



**HAL**  
open science

# LES FAISCEAUX D'IONS : DE LA PHYSIQUE DES PLASMAS AUX APPLICATIONS DANS LES DOMAINES DE L'ANALYSE ET DE L'IRRADIATION

Hicham Khodja

► **To cite this version:**

Hicham Khodja. LES FAISCEAUX D'IONS : DE LA PHYSIQUE DES PLASMAS AUX APPLICATIONS DANS LES DOMAINES DE L'ANALYSE ET DE L'IRRADIATION. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012. tel-00786244

**HAL Id: tel-00786244**

**<https://theses.hal.science/tel-00786244>**

Submitted on 8 Feb 2013

**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.

Mémoire pour l'obtention du grade d'Habilitation à  
Diriger des Recherches

**LES FAISCEAUX D'IONS : DE LA  
PHYSIQUE DES PLASMAS AUX  
APPLICATIONS DANS LES DOMAINES  
DE L'ANALYSE ET DE L'IRRADIATION**

Hicham Khodja

Soutenu publiquement le  
18/12/2012

Devant le jury composé de :

M. Aurélio Climent-Font	Rapporteur
M. Jean-Louis Hazemann	Rapporteur
Mme Nathalie Moncoffre	Rapporteur
M. Bernard Capelle	Examineur
M. Lionel Thomé	Examineur
M. Patrick Trocellier	Examineur

Université Pierre et Marie Curie  
UFR de Physique



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>9</b>
<b>2</b>	<b>Apport à la compréhension de la physique des plasmas des sources d'ions de type ECR</b>	<b>11</b>
<b>3</b>	<b>Microfaisceaux d'ions pour l'analyse</b>	<b>17</b>
3.1	Les interactions ion-matière . . . . .	17
3.2	Les techniques analytiques en IBA . . . . .	18
3.2.1	Interactions avec les électrons : la technique PIXE . . . . .	18
3.2.2	Interactions élastiques . . . . .	18
3.2.3	Interactions inélastiques . . . . .	19
3.3	Les microfaisceaux d'ions légers . . . . .	19
3.4	La microsonde nucléaire de Saclay . . . . .	20
<b>4</b>	<b>Applications dans le domaine des sciences des matériaux</b>	<b>23</b>
4.1	Hélium dans les combustibles nucléaires . . . . .	23
4.2	Deutérium dans les matériaux de paroi de tokamaks . . . . .	24
4.3	Traçage isotopique pour la compréhension des mécanismes de croissance des nanotubes de carbone . . . . .	30
<b>5</b>	<b>Applications dans le domaine de la biologie</b>	<b>33</b>
5.1	Toxicologie des métaux lourds dans les cellules d'organes cibles . . . . .	34
5.2	Diffusion des métaux lourds dans des plantes à visée de phytoremédiation	37
<b>6</b>	<b>Microfaisceaux d'ions pour l'irradiation : applications dans le domaine de la radiobiologie</b>	<b>39</b>
<b>7</b>	<b>Perspectives</b>	<b>45</b>
<b>8</b>	<b>Conclusion</b>	<b>49</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>50</b>
<b>9</b>	<b>Annexe</b>	<b>57</b>



# Table des figures

2.1	Vue générale du dispositif utilisé pour collecter les rayonnements X émis par le plasma d'argon produit par une source ECR. . . . .	13
2.2	Spectre haute résolution d'un plasma d'Argon à PHF=1100 W. Deux plages spectrales acquises pendant 100 s sont présentées. . . . .	14
2.3	Courbes d'émissivité expérimentales et ajustées de plasmas ECR d'argon. Puissances RF appliquées (a) 150 W (b) 500 W. Les températures électroniques utilisées pour les ajustements sont indiquées dans les inserts. . . . .	14
2.4	Distributions ioniques et courants extraits dans 2 plasmas d'argon à basse et haute puissance RF. . . . .	15
2.5	Temps de confinement dans un plasma d'argon avec PHF= 1100 W, déduits des mesures de densités et courants ioniques. . . . .	15
3.1	Schéma général de la microsonde nucléaire de Saclay . . . . .	21
3.2	Vue de la chambre d'analyse CASIMIR destinée à accueillir des échantillons fortement radioactifs . . . . .	22
3.3	Plateforme de micro-irradiation à l'air . . . . .	22
4.1	Distributions latérales d'hélium dans des grains d'UO <sub>2</sub> après implantation (A), et après implantation puis recuit à 1300°C pendant 1h (B). . . . .	25
4.2	Cartographies deutérium dans des CFC exposés au plasma Tore Supra, et profils en profondeur des régions définies par les traits discontinus. . . . .	26
4.3	Schéma du dispositif d'implantation et détection simultanée . . . . .	28
4.4	Corrélation entre cartographie des porosités obtenue par tomographie (à gauche) et image deutérium obtenue par NRA (à droite) pour deux plans d'une même analyse : on peut clairement identifier des géométries similaires entre le deutérium piégé et les porosités du matériau. . . . .	29
4.5	Principe de la synthèse avec hydrocarbure marqué, et cartographie du <sup>13</sup> C. . . . .	30
5.1	Spectres RBS du support polymère seul (points) et du tapis cellulaire seul (traits) . . . . .	35
5.2	Précipités d'uranium (jaune) sur des cellules de type NRK matérialisées par le signal azote (rouge) . . . . .	36
5.3	Cartographies de densité obtenues par STIM et élémentaires (potassium + calcium et uranium) obtenues par PIXE sur des racines des trois plantes (colza, tournesol et blé). . . . .	38

*Table des figures*

6.1	Vue générale du dispositif d'irradiation cellulaire et principe de collimation et d'irradiation. Le collimateur est placé immédiatement à la sortie d'un aimant dipolaire permettant d'obtenir un faisceau vertical. . . . .	41
6.2	Induction de cassures à l'ADN dans les cellules ciblées et voisines par numération des foyers détectés par immunodétection. Rouge : $\gamma$ H2AX ; vert 53BP1 ; Bleu : Hoechst 33342 (marqueur de l'ADN) . . . . .	42
6.3	Stress oxydatif dans les cellules irradiées et voisines par induction de fluorescence sur le marqueur CM-H <sub>2</sub> DCF . . . . .	43
6.4	Evolution du stock de glutathion réduit au sein des cellules ciblées et voisines. . . . .	44
6.5	Réponse de la population cellulaire irradiée (évaluée par le taux de micronoyaux) à la fraction irradiée, pour une dose fixe de 10 particules $\alpha$ / cellule . . . . .	44
7.1	Détecteur de particules à grand angle solide en phase de test. La surface exposée est découpée en segments angulaires, chacune constituant une voie d'acquisition. . . . .	46
7.2	Spectres NRA aux différents angles couverts par le détecteur multisecteur (a) C ; (b) Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> . . . . .	47

## Liste des tableaux

- 2.1 Energies moyennes des transitions  $K\alpha$  pour les différentes espèces ioniques présentes dans un plasma d'argon. . . . . 12
- 5.1 Concentrations en cobalt déterminés par PIXE dans les plants de tomate et de blé pour différentes expositions. d. wt. : dry weight . . . . . 37



# 1 Introduction

Ce mémoire, rédigé en vue de l'obtention du grade de l'Habilitation à Diriger des Recherches, tente de donner un aperçu des activités de recherches que j'ai mené depuis l'obtention de mon doctorat, en faisant ressortir autant que possible une cohérence dans ces travaux. Il m'est assez rapidement apparu que les faisceaux d'ions constituaient le fil rouge de ces études. Ce travail est également caractérisé par le fait qu'il se situe à la frontière entre technologie et recherche plus fondamentale. Ces deux aspects sont d'ailleurs présents dès le travail de thèse puisque celle-ci s'est traduite d'une part par la réalisation d'une source d'ions multichargés basée sur le principe des sources EBIS (Electron Beam Ion Source), et de la mise en oeuvre d'une technique de caractérisation des performances de cette source, basée sur une technique spectroscopique dans la domaine des rayons X.

Ce mémoire est organisé en 6 parties. Il ne suit pas nécessairement un ordre chronologique, j'ai plutôt privilégié une certaine cohérence thématique. Dans le chapitre 2, je donne un aperçu du travail mené dans le cadre du co-encadrement d'une thèse au sein de mon 1<sup>er</sup> laboratoire d'accueil, au CEA/Grenoble, dont l'objectif était de déterminer la distribution des populations ioniques dans un plasma de source ECR. Ce travail était en quelque sorte le prolongement naturel des études spectroscopiques entamées pendant ma thèse. Au chapitre 3, après avoir très brièvement rappelé les principes et techniques de l'analyse par faisceaux d'ions, je présente quelques caractéristiques de la microsonde nucléaire du CEA/Saclay en précisant ses spécificités. Bien que n'étant pas, loin s'en faut, à l'origine de la création de cet instrument mi-lourd, il m'a paru nécessaire de donner ces rappels tant cet équipement aura été au cœur de mon activité de recherche. De plus j'ai assumé et continue à assumer également des tâches techniques, scientifiques et administratives autour de cet instrument. Le chapitre 4 donne quelques illustrations des applications dans le domaine des sciences des matériaux auxquelles j'ai participé au fil du temps. Les applications dans le domaine de la biologie, que j'ai contribué à développer au sein du laboratoire sont présentées au chapitre 5. Un développement important que j'ai mené sur la microsonde, ici à visée d'irradiation, est présenté au chapitre 6. Le chapitre 7 ouvre les perspectives de recherche qui me semblent intéressantes à développer dans les années à venir. Enfin, une conclusion au chapitre 8 viendra clore cette revue.



## 2 Apport à la compréhension de la physique des plasmas des sources d'ions de type ECR

Les sources d'ions sont à la base d'applications très diverses dans un nombre extrêmement varié de disciplines : physique atomique (collisions atomiques, piégeage d'ions), physique nucléaire (étude de la structure des noyaux), physique des particules (plasma quarks-gluons), électronique (implantation), chimie des matériaux (analyse par faisceaux d'ions, étude des effets de l'endommagement), radiolyse... Pour le domaine des hautes énergies, il paraît évident qu'optimiser et maîtriser la production d'ions très chargés de manière efficace est un élément-clé de réussite. Les études de physique atomique nécessitent également l'emploi d'ions fortement ionisés, objets quantiques par excellence. Il existe deux grandes familles de sources d'ions multichargées : les sources de type EBIS et les sources de type ECRIS (Electron Cyclotron Resonance Ion Source). Les premières s'appuient sur un principe qui est à première vue relativement simple et qui consiste à piéger les ions via une barrière de potentiel double : longitudinale, par l'application d'un potentiel sur des électrodes entourant le faisceau, et radiale, par la charge d'espace créé par le faisceau d'électrons. Afin d'ioniser efficacement les ions, un champ magnétique longitudinal intense (plusieurs Tesla) permet d'obtenir une densité de courant élevée. Les ions sont alors ionisés de façon séquentielle, et sont ensuite extraits par abaissement de la barrière de potentiel longitudinale. Ces sources, aux principes physiques bien établis, nécessitent toutefois des performances en terme de vide et de focalisation magnétique (pour compresser le faisceau d'électrons) très élevées, requérant souvent l'emploi de supraconducteurs et des techniques lourdes de l'ultra-vidé. De plus, le mode de production de ces ions est forcément pulsé, nécessitant une adaptation des paquets avant injection dans les anneaux de stockage. Les sources ECR, dérivées des machines miroir employées dans des études dans le cadre de la fusion thermonucléaire par confinement magnétique, ne nécessitent pas l'emploi de techniques à leurs limites technologiques. Ici un plasma est formé par couplage entre une onde RF (typiquement de 2,45 GHz à 28 GHz) avec le mouvement de giration des électrons sur une surface magnétique créée par un assemblage de bobines axiales et d'aimants permanents radiaux et qui vérifie la condition :

$$\omega = \frac{q_e B}{m_e} \quad (2.1)$$

où  $\omega$  est la pulsation de l'onde HF,  $q_e$ ,  $m_e$  étant respectivement la charge et la masse de l'électron,  $B$  le champ magnétique. Ce couplage efficace permet de produire des électrons énergétiques en mesure d'ioniser des atomes à fort  $Z$ . Les exigences en terme de

## 2 Apport à la compréhension de la physique des plasmas des sources d'ions de type ECR

Charge de l'ion	Configuration initiale	Configuration finale	Energie (eV)
1+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>6</sup> 3s <sup>2</sup> 3d <sup>6</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>6</sup> 3s <sup>2</sup> 3d <sup>5</sup>	2957.01
9+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>6</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>5</sup>	2970.51
10+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>5</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>4</sup>	2989.41
11+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>4</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>3</sup>	3009.81
12+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>3</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p <sup>2</sup>	3031.81
13+	1s 2s <sup>2</sup> 2p <sup>2</sup>	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup> 2p	3055.11
14+	1s 2s <sup>2</sup> 2p	1s <sup>2</sup> 2s <sup>2</sup>	3079.81
15+	1s 2s 2p	1s <sup>2</sup> 2s	3102.81
16+	1s 2p	1s <sup>2</sup>	3139.60
17+	2p	1s	3323.05
17+	2p	1s	3318.23

TABLE 2.1: Energies moyennes des transitions  $K\alpha$  pour les différentes espèces ioniques présentes dans un plasma d'argon.

vide et de confinement dans les sources ECR sont moins élevées que pour les source EBIS et permettent l'utilisation de techniques industrielles standard. De plus, ces machines permettent d'extraire et d'obtenir des faisceaux d'ions multichargés continus et à fort courant. Ce sont donc en quelque sorte des dispositifs robustes et fiables, ne nécessitant pas de mises au point délicates. Il y a donc *a priori* un potentiel d'amélioration important. Celui-ci passe par la compréhension des processus de formation des espèces fortement chargées qui est un problème de physique des plasmas qui reste difficile, aussi les modèles de plasmas d'ECR nécessitent de se caler sur des données expérimentales. Le processus de création des espèces multichargées du fait de l'ionisation électronique est concurrencé essentiellement par le processus d'échange de charge entre ions et espèces neutres. Un régime d'équilibre s'établit donc au sein du plasma. La distribution des courants extraits renseigne sur les populations en présence, néanmoins seules des mesures *in situ*, par exemple basées sur la spectroscopie de rayons X peuvent renseigner directement sur cette répartition. En effet, les ions présents dans le plasma émettent dans plusieurs gammes de longueur d'ondes. Les ionisations et excitations en couche profonde provoquées par les électrons énergétiques du plasma donnent naissance à des espèces excitées, qui se stabilisant de manière radiative émettent des raies satellites de la raie  $K\alpha$ , de type  $KL^n$ , notation traduisant la raie émise par un ion possédant n lacunes en couche L. Dans le cas d'un plasma d'argon, la séparation typique entre 2 transitions d'états de charge successifs est de l'ordre de 20 eV pour les états de charge supérieurs à 8. La spectrométrie haute résolution des rayons X permet de corrélérer directement l'intensité de la raie satellite à la densité de l'espèce ionique considérée. Les énergies précises de chacune des transitions [1] sont indiquées dans la table 2.1.

Nous avons donc développé dans le cadre du co-encadrement de la thèse de Guilhem Douysset un dispositif de mesure *in situ* des rayons X à haute résolution basé sur un spectromètre dispersif dans la géométrie Johan-Johansson [2]. Une vue générale de ce

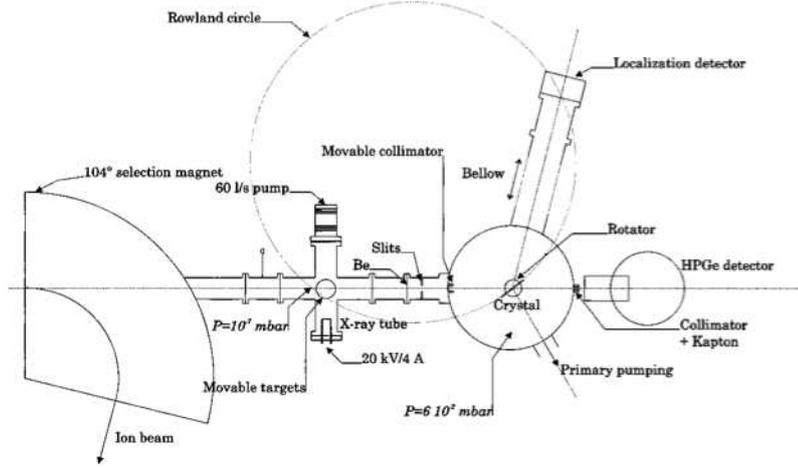


FIGURE 2.1: Vue générale du dispositif utilisé pour collecter les rayonnements X émis par le plasma d'argon produit par une source ECR.

dispositif est donnée en figure 2.1. L'observation des photons X s'est faite directement au travers de l'orifice d'extraction d'une source de type Caprice 10 GHz, modèle qui équipe nombre d'accélérateurs dans le monde. Un détecteur de rayons X à localisation placé dans le plan image du spectromètre permet d'acquérir simultanément les photons X sur des plages d'environ 100 eV. La résolution globale du dispositif varie entre 2.1 et 3.1 eV, permettant ainsi de séparer les raies discrètes des différentes espèces ioniques (Cf figure 2.2).

La population électronique énergétique génère par ailleurs l'émission de rayonnement continu dû au processus de bremsstrahlung. L'acquisition de ces spectres, à l'aide d'un détecteur basse résolution, se fait dans la même géométrie que le détecteur haute résolution. La déconvolution de ces spectres renseigne sur la distribution en énergie de la population électronique. Un modèle de distribution basé sur la superposition de 2 maxwelliennes est généralement admis pour les populations électroniques de sources ECR [3], et conduit à des ajustements des spectres d'émissivité bremsstrahlung de très bonne qualité, comme indiqué sur la figure 2.3 [4].

L'accès à la distribution des densités ioniques au sein du plasma s'appuie sur un modèle d'équilibre corona, qui équilibre les termes de gain d'une espèce (ionisation + excitation) avec la perte par désexcitation (radiative + Auger), décrits dans l'équation

$$\frac{dn_q^i}{dt} = n_e n_q^0 \langle \sigma_{exc}^{q \rightarrow q} v \rangle + n_e n_{q-1}^0 \langle \sigma_{ion}^{q-1 \rightarrow q} v \rangle - \frac{n_q^i}{\tau_i} = 0 \quad (2.2)$$

avec  $n_e$  densité électronique,  $n_q^0$  densité de l'ion d'état de charge  $q$  dans l'état fondamental,  $n_q^i$  dans l'état excité  $i$ ,  $\langle \sigma_{exc}^{q \rightarrow q} v \rangle$  taux de production des ions excités d'état

2 Apport à la compréhension de la physique des plasmas des sources d'ions de type ECR

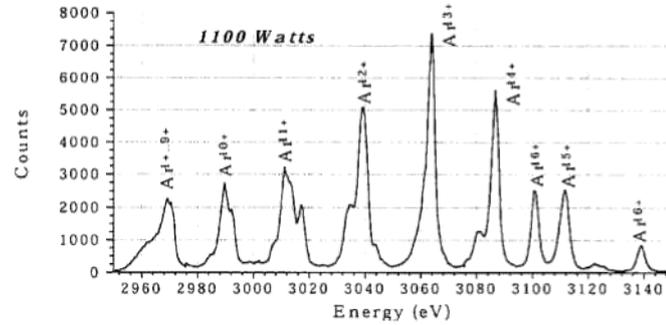


FIGURE 2.2: Spectre haute résolution d'un plasma d'Argon à PHF=1100 W. Deux pages spectrales acquises pendant 100 s sont présentées.

