obtenir une symétrie miroir pour les fonctions optiques η et β. La symétrie 16 (superpériode) correspond à une

a.

| | |
|---|---|
| Energy (GeV) | 6 GeV |
| Circumference | 844.39 m |
| Average radius | 134.39 m |
| Revolution period | 2.8166 µs |
| Revolution frequency | 0.355 MHz |
| Number of superperiods | 16 |
| Betatron tunes $\upsilon_x / \upsilon_z$ | 36.2 / 11.3 |
| Maximum $\beta_x / \beta_z$ | 39.2 / 26.1 m |
| Maximum dispersion | 0.46 m |
| Natural chromaticities $\xi_x / \xi_z$ | -115 / -32.8 |
| Momentu compaction | $2.82\ 10^{-4}$ |
| Synchrotron damping time | 3.6 ms |
| Betatron damping times $\tau_x / \tau_z$ | 7.1 / 7.1 ms |
| Natural horizontal emittance | $6.89\ 10^{-9}$ m.rad |
| Vertical emittance (10 % coupling) | $6.33\ 10^{-10}$ m.rad |
| Horizontal beam stay-clear aperture | ± 35 mm |
| Vertital beam stay-clear aperture | ± 15 mm |
| RF frequency | 352.2 MHz |
| Harmonic number | 992 |
| Synchrotron tune | $6.6\ 10^{-3}$ |
| Natural rms energy spread | $1.06\ 10^{-3}$ |
| Bunch length | 6 mm |

Tab. 3 a) Caractéristiques principales de l' anneau de stockage
b) Caractéristiques des électrons au centre des 3 types de sources RS (aimant, onduleur, wiggler)

b.

| | Wiggler | Undulator | Bending magnet |
|---|---|---|---|
| Number | 14 | 15 | 29 |
| Horizontal β (m) | 0.7 | 26.85 | 2.65 ** |
| Vertical β (m) | 3.51 | 12.85 | 25.99 ** |
| Horizontal rms beam size (µm) * | 68 | 412 | 187 |
| Horizontal rms beam divergence (µrad) * | 93 | 15.4 | 115 |
| Vertical rms beam size (µm) * | 47 | 90 | 128 |
| Vertical rms beam divergence (µrad) * | 13 | 7 | 5 |

* assuming 10 % coupling
** at the entrance of the bending magnet

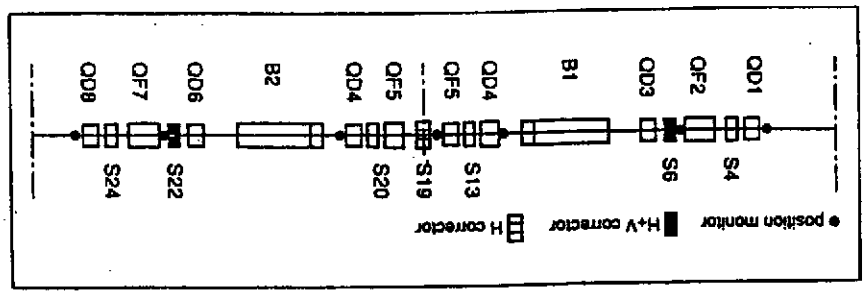



Fig. 3 Arrangement des composants magnétiques de la cellule unité de l' anneau de stockage

alternance de sections à haut et bas β. L' avance de phase (2,2625 par superpériode) conduit à une émittance naturelle $\varepsilon_X$ = 6,9 nm . rad.
La focalisation forte induit des chromaticités élevées, cause d' instabilités, qu' on limite grâce à des sextupoles puissants localisés dans les zônes dispersives. L' ouverture dynamique réduite diminue l' efficacité d' injection et le temps de vie ; pour le pallier, des sextupoles supplémentaires sont placés dans les section droites. La focalisation forte entraine également des tolérances tendues pour l' alignement et le positionnement des aimants. Un schéma de correction d' orbite fermée efficace (224 moniteurs de position, 10 aimants correcteurs par superpériode) maintient l' orbite à 0,1 mm rms ; 2 paires d' aimants (pour chaque direction) de part et d' autre des dispositifs d' insertion permettent de contrôler l' angle et la position du faisceau.
Les aimants de déviation, de 2,45 m de long, sont alimentés en courant continu et leur champ B= 0,857 T est très précis (gap de 50 mm à ± 10-15 μm). Ils sont classiques, sauf pour l' ajout d' un petit pôle flottant en acier (B= 0,4 T) qui conduit à une source X de plus basse énergie (énergie caractéristique de 10 keV). En revanche, la forme des quadrupôles est conditionnée par les sorties du RSX : pas de retour ferromagnétique entre parties haute et basse. Il y a 8 familles de quadrupôles, de 3 types selon leur longueur et leur configuration (gradient maximum de 18,1 T / m).
Les 224 sextupoles sont identiques (0,4 m, 41 mm de rayon de bore) ; ils incorporent également des bobines de corrections de champ dipolaire qui sont alimentés individuellement.

Les aimants d' injection, fonctionnant à 10 Hz, occupent une section à grand β ; il y a 3 aimants septums (dont l' un est dans le vide de l' anneau) et 4 "kickers" pulsés à 1 μs.

La radiofréquence est placée dans la section à faible β qui suit la section injection ; elle comprend 4 cavités (352,2 MHz) à 5 cellules de type LEP. La puissance d' entrée est transmise via un système guide d' onde avant d' être séparée en 2 coupleurs par cavité. La tension maximale par cavité est de 2,6 MV, choisie pour compenser les pertes RS (650 kW à 100 mA) et les excitations de modes parasites par le faisceau tout en assurant un temps de vie correct.
La pression de 1 nTorr autorise un temps de vie nettement supérieur à 8 h. Les enceintes en inox ont des dimensions transverses aussi constantes que possible (70 x 32 $mm^2$) pour minimiser l' impédance de la chambre à vide. Les absorbeurs (Cu OFHC) sont localisés pour supporter la charge thermique du rayonnement. Les pompes sont ioniques avec getters non-évaporables, l' étuvage in situ est réalisé par des cordons chauffants à 200°C.
Les moyens de diagnostics sont nombreux :
- un écran fluorescent de contrôle de l' injection
- 224 moniteurs en mode premier tour (précision 2 mm) ou en mode normal de contrôle de l' orbite fermée (précision < 0,15 mm)
- un tranformateur à courant continu pour l' intensité et le temps de vie
- un "scraper" mesurant la taille transverse
- un moniteur de "tune", avec analyse en fréquence de la réponse du faisceau sous excitation
- des moniteurs X (FE et ID): asservissement à 4 correcteurs assurant la stabilité relative de 10%
- une caméra CCD formant l' image du profil transverse (lumière visible d' un aimant et optique associée)
- Des électrodes pour les instabilités transverses et longitudinales

1.3.4 Etat actuel de l' anneau (août 93)

En phase opérationnelle depuis janvier 1993, les performances nominales sont non seulement acquises mais dépassées.
Le courant "booster" est le double du nominal et permet une montée en courant rapide de l' anneau.
L' intensité en mode multipaquet est soit de 145 mA pour un temps de vie nominal (8 h), soit de 100 mA (nominal) avec un temps de vie double. La perspective de doubler le courant en 1994 (200 mA) ne présenterait pas d' obstacle apparent ; elle demandera pour un fonctionnement de routine des informations supplémentaires sur l' orbite fermée, des absorbeurs en "glidcop" (cuivre avec inclusions d' alumine, à meilleures propriétés thermomécaniques) et davantage de puissance RF. En mode monopaquet, la valeur nominale (5 mA) est déjà doublée et un asservissement transverse permet d' envisager le quadruplement ; la pureté obtenue (rapport de remplissage entre les paquets remplis d' électrons et les paquets censés être vides d' électrons) est supérieure à $10^6$ par éjection radiofréquence.

Le temps de vie pour un remplissage complet s' améliore par "nettoyage" RS et atteint déjà une vingtaine d' heures (avec moins de paquets, il diminue et n' est pas totalement compris).

L' émittance horizontale est dans la gamme $\varepsilon_X$= [ 0,8 <-->1,8] $10^{-8}$ , à comparer avec 7 nrad calculé.

L' émittance verticale est de $\varepsilon_Z$ = 4,3 $10^{-9}$ (pour 7 $10^{-10}$ calculé); mais 6 $10^{-10}$ a été atteint et peu de travail a été fait encore sur ce point.
La stabilité du point source satisfait les critères nominaux : i.e. déviation en position $\Delta_{x,y}$ < 1 /10 $\sigma_{x,y}$ , de même que la divergence. On observe en-fait sur 8 h une stabilité de 1,5 µrad en angle et meilleure que de 10 µm en position.
Il est à noter qu' 1 µm de déplacement d' un seul quadrupole induirait un déplacement vertical de 100 µm ! Le système HLS (Hydrostatic Levelling System) - installé sur chaque pied de chaque support (un support porte plusieurs quadrupoles) a une précision meilleure que 5 µm.
Les limitations proviennent aussi des mouvements de terrain à long terme ( 0,3 mm / 10 mètres / an) ; des dérives thermiques à moyen terme (la température de l' air dans le tunnel de l' anneau est régulée à 0,2 °C près); des vibrations mécaniques.
La fiabilité est de 90%, la limitation actuelle étant les orages ; un dispositif compensant pendant une seconde la variation du 50 Hz y remédierait largement.
Au vu des performances précédentes obtenues avec des électrons (notamment le temps de vie), l' option "positron" n' est pas d' actualité; il n' apparait pas d' effet d' ions positifs piégés quand le tiers de l' anneau est rempli (soit 2 µsec sans électrons) ; en remplissage uniforme, l' effet des ions commence à se manifester au niveau du "tune".

1.3.5 Les dispositifs d' insertion (ID)

Les dispositifs en insertion sont des modules mécaniques de 1,6 m de long portant deux mâchoires d' aimants permanents espacés de 20 mm et fournissant un champ sur l' axe de 0,4 à 1,8 T. L' intégrale de champ est inféreure à $10^{-5}$ Tm afin d' assurer la stabilité du faisceau à 10% lors changement de gap. La conception mécanique et magnétique (fig. 4) est dans une large mesure effectuée à l'ESRF, à partir des besoins expérimentaux. L' approche est standard, par modules (ou segments) de 1,6 m, tout en restant flexible sur les paramètres RSX : période, forme et orientation du champ. L' ESRF effectue le contrôle précis du champ magnétique (sonde Hall à balayage, fil en rotation) et les retouches ("shimming") afin d' annuler les composantes magnétiques jusqu' à l' ordre sextupolaire . Il en résulte que la perturbation induite du faisceau d' électrons lors des variations de gap modifie peu la taille du faisceau RSX monochromatisé.
Les aimants permanents en NdFeB sont dans l' air et le gap magnétique minimal est de 20 mm à 2 µm près; ce gap peut être écarté non-uniformément ("tapper"). Jusqu' 0,9 T, le champ est créé par des assemblages d' aimants permanents seuls ; au-delà, des pôles en fer sont utilisés (technique "hybride").
Pour obtenir une polarisation circulaire, 6 modules couvrent la gamme 1-100 keV. Les onduleurs hélicoïdaux de type nouveau ("Helios") fournissent pratiquement tous les états de polarisation - tant sur le fondamental que sur les harmoniques 3 et 5, par déplacement longitudinal et vertical de chaque mâchoire indépendamment.
Les dispositifs d' insertion installés ou sur le point de l' être sont indiqués sur la table 4. Une période typique dans le cas des onduleurs est de 40-60 mm pour obtenir une accordabilité suffisante ; elle est supérieure pour les wigglers.
*Perspectives*
- Des support multi-onduleurs en construction, assureront l' interchangeabilité des onduleurs sur une ligne donnée par simple rotation des poutres support.
- Un wiggler "translateur" (source analogue à un aimant de courbure, mais de champ plus élevé) est prévu ; il fournira un champ supraconducteur de 4 T.
- Un onduleur à mini-gap : pour un gap de 7 mm , la période typique est de 25 mm : le gain en brilliance par rapport à l' onduleur standard est d' un facteur 30 à 30 keV.

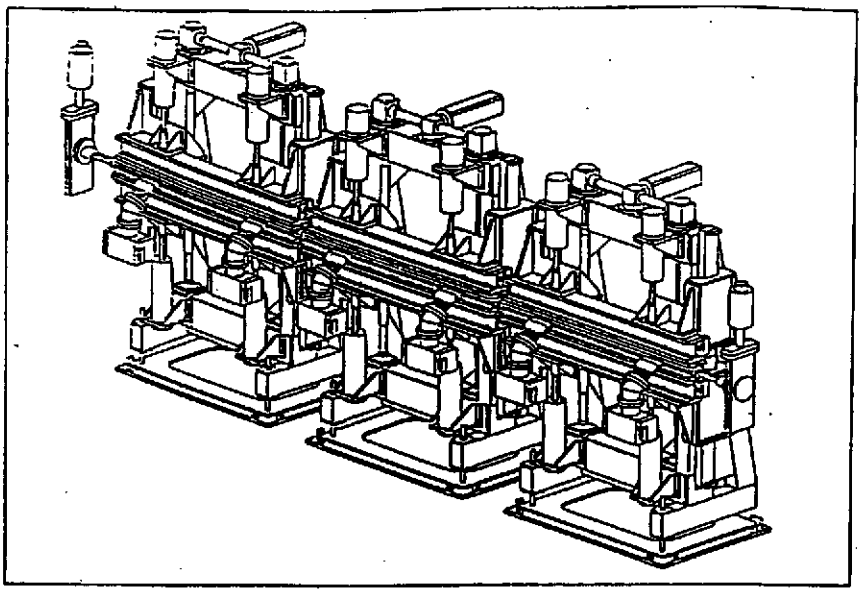


Fig. 4 Schéma d' une section droite équipée de 3 segments de dispositifs d' insertion

| Beamline N° Phase I | | | Field [Tesla] | Period [mm] | Number of Periods | Type | Status |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| ID6 | | Machine Diagnostic | 0.5 | 48 | 32 | U | operational |
| ID13 | 1 | Microfocus | 0.48 | 46 | 36 | U | operational |
| ID11 | 2 | Materials Diffraction | 1.20 | 125 | 12 | W | operational |
| ID10 | 9 | Open / Troika | 0.48 | 46 | 36 | U | operational |
| ID12 | 6 | Dichroism | 0.3 | 85 | 18 | HU | ready for installation |
| ID3 | 7 | Surface diffraction | 0.40 | 44 | 38 | U | ready for installation |
| ID2 | 4 | High Flux | 0.48 | 46 | 36 | U | delivered to ESRF |
| ID9 | 3 | White beam | 0.7 | 70 | 24 | W | ready for installation |
| ID15 | 5 | High Energy | 1.8 | 220 | 7 | AW | delivered to ESRF |
| Phase II | | | | | | | |
| | 13 | SEXAFS | 0.5 | 48 | 32 | U | ready for installation |
| | 8 | EXAFS | 0.37 | 40 | 42 | U | delivered to ESRF |
| | 22 | MossBauer | 0.12 | 23 | 72 | U | delivered to ESRF |
| | 22 | MossBauer | 0.27 | 34 | 48 | U | delivered to ESRF |
| | 5 | High Energy | 4 | 100 | 1.5 | WS | under tender |
| | 4 | High Flux | 0.16 | 26 | 64 | U | delivered to ESRF |
| | 12 | Magnetic Scattering | 0.9 | 210 | 8 | AW | delivered to ESRF |
| | 16 | Topography | 1.5 | 150 | 3 | W | delivered to ESRF |
| | 14 | Angiography | 1.8 | 150 | 10 | W | under tender |
| | 21 | Inelastic scttering | 0.38 | 42 | 40 | U | under tender |
| | 20 | Macromolecular Crystall. | 0.48 | 46 | 36 | U | under tender |
| | 6 | Dichroism | 0.27 | 52 | 30 | HU | under tender |
| | 21 | Inelastic scttering | 0.27 | 52 | 30 | HU | under tender |
| | 17 | Anomalous scattering | | | | | under design |

U : Undulator W : Wiggler AW : Asymmetric Wiggler HU : Helical Undulator WS : Wavelength Shifter

Tab. 4 Liste des dispositifs d' insertion déjà construits

# 2. Optique X

## 2.1 Rappels diffraction et réflectivité des rayons X

Cette section est utile pour montrer comment il est possible de "conditionner" le RSX par une optique X (objet du § suivant 2.2), mais aussi pour comprendre les expériences qui constitueront le "pain quotidien" à l'ESRF, et dont certaines sont décrites dans la partie D.

Une onde plane de rayons X d ' énergie $E = \hbar\omega = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$ et se propageant selon le vecteur d' onde $\mathbf{k}$ $(k = \frac{2\pi}{\lambda})$ s' écrit : $\Psi = e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)}$. Elle interagit avec un milieu selon 3 processus de base (fig.4 et réf. 3) : l' absorption, la diffusion et la réfraction.

### 2.1.1 *Absorption*

Dans le processus d' absorption photoélectrique, le photon X est absorbé par l' atome et son énergie est transmise à un électron d' une couche interne K, L etc d' énergie de liaison $E_K$, $E_L$ etc. L' électron est éjecté avec l' énergie $E-E_K$ etc., laissant l' atome dans un état excité avec un trou dans une de ses couches ; ensuite, le trou est rempli par un électron d 'un couche plus élevée, avec émission fluorescente ou électronique.
La section efficace d' absorption dépend de E (ou du vecteur d' onde k) et du numéro atomique de l' absorbeur. La fig. 5 permet d' avoir un ordre de grandeur rapide dans tous les cas. La section efficace $\sigma_a$ normalisée vaut ainsi ≈ 0,1 barn pour $E > E_K$.
L' atténuation de l' intensité par un milieu d' épaisseur t est donnée par :

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu.t} \text{ où } \mu = \frac{N\ \varrho_m \sigma_a}{A} \text{ ( } N \text{ nombre d' Avogadro, } \varrho_m \text{ densité du milieu)}$$

Au-delà du seuil d' absorption, il existe des modulations de l' absorption dûes à la rétrodiffusion du photoélectron par les atomes voisins. Cette méthode de spectroscopie d' absorption (EXAFS) permet de connaitre la géométrie de coordinence de l'atome dont un électron interne a été excité ; elle est très développée dans les centres synchrotrons pour l' étude des matériaux non cristallins. Le premier spectre obtenu à l' ESRF est montré sur la fig. 6a (réf.4). Par la suite, l' ESRF sera utilisé pour des cas pointus.

### 2.1.2 *Diffusion élastique*

La diffusion par un électron libre a une section efficace totale $\sigma_t = \frac{8\pi}{3} r_0^2$ $(r_0 = \frac{e^2}{mc^2})$ qui vaut 0,66 barn ; pour un atome, il faut de plus considérer l' angle de diffusion ou plus précisément le vecteur de diffusion $\mathbf{Q} \equiv \mathbf{k_i} - \mathbf{k_j}$ $(|Q| = \frac{4\pi}{\lambda} \cdot \sin\vartheta)$ . La diffusion atomique est donnée par le "facteur de forme atomique", qui est la transformée de Fourier de la densité électronique $f(Q) = \int \varrho(\mathbf{r}) \cdot e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}} \cdot d^3\mathbf{r}$. A angle de diffusion nul, la section efficace est ≈ Z $r_0^2$ ; puis elle décroit selon le facteur de forme f quand l' angle augmente.

On considère dans la suite la diffusion élastique de l' onde plane précédente (donc une polarisation linéaire) par une collection d' atomes, de plus régulièrement ordonné en un milieu périodique ou cristal. Un cristal possède une périodicité dans les 3 dimensions ; si l' unité de base (la "maille", définie par les vecteurs $\mathbf{a_1}$, $\mathbf{a_2}$, $\mathbf{a_3}$) se répète $N_1$, $N_2$ et $N_3$ fois dans les trois directions, l' intensité diffusée s' écrira :

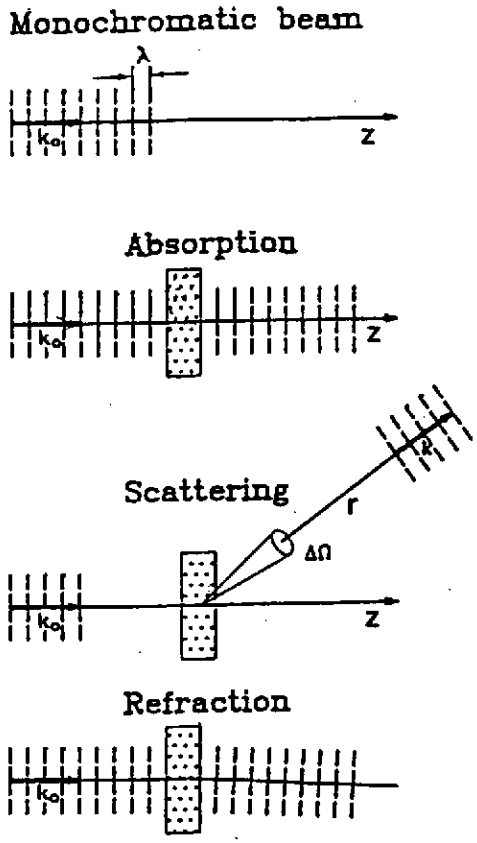



Fig. 4 Un faisceau monochromatique est caractérisé par son vecteur d' onde **k** et son énergie E (cf leur relation dans le texte). Il interagit avec un échantillon selon 3 voies schématisées ici : absorption, diffusion et réfraction.

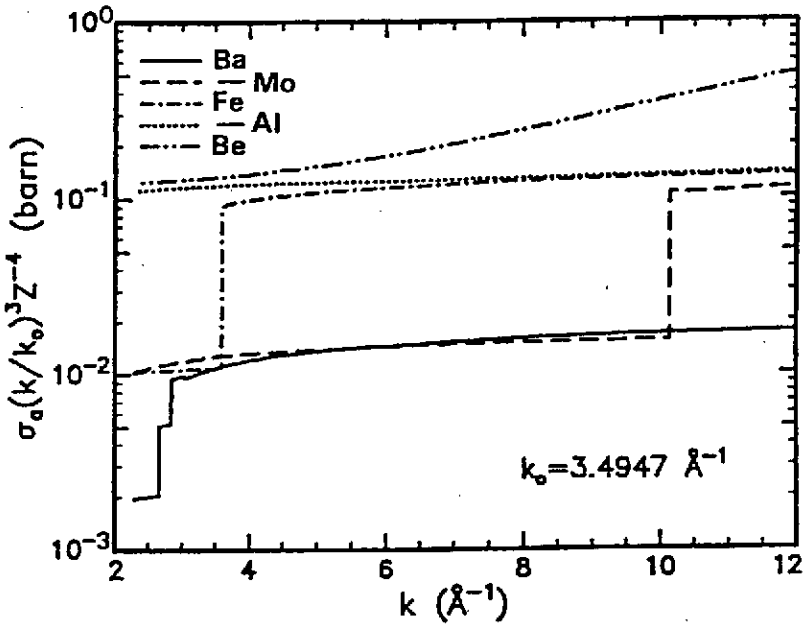



Fig. 5 Section efficace d' absorption normalisée à $k^3Z^4$. Elle vaut = 0,1 barn pour les niveaux K, ≈ 0,01 barn pour les niveaux L etc.

$$I(Q) \approx r_0^2 |F(Q)|^2 |S_{N_1}(Q.a_1)|^2 |S_{N_2}(Q.a_2)|^2 |S_{N_3}(Q.a_3)|^2$$

F(Q) décrit l' arrangement des atomes dans la maille; c' est le "facteur de structure" :

$$F(Q) = \sum_{j \in \text{cell.unité}} f_j(Q) \exp(i\ Q.r_j)$$ où $f_j$ est le facteur de forme du type d' atome j

$$|S_N(Q.a_j)|^2 = \frac{\sin^2\left(N\frac{Q.a_j}{2}\right)}{\sin^2\left(\frac{Q.a_j}{2}\right)}$$ , j=1,2,3 ...est la fonction d' interférence de $N=N_1N_2N_3$ unités diffractantes. Lorsque N est grand (cristal de taille usuelle), elle tend vers un peigne de Dirac et l' intensité n' est différente de zéro que si :

$Q.a_1 = 2\pi\ h$, $Q.a_2 = 2\pi\ k$, $Q.a_3 = 2\pi\ l$ ( h, k, l entiers)

Une représentation équivalente est de dire que Q est un vecteur d' indice (h,k,l) du réseau réciproque {bi} (défini par $a_i.b_j = \delta_{ij}$ ) soit : $Q = h\ b_1 + k\ b_2 + l\ b_3$.

Quand cette condition (dite de "de Bragg") est satisfaite, l' intensité devient $I_{hkl} = A|F_{hkl}|^2 N_1^2 N_2^2 N_3^2$.

Un cas particulièrement intéressant est la restriction du cristal précédent à sa troncature par un plan ou un cristal bidimensionnel ; nous examinerons cette situation au § D-2 ( étude des surafces et interfaces).

*Cas des cristaux parfaits*

Lorsque la condition de Bragg est satisfaite pour un plan atomique et que le cristal est sans imperfection, cette condition est aussi satisfaite par les plans sous-jacents. Dans la théorie esquissée plus haut, le faisceau diffracté était unique (diffusion simple ou "*cinématique*"), alors qu' en réalité le second plan atomique etc. contribuent (diffusion multiple ou théorie "*dynamique*"). Sans développer ici cette dernière théorie (réf.5), les ingrédients essentiels pour l' optique X sont indiqués ci-dessous.

Si l' on considère l' onde plane incidente sur un cristal parfait (Si, Ge en pratique), celui-ci "réfléchit" (diffracte en fait), en théorie cinématique, l' onde si l' angle d' incidence satisfait la condition de Bragg, dont une expression équivalente à la représentation donnée ci-dessus est :

$$2d_{nk} \bullet \sin\theta_B = \frac{\lambda}{n}$$

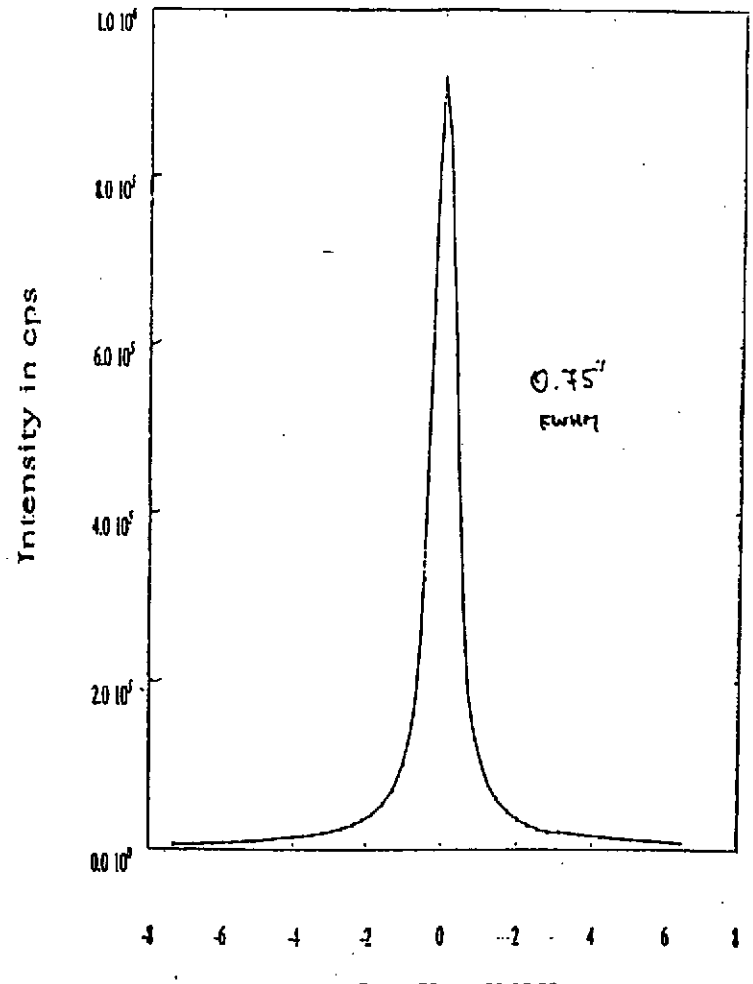
$d_{nk}$ est la distance réticulaire des plans cristallographiques participant à la diffraction), k = (h, k, l) et $\theta_B$ est l' angle de Bragg (entre faisceau incident ou réfléchi et les plans atomiques diffractants). L' entier n étiquette l' ordre de la réflexion $d_{nk} = d_k / n$ ; les longueurs d' ondes $\lambda_1$ , $\lambda_1 / 2$ ,..., $\lambda_1 / n$ sont réfléchies simultanément.

