



Histoire d'Ions – Accélérateurs et Matière

Frederico Garrido

Laboratoire de Physique des 2 Infinis Irène Joliot Curie

Université Paris-Saclay, CNRS/IN2P3, IJCLab

Vallée des accélérateurs, Orsay Campus

PROJECTILES ET MATIÈRE INERTE



Projectiles accélérés – des *ions* dans une gamme d'énergie comprise entre le keV (0.1 keV.uma^{-1}) et le GeV (10 MeV.uma^{-1})

- Implants d'ions et 'petits' accélérateurs
- Grands accélérateurs nationaux (GANIL, GSI)

Matière inerte concerne potentiellement tous les matériaux d'intérêt

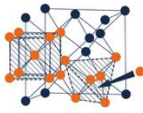
- Matériaux pour l'énergie, les applications spatiales, les accélérateurs, etc...

*'Objets inanimés, avez-vous donc une âme
Qui s'attache à notre âme et la force d'aimer ?'*

Alphonse de Lamartine (1790-1869), *Milly ou la Terre natale*

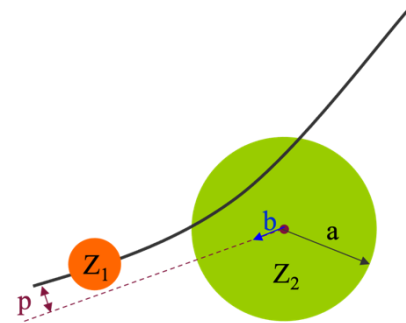


PHYSIQUE DE L'IRRADIATION À L'ÉCHELLE ATOMIQUE

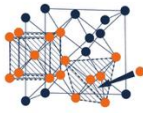


Processus primaire de l'interaction

- Ion = projectile chargé électriquement – force de Coulomb ion-électron et ion-atome (= noyau plus ou moins écranté par les électrons)
- Force de longue portée – interaction avec de très nombreux atomes
 - Nombreuses interactions électroniques et atomiques - processus quasi continu de perte d'énergie du projectile vers le solide
 - Description comme succession de collisions binaires (longueur d'onde du projectile faible devant la distance interatomique)

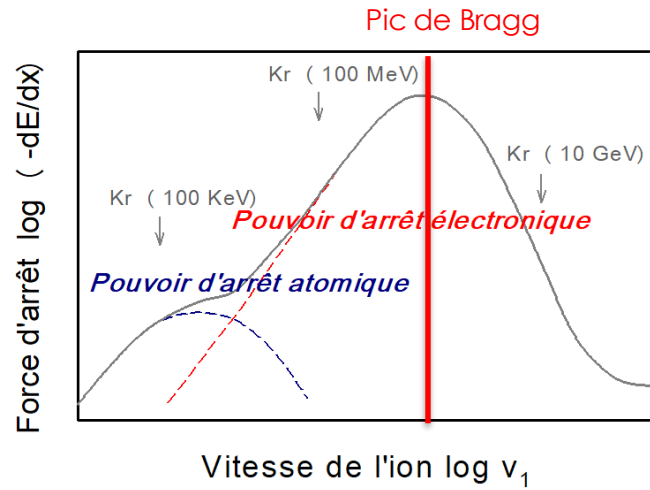


PHYSIQUE DE L'IRRADIATION À L'ÉCHELLE ATOMIQUE

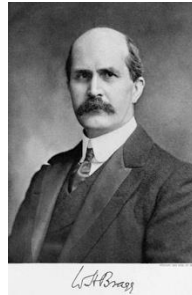
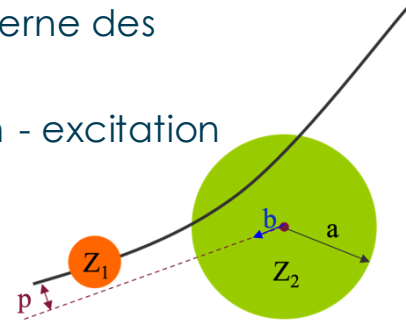


Deux processus de transfert d'énergie

- Collisions élastiques ion-atome cible (pas de changement de l'énergie interne des partenaires de la collision)
- Collisions inélastiques, impliquant les électrons de l'atome cible ou de l'ion - excitation électronique et ionisation, échange d'électrons



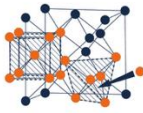
Vitesse de l'ion v_1	Etat de charge d'équilibre	Perte d'énergie moyenne
$v_1 \gg v_e$	Totalement épluché	$\langle \Delta E_e \rangle \gg \langle \Delta E_v \rangle$
$v_1 \sim v_e$	Partiellement épluché	$\langle \Delta E_e \rangle \sim \langle \Delta E_v \rangle$
$v_1 \ll v_e$	Faible épluchage	$\langle \Delta E_v \rangle \gg \langle \Delta E_e \rangle$



Graphe universel pour tous les ions (et particules chargées par extension) dans tous les solides – facteurs d'échelle à prendre en compte

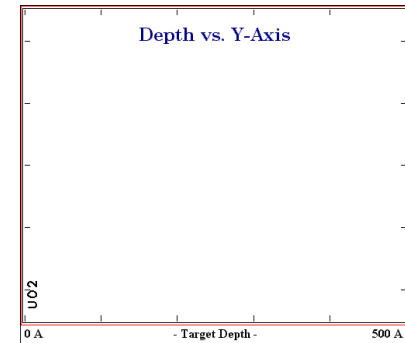
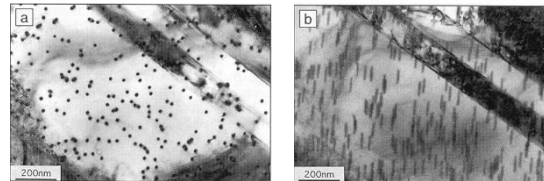
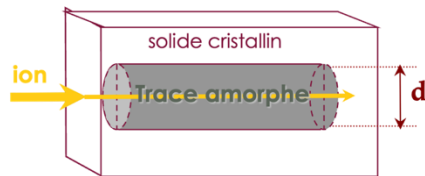
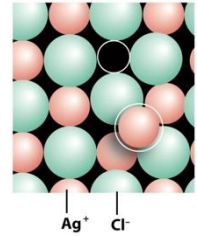
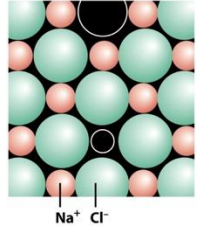
Vitesse de l'ion/cible v_1 à comparer à la vitesse quadratique moyenne de ses électrons
 $v_e = \langle v_e^2 \rangle^{1/2} = v_B Z_1^{2/3}$

PHYSIQUE DE L'IRRADIATION À L'ÉCHELLE ATOMIQUE

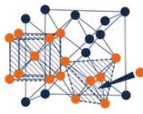


Transfert d'énergie – Différents processus de création de défauts

- Défauts ponctuels: lacunes, (auto)interstitiel, paires de Frenkel, ..., le plus souvent dominée par des interactions élastiques, alors que le dépôt d'énergie est dominé par les interactions inélastiques (excitation, ionisation, capture)
- Collisions élastiques ion-atome cible: déplacement direct des atomes
 - Lorsque l'énergie transférée à un atome dépasse un seuil – énergie seuil de déplacement E_d – l'atome est déplacé de sa position de manière permanente
 - Si l'atome déplacé possède une énergie est suffisante, il peut déplacer à son tour d'autres atomes – formation d'une cascade de collisions atomiques
- Collisions inélastiques: endommagement localisé (traces)



(QUELQUES) QUESTIONS SCIENTIFIQUES ET SUJETS D'ÉTUDES



Fondamentaux de l'interaction projectile-matière

- Mécanismes de dépôt d'énergie
 - Effet séparé des contributions atomiques et électronique
 - Couplage entre les composantes électroniques et atomiques

Compréhension de l'évolution structurale d'un solide sous irradiation

- Fluence croissante – recouvrement des cascades atomiques et/ou des traces
 - Endommagement, réorganisation du matériau irradié (défauts ponctuels et étendus, nouvelles phases cristallines, amorphisation, rôle de la liaison physico-chimique dans le solide)
 - Influence des grandeurs externes (température, pression)
 - Impact sur les propriétés physiques, chimiques, mécaniques, etc...

