

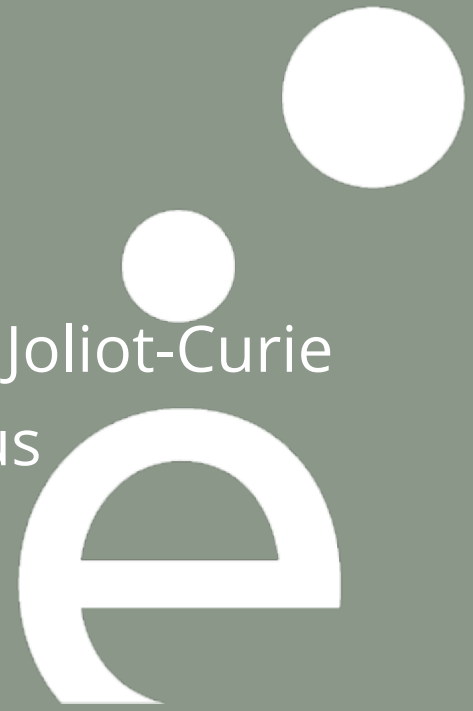
Journée Irradiation & Caractérisation

Caractérisation des Solides par Faisceaux d'Ions @ JANNuS-SCALP *Ion Beam Analysis*

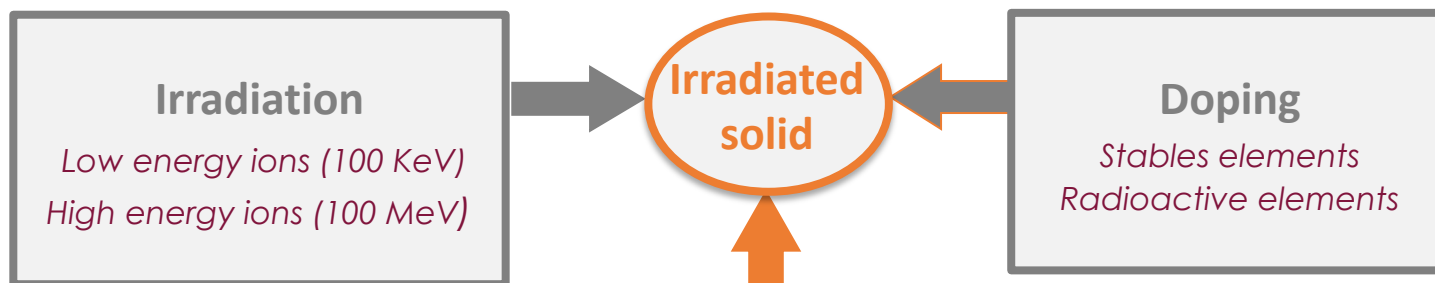
Frederico Garrido

Laboratoire de Physique des 2 Infinis Irène Joliot-Curie

Université Paris-Saclay-CNRS, Orsay Campus

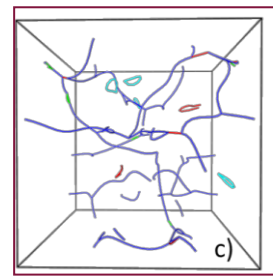
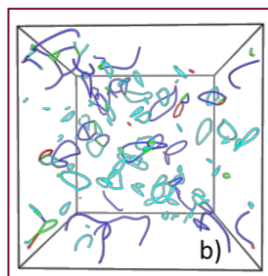


Faisceaux d'ions et microanalyse nucléaire



Irradiation effects

- Fission fragments
- α particles
- Recoil nucleus
- Radiolysis



Radionuclides retention

- Actinides
 - Fission products, He, H
- Nano-precipitates synthesis

Characterization (*ex & in situ*)

RBS, ERDA, NRA, PIXE

Ion channelling

diffractions, TEM,
Spectroscopies, ...

Irradiation-induced defects, atomic diffusion,
physical and chemical properties, ...
using JANNuS-SCALP platform



Analyse par faisceau d'ions



Ion Beam Analysis – international conference since 1973

Ions rapides monocinétiques

- Ions légers (le plus souvent): p , d , He
- Gamme d'énergie de l'ordre du MeV
- Technique de surface : épaisseur analysée de l'ordre du micron
- Conditions expérimentales très bien définies: géométrie d'irradiation et de détection, projectile, fluence
- Informations: analyse élémentaire (isotopique) quantitative et distribution en profondeur en surface et sub-surface
- Analyse essentiellement non destructive

Analyse par faisceau d'ions



Très vaste domaine d'applications, e.g.

- Science des matériaux: semi-conducteurs, microélectronique, énergie, nucléaire, films minces, spatial
- Sciences de la Terre
- Sciences du patrimoine
- Biologie: cellules
- Environnement: aérosols



Interaction ion accéléré-atome

- Force d'interaction électromagnétique et nucléaire: détermination de la composition élémentaire et ou isotopique d'un échantillon
- Energie potentielle d'interaction de type Coulomb, modifiée par l'écrantage des électrons et l'échange de charges (perte ou gain d'électrons)