En réalité (théorie dynamique), l' acceptance angulaire n' est pas nulle. Cette acceptance finie provient de la pénétration limitée des rayons X dans les cristaux parfaits, due au fait qu' à chaque plan atomique une petite fraction du faisceau est soustraite par la diffraction à l' onde incidente (a profondeur de pénétration est effective car elle est en général bien inférieure à la longueur caractéristique de l' absorption). On peut donc comparer le cristal à un réseau et l' acceptance angulaire (dénotée usuellement courbe de réflexion ou "profil de Darwin") au diagramme d' interférence correspondant.

On notera également, qu' à cause de la réfraction (cf § 2.1.3), la réflexion se produit à un angle légèrement différent de $\theta_B$; la correction est très faible, de l'ordre de la largeur du profil de Darwin.

Inversement, si l' on ne considère plus une onde plane mais à présent un spectre incident sur un cristal parfait (Si, Ge en pratique), celui-ci sélectionnera une petite bande d' énergie, reliée à l' acceptance angulaire par la dérivation de la condition de Bragg. D' où la possibilité de filtrer une petite

b.




a.

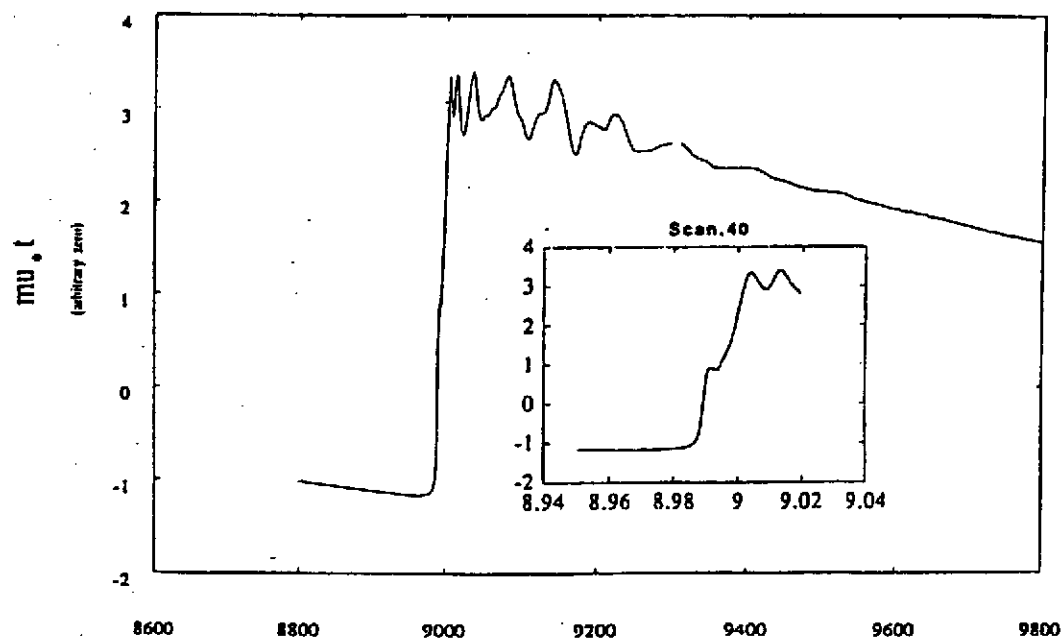



Fig. 6 a) Spectre d' absorption X, au seuil K du Cu dans une feuille Cu métal
b) Profil de diffraction, illustrant la théorie dynamique de la largeur de raie.
Ces 2 résultats expérimentaux ont été obtenus à l' ESRF.

bande passante en énergie dans un spectre blanc de RSX incident, par un "monochromateur" constitué d' un cristal de silicium monocristallin parfait.

L' expression de la largeur de Darwin est : $\varepsilon = \dfrac{2|\chi_h|}{\sin 2\theta_B}$ avec $\chi_h = -\dfrac{r_0\lambda^2}{\pi V} F_h$ ;

$\chi_h$ est la composante de Fourier pour le vecteur réciproque h de la susceptibilité électrique, elle-même liée simplement à la densité des électrons du matériau : $\chi(\mathbf{r}) = -\dfrac{r_0\lambda^2}{\pi}\varrho(\mathbf{r})$.

*Exemple*
Un monochromateur classique comporte 2 cristaux identiques parallèles : le premier sélectionne une énergie dans le faisceau RSX blanc incident, selon l' angle de Bragg ; le second rétablit la direction incidente. Mais il ne transmettra le faisceau monochromatique issu du premier cristal que si le parallélisme des deux cristaux est suffisant, c' est à dire si la convolution des profils de réflexion (chacun ayant la même largeur de Darwin) n' est pas nulle. La fig. 6b montre ainsi le double profil de Darwin obtenu à l'ESRF pour des cristaux $Si_{311}$. Il y a bon accord entre la largeur expérimentale ($\varepsilon_{exp}$ = 0,75 secondes d' arc) et la valeur théorique ; en effet :

Silicium : V (maille)= $a^3$ = (5,4307 Å)$^3$ et $F_h(Si_{311}) = 4\sqrt{2}\cdot f_{Si}$

E= 35 keV --> $\theta_B$ = 6,21 degré (condition de Bragg pour d = a / $\sqrt{3}$ )

le facteur de forme est donné par des tables : $f_{Si}$ ($\sin\theta_B/\lambda$ = 0,3) = 8,22

D' où : $\varepsilon_{th}$ = 3 µrad, soit 0,62 secondes d' arc.

### 2.1.3 *Réfraction*

Lorsqu' une onde plane pénètre dans un milieu avec un angle rasant $\alpha_i$, sa propagation change de direction selon la loi de Snell-Descartes : $\sin\alpha_i = n \sin\alpha_j$
Dans le cas des rayons X, l' indice n d' écrit :

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad \text{, où } \delta = \frac{1}{2\pi} r_0 \frac{Z}{A}\cdot\varrho_m\cdot\lambda^2 \text{ et } \beta = \frac{\lambda\mu}{4\pi}$$

Numériquement, $\delta \approx 10^{-5} - 10^{-6}$. La partie imaginaire $\beta$ concerne l' absorption et a été vue plus haut.
Le faisceau incident est réfracté en se rapprochant de la surface interne ; lorsque $\alpha_i$, devient plus petit qu' une valeur critique $\alpha_c$, le faisceau est réfléchit totalement à l' extérieur.
En unités pratiques, l' angle de réflexion totale est donné par :
$\alpha_c$ [mrad] = 1,6 $\lambda$ (Å) ($\varrho$ [g/cm$^3$])$^{1/2}$ ; il est de l' ordre de quelques mrad.

## 2.2 *Les problèmes optiques spécifiques à l' ESRF*

L' ESRF est une source X d' une qualité sans précédent, dont l' utilité effective repose sur la capacité à conditionner et à manipuler des faisceaux de haute brillance. D' où la nécessité de prendre en compte, outre l' effet des radiations, les sources d' instabilités liées aux problèmes mécaniques et thermomécaniques qui surgissent dès que l' on interpose un morceau de matière dans le trajet des RSX. En effet, la puissance des wigglers atteint 6 kW, et les onduleurs émettent une densité de puissance jusqu' à 160 W / mm$^2$.
Pour des composants tels que les fenêtres en béryllium, les conditionneurs de géométrie du faisceau et les filtres, le problème peut être résolu avec les technologies avancées existantes. Ce n' est pas le cas pour les *sytèmes optiques*, pour lesquels le défi reste entier de conserver l' *émittance* (i.e. la taille de la source dans l' espace des phases) et a fortiori la *brillance* (i.e. la densité de photons à l' intérieur du volume occupé dans l' espace de phases) du faisceau (réf. 6).

*L' émittance*

En l' absence d' une forte charge thermique, la faible émittance de l' ESRF peut-elle être conservée jusqu' à l' expérience ? Il y a des limites *fondamentales* (aberrations optiques de la focalisation) et aussi des limites *techniques* (qualité des monocristaux, imperfection de surface des miroirs, stabilité sous rayonnement, montage sans contrainte mécanique, positionnement précis).
Considérant une source onduleur de 200 μm et une divergence de 20 μrad, dont la stabilité est assurée à 10%, on voit que la tolérance sur la qualité de facettage d' un miroir focalisant placé à une distance typique de 25 m doit être ≈ 1-2 μrad (rms) ; pour limiter ses pertes par diffusion diffuse, sa microrugosité doit d' autre part être de quelques Å. De même, pour les cristaux parfaits utilisés pour la monochromatisation du RSX, les variations d' orientation et de distance des plans atomiques diffractants doivent être au plus de ≈ 1 μrad et ≈ $10^{-6}$. Ces caractéristiques peuvent être obtenues par un effort de développement les technologies les plus récentes.
La focalisation transverse (sagittale) par un cristal est un problème délicat. Lorsqu'on le courbe dans une direction, pour créer une forme concave, une courbure convexe est observée dans la direction perpendiculaire (effet de "selle de cheval") ; dans les conditions pratiques de l' ESRF , une divergence horizontale de 3 mrad au plus peut être refocalisée.

*La brillance*

Il faut maintenant prendre en compte la forte charge thermique sur les éléments optiques.
Dans le cas des onduleurs, la forte densité de charge thermique par unité de surface peut être réduite - par des fenêtres, filtres et surtout par un angle d' incidence faible, d' un ou deux ordres de grandeur. Mais la déformation de la partie diffractante reste encore prohibitive. L' ESRF a particulièrement étudié le cristal de diamant , dont les propriétés thermomécaniques sont supérieures à celles du silicium, ainsi que le refroidissement cryogénique des cristaux de silicium (son coefficient de dilatation thermique passe par zéro à 125 K).

Pour les wigglers, un projet de miroir adaptatif, basé sur le traitement en temps réel des effets de la turbulence atmosphérique en astronomie, est en cours de test.

Les différents moyens et efforts de développment de l' ESRF en optique X, tant pour la monochromation par cristaux et multicouches que pour les miroirs de filtrage ou focalisation, sont rassemblés dans les tables 5 a,b,c.

a.

| *Equipements* | *Cristaux et matériaux* | *Systèmes courbés et mécanique* |
|---|---|---|
| *diffractomètre 3 cercles haute résolution (cf fig. 10)*<br>- mesure de constante de réseau et coeff. dilatation<br>- bientôt sur ligne optique | *fabrication cristaux Si, Ge (différentes formes)*<br>-channel-cut pour charge thermique forte<br>- lames minces pour courbure<br>-channel-cuts haute résolution (RGN)<br>- channel-cuts à 5 réflexion (DPA)<br>- forme pour focalisation sagittale | diffraction des cristaux courbés cylindriquement<br>(géométrie de Bragg, puis Laue)<br>profils d' intensité dans la tâche focale<br>théorie dynamique et cinématique |
| *fabrication et tests cristaux*<br>- orientation, alignement<br>- scie diamantée<br>- polissage<br>⋮ | *cristaux diamant*<br>- efficacité sous haut flux(fig. 2)<br>- diagnostics de faisceau et splitter<br>- polarisation circulaire<br>*cristaux Be*<br>- structure en grains<br>- stabilité et émittance | *mécanique de courbure*<br>- pour monochromateurs 2 cristaux |

b.

| *Optique adaptative et courbeurs* | *Laboratoire de Métrologie : évaluation des surfaces* | *Simulations sur ordinateur* |
|---|---|---|
| *Asservissement*<br>- par mesure de forme interférométrique (50 Hz, au µrad);<br>*formes* : cylindre, ellipse,parabole | *Micro-profileur (WYKO TOPO 2D/3D)*<br>- interférence entre 2 faisceaux réfléchis (miroir et référence)<br>- enregistrement CCD (1D et 2D)<br>- logiciel de reconstruction de la surface<br>- microrugosité : à 1 Å près (répétabilité 0,5 Å)<br>- longueurs d' ondes spatiales 1 Å <--> 15 µm (piézoélectrique) | *Logiciel SCOTTY*<br>- tracé de raies X<br>- utilise la forme mesurée du miroir i.e. la densité de puissance spectrale (basse fréquence par le LTP, haute fréquence par le microprofileur)<br>- fournit le faisceau spéculaire et les faisceaux diffusés |
| *objectifs*<br>- correction des erreurs de pente (sous 4 kW : de 360 à 20 µrad)<br>- focalisation<br>- contrôle de la stabilité | *Interféromètre de Fizeau (WYKO 6000)*<br>- laser HeNe (632 nm)<br>- ouverture : 150 mm<br>- précision : λ /100 (répétabilité λ /200)<br>- aussi tests de petits courbeurs | *Calculs théoriques*<br>- réflexion spéculaire<br>- purement géométrique<br>- échelle microscopique incluse<br>- modélisation future : microrugosité 2D |
| *définition (ligne wiggler BL2)*<br>- actuateurs piézoélectriques<br>- refroidissement latéral<br>- 3 segments | *Profileur à longue trace LTP (cf fig. 11)*<br>- interféromètre à 2 faisceaux<br>- différence de chemin optique -> erreur de pente (+ profil en z)<br>- poutre céramique 2 m et coussin d' air<br>- positionnement : 1 µrad et 1 µm<br>- résolution longitudinale sur l' erreur de pente : 0,5 µrad<br>- longueurs d' ondes spatiales : quelques mm <--> dimension de l' élément optique | |
| *Courbeur 4 points*<br>- piézoélectrique<br>- formes : sphère, ellipse | | |

c.

| *Chambre ultravide pour dépôts* | *Caractéristiques* | *Mesures* |
|---|---|---|
| *CVD assisté plasma* | - gaz :<br>SiH4, N2,<br>H2 pour nettoyage substrat,<br>WF6 pour dépôt W<br>- substrats : 25 cm x 10 cm | *dépôts films Si* (20-110 nm)<br>= f ( p, T, puissance microonde)<br>- substrats : Si, silice fondue<br>- rugosités : 0,2-1 nm<br>- uniformité spatiale à améliorer |
| *Pulvérisation* | - dépôt de tous matériaux | *firme OVONICS*<br>- sur zérodur : Δd/d 0,5 % sur 150 mm,<br>- sur Si : réflectivité -> 80% à 8 keV |
| *tension RF au substrat* | - processus à plus basse température | *multicouches W / Si*<br>- courbure dynamique prévue |
| *Contrôle in-situ des dépôts* | - ellipsomètre à la milliseconde<br>- réflectomètre X rasant | *multicouches Fe / C*<br>- mesure STM |
| *Contrôle opératoire* | - régulation de la pression totale<br>- contrôle des séquences d' opération (flux de gaz, puissance micro-onde)<br>- mesure de densité de plasma | *multicouches à gradient de paramètre de maille* |

Tab. 5 Moyens et développements à l' ESRF :
a) Monochromateurs à cristaux
b) Miroirs
c) Multicouches

# 3. Les Détecteurs X pour l' imagerie

## 3.1 Rappel des besoins à l' ESRF

Les besoins en diffraction et diffusion sont définis ci-dessous :

| taille | rés. spatiale | énergie | dynamique | taux d' image |
|---|---|---|---|---|
| Φ 200-300 mm | 100 - 200 µm | de 5 à 40 ou 60 keV | 3 à 5 décades | résolution ≈ milliseconde |
| *- pinceau X fin*<br>*- réduire diffusés* | | *surtout 10-20 keV* | *bruit de qq. X /image/pixel* | *très faibles signaux enreg. en qq minutes* |

Ces besoins sont *trop diversifiés* : il n' existe pas de détecteur capable de couvrir tous ces aspects; en effet :
- plaque image : lecture lente et cycle utile très faible
- détecteurs TV (actuels) : plus rapides, mais image de qualité souvent médiocre.

En conséquence, l' ESRF a choisi une approche *modulaire* . En effet, il existe de nombreux dispositifs assurant l' un des processus suivants (fig. 7) :
- conversion X --> visible
- acquisition d' une image visible.

On tendra donc à combiner un intensificateur d' image médical (XRII), disponible pour les hautes énergies X - ou un écran phosphorescent médical dans le cas d' une aire sensible petite, avec une caméra CCD à balayage lent mais résolution et dynamique très élevés. L' accès aux énergies plus basses et à des temps de réponse jusqu' à la milliseconde conduit à développer les éléments décrits ci-dessous.

## 3.2 Les Développements à l' ESRF

1. *XRII basse énergie et réponse rapide* (Prototype Thompson )

| | |
|---|---|
| taille | Φ 200 mm |
| sensibilité maximale | 6 < E < 20 keV ;<br>bonne fenêtre 33-40 keV valable --> 100 keV (1) |
| étalement du point | ≈ 200 µm (mais 1 mm à $10^{-3}$ du maximum) |
| bruit équivalent | quelques X / $cm^2$ / s |
| temps de réponse | 100-100 images /sec.<br>sans rémanence appréciable |
| limitations | angles de diffraction ± 15 deg. (convexité) |

(1) à noter, en comparaison, que la plaque image à un rendement (DQE) qui à 20 keV ne vaut déjà plus que 20 %.

Des prototypes intermédiaires et une caméra CCD lente ont permis des mesures de protéines et du germanium sous haute pression : l' image 1000x1000 (14 bits) est disponible en 5 secondes. D' autres utilisations d' imagerie à basse énergie sont envisageables (ex. test non-destructif de matériaux légers, médecine).

2. *Caméra CCD mégapixel*

Un effort important est mené sur la conception de l'électronique analogique et le contrôleur numérique, en direction d' un double objectif :
- 1 Mpixel lu en 0,1 seconde (dyn.12 bits)
- 0,25 Mpixel lu en 2 msec (dyn. 10 bits)

De tels systèmes à haute vitesse requièrent de très grandes et rapides mémoires tampons.

3. *Caméra CCD ultra-rapide*

La prévision est de 500 images de 512 x 512 pixels par seconde et une dynamique de 500 ou 1000.

Le tableau 6 présente une comparaison de différents détecteurs X d' intérêt pour l' ESRF.

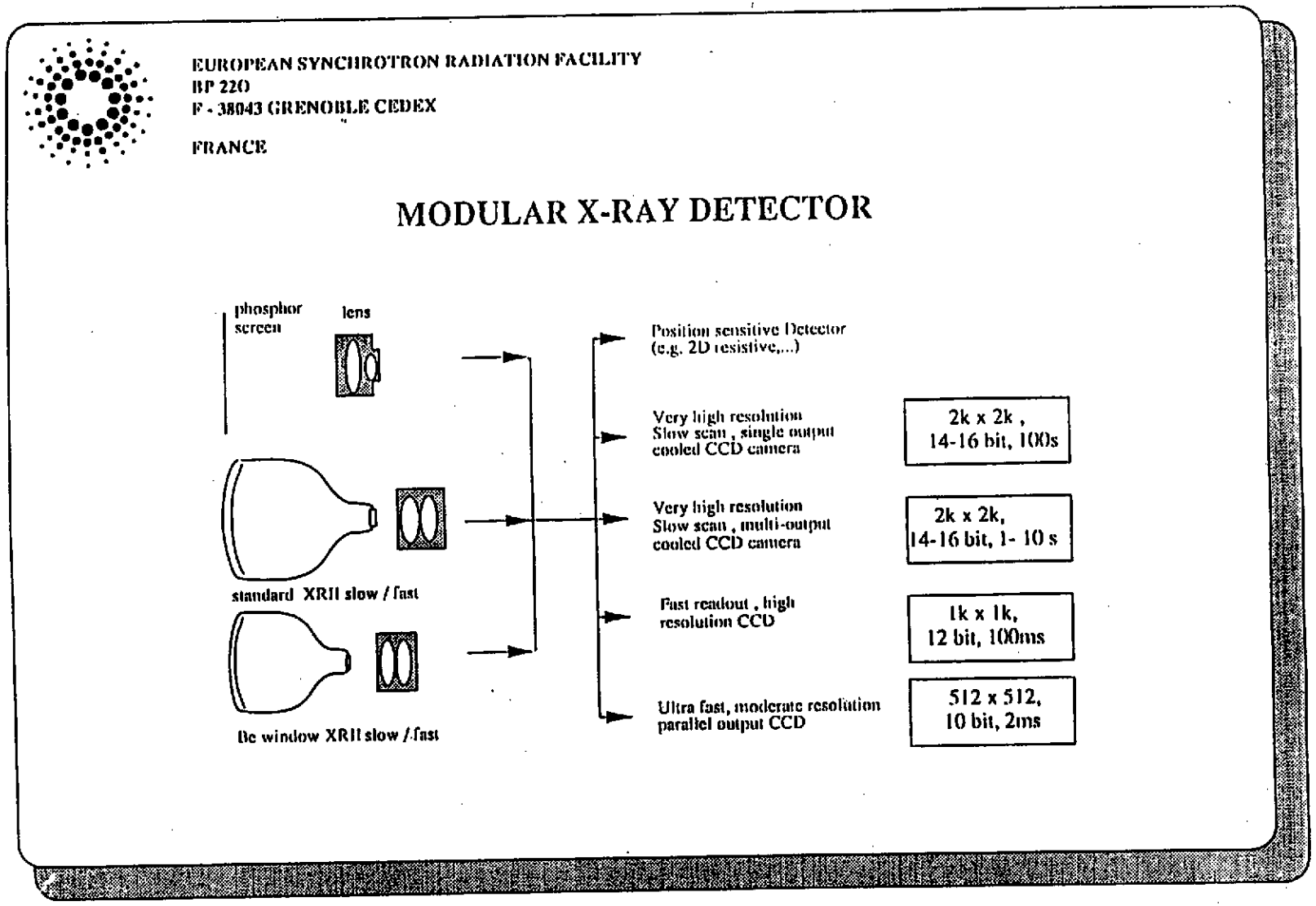



Fig. 7 Détecteurs X à l' ESRF : approche modulaire

# tab. 6 - Les Détecteurs X à l' ESRF

| *Type* | *Abréviation* | *Disponibilité* | *Technique* | *Résolution spatiale (2) (µm)* | *Résol. en énergie* | *Temps de lecture* | *Taux de comptage* | *Bruit équivalent photons X de 8keV/100µ²/s* | *Gamme dynamique (décades)* | *Gamme d' énergie (keV)(7)* | *Surface utile (mm)* | *Utilisation* |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Film | | commercial | | quelques µm | ////////////// | 1 - 10 min. | intégration | 100 | ≤3 ( usuel) | <5 à ≈40keV | ~500x500 | XRD, topography.. |
| Plaque Image | IP | commercial R&D labs | lecture photoluminescence stimulée par laser | 150 FWHM | | 1 - 10 min | intégration | 5 - 50 ? | 4 <--> 5 | de <5 à ≈ 80 | ≈400 x400 " pavage " | XRD, Diffuse scattering etc. |
| Compteur à gaz multifils | MWPC | R&D : labs | ligne à retard ou ampli /fil | ≥300 FWHM limité par effet de parallaxe | 15-50% ($Fe^{55}$) | comptage(3) | < 1 Mcps global ≤ 10kcps local | <<1 (7) | comptage(5) | < 10 keV | ≤ 200x200 | XRD,Diffuse scatt. à petits angles |
| Compteur à gaz microstrips (1) | MSGC | R&D RAL *pour l'ESRF* | div. charge avec ampli /fil | ≥300(1) FWHM | 15-50% ($Fe^{55}$) | comptage(3) | --> 100Mcps global | <<1 | comptage (5) | <5 à ≈ 25keV pour Xe; plus si pressurisé | 500x500 150 x150 | XRD,Diffuse scatt. à petits angles |
| Intensificateurs d' Image (en RX) | XII-CCD | Thomson TE + ESRF | conversion X --> visible (lecture par CCD) | 200 FWHM <1000 @1% | ////////////// | 10 sec <--> 1 msec (4) | intégration | <<1 | 3 <--> 5 | Al :>20-150 Be : ≈ 5 - 100 | <Ø500 Be: Ø200 | XRD |
| Ecran à scintillation | | Ecrans médical mammographie, R&D ESRF écrans | couplage relais optique à CCD | ≤100 FWHM (->≈µm à faible DQE pour surface ≈1cm²) | ////////////// | ≈ 10 sec (4) | intégration | <<1 - 10 (4) *-indépendent du temps de lecture* | 3 <--> 5 | de : < 5 à : 100 | Ø10 - Ø100 | - BL µFocus - EXAFS dispersif |
| CCD excitation directe | | commercial (Univ Leicester/EEV) epaisseur active de Si jusqu'à 100µ | lecture lent, CCD cryogenique | ≈10 (6) | <120 eV ($Fe^{55}$) | ≈ 10 sec | intégration limité: taux <1 kcps si resolution en energie demandé | << 1 / min | comptage(5) | ≈0,1 - 10 (jusqu'à 100µ de silicium utile | de 10x 10 à 60 x 60 (mosaique de 4) | |
| Si drift diode | | R&D ESRF /Intertechnique | dérive de la charge absorbé, anode de capacitance réduite | ////////////// | <150eV ($Fe^{55}$) | comptage(3) | ≤100kcps à présent (en principe, jusqu'à qq Mcps) | <<1 / min | comptage(5) | ≈1-15 keV 300µm de silicium utile | ≈Ø10 typique | EXAFS |

(1) grand développement actuel pour des détecteurs des experiences de hautes energies; tendance vers une électronique pour chaque microstrip (Workshop ILL, juillet 1993)

(2) la "résolution spatiale" est souvent donnée comme la plus grande fréquensce spatiale discernable. Cette valeur est très subjective. La MTF ( fonction de transfert de modulation spatiale) exprime la résolution de façon quantitative ;

il faut au moins 2 valeurs (à fréquence nulle et à haute fréquence) pour caractériser cette distribution. De manière équivalente (transformée de Fourier), on peut utiliser la réponse impulsionnelle ou PSF( réponse impulsionnelle spatiale). Pour les expériences de diffraction, la PSF est le meilleur facteur de mérite, et il faut considérer au moins 2 valeurs de la PSF, à mi-hauteur et au pied (défini comme 0,1% de l' ordonnée au centre); dans le tableau, la valeur au pied est parfois indiquée entre parenthèses.

(3) "comptage" signifie que le temps de lecture est aussi court que l' on veut, i.e. la lecture est en temps réél.

(4) selon la caméra CCD utilisée

(5) la limite pratique n' est pas dûe à la dynamique du comptage, mais à des phénomènes annexes comme par exemple la PSF.