Synthèse de nouveaux matériaux

- Incorporation d'impuretés – modification des propriétés physico-chimiques (électrique, optique, mécanique, etc...)
- Incorporation à plus forte concentration: synthèse hors-équilibre thermodynamique, rôle de la chimie du matériau

(QUELQUES) QUESTIONS SCIENTIFIQUES ET SUJETS D'ÉTUDES



Caractérisation des solides par faisceaux d'ions accélérés – Microanalyse nucléaire – Techniques dites IBA (Ion Beam Analysis)

- Utilisation d'ions légers (p, He, mais également d, ^3He , etc...) dans la gamme d'énergie du MeV
 - Informations composition atomique (voire isotopique) et spatiale sur une épaisseur micrométrique
 - Information structurales – canalisation d'ions

Faisceaux d'ions comme outils de simulation expérimentale

- Solide soumis à un environnement radiatif complexe (e.g., matériau nucléaire, matériau pour le spatial)
 - Reproduction de conditions d'irradiation simplifiées et contrôlées autorisant des études multi-paramétriques (choix du projectile, contrôle des paramètres flux, fluence, température, etc...)



emir&co
Réseau national d'accélérateurs



NUCLÉAIRE
& PARTICULES

ACCÈS AUX ÉQUIPEMENTS



MOSAIC

→ cf. posters de Cyril Bachelet et Isabelle Ribaud

- Appel à proposition d'expériences
 - Directement auprès de la plateforme – tous les 3 mois
 - Via l'infrastructure de recherche EMIR&A – microscopie *in situ* couplée aux lignes de faisceau (JANNuS-Orsay) et expériences de ToF-SIMS (Andromède / EVE) – 1 appel par an
- Comités d'expériences
 - Interne à IJCLab
 - Conseil scientifique international d'EMIR&A

mosaic

GANIL

- Appel à proposition annuel via le PAC GANIL
- Appel annuel via EMIR&A (SME, IRRSUD)

GANIL

ALTO

- Appel à proposition annuel via le PAC ALTO

ALTO
Accélérateur Linéaire et Tandem à Orsay

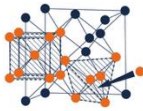
EMIR&A

Infrastructure de recherche et Fédération d'accélérateurs

→ cf. présentation Nathalie Moncoffre

emir&a
Réseau national d'accélérateurs
pour l'irradiation et l'analyse des
molécules et matériaux

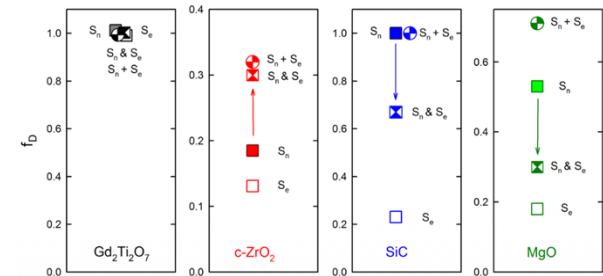
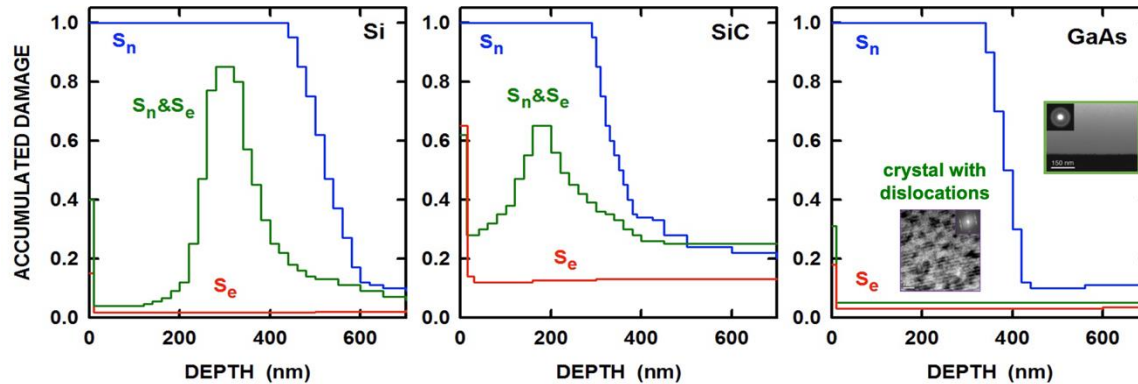
SYNERGIE ENTRE DÉPÔTS D'ÉNERGIE ÉLECTRONIQUE ET ATOMIQUES



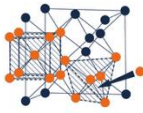
Contribution électronique et atomiques étudiées séparément

Étude du couplage entre les deux mécanismes

- Irradiation *simultanée* avec deux faisceaux d'ions, l'un de basse énergie (collisions atomiques S_n), l'autre de grande énergie (électronique S_e) – JANNuS-Saclay
- Très forte guérison de l'endommagement lors d'une irradiation simultanée, principalement dans les semiconducteurs



MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ALPHA DANS LES APATITES - THERMOCHRONOLOGIE



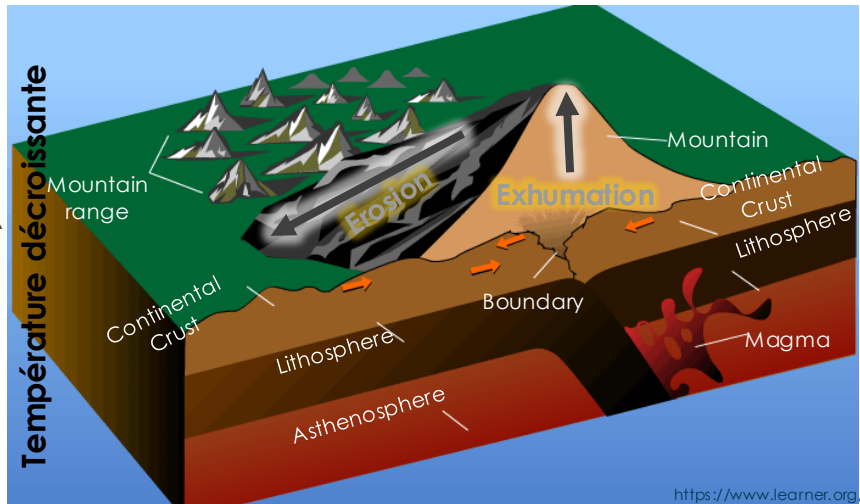
Thermochronologie – science de l'histoire thermique des roches et minéraux

- Applications : évolution des panoramas, taux d'érosion, pétrole et gaz

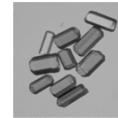
Datation par l'hélium – Méthode (U-Th)/He dans les apatites

- Apatite famille de composés $A_{10}(BO_4)_6X_2$ – fluoroapatite est la plus commune
- He produit par décroissance alpha de U, Th

