



ThomX kick-off meeting (LAL-Orsay, 28-29 march 2012)



Hodeau J-L, (Institut Neel-CNRS) hodeau@grenoble.cnrs.fr



Culturage Heritage &
Material Sciences &
Medical applications
utilisant une Source Compton Inverse
«ThomX» de Rayons X à Haute Energie

- M. Jacquet, A. Bellouati,
• LAL- CNRS, Orsay
- JL. Hazemann, JL. Hodeau, P. Martinetto
• Institut Néel, Grenoble
- O. Proux, N. Boudet,
• CRG-ESRF, Grenoble
- P. Walter, L. DeViguerie
• LAMS, Paris
- G. LeDuc A. Bravin,
• ESRF, Grenoble
- F. Esteve, H. Elleaume, J-F. LeBas
• GIN-Hopital, Grenoble
- C. Bruyère, P. Jeantet,
G. Lacpiere, E. Roy
• SERAS/Néel, Grenoble



Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

Sources classiques par rapport au rayonnement synchrotron

- ne permettent pas de développer des recherches
- les plus ambitieuses développées sur les TGE

Besoin d'une source de rayons X de laboratoire très accessible

- plus accessible avec des
- caractéristiques proches des TGE,

intense

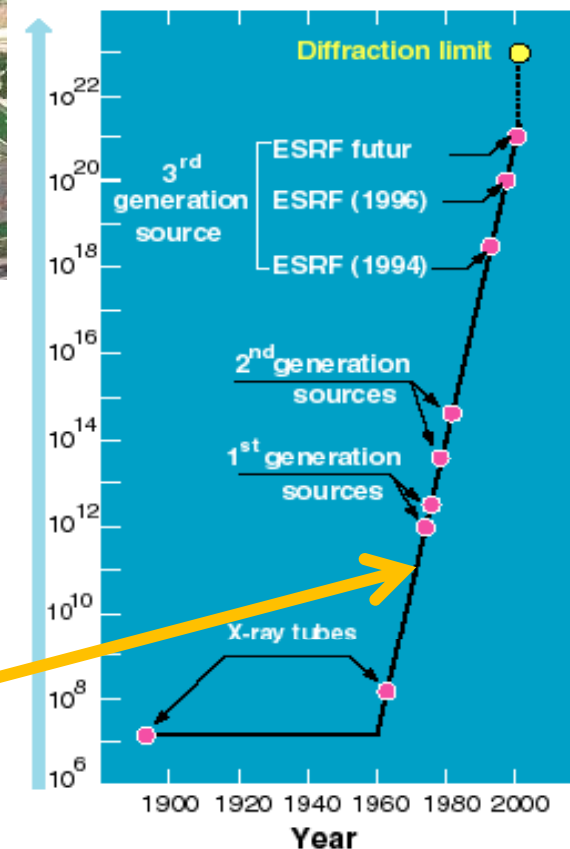
- quasi-monochromatique,
- cohérent,
- source ponctuelle
- haute énergie

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

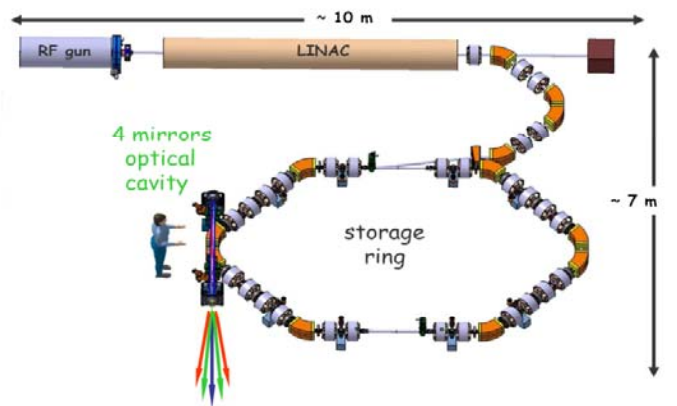
Synchrotron Radiation



Brilliance of the X-ray beams
(photons / s / mm² / mrad² / 0.1% BW)



ThomX



Flux ~ 10¹² - 10¹³ ph/sec

Brightness ~ 10¹¹ ph/sec/mm²/mrad²/0.1%bw



Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

- **Applications matériaux du Patrimoine**
besoin d'analyse de corpus d'objets
- **Applications structurales en Science des Matériaux**
analyses précises et séries d'échantillons
- **Imageries 2D/3D sélectives Médicales & Matériaux et Patrimoine**
besoin d'un faisceau cohérent + RX à haute énergies
- **Thérapie Médicale**
besoin de RX de Hautes énergies

Méthodes d'utilisation :

- diffraction, - diffusion,
- absorption, - spectroscopie,
- imagerie,

1. Caractériser une source compacte de rayons X durs
2. Faire les premières expériences de démonstration

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

LES MATÉRIAUX DU PATRIMOINE, → des matériaux particuliers

(1) Des matériaux élaborés par des artistes et des artisans à partir de techniques souvent complexes

⇒ Reconstituer des étapes de créations des œuvres
(mise en œuvre de procédés de synthèse ou de formulation)

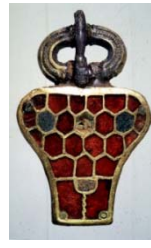
(2) Des matériaux qui ont vieillis depuis leur élaboration

⇒ Reconstituer les mécanismes d'altération
(pour la conservation et la restauration)

- Ceramics
- Copper alloys
- Iron
- Silver
- Gold
- Gemstones
- Glass
- Stone
- Paper and ink
- Bone
- Wood
- Amber
- Silk, wool
- Textile fibers
- Painting
- etc.

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

LES MATÉRIAUX DU PATRIMOINE, → des matériaux particuliers



- Ceramics
- Copper alloys
- Iron
- Silver
- Gold
- Gemstones
- Glass
- Stone
- Paper and ink
- Bone
- Wood
- Amber
- Silk, wool
- Textile fibers
- Painting
- etc.