(6) la résolution est lié à la taille du pixel et à l' énergie

(7) pour une DQE ≥10%

# C. Les lignes ESRF

## 1. Généralités

Sur la capacité totale de l' équipement - soit de l' ordre de 50 lignes de RSX, plus de 60% devraient être équipées et disponibles aux utilisateurs dès la mi-96. Les lignes de lumière peuvent être classées selon plusieurs critères :
1. *Le type de source* :
La source est du type onduleur, wiggler ou dipole avec une variété de caractéristiques appropriée à chaque ligne (cf table B-4).
2. *Le fonctionnement*
- les lignes *"publiques"* : financées et mises en oeuvre par l' ESRF, elles sont accessibles aux utilisateurs selon une procédure de sélection scientifique interne ; elles seront au nombre de 23 d' ici fin 1996.
- les lignes mixtes "privées-publiques, dénotées *"CRGs"* (Collaborative Research Groups"). Elles sont financées et mises en oeuvre par des groupes de laboratoires extérieurs à l' ESRF, qui disposent de 2/3 du temps pour leurs propres besoins le dernier tiers rentrant dan la procédure ESRF). Ces lignes, toutes issues d' une source dipole, seront au nombre de 10 environ d'ici fin 1996.
- les lignes de test : machine et optique X
3. *Le type d' utilisation*, qui permet de regrouper certaines lignes :
- soit selon la *technique expérimentale* : diffraction, diffusion diffuse, haute énergie, polarisation, surface / interface, cinétique, absorption , nucléaire, diffusion inélastique, ondes stationnaires et absorption de surface, recherche médicale etc.
- soit selon l' *objectif scientifique* : matière condensée "dure", matière condensée "molle" (par ex. les polymères), chimie, sciences de la vie, surfaces et interfaces, méthodes et instrumentation.
Une ligne générique (fig. 1), d' un coût de ≈ 12-15 MF, comprend pour l' essentiel :
- une optique pour sélectionner une bande passante adaptée et pour ajuster la géométrie du faisceau à chaque expérience (cf B-2) ;
- un montage expérimental permettant de placer un échantillon dans des conditions appropriées (position, environnement)
- un système de détection (cf B-3)
Ces différents éléments sont incorporés dans une "ligne de lumière", qui comprend de plus un système de vide pour le transport de faisceau, des moyens de pilotage et de contrôle et des cabines plombées pour les expériences.
A titre d' exemple, la ligne française CRG "Interfaces", dédiée à la physique et à la physico-chimie des surfaces et interfaces, comprend comme composants principaux :
- un monochromateur (fig. 2a,b) à deux cristaux Si parfaits, couvrant la gamme 4-30 keV et assurant la focalisation du RSX dans le plan horizontal ;
- un long miroir (1 m) pour la focalisation verticale et le filtrage des hautes énergies
- un banc de spectrométrie d' absorption X
- un diffractomètre à 4 cercles multitechnique
- un diffractomètre sous ultravide couplé à un banc d' épitaxie à jets moléculaires
L' annexe 3 (réf.1), destinée aux futurs utilisateurs de la ligne "Interfaces" , fournit quelques indications sur ces différents équipements.

## 2. Les lignes opérationnelles en 1994-96

Les premières lignes sur l' ESRF - qui seront disponibles de 1994 à 1996, ainsi que leurs caractéristiques principales, sont données sur la table 1. Des informations plus détaillées peuvent être trouvées en réf. A-4. La plupart concerne la gamme d' énergie classique de la diffraction X (5 - 30 keV) pour laquelle l' ESRF est optimisé ; il y a cependant des lignes fonctionnant à haute énergie (> 50 keV) telle que la ligne n° 5. De même, quelques lignes descendent jusqu' au keV environ dans les cas spécifiques où l' ESRF est inégalé (ex. polarisation circulaire : ligne 6, microscopie : ligne 22). On notera également une ligne dédiée à la recherche médicale (ligne 14).

La répartition des lignes de lumière autour de l' anneau est indiquée sur la fig. 3, qui montre de plus les potentialités de l' ESRF en équipement de lignes.

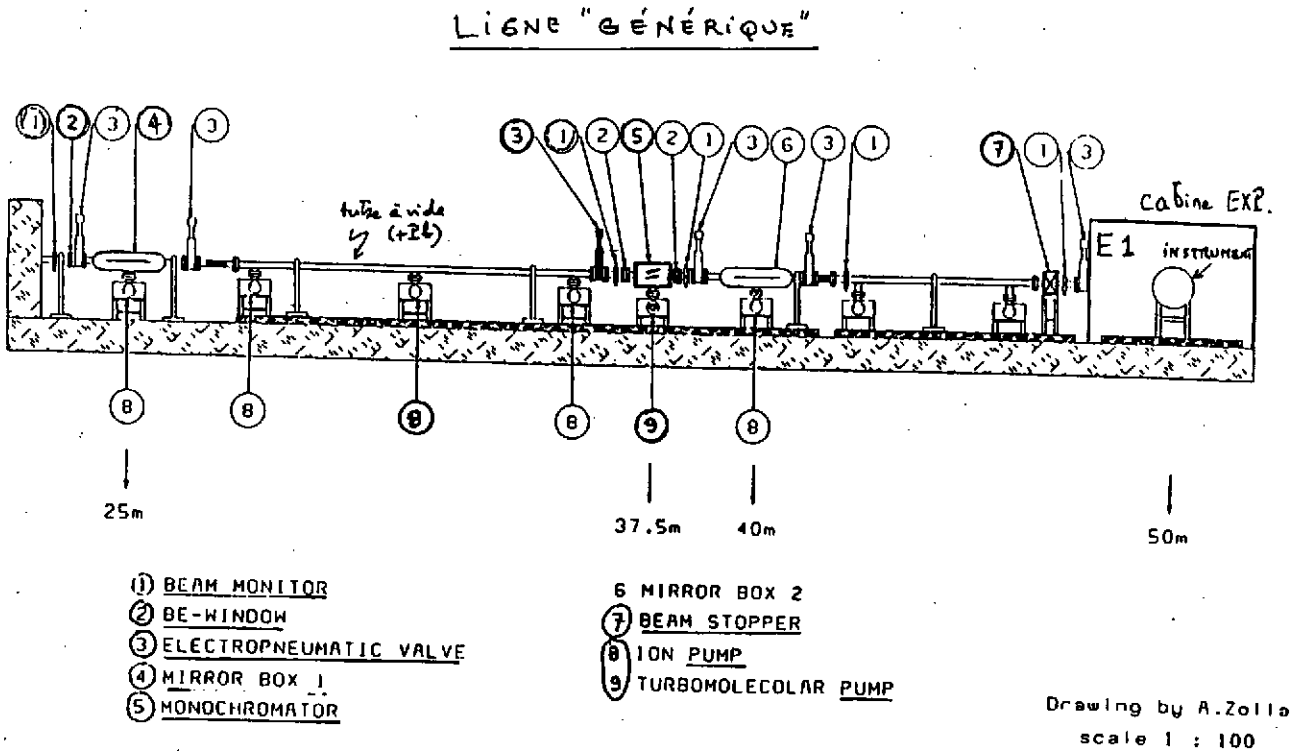



Fig. 1 Ligne de rayons X générique : seule la partie dans le hall expérimental est schématisée (partie située entre 25 m et ≈50-70 m de la source synchrotron); à noter que les composants optiques principaux (monochromateur, miroir) sont souvent placés dans une cabine plombées, tout comme les instruments.

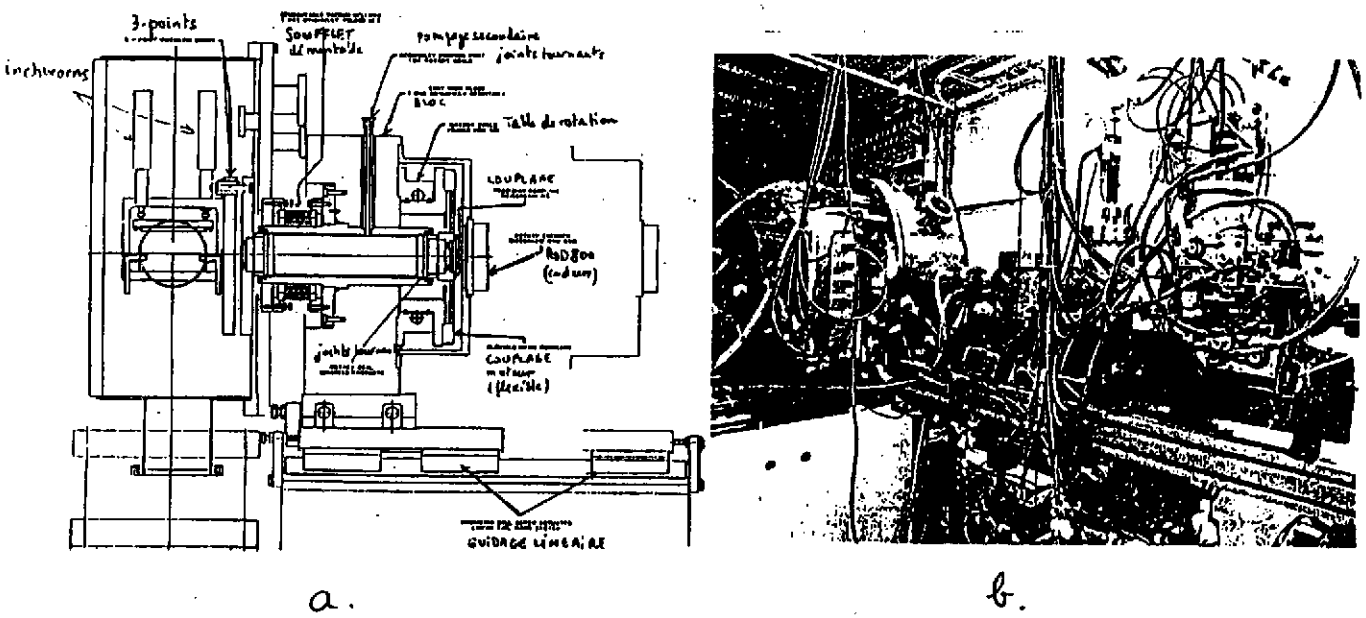



Fig. 2 a) schéma du monochromateur (CRG/IF) : le faisceau RSX est perpendiculaire au plan de la feuille. Il comprend un axe de rotation de haute précision codé, qui porte une cage à 2 cristaux; seul le 2ème cristal, mû par 3 inchworms, est représenté; cette cage est découplée des sources de vibrations.

b) installation provisoire (début 1993) du monochromateur IF dans une cabine ESRF; en amont, se trouvent aussi des fentes de définition et un moniteur de position du RSX

Table 1. **Les Lignes sur l' ESRF** *(actualisation août 93)*

| *Source* | *Ligne* | *Objectifs scientifiques* | *Source* | *Date* |
|---|---|---|---|---|
| | *Lignes Publiques* | | | |
| ID-13 | 1. µFocus | µdiffraction ; DPA ; haute pression | U 4 - 15 keV | mi - 1994 |
| ID-11 | 2. Material Science | cristallographie (petites mailles); diffusion magnétique | W 4 - 60 keV | - id- |
| ID-9 | 3. White Beam | cristallographie des protéines : Laue ; haute pression (dispersif) | W 4 - 60 keV | - id- |
| ID-2 | 4. High Brilliance | DPA temps réel ; cristallographie macromoléculaire | U accordable ≈ 1 A | - id- |
| ID-15 | 5. High Energy | diffraction $\gamma$ ; DPA ; Compton | WS -> 1 MeV | - id- |
| ID-12 | 6. Circular Polarisation | dichroïsme en EXAFS, SEXAFS ; photoemission de spin ; microscopie 2,5 keV | U hélicoïdal ≤ 5 keV | - id- |
| ID-3 | 7. Surface Diffraction | structure de surface ; transitions de phase ; croissance ; diffraction surface liquide | U : $K_M = 1.85$ | - id- |
| ID-20 | 8. Dispersive EXAFS | structure locale résolue en temps | W ou U "tappered" | - id- |
| ID-10 | 9. Troïka "Open BL" | expériences tests variées | U - 6-18 keV | - id- |
| | 10. "Open BL" | expériences tests | BM- 10 / 20 keV ? | - id- |
| | | | | |
| ID-18 | 11. Mössbauer | Diffusion nucléaire ; excitations e- et vib. ; q = [0, 5 eV] , ΔE = [5, 100] meV | U 14,4 keV | mi - 1995 |
| ID-20 | 12. Magnetic scattering | diffusion magnétique | Asym. W 3 - 40 keV | - id- |
| ID-32 | 13. Surface science | SEXAFS et ondes stationnaires | U < 2 - 30 keV | - id- |
| ID-17 | 14. Medical BL | recherche médicale : tomographie, angiographie etc. | W 33 - 80 keV | - id- |
| | 15. Powder Diffraction | détermination des structures par méthode de poudre | BM ; puis U | - id- |
| ID-19 | 16. Topographie | topographie | W 5 - 40 keV | - id- |
| ID-1 | 17. Anomalous scattering | diffusion anomale en science des matériaux | W 5 - 35 keV | - id- |
| D-29 | 18. EXAFS | 2 expériences d' absorption X | BM-20 keV | - id- |
| D-14 | 19. MAD | diffusion anomale multi-longueur d' ondes | BM-20 keV | - id- |
| ID-14 | 20. Macromolecular Crist. | cristallographie macromoléculaire | 2 U 13 keV et accord. | - id- |
| ID-16 | 21. Inelastic scattering | haute et très haute résolution | U 7-22 keV | mi -1996 |
| | 22. Microscopy | imagerie par microscopie X | U 0.8- 4 keV | - id- |
| | 23. Absorption | échantillons ultradilués | | - id- |
| | | | | |
| | *Lignes CRG* | | | |
| D-32 | IF | physique et physico-chimie des interfaces | D-20 keV | mi-1994 |
| D-2 | D2AM | DPA-DGA anomale (polymères, métallurgie / biologie structurale) | D-20 keV | mi-1994 |
| D-8 | GILDA | spectroscopie d' absorption et diffraction de poudres | D-20 keV | mi-1994 |
| D-1 | SN | diffraction et spectroscopie d' absorption | D-20 keV | mi-1994 |
| D-7 | GRAAL | physique nucléaire sous excitation gamma ≈ 1 GeV | D | mi -1994 |
| | UK | Diffraction magnétique et à haute résolution | D-20 keV | mi -1996 |
| | DUBBLE | DPA, absorption X ; diffraction de poudres, diffraction d' interface | D-20 keV | mi -1996 |
| | | | | |
| | *Lignes de Test* | | | |
| ID-6 | Machine | ligne de diagnostic de l' anneau | U K ≈ 2 | mi-1992 |
| D-5 | Optique X | test des composants optiques | D-20 keV | mi-1994 |

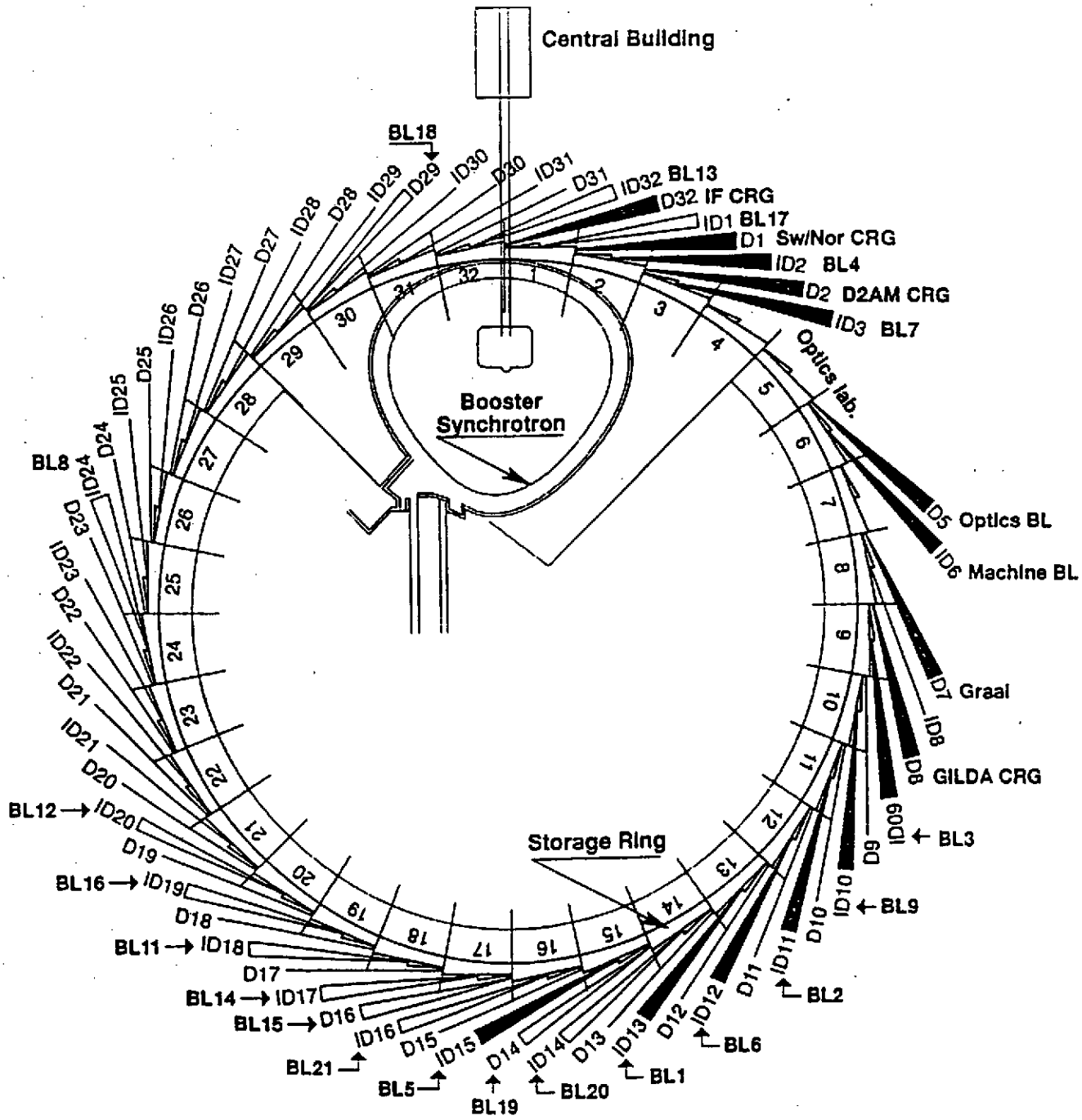



Fig. 3 Installation des lignes de lumière dans le hall expérimental en périphérie de l' anneau. Les lignes indiquées par un faisecau noirci - toutes situées dans le demi-cercle droit, sont en construction soit en 1993, soit en 1994.

## 3. La ligne de physique nucléaire GRAAL

Le projet GRAAL (Grenoble Anneau Accélérateur Laser), dont le fonctionement est prévu en 1994, enverra un faisceau laser sur les électrons dans l' anneau, dans le but de produire par effet Compton un faisceau de rayons $\gamma$ polarisés de haute énergie. Après les équipements de Frascati puis de Brookhaven, l' ESRF présente la possibilité unique d' atteindre la *gamme du GeV*, ouvrant la voie d'une nouvelle physique. Le flux $\gamma$ devrait atteindre 5 MHz, taux suffisant pour l' étude des réactions photonucléaires : transitions électromagnétique des hadrons, photoproduction d' isobars et de particules étranges tant dans les noyaux que dans les nucléons. La faible émittance des électrons permet une résolution $\Delta E/E \approx$ pourcent par étiquetage des électrons choqués par le laser ; par ailleurs, le temps de vie résultant pour les électrons ($\approx$ 40 h) reste actuellement supérieur d' un facteur 2 aux autres causes de perte d' electrons, et ne devrait donc pas perturber les utilisateurs de RSX.
L' intérêt d' utiliser une sonde électromagnétique (EM) pour l' étude de la structure du noyau et de ses constituants est multiple :
- l' interaction onde EM-particules est bien connue
- la faiblesse du couplage ($\alpha$ = 1/137) permet la pénétration des photons et donc une information volumique
- à la différence des électrons, l' excitation photonique est sélective

Les rayons $\gamma$ de l' ESRF permettent une résolution spatiale bien adaptée (table 2) :

*Table 2. Quelques longueurs caractéristiques ; l' unité est le fentomètre (fm)*

| *rayon nucléaire* $R = r_0 A^{1/3}$ | *rayon du proton* (rms) | *longueur d' onde* $(h/p_\gamma)$ | distance résoluble $(\hbar/p_\gamma)$ |
|---|---|---|---|
| $r_0 = 1{,}2$ | $r_P = 0{,}8$ | $\lambda = 0{,}83$ | $\delta x = 0{,}13$ |

*Cinématique*

La réaction de rétrodiffusion Compton en vol : $R\gamma + e \rightarrow R\gamma' + e'$, est représentée sur la fig. 4.
Dans le cas ultrarelativiste ($\gamma >> 1$), l' énergie du photon $\gamma$ émis en retour dans un collimateur $\Delta\theta$ est :

$$\frac{E^\gamma_{max} - E^\gamma}{E^\gamma_{max}} = \frac{x}{1+x+z} \quad \text{où} \quad x = (\gamma \cdot \delta\theta)^2 \quad \text{et} \quad z = \frac{4\gamma E_L}{m_e} \quad (E_L = 3{,}5\ \text{eV})$$

Si l' on avait x, z <<1 , la meilleure monochromaticité serait donnée par un collimateur tel que $\delta\theta = \sigma'_x$ (divergence angulaire des électrons dans le plan horizontal, au point considéré, soit $\approx 10^{-5}$)
Mais pour l' ESRF à 6 GeV, z $\approx$ 0,32. On ne peut donc déterminer l' énergie des photons $\gamma$ , donnés par $E_\gamma = E_e - E'_e + E_L \approx E_e - E'_e$ et $\sigma^2_\gamma = \sigma^2_E + \sigma^2_{E'}$ qu' en étiquetant ("tagging") l' électron ayant subi l' impact laser. En effet, malgré la faible émittance de l' ESRF, la divergence des électrons reste trop grande pour permettre une corrélation suffisante entre l' énergie et l' angle d' émission des rayons $\gamma$, comme le montre la simulation de la fig. 5a,b. On obtient la résolution en énergie limite de la machine, que l' étiquetage soit externe (extraction et analyse par un spectromètre magnétique) ou interne comme ce sera le cas à l' ESRF : le moment de l' électron est alors analysé par la structure magnétique de l' anneau. La minimisation de l' incertitude en énergie $\sigma^2_\gamma$ définit la zône à retenir pour l' étiquetage des électrons ; elle se situe juste en aval du second dipole de la zône d' intersection (fig. 6a,b). La détection de ces électrons (fig. 10) utilise des détecteurs solides de 128 microbandes ("microstrips") de 300 µm de largeur, en silicium ; l' extrémité du détecteur est à 10 mm de l' axe optique de la machine. La résolution attendue dans ces conditions est de 15 MeV (fwhm), soit 1% à l' énergie maximale.

*Intensité et spectre du faisceau γ*

La collision entre le faisceau d' électrons et le laser produit un taux de comptage - par unité de trajectoire dz (x,y transverses), relié à leur densités : $\frac{d^2n}{dz \cdot dt} = c \cdot \sigma_T \iint \varrho_e \cdot \varrho_L \cdot dxdy$.

En supposant les densités d' électrons $\varrho_e$ et de photons $\varrho_L$ gaussiennes et en intégrant, on obtient :

$$\frac{d^2n}{dz \cdot dt} = \frac{2}{\pi} \frac{P \cdot I \cdot \sigma_T}{E_L \cdot e \cdot c} \cdot \left[ (w^2 + 4\sigma_x^2) \cdot (w^2 + 4\sigma_y^2) \right]^{-\frac{1}{2}}$$

Numériquement, avec $\sigma_T$ (Compton) = 0,51 barn, les données du laser ( P=8 watt; $E_L$=3,5 eV; taille w= 0,3 mm) et les caractéristiques du faisceau de l' ESRF dans la zône d' intersection, on obtient ≈ $10^7$ gammas / sec.

Le spectre d' énergie peut être calculé à partir de la section efficace différentielle dans le système de référence du laboratoire; il est tracé sur la fig. 7.

*Polarisation*

L' ESRF permet d' obtenir de plus un faisceau de haute *polarisation* (au-delà de 75% de 600 MeV à 1,5 GeV, fig. 8), ce qui est un ingrédient essentiel pour une nouvelle physique. De plus, cette polarisation peut être rendue *variable* par simple changement de la polarisation du laser excitateur.

La polarisation linéaire mesure l' anisotropie des contributions multipolaires d' une transition. La polarisation circulaire conduit à la définition de nouvelles observables plus sélectives du mécanisme de réaction (ex. en photoproduction de l' étrangeté).

*Expérimentation*

L' optique à l' ESRF comprend un laser de 0,3mm de section minimale et un miroir de renvoi (à rotations précises ≈ millidegré) ; l' ensemble est supporté par un banc optique muni du système "HLS" (=hydrostatic levelling system) comme pour les quadrupoles de l' anneau. L' installation sur le site de l' ESRF (zônes de collision et d' étiquetage, laboratoire) est donnée sur la fig. 9a,b.

En ce qui concerne l' expérience proprement dite, la cible est un volume de 50 $cm^3$ d' hydrogène liquide. La détection des évènements (fig. 11a,b) est réalisée au moyen de :

- une boule de cristal BGO à 480 cellules (sur presque 4 π) pour la mesure des rayons γ émis lors des réactions photonucléaires ;
- des détecteurs multifils (MWPC), cylindriques et plans, pour les particules chargées ;
- un mur et un tonneau de scintillateurs pour les mesures de temps de vol et de perte d' énergie.