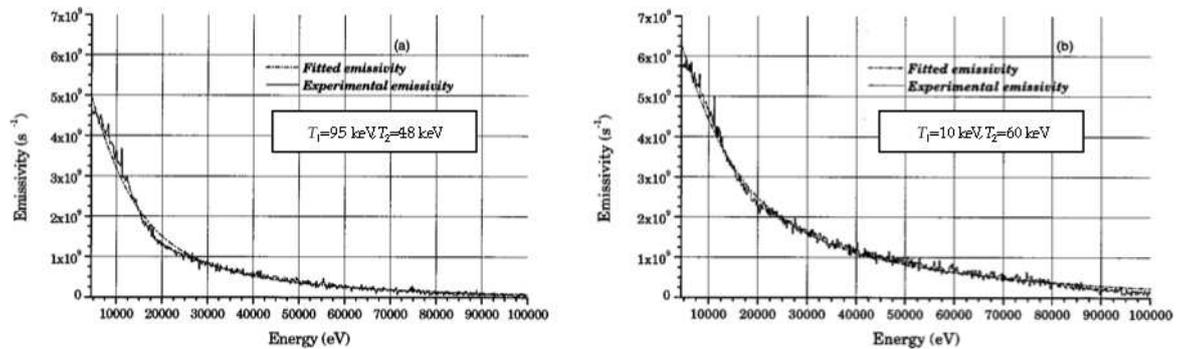


FIGURE 2.3: Courbes d'émissivité expérimentales et ajustées de plasmas ECR d'argon. Puissances RF appliquées (a) 150 W (b) 500 W. Les températures électroniques utilisées pour les ajustements sont indiquées dans les inserts.

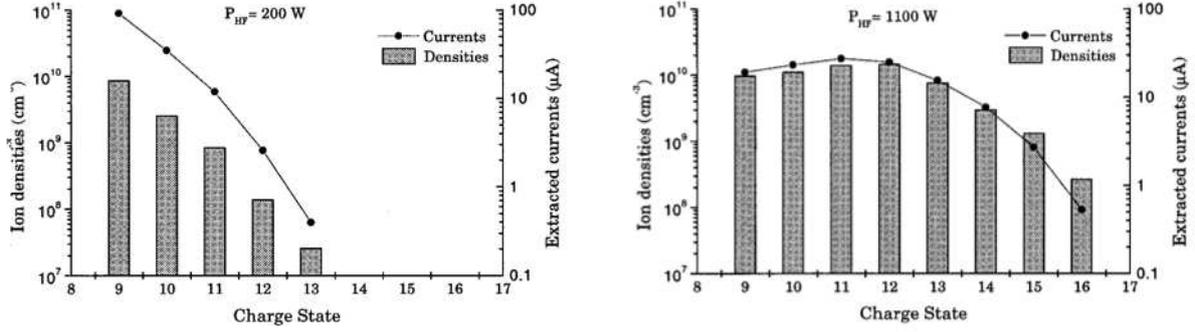


FIGURE 2.4: Distributions ioniques et courants extraits dans 2 plasmas d'argon à basse et haute puissance RF.

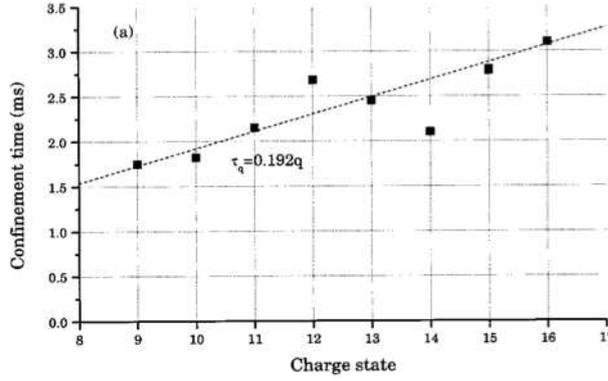


FIGURE 2.5: Temps de confinement dans un plasma d'argon avec PHF= 1100 W, déduits des mesures de densités et courants ioniques.

de charge  $q$  par collision électronique,  $\langle \sigma_{ion}^{q-1 \rightarrow q} v \rangle$  taux de production des ions  $q$  par ionisation des ions  $q-1$ ,  $\tau_i$  durée de vie de l'état excité  $i$ . L'intensité des raies discrètes émises est proportionnelle au dernier terme de l'équation  $\frac{n_q^i}{\tau_i}$ .

Il est par ailleurs possible de déduire le temps de confinement des espèces ioniques dans le plasma puisque les courants extraits (les espèces sont séparées par le spectromètre magnétique) sont proportionnels au rapport  $\frac{n_q}{\tau_q}$ ,  $n_q$  étant la densité ionique de l'état de charge  $q$ ,  $\tau_q$  le temps de confinement au sein du plasma de l'état de charge  $q$ .

Les résultats expérimentaux, présentés sur les figures 2.4 et 2.5, montrent clairement la forte corrélation entre densité et courant ionique, avec toutefois une augmentation régulière du temps de confinement avec l'état de charge. Ces temps de confinement obtenus par des mesures se rapprochent de ceux déduits d'un modèle de diffusion basé sur le champ électrique ambipolaire créé dans plasma, sans nécessité de terme de confinement additionnel [4].



## 3 Microfaisceaux d'ions pour l'analyse

L'analyse par faisceaux d'ions a vu le jour il y a environ un demi-siècle, lorsque Rubin et col. [5] ont pour la première fois fait état de l'exploitation à des fins analytiques de la spectrométrie des rayonnements émis lors de l'interaction d'un faisceau d'ions légers énergétique avec la matière. Il est intéressant de noter que cet article fondateur rapporte ainsi le dosage d'éléments légers dans des matrices lourdes par spectrométrie des produits de réactions nucléaires induites.

### 3.1 Les interactions ion-matière

L'éventail des techniques analytiques s'appuyant sur ces interactions se regroupe sous le vocable IBA, Ion Beam Analysis [6]. Celle-ci reposent essentiellement sur l'interaction coulombienne qui conduit au ralentissement du faisceau incident via un processus de friction avec les électrons du milieu. La notion de pouvoir d'arrêt, communément notée  $S(E)$ , est centrale dans les techniques IBA puisque ce paramètre régit entre autres la distance d'arrêt  $R$  dans une cible épaisse (et donc le volume sondé). Ces grandeurs vérifient la relation

$$R = \int_{E_0}^0 \frac{1}{S(E)} dE \text{ avec } S(E) = \frac{dE}{dx}(E) \quad (3.1)$$

$E_0$  étant l'énergie initiale (à la surface). La perte d'énergie dans la cible  $\Delta E$  est l'intégrale de  $S(E)$  sur le chemin parcouru.

Le pouvoir d'arrêt traduit l'intensité de l'interaction entre le projectile et les distributions de charges l'environnant. Il est d'usage de séparer les contributions électronique et nucléaire, qu'on écrit sous la forme :

$$S(E) = \left. \frac{dE}{dx} \right|_{elec.} + \left. \frac{dE}{dx} \right|_{nucl.} \quad (3.2)$$

Ces pouvoirs d'arrêt élémentaires sont modélisés et régulièrement évalués, et une simple loi de composition (loi de Bragg) permet en général de déduire le pouvoir d'arrêt de pratiquement tout composé. Considérant la situation particulière des faisceaux utilisés dans le cadre de l'IBA, la composante électronique s'avère prépondérante, la composante nucléaire pouvant conduire au déplacement des atomes lors des chocs balistiques est faible et n'intervient qu'en fin de parcours. C'est pour cette raison qu'en général les techniques IBA sont considérées comme non destructives, à l'exception de situations où les espèces ionisées s'avèrent réactives, ce qui est rencontré dans l'analyse de polymères

par exemple. Les techniques IBA connaissent un développement particulièrement utile lorsqu'elles sont mises en œuvre en utilisant des microfaisceaux [7, 8].

## 3.2 Les techniques analytiques en IBA

Au cours du ralentissement, les ions incidents peuvent échanger au cours d'une interaction unique une grande quantité d'énergie pouvant conduire à l'émission de rayonnement, utilisé à des fins analytiques. Cet échange d'énergie peut avoir lieu avec les électrons ou les noyaux. Les caractéristiques partagées par toutes les techniques sub-citées sont qu'elles sont toutes considérées comme peu perturbatrices, et qu'elles permettent à l'aide d'un seul instrument de doser tous les éléments constituant l'échantillon à étudier.

### 3.2.1 Interactions avec les électrons : la technique PIXE

En cas d'ionisation en couche profonde, l'atome excité va pouvoir se stabiliser entre autres par voie radiative. Les rayons X émis renseignent ainsi sur la nature et la proportion des éléments présents dans le volume sondé. Quoique similaire dans le principe à la microscopie électronique en mode analytique, la technique PIXE (Proton-Induced X-ray Emission) se distingue par une sensibilité entre 1 et 3 ordres de grandeur meilleure, et ce du fait du plus grand (profond) volume sondé, et du meilleur rapport signal sur fond puisque les projectiles suivent une trajectoire quasi-rectiligne et connaissent un ralentissement progressif. Le fond continu résiduel est donc dû essentiellement au *bremstrahlung* des électrons secondaires produits lors du ralentissement. Cette technique, dont la limite de détection ultime est inférieure au ppm massique[9], est ainsi particulièrement employée pour doser un élément lourd dans une matrice légère. L'exemple-type est le dosage des métaux en trace dans des échantillons biologiques.

### 3.2.2 Interactions élastiques

#### *RBS, Rutherford Backscattering Spectrometry*

Technique historique par excellence [10], la RBS repose sur les collisions élastiques projectile-noyaux et continue à être employée aujourd'hui pour résoudre des structures multicouches complexes [11]. Elle connaît de surcroît un regain d'intérêt dans le domaine d'énergie autour de la centaine de keV (technique MEIS : Medium Energy Ion Spectrometry [12]) grâce à l'emploi de spectromètres électrostatiques. On atteint ainsi un pouvoir de séparation des signaux correspondant des épaisseurs de l'ordre 0.1 nm. Dans le cas plus général de l'utilisation de l'IBA, la RBS est souvent utilisée conjointement à d'autres techniques, et ce à des fins de normalisation des spectres.

#### *ERDA, Elastic Recoil Detection Analysis*

S'appuyant également sur les collisions élastiques, l'ERDA s'intéresse à la spectrométrie des éjectiles. Les conditions énergétiques peuvent être particulièrement favorables pour doser les éléments très légers dans les matériaux. C'est d'ailleurs une technique de dosage absolu de l'hydrogène régulièrement employée dans notre laboratoire, que ce soit dans le domaine des matériaux du nucléaire [13] ou les sciences de la Terre [14].

Une variante qui consiste à utiliser comme projectiles des protons permet, lorsque l'on détecte en coïncidence sur un échantillon aminci les protons émis vers l'avant (projectile et éjectile) d'atteindre des limites de détection très basses, de l'ordre du ppm atomique en hydrogène [15].

#### 3.2.3 Interactions inélastiques

Dans certaines situations, il est possible d'induire des réactions nucléaires sur les noyaux des atomes. Cela est particulièrement le cas sur certains noyaux légers, dont la barrière coulombienne reste franchissable par effet Tunnel. Fait important, ces interactions sont évidemment sensibles à l'isotope et cette propriété est exploitée dans des expériences de traçage isotopique [16]. Ces réactions se classent suivant le type d'interaction nucléaire mis en jeu : (i) l'excitation coulombienne, qui se traduit par l'excitation du noyau cible dans un niveau nucléaire élevé et se stabilise par émission d'un photon  $\gamma$ , (ii) la réaction « directe », où l'interaction se cantonne aux nucléons périphériques, ce qui conduit à des réactions de capture (par le projectile) ou d'épluchage (du projectile), (iii) la création d'un noyau composé, où une fusion complète des noyaux s'opère, avec redistribution des nucléons, suivie par l'émission d'un fragment. Le projectile de choix pour induire des réactions nucléaires est le noyau de deutérium du fait qu'il est assez faiblement lié. Il est ainsi facilement l'objet des réactions de type direct. Cela permet d'accéder aux éléments tels  $^3\text{He}$ ,  $^{12}\text{C}$ ,  $^{13}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$ ,  $^{16}\text{O}$ ...

### 3.3 Les microfaisceaux d'ions légers

Déclinées à l'échelle du micromètre, voire de la centaine de nanomètres parfois, les techniques IBA trouvent une grande variété d'applications là où l'information spatiale revêt une importance première : joints de grains, organites cellulaires, micro-phases, inclusions vitreuses ou fluides, précipités... Le principe repose sur la focalisation du faisceau d'ions rapides par des éléments électromagnétiques positionnés le long des lignes de transport de faisceau. La conception de telles lignes obéit aux standards de l'optique corpusculaire, avec la définition d'un objet matérialisé par un collimateur ou un système de fentes réglables qui est projeté en image focalisée sur l'échantillon. On trouve des arrangements d'éléments magnétiques de complexités très variables, allant du doublet quadrupolaire accolé (le simple solénoïde de focalisation ne suffit pas vu les rigidités magnétiques en jeu et les rapports des distances entre objet, image et lentille, à moins d'utiliser des technologies de type supraconducteur) à la combinaison de multiplets aux performances nominales élevées mais à la manipulation extrêmement délicate. En particulier, l'alignement des axes et l'orientation des pôles des différents éléments est complexe et influe énormément sur la dimension finale du faisceau. Les désalignements et désorientations sont des paramètres essentiels des coefficients d'aberration du système et peuvent très vite dominer les termes du 1<sup>er</sup> ordre. Les aberrations chromatiques qui jouent elles aussi un rôle non négligeable sur la taille finale sont toutefois limitées par la qualité du spectromètre magnétique dispersif intercalé entre l'accélérateur et la ligne microfaisceau. A la

### 3 Microfaisceaux d'ions pour l'analyse

qualité de conception magnétique de la ligne s'ajoute la nécessaire brillance du faisceau afin d'obtenir un microfaisceau effectivement utile une fois sur l'échantillon. Aujourd'hui il existe des accélérateurs extrêmement stables en énergie du fait de l'emploi de composants solides et l'absence de pièces mécaniques en mouvement [17]. Par contre la technologie des sources d'ions employées dans ces machines, qui s'appuie sur une décharge plasma induit par injection d'une onde RF dans une cavité, est restée inchangée (à quelques exceptions près) depuis l'émergence des applications microfaisceau. Outre ces limites technologiques, qui peuvent souvent être repoussées, il existe également des limites de tenue physique des échantillons du fait des densités de courant incidentes produites sur des lignes ultra-performantes. Ces limites sont bien entendu très variables d'un type d'échantillons à un autre, avec une sensibilité bien plus grande sur les échantillons biologiques/organiques que sur les métaux typiquement. Les premiers, très sensibles au processus de radiolyse vont très vite se dégrader du fait des recombinaisons et la production d'espèces volatiles, alors que les seconds permettent une redistribution très efficace de l'énergie incidente sous forme de phonons, qu'il est facile d'évacuer du système analysé. Une stratégie suivie par un nombre croissant de laboratoires consiste à optimiser la collecte des rayonnements pour réduire la durée d'exposition aux microfaisceaux intenses. Cela se traduit par la conception de systèmes de détection multi-détecteurs, et à l'usage de très grands angles solides de détection. Ceci conduit au développement de chaînes d'acquisition complexes, plus proches de l'expérience de physique nucléaire que celle des systèmes embarqués et portables.

Les microfaisceaux d'ions sont maintenant systématiquement utilisés en mode imagerie, où à chaque pixel (qui correspond à une position du faisceau sur l'échantillon contrôlée par des déflecteurs électrostatiques rapides) est associé un (ou des) spectre(s) provenant des différents détecteurs employés. Les données brutes sont traitées par des logiciels d'extraction de spectres à partir de zones sélectionnées par l'utilisateur pour être ensuite injectées dans les codes de simulation des spectres associées à chacune des techniques d'IBA.

### 3.4 La microsonde nucléaire de Saclay

La microsonde nucléaire implantée à Saclay obéit aux principes énoncés au paragraphe précédent. Nous rappelons ici les caractéristiques principales de cet équipement, plus de détails sont disponibles dans les différentes publications associées [18, 19, 13, 20]. Un schéma général de l'installation est donné en figure 3.1. Les faisceaux produits ici sont des faisceaux d'ions légers ( $^1\text{H}^+$ ,  $^2\text{H}^+$ ,  $^3\text{He}^+$ ,  $^4\text{He}^+$ ) d'énergie maximale 3.75 MeV qui peuvent être employés sur 2 lignes microfaisceau, à la conception générale identique, mais dont la finalité est différente. En effet, aux côtés d'une ligne de microfaisceau de facture classique, nous disposons d'une ligne capable d'accueillir des échantillons fortement radioactifs puisque la chambre d'analyse CASIMIR (Chambre d'Analyse de Surfaces et Interfaces de Matériaux IRadiés) est installée dans une casemate blindée. Cette chambre nucléarisée (Cf. figure 3.2) permet ainsi de mettre en œuvre les techniques IBA pour étudier des matériaux radioactifs ayant subi des altérations multiples (endommagement, corrosion,

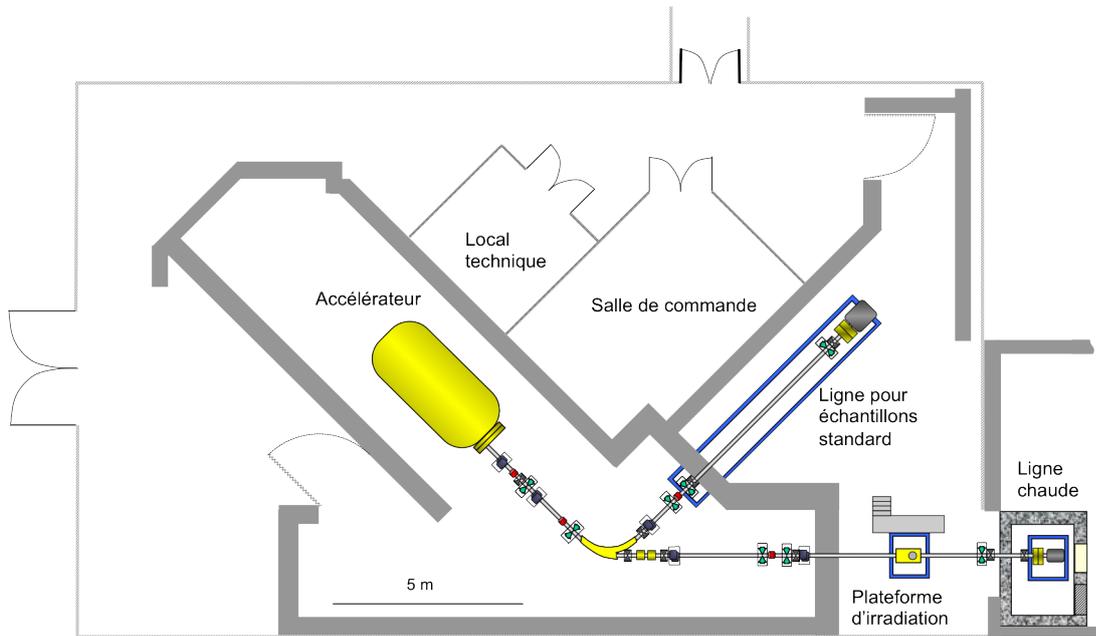


FIGURE 3.1: Schéma général de la microsonde nucléaire de Saclay

radiolyse... ) du fait de leur séjour en réacteur. Cette ligne reste aujourd'hui unique au monde.

Bien que répandue, mais pas généralisée, il faut relever l'utilisation de faisceaux de deutons rendue possible par la protection biologique mise en place autour de l'accélérateur. Comme indiqué au 3.2.3, les faisceaux de deutons sont privilégiés pour le dosage de la majorité des éléments légers.

Par ailleurs, il faut également noter que nous disposons d'une plateforme de micro-irradiation à l'air (figure 3.3) ; un dipôle magnétique est inséré sur l'une des lignes et permet de dévier verticalement le faisceau, qui est extrait à l'air après avoir été fortement collimaté. Cela permet de disposer d'un système de micro-irradiation pour des cellules en culture ou des solutions. L'utilisation de la microsonde nucléaire, autrefois exclusivement destinée à l'accueil d'équipes et formalisé par l'examen des projets par un comité de programmes extérieur au laboratoire, s'élargit depuis quelques années à des programmes de recherche programmatiques propres ou collaboratifs. La taille et la complexité de l'équipement, l'usage en mode continu 24h/24 font qu'une équipe technique est dédiée à l'exploitation et la maintenance de la microsonde nucléaire. Cette équipe fait partie intégrante du laboratoire.