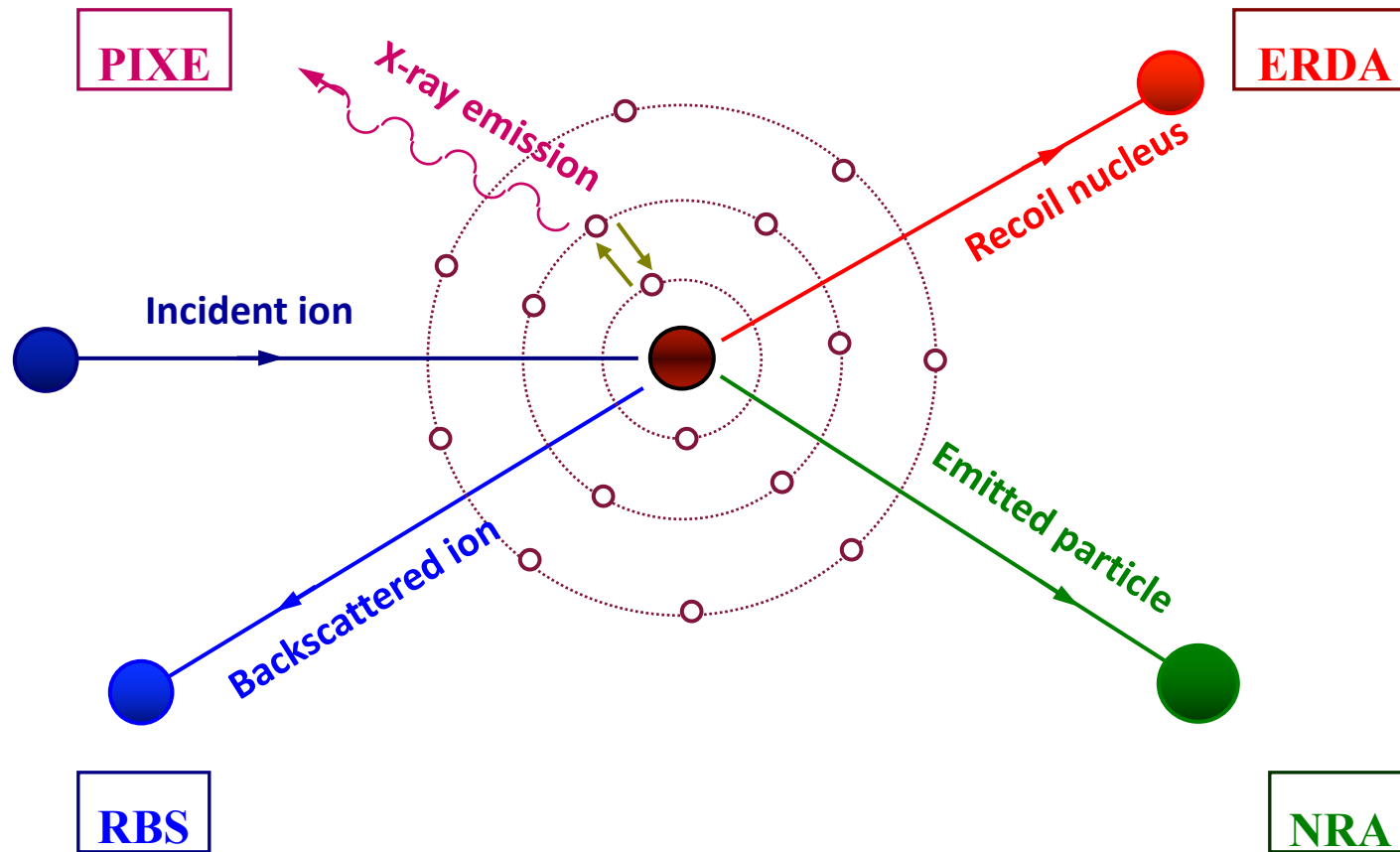
Processus principaux

- Collisions atomiques élastiques
- Collisions atomiques inélastiques avec excitation électronique
- Collisions nucléaires élastiques
- Collisions nucléaires inélastiques avec excitation nucléaire

Analyse par faisceau d'ions



Evènements à très petit paramètre d'impact (0.01-10 pm)



Analyse par faisceau d'ions

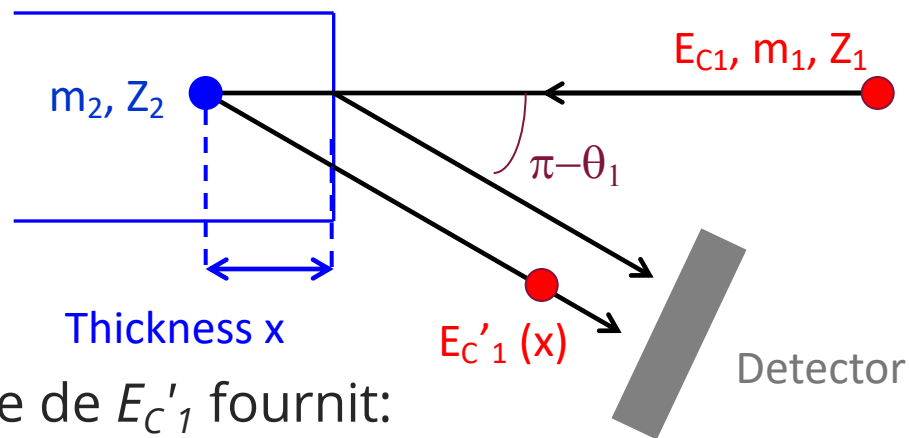


Interaction ion-atome – Principales méthodes

Méthode	Particule détectée	Information	Sensibilité mono-couche	Résolution en profondeur	Profil en profondeur
RBS	Ions diffusés (H ⁺ , He ⁺)	Éléments: Be-U	10-10 ⁻²	10 nm	Via perte d'énergie
ERDA	Atome de recul	H, d, He	1	50 nm	Via perte d'énergie
PIXE	Rayons X	Éléments: Na-U	aucune	100-1000 nm	aucun
NRA	Particule émise	Éléments légers: H-F	0.1	10-1000 nm	Via perte d'énergie

Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford – Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS)

Principe: $Z_1, m_1, E_{C1}, \theta_1$ fixés



– Mesure de $E_{C'1}$ fournit:

Masse m_2 des atomes rétrodiffuseurs

Profondeur à laquelle ils sont situés

– Nombre d'ions rétrodiffusés par un type donné d'atomes (à nombre de projectile donné) donne (*via* section efficace Rutherford)

Mesure absolue d'un type donné d'atomes

Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford – Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS)



Principe: $Z_1, m_1, E_{C1}, \theta_1$ fixés

–Nature des atomes

–Facteur cinématique K

$$T = T_M \sin^2\left(\frac{\theta^*}{2}\right) = \frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{C1} \sin^2\left(\frac{\theta^*}{2}\right)$$

$$K\left(\frac{m_1}{m_2}, \theta^*\right) = \frac{E_{C1} - T}{E_{C1}} = 1 - \frac{4m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} \sin^2\left(\frac{\theta^*}{2}\right)$$

–Quantité (stœchiométrie, traces)

–Section efficace

–Très sensible pour de fortes Z

–Section efficace de Coulomb

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{b^2}{16} \frac{1}{\sin^4\left(\frac{\theta^*}{2}\right)} = \frac{1}{16} \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4\pi\epsilon_0 \frac{1}{2} \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} v_1^2} \right)^2 \frac{1}{\sin^4\left(\frac{\theta^*}{2}\right)}$$