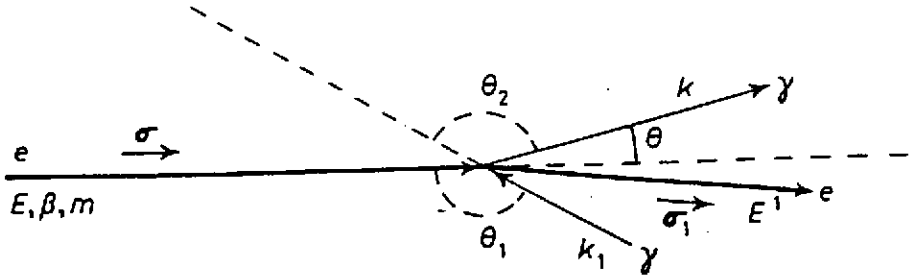



Fig. 4 Cinématique de la réaction photons laser - faisceau d' électrons (diffudion Compton en retour)

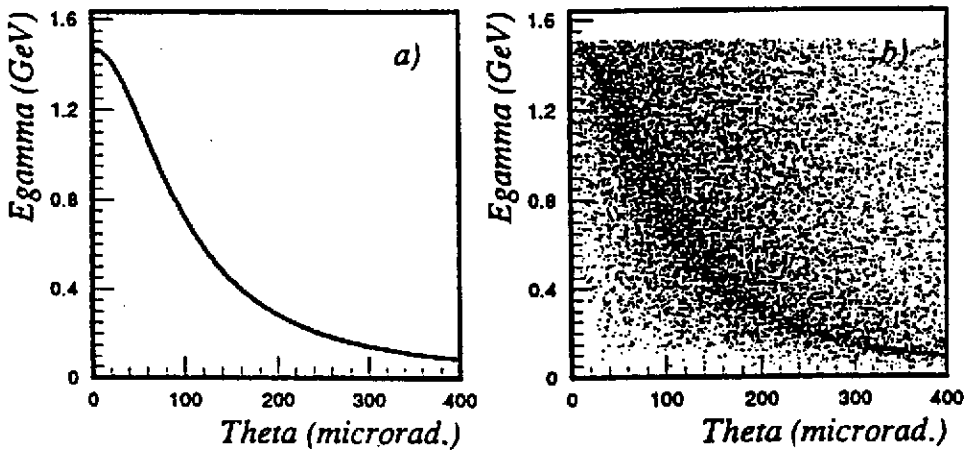



Fig. 5 Relation entre énergie du gamma créé et son angle d' émission :
a) avec un faisecau d' électron idéal (émittance nulle)
b) avec le faisceau d' électron de l' ESRF dans la zône d' interaction

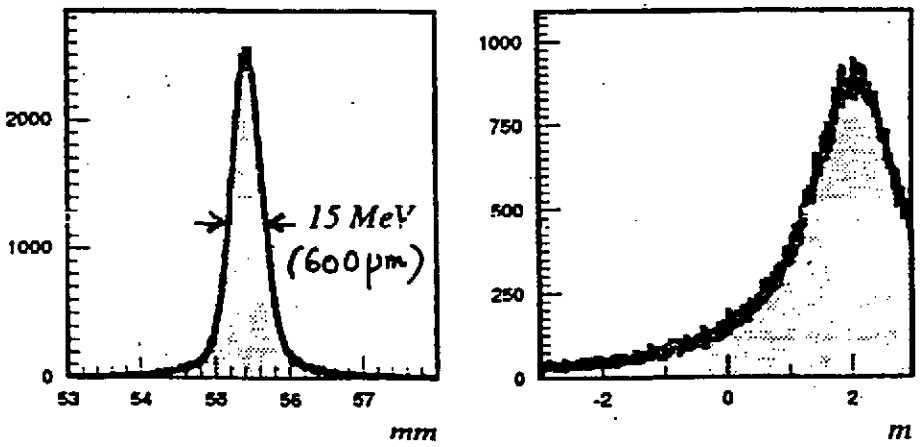



Fig. 6 a) Dispersion des positions des électrons dans la zône d' étiquetage, et résolution correspondante pour un gamma de 1,5 GeV
b) distribution des points d' interaction Compton le long de la section droite

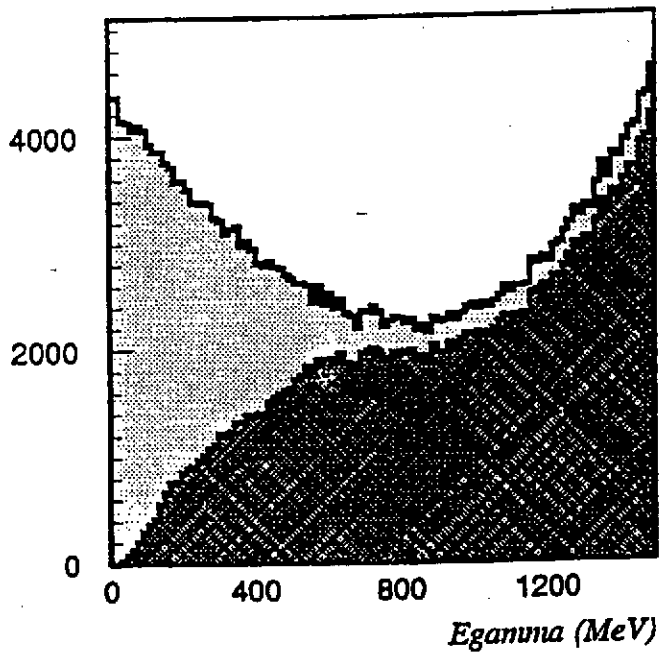



Fig. 7 Spectre des gamma émis ; la partie foncée correspond au spectre traversant un collimateur = 2*1 $cm^2$ à 32 m de la section droite d' interaction

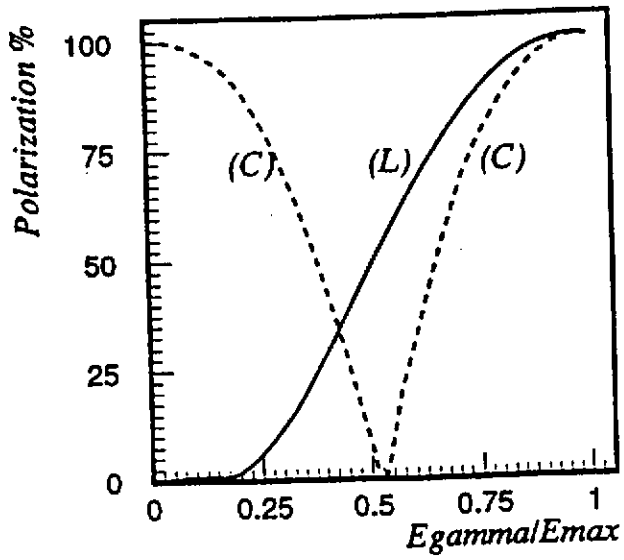
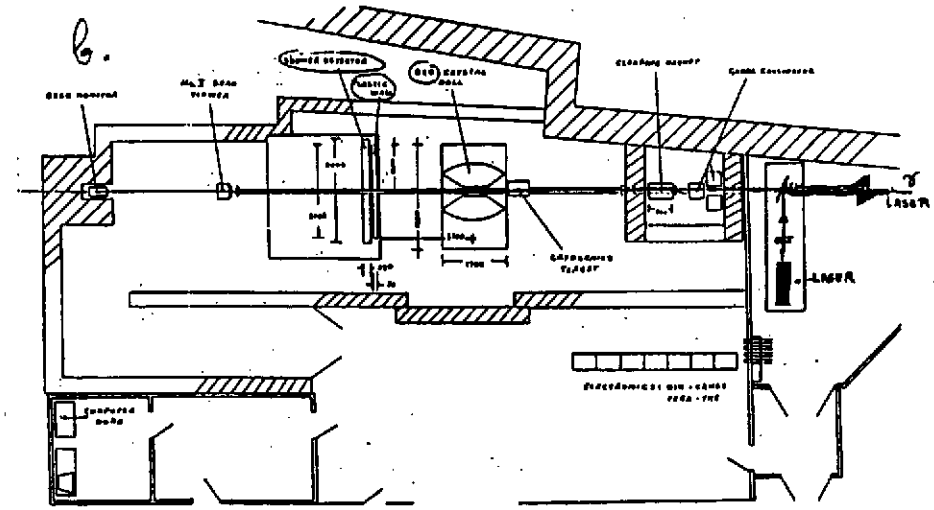


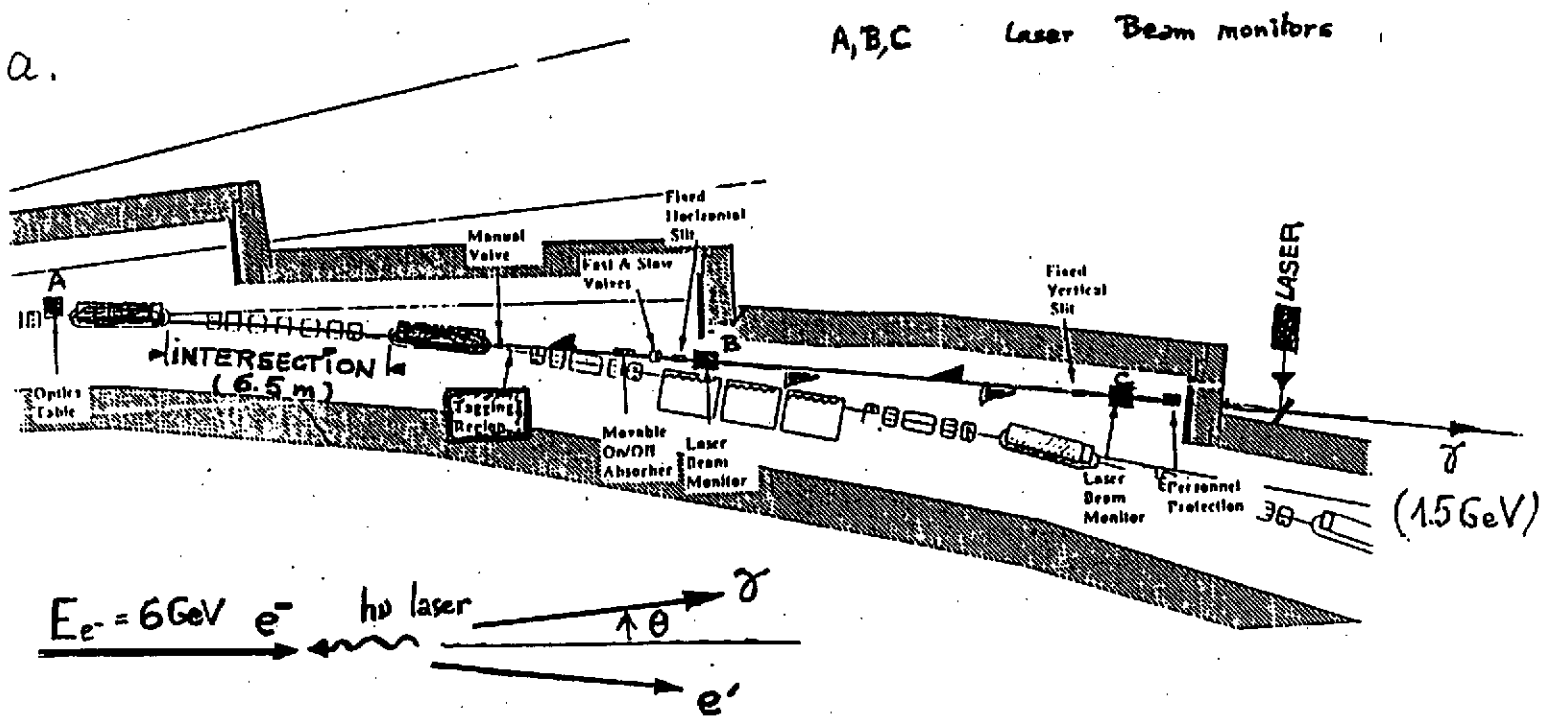

Fig. 8 Polarisation du faisceau Gamma en fonction de son énergie : L = polarisation linéaire, C= polarisation circulaire

Fig. 9 a) Zône d' intersection représentée dans le tunnel de l' anneau, entre les deux dipoles d' une cellule, et zône d' étiquetage

b) Laboratoire GRAAL : le faisceau gamma - émis pratiquement en retour par rapport à la direction du laser renvoyé par un miroir, interagit avec une cible cryogénique et les produits de réaction sont détectés

*(NB. cette figure doit être regardée en sens inverse de la fig. 9a)*



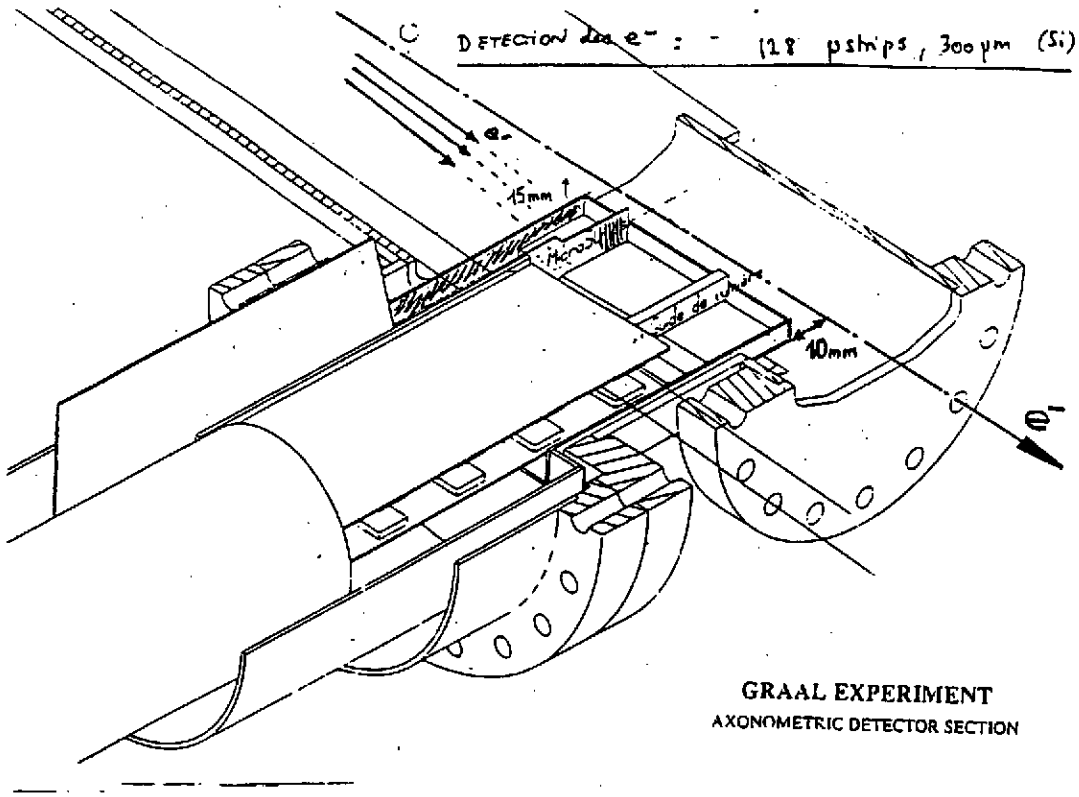



Fig. 10 Détecteurs microstrips s' approchant à 10 mm de l' axe de l' anneau de stockage, dans la zône d' étiquetage des électrons

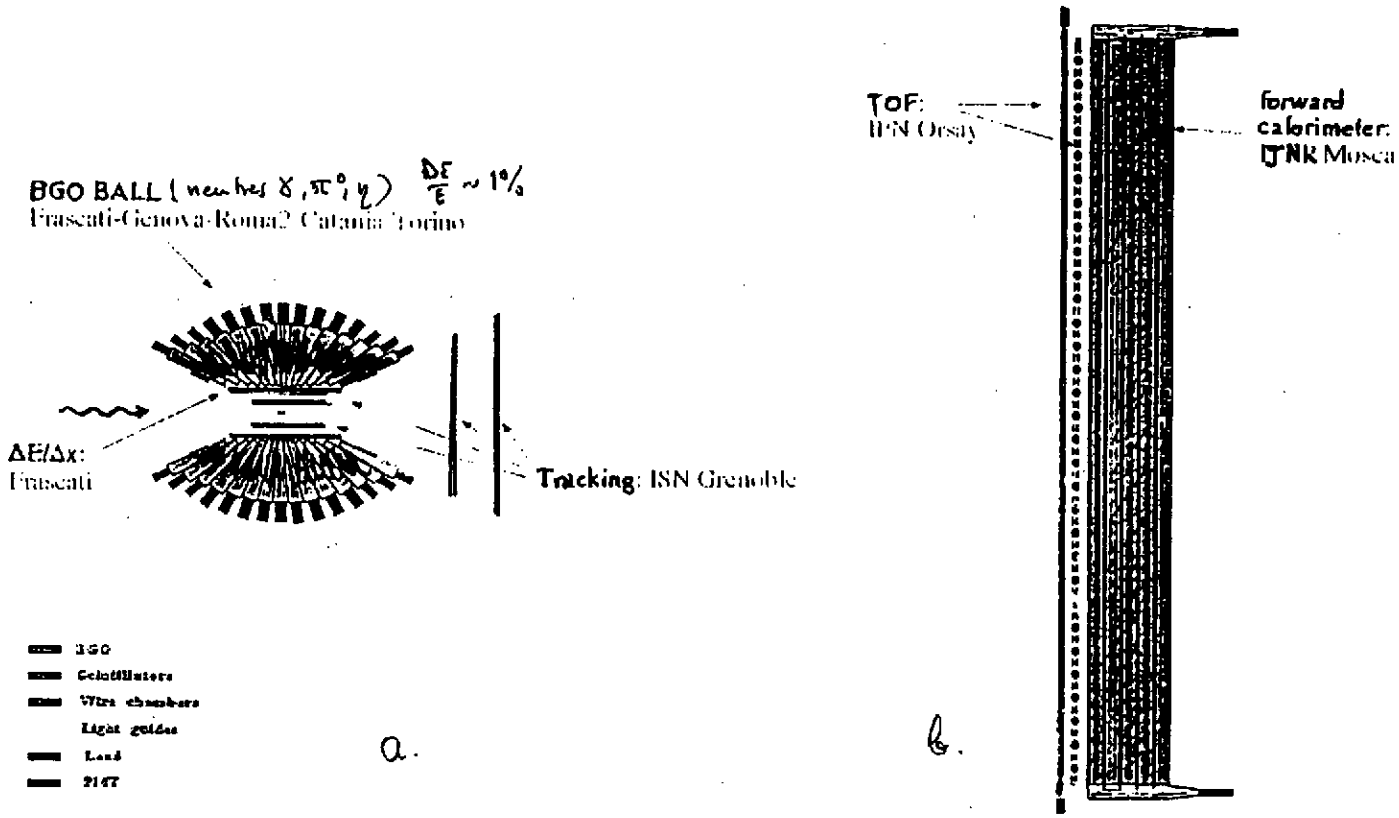



Fig.11 a) Détecteurs des produit de réaction dans le laboratoire GRAAL: calorimètre BGO pour détection des neutres, scintillateurs plastiques et chambres à fils pour particules chargées
b) Double mur de scintillateurs pour mesure de temps de vol et calorimètre additionnel

## C. Quelques résultats scientifiques et perspectives

Depuis environ 6 mois, et bien que l' ESRF n' ouvre ses lignes de lumière qu' à partir de la mi-94, des expériences ont déjà commencées. Ce chapitre traite des résultats obtenus par les techniques de microfocalisation du RSX, de diffraction de surface, de diffusion magnétique, de haute pression, de cristallographie biologique et de diffraction nucléaire ; un rappel des notions nécessaires à leur compréhension est donné dans chaque cas.

### 1. Microfocalisation et microscopie X

Comme signalé dans la partie B, une ligne est entièrement dédiée à la microfocalisation des rayons X durs, et une autre à venir à la microscopie en X de plus basse énergie.
Nous nous limiterons ici à la première, qui a produit des résultats.

#### *1.1 Principe de microfocalisation X par lentille Bragg-Fresnel*

Les aberrations optiques limitent les éléments classiques de focalisation X vers 5-10 µm. Au-delà, les zônes de Fresnel, les tubes capillaires convergents ou les lentilles Bragg-Fresnel permettent de franchir la barrière micronique. La divergence maximale pour le capillaire est l' angle de réflexion totale, soit 3 mrad à 1,5 Å; pour la lentille Bragg-Fresnel, elle est inférieur d' un ordre de grandeur.

Les développements actuels à l' ESRF concernent les lentilles de Bragg-Fresnel ou "BFL". Il s' agit d' un nouveau concept pour la focalisation et d' autres applications (ex. balayage haute fréquence) ; la limitation classique de l' optique X, inhérente à son indice très voisin de l' unité, ne peut être surmontée que par une microstructuration à 3 dimensions. Idéalement, il faudrait former des surfaces isophases (ellipsoïdes) réfléchissant sans aberration une onde sphérique issue d' un point source en un point image. La réalisation pratique de cette optique par réflexion utilise les techniques de la microélectronique (lithographie et gravure) sur un cristal parfait ou une multicouche, en superposant approximativement les plans de diffraction de Bragg et les surfaces isophases. En perspective, la microfocalisation pourrait approcher avec une bonne efficacité (≈ 30 %) le 1/100 de micromètre, même pour des rayons X durs (plusieurs dizaines de keV).

#### *1.2 Applications*

2.1 Sonde de Fluorescence submicronique (réf.1)

Cette expérience réalisée à l' ESRF montre l' intérêt d' une source brillante et paraxiale, couplée avec l' optique Bragg-Fresnel, pour l' obtention de dimensions latérales submicroniques.
L' expérience (fig. 1) utilise un faisceau monochromatique de 14,6 keV, issu d' un monochromateur $Si_{111}$ sur une source onduleur. Ce faisceau est diffracté par une BFL orientée à l' angle de Bragg correspondant et positionnée par un montage précis à 3 translations XYZ ; les caractéristiques de cette lentille linéaire - i.e. focalisant dans une dimension, gravée sur un substrat $Si_{111}$, sont indiquées sur la table 1.

Table 1 . *Caractéristiques de la lentille Bragg-Fresnel -1D*

| # 1 | $2\,r_1$ (µm) | $\Delta r_n$ (µm) | diamètre (µm) | tâche LTMH (µm) | efficacité (%) |
|---|---|---|---|---|---|
| BFL linéaire | 7,84 | 0,3 | 50 | 0,8 µm obtenu *(0,7 µm prévu)* | 30 |

A la distance focale F= 0,18 m de la lentille est placé un objet test permettant de mesurer la résolution et la sensibilité de la microsonde : il s' agit d' un masque de chrome sur verre, en bandes parallèles de 8 µm de large et 0,08 µm d' épaisseur. Une fente intermédiaire supprime la diffusion par le substrat de la BFL.
La fluorescence émise par le seuil K du chrome (5,4 keV) est enregistrée par un détecteur germanium à haute résolution en énergie placé à 90° par rapport au faisceau incident sur le chrome supporté.

La fluorescence d' une bande (fig. 2a) est obtenue par balayage du masque avec un pas de 0,3 µm. Après traitement mathématique, la taille du microfaisceau (fig. 2b) est estimée à 0,8 µm en bon accord avec la valeur attendue par l' optique de réduction (0,7 µm). Le flux calculé ( table 2) montre un accroissement important dû à la lentille, par rapport au cas du substrat $Si_{111}$ non gravé.

Table 2 . *Densité de flux comparée (BFL versus substrat $Si_{111}$ seul)*

| # 1 | flux sur l' Ech (40 * 0,8 µm$^2$) | densité de flux (par µm$^2$) | substrat Si(111) | accroissement dû à la BFL |
|---|---|---|---|---|
| BFL linéaire | $1{,}9\ 10^8$ | $5{,}8\ 10^6$ | $1{,}0\ 10^5$ | ≈ 50 |

Cette expérience permet d' espérer une limite de détection de fluorescence dans la gamme de quelques fentogrammes pour un temps d' analyse inférieur à la minute. Inversement, une connaissance détaillée du microfaisceau permettrait d' en faire un outil de diagnostic : dans le cas du masque précédent, pour déterminer sa forme et la distribution de la densité.

2.2 Diffusion aux petits angles sur le collagène (réf.2)

Une petite tâche focale est utile pour l' étude des fibres ou l' application de perturbations extérieures ; mais l' optique X classique est limitée à 10 µm. L' optique Bragg-Fresnel est adaptée pour la diffusion aux petits angles car la tâche focale apparait dans une zône non bruitée (peu de rayonnement diffusé) ; d' autres avantages sont la grande distance focale - important pour la technique elle-même comme pour placer l' échantillon dans un environnement volumineux, et la possibilité de microfocaliser des rayons X durs.

L' expérience porte sur le collagène du tendon d' une patte de dinde, et plus précisément sur les zônes intermédiaires, d' une fraction de millimètre, entre régions calcifiées et non calcifiées. Plus de 22 ordres de diffraction ont été résolus.
Le montage expérimental (fig. 3) utilise la même source et monochromateur que précédemment, pour une énergie de 10 keV. La lentille BFL (table 3) est ici à 2 dimensions (zônes de Fresnel circulaires) avec diffraction presque en retour (l' angle de Bragg pour l' harmonique 5 du substrat $Si_{111}$ à 10 keV est de 84 degrés, i.e. proche de la normale).

Table 3 . *Caractéristiques de la lentille Bragg-Fresnel 2D et du microfaisceau*

| # 2 | $2\,r_1$ (µm) | $\Delta r_n$ (µm) | ouvert. A (µm) | dist. focale F (m) | tâche focale (µm) | divergence = A/F (µrd) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| BFL circulaire | 17,5 | 0,4 | 200 | 0,62 | 2 | 0,3 |

Le détecteur, bidimensionnel, est une plaque image (cf § B-3). Plus de 22 ordres de diffraction ont été résolus (fig. 4). Un film photographique à haute résolution montre la diffusion du substrat $Si_{111}$ de la BFL (qui peut être coupé comme précédemment par des fentes placées juste en amont de l' échantilon), l' ombre portée par la BFL (ordre zéro de diffraction, faible pour une lentille de phase) et au centre de cette ombre la tâche focale de ≈ 2 µm (insert, fig. 4).
La résolution de cette caméra de diffusion aux petits angles, permet l' étude de périodicités jusqu' à :

$$\frac{1}{q_{min}} = \frac{\lambda}{4\pi(\frac{A}{F})} = \frac{1,24}{4\pi \times 310^{-4}} = 3300\,\text{Å}$$

La densité de flux monochromatique sur l' échantillon serait ≈ $10^9$ photons/sec/ µm$^2$. Par rapport à une caméra classique dotée d' un trou d' épingle, le gain est estimé à 3 ordres de grandeur.

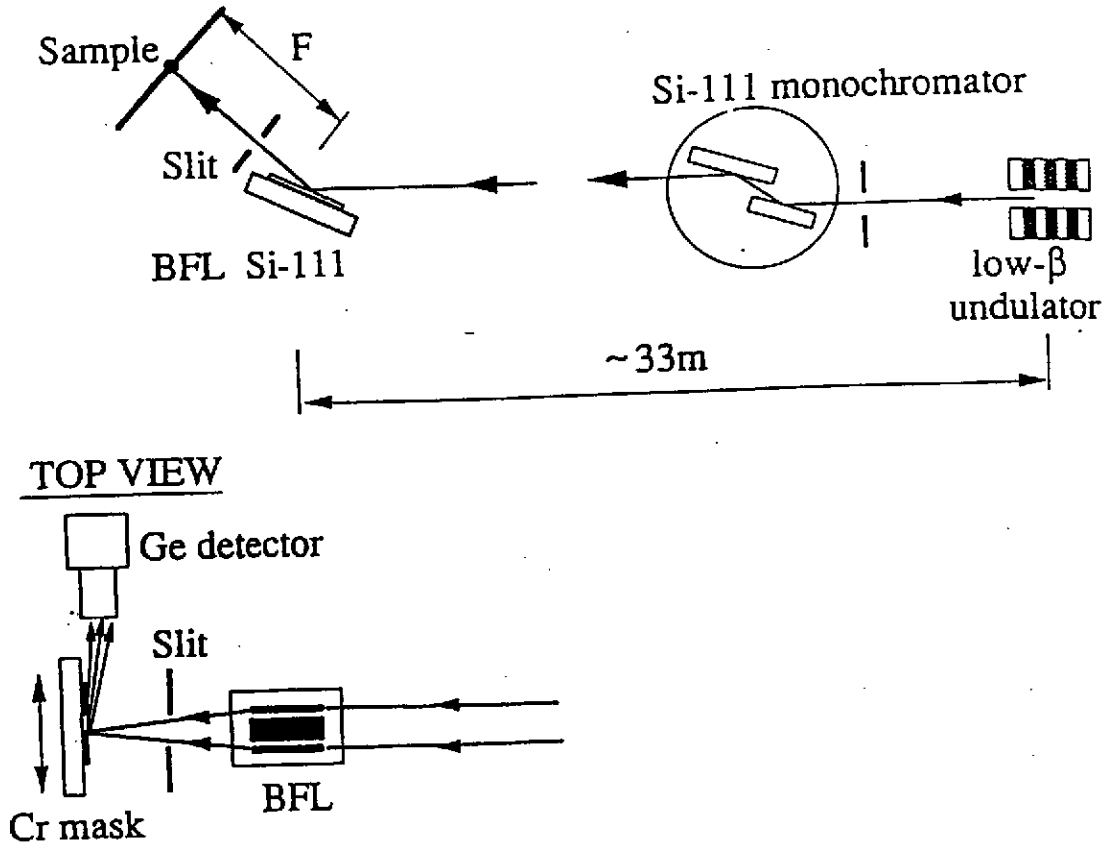



Fig.1 Montage expérimental pour la microfocalisation. La lentille Bragg-Fresnel est à une dimension, les traits gravés étant ici dans le sens du faisceau.La distance focale est. . F=0,18 m à l' énergie E= 14,6 keV.