### 3 Microfaisceaux d'ions pour l'analyse



FIGURE 3.2: Vue de la chambre d'analyse CASIMIR destinée à accueillir des échantillons fortement radioactifs



FIGURE 3.3: Plateforme de micro-irradiation à l'air

## 4 Applications dans le domaine des sciences des matériaux

Les sciences des matériaux, dans toute leur diversité, trouvent dans les techniques  $\mu$ IBA un large panel analytique qui convient à de nombreuses études telles que paramétriques. En particulier, la sensibilité aux éléments légers (dosage sub-surfacique, contrairement à la fluorescence X qui ne peut voir dans ce cas que l'extrême surface) et les techniques de traçage isotopique présentent d'indéniables avantages comparativement à d'autres techniques. Les sciences des matériaux sont d'ailleurs considérées comme étant le domaine d'application des techniques  $\mu$ IBA par excellence. Nous présentons ici quelques études relatives aux matériaux dans lesquelles j'ai été très fortement impliqué.

### 4.1 Hélium dans les combustibles nucléaires

Durant tout le cycle du combustible nucléaire, que ce soit en amont, durant l'exploitation, et encore plus pendant l'aval, il est prévu et observé que des quantités importantes d'hélium vont être produites et s'accumuler au fil du temps dans les matériaux. Cet élément provient de la décroissance radioactive des différents radionucléides existants dans ces matériaux.

Le devenir de l'hélium au sein du matériau va conditionner en grande partie son évolution microstructurale et par la même l'intégrité de la structure hôte. Il est admis que l'hélium, une fois produit, peut rester sous forme soluble au sein de la structure, migrer sous l'effet d'une diffusion thermique, se concentrer puis précipiter sous forme de bulles. Celles-ci peuvent alors coalescer, et sous l'effet de l'augmentation de la pression, conduire à une décohésion du matériau. En réacteur, une augmentation de pression peut conduire à un détachement de la pastille d' $\text{UO}_2$  de la première barrière de confinement que constitue la gaine d'alliage de zirconium entourant les pastilles. L'échauffement ainsi produit peut conduire à la destruction de la barrière. En conditions de stockage, l'enjeu sous-jacent est bien entendu le relâchement éventuel de radioéléments dans l'environnement si le colis venait à perdre son intégrité sous l'effet de la pression. Ainsi, le comportement de cet élément est d'une importance première quant aux travaux prospectifs concernant le stockage de longue durée des déchets radioactifs. Des preuves expérimentales des dégâts pouvant être occasionnés par l'accumulation d'hélium sont données par exemple dans les travaux de Ronchi [21] où une pastille de  $\text{PuO}_2$  s'est complètement défragmentée après un stockage d'une trentaine d'années en atmosphère inerte. De nombreuses stratégies expérimentales ont été et continuent à être mises en œuvre afin d'accéder aux paramètres gouvernant le comportement de l'hélium dans ces matériaux. Les expériences

d'infusion suivies de cycles de relâchement par thermo-désorption sont ainsi fréquemment menées [22]. Des études de diffraction et de spectroscopie Raman sont également faites afin d'étudier l'évolution de la structure sous l'effet de l'accumulation d'hélium. Enfin, des expériences de NRA (et plus particulièrement  $\mu$ NRA) sont également régulièrement menées sur des matériaux dans lesquels sont implantés des ions  $^3\text{He}$  et qui subissent par la suite des cycles de recuit afin d'induire de la diffusion thermique [23, 24, 25]. Le choix de l'isotope  $^3\text{He}$  vient du fait qu'il n'existe pas de réaction nucléaire exploitable pour l'isotope le plus abondant  $^4\text{He}$ . La détermination de la distribution latérale et en profondeur ainsi que la quantification de l'He renseignent donc sur le comportement de l'hélium et permettent d'affiner les mécanismes de transport. Au sein du laboratoire, nous avons ainsi conduit plusieurs campagnes de mesures par  $\mu$ NRA, essentiellement dans le cadre de collaborations sous l'égide des programmes européens (Actinet, F-bridge). Les matériaux préalablement implantés, puis pour certains recuits, ont ainsi été analysés à l'aide de la réaction  $^3\text{He}(d,p)^4\text{He}$  ( $Q=18,354$  MeV) [26]. Cette réaction, optimale pour un faisceau de deutérons de 0,400 MeV, conduit à la production de particules de haute énergie qui sont bien isolées dans le spectre collecté. Sur des grains d' $\text{UO}_2$  avant recuit, on observe une distribution homogène d'hélium comme indiqué sur la figure 4.1-A sur un échantillon implanté, alors que ce même type d'échantillon, après recuit, affiche une distribution hétérogène (figure 4.1-B) à proximité des joints de grains tels que révélés par les micrographies optiques [27]. Cette déplétion peut être expliquée dans le cadre d'un modèle de migration de l'hélium qui suppose une diffusion accrue à proximité des joints de grains, du fait que la concentration de défauts est différente à proximité des joints de grains que ce qu'elle est au coeur du grain [28].

Afin de vérifier que la migration à proximité des joints était spécifique à cet environnement, le même type d'expériences d'analyse locale d'hélium a été également mené sur des échantillons qui présentaient des surfaces libres produites par clivage. Il n'a pas été observé dans ce cas de déplétion à proximité de cette interface, ce qui tend à démontrer que ce sont les contraintes sur la structure induites par les joints de grain qui favorisent cette déplétion [25].

Aujourd'hui, il est globalement admis que pour le combustible, les chemins de percolation seront suffisamment nombreux pour évacuer l'hélium de la microstructure, ce qui *a priori* ne conduira pas à un relâchement de micro-fragments dans l'environnement [29]. Les études en cours se penchent plus particulièrement sur le rôle que pourrait jouer l'endommagement créé par les radionucléides dans le matériau sur les propriétés de transport de l'hélium. A ce titre, la ligne chaude CASIMIR est un des outils de caractérisation requis pour ce type d'étude.

## 4.2 Deutérium dans les matériaux de paroi de tokamaks

Les réacteurs basés sur le processus de fusion thermonucléaire sont aujourd'hui aux limites de plusieurs concepts technologiques et connaissances en physique, et de part la même génèrent tout un champ d'études dans plusieurs disciplines de la physique, la chimie et les technologies associées, telle la physique des plasmas en premier lieu,

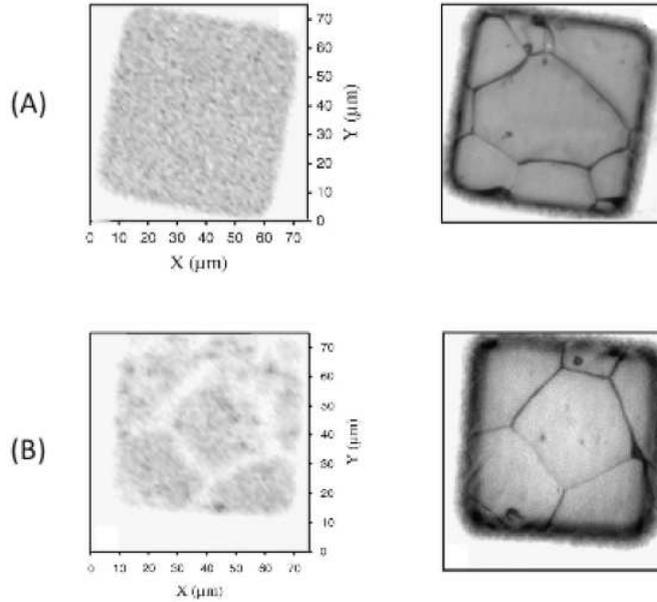


FIGURE 4.1: Distributions latérales d'hélium dans des grains d'UO<sub>2</sub> après implantation (A), et après implantation puis recuit à 1300°C pendant 1h (B).

mais aussi l'électromagnétisme, la supraconductivité, la thermohydraulique, les sciences des matériaux, les technologies du vide, des sources d'ions, les spectrométries visible, infrarouge, X...

les interactions plasma-paroi sont parmi les processus limitants les plus importants des performances des machines tokamaks, et font l'objet d'importantes recherches [30]. Les caractéristiques du plasma confiné sont en effet fortement conditionnées par ces interactions : les processus d'érosion, implantation, co-déposition influent sur la composition à l'équilibre du plasma, et par conséquent sa température et donc ces performances. Parmi les processus qu'il faut impérativement limiter, le phénomène d'accumulation du combustible (tritium dans un plasma de fusion) sur les parois se doit d'être contrôlé, et idéalement minimisé du fait des limites de sûreté qui seront nécessairement imposées. Aujourd'hui on évoque le chiffre de 1 kg d'inventaire tritium à ne pas dépasser dans le cas du projet ITER [31].

Parmi les matériaux qui ont été envisagés pour recouvrir une partie des parois d'un tokamak, figurent outre le tungstène, le béryllium, mais aussi le carbone, plus particulièrement sous la forme composite carbone-fibre de carbone (CFC). Ce matériau est ainsi celui qui a été choisi lors de la construction du tokamak Tore Supra, machine qui détient le record de durée de plasma (6 mn) [32]. Ce matériau, aux propriétés thermo-mécaniques remarquables, et qui du fait du faible numéro atomique contribue peu aux pertes d'énergie par rayonnement, possède néanmoins un inconvénient majeur car il retient une grande proportion du combustible sous forme de codépôts carbone-isotope de l'hydrogène. Il se forme donc sur ces parois des couches d'épaisseurs variables suivant

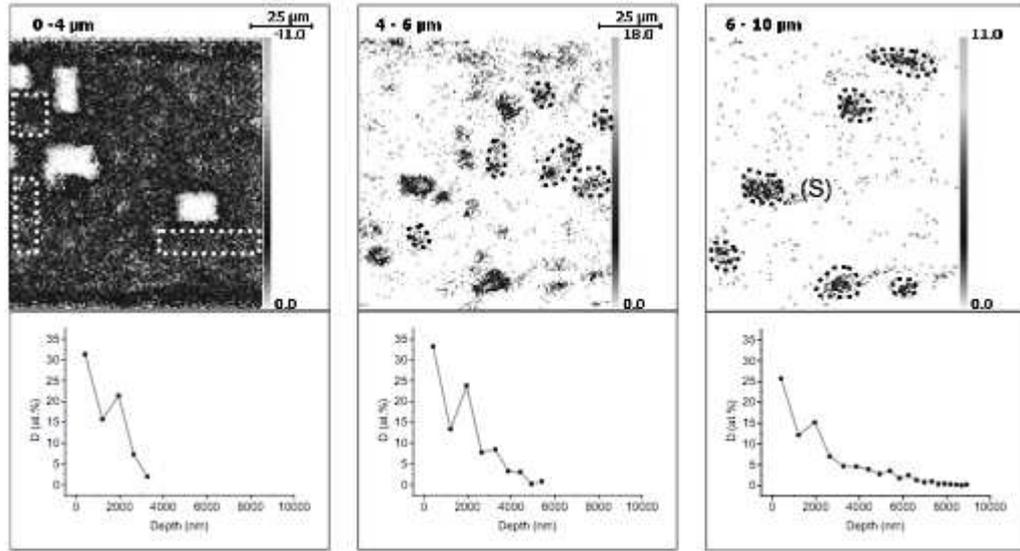


FIGURE 4.2: Cartographies deutérium dans des CFC exposés au plasma Tore Supra, et profils en profondeur des régions définies par les traits discontinus.

les conditions de température et d'exposition au flux, mais qui peuvent faire rapidement plusieurs micromètres d'épaisseur. Ce processus peut être toutefois minimisé en effectuant de manière cyclique des décharges avec un gaz lourd qui érode ces couches codéposées.

Afin de déterminer plus précisément le devenir du combustible dans le matériau, nous avons effectué des études poussées sur des échantillons de CFC immergés dans le plasma de Tore Supra en procédant à des analyses par  $\mu$ NRA. Outre l'identification des couches co-déposées déjà évoquées, nous avons pour la première fois mis en évidence l'existence de poches de deutérium en profondeur (le deutérium est utilisé comme substitut du tritium dans les tokamaks d'étude comme Tore Supra). A l'aide de la réaction nucléaire  ${}^2\text{H}({}^3\text{He}^+, p){}^4\text{He}$ , il est en effet possible de reconstituer (de manière non destructive) le profil en profondeur du deutérium (Cf. figure 4.2) [33]. Il a été ainsi possible d'identifier des poches de deutérium de quelques  $\mu\text{m}^3$  à plus de  $10 \mu\text{m}$  sous la surface, bien au-delà de la profondeur d'implantation du deutérium (l'énergie moyenne des deutérons incidents est de l'ordre de 300 eV, qui s'implantent à 7 nm dans un graphite d'après SRIM [34]). Des études complémentaires en microscopie en transmission ont permis de corréliser ces poches de deutérium à des porosités enfouies existant entre les fibres de carbone et la matrice [35]. De nombreuses autres études [36, 37, 38] ont depuis confirmé la présence de deutérium bien au-delà de la couche de co-déposition. Il faut noter ici que toutes les mesures citées sont effectuées *post mortem*, et souvent plusieurs mois après l'exposition au plasma.

La problématique qui s'est alors ouverte était de tenter de comprendre ce phénomène d'accumulation profonde. De plus, le temps séparant l'exposition de l'analyse conduit à

des difficultés d'interprétation : il est en effet possible d'évoquer une diffusion lente à température ambiante, des échanges avec l'atmosphère pour expliquer une telle redistribution. Aussi certaines équipes se sont attelées à la résolution de cette question en développant des dispositifs qui associent l'exposition à un plasma ou une source d'ions avec une analyse simultanée par NRA [39, 40]. Ces expériences qui sont conçues sur des accélérateurs de particules de type Van de Graaf confirment l'existence de deutérium en profondeur, mais sans pouvoir déterminer la distribution latérale. De plus des questionnements concernant les dommages provoqués par le faisceau d'analyse compliquent l'interprétation des résultats, les défauts créés par endommagement créent de nombreuses trappes qui contribuent à piéger le deutérium (et donc fausser l'inventaire). Pour notre part, nous avons développé ces dernières années un dispositif qui permet de coupler dépôt de deutérium à basse énergie et micro-analyse par NRA. Il est ainsi possible de suivre de manière quasi-simultanée et *in situ* la distribution 3D du deutérium dans le matériau [41]. Nous avons ainsi proposé une étude sur ce thème dans le cadre du co-encadrement de la thèse d'Elodie Bernard. Nous avons associé une source d'ions ECR 2.45 GHz commerciale à la chambre d'analyse de la microsonde nucléaire. Celle-ci ne délivre bien sûr pas les mêmes flux que ceux produits à proximité d'une paroi de tokamak, mais il est néanmoins possible d'obtenir des fluences convenables (quelques  $10^{24}$  D/m<sup>2</sup>, fluences telles que celles auxquelles ont été exposés les échantillons présentés en figure 4.2) en des temps relativement raisonnables (quelques jours). Un schéma du dispositif employé est indiqué en figure 4.3. Afin d'optimiser le flux incident, une lentille électrostatique de type Einzel est intercalée de manière à focaliser le faisceau de deutérium sur l'échantillon. Nous nous sommes au préalable assurés que la zone analysée était bien incluse dans la zone de dépôt homogène.

Sur des échantillons de CFC ainsi exposés, on observe strictement le même comportement que sur ceux plongés dans le plasma de tokamak. On retrouve tout d'abord une couche uniforme de deutérium, qui prend d'ailleurs l'allure de couche co-déposée quand le dépôt se fait avec un mélange D-C. Cette couche correspond plus généralement à la zone d'implantation des ions D, la spectrométrie Raman semblant indiquer qu'elle est sous forme amorphe avec une épaisseur compatible avec les profondeurs d'implantation. On retrouve sous cette couche du deutérium jusqu'à 10  $\mu\text{m}$  à l'intérieur (cette distance étant la limite de profondeur d'analyse de la technique NRA). Ainsi, cette migration en profondeur peut être considérée comme instantanée et n'obéit pas à un mécanisme de diffusion lente. Les profils en profondeur de deutérium et les cartographies dans des zones profondes sont très similaires à ceux obtenus sur des échantillons exposés au plasma de Tore Supra. Les zones enrichies en deutérium correspondent aux zones de fissures sur les échantillons. Ces zones, très nombreuses telles que l'on montrées des expériences de micro-tomographie X à l'ESRF, constituent donc les zones privilégiées de fixation du deutérium dans les CFC. De plus, des expériences de  $\mu\text{NRA}$  sur des sections fraîchement préparées après exposition au faisceau d'ions montrent que l'on retrouve du deutérium à plusieurs dizaines de micromètres sous la surface d'exposition (cf figure 4.4) [42]. Ce processus devrait donc être présent dans la machine dès les premiers tirs plasma. Cet effet, que certains tentent de reproduire à l'aide de modélisations multi-échelle [43], semble

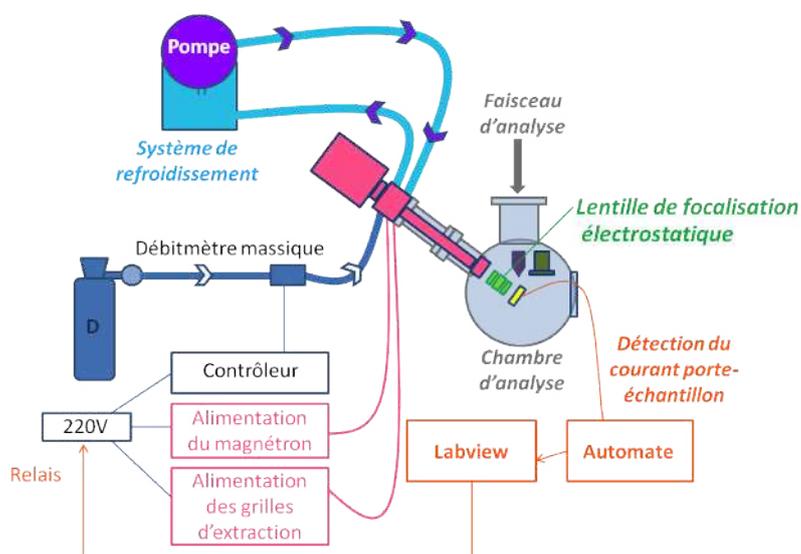


FIGURE 4.3: Schéma du dispositif d'implantation et détection simultanée

être gouverné par la proportion de surface disponible via les porosités ouvertes.

Jusqu'à aujourd'hui, les mécanismes élémentaires régissant la migration qui sont identifiés vont de l'échelle nanométrique au cm et sont :

- au nm, une diffusion athermique dans les plans de graphène formant les cristallites (de longueur caractéristique de l'ordre de 10 à 20 nm), avec des énergies d'activation faibles ( $\leq 0.5$  eV). Cette diffusion est donc extrêmement rapide ;
- vers 10-20 nm, une diffusion inter-cristallites via les surfaces de contact ou les nanoporosités ;
- vers 1-2  $\mu\text{m}$ , une diffusion inter-granules via les surfaces de contact ou les microporosités ;

Ces deux derniers modes de diffusion ne sont par contre effectifs qu'à haute température, les énergies d'activation étant supérieures à 1.9 eV.

- des processus de recombinaison en surface, qui conduisent à l'évaporation de l'isotope de l'hydrogène ;
- des processus de piégeage et dépiégeage activés thermiquement, qui ont lieu dans les pièges répartis dans le matériau et dans ceux créés par le bombardement ionique.

Cette vision peut être complexifiée en prenant en compte l'éventuelle couche de co-déposition formée et qui rajoute des paramètres aux modèles envisagés.

Les barrières de diffusion que constituent la diffusion inter-cristallites et inter-granules ne semblent pas être un frein à la migration du deutérium dans nos observations expérimentales. Le processus d'érosion induit par les ions incidents ne peut pas non plus être évoqué pour constituer des jonctions entre les cristallites ou les granules. Aujourd'hui

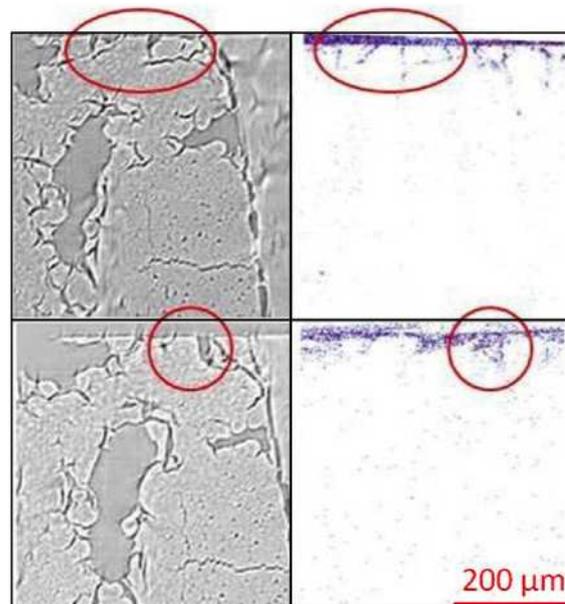


FIGURE 4.4: Corrélation entre cartographie des porosités obtenue par tomographie (à gauche) et image deutérium obtenue par NRA (à droite) pour deux plans d'une même analyse : on peut clairement identifier des géométries similaires entre le deutérium piégé et les porosités du matériau.