–Profondeur (profils)

–Perte d'énergie électronique

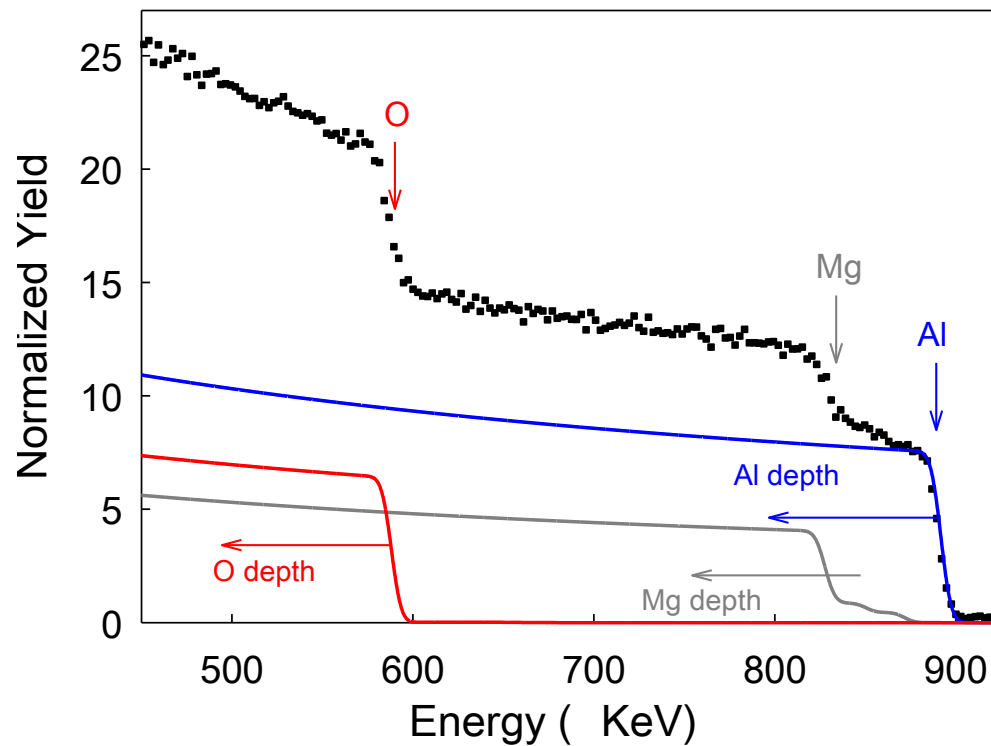
$$\langle E_{C1}(x) \rangle = K(E_{C1} - \langle \Delta E(x) \rangle_{in}) - \langle \Delta E(x) \rangle_{out}$$

$$\Leftrightarrow \langle E_{C1}(x) \rangle \approx KE_{C1} - x \left[K \left(\frac{dE}{dx} \right) (E_{C1}) + \frac{1}{|\cos\theta_1|} \left(\frac{dE}{dx} \right) (KE_{C1}) \right]$$

$$\Leftrightarrow \langle E_{C1}(x) \rangle = KE_{C1} - xS \quad (S \text{ energy-loss factor})$$

Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford – Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS)

Spinnelle (MgAl_2O_4) analysé avec des ions He de 1.6 MeV

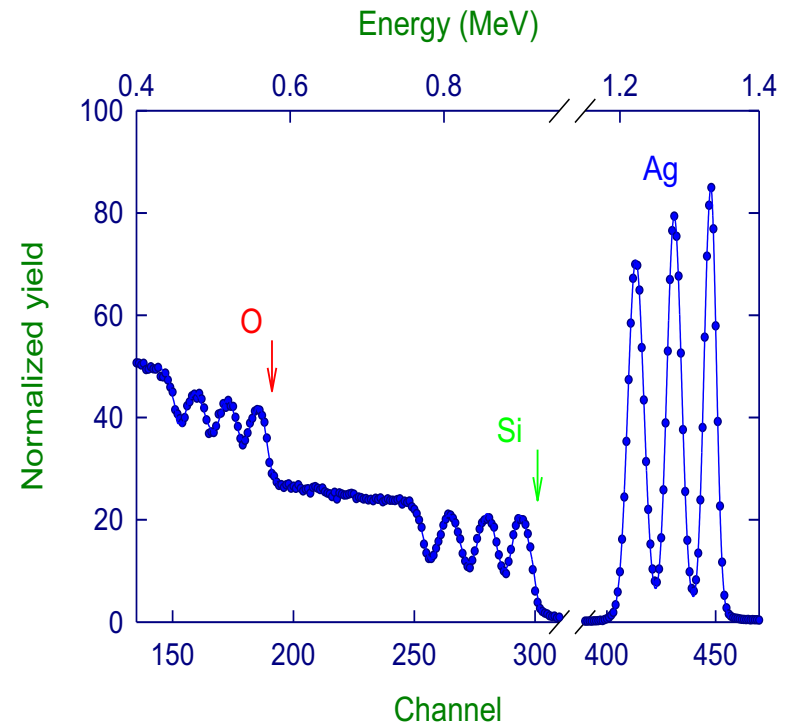


Spectrométrie de Rétrodiffusion Rutherford – Rutherford Backscattering Spectrometry (RBS)



Multicouches SiO₂/Ag pour des applications opto-électroniques

- He 2.4 MeV
- Couches SiO₂/Ag 150 nm/50
- Mesure d'épaisseurs



Spectrométrie de Rétrodiffusion Non Rutherford – Non Rutherford Backscattering Spectrometry

