

Diffractomètre de rayons X couplé à un accélérateur d'ions : le projet SIXPAC

Stéphanie Jublot-Leclerc, Cyril Bachelet, Aurélie Gentils
Et toute l'équipe projet

Université Paris-Saclay, CNRS/IN2P3, IJCLab, Orsay, France

avec pour partenaire le CEA Saclay

ISAS / DES / SRMP
JANNuS-Saclay



à travers le GIS JANNuS (J.-L. Béchade *et al*)



E&E Energie & Environnement
Energy & Environment

<https://energie.ijclab.in2p3.fr>

S. Jublot-Leclerc, A. Gentils, (A. Debelle)



Plateforme
JANNuS-SCALP



C. Bachelet, J. Bourçois, L. Delbecq, S. Hervé, F. Pallier

<https://jannus-scalp.ijclab.in2p3.fr>



- Le bureau d'étude mécanique (D. Reynet, S. Roset)
- Le service réalisations et montages mécaniques

+ les services support (SPR, STIRI, divisions financière et achats, service des marchés ...)

Plan de l'exposé

- **Pourquoi ce projet ? Les matériaux soumis à des faisceaux d'ions**
- Les techniques de caractérisation *in situ* disponibles dans le hall JANNuS-Orsay
- La Diffraction des Rayons X, une technique complémentaire
- Le projet SIXPAC en détails

SIXPAC: Setup for In situ X-ray diffraction coupled to an ion ACcelerator

Diffraction de rayons X *in situ* pour l'étude des modifications microstructurales de matériaux sous faisceaux d'ions

- Pourquoi ce projet ? Les matériaux soumis à des faisceaux d'ions

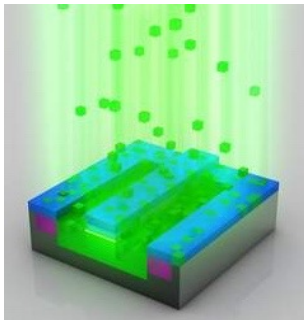
⇒ Comprendre, pour prédire le comportement des matériaux hors équilibre

dans la gamme qqs 100^{nes} keV à qqs MeV
⇒ dommage balistique et effets de surface

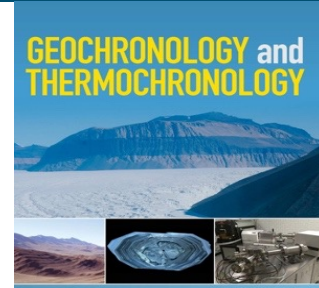
Les faisceaux d'ions sont utilisés pour de nombreuses applications, par exemple :

Modification des propriétés physiques

Dopage

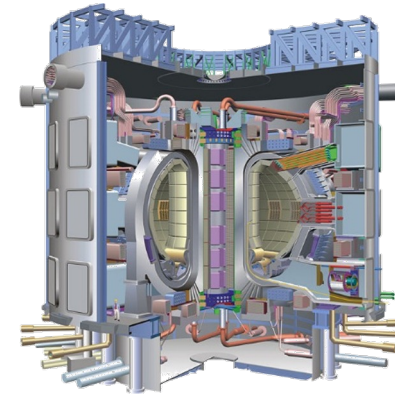


Datation des roches



Analyse de matériaux (IBA)

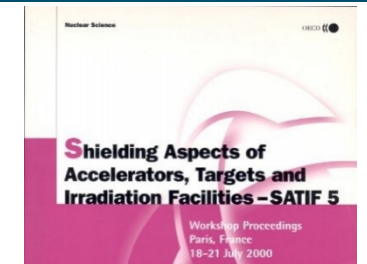
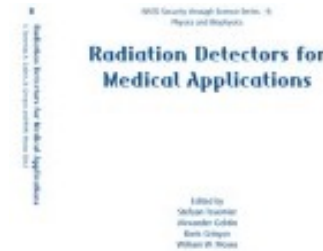
Simulation expérimentale d'environnements radiatifs



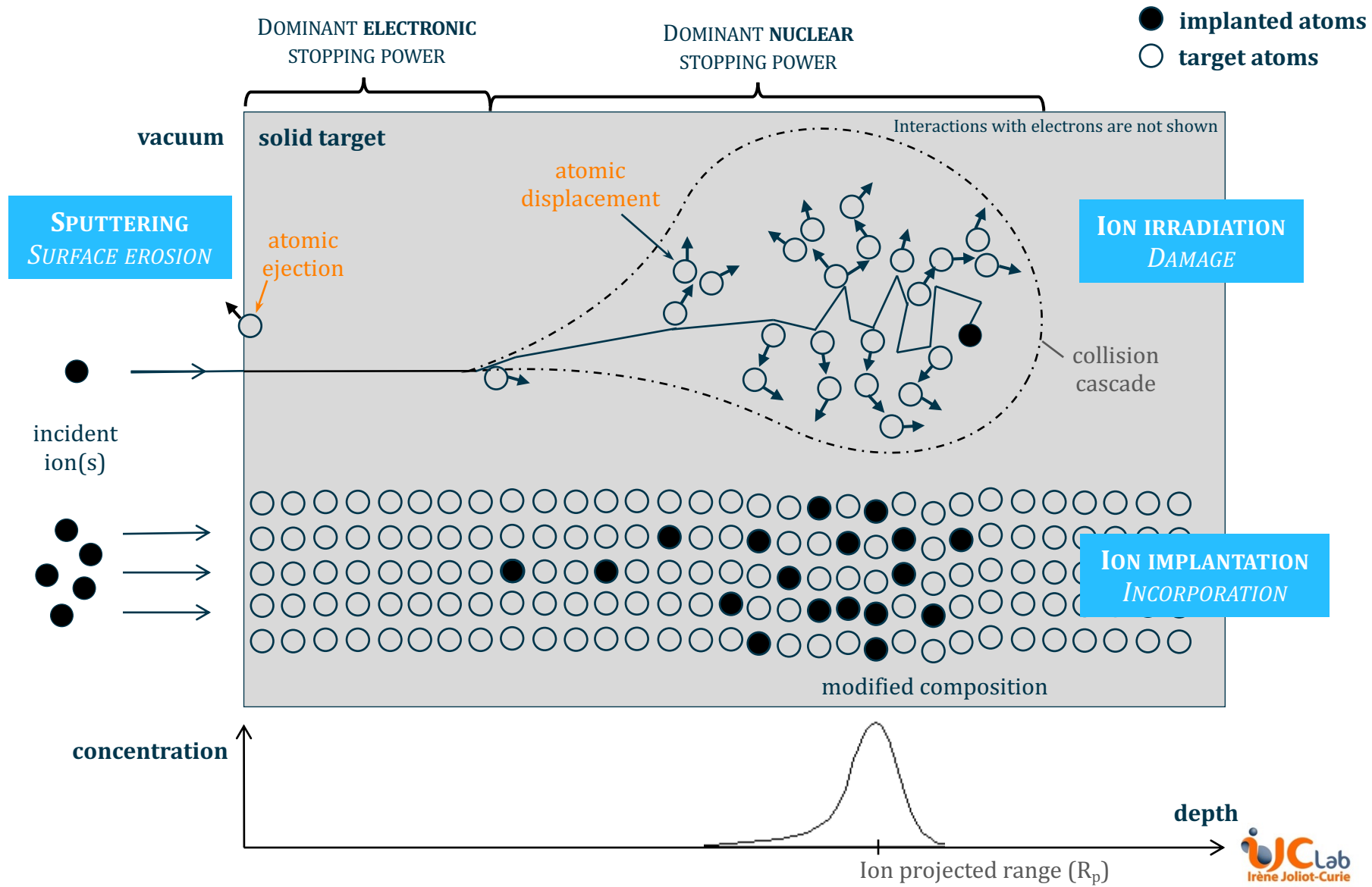
- ✓ Espace
- ✓ Réacteurs nucléaires : 10^{nes} années en quelques jours
- ✓ ...