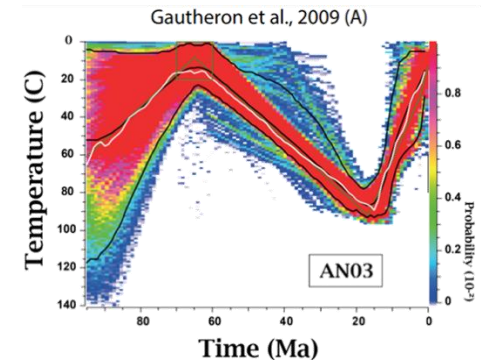
Modélisation de l'histoire thermique



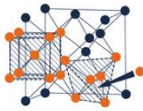
<https://www.learner.org/>



$$\text{Age He (années)} = \frac{\text{He mesuré}}{\text{Production annuelle He}}$$



MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ALPHA DANS LES APATITES - THERMOCHRONOLOGIE

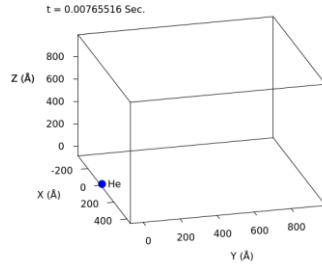


Datation par l'hélium = âge apparent

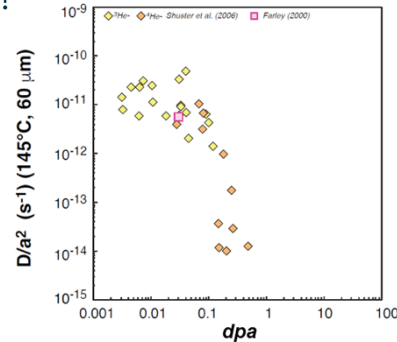
- Production d'He par décroissance alpha de U, Th
- Diffusion de He hors du cristal par diffusion thermique



$$\frac{D}{a^2} = \frac{D_0}{a^2} \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right)$$



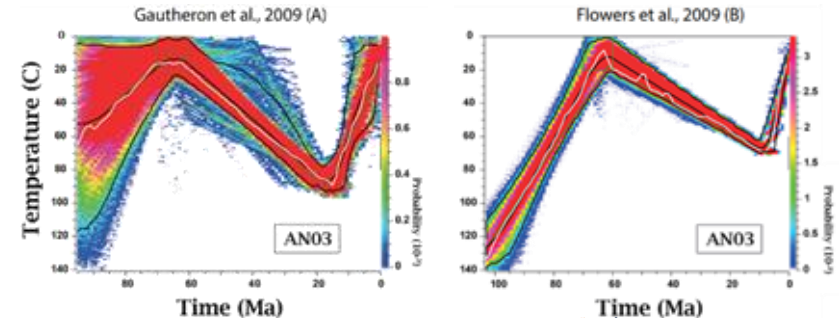
- Défauts d'irradiation et piégeage de He: modification de la diffusion !



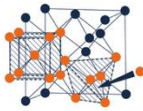
Nécessité de prendre en compte l'endommagement du cristal – nature des défauts et leur quantité

- Modèles actuels fondés sur la notion de dpa - absence de mécanismes de recombinaison des défauts
- Effet de la température non considérée (pas de recombinaisons thermiques)

Deux modèles avec deux diffusivités différentes

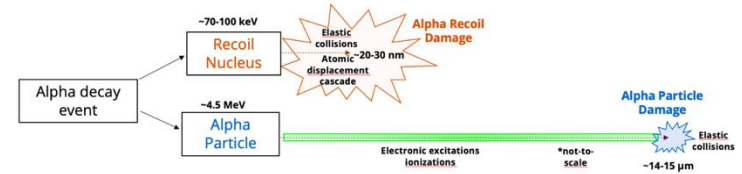


MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ALPHA DANS LES APATITES - THERMOCHRONOLOGIE



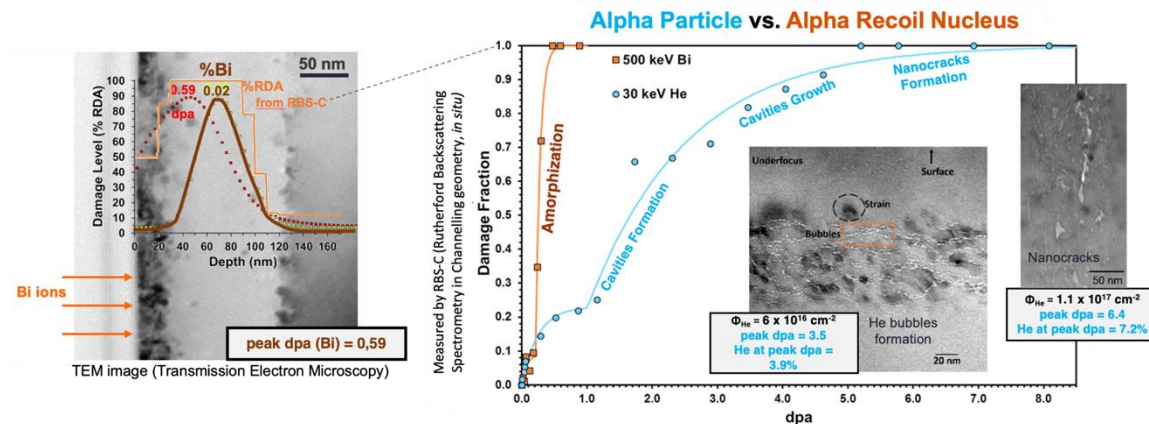
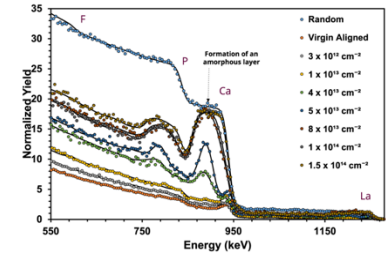
Simulation expérimentale

- Décroissance alpha = particule alpha + noyau de recul alpha



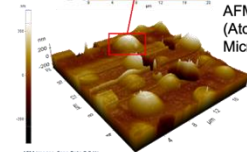
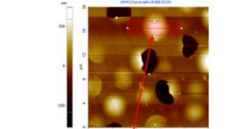
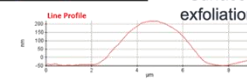
Etablissement des cinétiques d'endommagement

- Noyau de recul alpha modélisé par des ions Bi (cascades de collision)
- Particule alpha : effet combiné des défauts d'irradiation et de la présence d'hélium
- Mesures RBS en canalisation (implantation et RBS/C *in situ*), microscopies MET et AFM



$\Phi_{He} = 1.4 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$
peak dpa = 8.1
He at peak dpa = 9.2%

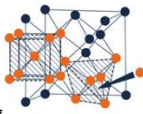
Surface exfoliation



AFM images (Atomic Force Microscopy)

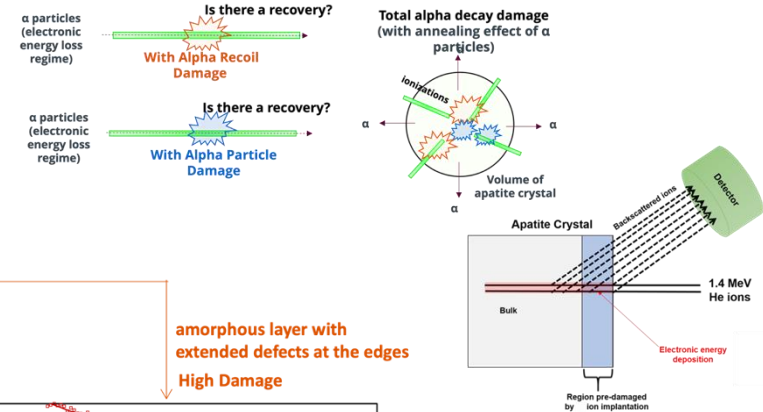
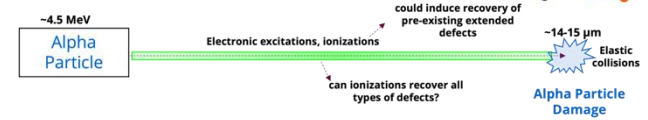
mosaic

MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ALPHA DANS LES APATITES - THERMOCHRONOLOGIE



Cinétique de recombinaison des défauts induite par excitation électronique

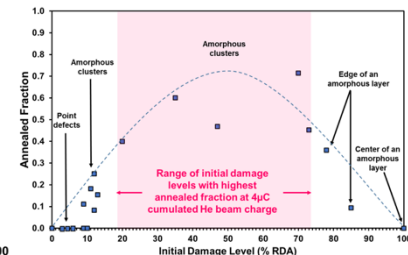
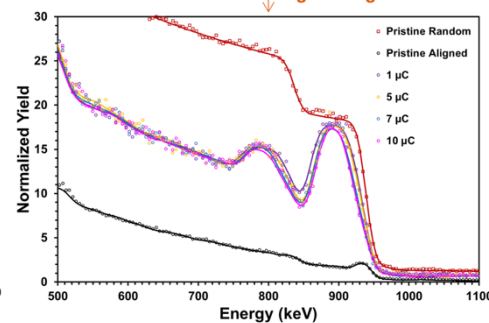
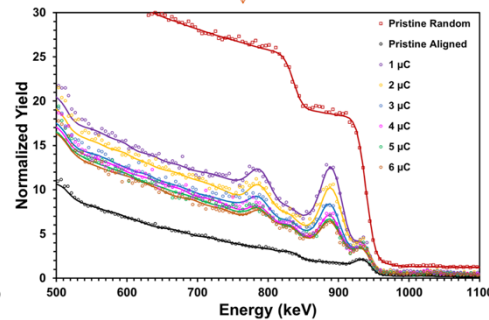
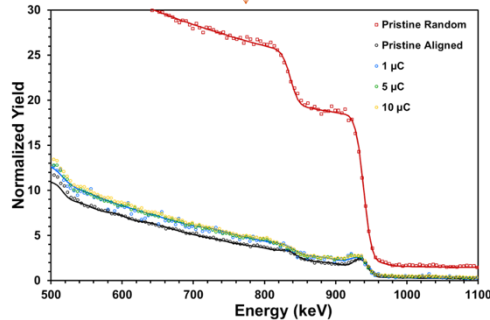
- Cristaux pré-endommagés, soit avec Bi 500 keV, soit He 30 keV
- Bombardement avec des He 1.4 MeV pour déposer de l'énergie électronique ET servir en RBS/C



$\Phi_{Bi} = 3 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$
Point defects
Low damage

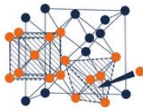
$\Phi_{Bi} = 5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$
Partially-amorphous layer
Medium Damage

amorphous layer with
extended defects at the edges
High Damage



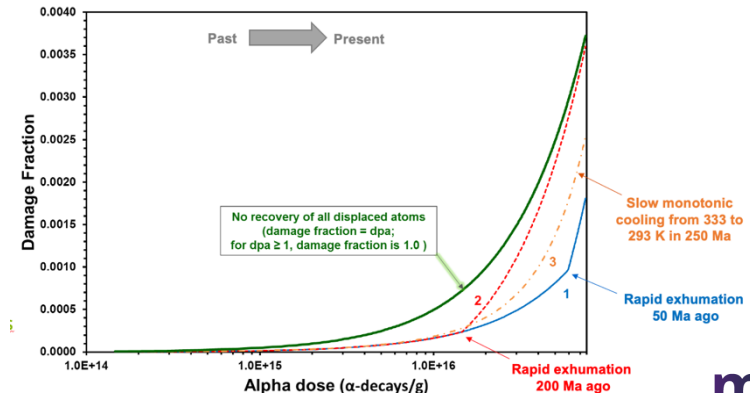
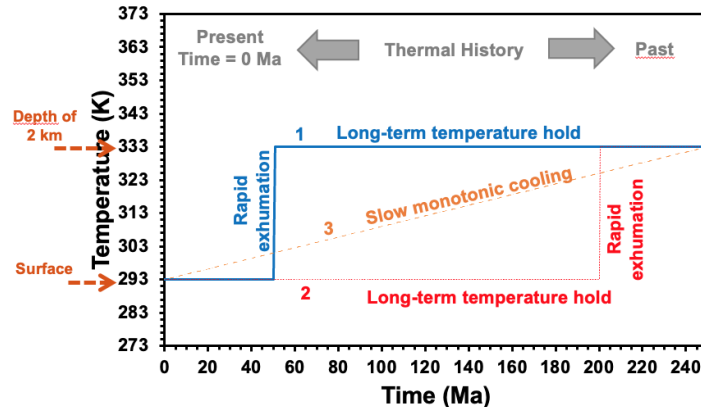
mosaic

MODÉLISATION DE L'ENDOMMAGEMENT ALPHA DANS LES APATITES - THERMOCHRONOLOGIE



Implications sur l'histoire thermique d'une roche/minéral

- Approche standard: le dpa est pris comme mesure de l'endommagement ; pas de recombaison, pas d'effet thermique
- Simulation sur accélérateur quantifie directement l'endommagement du solide (recombinaisons sous irradiation + effet de T°C)
- Histoire thermique simplifiée – apatite de 250 Ma (U 88 ppm, Th 6 ppm, Sm 13 ppm)

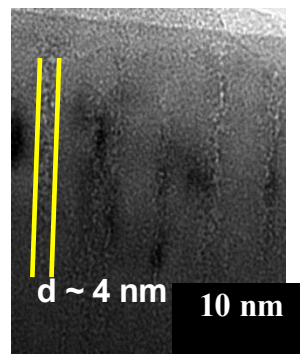
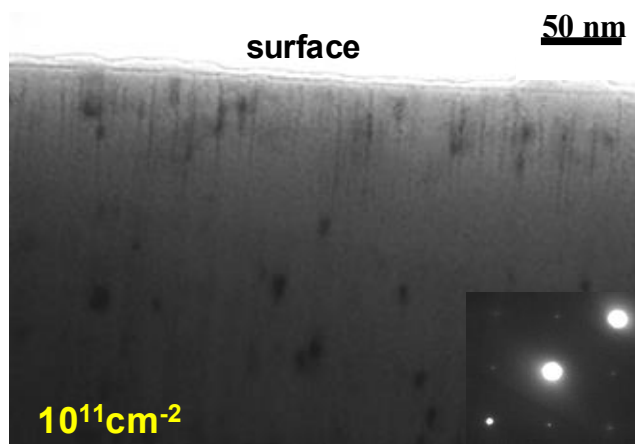


ÉVOLUTION STRUCTURALE DES OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE SOUS IRRADIATION AVEC DES IONS RAPIDES

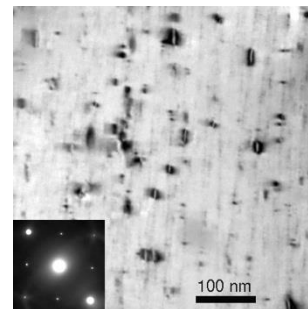


Investigation du rôle des processus électroniques

- Faible fluence – Cylindres de matière endommagée (traces dans ZrO_2 – Pb de 1 GeV)