Peu de sensibilité pour des éléments légers en RBS

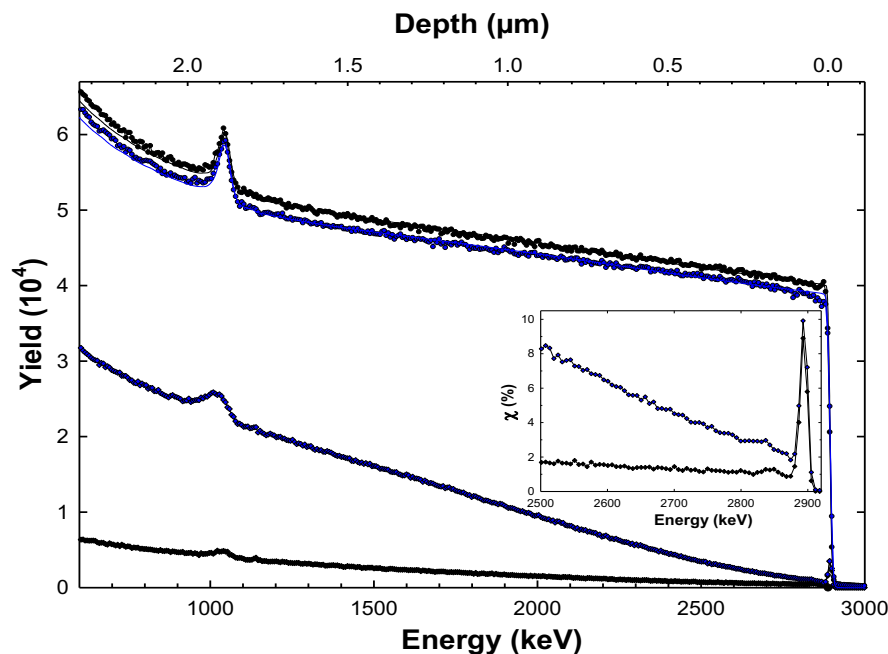
Utilisation de réactions nucléaires résonantes:
franchissement de la barrière coulombienne,
augmentation de section efficace pour les éléments
légers

- Avantages: détection simultanée des éléments lourds (RBS) et légers (NRBS)
- Difficultés: absence d'expression analytique simple de la section efficace (littérature ou mesures sur des standards nécessaires)

Spectrométrie de Rétrodiffusion Non Rutherford – Non Rutherford Backscattering Spectrometry

Oxydes d'uranium: réaction nucléaire élastique résonante $^{16}\text{O}(\alpha, \alpha)^{16}\text{O}$ à 3.034 MeV ($\Gamma = 9.7$ keV)

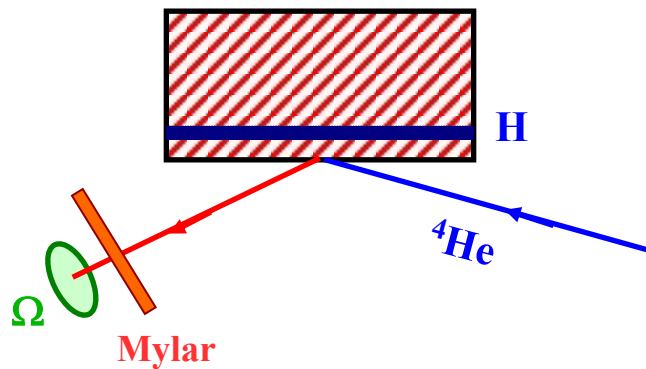
- Information sélective sur les deux sous-réseaux U et O
- Energie du faisceau détermine la profondeur sondée



Spectrométrie de Rétrodiffusion Non Rutherford – Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA)

Principe: (presque) la même physique que la RBS
mais détection de l'atome de recul

- Energie transférée

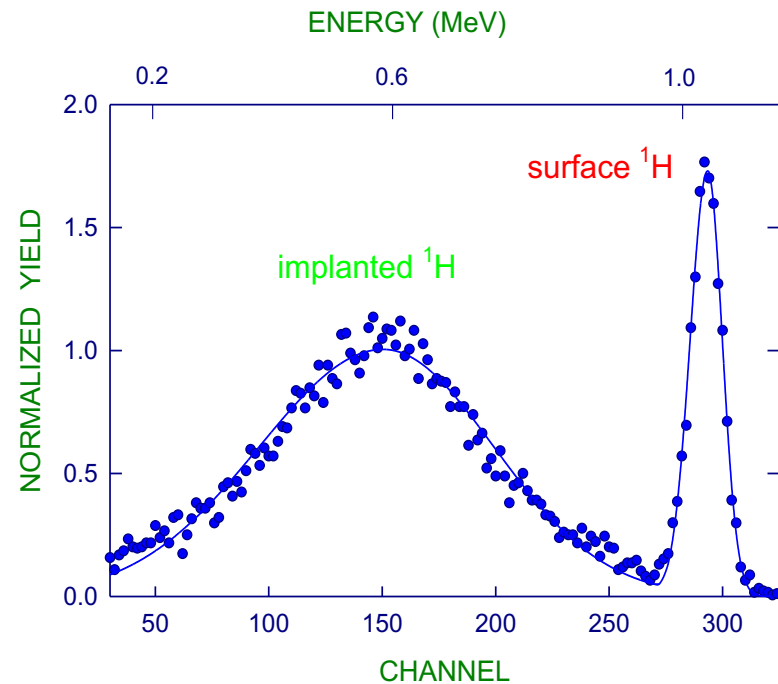
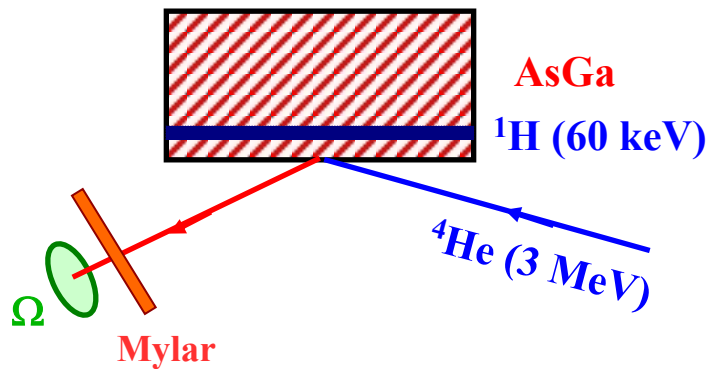


$$\begin{cases} T = T_M \sin^2\left(\frac{\theta^*}{2}\right) = T_M \cos^2 \theta_2 \\ T_M = \frac{4 m_1 m_2}{(m_1 + m_2)^2} E_{c1} \end{cases}$$

- Difficultés
 - Détecteur accessible aux ions diffusés par l'avant (nécessite un absorbeur)
 - Section efficace non Rutherford sur les atomes légers

Spectrométrie de Rétrodiffusion Non Rutherford – Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA)