Accélérateurs de particules

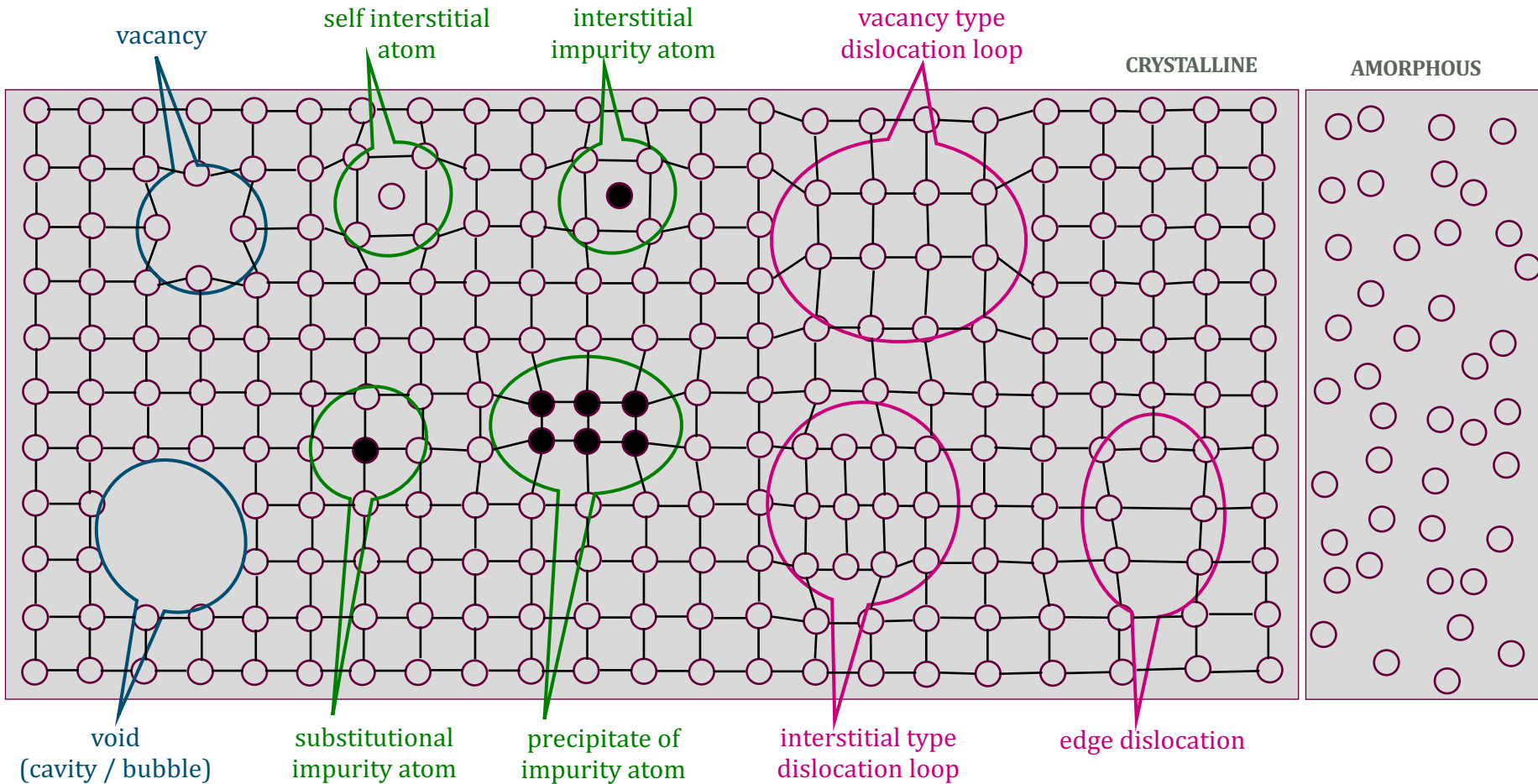
Détecteurs de particules



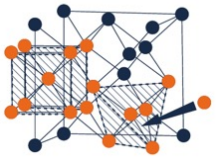
Ion beam modification of materials



Structural and chemical modifications induced by ion beams in materials at the nanoscale

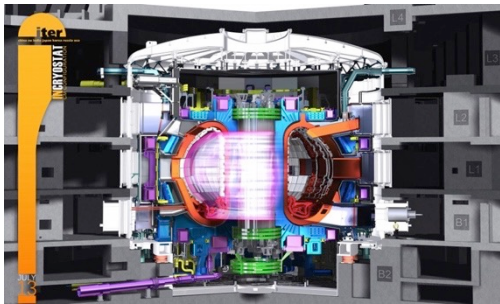
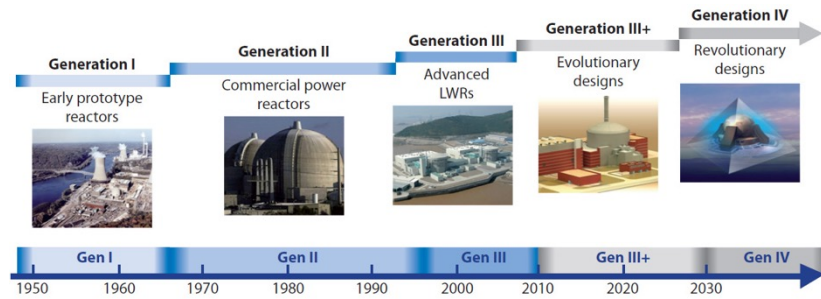


Materials for nuclear energy (fission, fusion)



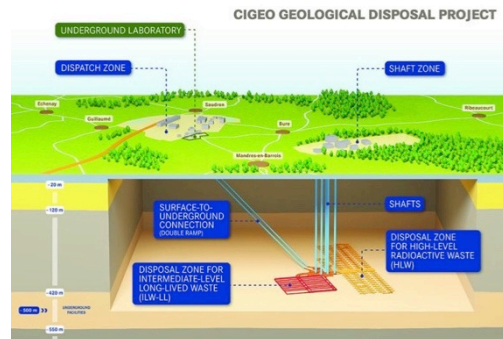
Mostly model materials !

Various irradiation conditions depending on applications



[Gen IV Technology roadmap, 2014]

[ITER.org]



[<https://international.andra.fr>]

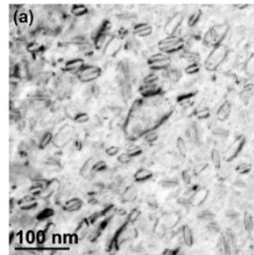
- ✓ **Nuclear fuel:** UO_2 , Accident Tolerant Fuels (Cr-UO_2)
→ Fission fragments (100 MeV), alpha decay of actinides (He 5 MeV + recoil nucleus 100 keV), fission products
- ✓ **Materials for nuclear reactors:** austenitic and ferritic steels, oxide dispersed strengthened (ODS) steels, high entropy alloys, ceramics (carbide, nitride, ...)
→ high temperature + irradiation damage + transmutation (accumulation of He and H)
- ✓ **Matrices used for the confinement and/or transmutation of nuclear waste :** zirconia, magnesium aluminate spinel, apatite, ...
→ alpha decay, fission fragments, fission products

Materials & Irradiation topic – our approach

Experimental simulation of irradiation effects by using ion beams

Irradiation effects

- Fission products
- α and recoils
- Slowing-down processes

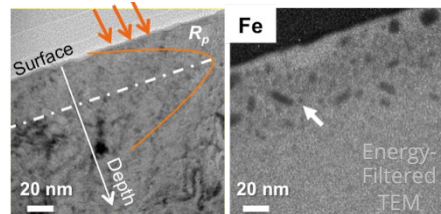


Dislocation loops

Radionuclides retention

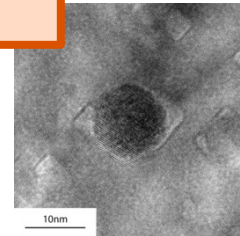
- Actinides
- Fission products, Helium, H

Nano-precipitates synthesis

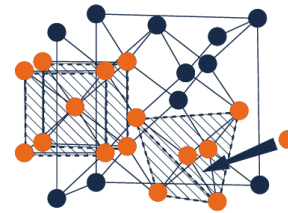


Irradiation
Low energy ions (100 KeV)
High energy ions (100 MeV)

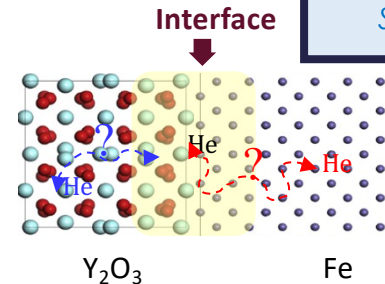
Doping
Stables elements
Radioactive elements



He bubble around a nano-oxide



Solid



Y₂O₃

Fe

Understanding radiation effects by coupling experiments and modelling

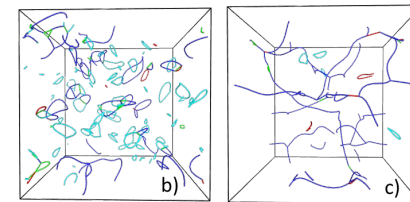
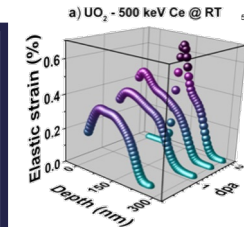
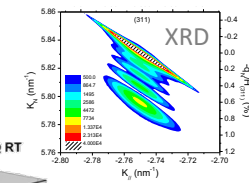
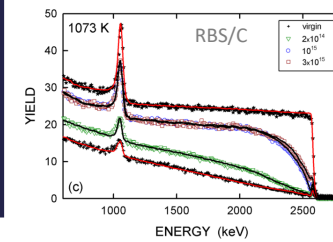
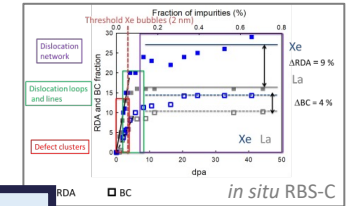
Exp. characterization (*ex & in situ*)

- Ion Beam Analysis (RBS, channelling, ERDA...)
- Transmission Electron Microscopy (dual beam)
- X-Ray Diffraction

Irradiation-induced defects, atomic diffusion, physical and chemical properties

Modelling

- Molecular dynamics
- Density functional theory
- Kinetic Monte Carlo
- Simulation of experimental signals



Plan de l'exposé

- Pourquoi ce projet ? Les matériaux soumis à des faisceaux d'ions
- **Les techniques de caractérisation *in situ* disponibles dans le hall JANNuS-Orsay**
- La Diffraction des Rayons X, une technique complémentaire
- Le projet SIXPAC en détails