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

LES MATÉRIAUX DU PATRIMOINE, → des exigences

- ➔ Objets précieux ...•
- ➔ Éviter les prélèvements•
- ➔ Développer des techniques d'analyse *in situ*•



•DRX



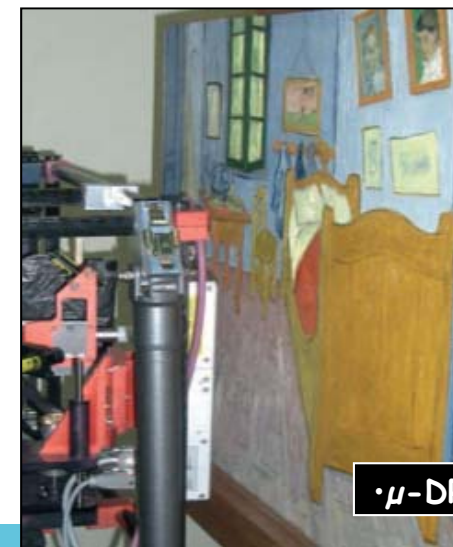
•PIXE



•Raman



•μ-FX



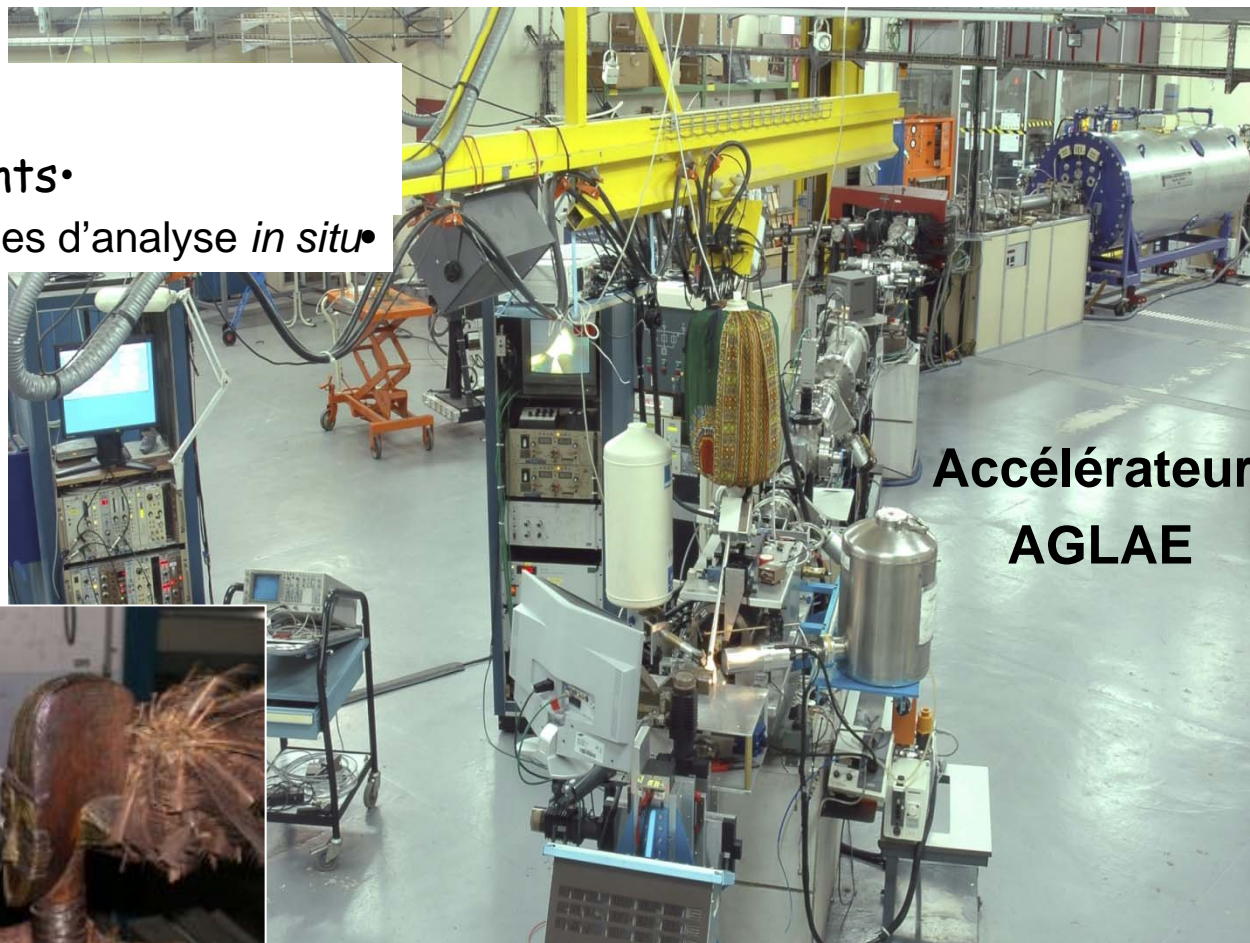
•μ-DRX

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

LES MATÉRIAUX DU PATRIMOINE,

→ des exigences

- ➔ Objets précieux ...•
- ➔ Éviter les prélèvements•
- ➔ Développer des techniques d'analyse *in situ*•



Accélérateur
AGLAE



•PIXE

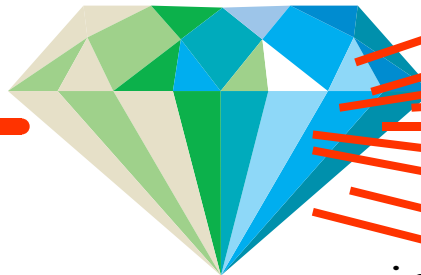
Diffraction des rayons X

(ordre à grande distance)