Principe: (presque) la même physique que la RBS
mais détection de l'atome de recul

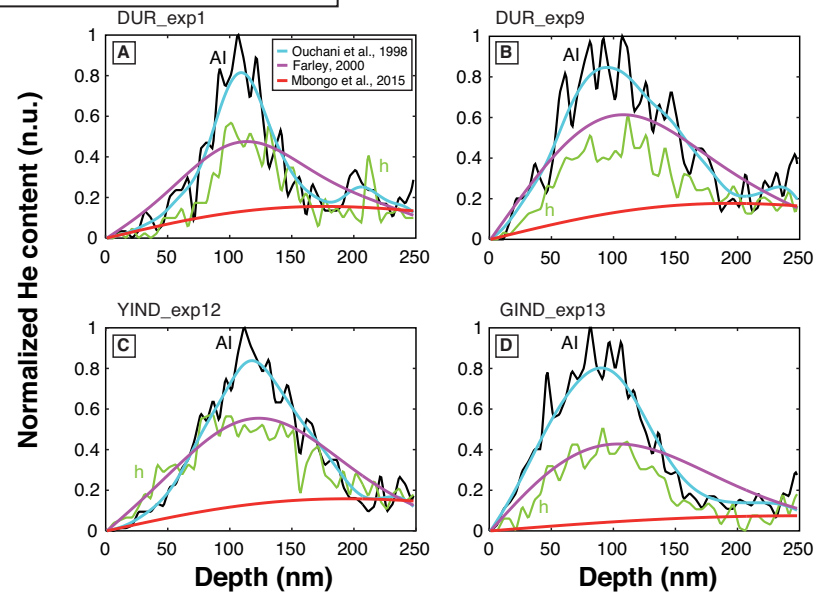
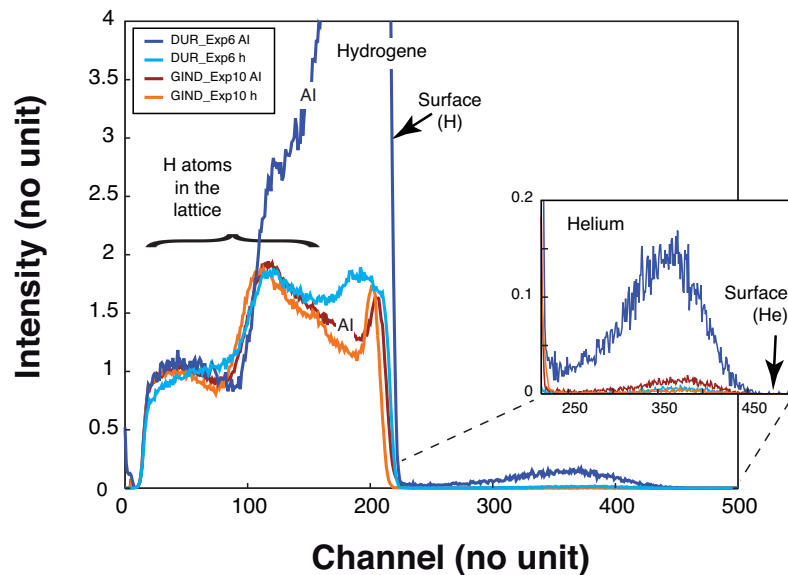
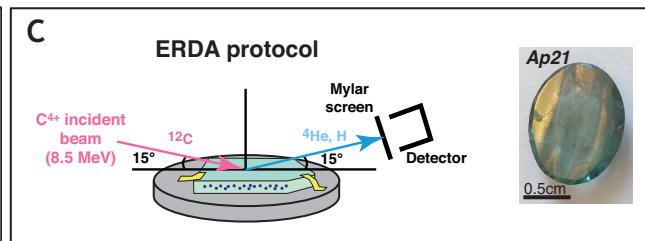
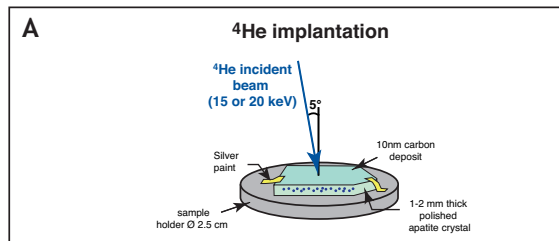


L. Thomé et al.

Spectrométrie de Rétrodiffusion Non Rutherford – Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA)



Comportement de l'hélium dans les apatites

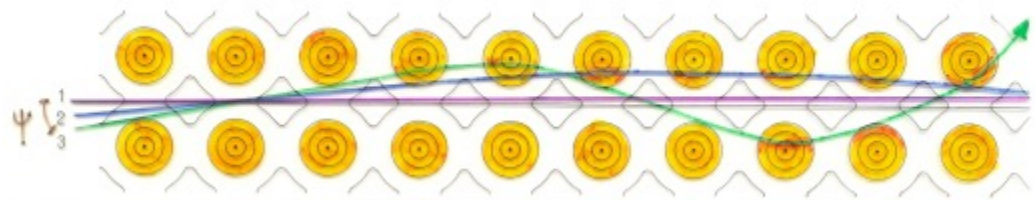
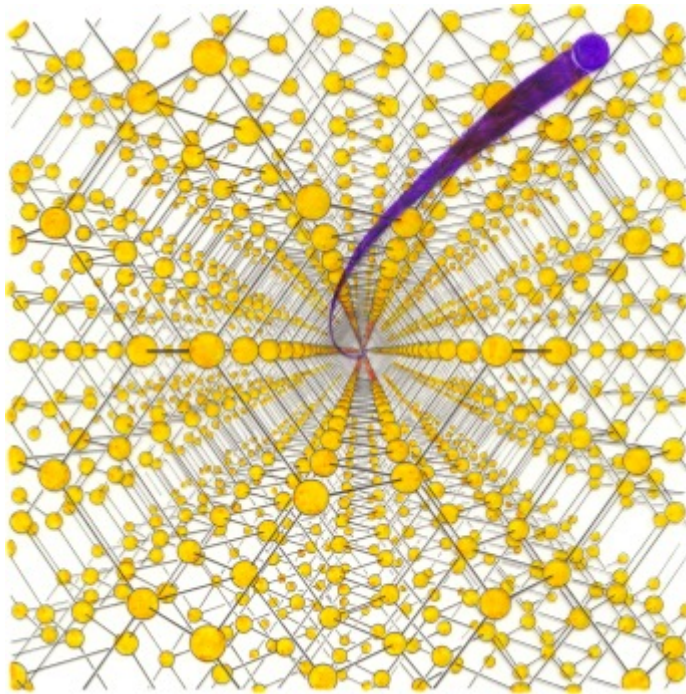