JANNUS-Orsay experimental hall at IJCLab

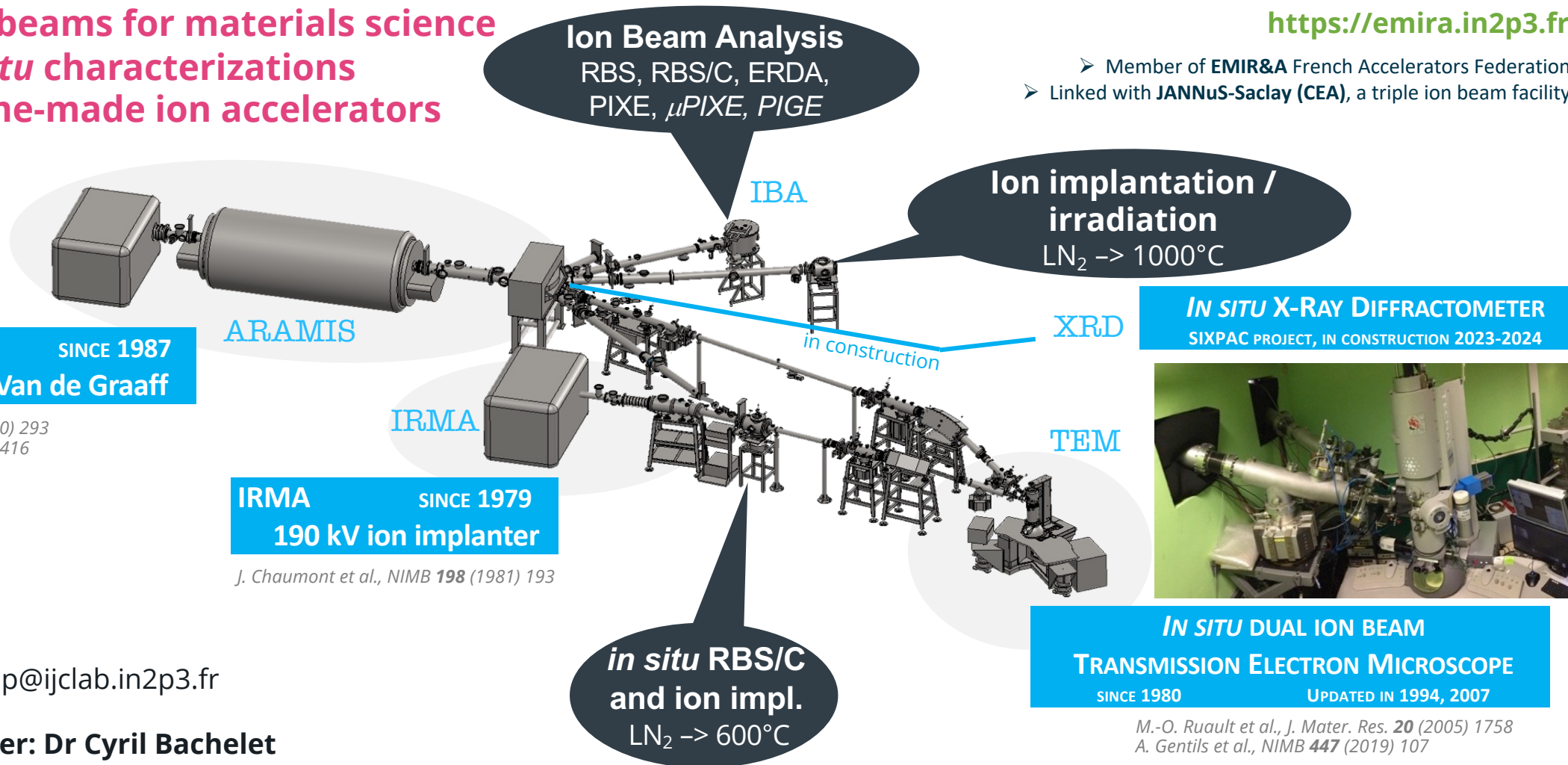
Joint Accelerators for Nanosciences and Nuclear Simulation



<https://emira.in2p3.fr>

- ✓ Ion beams for materials science
- ✓ *In situ* characterizations
- ✓ Home-made ion accelerators

- Member of EMIR&A French Accelerators Federation
- Linked with JANNUS-Saclay (CEA), a triple ion beam facility



ARAMIS SINCE 1987
2 MV Tandem – Van de Graaff

E. Cottreau et al., NIMB 45 (1990) 293
H. Bernas et al., NIMB 62 (1992) 416

ARAMIS

IRMA

IRMA SINCE 1979
190 kV ion implanter

J. Chaumont et al., NIMB 198 (1981) 193

Ion Beam Analysis
RBS, RBS/C, ERDA,
PIXE, μ PIXE, PIGE

IBA

Ion implantation / irradiation
LN₂ → 1000°C

IN SITU X-RAY DIFFRACTOMETER
SIXPAC PROJECT, IN CONSTRUCTION 2023-2024



TEM

IN SITU DUAL ION BEAM TRANSMISSION ELECTRON MICROSCOPE
SINCE 1980 UPDATED IN 1994, 2007

M.-O. Ruault et al., J. Mater. Res. 20 (2005) 1758
A. Gentils et al., NIMB 447 (2019) 107

in situ RBS/C and ion impl.
LN₂ → 600°C

Contact: jannus-scalp@ijclab.in2p3.fr

Operations manager: Dr Cyril Bachelet
Scientific leader: Dr Aurélie Gentils

Accelerators : Jérôme Bourçois
Microscopies : Dr Cédric Baumier

<https://jannus-scalp.ijclab.in2p3.fr>



université PARIS-SACLAY FACULTÉ DES SCIENCES D'ORSAY

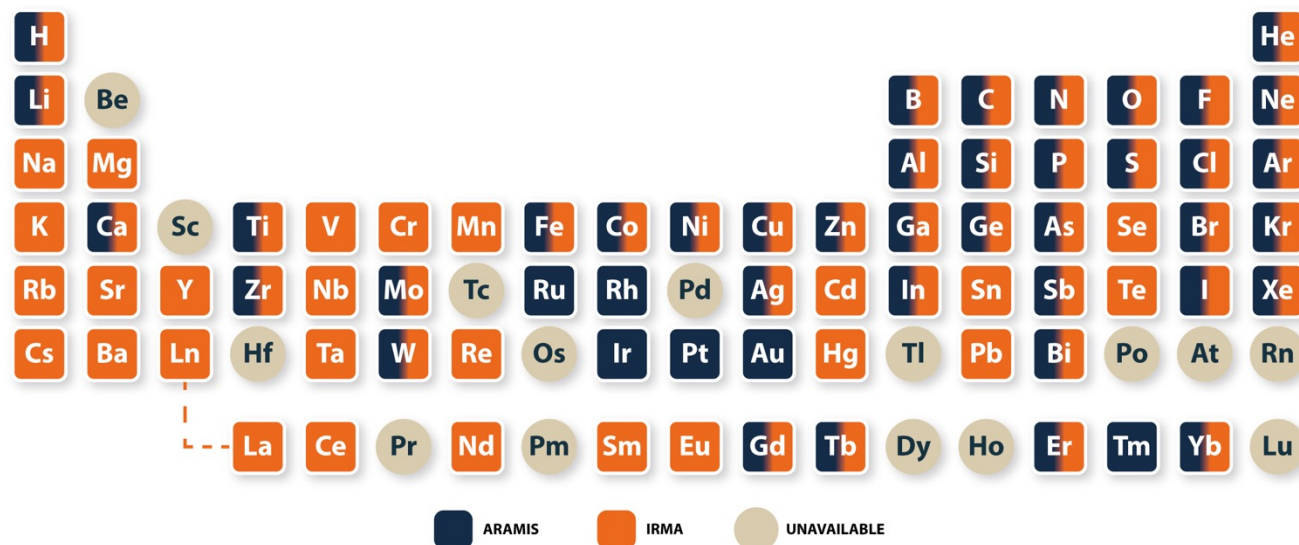


JANNUS
SCALP
Service d'Accélération et de Caractérisation des Matériaux

A large diversity of ions available

- ✓ 71 chemical elements available
- ✓ Energies 10 keV - 10 MeV
- ✓ Temperatures -170°C – 1000°C
- ✓ Rastered ion beams with a well-known dosimetry

Typical average flux range $1 \cdot 10^{10} - 5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$
(depending on ions and energies)