Hollowed tracks at surface zoom (x5)



Filled tracks and dislocation loops along tracks

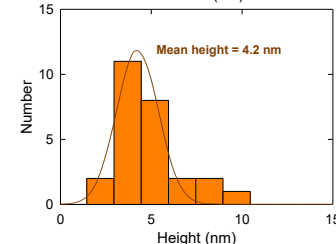
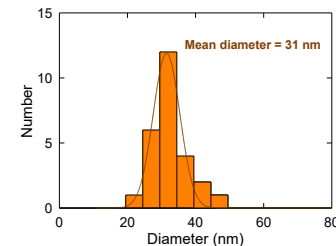
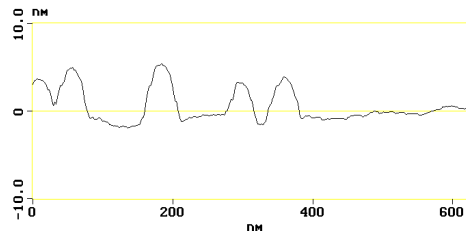
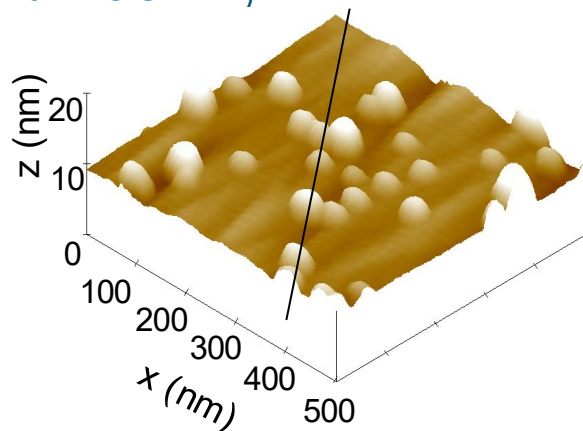
- Traces d'ions en volume du cristal ($d \sim 4$ nm)
- Déformation dans le voisinage des traces avec formation de boucles de dislocations
- Présence de traces 'évidées' en surface du cristal (extension spatiale ~ 100 nm)

ÉVOLUTION STRUCTURALE DES OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE SOUS IRRADIATION AVEC DES IONS RAPIDES



Investigation du rôle des processus électroniques

- Faible fluence – Cylindres de matière endommagée (traces dans UO_2 – Pb de – SME@GANIL)



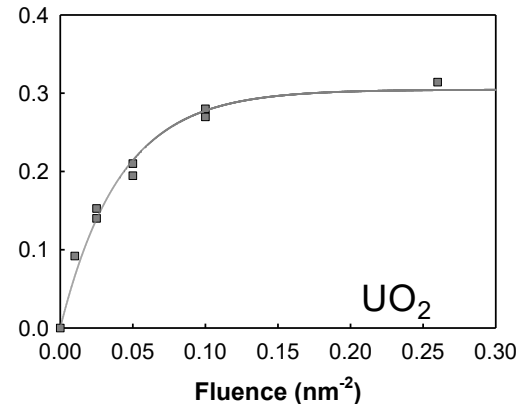
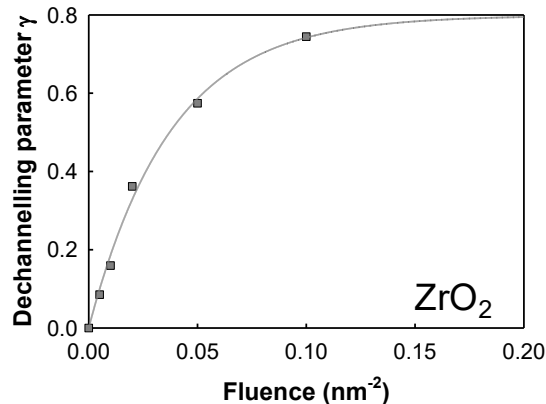
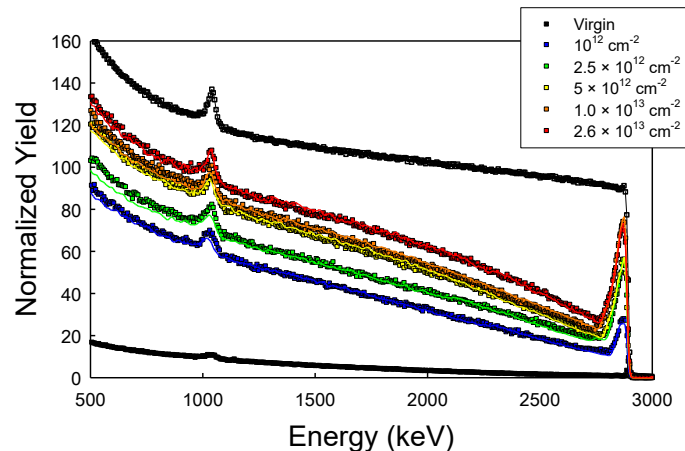
- Formation de collines en surface ($d \sim 30$ nm)
- Phénomènes s'expliquent par le modèle de la pointe thermique – 'éruption' de matière depuis la trace vers la surface (matière manquante dans la trace compatible avec le volume de matière éjectée)

ÉVOLUTION STRUCTURALE DES OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE SOUS IRRADIATION AVEC DES IONS RAPIDES



Investigation du rôle des processus électroniques

- Accroissement de la fluence – Recouvrement des traces – évolution microstructurale – Nature des défauts



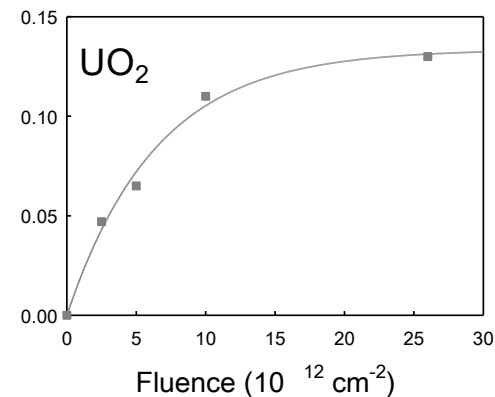
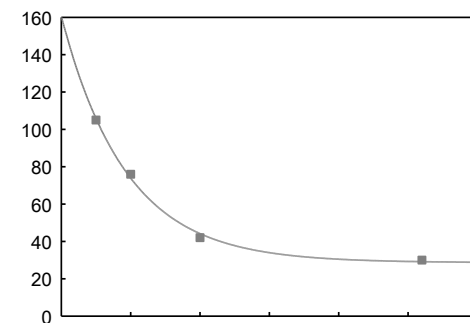
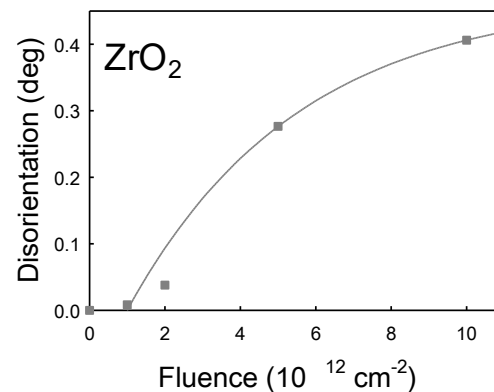
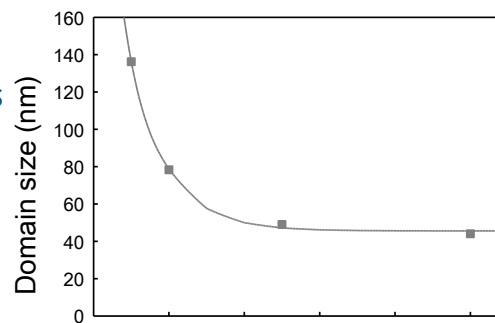
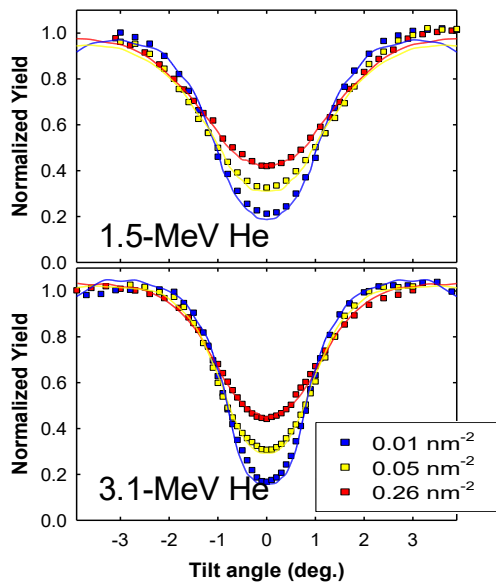
- Modèle d'impact direct: $\gamma(\Phi) = \gamma^s [1 - \exp(-\sigma\Phi)]$
- ZrO_2 $\sigma = 26 \text{ nm}^2$ ($R = 2.9 \text{ nm}$) ; UO_2 $\sigma = 24 \text{ nm}^2$ ($R = 2.8 \text{ nm}$)