C. Gérin et al. *Geochimica et Cosmologica Acta* (2017)

Canalisation d'ions légers



Guidage des particules le long des directions (ou des plans) de grande symétrie d'un cristal



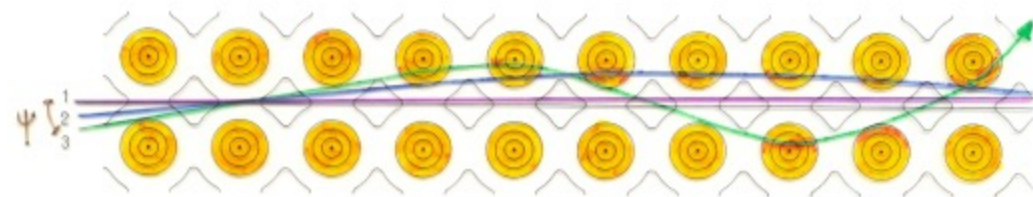
- Spécifique des cibles monocristallines
- Ions (chargés positivement) piégés dans une boîte de potentiel créée par les rangées atomiques (noyaux)
- Le cristal n'est pas vu comme un réseau de diffraction mais comme composé de rangées et de plans atomiques - ion = sonde locale qui se propage dans les canaux (longueur d'onde 10^{-14} m)

W. Brandt, Scientific American **218** (1968)

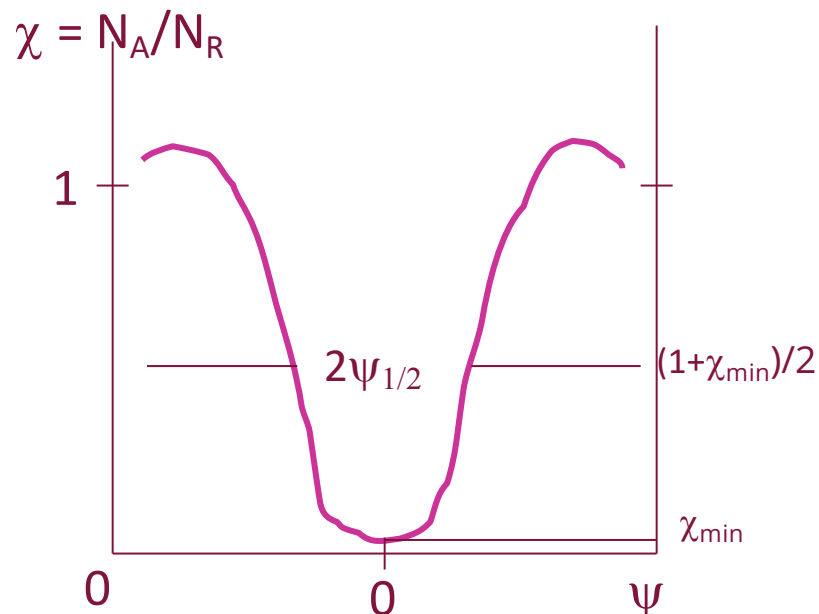
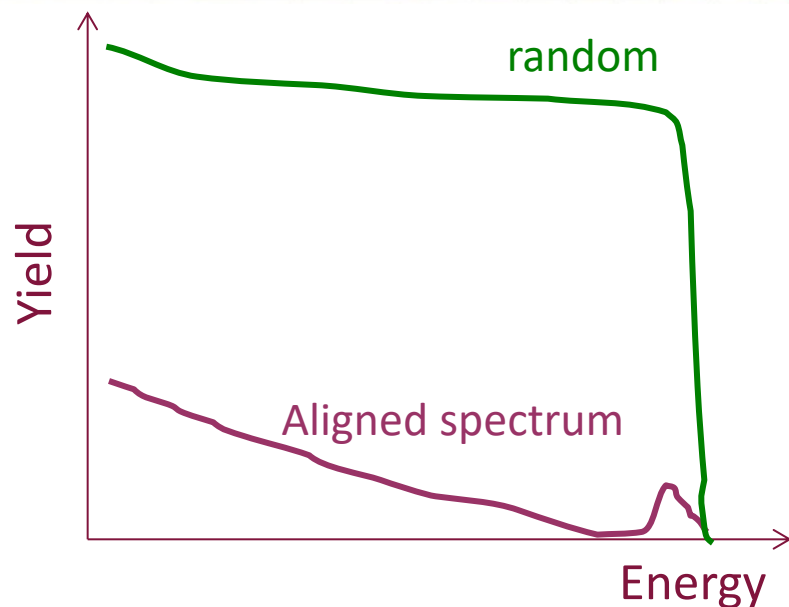
Canalisation d'ions légers – RBS/C



Guidage des particules le long des directions (ou des plans) de grande symétrie d'un cristal



- Canalisation couplée avec RBS, NRA (PIXE)
- Très forte diminution de la probabilité d'interaction attendue