190 kV IRMA

2 MV ARAMIS

10 keV

100 keV

1 MeV

10 MeV

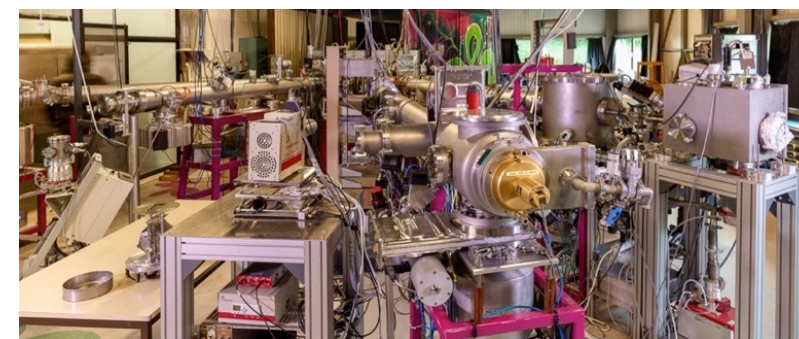
Ion's energy

Bernas-Nier ion source
10 -570 keV
up to 20 mA

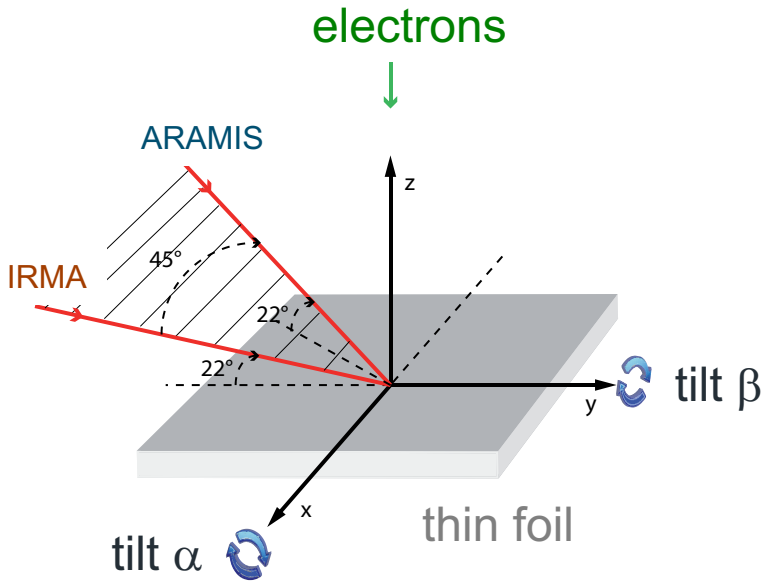
Van de Graaff mode
Penning source @ HV
200 keV < He < 3.6 MeV
200 keV < H < 1.8 MeV
i < 20 mA

Tandem mode > 40 elements
SNICS negative ion source
500 keV < E < 10 MeV *
10 nA < i < 10 mA

* limited to 1 MeV per charge state inside the TEM

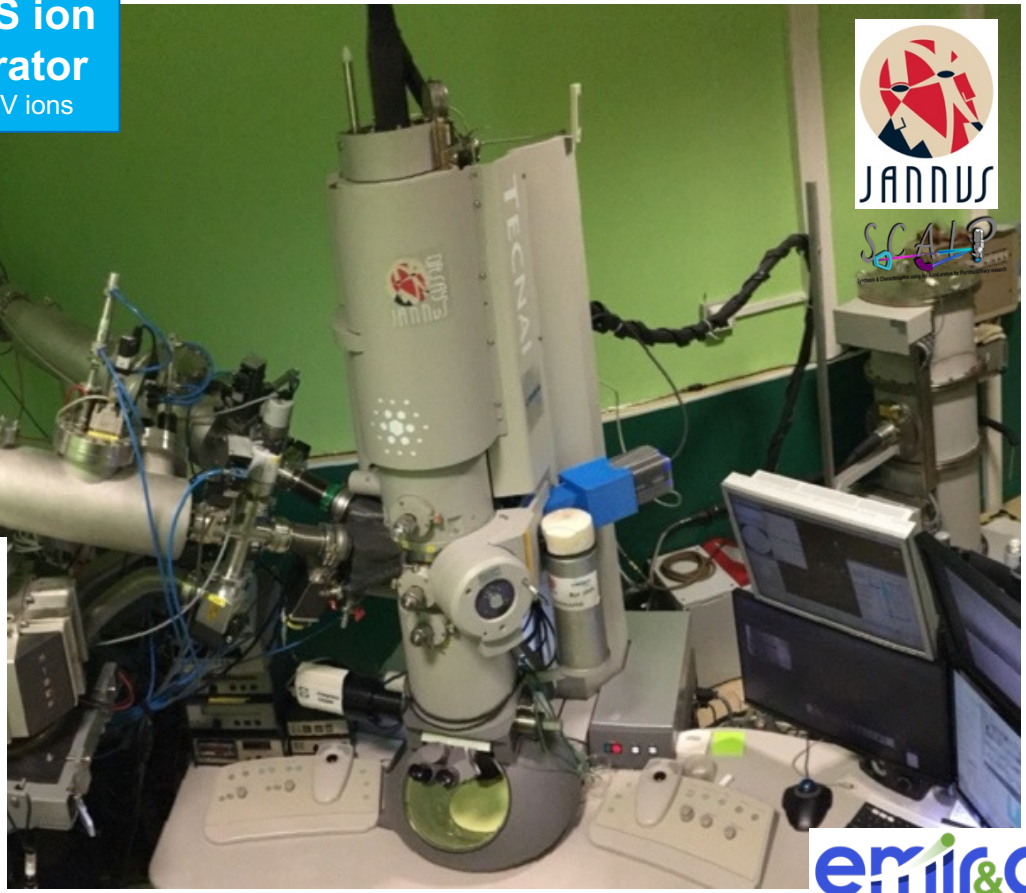
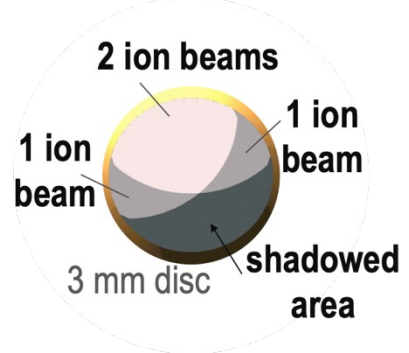


A unique *in situ* dual ion beam Transmission Electron Microscope at JANNuS-Orsay



ARAMIS ion accelerator
0.5 – 6 MeV ions

IRMA ion implanter
10 – 500 keV ions



200 kV FEI Tecnai G² 20 TWIN

- **Electron source:** LaB₆ filament
- **Spatial resolution:** 0.27 nm
- **Magnification range:** x 70 – 700 000

Techniques available:

Conventional TEM,
Scanning TEM
EDX, EELS, EFTEM, HAADF

- Home-made open Faraday cups**
- ✓ Continuous beam current measurement during ion irradiation
 - ✓ Less than 3 cm from sample accuracy < 10%
 - ✓ Compatible with ion beam scanning → homogeneous irradiation

- Samples holders (-170 -> 1000°C), including ultra-thin ones for dynamical observations (shadow effect)
- High resolution ultra-rapid camera (4kx4k, 300 fps)



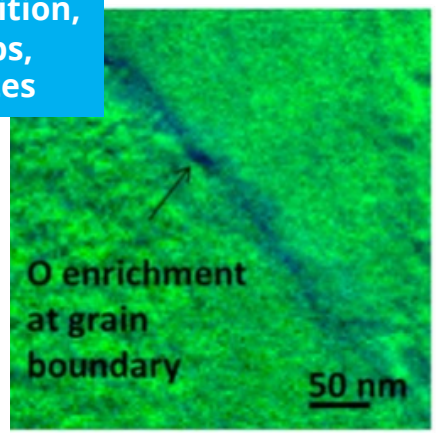
A unique *in situ* dual ion beam Transmission Electron Microscope at JANNuS-Orsay

In situ observation of the nanoscale microstructure of materials submitted to one or two ion beams

Open to any kind of materials & applications !

since 2009 for external users

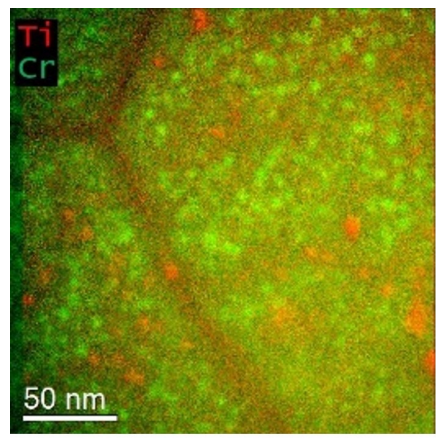
Chemical composition, elemental maps, nanoprecipitates



C. Zheng, A. Gentils, *et al.*, JAP 121 (2017) 174305

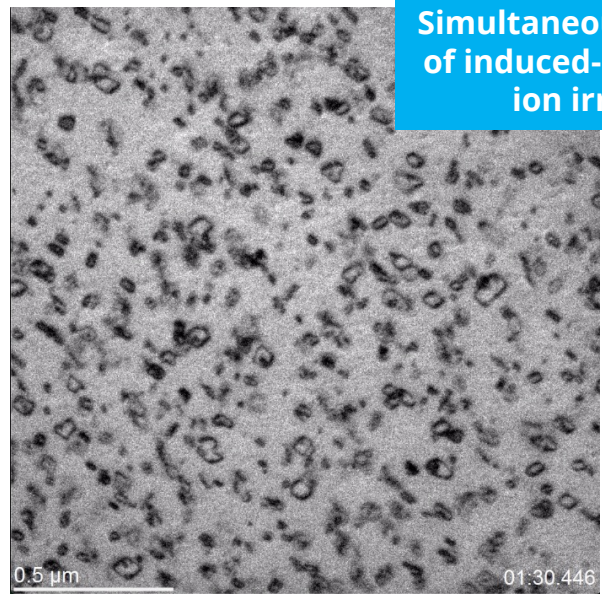
EFTEM

Thèse de MJ Saleh Afif, 2021, IJCLab-CEA



Nature, size and density of defects, impurities, nanoprecipitates, crystallographic structure, chemical composition....

