

FR 4803304

**COMMISSARIAT A L'ENERGIE ATOMIQUE**

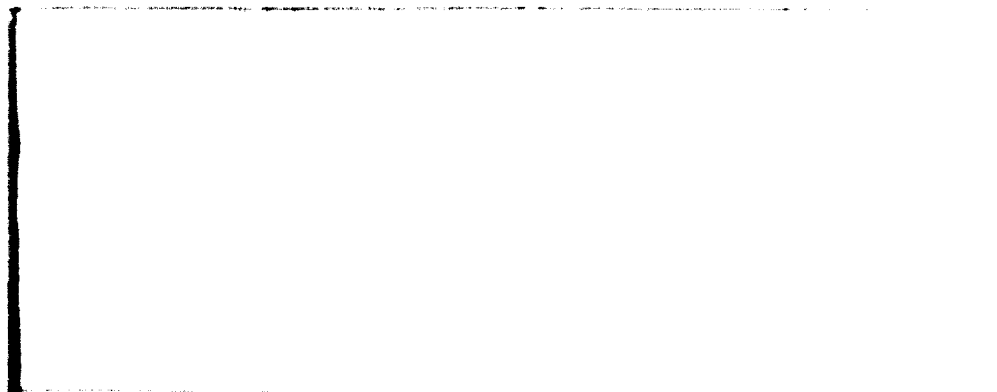
*Centre d'Études Nucléaires de Saclay*

**DIVISION DE CHIMIE**

**DÉPARTEMENT DE RECHERCHE ET ANALYSE**

**SERVICE D'ANALYSE ET D'ÉTUDES EN CHIMIE NUCLEAIRE ET ISOTOPIQUE**

---



DPA/SAECNI/78-461/382/CE/MC  
Le 3 Août 1978.

Laboratoire d'Analyse par  
Réactions Nucléaires

LA MICROSONDE NUCLEAIRE.  
Principe, performances et exemples d'applications\*

Ch. ENGELMANN

Ecole d'été de microanalyse et microscopie à balayage.  
Saint Martin-d'Hères, France, 11-16 septembre 1978

CEA-COMP-4409

Visa du Chef de Service :

  
R. DARRAS

LA MICROSONDE NUCLEAIRE.  
Principe, performances et  
exemples d'application\*

par

Ch. ENGELMANN\*\*

\* Conférence à l'occasion de l'Ecole d'Eté:  
" Microanalyse et microscopie à balayage "  
Saint Martin d'Heres ( Isère), 11-16 Septembre 1978

\*\* Département de Recherche et Analyse - Service d'Analyse et d'Etudes  
en Chimie Nucléaire et Isotopique - Laboratoire d'Analyse par  
Réactions Nucléaires  
CEN/SACLAY, BP n° 2, 91190 - GIF sur YVETTE (France)

## RESUME

Après avoir indiqué les diverses interactions atomiques ou nucléaires mises en oeuvre , on donne une description schématique de la microsonde nucléaire .

Les caractéristiques, ainsi que les performances de l'appareil, sont exposées.

Des exemples d'application, empruntés à la biologie et à la métallurgie, sont notamment présentés.

## I. INTRODUCTION

La microsonde nucléaire est un instrument mettant en oeuvre les principales interactions nucléaires ou atomiques engendrées par des particules chargées, convenablement focalisées, issues d'accélérateurs du type VAN DE GRAEFF, à savoir :

- l'excitation atomique directe ( émission du rayonnement X caractéristique );
- la diffusion élastique des projectiles incidents;
- les réactions nucléaires induites par ces derniers.

Elle est conçue en vue d'analyses ponctuelles, et permet, par voie de conséquence, d'obtenir les images de la répartition des éléments détectés à la surface des échantillons examinés.

## II. DESCRIPTION SOMMAIRE DE L'APPAREIL

La première microsonde nucléaire a été construite par COOKSON et coll. (1972 et 1973), à Harwell (GB), selon le schéma de la figure 1.

Le faisceau sortant de l'accélérateur VAN DE GRAEFF ( $E_{\max}$  : 1 à 4 MeV par nucléon ) est d'abord collimaté par un système de fentes (  $F_1$  et  $F_2$  ) ajustables. Il est ensuite focalisé par un ensemble de 4 lentilles quadrupolaires. Son image sur la cible présente un diamètre de l'ordre du micromètre. Ses dimensions sont d'ailleurs réglables à volonté, entre certaines limites évidemment. Ainsi, pour mesurer des profils de diffusion, les expérimentateurs utilisent fréquemment un faisceau rectangulaire de hauteur 1 à 2  $\mu\text{m}$  et de largeur 10 à 50  $\mu\text{m}$ .