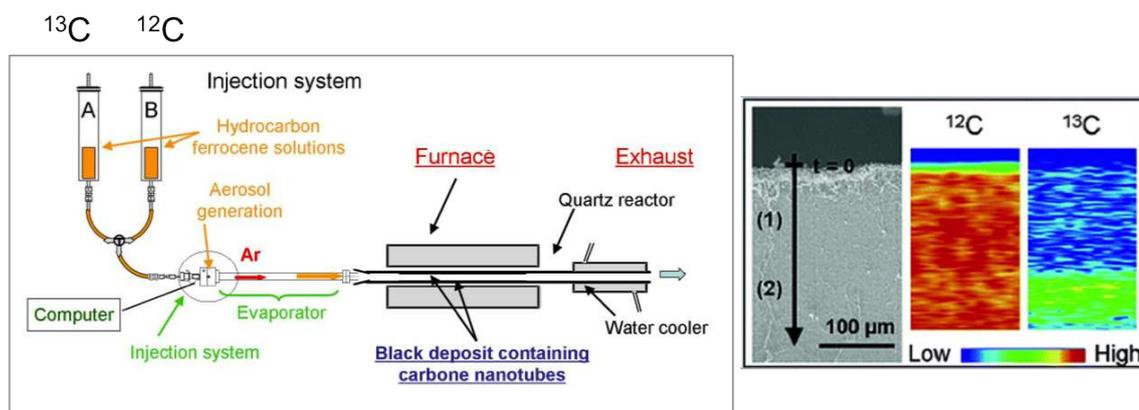


FIGURE 4.5: Principe de la synthèse avec hydrocarbure marqué, et cartographie du  $^{13}\text{C}$ .

la question reste ouverte quant à la migration à très grande distance à la température ambiante. La piste d'un dépôt mixte deutérium+atome lourd, qui sous l'effet de la diffusion pourrait aller combler les interstices et autoriserait une diffusion de surface, serait à examiner de près. Une autre hypothèse à envisager serait un effet de "canalisation" des ions incidents sur les parois des pores et interstices, qui dans un modèle de diffusion coulombienne multiple, pourrait guider les ions deutérium à des profondeurs élevées (de l'ordre de plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ ) avec des pores (canaux) de quelques microns de diamètre.

### 4.3 Traçage isotopique pour la compréhension des mécanismes de croissance des nanotubes de carbone

Depuis leur découverte par Iijima il y a une vingtaine d'années [44], les nanotubes de carbone ne cessent d'être au coeur de l'actualité scientifique. Ces matériaux particuliers, aux caractéristiques physico-chimiques remarquables, sont ainsi intensément étudiés pour leurs propriétés électriques, thermiques, mécaniques... Ils sont envisagés dans des applications allant de l'électronique aux procédés de filtration. Ces matériaux commencent également à pénétrer le marché industriel, dans les pneumatiques, les membranes, les matériaux avancés...[45, 46]

La fabrication des nanotubes est par conséquent un enjeu scientifique, technologique et industriel majeur. Il est donc capital de comprendre de la façon la plus précise possible les mécanismes qui conduisent à la formation des nanotubes, afin d'optimiser les process ou orienter les caractéristiques physiques du produit. A ce titre, l'une des questions qui s'est posée à la communauté scientifique concernait le mode de croissance des nanotubes produits par dépôt de vapeur (Chemical Vapor Deposition, CVD). Ces nanotubes ont la particularité de croître sur des substrats et produisant des tapis extrêmement denses et avec un excellent alignement. Ce procédé permet de produire des tapis de nanotubes sur

### 4.3 Traçage isotopique pour la compréhension des mécanismes de croissance des nanotubes de carbone

de grandes surfaces et des hauteurs de plusieurs mm. Dans ce procédé, un aérosol d'hydrocarbures est injecté dans un four et se dépose sur un substrat (de type quartz) pour former des tapis de nanotubes multiparois hautement alignés [47]. La question qui était alors posée était de déterminer si les atomes de carbone injectés viennent se greffer au sommet des nanotubes déjà formés, prolongeant ainsi les parois de graphène déjà formés, ou s'inséraient de manière préférentielle le long du nanotube déjà formé. Une première façon de répondre à cette question a consisté à effectuer des synthèses fractionnées, la hauteur du tapis de nanotubes étant proportionnelle à la durée de la synthèse. En utilisant des temps de synthèse différents, il est possible de reconstituer par la chronologie et la hauteur des tapis la chronologie de la synthèse. Cette technique peut toutefois induire un biais du fait que la synthèse est faite par à-coups. Une autre façon d'étudier le processus de croissance consiste à synthétiser de façon toujours séquentielle mais avec un hydrocarbure marqué au  $^{13}\text{C}$  pendant l'une des séquences, sans stopper l'opération de synthèse mais en passant graduellement d'un réservoir standard à un réservoir marqué. On utilise alors dans ce cas l'imagerie de la réaction nucléaire  $^{13}\text{C}(\text{d},\text{p})^{14}\text{C}$  pour identifier sur la hauteur du tapis les régions enrichies en  $^{13}\text{C}$ . Il a été ainsi possible de reconstituer la chronologie de la synthèse sur des tapis qui ne dénotent aucune rupture dans la production des tapis (Cf figure 4.5) [48]. Le traitement des spectres des régions riches ou non en  $^{13}\text{C}$  ont montré que l'on retrouve d'une part le taux d'enrichissement dans le réservoir et le taux naturel (1,1 %) d'autre part [49]. Cela indique que l'insertion se fait de manière précise dans le nanotube. La correspondance avec la chronologie a confirmé par ailleurs que la croissance se fait par le "bas", la vapeur injectée diffuse ainsi jusqu'au substrat et soulève le tapis déjà formé.

Dans le même champ thématique, et dans le cadre d'explorations quant à l'application de ces tapis de nanotubes alignés comme moyen de filtration, nous avons également récemment employé la méthode de traçage isotopique sur des membranes à base de tapis de nanotubes qui ont été imprégnés par un polymère deutéré, et en utilisant ici l'imagerie de la réaction  $^2\text{H}(^3\text{He}^+, \text{p})^4\text{He}$ . Il a ainsi été possible d'évaluer le taux d'imprégnation et l'efficacité de polymérisation, ainsi que son uniformité le long du tapis. Ces résultats quantitatifs ont par ailleurs été confirmés par spectrométrie de thermodesorption [50].



## 5 Applications dans le domaine de la biologie

Les applications analytiques des techniques de faisceaux d'ions dans le domaine de la biologie sont nombreuses et font partie des premières applications des microsondes nucléaires. Ce domaine était initialement fort peu développé au laboratoire, mais a connu une croissance rapide du fait de l'hébergement d'une équipe spécialisée en toxicologie au sein de l'unité durant la période 2000-2005. J'ai contribué au développement de ces applications, qui continuent à être utilisées aujourd'hui puisque la biologie est à présent une des thématiques régulièrement accueillies auprès de la microsonde.

L'atout des techniques  $\mu$ IBA dans le domaine de la biologie est essentiellement lié au fait que les techniques sont quantitatives ainsi que la bonne sensibilité de la technique PIXE pour des éléments comme les métaux, du fait de l'incorporation dans une matrice légère qui a pour conséquences un spectre de fond faible ainsi que peu d'interférences. Il est alors courant d'obtenir des limites de détection sub-ppm. Cette technique s'avère intéressante pour le dosage de traces, et se positionne entre l'analyse élémentaire de premier niveau de type MEB en mode analytique et la fluorescence X par rayonnement synchrotron ou l'ICP-MS pour la détection et la quantification d'ultra-traces.

Les difficultés sont toutefois nombreuses : il faut ainsi être vigilant sur l'immobilisation des éléments d'intérêt pendant la phase de préparation des échantillons, ce qui est assuré généralement par une trempe de l'échantillon dans un bain à très basse température, suivi d'un processus de lyophilisation pour ne pas remettre en solution les métaux fixés. L'environnement de l'échantillon (support) est également à déterminer avec soin, afin d'éviter l'induction de fluorescence parasite. La normalisation des mesures est également délicate du fait que l'on travaille souvent sur des échantillons minces (monocouches cellulaires, coupes de tissu), et qu'il n'est pas possible de collecter ainsi la charge déposée. Enfin, les dommages induits par le faisceau sont à minimiser ou du moins à anticiper, la matière biologique étant particulièrement fragile. Cette limitation intrinsèque pose le problème des analyses avec des faisceaux de haute brillance, auquel cas les dommages peuvent devenir trop importants pour les considérer comme négligeables et n'influençant pas la composition chimique de l'échantillon étudié.

Aujourd'hui l'analyse biologique continue à être l'une des applications-phare de l'analyse par micro-faisceaux, les efforts d'amélioration étant portés sur la phase de préparation des échantillons, par l'utilisation de porte-échantillons refroidis évitant ainsi l'étape de lyophilisation.[51]

## 5.1 Toxicologie des métaux lourds dans les cellules d'organes cibles

Le programme Toxicologie Nucléaire et Environnementale, initié au CEA, puis élargit par la suite au CNRS, l'INRA et l'INSERM [52], a fortement contribué à la relance de l'activité toxicologie cellulaire en France. L'un des principaux objectifs de ce domaine d'études est de déterminer des seuils de toxicité, que ce soit sur des organismes entiers, des tissus ou des cellules, de les corrélés entre eux, mais également appréhender les mécanismes de toxicité. Les bilans élémentaires sont donc nécessaires et il convient d'employer des techniques d'analyse quantitative. La question de la spéciation des éléments toxiques est toutefois d'une acuité particulière, la toxicité étant d'abord et avant tout liée à l'activité chimique.

Dans ce cadre, nous avons ainsi développé au laboratoire des protocoles de microanalyse sur des monocouches cellulaires. La méthodologie développée a ainsi été mise en œuvre sur nombre de lignées cellulaires exposées à différents ions lourds : le cadmium, le plomb et l'uranium, éléments d'importance majeure dans le cadre de l'industrie électro-nucléaire.

Ces protocoles analytiques ont été ainsi initialement développés et appliqués à l'étude de la toxicité de cellules épithéliales de rein exposées au cadmium. Le rein est en effet un organe cible du cadmium qui provoque de nombreuses pathologies. Les cellules de la lignée MDCK (Madin-Darby Canine Kidney) à confluence ont ainsi été exposées à un milieu de culture dans lequel une forme soluble du cadmium a été ajoutée. Les cellules étaient cultivées sur des membranes poreuses, permettant ainsi de corrélés concentrations en cadmium des compartiments basal et apical (donc évaluation du transfert au travers de la barrière épithéliale), durée d'exposition et accumulation intracellulaire (déterminée par PIXE).

La difficulté principale sur le plan de la microanalyse nucléaire consistait à rapporter du mieux possible les données PIXE à une quantité de matière biologique. Les cellules étaient cultivées sur un support qu'il n'est pas possible de retirer sans détruire le tapis. Cette membrane polymère, d'épaisseur importante (+ de 100  $\mu\text{m}$ ) génère un signal RBS (C,O) qui rend impossible l'extraction des signaux propres à tous les constituants du tapis cellulaire (cf. figure 5.1). Seul le signal relatif à l'azote est propre au tapis et permet par extrapolation d'évaluer cette quantité de matière [53]. La charge déposée ne pouvant être mesurée convenablement du fait d'une neutralisation partielle du faisceau lors de son passage dans la matière, la normalisation complète se fait en ajustant les simulations sur les signaux C et O de la membrane. Une confirmation de la justesse de la normalisation était fournie par la mesure en PIXE d'un étalon interne présent dans la membrane (Co, 90 ppm).

Ces caractérisations ont ainsi montré qu'il y avait corrélation entre durée d'exposition, concentration d'exposition et incorporation intracellulaire du cadmium. La toxicité est elle-même corrélée à l'accumulation intracellulaire. Par ailleurs, il a été également observé un reflux de zinc (150 à 50 ppm) au cours de l'incorporation du cadmium (0 à 1600 ppm), fait qui peut s'expliquer par le fait que Zn et Cd partagent la même protéine du complexe

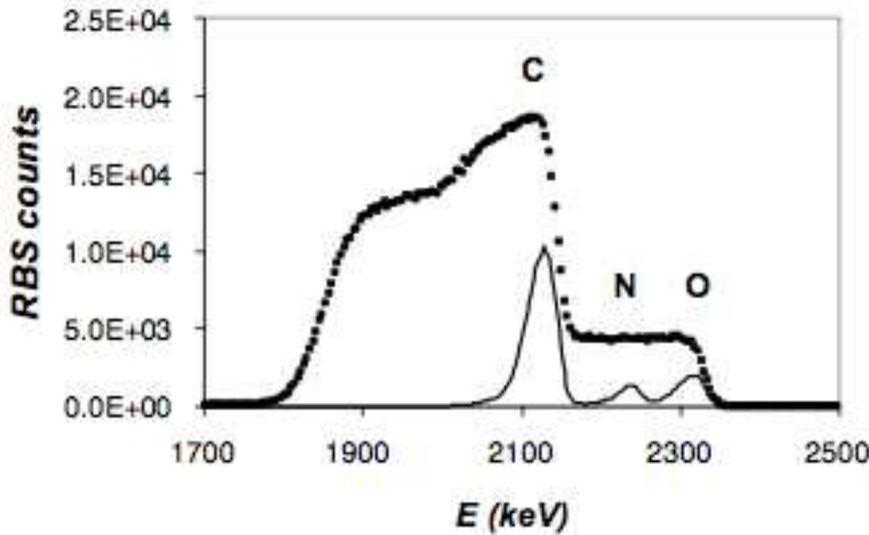


FIGURE 5.1: Spectres RBS du support polymère seul (points) et du tapis cellulaire seul (traits)

métal-protéine [53]. Enfin, il a également été observé une réduction de l'épaisseur de la monocouche cellulaire avec la durée d'exposition ( $160$  à  $50 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ ), indicateur de toxicité du cadmium.

Les études qui ont suivi portaient sur l'uranium et s'appuient sur la même démarche que celle appliquée au cadmium. Les lignées cellulaires utilisées, NRK52E et ROS17/2.8 proviennent de tissus rénaux et osseux, les reins et les os étant les sites d'accumulation de l'uranium. Ici une difficulté propre aux protocoles d'exposition réside en la préparation de milieux de culture contenant une forme d'uranium biodisponible et bioactive; ces milieux, très riches en ligands potentiels favorisent l'apparition d'un grand nombre de complexes de l'uranium aux effets toxiques très variables. Des études fines de spéciation basées sur des simulations thermodynamiques dans le milieu de culture ont été entreprises et ont permis de mettre au point des formulations de milieu favorisant les espèces carbonate et citrate, ces espèces étant reconnues comme induisant une toxicité dans les cellules rénales.

Nous avons ainsi pu montrer dans le cadre de ces études que les cellules incorporent des quantités importantes d'uranium, essentiellement sous forme de précipités de  $\text{UPO}_4$  (cf. figure 5.2), confirmé par des observations MEB [54]. La toxicité cellulaire est à nouveau corrélée à l'incorporation, mais apparaît à des concentrations très élevées comparativement au cadmium ( $\text{U} : \text{IC}_{50}$  pour  $[\text{U}]_{\text{intracellulaire}} = 10 \text{ wt. } \%$ ,  $\text{Cd} : \text{IC}_{50}$  pour  $[\text{Cd}]_{\text{intracellulaire}} = 1000 \text{ wt. ppm}$ ). Des observations MET aident à proposer un mécanisme expliquant l'internalisation de l'uranium et qui consiste en la précipitation

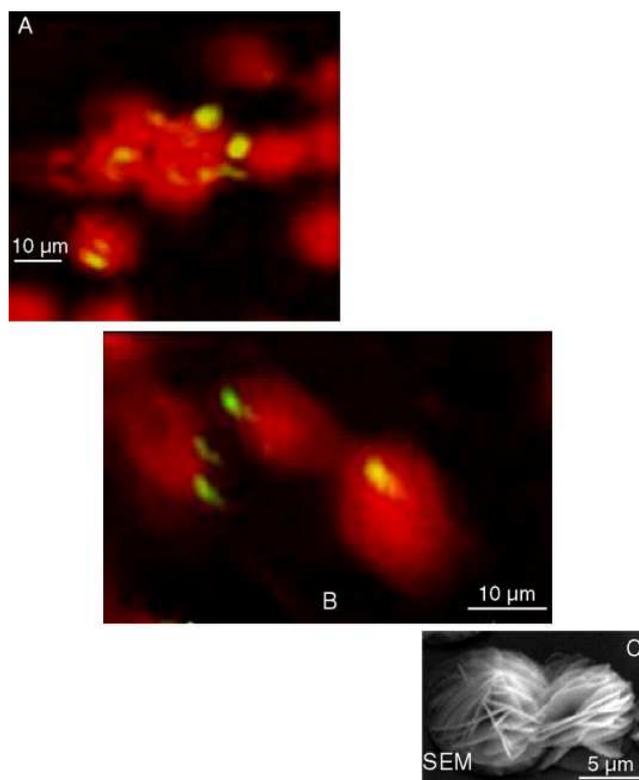


FIGURE 5.2: Précipités d'uranium (jaune) sur des cellules de type NRK matérialisées par le signal azote (rouge)

extra-cellulaire en nano-aiguilles suivie d'une internalisation accompagnée d'une agglomération. Ici, les analyses  $\mu$ PIXE et  $\mu$ RBS ont montré l'existence d'une fraction soluble d'uranium au sein du cytoplasme, et qui suggère l'existence d'un second mécanisme d'internalisation [55, 56].

Enfin notons qu'en biologie, l'information élémentaire quantitative est certes importante, en particulier quand des bilans élémentaires sont nécessaires pour construire des modèles de transfert, il n'en reste pas moins que les mécanismes fins ne peuvent être élucidés qu'après détermination de la spéciation de l'élément. Cette information n'est pas directement accessible par les techniques IBA, les interactions étant totalement insensibles à l'environnement chimique de l'élément étudié. Aussi, dans le cadre d'études portant sur l'interaction bactéries-métaux, notons la mise en œuvre d'une technique d'analyse quantitative de l'uranium basée sur le  $\mu$ PIXE dans des protéines dispersées par gel d'électrophorèse [57, 58].

## 5.2 Diffusion des métaux lourds dans des plantes à visée de phytoremédiation

Cobalt dans la solution nutritive ( $\mu\text{M}$ )	Tomate – Co ( $\mu\text{g g}^{-1}$ d.wt.)				Blé – Co ( $\mu\text{g g}^{-1}$ d.wt.)	
	racine	tige	feuilles âgées	feuilles jeunes	racine	pousse
0	38.2 ( $\pm 0.2$ )		0.6 (pousse) ( $\pm 0.02$ )		2.5 ( $\pm 0.02$ )	0.8 ( $\pm 0.2$ )
5	4844 ( $\pm 140$ )	82 ( $\pm 1$ )	44 ( $\pm 3$ )	38 ( $\pm 1$ )	2388 ( $\pm 188$ )	72 ( $\pm 5$ )
50	4423 ( $\pm 170$ )	846 ( $\pm 50$ )	492 ( $\pm 84$ )	243 ( $\pm 3$ )	9319 ( $\pm 117$ )	395 ( $\pm 4$ )

TABLE 5.1: Concentrations en cobalt déterminés par PIXE dans les plants de tomate et de blé pour différentes expositions. d. wt. : dry weight

## 5.2 Diffusion des métaux lourds dans des plantes à visée de phytoremédiation

Le relâchement éventuel d'atomes lourds dans la biosphère dû à des pollutions accidentelles, à des altérations de colis de stockage de déchets, à l'emploi d'additifs dans l'agriculture... conduit à une contamination des sols, qu'il convient de dépolluer par les moyens les plus efficaces possibles afin de limiter son impact dans la chaîne alimentaire [59, 60]. Parmi ceux-ci, les techniques de phytoremédiation sont très attractives puisqu'elles permettent de d'effectuer les opérations de dépollution de manière durable et sans grande consommation énergétique. Encore faut-il que cette phytoremédiation soit efficace et que les mécanismes d'accumulation soient élucidés, afin de sélectionner les lignées les plus avantageuses.