Canalisation d'ions légers



Nombreuses Applications potentielles

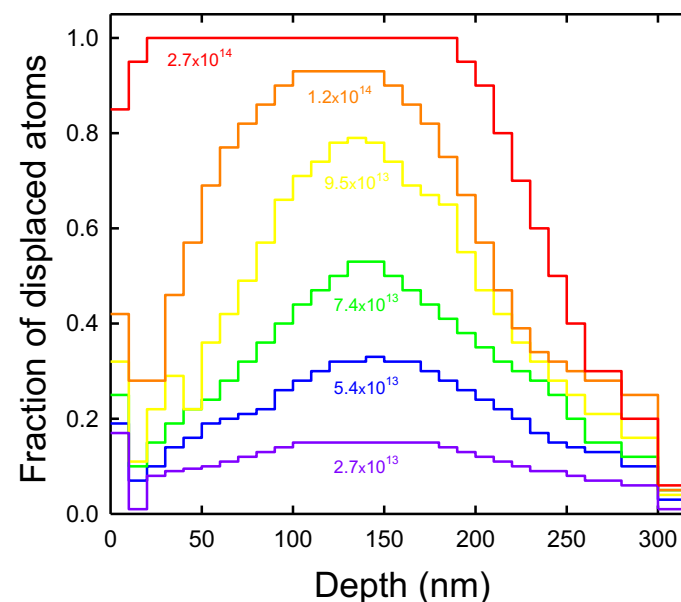
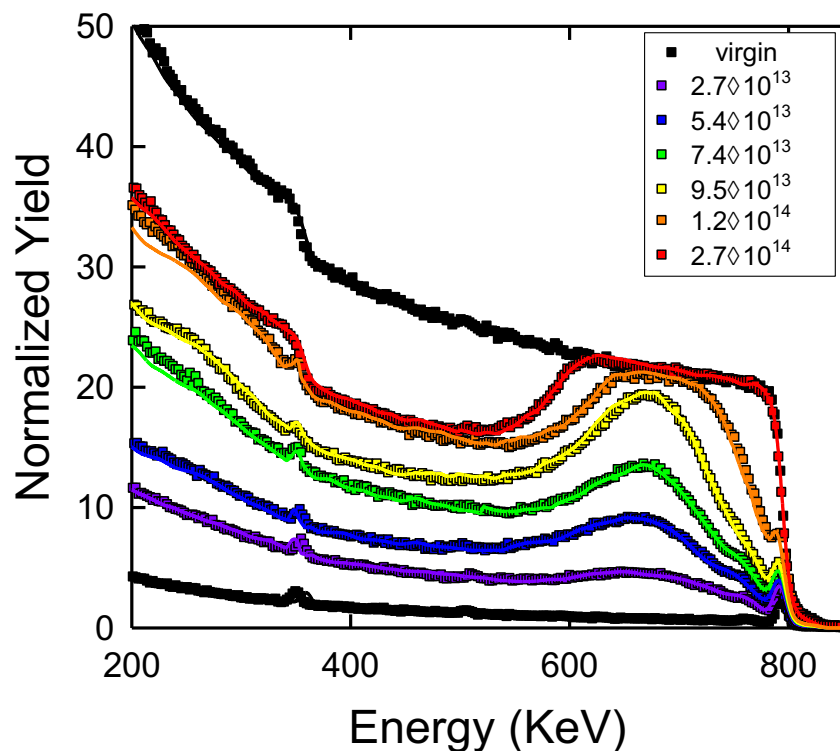
- Orientation cristalline et structure cristalline
- Localisation d'éléments étrangers
- Structure des surfaces et interfaces
- Imperfections du réseau cristallin: vibrations thermiques, mosaïcité
- Dommage d'irradiation (nature, distribution)
- Mesure de temps de vie de noyaux
- Cristaux courbes - Guidage des ions très énergétiques (GeV)