../..

En vue d'éviter un échauffement excessif de la zone irradiée, la densité de courant est usuellement limitée à  $25 \mu\text{A} \cdot \text{mm}^{-2}$ ; soit environ 0,5 nA pour un faisceau ayant un diamètre de 5  $\mu\text{m}$ .

Le balayage de l'échantillon par le pinceau de projectiles incidents permet de réduire notablement les effets thermiques; dans ce cas, pour la dimension précitée, des intensités de 5 à 10 nA sont utilisables.

Un système de moteurs télécommandés permet de mouvoir l'échantillon sous investigation selon trois directions perpendiculaires ( xyz ) avec une très grande précision.

En outre, un dispositif se composant de deux paires de plaques placées à la sortie de la dernière lentille, alimentées par des générateurs convenables, assure le balayage de la surface de l'échantillon par les particules incidentes.

Deux microscopes (  $M_1$  et  $M_2$  ) autorisent, d'une part le contrôle du centrage et de la forme du faisceau, d'autre part son positionnement dans la zone examinée.

Les détecteurs de particules chargées et de rayons X sont situés à l'intérieur de l'enceinte d'irradiation; quant au compteur de rayonnement  $\gamma$ , il est placé à l'extérieur.

### III. PERFORMANCES AUTORISEES

Elles sont consignées dans le tableau I. Les profondeurs concernées par l'analyse portent sur quelques  $\mu\text{m}$ ; de sorte que les teneurs ponctuelles minimales dosables sont, selon l'élément déterminé et le matériau considéré, comprises entre :

$$10^{-7} \text{ et } 10^{-6} \text{ g} \cdot \text{g}^{-1}$$

..//..

La microsonde nucléaire s'avère particulièrement performante et fiable pour doser les éléments légers par observation directe des processus nucléaires induits par les projectiles incidents. Dans le tableau II sont rassemblées quelques réactions utilisables à cet effet; certaines autorisent d'ailleurs des analyses isotopiques

#### IV. EXEMPLES D'APPLICATION

Ils sont fort nombreux et concernent des domaines très divers ( archéologie, biologie, catalyse, corrosion, criminologie, électronique, environnement, métallurgie, minéralogie,....).

Parmi les plus caractéristiques, il convient de signaler :

- l'établissement de la distribution de certains oligoéléments dans des cheveux ( COOKSON 1975 ) ou des cellules biologiques élémentaires ( COOKSON 1976 ), selon leurs diamètres;
- la mesure des profils de diffusion ou de la répartition superficielle du béryllium, du bore, du carbone, de l'azote, de l'oxygène et du silicium dans des métaux ( Mc MILLAN, 1976, 1977 et 1978; OLIVIER 1975; PIERCE, 1973, 1974, 1976 et 1977 ), éventuellement radioactifs ( Ex : matériaux de structure de réacteurs, tronçons de gaines irradiées, prélèvements de combustibles ... );
- la détermination des profils de diffusion de l'oxygène-18 à travers des couches d'oxyde dans des aciers ferritiques ayant fait l'objet de traitements thermiques en présence d'une atmosphère de gaz carbonique marqué  $[CO_2^{18}]$  ( ALLEN 1976 );
- la mesure des profils de diffusion du lithium dans des couches d'oxyde épaisses formées à la surface d'aciers ou chrome par corrosion dans une solution caustique  $[NaOH/LiOH]$  ( ALLEN 1976 );
- le relevé de la répartition de l'hydrogène au voisinage des fissures engendrées à la surface des aciers corrodés par des produits caustiques ( ALLEN 1976 );
- la détermination des variations locales des rapports de concentrations O/U dans les combustibles céramiques (Mc MILLAN 1976).

#### V. CONCLUSION

La microsonde nucléaire est un instrument complémentaire des autres techniques d'analyse ponctuelle ou superficielle ( analyseur ionique, ESCA, microscope électronique à balayage, microsonde électronique, spectrométrie AUGER, etc...).