Simultaneous observation of induced-defects during ion irradiation

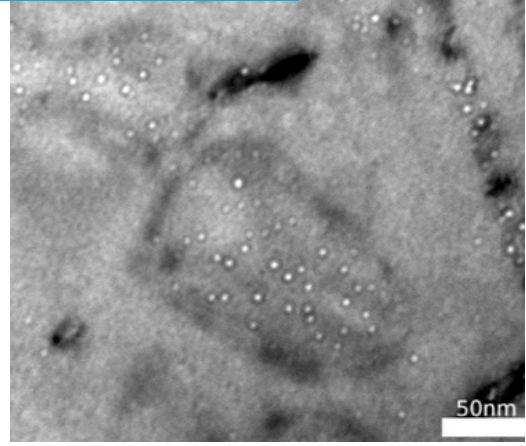


VIDEO

M. Loyer-Prost, B. Décamps, *et al.*, CEA-IJCLab, EMIR&A sept. 22

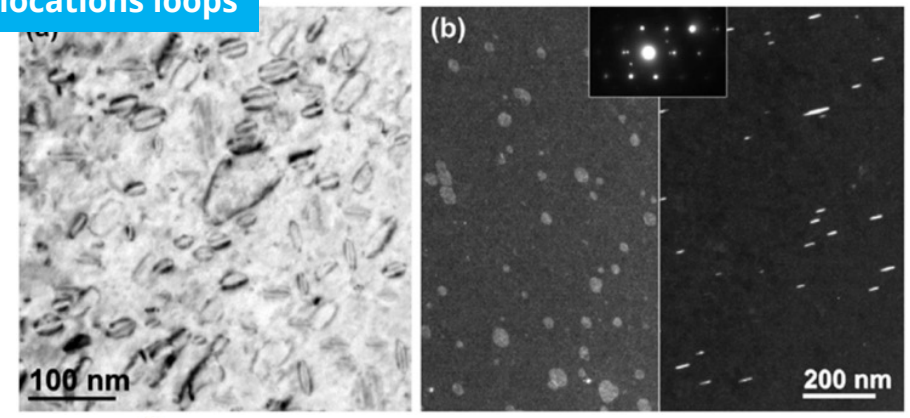
S. Jublot-Leclerc *et al.*, JNM 480 (2016) 436

Bubbles / Cavities



D. Brimbal *et al.*, JNM 418 (2011) 313

Dislocations loops



- ✓ Dynamical observation (above 100 keV N ions)
- ✓ Ion beam dosimetry inside TEM: continuous flux measurement
- ✓ Raster scanned ion beam(s)



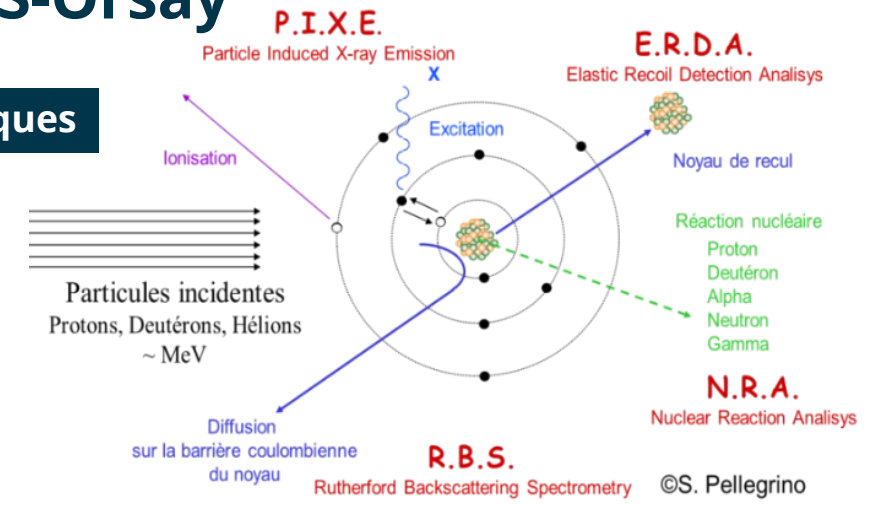
In situ Rutherford Backscattering Spectrometry in Channelling geometry (RBS-C) with ion implantation at JANNuS-Orsay

RBS (*in situ* RBS-C with ions)

- Nature of atoms
 - Quantity (stoichiometry, traces)
 - Depth profile (10 nm resolution)
 - Damage evolution vs ion dose
- (fraction of displaced atom and bent channels)

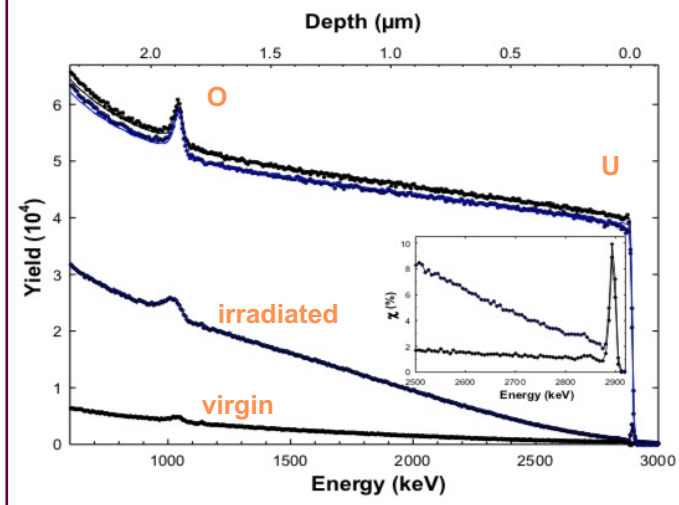
IBA techniques

Coupling ARAMIS ion accelerator + IRMA ion implanter

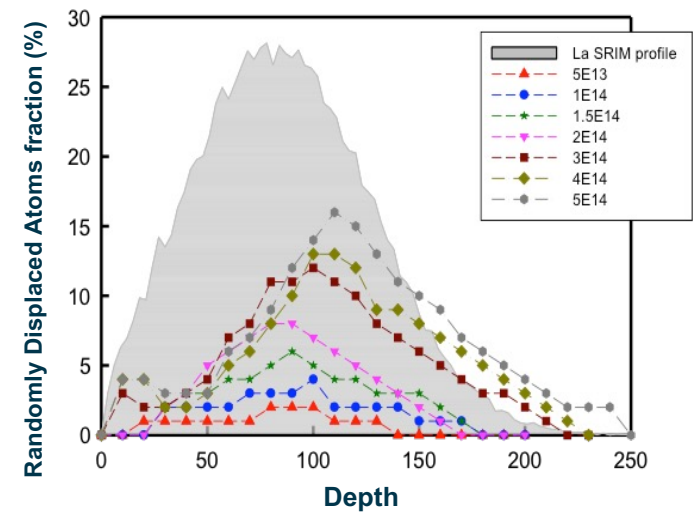


UO₂ single crystals irradiated with La and Xe ions at 500°C – Experimental simulation of the High Burnup Structure observed in the nuclear fuel

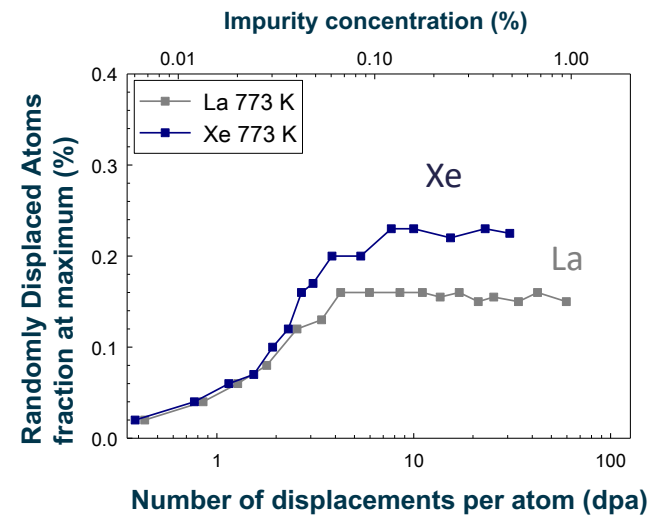
RBS-C random and aligned spectra



Depth profile of displaced atoms



Damage evolution vs dpa (*in situ* RBS-C)



Y. Haddad, F. Garrido, *et al.*, Nucl. Instrum. Methods B 435, 25-30 (2018)

dpa refers to a unit that radiation material scientists use to normalize radiation damage. For one dpa, on average each atom has been knocked out of its lattice site once.