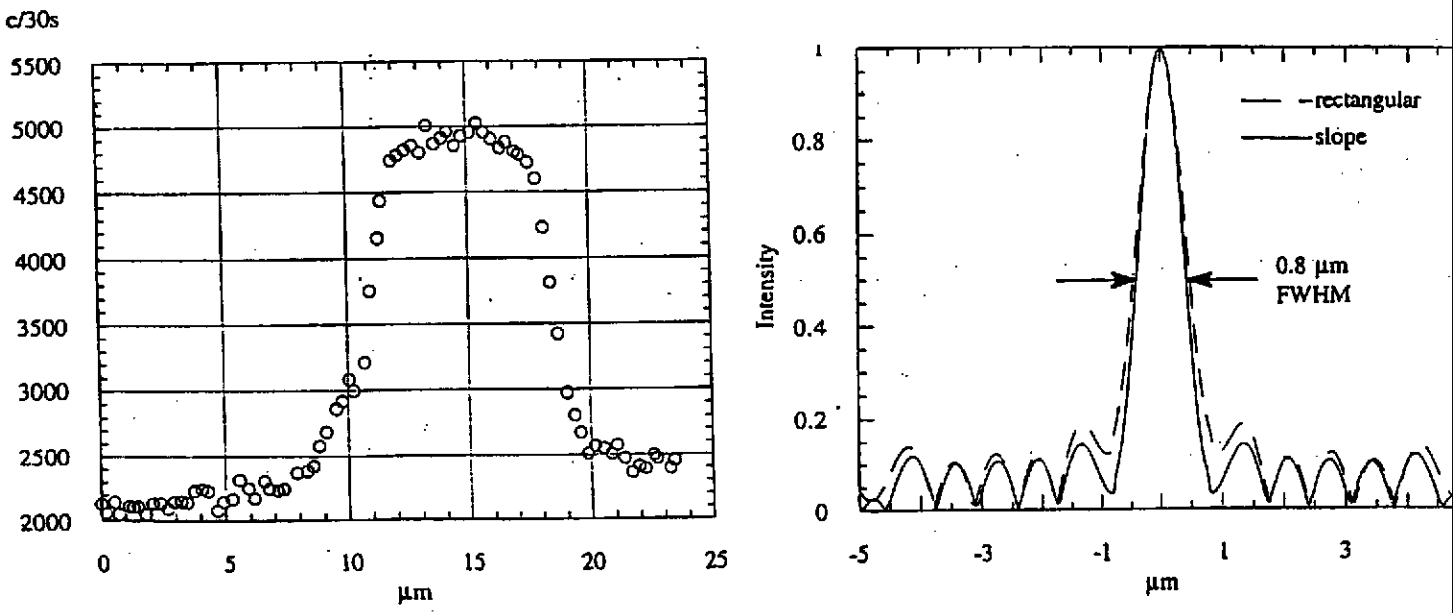



Fig. 2 a) Variation du signal de fluorescence Cr -$K_\alpha$ en fonction du balayage d' une bande de Cr de 8 µm
b) Distribution de l' intensité sur le bord droit de la bande de Cr ; le tracé en tiret correspond à un flanc rectangulaire, le tracé continu au profil calculé

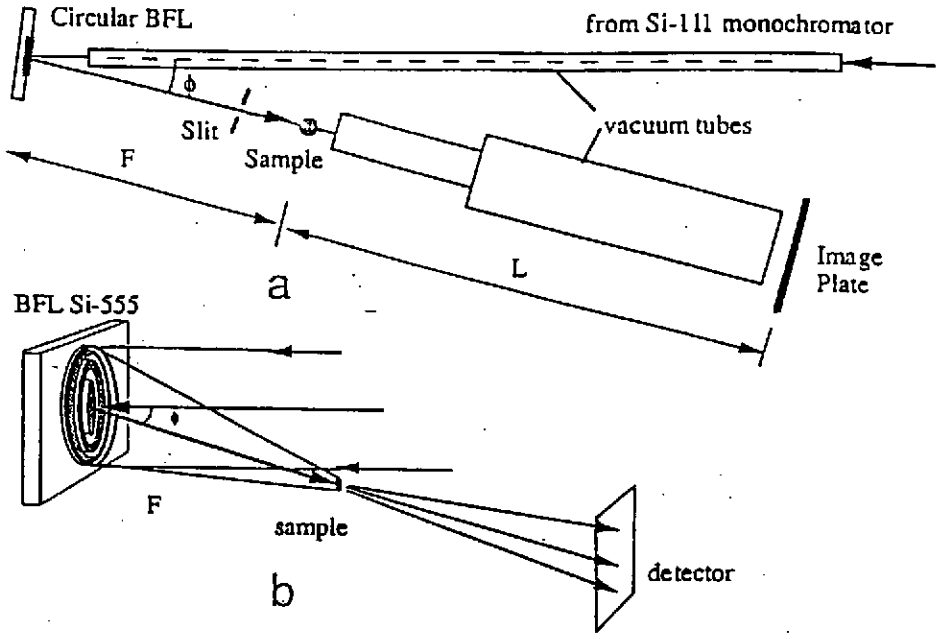



Fig. 3 a) Caméra aux petits angles basée sur une lentille Bragg-Fresnel circulaire ; la déviation par rapport à l' incidence normale est de F=6° (géométrie en retour), la distance focale F=0,62 m et la distance échantillon-détecteur L=1,3 m
b) Focalisation par la BFL

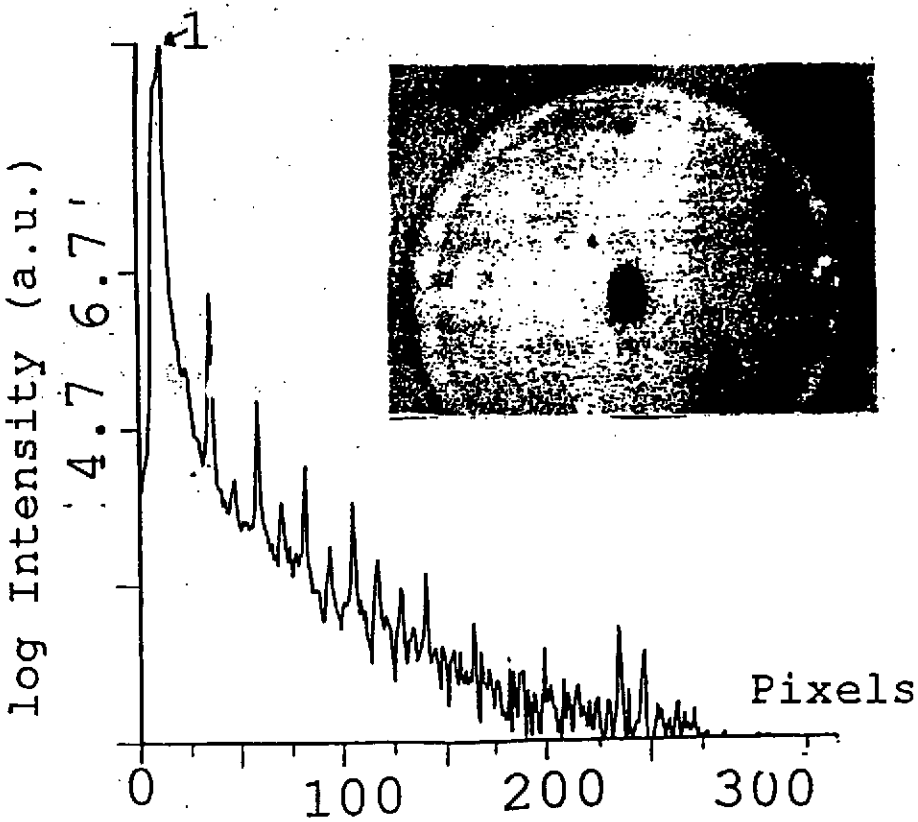



Fig. 4 Coupe radiale du diagramme de diffraction, obtenu sur une plaque image, du collagène natif. Insert : image au microscope optique du foyer image enregistré sur film à haute densité ; la tâche centrale est de 2 μm

## 2. Diffraction à l' interface eau-alcool

### 2.1 Rappel de diffraction de surface

La principale propriété de ESRF, une grande brillance en rayons X, le rend très adapté aux études de surface et d' interface (au sens d' une fraction à quelques couches atomiques).
En comparaison avec la sonde " électron", les rayons X conduisent à des résultats plus aisément interprétables car la théorie de simple diffusion suffit, alors qu' il faut tenir compte des diffusions multiples pour les électrons. Cela est dû à la faible section efficace X - atome , de l' ordre de $(Z\, r_0)^2$ (cf chap. B-2.1). Un corollaire de cette faible interaction est la profondeur de pénétration supérieure (plusieurs µm), ce qui permet d' atteindre des couches enterrées et des interfaces ; la contre-partie étant la moindre sensibilité aux atomes de la surface. Un moyen de contourner cette difficulté lorsque l' on s' intéresse aux premières monocouches de surface est d' utiliser la réflexion totale (cf chap. B-2.1) qui réduit la pénétration des rayons X à une dizaine de couches atomiques. L' angle critique est donné par :

$$\theta_c = \left( \frac{\lambda^2 \varrho r_0}{\pi} \right)^{\frac{1}{2}}$$ ; où $\varrho$ est la densité d' électrons du matériau

Dans le cas de l' eau (cf infra), l' angle utilisé est ≈ 2 mrad ( pour $\lambda \approx$ Å), et une surface étudiée de 10 mm présente au RSX une section de 10 µm. Comme de plus une mesure précise des rayons diffractés requière une faible divergence du faisceau incident, on retrouve tous les ingrédients résumés par la notion de brillance, spécifique de l' ESRF.

La diffraction de surface (cf fig.5a) est identique au cas tridimensionnel sauf que le faisceau incident fait un angle rasant par rapport à la surface. On s' intéresse donc soit à un cristal quasi-bidimensionnel, soit à une surface tronquée (réf. 3). Pour un cristal 2D, on prendra $N_3=1$ dans la formule de diffraction 3D (cf partie B-2.1); l' indice l ainsi que l' intensité deviennent continus le long de la perpendiculaire à l' interface :

$$I_{hk}^{2D}(l) = A\left|F_{hk}(l)\right|^2 N_1^2 N_2^2$$

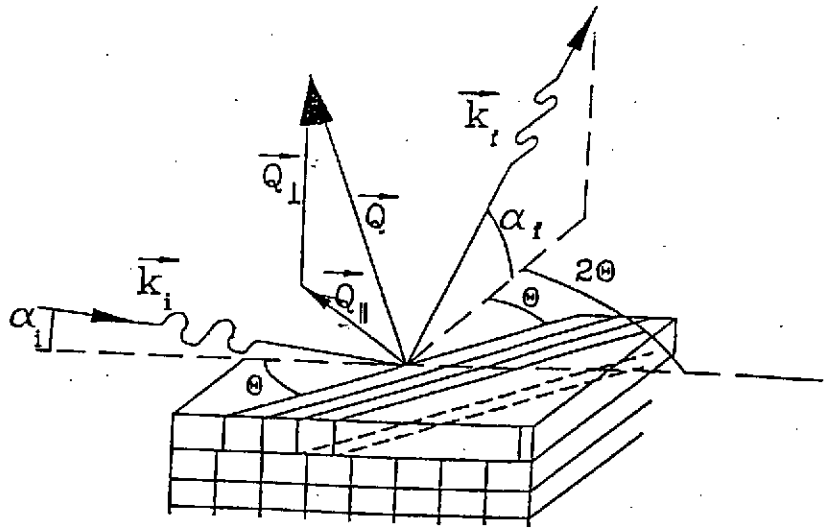
Pour un cristal tronqué, on obtient des "tiges" de Bragg (notées "CTR" sur la fig. 5b), dont l' intensité se déduit également du cas tridimensionnel et prend la forme :

$$I_{hk}^{CTR}(l) = A\left|F_{hk}(l)\right|^2 \frac{1}{2\sin^2(\pi l)} N_1^2 N_2^2$$

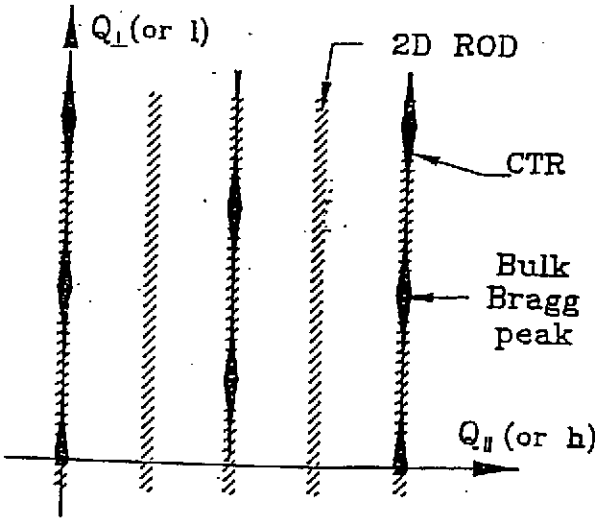
Les mesures se feront soit dans le plan de surface, soit perpendiculairement :
- si l' on détecte un rayon diffracté lui-même rasant, le moment transféré à l' échantillon $Q = k_f - k_i$ est quasi-parallèle à la surface ; en supposant les atomes de cette surface bien ordonnés on obtiendra par cette mesure l' arrangement structural correspondant.
- si au contraire le rayon est détecté hors du plan de surface et que l' on s' arrange pour varier le moment transféré le long de la normal z à la surface en conservant Q // constant (balayage d' une tige de Bragg), la variation d' intensité est liée à la coordonnée z des atomes dans la cellule unité.
Dans le cas où la surface serait imparfaitement ordonnée, l' information est moyennée en z et s' appelle "rugosité atomique". Le cas particulier de la diffraction en incidente rasante où $Q \equiv Q_\perp$ (mesure de la "réflectivité") fournit également des informations de rugosité.

### 2.2 Etude à l' ESRF de monocouches d' alcool sur l' eau (réf. 4)

Le système étudié à l' ESRF est une monocouche de molécules amphiphiles à la surface de l' eau. De telles molécules sont constituées d' une tête polaire, hydrophile, et d' une queue aliphatique hydrophobe qui forme une chaîne sortant de l' eau avec des orientations variées (fig.6). La création de liaisons entre les têtes et les molécules d' eau est favorable thermodynamiquement, par réduction de la tension superficielle.




a.




b.

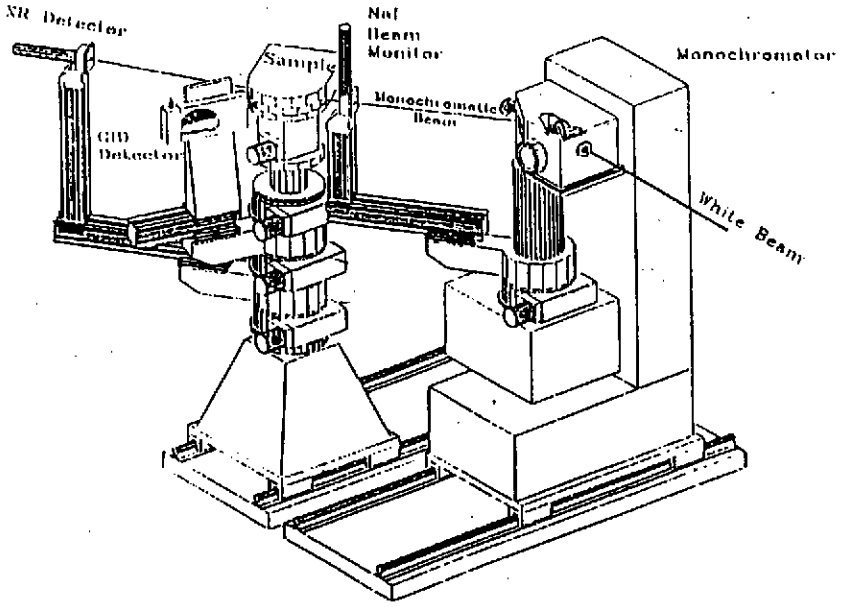
Fig. 5 a) Géométrie de la diffusion des rayons X en incidence rasante ; le photon diffusé $k_f$ peut être quelconque (angle $\alpha_f$ rasant ou non); le moment transféré $Q = k_i - k_f$ se décompose en une composante parallèle à la surface et l' autre perpendiculaire

b) Représentation de l' espace réciproque d' un cristal quasi-bidimensionnel donnant des tiges de diffraction continues (hachurées) et d' un cristal 3D tronqué par une surface, donnant des tiges de troncatures (en noir) avec des maximas aux positions de Bragg et une intensité variant rapidement entre ces maximas.

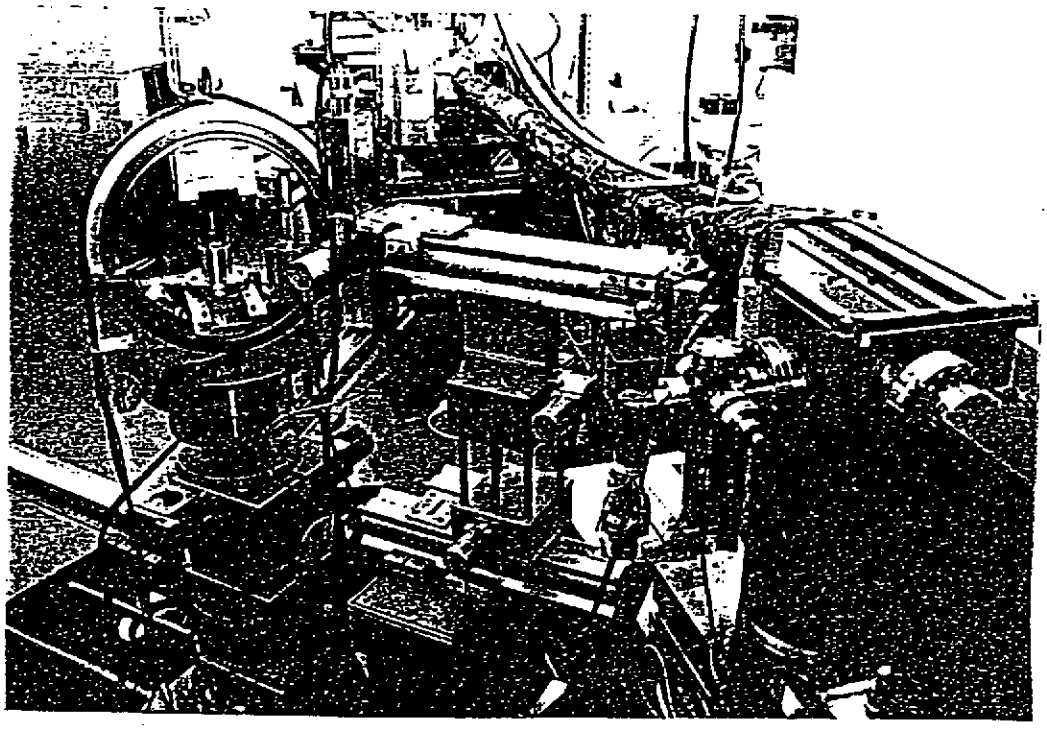
Les molécules amphiphiles - ou surfactants, présentent un intérêt pour l' étude du comportement des systèmes bidimensionnels et la croissance épitaxiale, ainsi qu' en biologie (étude des membranes, congélation d' organes).
Il s' agira ici plus précisément d' alcools $C_nH_{2n}$(la queue)-OH(la tête); ils sont peu solubles dans l' eau, de manière variable selon la longueur de la chaine carbonée.

L' expérience a été effectuée sur le montage de la fig. 7a,b (réf. 4) à partir d' une source onduleur sur l' harmonique 3 à 9 keV; cette énergie est transmise avec une bande passante plus étroite ($\approx 10^{-4}$) par une lame courbée monochromatrice en diamant $_{111}$. Cette lame est légèrement inclinée de manière à obtenir un angle d' incidence sur l' eau de 2 mrad ($\theta = 0{,}85\ \theta_C$), la section du faisceau étant de 100 µm en vertical et de 2 mm en horizontal. L' intensité incidente sur l' échantillon est contrôlée, en amont, à l' aide d'une feuille de kapton diffusant une faible part du faisceau vers un détecteur (scintillateur NaI). Les faisceaux diffractés par l' interface eau-alcool sont analysés par un détecteur solide sensible à la position en vertical, après collimation horizontale de 1,65 mrad par fentes de Soller.
La fluctuation de la topologie de surface (ilôts cristallins en mouvement lent) conduit à tourner la cuve d' eau pendant la mesure à l' échelle de la minute, pour moyenner l' information.
La fig. 8a montre pour le 1-dodécanol (alcool défini plus haut, avec n=12) la diffraction dans le plan (balayage en $Q_x$). Il s' agit du pic (1, 0) de la maille de surface, maximum en $Q_X \approx 1{,}5$ Å$^{-1}$. L' inverse de la largeur du pic $\Delta Q_x = 7{,}3\ 10^{-3}$ Å$^{-1}$ donne une longueur de cohérence - dimension sur laquelle les positions atomiques restent régulières, supérieure à 2500 Å. Le détecteur linéaire, placé à un angle horizontal $2\theta$ d' intensité maximale, permet d' enregistrer simultanément les intensités de la tige de Bragg (fig. 8b): elles sont centrées sur la position horizontale $Q_Z = 0$, ce qui signifie que les chaines sont alignées dans des plans verticaux.
Une étude systématique des différents alcools (i.e. en fonction de n) montre que l' épaisseur de la monocouche est plus mince que la longueur des chaines : soit les chaînes ne seraient pas verticales (en contradiction avec les résultats précédents), soit elles effectueraient de petits mouvements autour de la verticale.
Des mesures dans le plan à différentes températures (fig. 8c pour le dodécanol) conduisent à un fort coefficient de dilatation, proche de $10^{-5}$ K$^{-1}$ près de la température de fusion bidimensionnelle de 39°C. On peut montrer que ce résultat n' est pas mis en cause par la variation de pression superficielle avec la température. L' approche de la température de fusion se traduit par une décroissance de l' intensité. Les variations suivant le nombre n montrent que le caractère de premier ordre - un effet du premier ordre est abrupte, un effet du second ordre est plus progressif - de la transition décroît pour les chaines courtes.

Les résultats précédents et notamment l' absence de pics d' ordre supérieurs à (1, 0) permettent de décrire la maille de surface comme étant hexagonale avec, en position fluctuante autour des noeuds, des chaines en rotation autour de la verticale. De plus, les chaines longues ne seraient pas com plètement étirées.




a.



b.

Fig. 7 a) Instrumentation de la ligne Troïka à l' ESRF. Le faisceau monochromatisé est en incidence rasante sur l' interface eau-alcool. La détection de l' intensité le long d' une tige de Bragg est obtenue par un détecteur linéaire.
b) photographie correspondante du monochromateur et du diffractomètre.

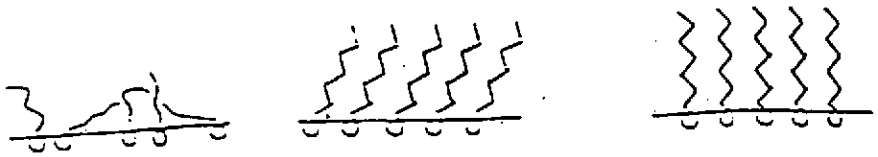
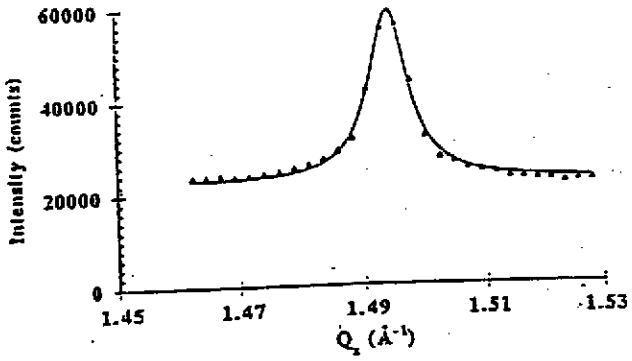
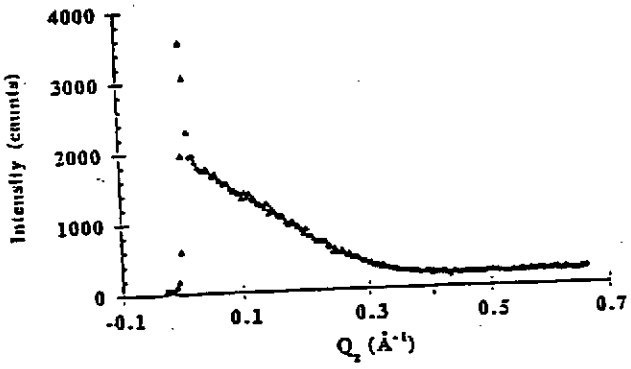


Fig. 6 Molécules amphiphiles à la surface de l' eau. Le premier arrangement, désordonné, est une phase "liquide" ; les 2 derniers sont des phases "solides"

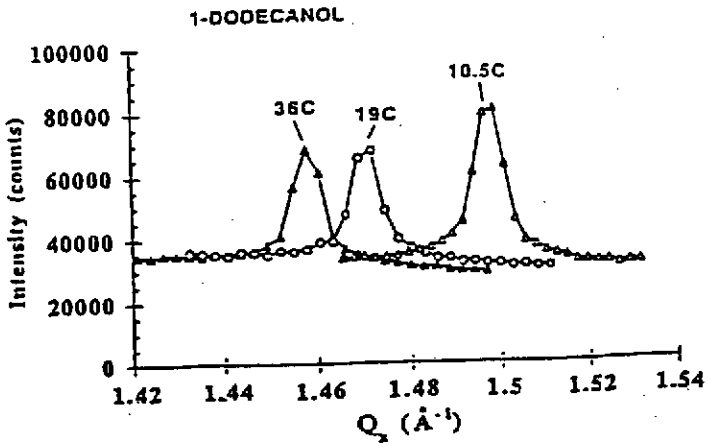
Fig. 8 a) Diffractogramme de poudre d'une monocouche de 1-dodécanol à 10,5°C en fonction du moment parallèle $Q_x$




b) Tige de Bragg enregistrée, pour la valeur de Qx correspondant au pic précédent, avec un détecteur linéaire




c) Evolution des diffractogrammes avec la température, vers $T_{fusion\ 2D}$



# 3. Diffusion magnétique résonante

## *3.1 Rayonnement X polarisé*

La polarisation est une caractéristique importante de l' ESRF, dont les sources sont de haute pureté en polarisation, tant au niveau des aimants de déviation que des dispositifs d' insertion. On dispose de polarisation linéaire d' orientation variée, de polarisation circulaire des deux sens et plus généralement d' une polarisation variable. Une optique nouvelle permet de conserver cette polarisation jusqu' à l' échantillon sans trop sacrifier le flux (cf notamment la ligne BL6 "polarisation circulaire").
Les techniques concernées, outre la diffraction magnétique décrite ici, sont les spectroscopies (photoémission, absorption X) et la diffusion inélastique Compton. Les applications du dichroïsme couvrent l' étude des molécules en chimie (chiralité etc.), du magnétisme en physique, ou de l' étrangeté en physique nucléaire (cf C-3).

## *3.2 Diffraction magnétique* (réf.5)

L' approximation relativiste faible de l' électrodynamique quantique s' applique dans la gamme de l' Å, puisque : $\hbar\omega(12\,\mathrm{keV}) << m_e c^2 (511\,\mathrm{keV})$
Les photons étant décrits par un potentiel vecteur A, l' interaction X-spin $e^-$ s' écrit :

$$H = \underbrace{\frac{e^2}{m_e c^2}\sum_j A^2(r_j)}_{\textit{Thompson}} - \underbrace{\frac{e}{m_e c}\sum_j A(r_j)\cdot p_j}_{\textit{absorption-émission (1er ordre) résonance anomale (2ème ordre)}}$$

$$\underbrace{-\frac{e\hbar}{m_e c}\sum_j s_j[\nabla\wedge A(r_j)]}_{\textit{couplage spin-photon}} - \frac{e^2\hbar}{2(m_e c^2)^2}\sum_j s_j[\dot{A}(r_j)\wedge A(r_j)]$$

<------- couplage spin-photon ---------->

Le photon (moment **k**, polarisation ε) est diffusé en (**k'**, ε'), le vecteur de diffusion étant **K=k-k'**. On se limitera ici au cas élastique (k=k') et dans un premier temps hors résonance ($\hbar\omega >> E_n - E_0$, écart entre niveaux électroniques).
La section efficace de diffusion du photon X par les électrons est alors :

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = r_0^2 \langle 0|\sum_j e^{iK\cdot r_j}|0\rangle \varepsilon'^{*}\cdot\varepsilon$$

$$-i\frac{\hbar\omega}{m_e c^2}\langle 0|\sum_j e^{iK\cdot r_j}(\underbrace{i\frac{K\wedge p_j}{\hbar k^2}\cdot a}_{\textit{terme orbital}} + \underbrace{s_j\cdot b}_{\textit{terme de spin}}|0\rangle|^2\delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_{k'})$$

où : $a = \varepsilon'^{*}\wedge\varepsilon$ ; $b = \varepsilon'^{*}\cdot\varepsilon + (k'\wedge\varepsilon'^{*})(k'\wedge\varepsilon) - (k\wedge\varepsilon)(k\wedge\varepsilon'^{*})$

Le coefficient $r_0^2$ fixe l' amplitude . Le premier terme, tranformée de Fourier de la charge électronique, est la diffusion de Thompson (par tous les électrons), ou diffusion de charge. Le second terme contient l' information magnétique. Il est déphasé de $\pi/2$ , et doublement réduit par rapport au premier terme :

- dans le rapport $\left(\frac{\hbar\omega}{m_e c^2}\right)^2 \approx 2500$ (à 12 keV)

A noter qu' un même facteur existe entre la diffusion magnétique aux rayons X et aux neutrons ; mais ceci est compensé par le fait que le flux RSX est très supérieur à celui des neutrons ; de plus, l' ESRF permet une meilleure résolution en moment transféré K.