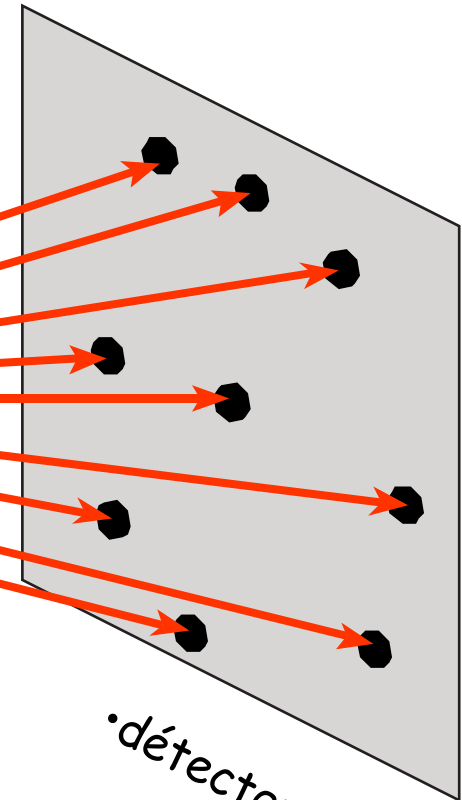
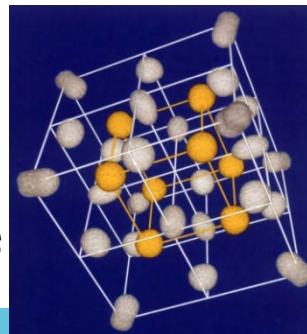
•Premier diagramme de rayons X obtenu par Laue en 1912.



•Faisceau de rayons X



•cristal



•détecteur

•Loi de Bragg : $2 d \sin\theta = n\lambda$

λ : longueur d'onde

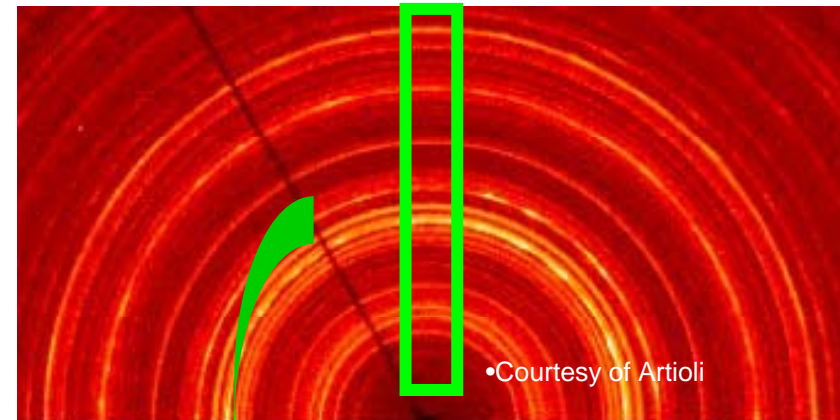
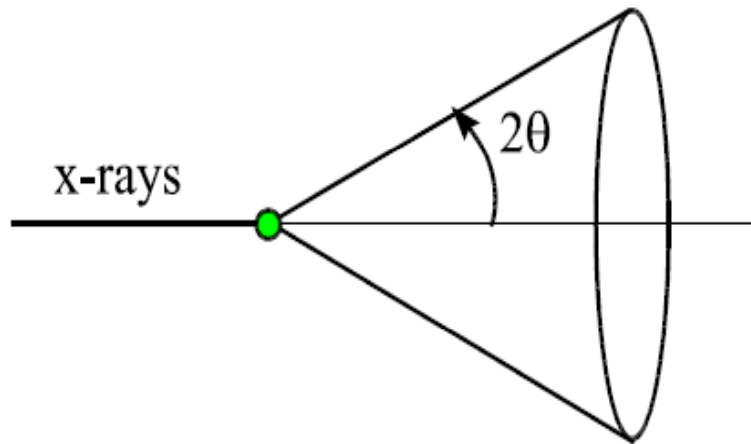
θ : angle d'incidence

d : distance entre deux plans atomiques

Diffraction des rayons X

(ordre à grande distance)

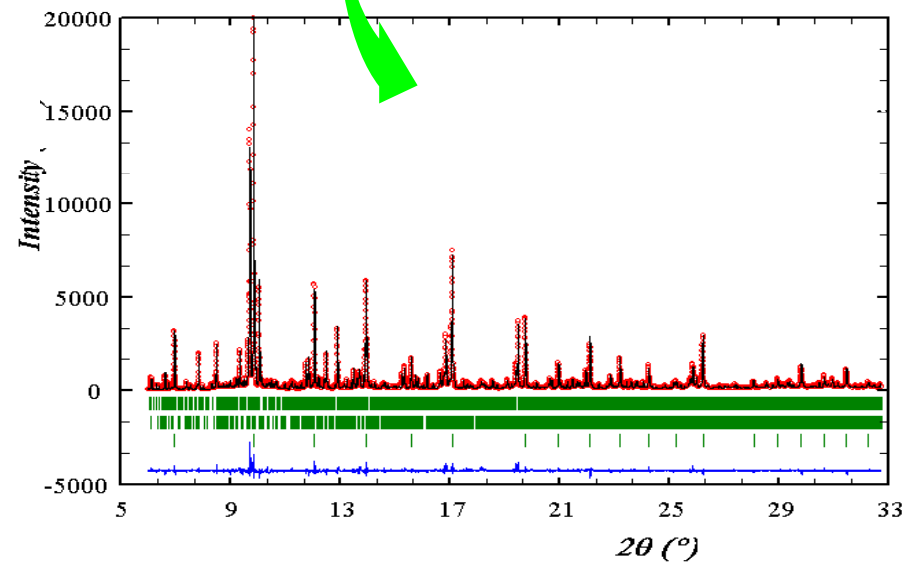
Un bon cristal peut aussi être une poudre...