Les bilans matière sont donc primordiaux quand on aborde ce type de problématique. Il est en effet nécessaire d'évaluer quelle fraction du polluant est introduit dans les racines au niveau de la rizosphère et quel est son devenir au sein de la plante au cours de sa croissance. Parmi les techniques qui peuvent être employées, l'imagerie  $\mu\text{PIXE}$  s'avère utile de part son aspect quantitatif et la bonne limite de détection. Nous avons ainsi mis en œuvre cette technique dans des études qui concernent la dépollution des sols chargés en cobalt par la tomate (*Lycopersicon esculentum*) et le blé (*Triticum aestivum*). Ces espèces, après exposition à une solution nutritive contenant des concentrations variables de nitrate de cobalt, ont été préparées pour l'analyse par  $\mu\text{PIXE}$  suivant un protocole similaire à celui employé pour l'observation de tapis cellulaires. A titre d'exemple, nous indiquons dans la table 5.1 la répartition du cobalt dans les différents compartiments de la plante [61]. On note ainsi l'écart important des concentrations entre parties racinaires et aériennes, ce qui semble indiquer un mécanisme de protection de la plante vis-à-vis de cette pollution. On relève également la bonne limite de détection du Co, inférieure au ppm.

Nous avons également participé récemment à des études liées à l'incorporation de l'uranium dans différentes plantes (colza, tournesol, blé), et sous différentes formes chimiques. Toujours à l'aide du  $\mu\text{PIXE}$ , il a été possible d'imager et de quantifier dans les trois plantes l'uranium [62], et montrer ainsi que l'accumulation était certes importante (cf. figure 5.3), mais limitée aux racines où l'uranium précipite sur les parois cellulaires.

## 5 Applications dans le domaine de la biologie

Il faut utiliser des formulations plus complexes du complexe uranium, de type carbonate ou citrate, pour favoriser la translocation vers les parties aériennes.

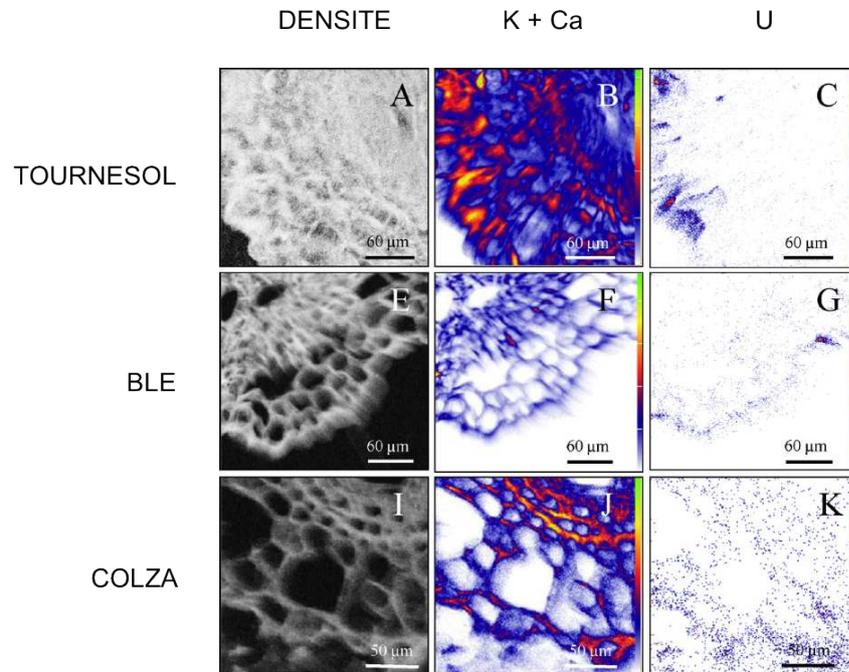


FIGURE 5.3: Cartographies de densité obtenues par STIM et élémentaires (potassium + calcium et uranium) obtenues par PIXE sur des racines des trois plantes (colza, tournesol et blé).

## 6 Microfaisceaux d'ions pour l'irradiation : applications dans le domaine de la radiobiologie

La radiobiologie, thématique très importante de la biologie, trouve naturellement sa place au sein des activités du CEA. Les domaines d'application de cette thématique ont des impacts sociétaux de premier ordre, qui vont de la radioprotection à la médecine nucléaire. L'irradiation des tissus par les rayonnements ionisants peuvent en effet être nocifs mais aussi bénéfiques, tout étant question de dose, mais pas seulement, si on peut se permettre se paradoxe ; ces dernières décennies, les mécanismes fondamentaux de réponse à l'irradiation ont commencé à être mis à jour, et montrent que ceux-ci sont extrêmement complexes et ne peuvent se réduire à une réponse unique. La tendance est d'ailleurs à parler de plus en plus de radiosensibilité individuelle, du fait que le comportement moyen est rarement représentatif du comportement d'un individu. De plus la biochimie sous-jacente s'avère de plus en plus complexe au fur et à mesure du raffinement des investigations.

Un paradigme majeur a récemment modifié les fondements de la radiobiologie en supprimant l'exigence faite au rayonnement ionisant de traverser le noyau cellulaire pour produire un effet délétère dans la cellule irradiée. Plus encore, il est maintenant solidement établi qu'il n'y a même pas nécessité de traverser la cellule pour y produire cet effet. Ainsi il est possible d'observer un impact sur des cellules positionnées à plusieurs centaines de microns du point d'irradiation [63], voire même détecter des effets délétères transmis à d'autres organismes [64]. Cet effet, dit de voisinage [65] (plus connu sous le vocable "bystander effect"), s'observe plus spécifiquement aux faibles doses d'irradiation. L'impact d'un tel effet modifie les règles de la radioprotection aux faibles doses, ceux-ci étant habituellement extrapolés des données acquises aux fortes doses. Cela permet également d'envisager des protocoles d'irradiation innovants dans le cadre de la radiothérapie. Aussi de nombreuses stratégies expérimentales se sont développées pour étudier finement cet effet et ses conséquences. Parmi celles-ci, les systèmes d'irradiation par micro-faisceaux d'ions légers se sont développés ces dernières années simulant ainsi les effet d'irradiation  $\alpha$  représentatifs d'accidents de contamination. Ces dispositifs présentent l'avantage de générer un dépôt de dose extrêmement localisé et contrôlé, à l'échelle de la cellule, et permettent ainsi d'étudier distinctement les réponses de cellules irradiées et de cellules voisines.

Un développement considérable de ces stratégies expérimentales est ainsi apparu pendant la précédente décennie, et de nombreuses microsondes nucléaires se sont équipées de dispositifs d'irradiation cellulaire. Nous avons participé à cet effort ce qui s'est traduit

par l'encadrement de la thèse de Maïté Hanot. Les conditions minimales requises pour mener à bien ces irradiations sont les suivantes :

- extraction du faisceau à l'air
- préservation des propriétés du microfaisceau (taille, distribution monocinétique)
- maîtrise de la dose déposée
- traçabilité des populations cellulaires exposées
- préservation des conditions de culture cellulaire standard.

L'extraction à l'air ne fait pas problème, et repose sur la transposition de la technique adoptée par exemple pour l'analyse par faisceaux d'ions d'objets du patrimoine qui s'appuie sur l'emploi d'une fenêtre de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de 100 ou 200 nm d'épaisseur. La perte d'énergie engendrée par le ralentissement dans la fenêtre reste modeste (140 keV pour des particules  $\alpha$  de 3 MeV). Dans le cas de l'irradiation cellulaire, les flux d'ions sont beaucoup plus faibles que dans le cas de l'analyse et il n'y a pas de problème spécifique de fragilisation lié au vieillissement sous irradiation de la fenêtre.

La préservation du microfaisceau, habituellement produit sous vide par l'emploi de dispositifs de focalisation, est conditionné par la limitation des stragglings (élargissements) spatial et angulaire. La faible épaisseur de matière traversée conduit à des pertes d'énergie faibles qui génèrent très peu de dispersion. Nous concernant, du fait de la géométrie choisie (voir plus bas), le microfaisceau est obtenu par collimation dans un canal de 5  $\mu\text{m}$  de diamètre produit par laminage d'un tube de silice. Les performances effectives d'un tel collimateur sont contrôlées régulièrement par mesure de la taille de la zone irradiée en exposant un détecteur de trace nucléaire de type CR39 au microfaisceau extrait. Chaque ion produit une trace qui est révélée par traitement chimique du CR39. Un mauvais alignement de ce collimateur conduit à un très net élargissement du faisceau et une forte dégradation de la dispersion en énergie du fait des nombreuses diffusions sur les parois. Toute expérience commence par un contrôle de l'alignement et de la dispersion en énergie du faisceau. L'impact de la dispersion angulaire est limité en rapprochant au plus près les plans d'extraction du faisceau et de culture des cellules. Dans notre cas, nous avons adopté une géométrie où ces deux plans sont au contact [19, 66, 20].

Le contrôle de la dose déposée est probablement celui qui reste le plus difficile à maîtriser car il ne peut être assuré qu'au détriment des conditions de culture. En effet, la solution la plus simple et la plus directe consiste à mettre un détecteur de particules juste à l'arrière de la culture cellulaire et à compter ainsi les ions ayant traversé la cellule. Pour cela, il faut que la perte d'énergie dans la cellule soit insuffisante pour arrêter l'ion et qu'il n'y ait pas de milieu absorbant après la cellule. Ces conditions limitent grandement les conditions expérimentales et introduisent des biais expérimentaux importants. Nous avons pour notre part choisi de procéder à une mesure du flux moyen (faible : typiquement 10 ions/s) avant la procédure d'irradiation, à l'aide d'un détecteur de particules positionné à la place de la culture cellulaire, puis au contrôle de ce flux après l'irradiation. Ce choix permet de ne pas dégrader les conditions de culture, et l'inévitable dispersion statistique du flux est compensée par le grand nombre de cellules irradiées (entre 100 et 300).

Le suivi des cellules post-irradiation se fait soit *in situ*, soit après transfert pour obser-

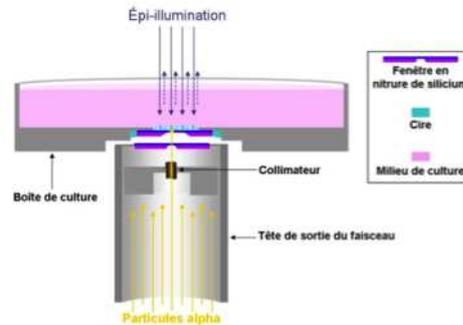


FIGURE 6.1: Vue générale du dispositif d'irradiation cellulaire et principe de collimation et d'irradiation. Le collimateur est placé immédiatement à la sortie d'un aimant dipolaire permettant d'obtenir un faisceau vertical.

vations et diagnostics via par exemple des sondes fluorescentes. Dans certains cas, dont le nôtre, il est possible de surveiller *in situ* les cellules par l'emploi de marqueurs.

Enfin, la préservation des conditions de culture standard sont importantes afin d'éviter les biais dus à d'autres sources de stress cellulaires que l'irradiation. Dans beaucoup de laboratoires, les dispositifs d'irradiation qui ont été développés se sont limités à des extensions sur les lignes d'analyse. De ce fait, les cellules sont cultivées dans des conditions peu conformes aux bonnes pratiques, ne sont pas maintenues à température et conditions d'atmosphère standard, et sont la plupart du temps positionnées verticalement. Nous avons pour notre part fait le choix de développer un dispositif destiné spécifiquement à l'irradiation cellulaire, qui s'insère sur l'une des lignes de faisceau. Le faisceau est vertical, permettant la culture dans des boîtes de Petri, et le dispositif de positionnement cellulaire est placé dans un incubateur de biologie (37°C, 100 % humidité, 5% CO<sub>2</sub>). Ceci constitue d'ailleurs le caractère unique de notre installation [67]. Une vue générale du dispositif est donnée en figure 6.1.

Les études de radiobiologie qui ont été menées sur ce dispositif dans le cadre de la thèse sus-citée se sont faites en cohérence avec les autres études menées au laboratoire dans le cadre de la problématique toxicologie nucléaire. Nous avons ainsi choisi de concentrer les études sur une lignée cellulaire osseuse (MC3-T3 E2), le squelette osseux étant l'un des organes-cible de l'uranium. Cet élément est un émetteur  $\alpha$  de faible activité [68] (l'uranium naturel a une activité massique de 26 Bq/mg alors que celle du <sup>40</sup>K, principal radioisotope présent naturellement dans l'organisme, atteint 263 Bq/mg), et les précipités qui se forment au sein des os deviennent des micro-sources irradiant leur environnement pendant de très longues périodes. Le choix des grandeurs observées est également très important. L'objectif scientifique de la thèse était de corrél

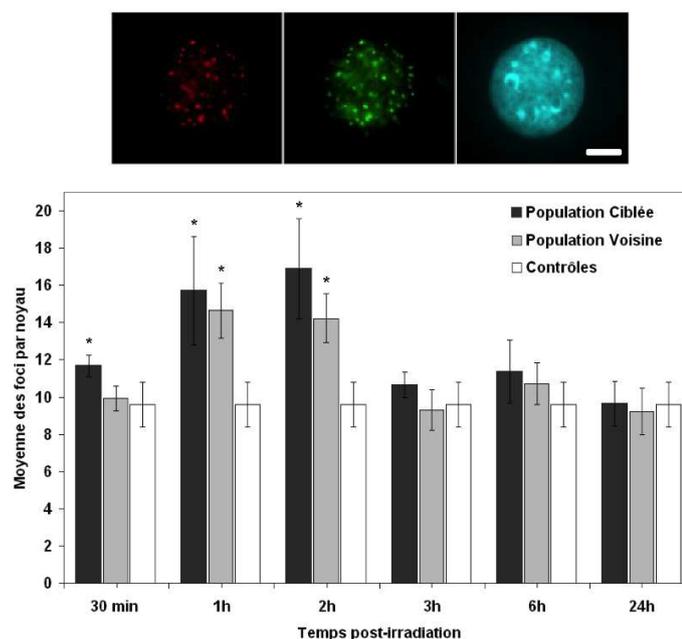


FIGURE 6.2: Induction de cassures à l'ADN dans les cellules ciblées et voisines par numération des foyers détectés par immunodétection. Rouge :  $\gamma$ H2AX ; vert 53BP1 ; Bleu : Hoechst 33342 (marqueur de l'ADN)

les dommages produits dans les deux populations cellulaires (irradiées et bystander) avec la sur-expression éventuelle d'espèces oxydantes dans les cellules. On a cherché à s'intéresser également à leurs évolutions temporelles.

Nous avons ainsi montré, par le biais d'imagerie par sondes fluorescentes, que des dommages à l'ADN étaient produits dans les cellules ciblées mais aussi les cellules avoisinantes (Cf figure 6.2). Ces sondes reposent sur le principe de l'immunodétection, un anticorps venant se greffer sur un marqueur biochimique de la réparation de dommages à l'ADN (protéines  $\gamma$ H2AX et 53BP1) et devenant par ce fait fluorescent sous illumination UV. Ce résultat démontre d'entrée la sensibilité de la lignée cellulaire à l'effet bystander.

Le métabolisme oxydatif est activé dans la culture cellulaire, à nouveau aussi bien dans la population ciblée que dans celle avoisinante. Afin d'étudier ce métabolisme, nous avons utilisé la sonde CM-H<sub>2</sub>DCF positionnée dans le cytoplasme, car elle s'oxyde en présence d'espèces réactives et devient fluorescente. La mesure de l'intensité de fluorescence est alors un indicateur de la concentration des espèces oxydantes, pour peu qu'un certain nombre de précautions aient été prises lors de l'utilisation de la sonde. Comme le montre la figure 6.3, un "burst" d'espèces oxydantes est généré dans les minutes qui suivent l'irradiation, et ce dans les deux populations.

Une confirmation de cet effet est donné par le dosage via une autre sonde (CMAC) de la quantité de glutathion réduit dans les cellules. Cet antioxydant est utilisé dans le métabolisme cellulaire pour tenter de réguler la concentration en espèces oxydantes. La

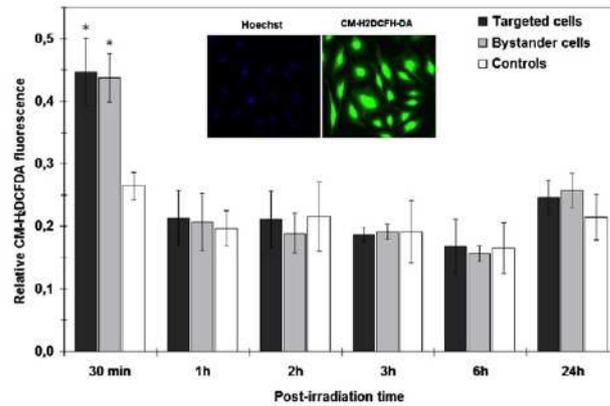


FIGURE 6.3: Stress oxydatif dans les cellules irradiées et voisines par induction de fluorescence sur le marqueur CM-H<sub>2</sub>DCF

figure 6.4 montre ainsi que le glutathion est consommé dans les deux populations est il faut plus de 2 h pour que le niveau basal soit retrouvé.

Nos travaux ont par ailleurs permis de mettre en évidence un effet d'amplification de la réponse cellulaire dans la population ciblée elle-même. Nous avons effectivement observé qu'à dose par cellule ciblée constante, au sein de la population cellulaire ciblée, l'intensité de réponse à l'irradiation (évaluée ici par l'apparition de micronoyaux dans les cellules traduisant l'induction de la mort mitotique) croissait avec la fraction de la population effectivement irradiée. Nous avons attribué cet effet d'amplification (rappel : la dose par cellule ciblée est constante) à un effet bystander entre cellules irradiées. Cette interprétation élargit par conséquent la notion d'effet bystander, puisque celui-ci était généralement défini comme l'induction d'effets délétères exclusivement dans des cellules non ciblées. Ici nous observons un effet d'accumulation des effets autocrine et paracrine. Une confirmation que cet effet d'amplification est relié à un effet bystander a été obtenu en exposant les cellules à de la filipine avant irradiation. La filipine est un agent chimique dissociant les radeaux lipidiques, et interrompt la communication intercellulaire, pré-requis à l'induction d'un effet bystander [69]. L'effet d'amplification évoqué plus haut s'est trouvé fortement réduit.

L'ensemble des résultats obtenus dans le cadre de cette étude sont présentés dans l'article de Hanot et col. [70].

6 Microfaisceaux d'ions pour l'irradiation : applications dans le domaine de la radiobiologie

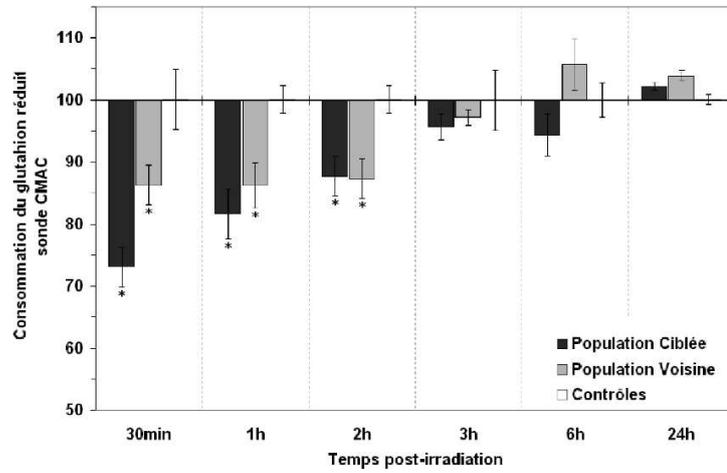


FIGURE 6.4: Evolution du stock de glutathion réduit au sein des cellules ciblées et voisines.