ÉVOLUTION STRUCTURALE DES OXYDES DE STRUCTURE FLUORINE SOUS IRRADIATION AVEC DES IONS RAPIDES

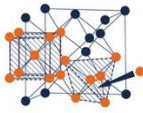


Investigation du rôle des processus électroniques

- Diffraction des Rayons X θ - 2θ rocking curves
 - taille des domaines cohérents de diffraction
 - désorientation des domaines cohérents ($\Lambda_{\perp}$, δ_{tilt})

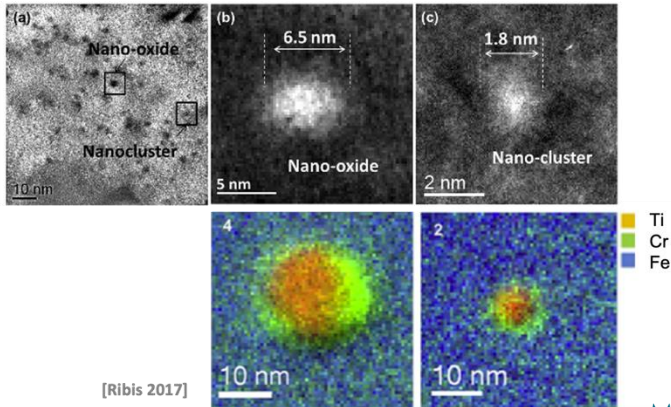
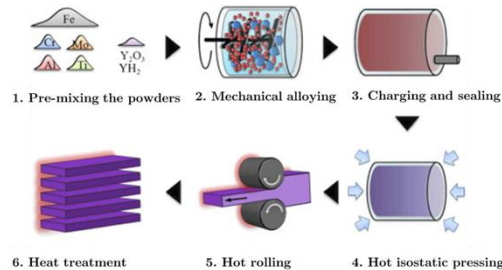


SYNTHÈSE DE NOUVEAUX MATÉRIAUX - FORMATION D'AMAS D'OXYDES DANS LES ACIERS ODS



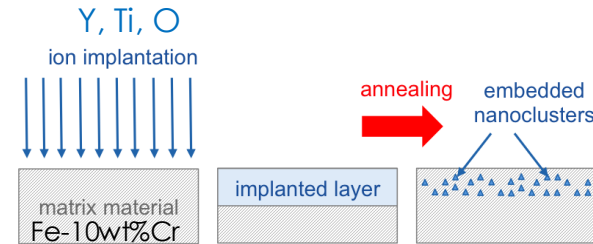
Elaboration conventionnelle

- Broyage de poudres et traitements thermiques

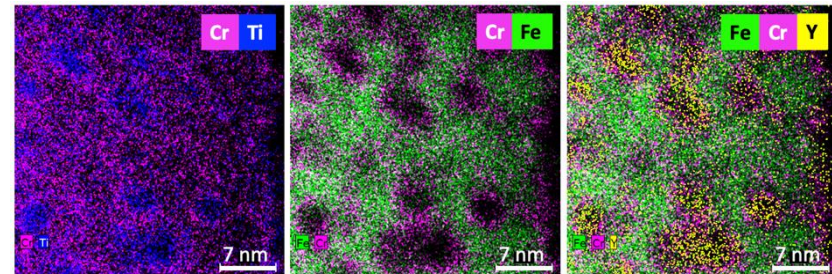


Synthèse par faisceaux d'ions

- Contrôle des paramètres
- Nano-oxydes similaires (composition, structure)
- Accès aux mécanismes de formation

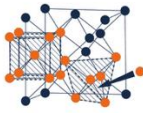


mosaic



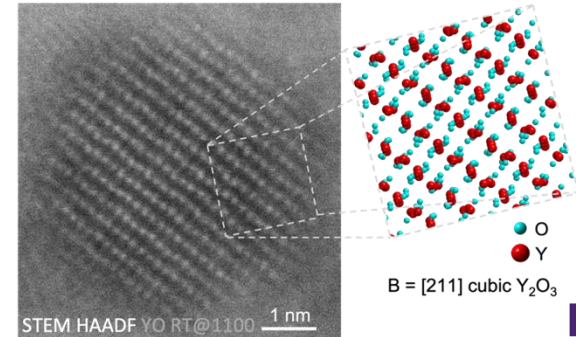
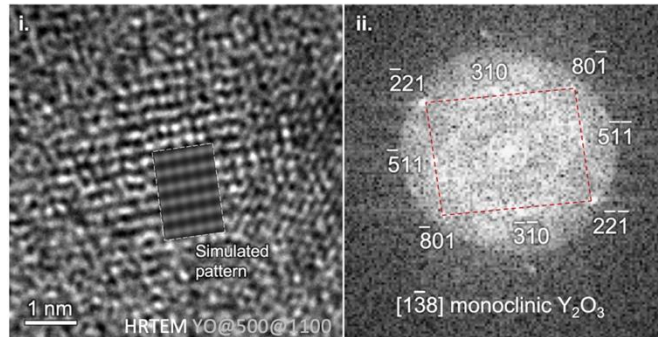
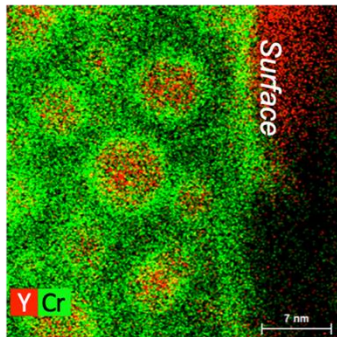
Y, Ti, O @ RT, recuit 1100°C, détecteur STEM-EDX 4X @ PANAM, C2N

SYNTHÈSE DE NOUVEAUX MATÉRIAUX - FORMATION D'AMAS D'OXYDES DANS LES ACIERS ODS - MÉCANISMES



Synthèse par implantation dans FeCr- vers la compréhension des mécanismes de précipitation

- Structure fine des nano-précipités dans différentes conditions de formation
 - Reproduction des caractéristiques des ODS conventionnels (composition, structure cristallographique, coquille de Cr)
 - Information sur la formation et l'évolution et des nano-amas, e.g. coquille de Cr formée par diffusion du Cr initialement présent dans les amas, rôle du Cr dans la précipitation des amas
 - Perspective d'optimisation de la microstructure et des propriétés des alliages