1D pattern :

Full extraction (cake) or
extraction of a part of the 2D image

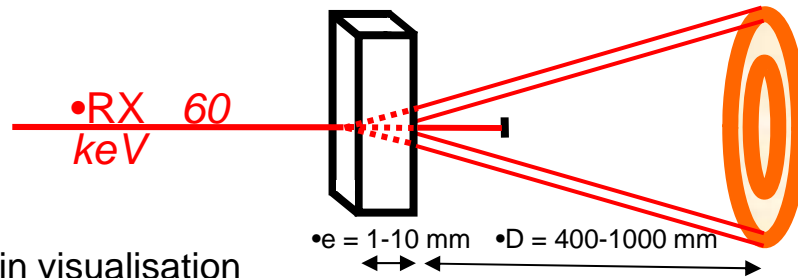
or data collection of 1D pattern
by using single detector



Diffraction des rayons X

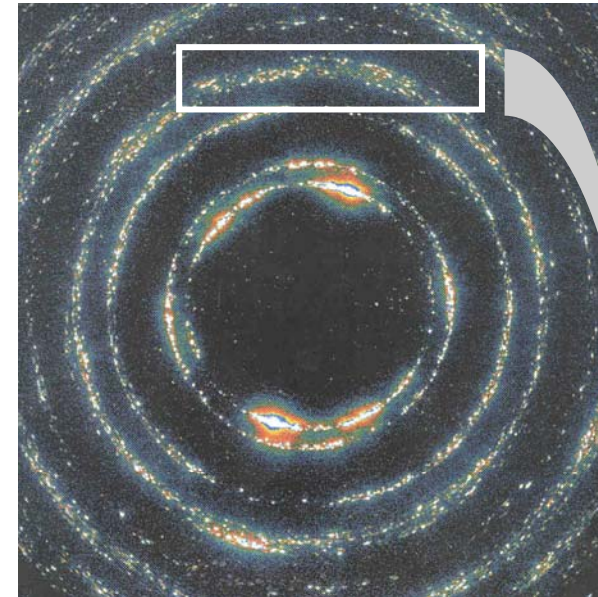
(ordre à grande distance)

Une poudre peut avoir des cristaux plus ou moins gros

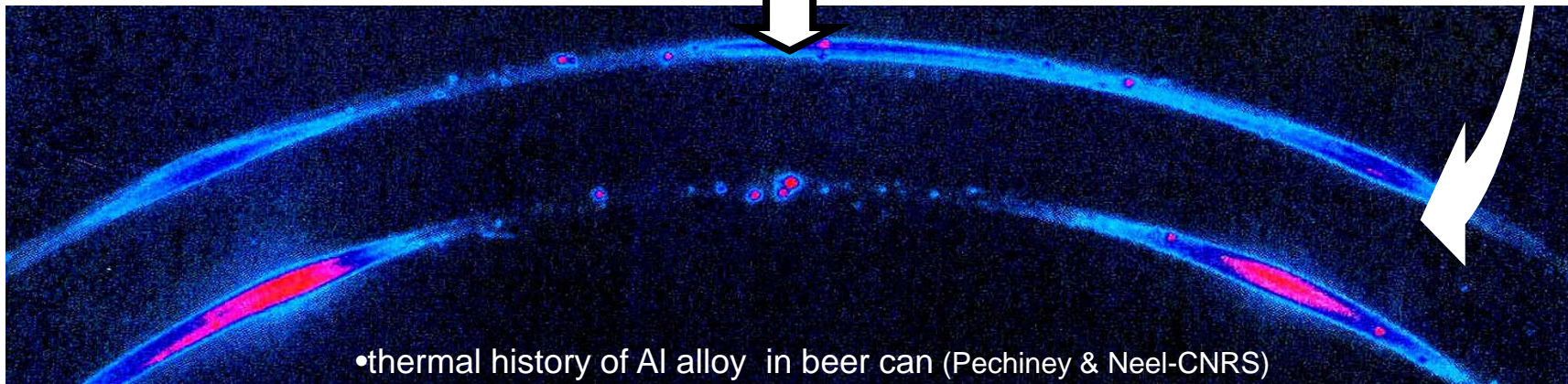


individual grain visualisation
cristallinity (constraints, annealing)

•Cf. H.Poulsen, G. Vaughan Risoe-ESRF ID11



... info importante en matériaux



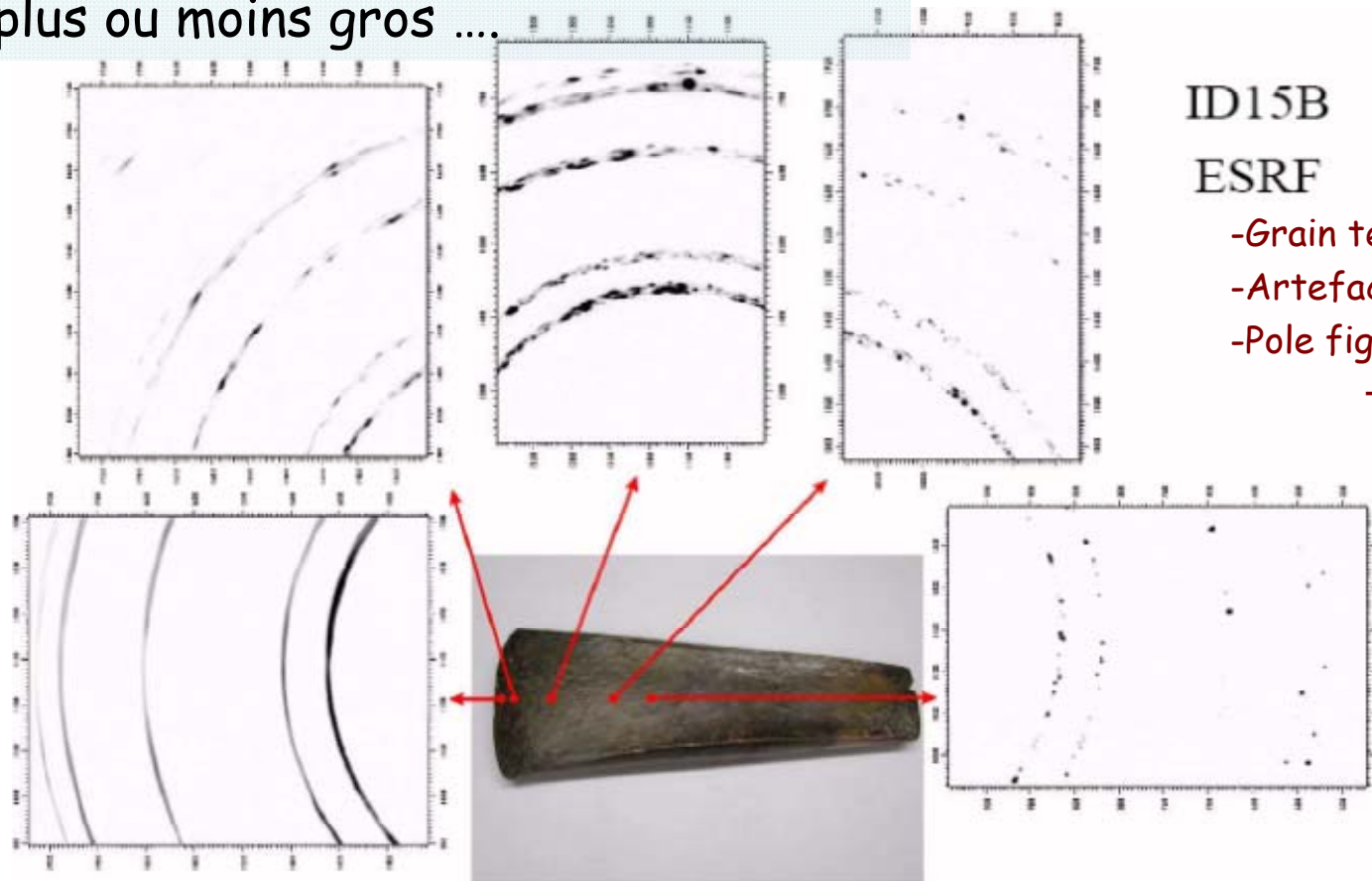
•thermal history of Al alloy in beer can (Pechiney & Neel-CNRS)