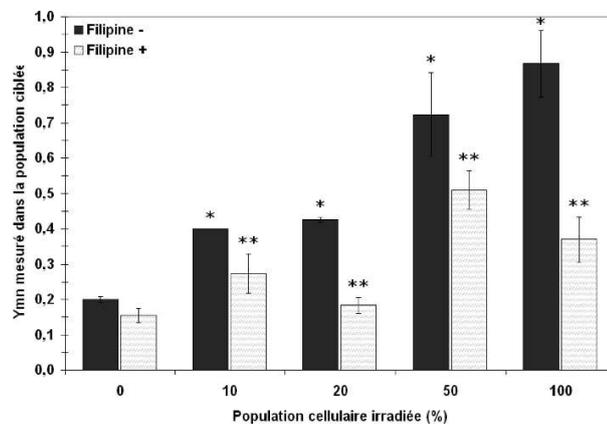


FIGURE 6.5: Réponse de la population cellulaire irradiée (évaluée par le taux de micronoyaux) à la fraction irradiée, pour une dose fixe de 10 particules  $\alpha$  / cellule

## 7 Perspectives

Deux orientations seront données dans les prochaines années aux travaux de recherche que je compte mener au sein de mon laboratoire. Les 2 sujets envisagés viseront à (i) : pousser la micro-analyse nucléaire dans ses limites ultimes, en cherchant à optimiser de la façon la plus fonctionnelle possible la technique de  $\mu$ NRA afin de rendre la détection quantitative des éléments légers, véritable force et spécificité de l'outil que constitue la microsonde nucléaire, la plus attractive possible, d'une part, et d'autre part (ii) : élargir les applications des micro-faisceaux d'ions dans la gamme du MeV/nucéon au domaine de l'irradiation, avec une attention particulière à la réactivité en phase condensée.

### **Perspective 1 : optimisation de la détection des éléments légers**

Comme évoqué dans ce rapport, l'analyse quantitative des atomes légers dans les matériaux constitue le point saillant de l'analyse par microsonde nucléaire [71], qui présente néanmoins une limitation intrinsèque. En effet, les sections efficaces mises en jeu se situent typiquement dans la gamme du mb/Sr, à quelques exceptions près [72]. Cette caractéristique est d'autant plus handicapante qu'en microanalyse les courants incidents sont faibles (souvent pour des raisons de brillance de ligne, mais également pour assurer la tenue à l'endommagement de l'échantillon). Afin de compenser cette faiblesse, nous avons amorcé un programme de travail visant à employer des détecteurs à très grand angle solide, offrant un gain minimal attendu de l'ordre de 10 (Cf Figure 7.1). L'avantage d'une telle configuration est évidente, tant sur le plan de la durée d'acquisition ou la sensibilité de la méthode. La principale difficulté sera de bien prendre en compte tous les aspects liés à la large gamme angulaire couverte par un détecteur de grande surface. Un tel détecteur se doit d'être segmenté, cette discrétisation permettant entre-autres de limiter l'ouverture angulaire de chaque voie et préserver la résolution en énergie de la méthode [15, 73].

Ce travail va nécessiter plusieurs actions allant de l'intégration de sous-systèmes dérivés d'expériences de physique nucléaire, la production de mesures fondamentales (sections efficaces différentielles en angle), jusqu'à l'exploitation en vue de la quantification (ajustements multiparamétriques des spectres multi-secteurs). Ce travail a été amorcé lors d'un stage post-doctoral que j'ai récemment encadré, et qui a déjà permis de valider le principe de la méthode et testé l'ensemble de la chaîne d'acquisition nouvellement développée (Figure 7.2). Les domaines d'applications seront bien sûr ceux qui font aujourd'hui déjà appel à l'analyse NRA, permettant toutefois des acquisitions beaucoup plus rapides, ainsi qu'une ouverture vers des thématiques pour lesquelles l'utilisation de traceurs est potentiellement intéressante mais pas encore expérimentée du fait des faibles teneurs attendues (nanotubes de carbone marqués  $^{13}\text{C}$  utilisés dans des études de toxicologie, suivi de processus redox par marquage à  $^{18}\text{O}$ ...).

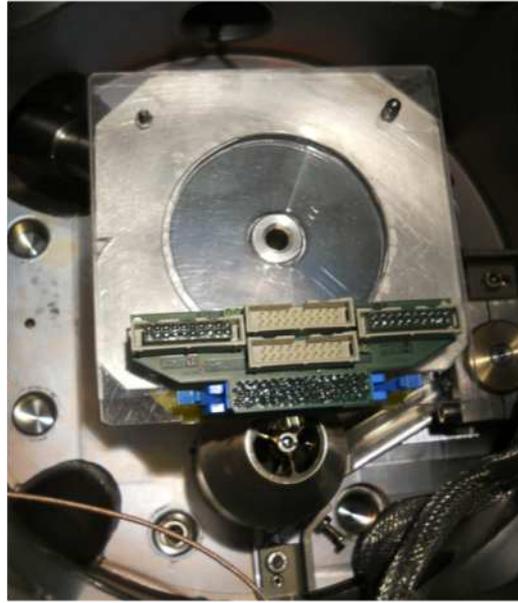


FIGURE 7.1: Détecteur de particules à grand angle solide en phase de test. La surface exposée est découpée en segments angulaires, chacune constituant une voie d'acquisition.

### **Perspective 2 : applications pour l'irradiation**

Les processus d'irradiation dans les milieux liquides constituent un domaine d'étude d'une grande importance dans de nombreux contextes, dont bien sûr toute l'industrie électronucléaire [74]. Ce processus est au coeur des mécanismes de corrosion des matériaux du nucléaire lors de la phase d'exploitation tout comme lors de l'entreposage dans les piscines [75, 76], et les conséquences d'un tel processus mal maîtrisé peuvent être catastrophiques (Cf. accident de Fukushima). L'irradiation est également l'une des causes de vieillissement des polymères employés dans cette industrie, du fait de la création de radicaux pouvant conduire entre-autres à la perte de matière par génération de composés volatils [77]. C'est également un processus-clé dans le domaine de la radiobiologie, les différentes espèces radicalaires créées lors du passage d'un rayonnement ionisant induisant des dommages aux différentes molécules présentes dans l'environnement de la zone d'irradiation, en particulier à proximité de l'ADN ou de protéines d'importance [78, 79].

Dans tous ces processus, les électrons, qu'ils proviennent de rayonnement direct (émission  $\beta$ ) ou issus de processus d'ionisation (électrons secondaires), constituent pour une très grande part le projectile à l'origine du phénomène de radiolyse. Les modèles prévisionnels s'appuyant sur les mécanismes intimes de ce phénomène nécessitent dans le cas d'irradiation par des ions légers (essentiellement particules  $\alpha$ , produits par de nombreux radionucléides) de disposer de données fiables concernant le terme source que constitue la distribution spatiale et énergétique des électrons produits par l'ionisation de l'eau. Or il se trouve qu'il y a peu de données expérimentales du fait de la difficulté à y accéder, alors

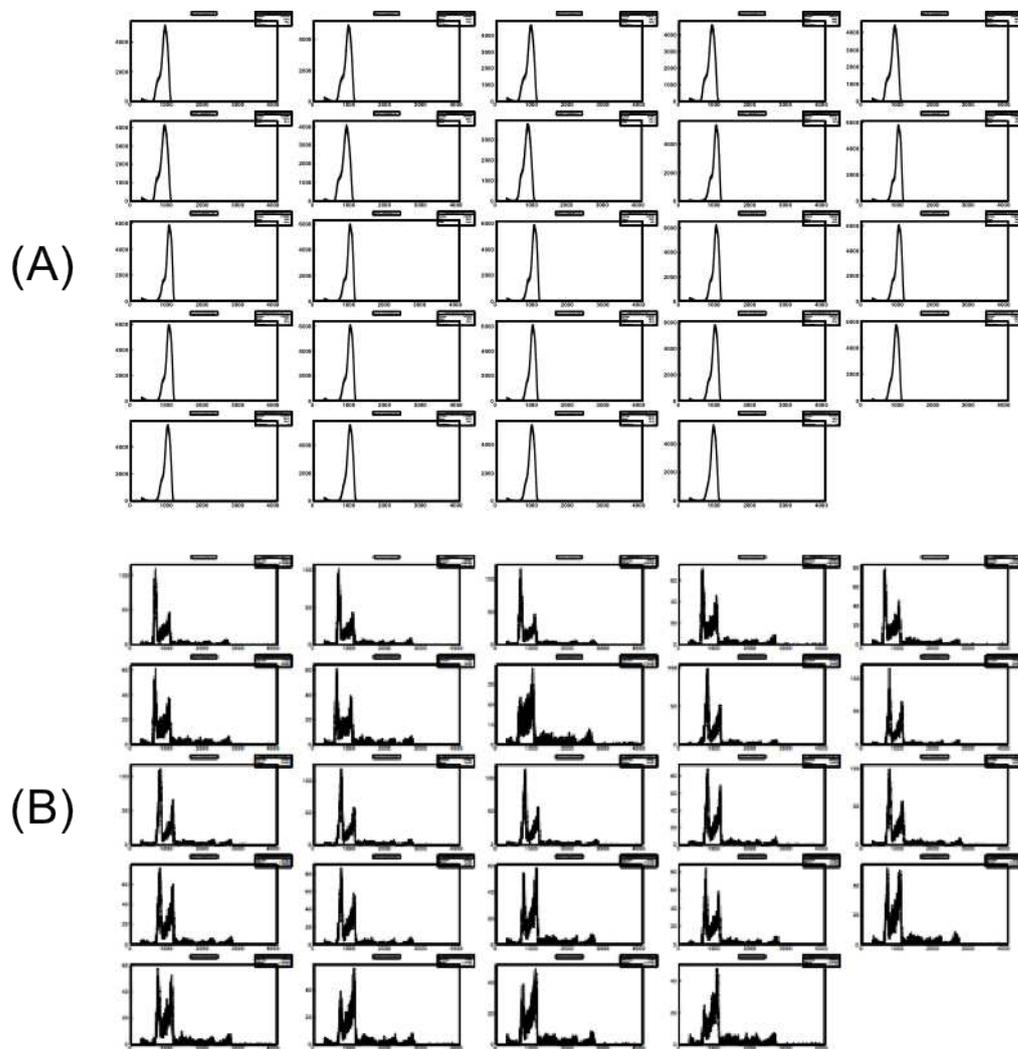


FIGURE 7.2: Spectres NRA aux différents angles couverts par le détecteur multisecteur  
 (a) C ; (b) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

qu'*a contrario*, de nombreux travaux théoriques existent, qui sont en particulier exploités dans des modélisations basées sur la méthode Monte-Carlo [80]. Nous nous proposons dans ce cadre d'apporter une contribution à cette collecte de données fondamentales. Ce travail est d'ailleurs quelque peu déjà engagé puisque dans le cadre de l'appel Plan Cancer piloté par l'INSERM, nous participons à un projet ayant pour thème la microdosimétrie. Il vise à déterminer expérimentalement les distributions spatio-temporelles des radicaux créés par le passage de particules  $\alpha$  dans l'eau. Dans ce projet, nous allons mettre en œuvre un micro-faisceau d'ions légers pulsé sur la ligne d'irradiation que nous avons développé, avec ici une résolution temporelle ultime de l'ordre de la ns. Cela est rendu possible par l'application d'un champ électrique très bref produit par une lampe flash [81] sur des déflecteurs de faisceau. L'emploi de la technique de scavenging dans la solution (capture d'une espèce radicalaire par une molécule, toutes deux spécifiques) [82] associée à la fluorescence induite par laser sur le complexe ainsi formé va ainsi permettre de suivre spatialement et temporellement les différentes espèces radicalaires.

Afin d'aller plus loin dans la compréhension de ces processus, nous nous proposons par la suite d'étudier plus finement les premiers événements survenant lors du passage de l'ion dans le milieu. Le pouvoir d'arrêt électronique étant dominant, l'énergie est transférée dès les premiers instants aux électrons qui vont par la suite contribuer aux différents processus radicalaires. On se propose donc d'étudier la génération des électrons secondaires produits lors du passage de l'ion sur des couches d'eau amorphe d'épaisseurs variables et contrôlée. On aura ainsi accès également aux paramètres de transport dans le milieu. Pour ce faire, il faudra mettre en œuvre un dispositif expérimental spécifique, aux exigences techniques très complexes :

- production de films d'eau amorphe à épaisseur contrôlée ; cela nécessite entre autres de mettre en place un piège froid à hélium liquide, l'eau amorphe étant obtenue en dessous de 125 K ;
- maintien sous ultra-vide ( $10^{-9}$  mbar) de l'enceinte d'analyse, pour minimiser les problèmes de contamination ;
- détection des électrons secondaires par analyse en temps de vol résolue en angle, afin de couvrir plus particulièrement la partie basse énergie du spectre, où les électrons sont les plus nombreux et les plus "endommageants" ;
- absence de champ magnétique parasite, afin de détecter convenablement les électrons de basse énergie, ce qui nécessite l'emploi de matériaux spécifiques et de blindage magnétique.

Un objectif "ultime" de ce projet serait d'étudier ces phénomènes quand l'émission électronique va se trouver fortement amplifiée. C'est le cas des interfaces dans des matériaux présentant une grande surface spécifique, tels des matériaux nanostructurés, des matériaux à forte rugosité comme par exemple des matériaux altérés du fait de la corrosion. Cette amplification a deux sources : l'augmentation de la surface d'interaction, et l'augmentation des occurrences d'incidence rasante. Aussi nous proposons dans un second temps d'étudier les spectres d'émission électronique aux incidences rasantes, ainsi que les aspects de transport dans les premières couches d'eau amorphisée [83].

## 8 Conclusion

Ce document aura donc retracé d'une manière synthétique une partie importante des travaux de recherche que j'ai poursuivis depuis l'obtention de mon doctorat. Ceux-ci se sont en grande partie déroulés dans un cadre particulier, du fait que j'assume depuis de longues années la responsabilité d'un équipement mi-lourd. Celui-ci aura été d'ailleurs à la fois instrument et objet des recherches menées. Une autre particularité aura été la grande variété des sujets et des thématiques abordées, qui n'est que partiellement retranscrit dans ce rapport. A ceux présentés ici, il convient en effet de signaler que j'ai participé à des degrés d'implication divers à plusieurs projets scientifiques et techniques reliés à diverses problématiques matériaux ainsi que plusieurs études dans le domaine des sciences de la Terre et de l'Univers, toujours au travers de l'apport spécifique de la microsonde nucléaire pour la quantification des éléments légers.

Je propose comme perspectives de recherches de renforcer cette spécificité unique dans les méthodes analytiques basées sur le principe de sonde, convaincu que c'est l'un des domaines d'application qui gagnera à être renforcé afin d'accroître la visibilité et l'attractivité d'un tel instrument. Les nouveaux matériaux pour l'énergie constitueront un thème d'étude privilégié. Je suis par ailleurs également persuadé qu'une ouverture est nécessaire au delà de l'application strictement analytique, en s'ouvrant aux applications en lien avec l'irradiation. Le domaine des ions légers dans la gamme du MeV/nucléon n'est pas le plus exploré, du fait que les effets restent moindres que ceux produits par des ions lourds. Néanmoins l'exposition environnementale et médicale pousse à mieux connaître ces effets, aussi bien du point de vue fondamental que dans un contexte applicatif.

J'espère donc avoir la possibilité de poursuivre tous ces objectifs dans les prochaines années, avec à mes côtés mes collègues avec lesquels je travaille avec plaisir depuis plusieurs années maintenant, ainsi qu'avec des étudiants de différents niveaux que j'espère nombreux et motivés. Je dois avouer que j'ai un immense plaisir à observer le degré croissant d'autonomie qu'acquièrent ces chercheurs en devenant au cours de leur passage au sein du laboratoire. C'est l'un des moteurs principaux de ma motivation au quotidien.



# Bibliographie

- [1] Douysset, G. (1998) Ph.D. thesis (Universite Pierre et Marie Curie, Paris).
- [2] Douysset, G, Khodja, H, & Briand, J. (1999) *Physica Scripta* **T80B**, 514–516.
- [3] Barue, C, Lamoureux, M, Briand, P, Girard, A, & Melin, G. (1994) *Journal of Applied Physics* **76**, 2662–2670.
- [4] Douysset, G, Khodja, H, Girard, A, & Briand, J. P. (2000) *Physical Review E* **61**, 3015–3022.
- [5] Rubin, S, Passell, T. O, & Bailey, L. E. (1957) *Analytical Chemistry* **29**, 736–743.
- [6] Wang, Y & Nastasi, M, eds. (2010) *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*. (Cambridge University Press), 2 edition.
- [7] Revel, G & Berger, P. (2005) Microsonde nucleaire - applications.
- [8] Revel, G & Berger, P. (2005) Microsonde nucleaire - principe et appareillage.
- [9] Ryan, C, Etschmann, B, Vogt, S, Maser, J, Harland, C, van Achterbergh, E, & Legnini, D. (2005) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **231**, 183–188.
- [10] Rutherford, E. (1911) *Philosophical Magazine* **21**, 669–688.
- [11] Escobar Galindo, R, Gago, R, Albella, J, Escobar Galindo, R, Gago, R, & Lousa, A. (2009) *Trends in Analytical Chemistry* **28**, 494–505.
- [12] Sortica, M. A, Grande, P. L, Machado, G, & Miotti, L. (2009) *Journal of Applied Physics* **106**, 114320.
- [13] Raepsaet, C, Khodja, H, Bossis, P, Pipon, Y, & Roudil, D. (2009) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **267**, 2245–2249.
- [14] Bureau, H, Raepsaet, C, Khodja, H, Carraro, A, & Aubaud, C. (2009) *Geochimica Et Cosmochimica Acta* **73**, 3311–3322.
- [15] Reichart, P, Datzmann, G, Hauptner, A, Hertenberger, R, Wild, C, & Dollinger, G. (2004) *Science* **306**, 1537–1540.
- [16] Monnier, J, Burger, E, Berger, P, Neff, D, Guillot, I, & Dillmann, P. (2011) *Corrosion Science* **53**, 2468–2473.
- [17] Watt, F, van Kan, J. A, Rajta, I, Bettiol, A. A, Choo, T. F, Breese, M. B. H, & Osipowicz, T. (2003) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **210**, 14–20.

## Bibliographie

- [18] Khodja, H, Berthoumieux, E, Daudin, L, & Gallien, J. P. (2001) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **181**, 83–86.
- [19] Daudin, L, Carriere, M, Gouget, B, Hoarau, J, & Khodja, H. (2006) *Radiation Protection Dosimetry* **122**, 310–312.
- [20] Khodja, H, Hanot, M, Carriere, M, Hoarau, J, & Angulo, J. (2009) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **267**, 1999–2002.
- [21] Ronchi, C. (2004) *Journal of Nuclear Materials* **325**, 1–12.
- [22] Damen, P. M. G, Matzke, H, Ronchi, C, Hiernaut, J. P, Wiss, T, Fromknecht, R, van Veen, A, & Labohm, F. (2002) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **191**, 571–576.
- [23] Trocellier, P, Gosset, D, Simeone, D, Costantini, J. M, Deschanel, X, Roudil, D, Serruys, Y, Grynszpan, R, Saude, S, & Beauvy, M. (2003) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **210**, 507–512.
- [24] Pison, Y, Raepsaet, C, Roudil, D, & Khodja, H. (2009) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **267**, 2250–2254.
- [25] Martin, G, Garcia, P, Sabathier, C, Carlot, G, Sauvage, T, Desgardin, P, Raepsaet, C, & Khodja, H. (2010) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **268**, 2133–2137.
- [26] Sauvage, T, Erramli, H, Guilbert, S, Vincent, L, Barthe, M.-F, Desgardin, P, Blondiaux, G, Corbel, C, Piron, J, Labohm, F, & Van Veen, A. (2004) *Journal of Nuclear Materials* **327**, 159–164.
- [27] Sauvage, T, Desgardin, P, Martin, G, Garcia, P, Carlot, G, Labriin, H, Khodja, H, Moretto, P, Barthe, M. F, Blondiaux, G, Errainli, H, & Piron, J. P. (2005) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **240**, 271–276.
- [28] Martin, G. (2007) Ph.D. thesis (Universite d’Orleans, Orleans).
- [29] Ferry, C, Piron, J.-P, & Ambard, A. (2010) *Journal of Nuclear Materials* **407**, 100–109.
- [30] Tsitrone, E, Brosset, C, Pegourie, B, Gauthier, E, Bouvet, J, Bucalossi, J, Carpentier, S, Corre, Y, Delchambre, E, Desgranges, L, Dittmar, T, Douai, D, Ekedahl, A, Escarguel, A, Ghendrih, P, Grisolia, C, Grosman, A, Gunn, J, Hong, S, Jacob, W, Kazarian, F, Kocan, M, Khodja, H, Linez, F, Loarer, T, Marandet, Y, Martinez, A, Mayer, M, Meyer, O, Monier Garbet, P, Moreau, P, Pascal, J, Pasquet, B, Rimini, F, Roche, H, Roure, I, Rosanvallon, S, Roubin, P, Roth, J, Saint-Laurent, F, Samaille, F, & Vartanian, S. (2009) *Nuclear Fusion* **49**, 075011.