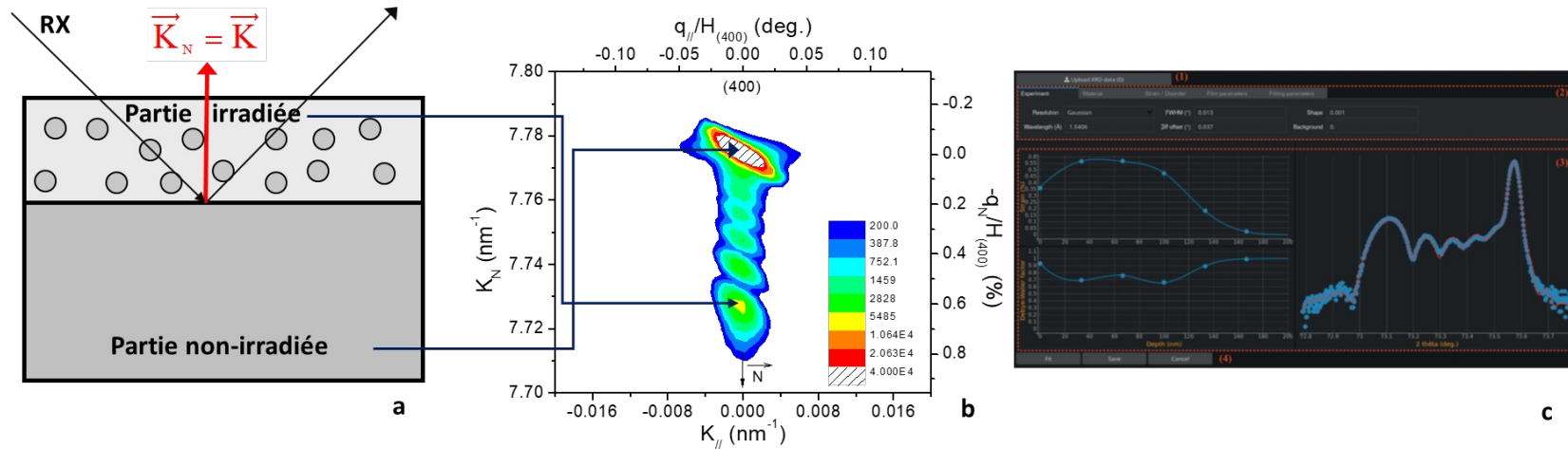
Plan de l'exposé

- Pourquoi ce projet ? Les matériaux soumis à des faisceaux d'ions
- Les techniques de caractérisation *in situ* disponibles dans le hall JANNuS-Orsay
- **La Diffraction des Rayons X, une technique complémentaire**
- Le projet SIXPAC en détails

La diffraction de rayons X (1/2)

- Rayons X non destructifs
- Pas de préparation spécifique d'échantillons
- Plutôt adaptée aux céramiques et semiconducteurs

□ Technique expérimentale adaptée à l'étude des matériaux irradiés (même en surface)



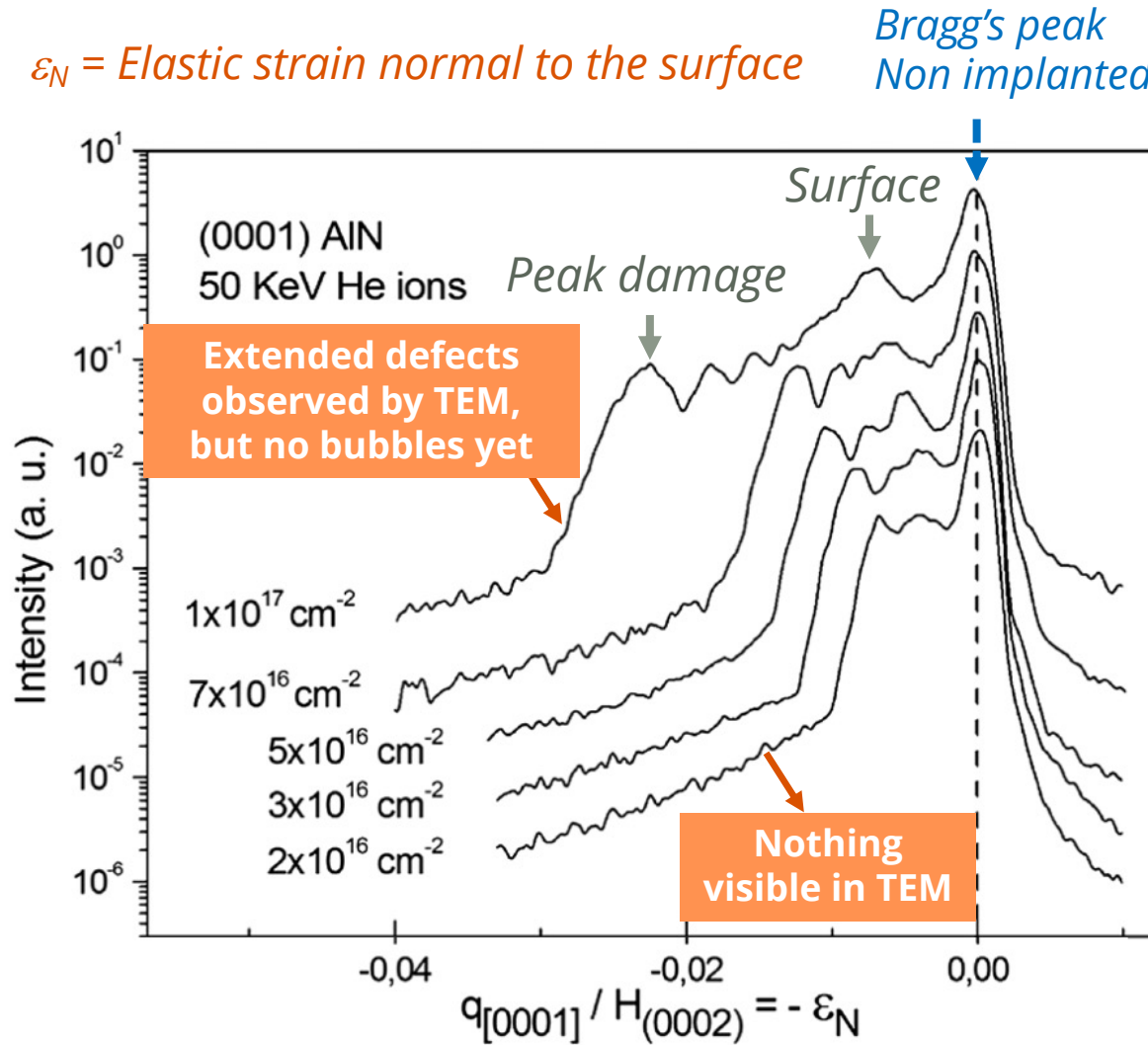
- Accès au profil de déformation élastique en fonction de la profondeur (informations sur les défauts ponctuels)
- Information sur le désordre (défauts étendus, structure cristallographique → comparable à RBS/C, MET)
- Donne accès aux premiers stades d'endommagement : avant que la MET et RBS-C ne soient sensibles

Exemple d'une implantation d'ions hélium dans du nitrure d'aluminium

Premiers stades d'endommagement des matériaux élastiques

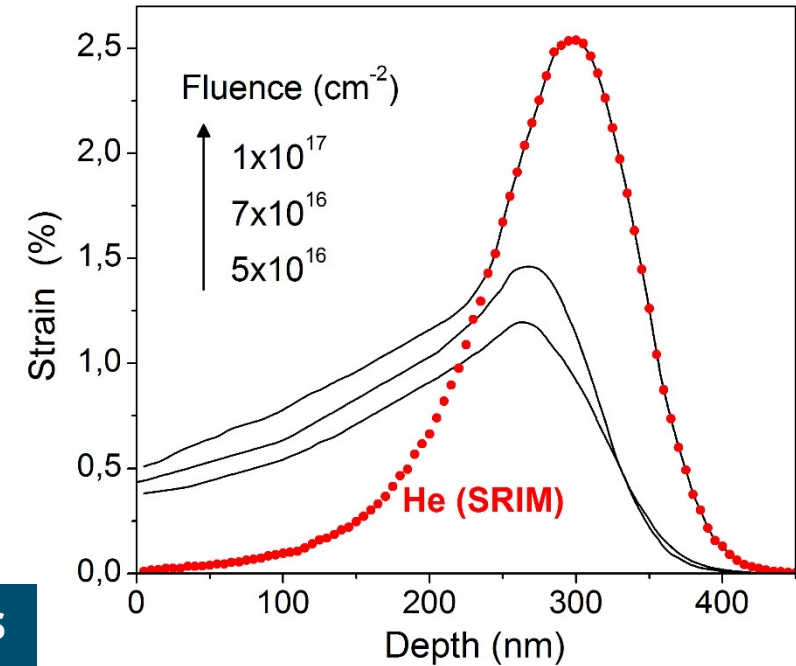
→ Complémentarité avec RBS-C et MET

Exemple : implantation d'He à température ambiante dans AlN



Simulation

(S. Stepanov, GID_sl)



Information sur les défauts ponctuels

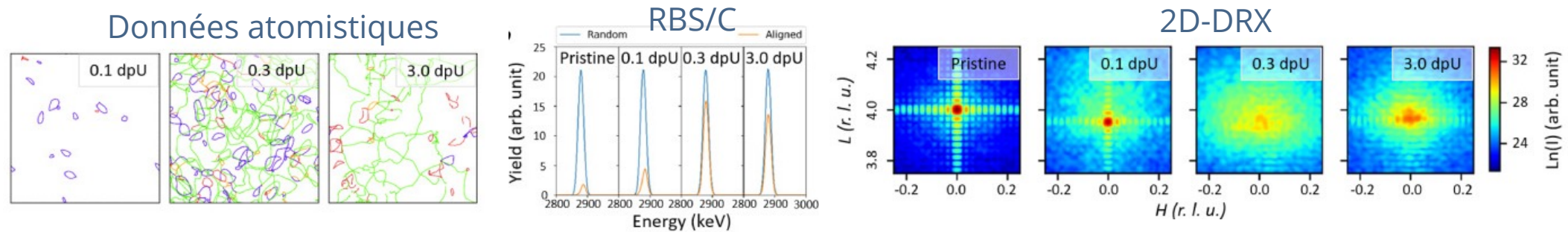
- **At low fluence** : point defect recombination
- **At high fluence** : Strain profiles **proportional** to He concentration profile (SRIM) :
 - Strong increase of strain related to vacancy stabilization via **creation of He-V complexes (bubble precursors)**
 - Enhancement of density of interstitial-type defects

S. Jublot-Leclerc, G. Bouhali et al., J ECS 41 (2021) 259

La diffraction de rayons X (2/2)