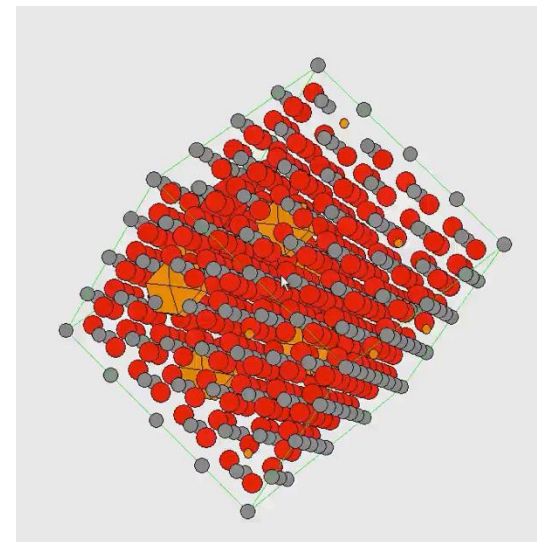
mosaic

CRISTALLOGRAPHIE PAR FAISCEAUX D'IONS



Investigation de la structure cristalline de U_4O_9 – structure fluorine déformée

- Les atomes O forment des agrégats d'anions qui intégrés dans la matrice fluorine
- Ces agrégats sont documentés dans les oxydes UO_{2+x} et U_4O_{9-y} et prennent différentes formes (agrégats de Willis; agrégats cuboctaédriques type anti-prisme), basés sur des mesures de diffraction neutronique
- A l'inverse, les techniques spectroscopiques (EXAFS) favorisent la formation de liaison U-O de type oxo très courtes associées à la formation de U^{6+} (les liaisons courtes d_{U-O} sont vue en chimie de coordination) et une partie vitreuse (amorphe)

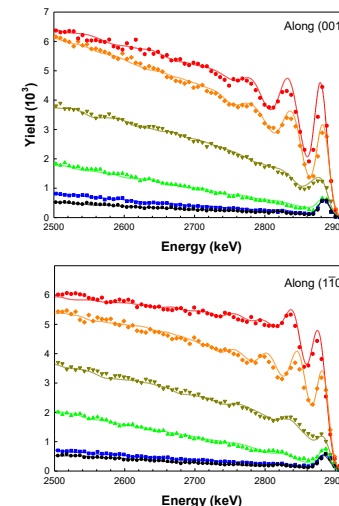
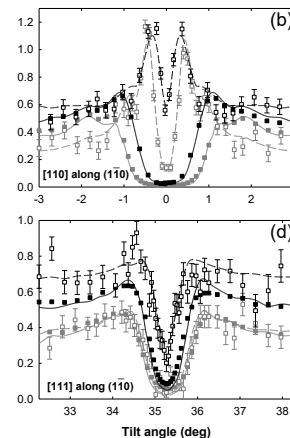
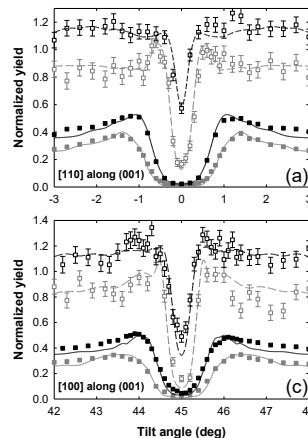
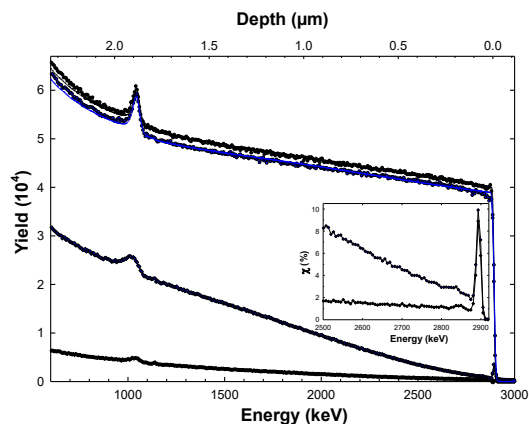


CRISTALLOGRAPHIE PAR FAISCEAUX D'IONS



Les deux descriptions sont fondamentalement irréconciliables –
Canalisation d'ions pour résoudre cette énigme

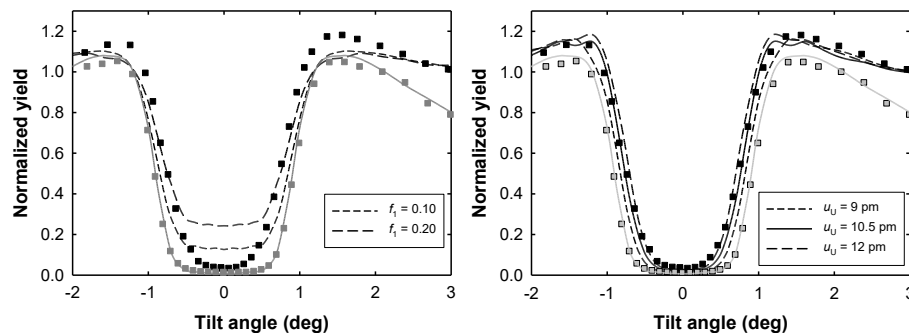
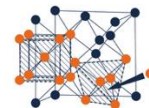
- Cristallographie et canalisation (MOSAIC) et simulations Monte Carlo (code McChasy, NC)
 - Synthèse d'un monocristal U_4O_9 (monocristal UO_2 + poudre U_3O_8)
 - Sensibilité aux distortions des rangées et plans atomiques (ordre à moyenne et longue distance)
 - Sensibilité aux atomes déplacés de leurs positions cristallographiques régulières (ordre à courte distance)



Angle (beam, [110] axis): $\psi = 0.0; 0.2; 0.4; 0.6; 1.2; 3.0$

CRISTALLOGRAPHIE PAR FAISCEAUX D'IONS

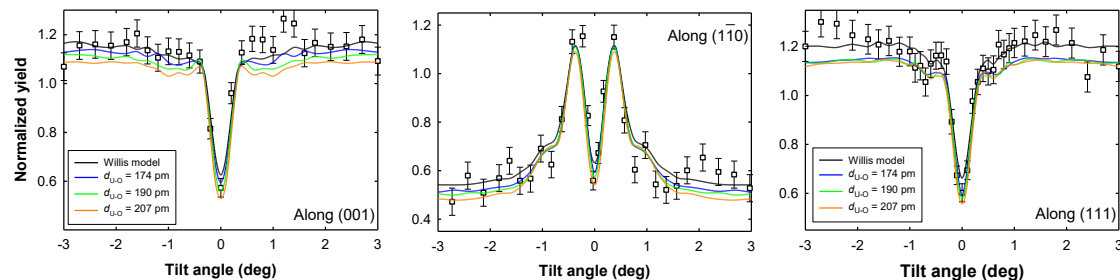
A la recherche d'une région amorphe



Absence de zone vitreuse !

Courbe de balayage angulaire enregistrée à 13° du plan (1-10) autour de l'axe [110]

Agrégats d'anions (atomes d'oxygène): liaison oxo et agrégats de Willis



Absence de liaison courte U-O bonds: pas de groupes oxo

Bon accord avec les agrégats de Willis

Agrégats de Willis: O' ($\frac{1}{2} + v, \frac{1}{2} + v, \frac{1}{2}$) et O'' ($\frac{1}{2} + w, \frac{1}{2} + w, \frac{1}{2} + w$)

Meilleur accord: $v = 0.10$; $w = 0.125$ (bon accord avec les neutrons: $v = 0.10-0.14$; $w = 0.06-0.15$)

CRISTALLOGRAPHIE PAR FAISCEAUX D'IONS

Description cristallographique

Variable positional parameters are a_1 - a_4 and b_1 - b_8 .