- [31] Roth, J, Tsitrone, E, Loarer, T, Philipps, V, Brezinsek, S, Loarte, A, Counsell, G. F, Doerner, R. P, Schmid, K, Ogorodnikova, O. V, & Causey, R. A. (2008) *Plasma Physics and Controlled Fusion* **50**, 103001.
- [32] Houtte, D. v, Martin, G, Becoulet, A, Bucalossi, J, Giruzzi, G, Hoang, G, Loarer, T, Saoutic, B, & Team, o. b. o. t. T. S. (2004) *Nuclear Fusion* **44**, L11–L15.
- [33] Khodja, H, Brosset, C, & Bernier, N. (2008) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **266**, 1425–1429.
- [34] Ziegler, J. F, Ziegler, M, & Biersack, J. (2010) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **268**, 1818–1823.
- [35] Bernier, N, Brosset, C, Bocquet, F, Tsitrone, E, Saikaly, W, Khodja, H, Alimov, V, & Gunn, J. (2009) *Journal of Nuclear Materials* **385**, 601–605.
- [36] Hayashi, T, Sugiyama, K, Mayer, M, Krieger, K, Masaki, K, Tanabe, T, & Sato, M. (2009) *Journal of Nuclear Materials* **390-91**, 667–670.
- [37] Petersson, P, Kreter, A, Possnert, G, & Rubel, M. (2010) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **268**, 1833–1837.
- [38] Pelicon, P, Vavpetic, P, Grlj, N, Cadez, I, Markelj, S, Brezinsek, S, Kreter, A, Dittmar, T, Tsitrone, E, Pegourie, B, Languille, P, Rubel, M, & Schwarz-Selinger, T. (2011) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **269**, 2317–2321.
- [39] Takagi, I, Nagaoka, S, Shirai, K, Moritani, K, & Moriyama, H. (2003) *Physica Scripta* **T103**, 121–124.
- [40] Wright, G. M, Whyte, D. G, & Lipschultz, B. (2009) *Journal of Nuclear Materials* **390-91**, 544–549.
- [41] Bernard, E, Khodja, H, & Chene, J. (2011) *Simultaneous deuterium implantation and ion beam microanalysis in CFC used as a first wall material in fusion tokamaks*. (Montpellier).
- [42] Bernard, E, Khodja, H, Pegourie, B, Martin, C, Pardanaud, C, & Chene, J. (2012) *Journal of Nuclear Materials* **accepted**.
- [43] Rai, A, Warriar, M, & Schneider, R. (2009) *Computational Materials Science* **46**, 469–478.
- [44] Iijima, S. (1991) *Nature* **354**, 56–58.
- [45] (2002) Nanocyl (<http://www.nanocyl.com>).
- [46] (2011) Graphistrength (<http://www.graphistrength.fr/>).
- [47] Mayne, M, Grobert, N, Terrones, M, Kamalakaran, R, Ruhle, M, Kroto, H, & Walton, D. (2001) *Chemical Physics Letters* **338**, 101–107.
- [48] Pinault, M, Pichot, V, Khodja, H, Launois, P, Reynaud, C, & Mayne-L’Hermite, M. (2005) *Nano Letters* **5**, 2394–2398.

## Bibliographie

- [49] Khodja, H, Pinault, M, Mayne-L’Hermite, M, & Reynaud, C. (2006) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **249**, 523–526.
- [50] Mille, M, Brouzes, P, Pinault, M, Khodja, H, Boulanger, P, & Mayne-L’Hermite, M. (2011) *Photografting aligned carbon nanotube networks : towards composites and nanoporous membranes*. (Arcachon, France).
- [51] Lombi, E, Scheckel, K. G, & Kempson, I. M. (2011) *Environmental and Experimental Botany* **72**, 3–17.
- [52] (2004) ToxNuc-E.
- [53] Khodja, H, Avoscan, L, Carriere, M, Carrot, F, & Gouget, B. (2003) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **210**, 359–363.
- [54] Carriere, M, Gouget, B, Gallien, J, Avoscan, L, Gobin, R, Verbavatz, J, & Khodja, H. (2005) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **231**, 268–273.
- [55] Milgram, S, Carriere, M, Thiebault, C, Berger, P, Khodja, H, & Gouget, B. (2007) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **260**, 254–258.
- [56] Milgram, S, Carriere, M, Malaval, L, & Gouget, B. (2008) *Toxicology* **252**, 26–32.
- [57] Avoscan, L, Khodja, H, Carriere, M, Coves, J, & Gouget, B. (2008) *International Journal of PIXE* **18**, 91–99.
- [58] Avoscan, L, Milgram, S, Untereiner, G, Collins, R, Khodja, H, CovÁšs, J, Hazemann, J.-L, CarriÁšre, M, & Gouget, B. (2009) *Radiochimica Acta* **97**, 375–383.
- [59] Hamilton, E. (1994) *Science of the Total Environment* **150**, 7–39.
- [60] Chatterjee, J & Chatterjee, C. (2003) *Plant Science* **164**, 793–801.
- [61] Collins, R. N, Bakkaus, E, Carriere, M, Khodja, H, Proux, O, Morel, J.-L, & Gouget, B. (2010) *Environmental Science & Technology* **44**, 2904–2910.
- [62] Laurette, J, Larue, C, Mariet, C, Brisset, F, Khodja, H, Bourguignon, J, & Carriere, M. (2012) *Environmental and Experimental Botany* **77**, 96–107.
- [63] Belyakov, O. V, Mitchell, S. A, Parikh, D, Randers-Pehrson, G, Marino, S. A, Amundson, S. A, Geard, C. R, & Brenner, D. J. (2005) *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **102**, 14203–14208.
- [64] MotherSill, C & Seymour, C. (2012) *Mutation Research/Reviews in Mutation Research* **750**, 85–95.
- [65] Nagasawa, H & Little, J. B. (1999) *Radiation Research* **152**, 552–557.
- [66] Khodja, H, Hanot, M, Hoarau, J, & Angulo, J. F. (2009) *Journal of Radiation Research* **50**, A81–A125.
- [67] Gerardi, S. (2009) *Journal of Radiation Research* **50**, A13–A20.
- [68] IRSN. (2001) Fiche radionucléides uranium naturel et environnement.

- [69] Azzam, E. I, de Toledo, S. M, & Little, J. B. (2001) *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **98**, 473–478.
- [70] Hanot, M, Hoarau, J, Carriere, M, Angulo, J. F, & Khodja, H. (2009) *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics* **75**, 1247–1253.
- [71] Demortier, G. (1995) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **104**, 244–254.
- [72] (2003) IBANDL (<http://www-nds.iaea.org/ibandl/>).
- [73] Borysiuk, M, Kristiansson, P, Arteaga-Marrero, N, Elfman, M, Golubev, P, Nilsson, E, Nilsson, C, Pallon, J, & Salim, N. (2011) *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms* **269**, 2229–2232.
- [74] Kubatko, K. a. H, Helean, K. B, Navrotsky, A, & Burns, P. C. (2003) *Science* **302**, 1191–1193.
- [75] Wren, J. C, Shoesmith, D. W, & Sunder, S. (2005) *Journal of the Electrochemical Society* **152**, B470–B481.
- [76] Lavigne, O, Shoji, T, & Sakaguchi, K. (2012) *Journal of Nuclear Materials* **426**, 120–125.
- [77] Davenas, J, Stevenson, I, Celette, N, Cambon, S, Gardette, J. L, Rivaton, A, & Vignoud, L. (2002) *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms* **191**, 653–661.
- [78] O'Neill, P & Wardman, P. (2009) *International Journal of Radiation Biology* **85**, 9–25.
- [79] Khodja, H. (2011) in *Cost Chemistry Cm0603-Melusyn Joint Meeting : Damages Induced in Biomolecules by Low and High Energy Radiations*, ed. Gauduel, Y. H. Vol. 261.
- [80] Muroya, Y, Plante, I, Azzam, E. I, Meesungnoen, J, Katsurnura, Y, & Jay-Gerin, J. P. (2006) *Radiation Research* **165**, 485–491.
- [81] Fuchs, C & Henck, R. (1986) *Journal of Applied Physics* **60**, 427–441.
- [82] Pimblott, S. M, LaVerne, J. A, Bartels, D. M, & Jonah, C. D. (1996) *Journal of Physical Chemistry* **100**, 9412–9415.
- [83] Toburen, L. H, McLawhorn, S. L, McLawhorn, R. A, Carnes, K. D, Dingfelder, M, & Shinpaugh, J. L. (2010) *Radiation Research* **174**, 107–118.



## 9 Annexe



# Curriculum Vitæ

HICHAM KHODJA

UMR 3299 CEA/CNRS SIS2M CEA/Saclay 91191 Gif sur Yvette Cedex

Tél : +33.1.69.08.28.95

E-mail : [hicham.khodja@cea.fr](mailto:hicham.khodja@cea.fr)

75 publications dans des revues à comité de lecture, facteur H : 14

## Carrière

<b>Depuis 2010</b>	Chef du Laboratoire d'Etude des Éléments Légers UMR 3299 SIS2M, CEA/Saclay
<b>2000 - 2009</b>	Chef du Groupe Microsonde Nucléaire à UMR 9956 LPS CEA/Saclay
<b>1998 - 2000</b>	Ingénieur-chercheur au sein du Groupe Microsonde Nucléaire à UMR 9956 LPS CEA/Saclay
<b>1996 - 1998</b>	Ingénieur-chercheur au sein de l'équipe Plasma et Sources d'Ions, SI2A, CEA/Grenoble
<b>1993 - 1995</b>	Attaché Temporaire d'Enseignement et de Recherche à l'Université Joseph Fourier, Grenoble

## Formation

<b>1993</b>	Doctorat en Sciences Physiques de l'Université Pierre et Marie Curie, sur le thème « <i>Étude, conception et réalisation d'une source d'ions microEBIT</i> » Mention Très Honorable avec Félicitations
<b>1991</b>	DEA Physique et Technologie des Grands Instruments de l'Université Pierre et Marie Curie. Mention Assez Bien
<b>1991</b>	Magistère de Physique de l'Université Joseph Fourier. Mention Assez Bien.

## Activités d'encadrement

<b>2011 - 2012</b>	Contrat Post-doctoral de THOMAS SMITH. « <i>Optimisation de l'utilisation des techniques NRA pour l'analyse d'échantillons de type cométaires</i> »
<b>2011 - 2012</b>	Contrat Post-doctoral de MAROUAN EL YAKOUBI. « <i>Développement d'un système de détection à très grand angle solide pour la NRA</i> »

- 2009 - 2012** Thèse d'ÉLODIE BERNARD. Co-encadrement avec JACQUES CHÊNE, Directeur de Recherches CNRS. « *Comportement du deutérium dans les matériaux d'intérêt pour la fusion thermonucléaire* »
- 2005 - 2008** Thèse de MAÏTÉ HANOT. Co-encadrement avec JAIMÉ F ANGULO, HDR. « *Irradiation par microfaisceau de particules alpha : implication des espèces réactives de l'oxygène dans l'effet de voisinage* » Prix Joseph Maisin-Jeune Chercheur 2007, Prix Le Monde de la recherche scientifique 2009
- 1996 - 1998** Thèse de GUILHEM DOUYSET. Co-encadrement avec JEAN-PIERRE BRIAND, Professeur des Universités. « *Mesure des densités ioniques dans un plasma de source d'ions à résonance cyclotronique électronique par spectroscopie X haute résolution* »
- 2000 - 2012** Encadrement ou co-encadrement de 6 étudiants, de niveau IUT à Post-doctorat.
- 2000 - 2012** Accueil, formation et encadrement d'une soixantaine de chercheurs, post-doctorants, et doctorants sur les lignes d'analyse de la microsonde nucléaire.

## Participation à des jurys de thèse

- Octobre 2012** Thèse d'ÉLODIE BERNARD « *Comportement du deutérium dans les matériaux d'intérêt pour la fusion thermonucléaire* », Université de Paris-Sud.
- Décembre 2011** Thèse de GÉRALDINE GONON « *Space radiation-induced bystander effect : kinetics of biologic responses, mechanisms, and significance of secondary radiations* », Université de Franche-Comté.
- Novembre 1998** Thèse de GUILHEM DOUYSET « *Mesure des densités ioniques dans un plasma de source d'ions à résonance cyclotronique électronique par spectroscopie X haute résolution* », Université Pierre et Marie Curie.

## Activités d'enseignement

- 2002 & 2010** Cours dans le cadre des journées *Méthodes d'analyse des Matériaux et des Minéraux* de la Société Française de Minéralogie et Cristallographie.
- 2007** Cours dans le cadre de Eurispet (*European Intensive Seminars of Petrology*, Marie Curie Actions, FP6)
- 2005** Cours dans le cadre de l'école d'été PIANO (*Physique des Ions: de l'Analyse à la Nanotechnologie*)
- 1993 - 1995** Attaché Temporaire d'Enseignement et de Recherche à l'Université Joseph Fourier, Grenoble.
- 1991 - 1993** Monitorat d'enseignement, Université de Versailles Saint Quentin en Yvelines.

## **Organisation de journées scientifiques et conférences**

- 2012** Chairman des journées Ion Beam Analysis - Francophone
- 2000 - 2011** Secrétaire du comité d'expériences de la microsonde nucléaire; organisation d'une quinzaine de sessions
- 2000** Membre du comité local d'organisation de l'International Conference of Nuclear Microprobe Technologies and Applications

## **Diffusion de la culture scientifique**

Organisation des Journées Portes Ouvertes au sein du CEA/Saclay  
Participation aux manifestations " Fête de la science "

Participation à la manifestation Portes Ouvertes dédiée à l'Année Mondiale de la Chimie

Article de vulgarisation dans « L'actualité chimique »

## **Autres activités scientifiques ou administratives**

Referee pour Nuclear Instruments and Methods in Physics Section B, Journal of Nuclear Materials

Secrétaire du comité d'expériences de la microsonde nucléaire

Adjoint au Chef de Service de IRAMIS/SIS2M CEA/Saclay

Expert CEA dans le domaine « instrumentation, métrologie et contrôles »

Co-gestionnaire des sources radioactives au laboratoire

Membre du Conseil de laboratoire (1999-2000)



# Production scientifique

## Articles parus dans des revues à comité de lecture

- [1] A. Habrioux, S. Surble, P. Berger, H. Khodja, A. D’Affroux, S. Mailley, et al., Nuclear microanalysis of lithium dispersion in LiFePO<sub>4</sub> based cathode materials for Li-ion batteries, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*. 290 (2012) 13-18.
- [2] C. Larue, J. Laurette, N. Herlin-Boime, H. Khodja, B. Fayard, A.-M. Flank, et al., Accumulation, translocation and impact of TiO<sub>2</sub> nanoparticles in wheat (*Triticum aestivum* spp.): Influence of diameter and crystal phase, *Sci. Total Environ*. 431 (2012) 197-208.
- [3] J. Laurette, C. Larue, C. Mariet, F. Brisset, H. Khodja, J. Bourguignon, et al., Influence of uranium speciation on its accumulation and translocation in three plant species: Oilseed rape, sunflower and wheat, *Environ. Exp. Bot*. 77 (2012) 96-107.
- [4] P. Bossis, C. Raepsaet, M. Tupin, C. Bisor-Melloul, H. Khodja, M. Blat, et al., Corrosion of M5 in PWRs: Quantification of Li, B, H and Nb in the Oxide Layers Formed Under Different Conditions, *Journal of ASTM International*. 9 (2012) 103709.
- [5] R.N. Collins, E. Bakkaus, M. Carriere, H. Khodja, O. Proux, J.-L. Morel, et al., Uptake, Localization, and Speciation of Cobalt in *Triticum aestivum* L. (Wheat) and *Lycopersicon esculentum* M. (Tomato), *Environ. Sci. Technol*. 44 (2010) 2904-2910.
- [6] M. Hanot, J. Hoarau, M. Carriere, J.F. Angulo, H. Khodja, Membrane-Dependent Bystander Effect Contributes to Amplification of the Response to Alpha-Particle Irradiation in Targeted and Nontargeted Cells, *Int. J. Radiat. Oncol*. 75 (2009) 1247-1253.
- [7] E. Tsitrone, C. Brosset, B. Pegourie, E. Gauthier, J. Bouvet, J. Bucalossi, et al., Deuterium inventory in Tore Supra: reconciling particle balance and post-mortem analysis, *Nucl. Fusion*. 49 (2009).
- [8] H. Bureau, C. Raepsaet, H. Khodja, A. Carraro, C. Aubaud, Determination of hydrogen content in geological samples using elastic recoil detection analysis (ERDA), *Geochim. Cosmochim. Ac*. 73 (2009) 3311-3322.
- [9] C. Aubaud, H. Bureau, C. Raepsaet, H. Khodja, A. Withers, M. Hirschmann, et al., Calibration of the infrared molar absorption coefficients for H in olivine, clinopyroxene and rhyolitic glass by elastic recoil detection analysis, *Chem. Geol*. 262 (2009) 78-86.
- [10] N. Bernier, C. Brosset, F. Bocquet, E. Tsitrone, W. Saikaly, H. Khodja, et al., Localization by TEM and EELS of deuterium trapping sites in CFC exposed to plasma irradiation in Tore Supra, *J. Nucl. Mat*. 385 (2009) 601-605.
- [11] J. Gallien, H. Khodja, G. Herzog, S. Taylor, E. Koepsell, C. Daghlian, et al., Characterization of carbon- and nitrogen-rich particle fragments captured from comet 81P/Wild 2, *Meteorit. Planet. Sci*. 43 (2008) 335-351.
- [12] H. Bureau, B. Menez, V. Malavergne, A. Somogyi, A. Simionovici, D. Massare, et al., In situ mapping of high-pressure fluids using hydrothermal diamond anvil cells, *High Pressure Res*. 27 (2007) 235-247.

- [13] G. Flynn, P. Bleuet, J. Borg, J. Bradley, F. Brenker, S. Brennan, et al., Elemental compositions of comet 81P/Wild 2 samples collected by Stardust, *Science*. 314 (2006) 1731-1735.
- [14] D. Brownlee, P. Tsou, J. Aleon, C. Alexander, T. Araki, S. Bajt, et al., Research article - Comet 81P/Wild 2 under a microscope, *Science*. 314 (2006) 1711-1716.
- [15] M. Pinault, V. Pichot, H. Khodja, P. Launois, C. Reynaud, M. Mayne-L'Hermite, Evidence of sequential lift in growth of aligned multiwalled carbon nanotube multilayers, *Nano Lett.* 5 (2005) 2394-2398.
- [16] A. Gentils, S. Enescu, L. Thomé, H. Khodja, G. Blaise, T. Thome, High-temperature stability of ion-implanted zirconia and spinel, *J. Appl. Phys.* 97 (2005).
- [17] A. Mani, P. Aubert, F. Mercier, H. Khodja, C. Berthier, P. Houdy, Effects of residual stress on the mechanical and structural properties of TiC thin films grown by RF sputtering, *Surf. Coat. Tech.* 194 (2005) 190-195.
- [18] M. Carriere, H. Khodja, L. Avoscan, F. Carrot, B. Gouget, Uranium(VI) complexation in cell culture medium: influence of speciation on Normal Rat Kidney (NRK-52(E)) cell accumulation, *Radiochim. Acta.* 93 (2005) 691-697.
- [19] J. Foriel, P. Philippot, J. Susini, P. Dumas, A. Somogyi, M. Salome, et al., High-resolution imaging of sulfur oxidation states, trace elements, and organic molecules distribution in individual microfossils and contemporary microbial filaments, *Geochim. Cosmochim. Ac.* 68 (2004) 1561-1569.
- [20] M. Carriere, L. Avoscan, R. Collins, F. Carrot, H. Khodja, E. Ansoborlo, et al., Influence of uranium speciation on normal rat kidney (NRK-52(E)) proximal cell cytotoxicity, *Chem. Res. Toxicol.* 17 (2004) 446-452.
- [21] L. Desgranges, M. Ripert, J. Piron, H. Khodja, J. Gallier, Behaviour of fission gases in an irradiated nuclear fuel under a external irradiation, *J. Nucl. Mat.* 321 (2003) 324-330.
- [22] G. Douysset, H. Khodja, A. Girard, J.P. Briand, Highly charged ion densities and ion confinement properties in an electron-cyclotron-resonance ion source, *Phys. Rev. E.* 61 (2000) 3015-3022.
- [23] C. Perret, A. Girard, H. Khodja, G. Melin, Limitations to the plasma energy and density in electron cyclotron resonance ion sources, *Phys. Plasmas.* 6 (1999) 3408-3415.
- [24] M. Lamoureux, A. Girard, R. Pras, P. Charles, H. Khodja, F. Bourg, et al., Evidence of low-frequency oscillations in heavy ion plasmas heated by electron cyclotron resonance, *Phys. Plasmas.* 3 (1996) 4307-4309.