- seuls les électrons non appariés (couches incomplètes d, f ) contribuent.

Dans les composés antiferromagnétiques, la maille magnétique est différente de la maille cristalllographique ; on peut donc observer de nouveaux pics à basse température - uniquement dûs au magnétisme, en dépit de leur faible intensité.

Pour les ferromagnétiques, on peut utiliser le terme croisé charge-spin, moins petit et non nul en polarisation *circulaire* . Ce terme change de signe quand on change la direction du champ magnétique appliqué ; l' information magnétique est alors contenu dans le rapport d' asymétrie.

**Diffusion d' échange résonnante**

Le deuxième terme du hamiltonien donne une contribution du second ordre qui devient importante lorsque : $\hbar\omega \approx E_n - E_0$. Cette résonance (diffusion anomale) s' écrit :

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega}\Big|_{rés} = r_0^2 \left| \sum_{ij}\sum_{n} \frac{\langle 0|\frac{\varepsilon'\cdot p_i}{\hbar} e^{-ik'\cdot r_i}|n\rangle\langle n|\frac{\varepsilon\cdot p_j}{\hbar} e^{ik\cdot r_j}|0\rangle}{E_0 - E_n + \hbar\omega - \iota\frac{\Gamma_n}{2}} \right|^2 \cdot\delta(\hbar\omega_k - \hbar\omega_{k'})$$

Seul ce terme donne une variation importante près d' un seuil.

Un exemple est la transition : $2p_{1/2}$ --> bande $(d\uparrow, d\downarrow)$. On peut montrer que, lorsque le photon X est diffusé avec passage d' une polarisation selon un axe x à une polarisation selon un axe y, l' intensité est $\propto (\varrho\uparrow - \varrho\downarrow)$ i.e. à la densité d' aimantation. Cette intensité est en $\left(\frac{Z_{mag}}{Z}\right)^2$ par rapport à la diffusion de charge, $Z_{mag}$ étant le nombre d' électrons magnétiques.

## *3.3 Diffraction magnétique sur l' holmium* (réf. 6)

L' expérience à l' ESRF a eu lieu sur la ligne Troïka (BL 9).
Le RSX reste dans le plan horizontal; le faisceau onduleur traverse (diffraction de Laue) un cristal de diamant $C_{111}$ en coupe asymétrique et le rayon diffracté est reçu sur un alliage magnétique Ho-Tb monocristallin (dont l' axe cristallographique c de la structure hexagonale est horizontal et normal à la surface) . L' ajustement de l' échantillon est fait par un cercle d' Euler ; un cryostat displex permet de varier la température de l' échantillon.

L' objectif de l' expérience était de comparer les comportements magnétiques individuels des atomes d' holmium (dont le métal s' ordonne hélimagnétiquement à basse température) et de terbium (ordre ferromagnétique du métal). Cependant, aucune différence de comportement n' a été observée : en particulier, la largeur des pics étaient comparables (même longueur de corrélation), alors qu' on aurait pu imaginer un ordre magnétique à longue distance différent en raison des tendances magnétiques différentes des deucx atomes constitutifs de l' alliage.

Cependant, un autre effet, inattendu, a été observé. La fig. 9 montre l'intensité des satellites magnétiques 004- et 004+ (du pic nucléaire 004) en fonction de la température. On observe selon la direction d' évolution de la température (en montant ou en descendant) une très forte hystérésis, au voisinage de la transition de phase ferromagnétique -hélimagnétique du premier ordre (78 K).

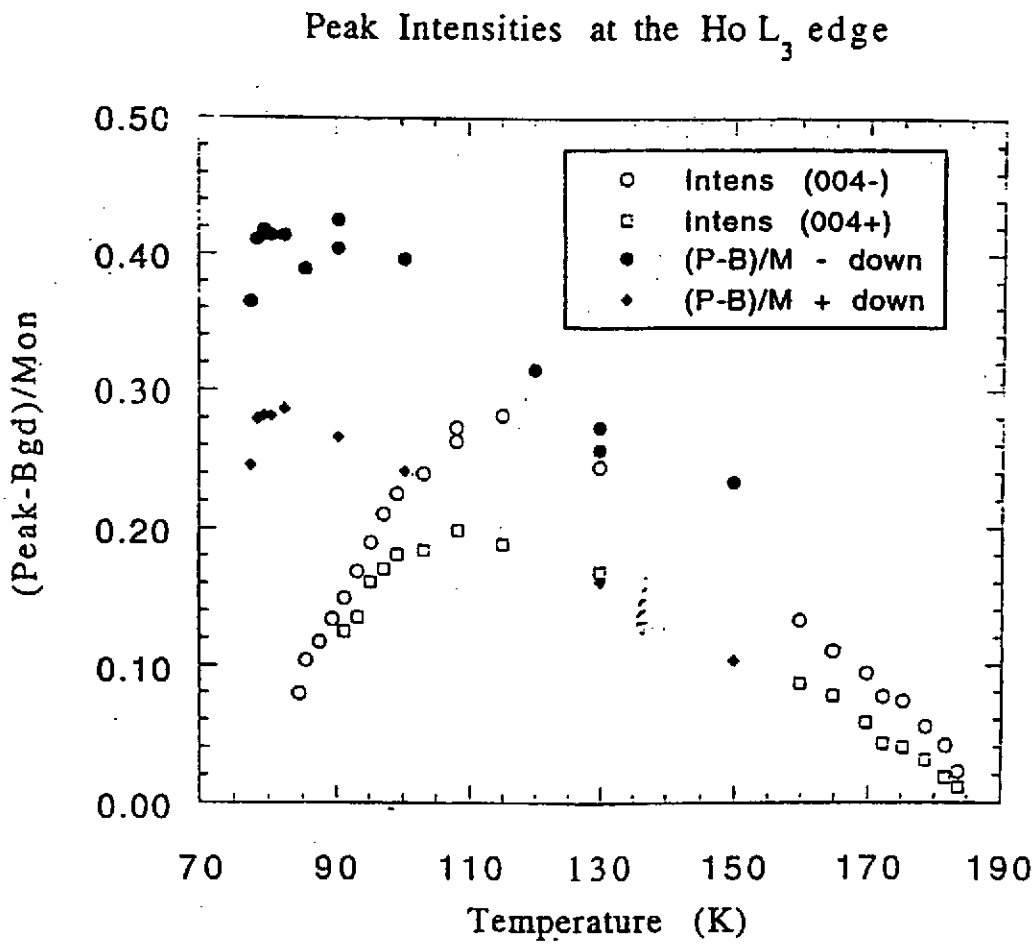



Fig. 9 Hystérésis de l' intensité des satellites magnétiques dans un alliage Ho-Tb, près de la transition de phase du premier ordre ferromagnétique- hélimagnétique ($T_c$ =78 K)

# 4. Sciences de la Terre (réf. 7)

## 4.1 Physique terrestre et hautes pressions

Sous sa croûte, la Terre est divisé en plusieurs couches :
- le coeur *interne* solide (alliage Fe-Ni solide) et *externe* liquide (composés fer-soufre)
- les manteaux *(inférieur et supérieur)* séparés par une zône de transition, avec des silicates solides.

Le problème fondamental, à l' origine du comportement de la Terre, est de déterminer la composition chimique et la structure cristalline des substance susceptibles d' exister à différentes profondeurs et sur toute la gamme de pression et température existante, soit :

$1 < P < 3{,}6\ 10^6$ atm ; ambiante $< T < 6000$ degrés

i.e. le volume moléculaire V (P,T) de tous les matériaux pouvant rentrer dans la composition terrestre. Par exemple, le silicate peroskite de Mg, qui constitue peut-être 60% de la terre, est-il orthorhombique, tétragonal ou cubique à haute pression et haute température ?

L' ESRF est particulièrement adapté à de telles études de part sa brillance, en concentrant un flux important de rayons X durs sur un petit échantillon. En effet, on ne peut obtenir de très hautes pressions (jusqu' au Mégabar et au-delà) que sur des surfaces ≈ 10 µm, et il faut également que les rayons X traversent l' enclume enserrant l' échantillon. De plus, même pour un échantillon moins petit, un microfaisceau permet de diminuer le bruit de fond (diffusions par l' environnement) et de ne sonder que la partie homogène en pression. La faible divergence RSX est de plus nécessaire pour définir avec précision les angles de diffusion. Enfin, la forte intensité permet l' étude des éléments légers.

Une enclume diamant ("DAC") adaptée aux mesures est représentée sur la figure 10a ; le deux diamants dans la presse sont taillés avec une facette plane, et un angle de coupe autour de cette facette choisie pour relaxer les contraintes. Le DAC autorise des pressions supérieures au Mégabar ; d' autres systèmes très récents (fig. 10b) permettent au contraire l' étude d' échantillons moins petits (> 1 $mm^3$) jusqu' à des pressions de 0,1 Mbar (= 10 GPa), dès lors que l' on dispose de rayons X supérieurs à 50 keV.

Dans ce contexte, les premières expériences à l'ESRF ont porté sur des mesures à haute température et / ou haute pression.

## 4.2 Péroskite CaTiO3 à haute température

Le coefficient de dilatation thermique de la péroskite CaTiO3, placée dans un four, a été déterminé à l' ESRF jusqu' à 1700°C.
A partir du faiceau blanc de haute énergie issu d' un wiggler, l' échantillon sous forme de poudre diffracte chaque énergie dans une direction donnée : c' est la méthode "dispersive". La fraction dure de ces faisceaux diffractés est détectée par un Germanium à haute résolution, permettant d' enregistrer leur spectre en énergie.

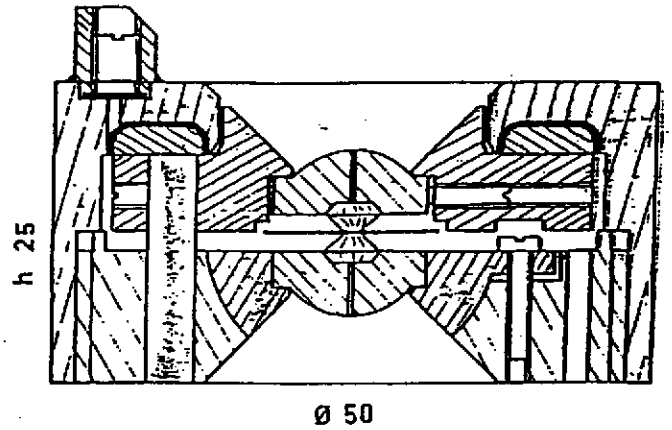
## 4.3 Glace sous pression (" voir l' hydrogène ? ")

La *liaison hydrogène*, centrale pour la vie, présente de fortes interactions electrostatiques accompagnées d' interactions répulsives mal comprises - dont la meilleure étude est d' appliquer une pression.
Le diagramme de phase de la glace (fig. 11) présente de nombreuses phases solides jusqu' à plusieurs dizaines de GPa et quelques centaines de degrés. Les phases de hautes pression sont encore mal connues : le degré d' ordre (ou de désordre) des protons dépend de la phase, et une hypothèse est que le passage de la glace VIII (proton ordonné) vers la glace X (qui serait symétrique) se ferait via la phase VII (désordre des protons). Il s' agit donc "traquer" les électrons de l' hydrogène dans le réseau des oxygènes.

La glace a été l' apanage jusqu' ici de la cristallographie neutronique, car le neutron voit le proton ; mais les neutrons sont limités en pression (vers quelques GPa) en raison du grand volume d' échantillon nécessaire.

Les mesures à l' ESRF ont été faites avec faiceau monochromatique de 18 keV, issu d' un onduleur ; la glace était dans une enclume DAC à une pression de 4,4 GPa (glace VII). L' image 12a est obtenu à l' aide d' un détecteur bidimensionnel : après intégration en un spectre à une dimension, on observe des raies de diffraction (cf fig. 12b et son encart) correspondant à une très faible densité électronique impliquée dans la liaison du proton H aux atomes d' oxygène (le long de la diagonale de la maille cubique corps centrée du réseau des oxygènes).

a.




b.

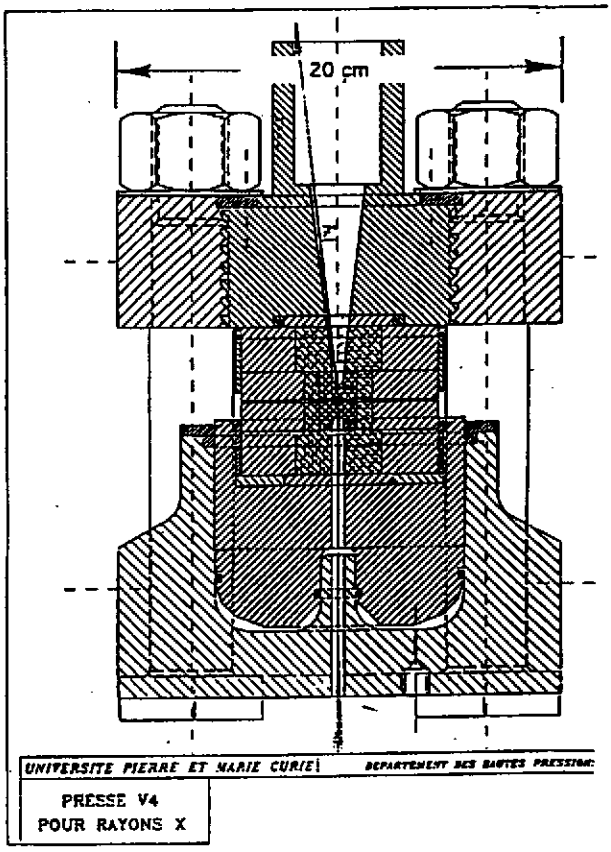



Fig. 10 a) Cellule diamant (Diamond Anvil Cell ou "DAC"). Le DAC permet de très hautes pressions (gamme du Mégabar) sur des échantillons très petits insérés entre 2 diamants, eux-même placés dans une presse.
b) Cellule originale (Univ. P&M Curie) de poids modeste (≈50 kg) permettant l' étude d' "gros" échantillons (> 1 mm³), optimisée pour l' ESRF

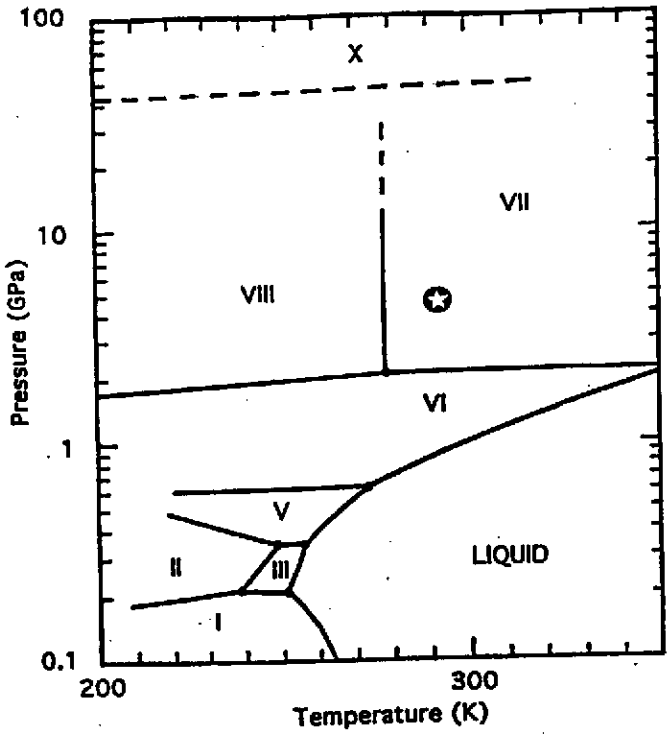
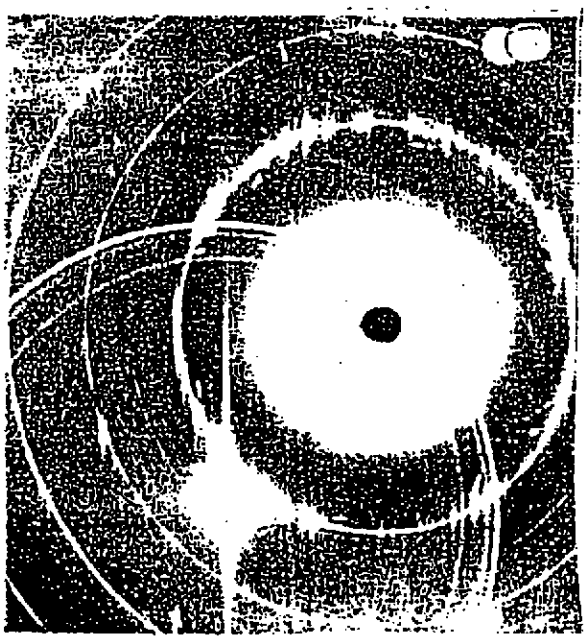
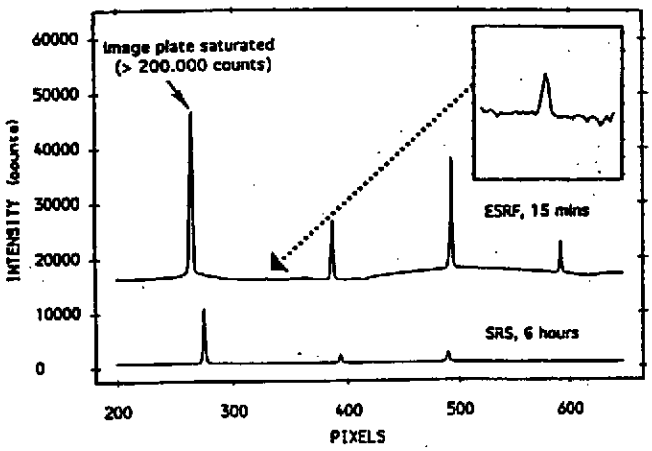



Fig. 11 Diagramme (P,T) de la glace. 12 phases sont inventoriées, la phase X est seulement prédite L' ESRF autorise l' étude des plus hautes pressions.



a.




b.

Fig. 12 a) Diagramme de diffraction de la glace à 44 kbar sur détecteur 2D. L' anneau ténu entre les anneaux brillants fournit des informations sur l' ordred des hydrogènes dans le réseau des oxygènes.
b) Profil intégré radialement. Le petit pic (insert) correspond à la liaison hydrogène.

# 5. Cristallographie macromoléculaire

## 5.1 Spécificité de l' ESRF

Les spectres de diffraction X des cristaux macromoléculaires comprennent typiquement plusieurs milliers d' intensités de réflexions uniques; chacune dépend des paramètres atomiques de *tous* les atomes dans la structure cristalline : d' où la puissance et en même temps la difficulté de la méthode.
L' intérêt du rayonnement synchrotron est triple :
1. Collection plus rapide des données ; étude de très petits cristaux et de cristaux à très grande maille
2. La cristallographie résolue en temps, basée sur le spectre continu et la structure temporelle (réactions enzymatiques et processus photochimiques)
3. La méthode MAD, décrite plus bas ; elle permet la détermination directe des structures cristallines par des mesures de diffraction anomale à plusieurs longueurs d' ondes.

L' ESRF par sa spécificité (haute brillance et haute résolution spectrale dans la gamme de diffraction) et ses qualités prouvées (grande stabilité du faisceau) est la machine adaptée pour les aspects les plus en pointe. Des expériences conduites à l' ESRF, encore en cours d' analyse, permettent d' illustrer les points 1 et 3.

## 5.2 Séryl-tRNA synthétase

Cette protéine intervient comme inhibiteur dans la synthèse des protéines en plaçant un acide aminé (sérine) sur l' ARN de transfert. Elle a été étudiée sur un onduleur avec un faisceau monochromatique ($Si_{220}$ et E ≈ 15 keV) par la méthode d' oscillation. Cette méthode classique, applicable aux monocristaux, a pour but de déterminer les vecteurs de la maille cristallographique et de trouver - au moins partiellement, les indices (h,k,l) des pics du diagramme de diffraction. Des oscillations (rotations) du cristal fournissent l' orientation des axes cristallographiques et les paramètres de maille. La maille étudiée ici a une grande dimension ( ≈ 100 Å) et une faible symétrie ; de l' ordre de $10^5$ réflexions ont été enregistrées pour cette synthétase Seryl-tRNA (*Thermus thermophilus* ) co-cristallisée avec un composé d' adénosine. La fig. 13 montre la différence des densités, correspondant à la protéine seule. Il est possible d' observer de haut en bas, les parties adénosine, ribose, sulfamoyl et sérine.

## 5.3 La méthode MAD

La dépendence structurale de l' intensité d' une réflexion, identifiée par les indices de Miller (h,k,l), est proportionnelle au module carré du facteur de structure (cf B-2.1) :

$$I(\mathbf{h}) \propto |F(\mathbf{h})|^2 \qquad (1)$$

avec

$$F(\mathbf{h}) = \sum_{j \text{ unit cell}} f_j \exp\left(i\ \mathbf{h}.\mathbf{r}_j\right) \qquad (2)$$

Le facteur de diffusion (ou de forme) atomique $f_j$ décrit la diffusion cohérente d' un atome isolé relativement à la diffusion Thompson de l' électron libre. Ce facteur inclut une composante dépendant strictement de la distribution électronique dans l' atome et une autre dûe à la transition d' un état lié vers le continuum ; cette dernière, dite "anomale", dépend à son tour de l' énergie du photon X.

Au total, le facteur de diffusion atomique s' écrit :

$$f = f^\circ + |f^\Delta|\ e^{i\delta} = f^\circ + f'(E) + i\, f''(E) \qquad (3)$$

Plusieurs moyens permettent d' évaluer f'(E) et f''(E).
En substituant l' eq. 3 dans l' eq.2 et en élevant au carré (puisque la mesure porte sur l' intensité), on arrive pour un seul type de diffuseur anomal à une expression où se séparent les facteurs connus dépendant de E des variables inconnues :

$$|^{\lambda}F(\pm\mathbf{h})|^2 = |^0F_T|^2 + a(\lambda)|^0F_A|^2 + b(\lambda)|^0F_T||^0F_A|cos(^0\varphi_T - ^0\varphi_A) \pm c(\lambda)|^0F_T||^0F_A|sin(^0\varphi_T - ^0\varphi_A) \quad (4)$$

où : $a(\lambda) = (f'^2+f''^2) / f^{o2}$, $b(\lambda) = 2 f'/ f^o$, $c(l) = 2 f''/ f^o$ (5)

On peut comprendre cette formule par un graphique dans le plan complexe (fig. 14). L' intensité mesurée est alors le module de la somme vectorielle des facteurs de structure de la matrice - moins le diffuseur anomal, et de ce dernier.

Les réflexions **h** et - **h** (paires de Friedel) ont des intensités identiques en l' absence de diffusion anomale. Les informations de phase sont contenues de façon complémentaires dans les 2 différences :

$$\Delta F\pm h = |\,^{\lambda}F(\mathbf{h})| - |\,^{\lambda}F(-\mathbf{h})| \quad (6)$$

$$\Delta F_{\Delta\lambda} = \overline{|^{\lambda}_{i}F|} - \overline{|^{\lambda}_{j}F|}\text{, avec } \overline{|^{\lambda}_{i}F|} = \frac{1}{2}[|^{\lambda}F(\mathbf{h})| - |^{\lambda}F(-\mathbf{h})|] \quad (7)$$

Les mesures de diffraction à différentes énergies et pour des paires ± **h** sont chacunes décrites sous la forme de l' eq.4. Ce système d' équations permet alors d' obtenir les différents paramètres inconnus $|^0F_T|$, $|^0F_A|$ et $\Delta\phi = {}^0\phi_T - {}^0\phi_A$. Après quelques développements techniques, on en déduit la *phase* recherchée ${}^0\phi_T$.
Les biomolécules susceptibles d' être étudiées à l' ESRF et particulièrement par la méthode MAD sont indiquées sur le tableau 4.

Table 4 . *Biomolécules et atomes "lourds" correspondants (seuils en Å)*

| | |
|---|---|
| Métalloprotéines | Fe(K-1,54), Cu (K-1,38), Zn(K-1,28), Mn(K-1,89),S(K-5,02) |
| Remplacement métal | Hg(1,01), Ho(L-1,54),Tb(L-1,65),Yb(L-1,39) |
| Incorporation | Se(K-0,98), Br(0,92) |
| Dérivées atome lourd | Pt(L-1,07), Au(L-1,01), Hg(L-1,01), U(L-0,72) |

## *5.4 MAD à l' ESRF* (réf. 9)

La méthode MAD a été utilisée sur une macromolécule recourbée N-Cadhérine, qui permet d' accrocher 2 cellules entre elles. C' est un amino-acide de la membrane cellulaire, la portion étudiée étant celle qui émerge de la cellule.
L' atome de référence était $Yb^{3+}$ (substitué au calcium de la macromolécule) dont le seuil $L_{III}$ est à 8,948 keV. Les harmoniques 2 et 3 d' un onduleur (gaps respectifs de 27 et 21,6 mm) ont été utilisés pour plusieurs énergies voisines du seuil. La calibration de l' énergie issue du cristal monochromateur $Si_{220}$ - dont les harmoniques sont éliminés par un miroir intermédiaire, est obtenue par des scans en fluorescence du seuil sur une feuille d' un composé connu d' Yb (fig. 15).
Un scan azimuthal est effectué sur 1,9 degré (en une minute) et ceci pour les différentes énergies sélectionnées ; puis un autre scan azimuthal est lancé etc., la rotation totale étant ≈ 30°.
Le détecteur (plaque image) est choisi pour une résolution de 2,5 Å, de façon à viser une résolution cristallographique ≈ 3 Å.
L' analyse (cf § 5.3) est en cours (la détermination complète de la structure d' une protéine prend du temps). cependant, les conditions expérimentales lors des mesures :
- fluctuations de la position du seuil de ± 0,2 eV
- impact variable en hauteur ( ≈ 0,1 mm) sur l' échantillon (dû au monochromateur)
suffisent pour dire que la méthode MAD est correctement utilisable à l' ESRF.