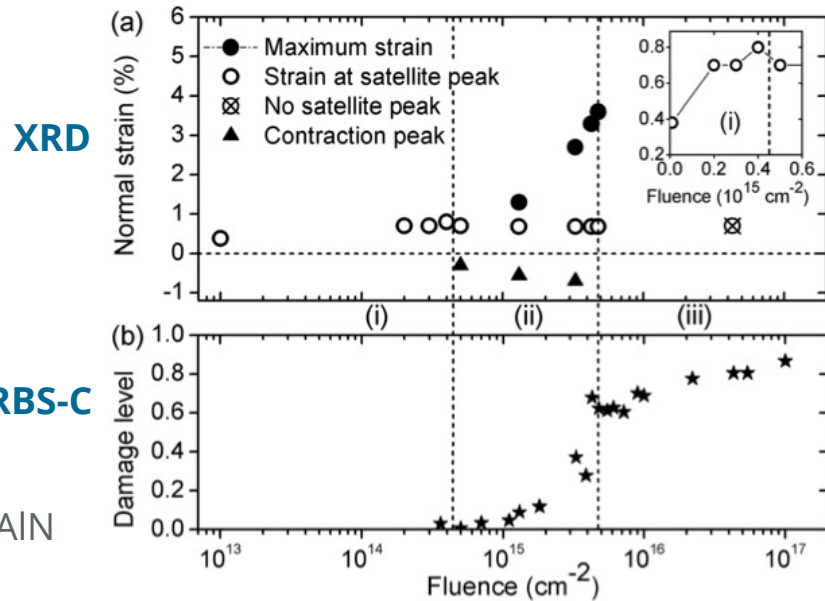
□ Technique permettant un couplage avec la modélisation à l'échelle atomique

(sur des matériaux modèles)



Interprétation et prédiction des signaux expérimentaux à partir de données *ab initio* (et non plus de modèles phénoménologiques)

Avantages des techniques de caractérisation *in situ*



X-Ray Diffraction, a powerful technique for the characterization of ion-induced modifications

- ✓ Phase transformation (amorphization, cryst.-to-cryst.)
- ✓ Elastic strain (sensitivity to point defects)

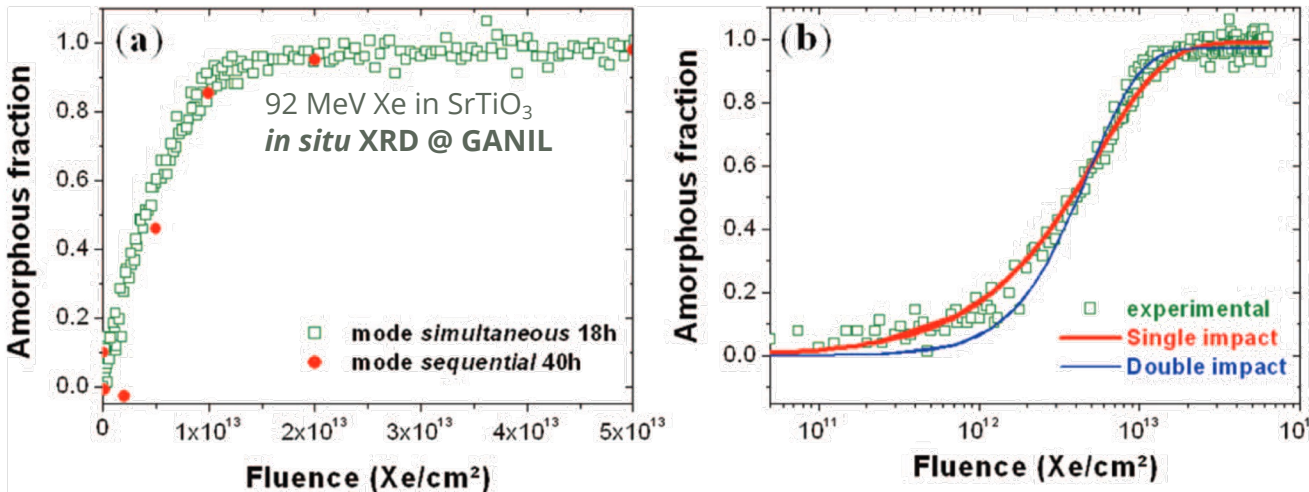
→ **Complementary** to TEM and RBS at low damage level
 → **Non-destructive method**

In situ measurement with ion irradiation

- ✓ More precise disordering kinetics
 - *More reliability on the interpretation*
 - *Possibly access to transient states*
- ✓ Kinetics possible at a chosen temperature
- ✓ Specimens: inhomogeneity, high cost, low availability
- ✓ Time saving (tens of experiments for 1 study)

No *in situ* XRD setup worldwide in the MeV range

[Leclerc 2012]
 300 keV Eu in AlN



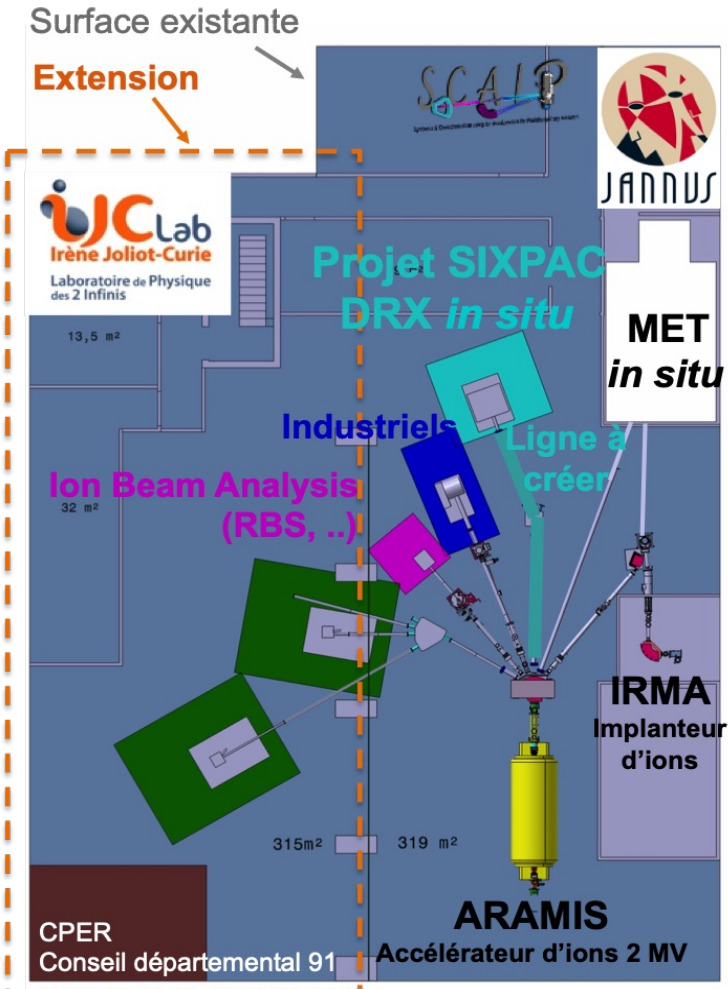
[Grygiel 2012]

Plan de l'exposé

- Pourquoi ce projet ? Les matériaux soumis à des faisceaux d'ions
- Les techniques de caractérisation *in situ* disponibles dans le hall JANNuS-Orsay
- La Diffraction des Rayons X, une technique complémentaire
- **Le projet SIXPAC en détails**

Projet SIXPAC : diffractomètre de rayons X couplé à une ligne de faisceau d'ions

Nouvelle ligne de faisceau d'ions

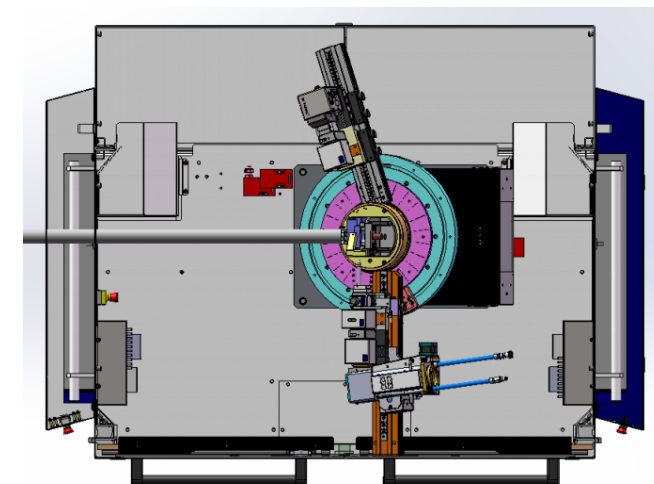
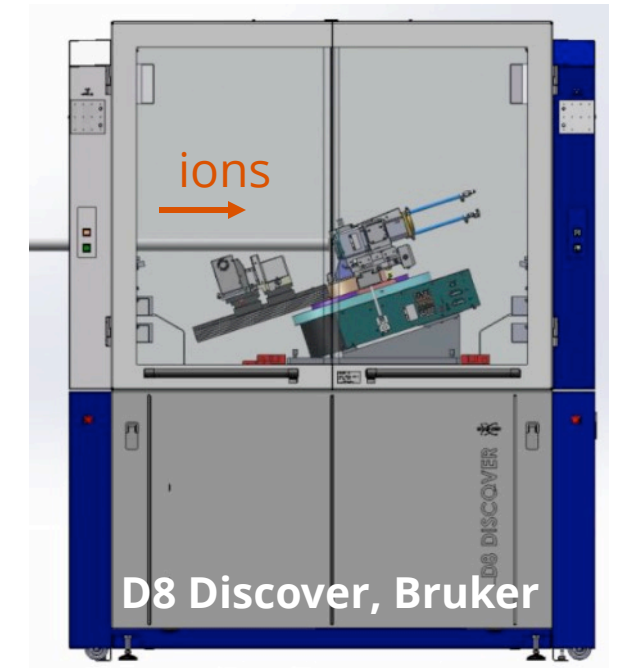