Atom	Site	x	y	z
U1	16(c)	0	0	0
U2	24(d)	$1/4+a_1$	0	$1/4$
U3	48(e)	$1/8$	$1/8-a_1$	$1/4$
U4	24(d)	a_2	0	$1/4$
U5	48(e)	$7/8$	0	$1/8-a_2$
U6	48(e)	$-a_3$	$1/8-a_3$	$3/8-a_3$
U7	48(e)	$-a_4$	$1/8-a_4$	$1/8+a_4$
O1	48(e)	$7/8+b_1$	b_1	$1/4+b_2$
O2	48(e)	$7/8+b_1$	b_2	$1/4+b_1$
O3	48(e)	$7/8+b_2$	b_1	$1/4+b_1$
O4	16(c)	$1/16$	$1/16$	$1/16$
O5	16(c)	$3/16$	$3/16$	$3/16$
O6	48(e)	$1/16-b_3$	$3/16-b_3$	$3/16+b_3$
O7	48(e)	$1/16+b_4$	$1/16+b_5$	$3/16-b_5$
O8	48(e)	$15/16+b_5$	$1/16+b_5$	$1/16-b_4$
O9	48(e)	$15/16-b_6$	$1/16-b_6$	$7/16+b_4$
O10	48(e)	$15/16+b_6$	$3/16+b_4$	$3/16-b_5$
O11	48(e)	$15/16-b_6$	$3/16+b_4$	$5/16-b_6$
O12	48(e)	$1/16+b_4$	$1/16-b_6$	$5/16-b_6$
O13	48(e)	$15/16-b_7$	$3/16-b_7$	$7/16+b_7$
Empty	12(b)	$7/8$	0	$1/4$
O15	48(e)	$7/8+b_8$	b_8	$1/4+b_8$

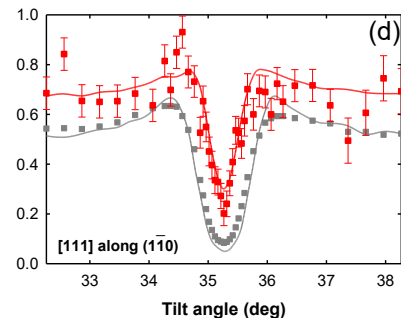
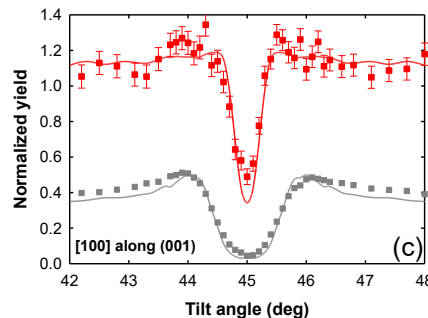
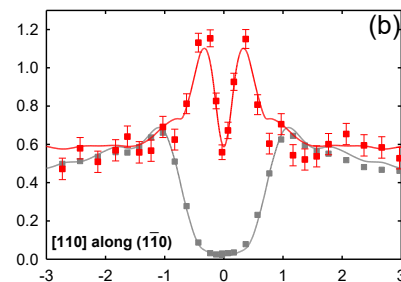
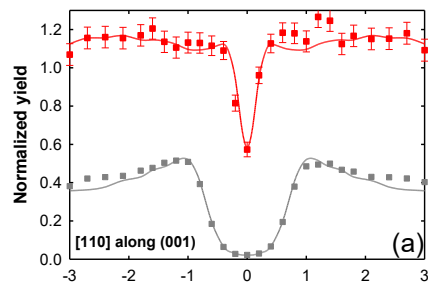
Paramètres libres

- 4 pour U
- 8 pour O

Paramètres positionnels

q_U , q_O , r_O

(facteurs multiplicatifs,
rayon du cuboctaèdre)



$$q_U = 1.8 \pm 0.1; q_O = 2.0 \pm 0.2; r_O = 308 \text{ pm}$$

U_4O_9 est un composé cristallin conventionnel

- Absence de zone amorphe dans la structure
- Absence de liaison courte U-O (groupements oxo)
- En bon accord avec les expériences de diffraction neutronique, avec $q_U = 1.8 \pm 0.1$; $q_O = 2.0 \pm 0.2$; $r_O = 308 \text{ pm}$

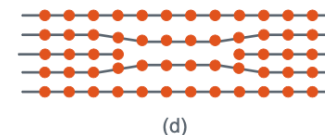
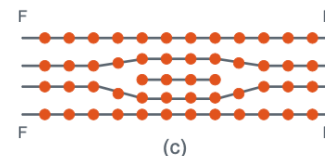
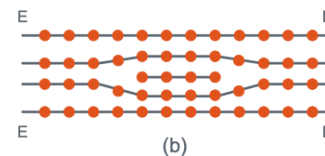
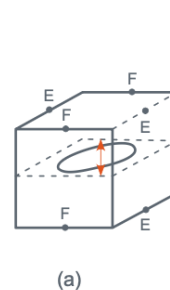
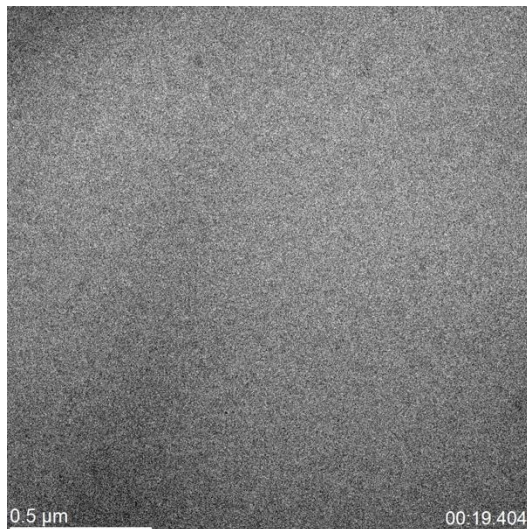


SIMULATION EXPERIMENTALE SUR ACCÉLÉRATEUR



Irradiation et caractérisation par Microscopie Electronique en Transmission *in situ*

- Modèle d'acier austénitique : Ni dopé C
- Irradiation avec des ions Ni 2 MeV
 - Régime des cascades de collisions atomiques



Boucles de dislocations, interstitielles (a, b, c) ou lacunaires (d)

- Comparaison avec les modèles d'évolution

PERSPECTIVES SCIENTIFIQUES ET INSTRUMENTALES



Nouvelle science

- Synergie ou le rêve d'un couplage SME GANIL avec un accélérateur de basse énergie – dépôt d'énergie électronique et atomiques 'purs' simultanément ou séquentiellement
- Couplage de l'irradiation ionique d'un solide avec d'autres phénomènes physico-chimiques (→ cf. [poster de Brice Lathuillère](#))

Nouveaux équipements

- Nécessité de caractérisations *in situ* sur les lignes de faisceau (structurales, chimiques, propriétés), e.g. :
 - Diffraction de rayons X *in situ* : projet SIXPAC sur l'accélérateur 2 MV ARAMIS de la plateforme MOSAIC
 - Renouvellement d'équipements coûteux, e.g. microscope électronique en transmission sur MOSAIC
- Importance de la diversité des éléments et énergies disponibles
- Nécessité de maintenir au meilleur niveau les installations existantes (maintenance, rénovation, personnel dédié)