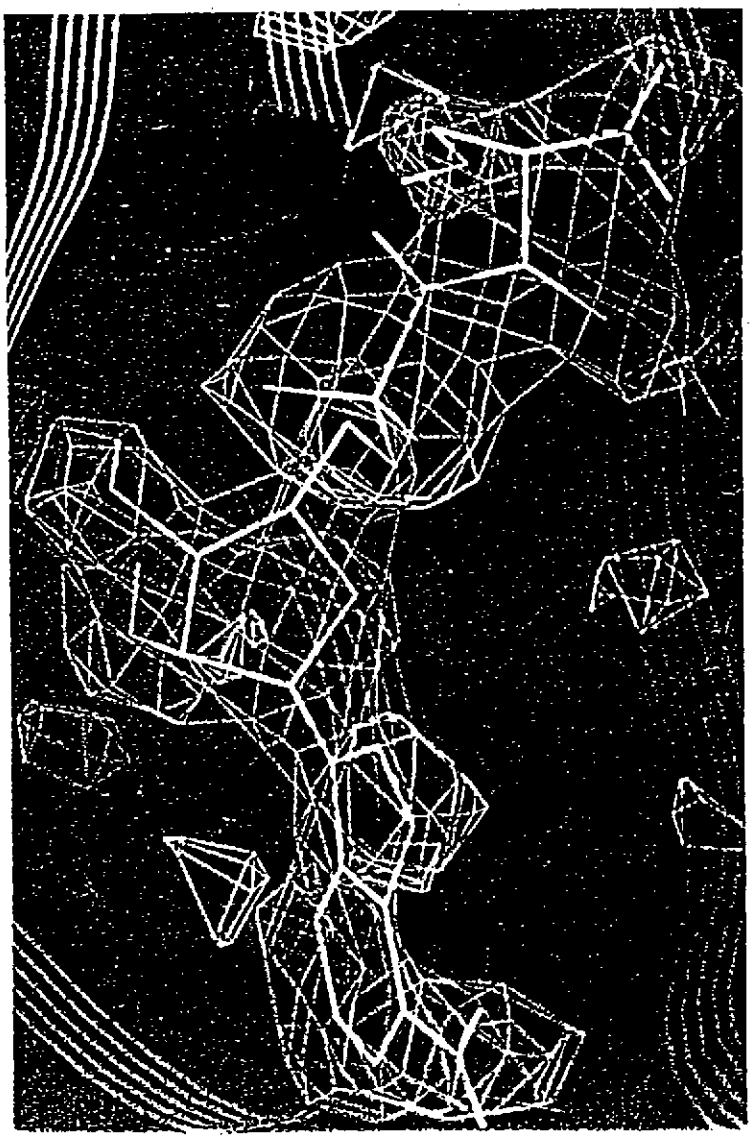


Fig. 13 Structure cristallographique de la protéine Seryl-tRNA synthétase obtenue à l' ESRF

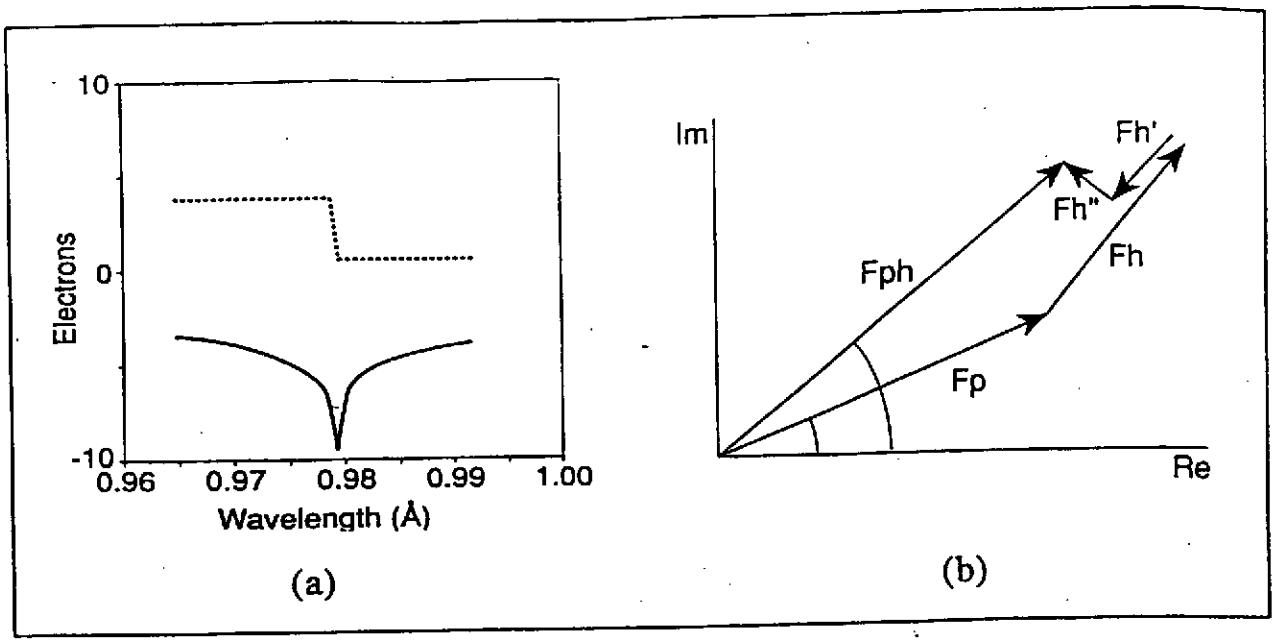



Fig. 14 Variation schématique des composantes f' (dispersion et f" (absorption) du facteur de forme atomique près d' un seuil d' absorption (cf texte). La contribution des diffuseurs lourds varie donc près des seuils : le diagramme dans le plan complexe traduit l' éq. (4), l' intensité mesurée correspondant à la somme vectorielle de la diffusion de la matrice et des composantes de l' atome lourd.

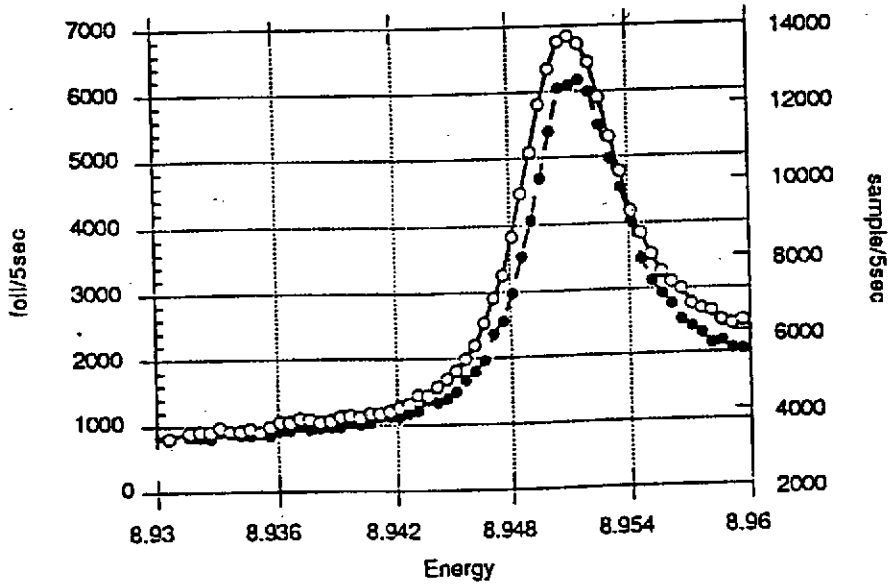



Fig. 15 Fluorescence du seuil de Yb dans la macromolécule N-Cadhérine (ponits blancs) et dans la feuille de calibration d' énergie. L' excellente stabilité du faisceau de l' ESRF est cruciale pour la méthode MAD.

# 6. Diffraction nucléaire (réf. 10)

## 6.1 Monochromatisation nucléaire

Pour les isotopes dont le premier état excité est de basse énergie, il est possible d' utiliser le RSX pour les exciter. Suite aux expériences pionnières de la décennie précédente, le haut flux de rayons X jusqu' à 100 keV et la collimation des onduleurs de l' ESRF rend possible l' utilisation de cette résonance "gamma" nucléaire. On obtient ainsi une quasi-onde plane, bien supérieure à celle fournie par la monochromatisation électronique usuelle (table 4) :

*Table 4. Comparaison des monochrmations électronique et nucléaire*

| Type de monochromatisation | Transition impliquée | Bande spectrale ΔE/E |
|---|---|---|
| électronique | électrons de valence --> conduction (continuum) | $10^{-4}$ <---> $10^{-7}$ |
| nucléaire | état de spin fondamental --> excité à très faible largeur | $10^{-11}$ <---> $10^{-14}$ |

Le processus qui conduit ici à la monochromatisation est du second ordre :
1. l' impulsion RSX crée une excitation nucléaire collective (exciton nucléaire), superposition des états d'un noyau excité et des autres au repos
2. la décroissance radiative, initialement accélérée par cette cohérence, est ensuite modulée par les clivages hyperfins ("battements quantiques").

La réponse en énergie et la réponse temporelles sont donc plus complexes que pour le monochromateur électronique. Dans le cas du $Fer^{57}$ (cf table 5), on pourrait varier la largeur de raie dans la gamme 5 neV <---> 1 μeV , selon que l' on filtre une seule raie hyperfine ou que l' on utilise des filtres à plus large bande (monocristaux, absorbeurs, films antiréflexion en incidence rasante), multicouches résonantes, zônes de Fresnel).

*Table 5. Données sur quelques isotopes usuels et le flux maximal à l' ESRF*

| Isotope | énergie du niveau excité (keV) | largeur $\Gamma_0$ du niveau excité (neV) | bande spectrale ultime ΔE/E | flux dans $\Gamma_0$ (kHz) |
|---|---|---|---|---|
| $Fer^{57}$ | 14,4 | 4,665 | $3{,}00\ 10^{-13}$ | 17 |
| $Tm^{169}$ | 8,4 | 105,3 | $1{,}25\ 10^{-11}$ | 2000 |
| $Eu^{151}$ | 21,5 | 46,37 | $2{,}16\ 10^{-12}$ | 51 |
| $Sm^{149}$ | 22,5 | 63,41 | $2{,}80\ 10^{-12}$ | 52 |
| $Sn^{119}$ | 23,9 | 25,49 | $1{,}07\ 10^{-12}$ | 13 |
| $Dy^{161}$ | 25,7 | 15,38 | $5{,}99\ 10^{-13}$ | 1,2 |

## 6.2 Principe des montages : domaines d' application

Différents montages expérimentaux ont été essayés, que ce soit pour l' utilisation de la résonance nucléaire ou sans effet résonant.

*Expériences résonnantes*

Il y a 2 possibilités ici :
- Le faisceau blanc est envoyé directement sur certains monocristaux (ex. FeBO3) orientés pour obtenir une réflexion purement nucléaire (facteur de structure électronique nul) ; le signal est bruité.
- Le faisceau est d' abord monochromatisé électroniquement (dans la gamme du meV) et l' échantillon peut ne pas être monocristallin : la permière voie est alors d' utiliser un film antiréflexion en incidence rasante, dont la largeur ≈ 100 $\Gamma_0$ permet de couvrir toute la structure hyperfine de l'

échantillon à étudier ; la seconde est d' insérer l' échantillon entre un polariseur (accroissant la polarisation $\sigma$ jusqu' à la valeur 1, à 8 chiffres significatifs près) et un analyseur à 90 degrés pour détecter la polarisation $\pi$ induite.

Les expériences fondées sur la résonance vont de la physique fondamentale (théorie dynamique de la diffraction nucléaire, cohérence longitudinale de l' onde plane, interférence de $\gamma$ indépendants) à l' analyse structurale (facteurs de structure partiels ; problème de la phase, cf § 5), en passant par la spectroscopie hyperfine en absorption (Mössbauer) ou diffusion (petits échantillons, interfaces).

*Expériences non résonnantes*

Le faisceau issu du monochromateur nucléaire est envoyé sur l' échantillon qui ne contient pas de noyau résonant. Puis le faisceau est dévié par un cristal de Si vers un détecteur précédé d' un translateur Mössbauer (i.e. dont la vitesse constante permet un déplacement Doppler comparable au clivage hyperfin)

Ces expériences non résonnantes, où le taux de comptage est plus faible, pourront être abordées grâce à l' ESRF : il s' agira de diffusion inélastique à très haute résolution spectrale pour la détermination des excitations du solide (facteur Debye-Waller, diffusion diffuse thermique, phonons etc.).

## *6.3 Premières mesures de spectroscopie hyperfine* (réf. 11)

Compte tenu de la structure temporelle du RSX (à l' ESRF, les impulsions peuvent être séparées de plus de 200 ns sans perte d'intensité), la spectroscopie hyperfine est obtenue dans le domaine *temporel* plutôt qu' énergétique (les 2 domaines étant reliés pars la relation d' Heisenberg). La précision sur les paramètres hyperfins est accrue. Cette approche nécessite naturellement une détection rapide (≈ nanoseconde).

Un modèle simple permet de comprendre les courbes expérimentales (hormis l' amortissement initial dû à l' effet collectif des noyaux). Soit 2 résonances nucléaires de largeur $\Gamma_0$ , de même force mais déphasées de $\pi$ et d' énergies voisines : $E_1, E_2 = \hbar\omega_0 \pm 1/2\,\Delta E$

La réponse en fréquence s' écrit alors :

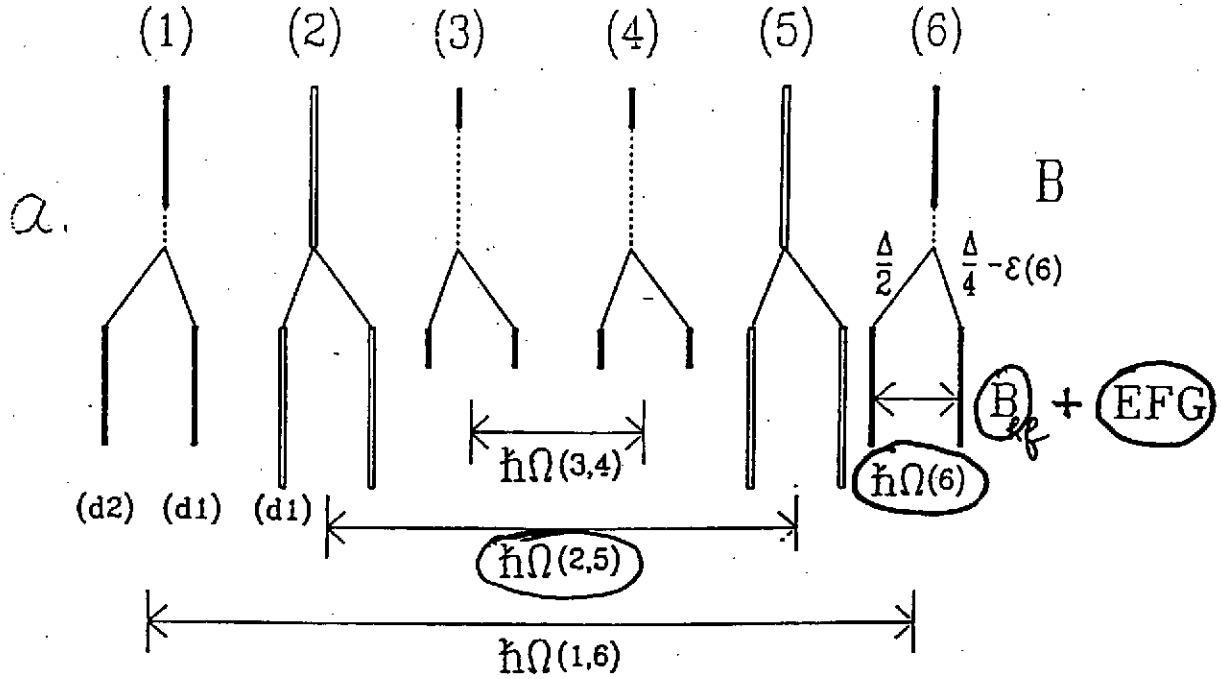
$$R(\omega) \propto \frac{1}{E_1 - \hbar\omega - i\Gamma_0} - \frac{1}{E_2 - \hbar\omega - i\Gamma_0}$$

et la réponse temporelle :

$$I(t) \propto |R(t)|^2 \propto e^{-\frac{\Gamma_0 \cdot t}{\hbar}} \sin^2\left(\frac{\Delta E \cdot t}{2\hbar}\right)$$

Selon le rapport entre l' écart hyperfin et la largeur commune des résonances nucléaires, on obtiendra, superposées à une courbe amortie, des oscillations plus ou moins serrées.

Une expérience réalisée à l' ESRF, sur la ligne Troïka, concerne le $Fe^{57}$ dans un monocristal de grenat d' yttrium et fer (YIG). La géométrie de diffusion se situe dans le plan horizontal : monochromatisation par $C_{111}$ en transmission, réflexion (0, 0, 10) sur le grenat et détecteur de coïncidence rapide ; le champ magnétique étant perpendiculaire à la fois au plan de diffraction et à la polarisation, il y a 6 transitions permises ($\Delta m = 0$). En rajoutant la perturbation dûe au gradient de champ électrique (fig. 16a), le modèle simple décrit plus haut permet de comprendre le spectre expérimental dominé aussi par 2 fréquences : la fréquence magnétique moyenne $h\Omega$ (2,5) et le clivage quadrupolaire électrique $h\Omega$ (6). La première se traduit par des oscillations rapides, la seconde par l' enveloppe de ces oscillations (fig. 16b). La ligne continue représente l' ajustement théorique, qui détermine les paramètres hyperfins (champ magnétique interne et gradient de champ électrique) au site du fer.




$$\vec{B} \perp (\vec{k_i} + \vec{k_e}) \; and \; \vec{B} \perp \hat{a}_i$$

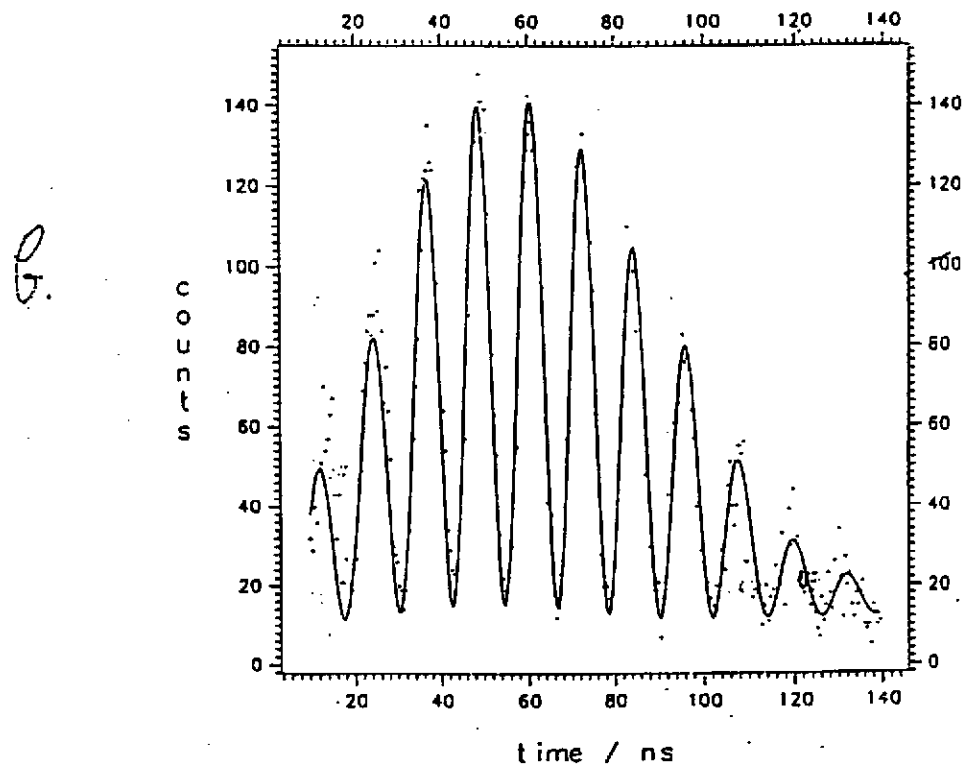



Fig. 16 a) Transitions entre l' état excité à 14,4 keV et l' état fondamental du Fe 57. Ces états étant clivés par les perturbations hyperfines magnétique et électrique, on obtient 6 transitions compte tenu de l' orientation du champ magnétique extérieur $\Delta m=0$

b) Le spectre expérimental temporel obtenu sur l' ESRF est ajusté théoriquement (trait continu) ; les 2 fréquences principales, magnétique et électrique, se traduisent par des battements rapides et par leur enveloppe.

## Références

### *Partie A*

1. Annual Report, ESRF (1992)
2. European Synchrotron Radiation Facility , R. Haensel, Rev. Sci. Instr. **63**, 1571 (1992)
3. L' ESRF a Grenoble : une source de rayons X optimisée, M. Belakhovsky, J. de Chimie - Physique **86**, 1453, (1989)
4. Les premières lignes de lumière à l' ESRF, F. de Bergevin, Bulletin de la Société Française de Physique (1993)

### *Partie B*

1. - Theory of synchrotron radiation, A. Hofmann SSRL report n° 38 (1986)
   - Characteristics of synchrotron radiation, K.J. Kim, proc. Accelerator Summer School (1989)
2. - Synchrotron radiation from the Large Electron-Positron storage ring LEP, A. Hofman, in Physics Report **64**, 253 (1980)
   - The physics of electron storage ring; an introduction, M. Sands
3. Diffraction, refraction and absorption of X-rays and neutrons, J. Als-Nielsen, Ch. I in : Cours Hercules Vol. 1 Springer-Verlag & Les Editions de Physique (1993)
4. CRG "Interfaces" (équipe CEA-CNRS) sur la ligne ID11 à l' ESRF
5. Par exemple, Fundamentals of neutron and X-ray diffraction, M. Schlenker, Ch. VI ibid. réf. 3.
6. - X-ray optics for ESRF beamlines : problems and projects, A.K. Freund Rev. Sci. Meth. **63**,413 (1992)
   - ESRF : specificity and grazing techniques, M. Belakhovsky, J. de Physique C7, **50** (1989)

### *Partie C*

1. ESRF beam line Handbook, edited by H. Büttner, ESRF (août 93)
2. - Project GRAAL : the scientific case D. Babusci, L. Casano, A. D'Angelo, P. Picozza, C. Schaerf, B. Girolami, Il Nuovo Cimento, **103** A, 1555 (1990)
   - GRAAL, ISN 9331 (Grenoble), IPNO-DRE 9309 (Orsay) ed. R. Frascaria, IPN (Orsay)

### *Partie D*

1. Sub-micrometer Fluorescence Microprobe Based on Bragg-Fresnel Optics S.M. Kuznetsov, I.I. Snigireva, A.A. Snigirev, P. Engström, C. Riekel (preprint)
2. A Double Focusing SAXS Camera with μm Focal Spot Based on a Circular Bragg-Fresnel Lens, I.I. Snigireva, A.A. Snigirev, C. Riekel, A. Miller, L. Wess, T. Wess (preprint)
3. Characterization of interfaces by grazing incidence X-ray scattering, G. Renaud (preprint)
4. X-ray grazing incidence studies of the 2D-crystallization of 1-alcools monolayers at the air-water interface, J.F. Legrand, A. Renault, O. Konovalov, E. Chevigny, J. Als-Nielsen, G. Grübel and B. Berge (preprint)
5. Polarized X-rays, M. Altarelli ; Ch. XII in : Cours Hercules Vol. 1 Springer-Verlag & Les Editions de Physique (1993)
6. Resonant magnetic scattering, C. Vettier, G. Grübel ESRF Newsletter n° 18 (1993)
7. D. Haüsermann (commun. privée) et ESRF Newsletters n° 16 and 18 (1993)
8. Protein crystallography measurements on BL9 (Troïka) of the ESRF, M.S. Lehmann, J. Als-Nielsen, G. Grübel et J.F. Legrand, CCP4 / ESF (1993)
9. A. Thompson, commun. privée
10. Nuclear diffraction using synchrotron radiation, R. Rüffer Synchrotron Radiation News **5**, 25 (1992)
11. R. Rüffer, commun. privée

Annexe 1. **Formulaire de Rayonnement Synchrotron** (réf. B-1)

On supposera la trajectoire plane, le système de coordonées et les vecteurs de polarisation étant indiqués sur la fig. 1. On peut montrer que :

$$\mathbf{n} \times (\mathbf{n} \times \beta)\big|_{\sigma} \approx \mathbf{n} \times (\mathbf{n} \times \beta)\big|_{x} \approx \varphi - \beta_x$$

$$\mathbf{n} \times (\mathbf{n} \times \beta)\big|_{\pi} \approx \mathbf{n} \times (\mathbf{n} \times \beta)\big|_{y} \approx \psi \ .$$

A partir des formules du § B-1.1, le flux spectral pour chaque polarisation s' écrit alors :

$$\frac{d^2\mathcal{F}_{\sigma,\pi}}{d^2\Omega} = \alpha \frac{\Delta\omega}{\omega}\frac{I}{e}\left|A_{\sigma,\pi}(\omega)\right|^2 \ , \quad \text{où} \quad \begin{bmatrix} A_\sigma(\omega) \\ A_\pi(\omega) \end{bmatrix} = \frac{\omega}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} dt' \begin{bmatrix} \varphi - \beta_x \\ \psi \end{bmatrix} e^{i\omega t'(t)}$$

1. Aimant de déviation

Dans le cas ultrarelativiste et pour un électron sur une trajectoire circulaire :

$$\varrho = \frac{E_e}{ecB} = \frac{m_e c\gamma}{eB} \ , \quad ; \text{soit en unités pratiques : } \varrho[m] = 3.3\frac{E_e[GeV]}{B[T]} \ .$$

Le facteur de contraction du temps est : $\varkappa(t') = \dfrac{dt}{dt'} = \dfrac{1}{2}\left[\dfrac{1}{\gamma^2} + \psi^2 + \omega_\varrho^2 t'^2\right]$

et en intégrant : $t(t') = \dfrac{1}{2}\left[\dfrac{1}{\gamma^2} + \psi^2\right]t' + \dfrac{\omega_\varrho^2 t'^3}{6}$

Les intégrales pouvant s' exprimer à l' aide des fonctions de Bessel modifiées, la densité spectrale angulaire du flux devient :

$$\begin{bmatrix} \dfrac{d^2F}{d^2\Omega_\sigma} \\ \dfrac{d^2F}{d^2\Omega_\pi} \end{bmatrix} = \frac{3}{4\pi^2}\gamma^2\frac{I}{e}\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^2\left(1+X^2\right)^2 \begin{bmatrix} K_{2/3}{}^2(\eta) \\ \dfrac{X^2}{1+X^2}K_{1/3}{}^2(\eta) \end{bmatrix}$$

avec $\omega_c = \dfrac{3}{2}\gamma^3\omega_\varrho = \dfrac{3\gamma^3 c}{2\varrho}$ , $\eta = \dfrac{1}{2}\dfrac{\omega}{\omega_c}\left(1+X^2\right)^{3/2}$, $X = \gamma\psi$ ,

Vers l' avant ($\Psi$=0) , on obtient en photons / sec / mrd$^2$ / $\Delta E/E$=0,1% :

$$\left.\frac{d^2\mathcal{F}_\sigma}{d^2\Omega}\right|_{\Psi=0} = 1.33\text{x}10^{13}E_e^2[GeV]I[A]H_2\left(\omega/\omega_c\right) \ , \quad \text{où} \quad H_2(y) = y^2K_{2/3}^2(y/2) \ .$$

L' énergie critique vaut : $\varepsilon_c[keV] = 0.665E_e^2[GeV]B[T]$ .