Plateforme JANNuS-SCALP, Travaux d'extension - 2020-2021

- Couplage à une **nouvelle ligne** de faisceau d'ions de l'accélérateur 2 MV ARAMIS
- Appareil versatile et doté de caractéristiques **hautes performances**
 - Berceau d'Euler
 - Monochromateurs 2 et 4 réflexions (HRXRD)
 - Cristal analyseur (mesures en triple axe)
 - Détecteur 0D, 1D et 2D

⇒ **Seul appareil au monde couplé à une ligne dans cette gamme d'énergie (0.5 -> 10 MeV)**

Solution sur-mesure



Financement et planning

Coût des équipements

Diffractomètre de rayons X	384 k€
Dipôle magnétique	75,5 k€
Ligne de faisceaux d'ions	100 k€
Total	559,5 k€

Financements obtenus

ERM 2021	38,7 k€
ANR CIRANO 2022-2026	120 k€
SESAME 2022	360 k€
IJCLab	40,8 k€
Total	559,5 k€

université
PARIS-SACLAY | FACULTÉ
DES SCIENCES
D'ORSAY

anr
agence nationale
de la recherche

Région
île de France

ijc
Irène Joliot-Curie
Laboratoire de Physique
des 2 Infinis



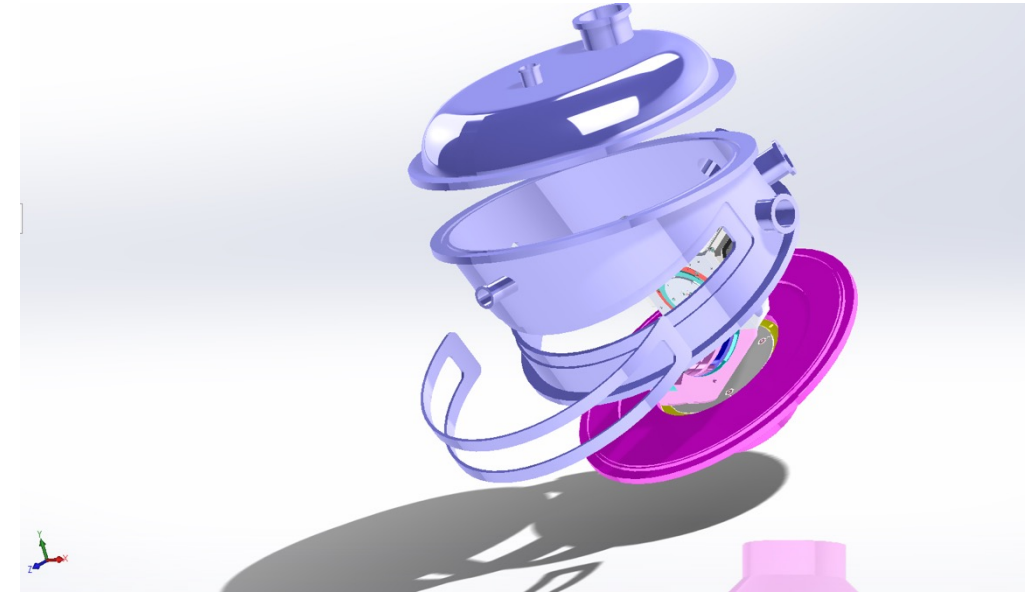
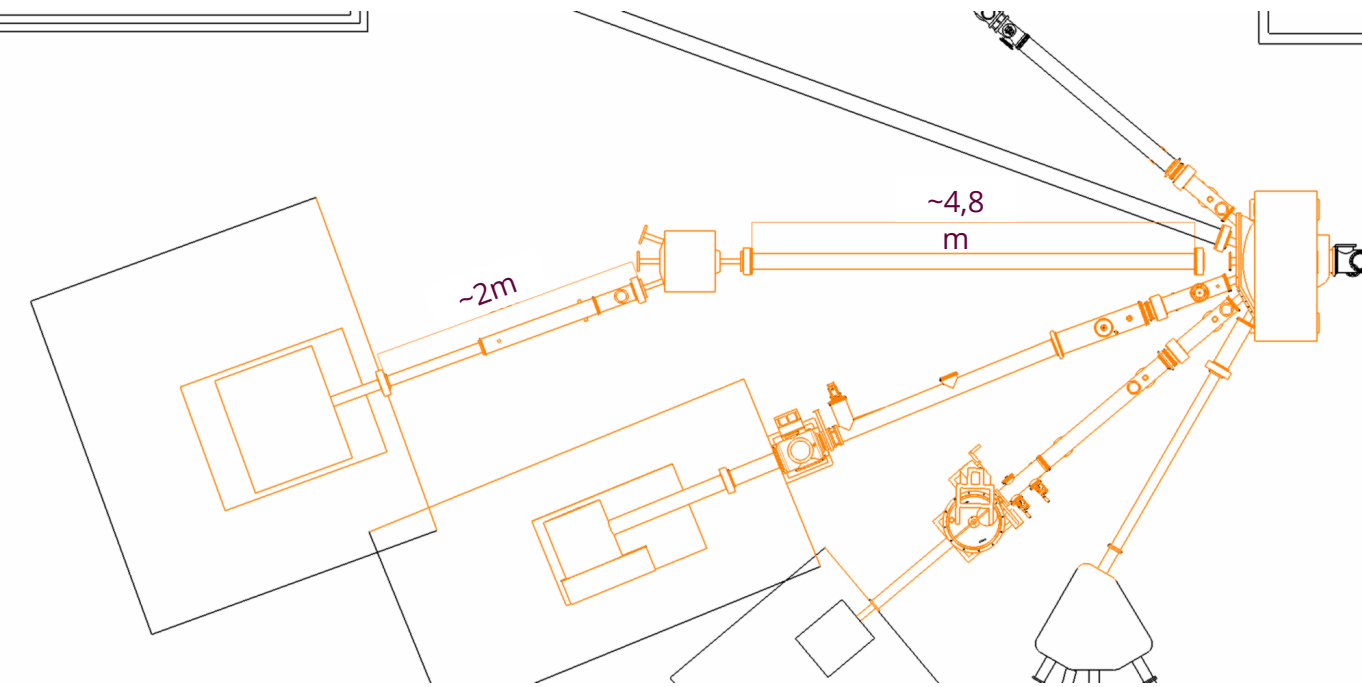
ijc
Irène Joliot-Curie
Laboratoire de Physique
des 2 Infinis

cnrs

université
PARIS-SACLAY | FACULTÉ
DES SCIENCES
D'ORSAY

Avancement – 30 novembre 2022

- Matériels pour le vide et contrôle-commande achetés
- Dipôle magnétique en cours d'achat
- Etude mécanique et optique ionique de la nouvelle ligne de faisceau en cours
- Etude de la chambre sous vide et adaptation avec le diffractomètre en cours (en lien avec Bruker)
-



Quelques soutiens académiques et industriels

Industriels

Laboratoires académiques locaux



Laboratoires académiques nationaux



Académiques internationaux

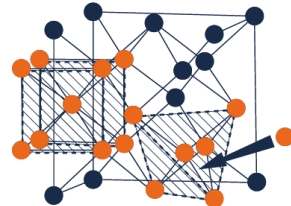


Projets ANR et européens

Grands réseaux de collaboration



Thank you !



E&E Energie & Environnement
Energy & Environment



Accès à SIXPAC

Plateforme JANNuS-SCALP labellisée par l'IN2P3

<https://jannus-scalp.ijclab.in2p3.fr>

Gouvernance : **3 modes d'attribution du temps de faisceau**

(i) Temps d'utilisation du DRX pour les mesures *in situ* : **alloué via le comité scientifique de la fédération EMIR&A, comme c'est le cas actuellement pour les expériences de caractérisations *in situ* sur la plateforme**

(ii) Temps d'utilisation du DRX en mode *ex situ* : **alloué par le comité interne existant** (représentant de la Direction du laboratoire, resp. d'exploitation de la plateforme, resp. scientifique de la plateforme, représentants des pôles concernés, représentants de l'équipe technique de la plateforme)

(iii) **Accès privilégié**, sous forme de collaborations de recherche ou prestations, à des **entreprises d'Ile-de-France qui pourraient tirer bénéfice de cet équipement** (*fort soutien d'Almae Technologies – dispositifs III-V dopés par faisceaux d'ions*)

EMIR&A French Accelerators Federation

Proposals submission each year
through the EMIR&A French accelerator network

<https://emira.in2p3.fr>

A French national network of accelerators dedicated to **irradiation and analysis** of molecules and materials

Included in the Research Infrastructures of the French Research Ministry

Access to its 11 platforms (including JANNuS-Orsay and Saclay)

Review by an international scientific committee

Next annual call for proposals : deadline 30 November 2022

emira

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



carbides
Semiconductors
alloys
Glasses
Metals
Polymers
Ceramics
oxides
Porous materials
nitrides

ion

electron

irradiation

***in situ* characterization**

ion beam analysis