Diffraction des rayons X

(ordre à grande distance)

Une poudre peut avoir des cristaux plus ou moins gros

•High energy X-rays



ID15B
ESRF

- Grain texture
- Artefact sampling
- Pole figures

→ mecanical history of the alloy

•Artioli et al. Synchrotron Radiation in Art & Archaology, Grenoble2005

hammering

•.... qui peut donner une information archéologique

Diffraction des rayons X

(ordre à grande distance)

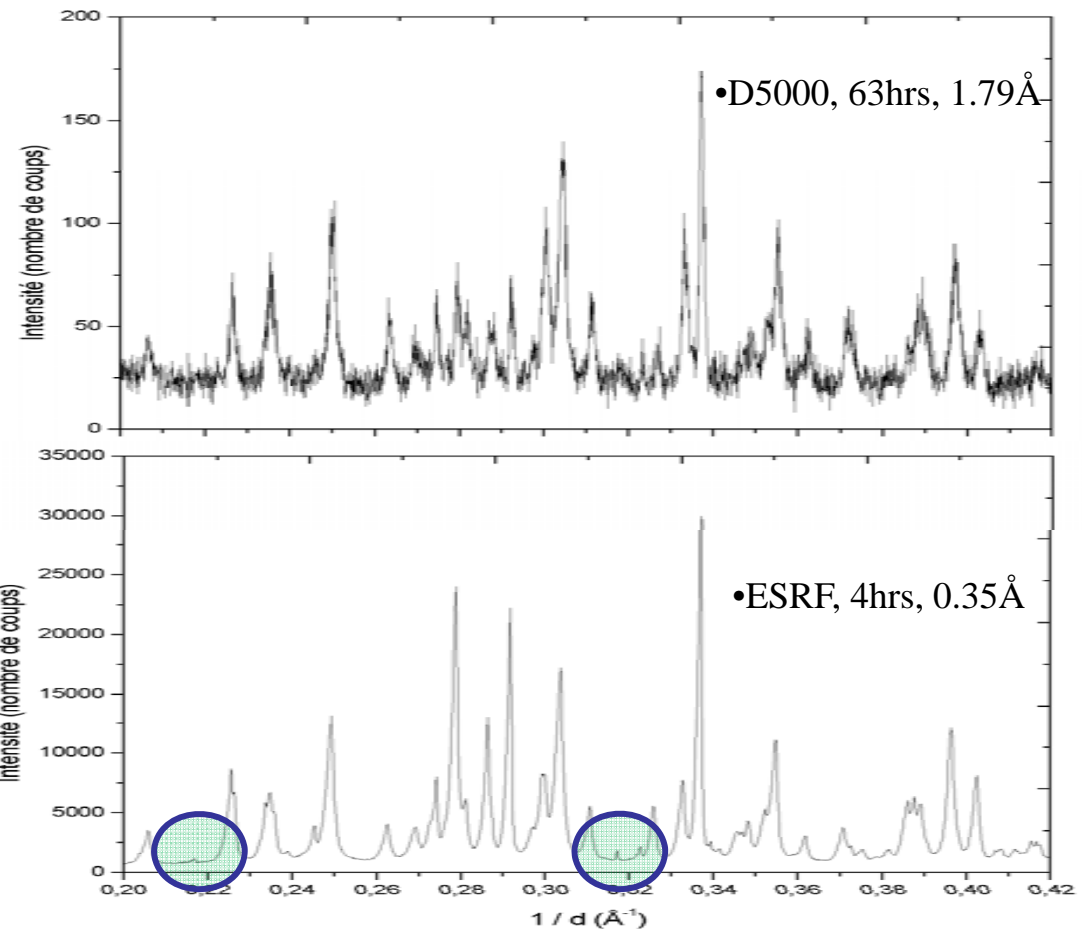
Une poudre peut être un mélange avec des phases mineures

Raies faibles → flux intense

Egyptian Cosmetics



Philippe Walter, P. Martinetto et al.
Nature 397 (1999) 483



Diffraction des rayons X

(ordre à grande **et/ou courte** distance)