Parmi ses avantages dominants, on peut citer les suivants :

- tous les éléments sont théoriquement dosables, y compris l'hydrogène;
- possibilité de rendre la méthode très spécifique, notamment à l'égard des éléments légers, par le choix de la réaction nucléaire et l'énergie des projectiles incidents;
- absence d'effets d'environnement chimique ; de sorte que les étalonnages sont simples et ne requièrent en aucune manière des échantillons de référence ayant une composition chimique identique au matériau considéré;
- possibilité d'examiner des microprélèvements ( Ex : biopsies ) sous atmosphère d'hélium ( ou à l'air );
- possibilité de déterminer les éléments légers ( image de la répartition superficielle ou profil de diffusion ) dans des matériaux fortement radioactifs.



REFERENCES

- C.R. ALLEN, G. DEARNALEY, N.E.W. HARTLEY  
Quantitative measurement of light element profiles in thick corrosion films  
on steels, using the Harwell nuclear microbeam.  
Ion beam surface layer analysis, Vol.2, p. 901  
Ed. O. Meyer, G. Linker, F. Käppeler  
Plenum Press, New-York and London (1976).
- J.A. COOKSON, A.T.G. FERGUSON, F.D. PILLING  
Proton microbeams, their production and use.  
J. Radioanal. Chem. 12 (1972) 39.
- J.A. COOKSON, F.D. PILLING  
The use of focused ion beams for analysis.  
Thin Solid Films, 19 (1973) 381.
- J.A. COOKSON, F.D. PILLING  
Trace element distributions across the diameter of human hair.  
Phys. Med. Biol. 20 (1975) 1015.
- J.A. COOKSON, F.D. PILLING  
Proton microbeam analysis in air.  
Phys. Med. Biol. 21 (1976) 965.
- J.W. Mc MILLAN, T.B. PIERCE  
Nuclear microprobe analysis of reactor materials.  
Ion beam surface layer analysis, Vol.2, p. 913  
Ed. O. Meyer, G. Linker, F. Käppeler  
Plenum Press, New-York and London (1976).
- J.W. Mc MILLAN, F.C.W. PUMMERY  
A nuclear microprobe method for the simultaneous determination of silicon  
and nitrogen profiles in metals.  
J. Radioanal. Chem. 38 (1977) 51.

J.W. Mc MILLAN, P.M. HIRST, F.C.W. PUMERY, J. HUDDLESTON, T.B. PIERCE  
Recent developments in nuclear microprobe analysis, particularly the determination of beryllium distribution in metals.  
Nucl.Inst.Meth.149 (1973) 83.

C. OLIVIER, J.W. Mc MILLAN, T.B. PIERCE  
The use of the nuclear microprobe for the examination of nitrogen distributions in metal samples.  
Nucl. Inst. Meth. 124 (1975) 289.

T.B. PIERCE, J.W. Mc MILLAN, P.F. PECK, I.G. JONES  
Measurement of carbon diffusion profiles by means of the nuclear microprobe.  
Radiochem. Radioanal. Letters, 14 (1973) 357.

T.B. PIERCE, J.W. Mc MILLAN, P.F. PECK, I.G. JONES  
An examination of carbon diffusion profiles in steel specimens by means of the nuclear microprobe.  
Nucl. Inst. Meth. 118 ( 1974 ) 115.

T.B. PIERCE, J. HUDDLESTON  
An assesment of the use of the nuclear microprobe for the determination of oxygen distributions.  
Radiochem. Radioanal. Letters, 27 (1976) 249.

T.B. PIERCE, J. HUDDLESTON  
The application of two dimensional scanning to light element mapping with the nuclear microprobe.  
Nucl. Inst. Meth. 144 (1977) 231.

TABEAU 1

LIMITES DE DETECTION AUTORISEES PAR LES METHODES D'ANALYSE PROCEDANT PAR OBSERVATION DIRECTE  
DE REACTIONS ATOMIQUES OU NUCLEAIRES

Technique mise en oeuvre	Eléments pour lesquels le procédé s'avère particulièrement spécifique	Limite de détection réalisable (g.cm <sup>-2</sup> )
Excitation atomique par projectiles lourds *	Z > 10	10 <sup>-10</sup> à 10 <sup>-9</sup>
Rétrodiffusion élastique de particules chargées **	Z > 15	10 <sup>-9</sup> à 10 <sup>-8</sup>
Observation directe de réactions nucléaires **	Z < 15	10 <sup>-12</sup> à 10 <sup>-10</sup>

\* Protons, hélions-4, ions lourds ( <sup>7</sup>Li, <sup>12</sup>C, ... )

\*\* Permet éventuellement d'entreprendre des analyses isotopiques.