Canalisation d'ions légers – Mesure de l'endommagement



SiC irradié avec des ions I de 700 keV

- *In situ* irradiation et caractérisation @JANNuS-SCALP

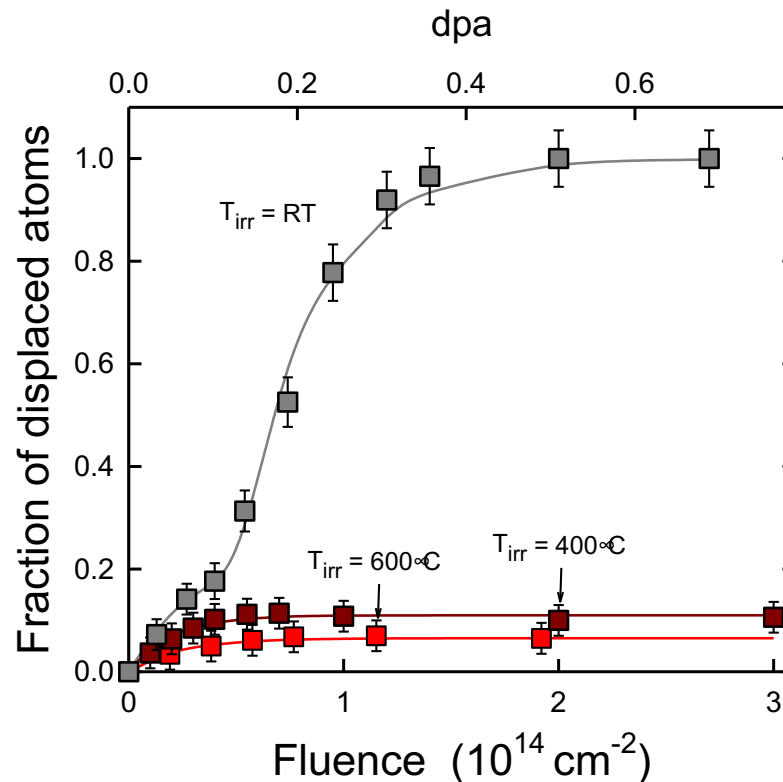


Canalisation d'ions légers – Mesure de l'endommagement



SiC irradié avec des ions I de 700 keV

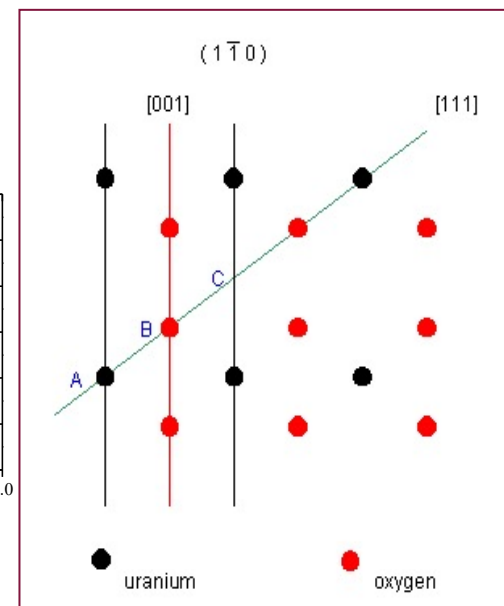
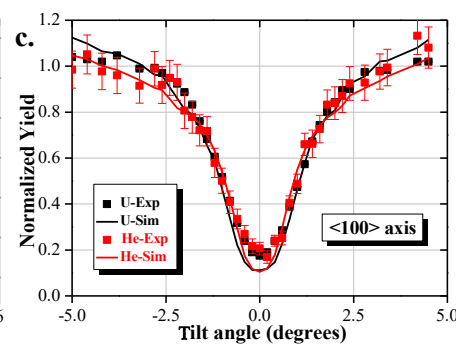
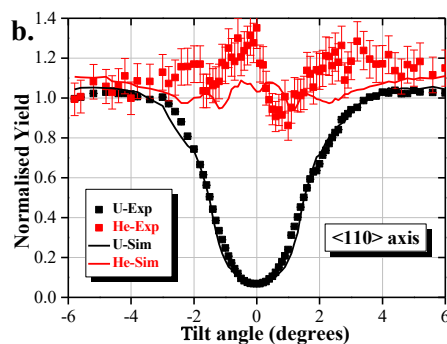
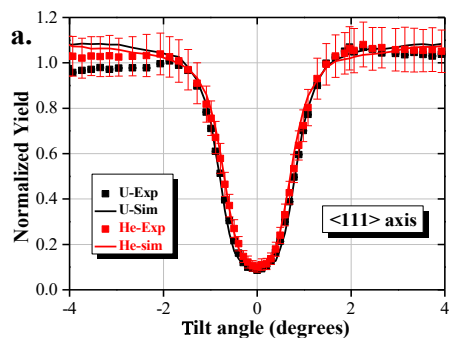
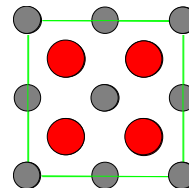
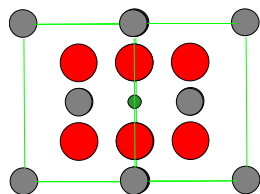
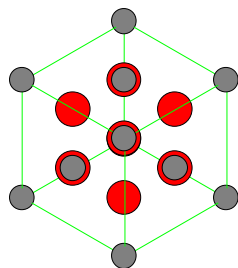
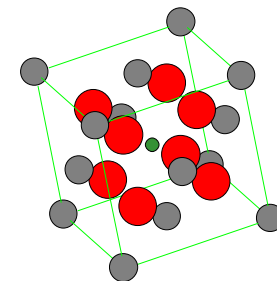
- Cinétique d'endommagement en fonction de T



Canalisation d'ions légers – Localisation d'impuretés



Hélium dans l'oxyde UO_2



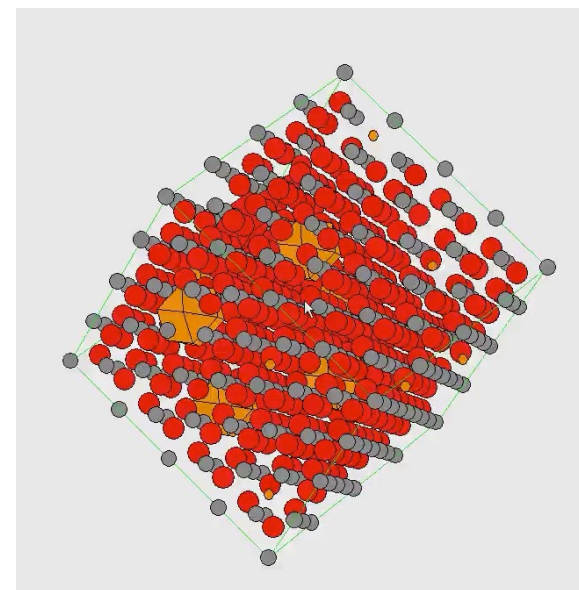
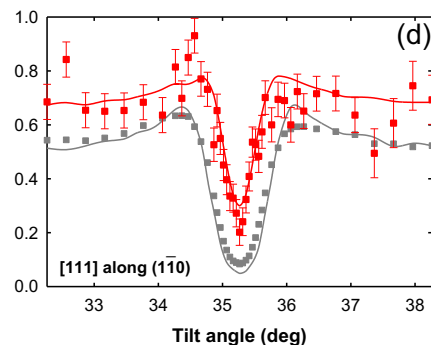
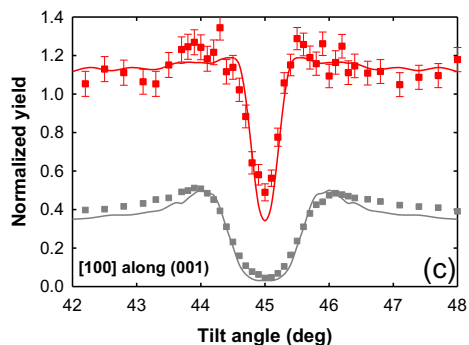
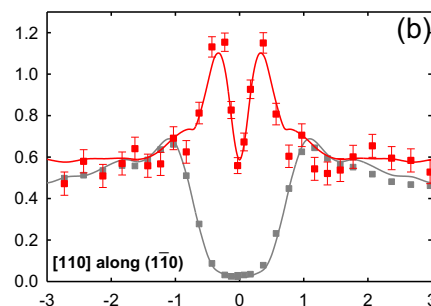
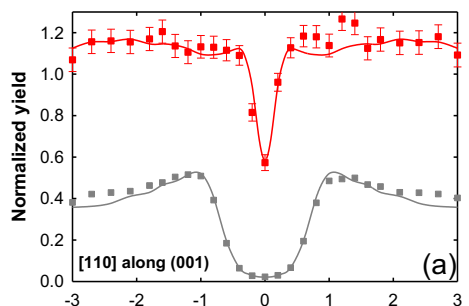
He localisés dans les sites octaédriques T. Belhabib *et al.* JNM 467 (2015) Pelletron (CEMHTI-Orléans)

Canalisation d'ions légers – Cristallographie dans l'espace direct



Arrangements atomiques dans l'oxyde U_4O_9

- Caractéristiques des cuboctaédres répartis dans la structure fluorine



$$q_U = 1.8 \pm 0.1; q_O = 2.0 \pm 0.2; r_O = 308 \text{ pm}; \text{F. Garrido, L. Nowicki, L. Thomé, PRB } \mathbf{74} \text{ (2006)}$$