- Une poudre peut être mal-ordonnée

Expériences de diffraction avec une "mauvaise" poudre

- *Cristal ordonné + désordre partiel*

espace direct:

on peut définir une structure moyenne \neq structure locale (\Rightarrow désordre)

espace réciproque :

présence de pics de Bragg + fond diffus

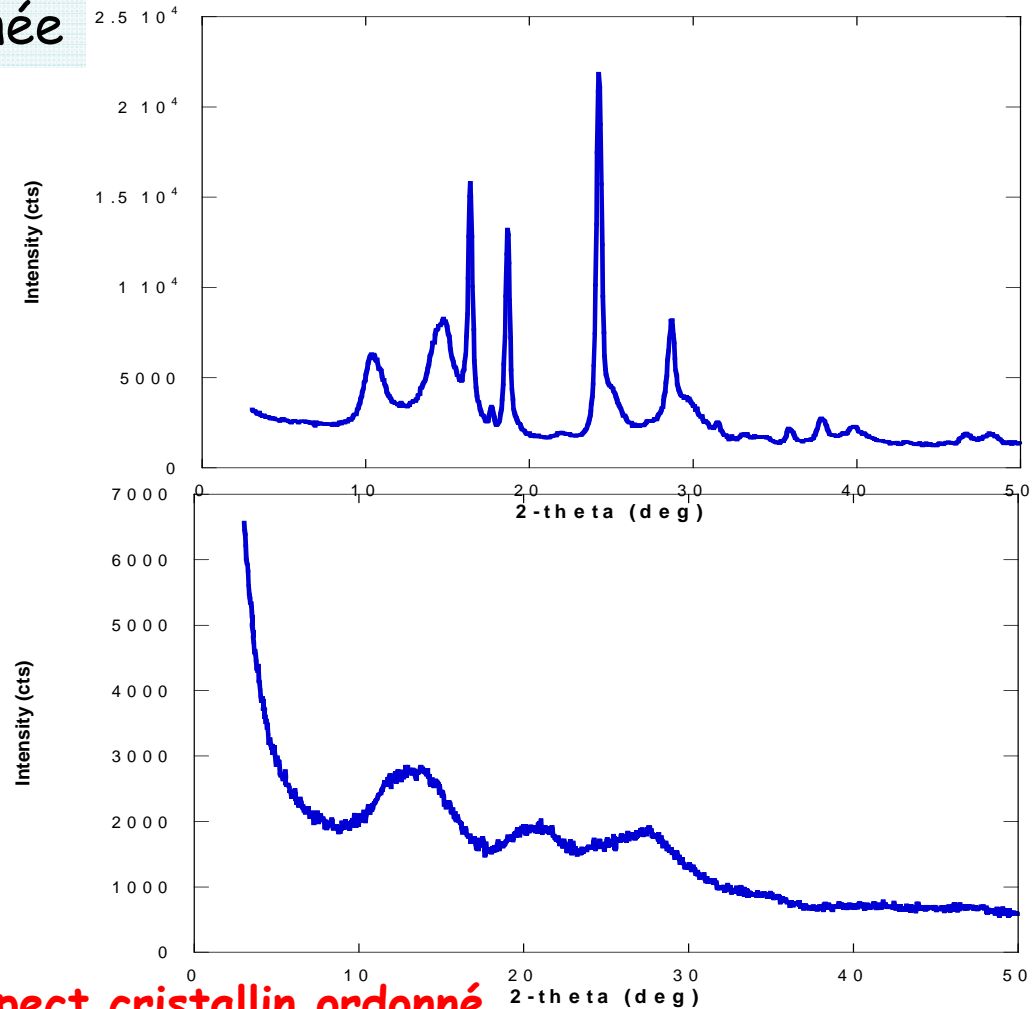
- *Domaines nano-cristallins*

espace direct:

structure bien définie dans des domaines très petits (qq nm) \neq amorphe

espace réciproque:

pics de Bragg larges ou absents, selon la taille des domaines



Les pics de Bragg = ne voient que l'aspect cristallin ordonné.

Il faut utiliser aussi ce qui est non-cristallin : «bruit de fond» «diffusion diffuse»