En intégrant sur l' angle vertical $\Psi$ :

$$\begin{bmatrix} \dfrac{d\mathcal{F}_\sigma}{d\varphi} \\ \dfrac{d\mathcal{F}_\pi}{d\varphi} \end{bmatrix} = \frac{\sqrt{3}}{4\pi}\alpha\gamma\frac{\Delta\omega}{\omega}\frac{I}{e}\left[\frac{\omega}{\omega_c}\right] \begin{bmatrix} \displaystyle\int_{\omega/\omega_c}^{\infty} K_{5/3}(y')dy' + K_{2/3}\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right) \\ \displaystyle\int_{\omega/\omega_c}^{\infty} K_{5/3}(y')dy' - K_{2/3}\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right) \end{bmatrix} .$$

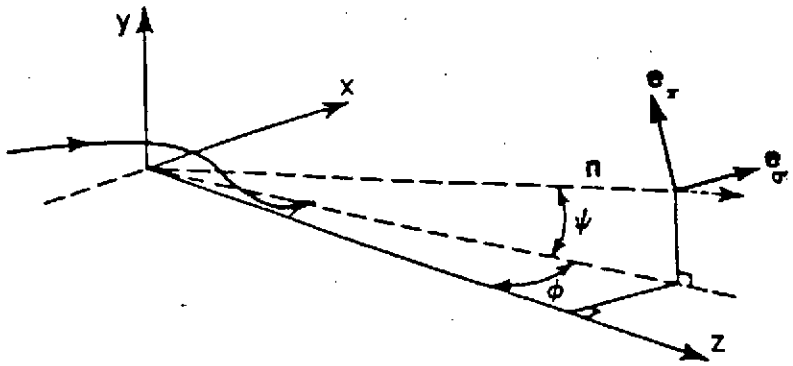



Fig. 1 Système de coordonnées; $e_\sigma$ est dans le plan horizontal; le trièdre $(e_\sigma, e_\pi, n)$ est orthonormé

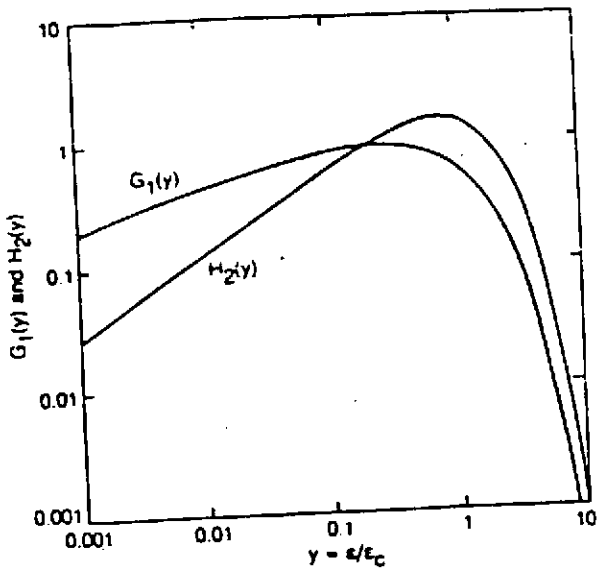



Fig. 2 Les fonctions G1(y) et H2(y) ; y est l' énergie du photon rapportée à l' énergie critique

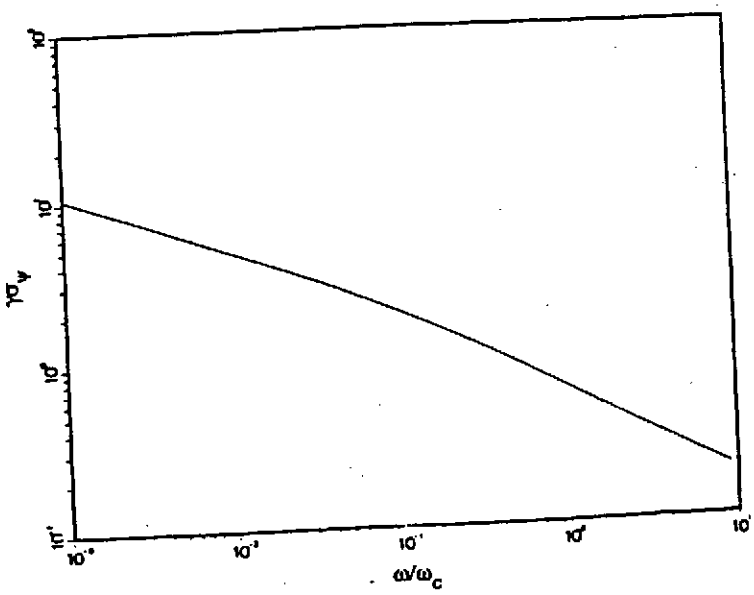



Fig. 3 Produit par γ de la distribution angulaire, dans le plan vertical, du rayonnement d' un aimant

Soit en ajoutant les 2 composantes de polarisation :

$$\frac{dF}{d\varphi} = \frac{\sqrt{3}}{2\pi}\alpha\gamma\frac{\Delta\omega}{\omega}\frac{I}{e}\frac{\omega}{\omega_c}\int_{\omega/\omega_c}^{\infty} K_{5/3}(y)dy$$

ou en unités pratiques (photons / sec / mrd$^2$ / $\Delta E/E$=0,1%) :

$$\frac{dF}{d\varphi} = 2,46\cdot 10^{13}\cdot E[\mathrm{GeV}]\cdot I[\mathrm{A}]\cdot G_1\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right) \text{ où } G_1(y) = y\int_y^{\infty} K_{5/3}(y')dy'$$

Les fonctions $H_2$ et $G_1$ sont données sur la fig. 2

La divergence angulaire se déduit des expressions précédentes :

$$\text{divergence rms } \sigma_\Psi = \sqrt{\frac{2\pi}{3}}\cdot\frac{1}{\gamma}\cdot\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^{-1}\frac{\int_{\omega/\omega_c}^{\infty} K_{5/3}(y)dy}{K_{\frac{2}{3}}^{2}\left(\frac{\omega}{2\omega_c}\right)}$$

la fonction $\gamma\cdot\sigma_\Psi$ est donnée sur la fig. 3 ; asymptotiquement :

$$\gamma\cdot\sigma_\Psi \approx 1,07\cdot\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^{-\frac{1}{3}} \text{ pour } E \ll E_c \text{ , ou } \gamma\cdot\sigma_\Psi \approx 0,58\cdot\left(\frac{\omega}{\omega_c}\right)^{-\frac{1}{2}} \text{ pour } E \gg E_c$$

La puissance intégrée sur les fréquences est (fig.4 ):

$$\begin{bmatrix} \frac{d^2P_\sigma}{d^2\Omega} \\ \frac{d^2P_\pi}{d^2\Omega} \end{bmatrix} = \left.\frac{d^2P}{d^2\Omega}\right)_0 \frac{1}{\left(1+\gamma^2\psi^2\right)^{5/2}}\begin{bmatrix} 1 \\ \frac{5}{7}\frac{\gamma^2\psi^2}{1+\gamma^2\psi^2} \end{bmatrix} \text{ , où } \left.\frac{d^2P}{d^2\Omega}\right|_0 = \frac{7}{64\pi}\frac{e^2}{\varepsilon_0}\frac{\gamma^5}{\varrho}\frac{I}{e}$$

soit en w/mrad$^2$ : $\left.\frac{d^2P}{d^2\Omega}\right| = 5.42\cdot B[\mathrm{T}]\cdot E_e^4[\mathrm{GeV}]\cdot I[\mathrm{A}]$ .

$$\begin{bmatrix} P_\sigma \\ P_\pi \end{bmatrix} = \frac{2}{3}\frac{e^2}{4\pi\varepsilon_0}\frac{I}{e}\frac{\gamma^4}{\varrho^2}\ell\begin{bmatrix} 7/8 \\ 1/8 \end{bmatrix}$$ où $l = \varrho\,\Delta\phi$ est la longueur de l' arc

La puissance totale émise vaut : $P[\mathrm{kW}] = 1.27\cdot E_e^2[\mathrm{GeV}]\cdot B^2[\mathrm{T}]\cdot I[\mathrm{A}]\cdot \ell[\mathrm{m}]$ .

2. <u>Rayonnement onduleur</u>

On suppose une variation sinusoïdale du champ :

$$B_y = -B_0\sin\left(2\pi z/\lambda_u\right) \text{ , } 0 \le z \le N\lambda_u \text{ .}$$

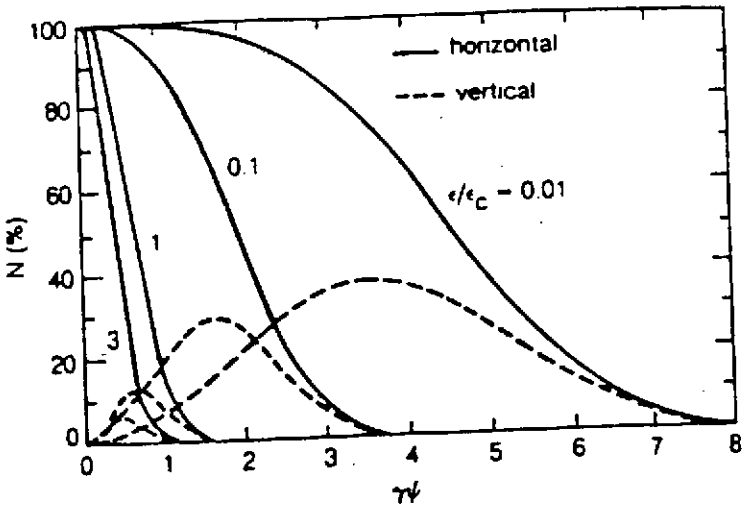



Fig. 4 Intensités normées des composantes horizontale et verticale de la polarisation en fonction de l' angle vertical d'observation, à différentes énergies

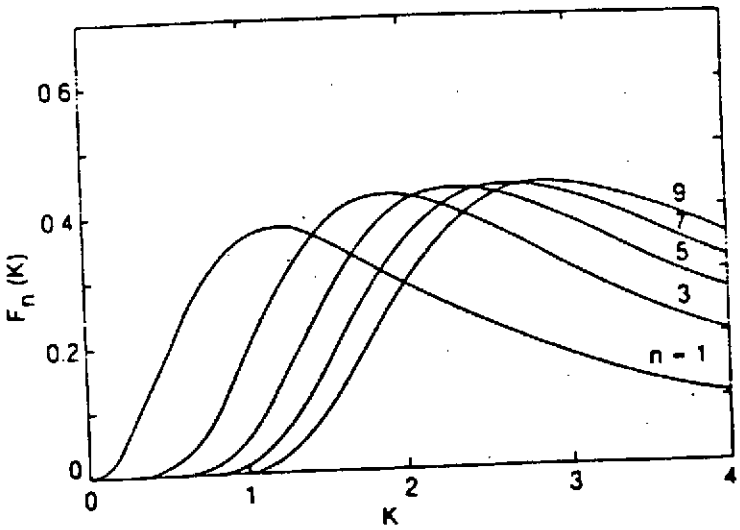



Fig. 5 Fonctions $F_n(K)$ pour différentes harmoniques n d' un onduleur (K= paramètre de déflexion)

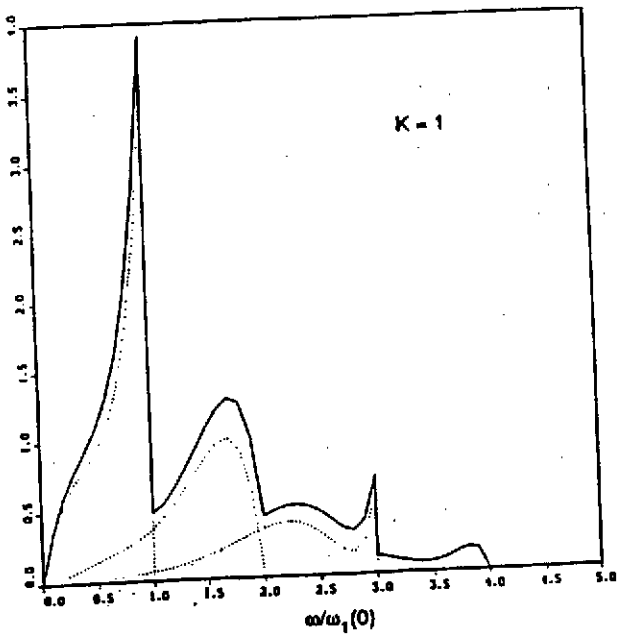



Fig. 6 Spectre intégré sur les angles d' un onduleur de K=1. Les lignes pointillées sont des harmoniques individuelles, la ligne pleine est la somme (4 harmon.)

La vitesse transverse est donnée par : $\beta_x = \frac{K}{\gamma} \cdot \cos(\frac{2\pi z}{\lambda_u})$

où $K = \frac{e \cdot B_0 \cdot \lambda_u}{2\pi \cdot m \cdot c} = \lambda_u[cm] \cdot B_0[T]$

La pente maximale de la trajectoire est $\delta = \frac{K}{\gamma}$

La vitesse selon z vaut :

$$\beta_z = \sqrt{1 - \frac{1}{\gamma^2} - \beta_x^2} \approx 1 - \frac{1 + K^2/2}{2\gamma^2} - \frac{K^2}{4\gamma^2}\cos(4\pi z/\lambda_u)$$

La partie non-oscillante est : $\beta^* = 1 - \frac{1 + K^2/2}{2\gamma^2} = 1 - \frac{1}{2\gamma^{*2}}$

Les caractéristiques spectrale-angulaire du flux sont données par :

$$\frac{d^2F_{\sigma,\pi}}{d^2\Omega} = \alpha \frac{\Delta\omega}{\omega} \frac{I}{e} \left[\frac{K\gamma}{1 + K^2/2}\right]^2 \left[\frac{\omega}{\omega_1(0)}\right]^2 N^2 S_N[\omega/\omega_1(0)] B^2_{\sigma,\pi}(\omega, \varphi, \psi) \ .$$

où : $S_N[\omega/\omega_1(\theta)] = \left[\frac{\sin N\pi\,\omega/\omega_1(\theta)}{N\pi\,\omega/\omega_1(\theta)}\right]^2$

La densité angulaire au pic pour l' harmonique n est :

$$\left.\frac{d^2F^n}{d^2\Omega}\right|_0 = \left.\frac{d^2F^n_\sigma}{d^2\Omega}\right|_0 = \alpha N^2\gamma^2 \frac{\Delta\omega}{\omega}\frac{I}{e} F_n(K) \quad (n = 1, 3, 5, \ldots)$$

$$= 0 \qquad\qquad (n = 2, 4, 6, \ldots)$$

avec $F_n(K) = \frac{K^2 n^2}{(1 + K^2/2)^2}\left\{J_{\frac{n-1}{2}}\left[\frac{nK^2}{4(1 + K^2/2)}\right] - J_{\frac{n+1}{2}}\left[\frac{nK^2}{4(1 + K^2/2)}\right]\right\}^2$

Cette fonction est donnée sur la fig. 5.

En unités pratiques (photons / sec / mrd$^2$ / $\Delta E/E$=0,1%), on a :

$$\left.\frac{d^2F^n}{d^2\Omega}\right|_0 = 1,74 \cdot 10^{14} \cdot N^2 \cdot E^2[GeV] \cdot I[A] \cdot F_n(K)$$

Par intégration sur les angles, on obtinet le spectre de l' onduleur. La fig. 6 représente les 4 premiers harmoniques d' un onduleur de paramètre de déflexion K=1.

## Annexe 2. **Cohérence** (réf. A-1)

La brillance (flux par unité d' espace de phase dans une bande spectrale donnée) est - en l'absence de phénomènes dissipatifs tels que l' absorption, conservée le long d' une ligne de faisceau RSX. En raison de l' émittance très petite de la machine, la brillance du RSX sur les onduleurs de l' ESRF obtenue expérimentalement est :

$B \approx 10^{17}$ photons X/ sec/mm$^2$ de source/ bande passante 0,1%, avec la perspective de dépasser $10^{18}$.

La spécificité de l' ESRF pour les études sous haute pression (§ D-4) ou les surfaces et interfaces (§ D-2 ) découle directement de cette caractéristique de haute brillance.

Une conséquence directe de la brillance - objet de cette partie, est le *degré de cohérence* des sources de l' ESRF, qui pourra être mis à profit dans plusieurs domaines.

Les ondes issues d' une source *étendue* traversant 2 trous d'épingles (A,B) dans un écran placé à une distance D de la source ($D >> \lambda$ ) interféreront entre elles si :

$$AB < L_t \approx \lambda D / s \qquad \text{(où } \lambda, s = \text{resp. longueur d' onde et taille de la source)}$$

$L_t$ est appellée longueur de cohérence *transverse*..
De même, un trou unique dans un écran de taille $< L_t$ apparaîtra comme une source cohérente.

La longueur de cohérence *longitudinale* $L_l$ est contrôlée par le degré de monochromaticité du RS. Pour une bande passante en fréquence $\Delta\nu$, le temps d' émission pendant lequel la cohérence sera conservée est $\approx 1/ d\nu = \lambda^2 / c\, \Delta\lambda$. ; ce qui correspond à une distance :

$$L_l = \lambda^2 / \Delta\lambda$$

Pour l' ESRF, à 30 m d' une source ID à faible $\beta$ (où la taille horizontale est de 0,16 mm fwhm) :

$$L_t \approx 20\ \mu m \quad \text{pour } \lambda = 1\ \text{Å}.$$

Pour un onduleur de brillance $10^{17}$, le flux cohérent à travers un trou de 10 µm de diamètre, serait supérieur à $10^7$ dans une bande passante de $10^{-4}$.
A noter que dans le plan vertical, l' émittance est inférieure d' un facteur 10 et la longueur de cohérence transverse est encore plus grande (d' un facteur 3 environ).

Une source cohérente diffusée par un milieu inhomogène produit un diagramme d' interférences. Si le milieu fluctue, le changement du diagramme fournit une mesure de la *corrélation temporelle des fluctuations*.. Pour l' étude des phénomènes critiques, de la dynamique de parois, des systèmes désordonnés etc., les gammes de longueur de fluctuations et de temps accessibles seraient respectivement ≈ 10 Å et bien inférieure à 1 milliseconde.

La longueur de cohérence longitudinale $L_l$ par monochromatisation électronique va de 1 µm à 1 mm ($\Delta E/E$ resp. de $10^{-4}$ et $10^{-7}$), et très au-delà avec la diffraction nucléaire (cf § D-6).

# D 32 INTERFACES • *IF CRG*

operational
Sept. 1994

**scientists in charge**

project leaders: *Alain Bourret* [1] (CEA) & *Robert Baudoing-Savois* [2] (CNRS)
[1]CENG - SP2M, BP 85X, F-38041 Grenoble Cedex
[2]CNRS - Lab. Cristallographie, BP 166, F-38042 Grenoble Cedex 9
spokesman: *André Barski*, CENG, tel. +33 76 88 56 79 or ESRF +33 76 88 25 79
optics: *Michel Belakhovsky*, CENG, tel. +33 76 88 34 39,
fax: +33 76 88 51 38, email: belakhov@ill.fr
EXAFS: *Jean Louis Hazemann*, CNRS, tel. +33 76 88 74 02
GM: *François Rieutord*, CENG, tel. +33 76 88 57 03
SUV: *Robert Baudoing-Savois*, CNRS, tel. +33 76 88 74 01
& *Gilles Renaud*, CENG, tel. +33 76 88 35 58

**scientific applications**

in-situ study of interfaces

**source characteristics**

bending magnet

| | |
|---|---|
| source size | 0.4 x 0.3 mm$^2$ (HxV) FWHM |
| vert. source divergence | 0.13 mrad at 20 keV |
| total horiz. ang. acceptance | 2.8 mrad |

**optics**

| | | |
|---|---|---|
| optical elements: | mirror | double-crystal mono. |
| distance from source: | 28 m | 31 m |
| focussing type: | vert. collim. or foc. | horiz. foc. |
| | Si/Ni/Pt-coatings | Si (111) or (311) |
| grazing angle | 2.9 mrad | |
| beam size at sample: | 0.5 x 3 mm$^2$ (HxV) collimation mode | |
| spectral range: | 4 - 30 keV | |
| energy resolution $\Delta E/E$: | $2.8 \cdot 10^{-5}$ for Si (311) | |
| | $1.37 \cdot 10^{-4}$ for Si (111) | |
| expect. flux at sample: | $10^{12}$ ph s$^{-1}$ (0.1%bw, 0.1A at 20 keV) | |

**detectors**

variety of detectors depending on applications, see text

**beamline control**

most devices are controlled under SPEC

## Introduction

The IF CRG-beamline, situated on D32 (just below the 'passerelle'), has 4 leaded hutches: 1 for optics and 3 for instruments.

## Absorption spectroscopy (ABS hutch)

The hutch is devoted to x-ray absorption spectroscopy (EXAFS), with the sample position at 42 m from the source, i.e. in (3:1) geometry with respect to the sagittal focussing.

The experiment itself, represented in fig.1, includes a levelling table, a motorised sample system and various detectors.

The levelling table takes a max. weight of 100 kg. It includes an optical bench of 1 x 2 $m^2$, a vertical translator with 180 mm stroke, 1 µm accuracy for beam tracking. The declination angle can be adjusted manually. Air pads move the table in and out.

The rotation/translation system for sample motions can be oriented along any of 3 directions normal to the sample cubic box. The stepper motors cover a rotational movement of 360° within an accuracy of 0.01°, and a translational movement in the x- and y-direction of 20 mm, and 100 mm in the z-direction within 1 µm accuracy. The sample cubic box is evacuated.

Detection is carried out in transmission mode using Si-diode pairs oriented towards scattering foils. An additional diode is on the direct beam. In the fluorescence mode $I_0$, $I_1$ are measured using photomultipliers (see figure 1).

## Multitechnique Goniometer (GM hutch)

Hutch n°2 is located in (1:1) position with respect to the monochromator. It is equipped with a goniometer which has been designed to allow grazing incidence diffraction, reflectivity and other surface diffraction techniques. This instrument can operate in horizontal or vertical geometry for samples *not* requiring UHV environment. The accuracy of each movement is 1/1000° (rotations) and 1 µm (translations).

The vertical geometry is normally used with solids for optimum use of polarisation and in-plane angular resolution. A motorised goniometer head including a z-translation stage is available to bring the sample to the

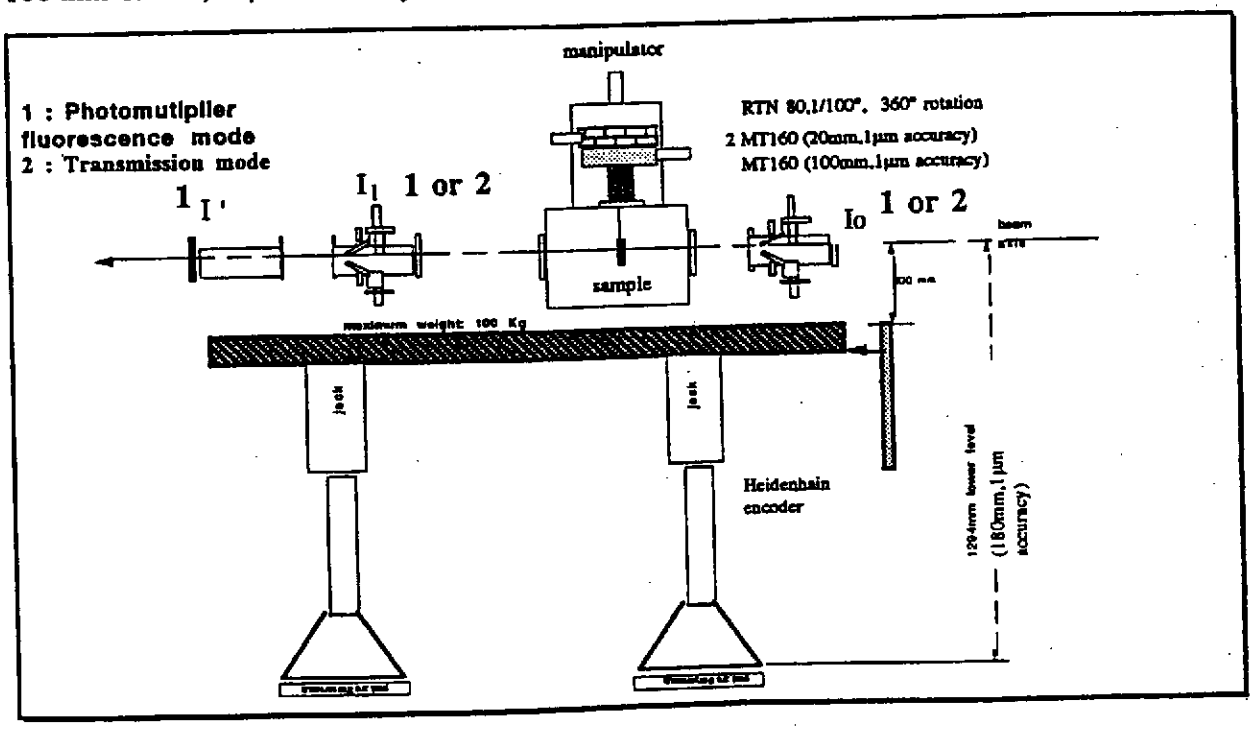



*Fig. D32 - 1*
*Schematic view of absorption set-up*

goniometer centre, parallel to the goniometer vertical axis.

The horizontal geometry is used for liquid surfaces or solid surfaces with heavy sample environment. The goniometer head is then mounted horizontally. For liquids, the incident beam is deflected downwards using a mirror (surface diffraction) or a crystal (reflectivity). Height of the goniometer is simultaneously adjusted as a function of the deflection angle. For solids, the global tilt of the goniometer can be used alternatively.

A complete system of entrance slits (accuracy 1μm) is available for beam conditioning and alignment. Detection is made through a low background (fast) scintillation detector.

## Surface under Ultra-high Vacuum (SUV hutch)

Hutch n°3 will be equipped with a diffractometer designed to perform x-ray scattering, reflectivity and absorption spectroscopy on surfaces and interfaces, *in UHV*. It will be coupled to a UHV chamber fitted with large Be windows allowing extended range in Q along the surface diffraction rods. Sample cooling and heating, MBE deposition, RHEED and electron energy analysis will be possible at the same time as x-ray experiments in the x-ray chamber. A large UHV system located outside the hutch, made of a Riber MBE chamber, a UHV characterisation chamber, several Riber modules and load-locks, will be coupled to the x-ray chamber, allowing sample transfer. The characteristics of sample movements, their accuracy, the entrance slits system and detection system are comparable to those of the multitechnique goniometer.

## Beamline Control

Most devices are at present controlled under SPEC.
For non-SPEC commands and debugging, see User manual.

User manual and documentation will be available at a later stage.

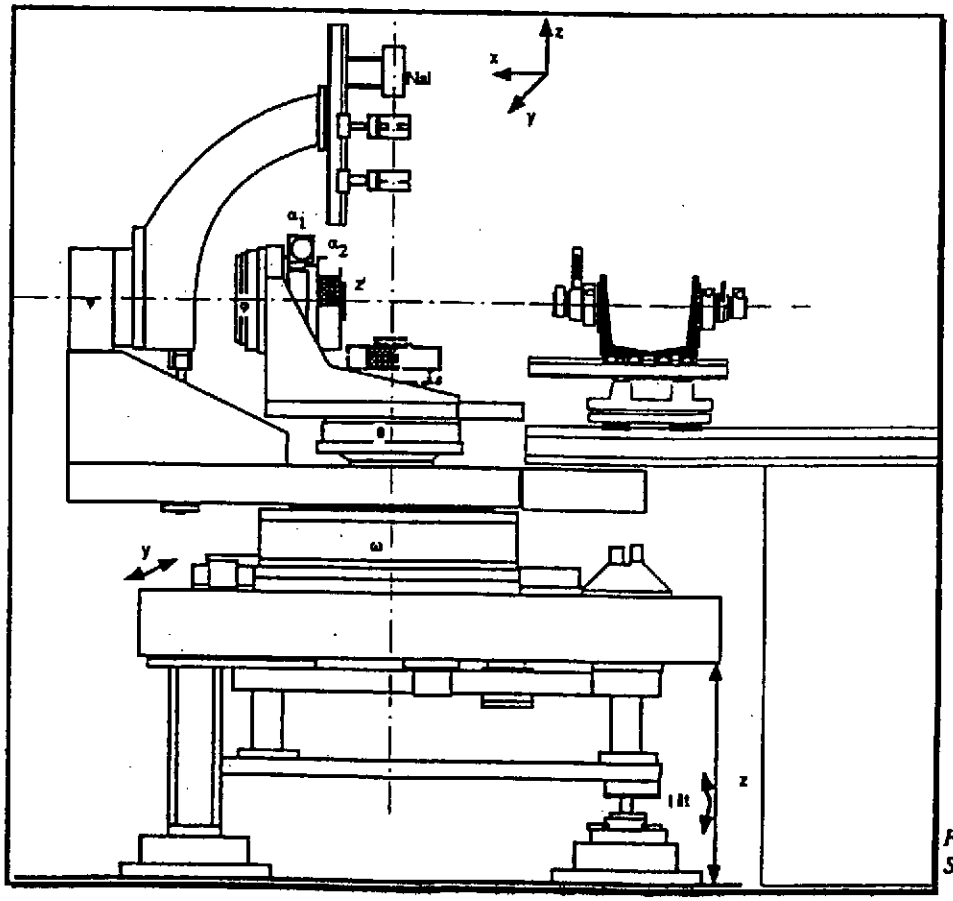



*Fig. D32 - 2*
*Sketch of the goniometer*