## Actes de conférences publiés dans des revues à comité de lecture

- [1] K. Nakamura-Messenger, G.F. Herzog, T. Smith, L.P. Keller, G.J. Flynn, H. Khodja, et al., Coordinated Analyses of Mineral-Organic Matter Associations in Interplanetary Dust Particles, *Meteorit. Planet. Sci.* 47 (2012) A289-A289.
- [2] G. Martin, G. Carlot, P. Desgardin, M. Vayer, C. Ramboz, T. Sauvage, et al., Surface blistering and flaking of sintered uranium dioxide samples under high dose gas

implantation and annealing, in: I. Bezverkhyy, S. Chevalier, O. Politano (Éd.), Diffusion in Materials - Dimat 2011, Trans Tech Publications Ltd, Stafa-Zurich, 2012: p. 185-190.

[3] G. Martin, C. Sabathier, G. Carlot, P. Desgardin, C. Raepsaet, T. Sauvage, et al., Irradiation damage effects on helium migration in sintered uranium dioxide, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. (2012).

[4] G. Guimbretière, L. Desgranges, A. Canizarès, G. Carlot, R. Caraballo, C. Jégou, et al., Determination of in-depth damaged profile by Raman line scan in a pre-cut He2+ irradiated UO<sub>2</sub>, Applied Physics Letters. 100 (2012) 251914.

[5] A. Debelle, A. Boulle, F. Garrido, L. Thome, Strain and stress build-up in He-implanted UO<sub>2</sub> single crystals: an X-ray diffraction study, J. Mater. Sci. 46 (2011) 4683-4689.

[6] H. Khodja, Ion microbeam irradiation for radiobiology and radical chemistry: status and prospect, J. Phys.: Conf. Ser. 261 (2011) 012012.

[7] G. Martin, P. Garcia, C. Sabathier, G. Carlot, T. Sauvage, P. Desgardin, et al., Helium release in uranium dioxide in relation to grain boundaries and free surfaces, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 268 (2010) 2133-2137.

[8] R. Bes, N. Millard-Pinard, S. Gavarini, S. Cardinal, V. Garnier, H. Khodja, et al., Study of xenon thermal migration in sintered titanium nitride using nuclear microprobe, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 268 (2010) 1880-1883.

[9] C. Raepsaet, H. Khodja, P. Bossis, Y. Pison, D. Roudil, Ion beam analysis of radioactive samples, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 267 (2009) 2245-2249.

[10] Y. Pison, C. Raepsaet, D. Roudil, H. Khodja, The use of NRA to study thermal diffusion of helium in (U,Pu)O<sub>2</sub>, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 267 (2009) 2250-2254.

[11] H. Khodja, M. Hanot, M. Carriere, J. Hoarau, J. Angulo, The single-particle microbeam facility at CEA-Saclay, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 267 (2009) 1999-2002.

[12] C. Aubaud, H. Bureau, C. Raepsaet, H. Khodja, A.C. Withers, M.M. Hirschmann, et al., Calibration of the infrared molar absorption coefficients for H in olivine, clinopyroxene and rhyolitic glass by elastic recoil detection analysis RID A-7502-2011, Chem. Geol. 262 (2009) 78-86.

[13] L. Avoscan, S. Milgram, G. Untereiner, R. Collins, H. Khodja, J. Coves, et al., Assessment of uranium and selenium speciation in human and bacterial biological models to probe changes in their structural environment, Radiochim. Acta. 97 (2009) 375-383.

[14] J. Roth, E. Tsitrone, T. Loarer, V. Philipps, S. Brezinsek, A. Loarte, et al., Tritium inventory in ITER plasma-facing materials and tritium removal procedures, Plasma Physics and Controlled Fusion. 50 (2008) 103001.

[15] C. Raepsaet, H. Bureau, H. Khodja, C. Aubaud, A. Carraro, mu-Erda developments in order to improve the water content determination in hydrous and nominally anhydrous mantle phases, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 266 (2008) 1333-1337.

- [16] H. Khodja, C. Brosset, N. Bernier, Deuterium inventory in plasma facing materials by means of NRA: A microbeam probe approach, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 266 (2008) 1425-1429.
- [17] L. Avoscan, H. Khodja, M. Carriere, J. Coves, B. Gouget, PIXE analyses of the soluble and membrane se-containing proteins extracted from *Cupriavidus metallidurans* CH34 after selenium oxides challenge, *Int. J. PIXE.* 18 (2008) 91-99.
- [18] E. De Vito, H. Khodja, C. Cayron, P. Lorenzetto, Examination of Be//Cu joints in hiped be tiles by using ion beam analysis methods, *Fusion Eng. Des.* 82 (2007) 1671-1680.
- [19] A. Carraro, H. Bureau, D. Visona, C. Raepsaet, Y. Fuchs, H. Khodja, Hydrogen concentration in mantle xenoliths from the Veneto Volcanic Province (NE Italy), *Geochim. Cosmochim. Ac.* 71 (2007) A147-A147.
- [20] H. Bureau, C. Raepsaet, H. Khodja, A. Carraro, C. Aubaud, ERDA of hydrogen content in hydrous and nominally anhydrous mantle phases, *Geochim. Cosmochim. Ac.* 71 (2007) A134-A134.
- [21] S. Milgram, M. Carrière, C. Thiebault, P. Berger, H. Khodja, B. Gouget, Cell-metal interactions: A comparison of natural uranium to other common metals in renal cells and bone osteoblasts, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 260 (2007) 254-258.
- [22] E. Tsitrone, Key plasma wall interaction issues towards steady state operation, *J. Nucl. Mater.* 363 (2007) 12-23.
- [23] L. Daudin, M. Carrière, B. Gouget, J. Hoarau, H. Khodja, Development of a single ion hit facility at the Pierre Sue Laboratory: A collimated microbeam to study radiological effects on targeted living cells, *Radiat. Prot. Dosim.* 122 (2006) 310-312.
- [24] P. Berger, J. Gallien, H. Khodja, L. Daudin, M. Berger, A. Sayir, Nuclear microprobe local hydrogen measurements in HTPC, *Solid State Ionics.* 177 (2006) 1655-1658.
- [25] H. Khodja, L. Daudin, M. Hanot, J. Hoarau, M. Carrière, B. Gouget, The LPS saclay single-ion microbeam facility, *Radiat. Res.* 166 (2006) 670-671.
- [26] L. Thomé, A. Gentils, S. Enescu, H. Khodja, T. Thomé, Ion beam analysis of Cs-implanted zirconia and spinel, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 249 (2006) 326-329.
- [27] G. Martin, P. Desgardin, T. Sauvage, P. Garcia, G. Carlot, H. Khodja, et al., A quantitative mu NRA study of helium intergranular and volume diffusion in sintered UO<sub>2</sub>, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 249 (2006) 509-512.
- [28] H. Khodja, M. Pinault, M. Mayne-L'Hermite, C. Reynaud, Carbon nanotube growth mechanism investigated by ion beam analysis, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 249 (2006) 523-526.
- [29] P. Berger, J. Gallien, H. Khodja, L. Daudin, M. Berger, A. Sayir, Hydrogen incorporation into high temperature protonic conductors: Nuclear microprobe microanalysis by means of H-1(p,p)H-1 scattering, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B.* 249 (2006) 527-531.

- [30] T. Sauvage, P. Desgardin, G. Martin, P. Garcia, G. Carlot, H. Labriin, et al., Microstructure effects on He diffusion in sintered UO<sub>2</sub> by mu NRA, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 240 (2005) 271-276.
- [31] A. Gentils, S. Enescu, L. Thome, H. Khodja, Use of the nuclear microprobe for the characterization of ion-implanted spinel, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 240 (2005) 308-312.
- [32] M. Carriere, B. Gouget, J. Gallien, L. Avoscan, R. Gobin, J. Verbavatz, et al., Cellular distribution of uranium after acute exposure of renal epithelial cells: SEM, TEM and nuclear microscopy analysis, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 231 (2005) 268-273.
- [33] E. Bakkaus, B. Gouget, J. Gallien, H. Khodja, F. Carrot, J. Morel, et al., Concentration and distribution of cobalt in higher plants: The use of micro-PIXE spectroscopy, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 231 (2005) 350-356.
- [34] J. Gunn, L. Begrambekov, C. Brosset, A. Gordeev, T. Loarer, E. Mijavina, et al., Controlled irradiation of CFC samples in the scrape-off layer of Tore Supra, J. Nucl. Mat. 337 (2005) 644-648.
- [35] C. Brosset, H. Khodja, Deuterium concentration in deposited carbon layers in Tore Supra, J. Nucl. Mat. 337 (2005) 664-668.
- [36] M. Gehlen, F. Bassinot, L. Beck, H. Khodja, Trace element cartography of Globigerinoides ruber shells using particle-induced X-ray emission, Geochim. Geophys. Geosyst. 5 (2004).
- [37] T. Sauvage, H. Erramli, S. Guilbert, L. Vincent, M.-F. Barthe, P. Desgardin, et al., Profile measurements of helium implanted in UO<sub>2</sub> sintered pellets by using the <sup>3</sup>He(d,  $\alpha$ )<sup>1</sup>H nuclear reaction analysis technique, Journal of Nuclear Materials. 327 (2004) 159-164.
- [38] B. Pegourié, C. Brosset, E. Delchambre, T. Loarer, P. Roubin, E. Tsitrone, et al., Long discharge particle balance and fuel retention in tore supra, Phy. Scripta. T111 (2004) 23-28.
- [39] F. Watt, J.A. van Kan, I. Rajta, A.A. Bettiol, T.F. Choo, M.B.H. Breese, et al., The National University of Singapore high energy ion nano-probe facility: Performance tests, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 210 (2003) 14-20.
- [40] P. Trocellier, D. Gosset, D. Simeone, J.M. Costantini, X. Deschanel, D. Roudil, et al., He-3 thermal diffusion coefficient measurement in crystalline ceramics by mu nra depth profiling, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 210 (2003) 507-512.
- [41] P. Philippot, J. Foriel, J. Cauzid, J. Susini, P. Dumas, A. Somogyi, et al., High resolution synchrotron-based imaging of sulphur oxidation states in individual microfossils and contemporary microbial filaments, Geochim. Cosmochim. Ac. 67 (2003) A379-A379.
- [42] H. Khodja, L. Avoscan, M. Carriere, F. Carrot, B. Gouget, Investigation of cadmium toxicity on renal epithelial cells using nuclear microprobe analysis, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. 210 (2003) 359-363.

- [43] L. Daudin, H. Khodja, J. Gallien, Development of « position-charge-time » tagged spectrometry for ion beam microanalysis, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 210 (2003) 153-158.
- [44] H. Bureau, P. Trocellier, C. Shaw, H. Khodja, N. Bolfan-Casanova, S. Demouchy, Determination of the concentration of water dissolved in glasses and minerals using nuclear microprobe, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 210 (2003) 449-454.
- [45] H. Bureau, B. Menez, H. Khodja, L. Daudin, J. Gallien, D. Massare, et al., The partitioning of barium and lead between silicate melts and aqueous fluids at high pressures and temperatures, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 210 (2003) 434-440.
- [46] P. Philippot, J. Foriel, J. Susini, H. Khodja, N. Grassineau, Y. Fouquet, High-resolution imaging of transition metal and sulfur-redox distribution in individual microfossils, J Phys. IV. 104 (2003) 381-384.
- [47] P.M.G. Damen, H. Matzke, C. Ronchi, J.P. Hiernaut, T. Wiss, R. Fromknecht, et al., Helium damage and helium effusion in fully stabilised zirconia, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms. 191 (2002) 571-576.
- [48] H. Khodja, E. Berthoumieux, L. Daudin, J. Gallien, The Pierre Sue Laboratory nuclear microprobe as a multi-disciplinary analysis tool, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 181 (2001) 83-86.
- [49] G. Douysset, H. Khodja, J. Briand, Highly charged argon density measurements in an electron cyclotron resonance ion source plasma using high resolution X-ray spectroscopy, Phy. Scripta. T80B (1999) 514-516.
- [50] R. Pras, M. Lamoureux, A. Girard, H. Khodja, G. Melin, Electron cyclotron resonance ion source ionic currents (both in the stable and periodic regimes) modeled in relation with the hot electron temperature via the potential dip, Review of Scientific Instruments. 69 (1998) 700-702.
- [51] H. Khodja, J. Briand, A warm electron beam ion trap: The Micro-EBIT, Phy. Scripta. T71 (1997) 113-116.

## Conférences invitées

- [1] H. Khodja, Ion microbeam irradiation for radiobiology and radical chemistry: status and prospect, J. Phys.: Conf. Ser. 261 (2011) 012012.
- [2] H. Khodja, Nuclear reaction analysis (NRA) at the micrometric scale, Proceedings of the 12th European Workshop on Modern Developements and Applications in Microbeam Analysis. (2011) 201-213.
- [3] H. Khodja, M. Hanot, M. Carrière, J. Hoarau, J. Angulo, The single-particle microbeam facility at CEA-Saclay, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 267 (2009) 1999-2002.

## Autres (posters, actes de conférences)

- [1] C. Larue, H. Khodja, N. Herlin-Boime, F. Brisset, A.M. Flank, B. Fayard, et al., Investigation of titanium dioxide nanoparticles toxicity and uptake by plants, *J. Phys.: Conf. Ser.* 304 (2011) 012057.
- [2] M. Mille, P. Brouzes, M. Pinault, H. Khodja, P. Boulanger, M. Mayne-L’Hermitte, Photografting aligned carbon nanotube networks: towards composites and nanoporous membranes, in: 3rd International Carbon Composites Conference, Arcachon, France, 2011.
- [3] M. Mille, P. Brouzes, M. Pinault, H. Khodja, P. Boulanger, M. Mayne-L’Hermitte, Fonctionnalisation de réseaux de nanotubes de carbone alignés par photogreffage : vers des matériaux composites ou des membranes nanoporeuses, in: Journées du GFEC, 2011.
- [4] S. Surblé, P. Berger, H. Rida, S. Cahen, S. Pruvost, C. Hérold, et al., Etude par microanalyse nucléaire de la diffusion chimique du lithium dans des matériaux inorganiques pour accumulateurs Li-ion et caractérisation sotechiométrique de composés d’insertion, in: IBAF 2010, Namur, Belgique, 2010.
- [5] H. Khodja, E. Bernard, B. Pégourié, Combined light element implantation and ion beam microanalysis for fusion materials, in: IBMM 2010, Montréal, Canada, 2010.
- [6] E. Bernard, H. Khodja, B. Pégourié, E. Tsitrone, Comportement du deutrium dans les matériaux pour la fusion : implantation et analyse simultanées, in: IBAF 2010, 2010.
- [7] H. Khodja, M. Hanot, J. Hoarau, J.F. Angulo, Radiobiological related studies at the single cell irradiation facility at Saclay (extended abstract), *J. Radiat. Res.* 50 (2009) A81-A125.
- [8] C. Raepsaet, H. Khodja, P. Bossis, Y. Pipon, D. Roudil, L’analyse par faisceau d’ions appliquée a la caractérisation d’échantillons radioactifs, in: IBAF 2008, Carcan, France, 2008: p. 37-41.
- [9] H. Khodja, M. Hanot, J. Hoarau, Irradiations cellulaires par microfaisceau au LPS, in: IBAF 2008, Carcan, France, 2008: p. 109.
- [10] L. Avoscan, H. Khodja, M. Carriere, J. Coves, B. Gouget, PIXE analyses of the soluble and membrane se-containing proteins extracted from *Cupriavidus metallidurans* CH34 after selenium oxides challenge, *Int. J. PIXE.* 18 (2008) 91-99.
- [11] M. Gehlen, F. Bassinot, L. Beck, H. Khodja, Trace element cartography of *Globigerinoides ruber* shells using particle-induced X-ray emission, *Geochemistry Geophysics Geosystems.* 5 (2004).
- [12] A. Mani, P. Aubert, H. Khodja, P. Houduy, Mechanical and structural properties of TiC and TiCN thin films grown by RF sputtering, Mechanical properties derived from nanostructuring materials. 778 (2003) 201-206.
- [13] B. Gouget, L. Figard, F. Carrot, S. Lemaout, R. Gobain, H. Khodja, In vitro study of metal toxicity to renal epithelial cells, *Met. Ions Biol. Med.* 7 (2002) 138-143.
- [14] M. Lamoureux, A. Girard, H. Khodja, G. Melin, Low-frequency periodic regime in the ECR ion sources, in: XXIII International Conference on Phenomena in Ionized Gases (ICPIG), Toulouse, France, 1997.

- [15] R. Pras, M. Lamoureux, A. Girard, H. Khodja, G. Melin, Ionic currents modeled in relation with the hot electron temperature parameter of the Quadrumafios plasma, in: Proceedings of the International Workshop on ECR ion sources, College Station, Texas USA, 1997: p. 210.
- [16] G. Melin, D. Hitz, F. Bourg, M. Delaunay, A. Girard, H. Khodja, et al., The Caprice ECR source of multicharged ions new results and a new prototype, in: EPAC96 Fifth European Particle Accelerator Conference, Sitges, Spain, 1997.
- [17] M. Lamoureux, R. Pras, A. Girard, H. Khodja, P. Charles, F. Bourg, et al., Oscillations of the hot electron temperature in Kr plasmas of an ECRIS (electron cyclotron resonance ion source), and consequences on the extracted ion currents, in: 1996 International Conference On Plasma Physics, Sugai, H; Hayashi, T, Nagoya Japan, 1997: p. 1286-1289.
- [18] M. Lamoureux, A. Girard, R. Pras, P. Charles, H. Khodja, Oscillatory regime and ionic current limitation in the ECRIS, in: Proceedings of the International Workshop on ECR ion sources, College Station, Texas USA, 1997: p. 67-71.
- [19] M. Lamoureux, A. Girard, H. Khodja, G. Melin, Z dependence of the appearance of the periodic regime in Quadrumafios and tentative interpretations, in: Proceedings of the International Workshop on ECR ion sources, College Station, Texas USA, 1997: p. 211-213.
- [20] H. Khodja, A. Brenac, A. Girard, G. Lamboley, Simulation of ion extraction and acceleration from electron cyclotron resonance ion sources, in: 1996 International Conference On Plasma Physics, Sugai, H; Hayashi, T, Nagoya Japan, 1997: p. 458-461.
- [21] H. Khodja, A. Brenac, A. Girard, Simulation of ion extraction and acceleration and transport from ECR sources, in: Proceedings of the International Workshop on ECR ion sources, Sugai, H; Hayashi, T, College Station, Texas USA, 1997: p. 193-197.
- [22] A. Girard, C. Perret, C. Lecot, F. Bourg, H. Khodja, G. Melin, Theoretical and experimental study of the electron distribution function in the plasma of an electron cyclotron resonance ion source, in: 1996 International Conference On Plasma Physics, Sugai, H; Hayashi, T, Nagoya Japan, 1997: p. 462-465.
- [23] G. Douysset, H. Khodja, J. Briand, A. Girard, Argon X-ray spectroscopy in an electron cyclotron resonance ion source, in: 1996 International Conference On Plasma Physics, Sugai, H; Hayashi, T, Nagoya Japan, 1997: p. 1458-1461.