Diffraction des rayons X

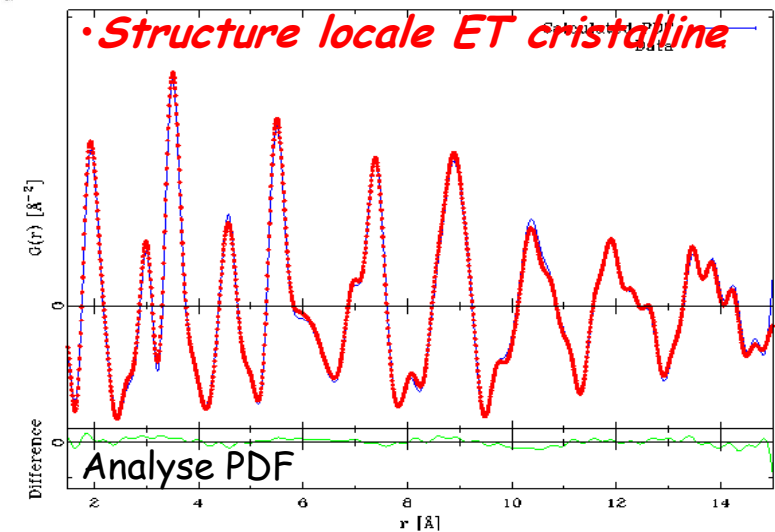
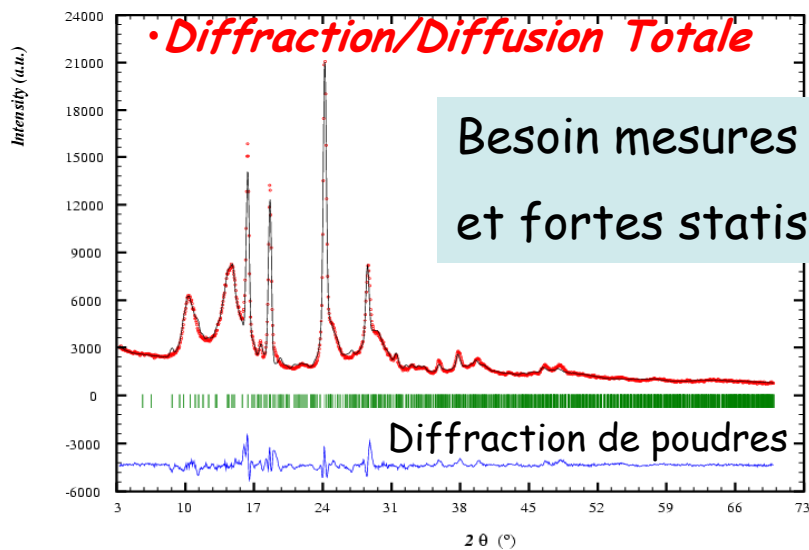
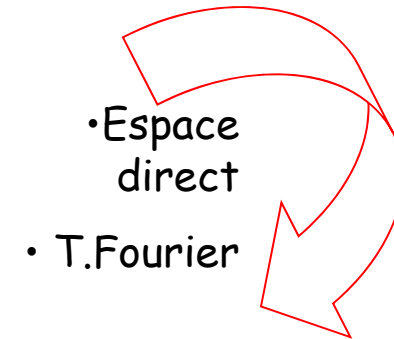
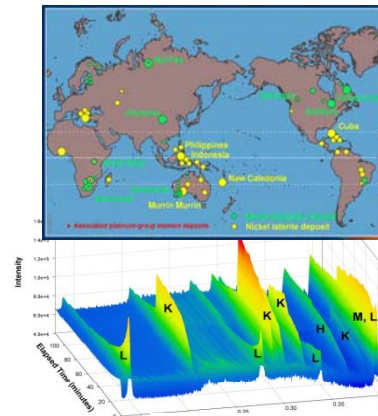
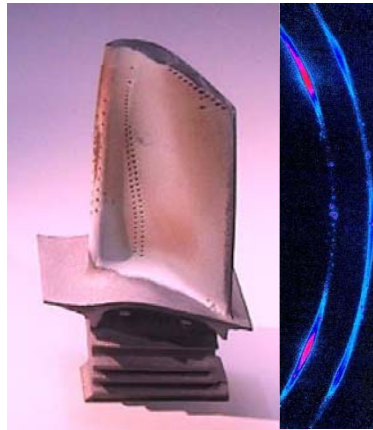
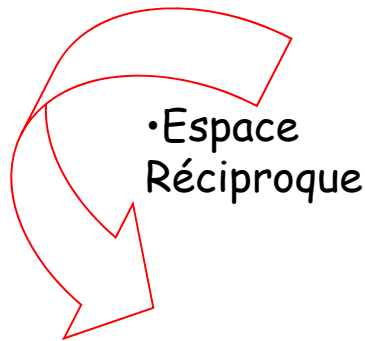
(ordre à grande **et/ou courte** distance)

Une poudre peut être mal-ordonnée

Science Patrimoine & Matériaux

- analyses de séries d'échantillons

- exp^{ce} in-situ



Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

- **Applications Diffraction/Diffusion en matériaux du Patrimoine :**
besoin d'analyses structurales détaillées de corpus d'objets
- **Applications Diffraction/Diffusion en Science des Matériaux**
besoin d'analyses structurale détaillées de matériaux «réels»

Utilité de la diffraction/diffusion à haute énergie

L'ESRF a démontré la pertinence de ces études à hautes énergies pour les systèmes cristallins et aussi désordonnés (Diffraction & PDF).

- - en matériaux du patrimoine
- - en science des matériaux sur poudres
- - sur les matériaux poly-cristallins « réels »

L'extension de ces méthodes structurales en laboratoire à haute énergie est limité par l'inexistence de sources de rayons X performantes à haute énergie

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

- **Applications Spectroscopie en matériaux du Patrimoine :**
besoin d'analyse chimique et ordre local de corpus d'objets
- **Applications Spectroscopie en Science des Matériaux**
besoin d'analyse chimique et ordre local

Imageries par spectroscopie de fluorescence et diffraction

Ces analyses donnent la distribution spatiale des éléments chimiques : important en

- - médecine : injection d'ions dans le système vasculaire (angiographie)
- - matériaux industriels : défauts ou des inclusions
- - matériau du patrimoine : analyse des peintures (Pb, Sn, Hg, Fe, ...)

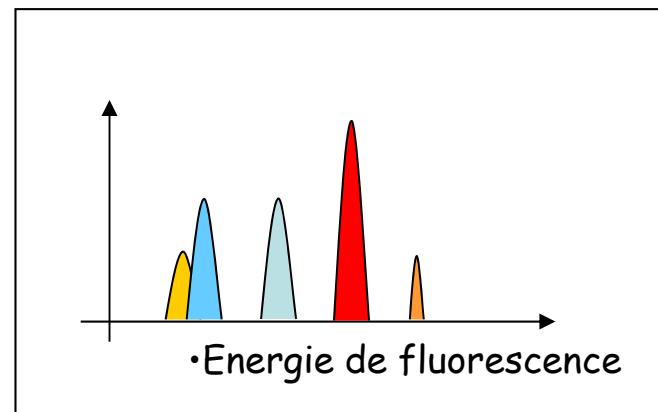
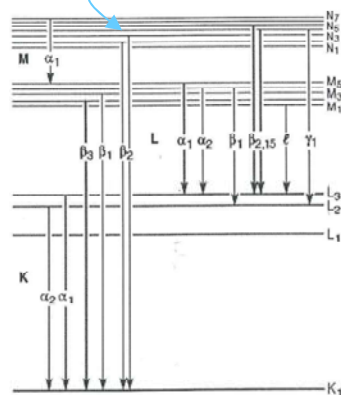
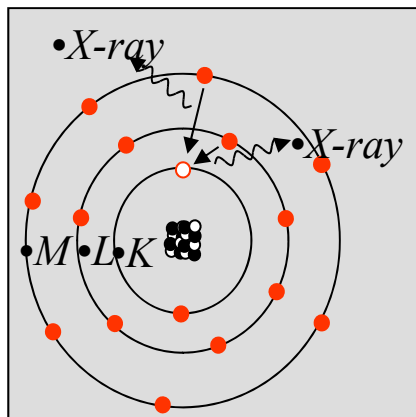
Fluorescence X (analyse chimique)

• Détecteur de fluorescence

• rayons X

Absorption d'un rayonnement de grande énergie (Cu: > 9keV)

Réémission d'un rayonnement d'énergie plus faible (Cu: 8keV), dépendante de la nature de l'atome excité.