TABEAU II

EXEMPLES DE REACTIONS NUCLEAIRES PERMETTANT LA DETECTION  
DES ELEMENTS LEGERS

Elément considéré	Réactions nucléaires utilisables pour sa détermination
H	$^1\text{H}(^7\text{Li}, \gamma)^8\text{Be}$ ; $^1\text{H}(^{15}\text{N}, \alpha)^{12}\text{C}$ ; $^1\text{H}(^{19}\text{F}, \alpha)^{16}\text{O}$ ; $^1\text{H}(^{11}\text{B}, \alpha)^8\text{Be}$
He	$^4\text{He}(^7\text{Li}, \gamma)^{11}\text{B}$ ; $^4\text{He}(^{10}\text{B}, n)^{13}\text{N}$
Li	$^7\text{Li}(p, \gamma)^8\text{Be}$ ; $^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$ ; $^6\text{Li}(d, \alpha)^4\text{He}^{(1)}$ ; $^7\text{Li}(d, \alpha)^5\text{He}^{(1)}$
Be	$^9\text{Be}(d, \alpha)^7\text{Li}$ ; $^9\text{Be}(\alpha, n \gamma)^{12}\text{C}$
B	$^{11}\text{B}(p, \alpha)^8\text{Be}$ ; $^{10}\text{B}(d, p)^{11}\text{B}^{(2)}$ ; $^{11}\text{B}(d, \alpha)^9\text{Be}^{(2)}$ $^{10}\text{B}(\alpha, p)^{13}\text{C}^{(3)}$ ; $^{11}\text{B}(\alpha, p)^{14}\text{C}^{(3)}$
C	$^{12}\text{C}(p, \gamma)^{13}\text{N}^{(4)}$ ; $^{13}\text{C}(p, \gamma)^{14}\text{N}^{(4)}$ ; $^{12}\text{C}(d, p)^{13}\text{C}$
N	$^{14}\text{N}(p, \gamma)^{15}\text{O}^{(5)}$ ; $^{15}\text{N}(p, \alpha \gamma)^{12}\text{C}^{(5)}$ ; $^{14}\text{N}(d, p)^{15}\text{N}$ $^{14}\text{N}(d, \alpha)^{12}\text{C}$
O	$^{18}\text{O}(p, \gamma)^{19}\text{F}$ ; $^{18}\text{O}(p, \alpha)^{15}\text{N}$ ; $^{16}\text{O}(d, p)^{17}\text{O}^{(6)}$ ; $^{18}\text{O}(d, p)^{19}\text{O}^{(6)}$ ; $^{16}\text{O}(d, \alpha)^{14}\text{N}^{(7)}$ ; $^{18}\text{O}(d, \alpha)^{16}\text{N}^{(7)}$
F	$^{19}\text{F}(p, \alpha \gamma)^{16}\text{O}$ ; $^{19}\text{F}(p, \alpha)^{16}\text{O}$

(1) (2) (3) (4) (5) (6) (7) permettent éventuellement de réaliser des analyses isotopiques

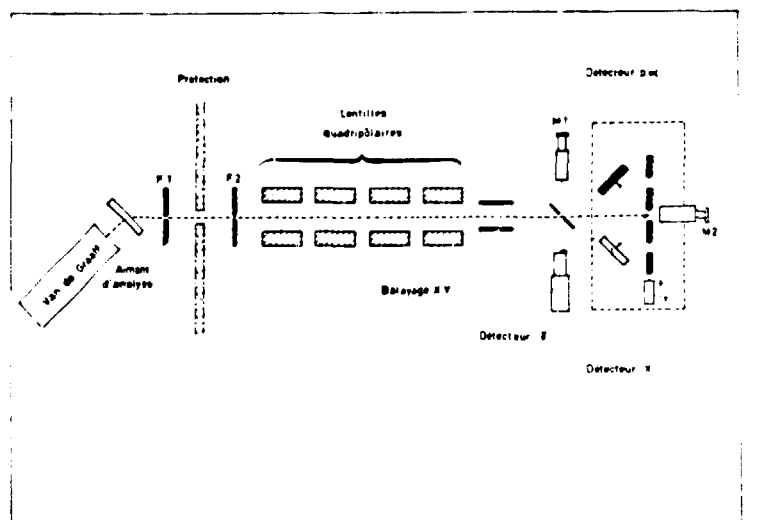


Fig.1. Schéma de principe de la microsonde nucléaire construite à Harwell (GB), par COOKSON et coll. (1972 et 1973 ).

