

Diffusion Résonante Inélastique des rayons X, une technique puissante pour sonder les matériaux

La diffusion inélastique résonante des rayons X (RIXS) est une technique puissante combinant spectroscopie et diffusion inélastique pour étudier la structure électronique des matériaux. Elle repose sur l'interaction des rayons X avec la matière, où les spectres RIXS peuvent être approximés comme une combinaison de l'absorption et de l'émission de rayons X. Le RIXS permet notamment de sonder les excitations collectives (magnons, phonons, plasmons, orbitons) dans les matériaux quantiques et d'explorer les propriétés des matériaux en conditions operando ou extrêmes avec des rayons X durs. Cet article présente les récentes avancées du RIXS en instrumentation, analyse des données et applications. Il évoque aussi l'avenir de cette spectroscopie sur les nouvelles stations expérimentales de lasers à électrons libres, qui promettent de révolutionner l'étude des processus ultra-rapides et des interactions non linéaires des rayons X avec la matière.

Le RIXS (diffusion inélastique résonante des rayons X) est une technique de spectroscopie chimiquement sélective, basée sur un processus résonant à deux étapes et deux photons. Dans le RIXS, un photon incident excite un électron, créant temporairement un trou dans une couche de cœur. Lorsque le matériau revient à un état d'énergie inférieur, il émet un photon dont l'énergie et le vecteur d'onde sont différents de ceux du photon incident. L'énergie et la quantité de mouvement transférées au système encodent ainsi des informations précieuses sur celui-ci (voir Fig. 1a). Ce processus à deux étapes permet d'étudier des matériaux complexes, révélant des propriétés essentielles pour des domaines aussi divers que la physique, la chimie, la biologie et les sciences de la Terre.

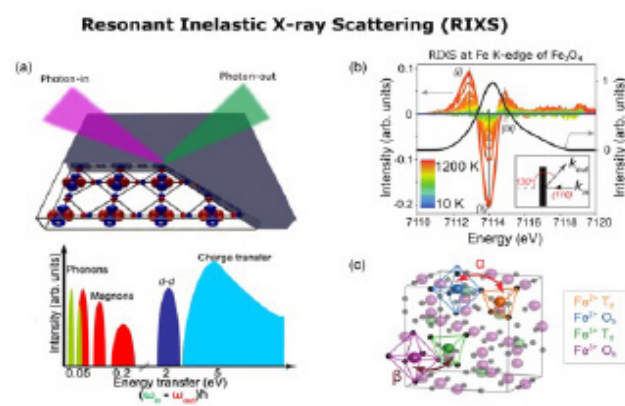


Figure 1

(a) Principe de la spectroscopie RIXS. Différentes excitations élémentaires pouvant être sondées par RIXS dans la matière condensée, et leur énergie associée. (b) Fe K α Fluorescence résolue à haute énergie détectée, un type de RIXS, mesurée dans la magnétite (Fe_3O_4) de 10 à 1200 K. Trois pics (i, ii, iii) peuvent être vus progressant en fonction de la température. (c) Les changements dans les spectres peuvent être liés au transfert de charge entre les sites octaédriques et tétraédriques de la magnétite [Elnaggar et. al, Phys. Rev. Lett., 127, 186402 (2021)].

En physique, le RIXS est devenu un outil clé pour élucider les interactions dans les matériaux quantiques. Par exemple, les supraconducteurs à haute température, comme les cuprates, présentent des dynamiques fascinantes des spins et des charges, difficiles à analyser par des méthodes traditionnelles. Grâce au RIXS, il est possible d'accéder à la dispersion des excitations collectives, telles que les magnons et les ondes de densité de charge. Ceci éclaire comment le comportement des spins et des charges dans ces matériaux influence la supraconductivité, offrant ainsi une base pour comprendre les phases exotiques et guider les applications futures. Par exemple, nous avons étudié l'ordre de charge du Fe dans la magnétite

(Fe_3O_4) en fonction de la température et découvert un nouvel ordre de charge spontané à haute température qui n'était pas connu auparavant (voir Fig. 1b-c).

Le RIXS peut également aborder des questions complexes en chimie, en particulier dans les domaines de la catalyse et du stockage de l'énergie. En sondant sélectivement les éléments des catalyseurs, le RIXS capture comment les états d'oxydation et les structures électroniques évoluent avec les conditions de réaction, permettant d'identifier les sites actifs et les principaux mécanismes de réaction. De même, le RIXS révèle l'évolution structurale des électrodes de batteries lors des cycles de charge et de décharge, offrant des informations cruciales sur les processus de dégradation et contribuant à la conception de batteries plus efficaces et durables.

Dans le domaine de la biologie, le RIXS permet d'étudier très efficacement les centres métalliques dans les protéines et les enzymes, comme le manganèse dans le photosystème II ou le fer dans la nitrogénase. Étant chimiquement sélectif, le RIXS peut analyser les configurations électroniques et les états d'oxydation impliqués dans les processus d'oxydo-réduction et de transfert d'électrons, dans les centres de très faible concentration. Ces informations sont cruciales pour comprendre les mécanismes fondamentaux en biochimie et pourraient avoir des implications pour la conception de catalyseurs biomimétiques.

Enfin, le RIXS suscite un grand intérêt pour les Sciences de la Terre car il permet d'étudier les minéraux et les processus géochimiques sous des pressions et des températures extrêmes, comme celles rencontrées au cœur de la Terre. Le RIXS révèle comment les minéraux subissent des transitions de phase et comment les éléments se comportent en profondeur, faisant progresser notre connaissance des dynamiques internes de la Terre et de la stabilité géochimique des éléments dans le manteau et le noyau, avec un niveau de détail impossible à obtenir par la spectroscopie classique d'absorption ou d'émission des rayons X.

Bien qu'étant désormais une technique mature et transverse à plusieurs champs disciplinaires, la spectroscopie RIXS porte de nouvelles promesses avec le développement de configurations expérimentales avancées et l'amélioration de la résolution en énergie et en moment de transfert. Le gain en intensité et l'amélioration des capacités des détecteurs va permettre d'augmenter les taux de comptage globaux, facilitant ainsi de nouvelles expériences, y compris la microscopie RIXS. De nouvelles cellules de réaction et des environnements d'échantillons dédiés vont faciliter les expériences de RIXS in situ ou operando. Enfin, l'ouverture de lignes RIXS sur les lasers à électrons libres offre de nouvelles possibilités, comme la résolution temporelle à l'échelle de la femtoseconde ou l'exploitation des phénomènes non linéaires.

Référence

"Resonant inelastic X-ray scattering"

Frank M. F. de Groot, Maurits W. Haverkort, **Hebatalla Elnaggar**, **Amélie Juhin**, Ke-Jin Zhou, Pieter Glatzel
Nature Reviews Methods Primers, 4, 1-21 (2024)

<https://www.nature.com/articles/s43586-024-00322-6>

Contacts

amelie.juhin(at)upmc.fr

hebatalla.elnaggar(at)upmc.fr