• Crédit : M. Cotte LC2RMF-ESRF



Absorption X

(Sélectivité chimique + Ordre local)

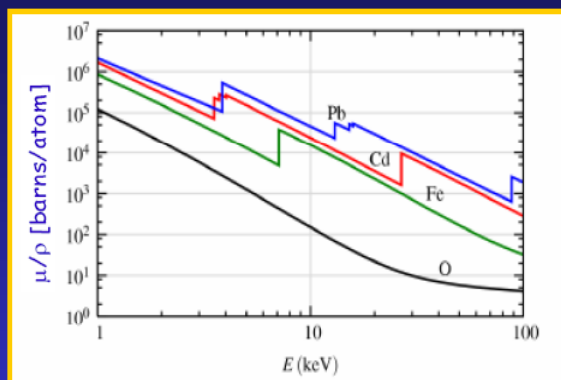
$$I = I_0 \exp[-\mu t]$$

Rayons X
Transmis



Rayons X
Incidents

The Absorption Coefficient μ

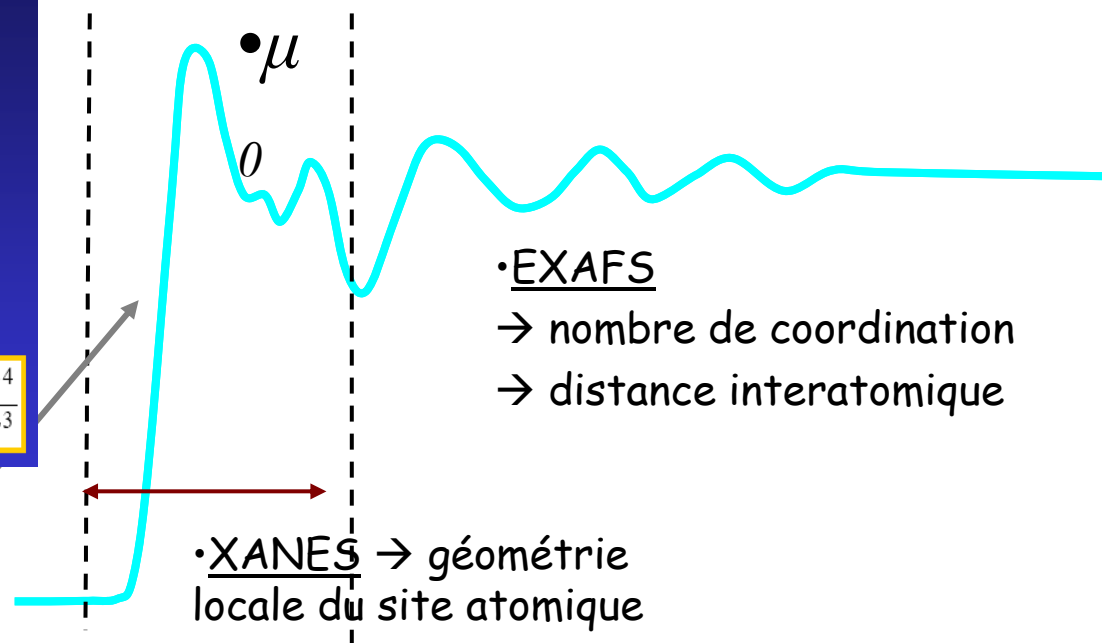


μ depends strongly on X-ray energy E and atomic number Z , and on the density ρ and atomic mass A

$$\mu \approx \frac{\rho Z^4}{A E^3}$$

• SEUIL XAS

- quantité d'élément sondé
- état d'oxydation



• EXAFS

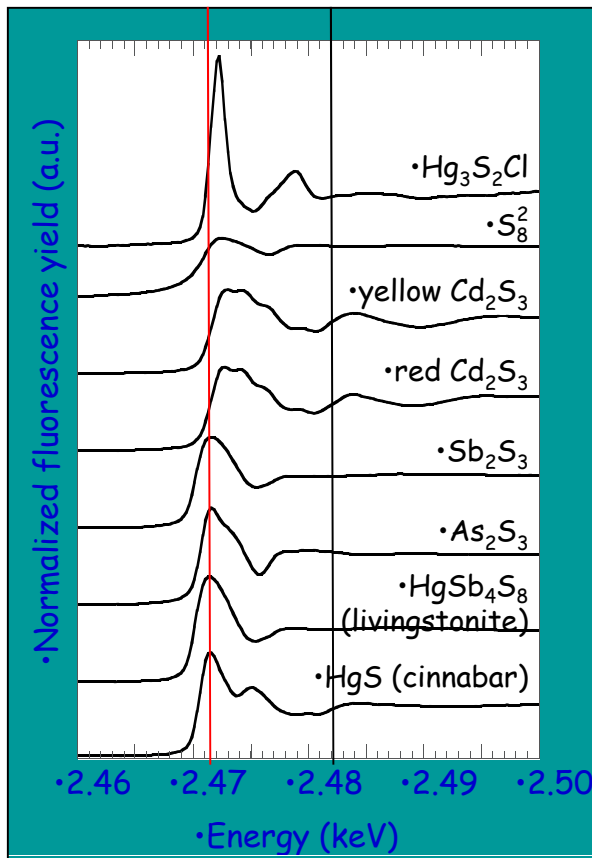
- nombre de coordination
- distance interatomique

• XANES → géométrie locale du site atomique

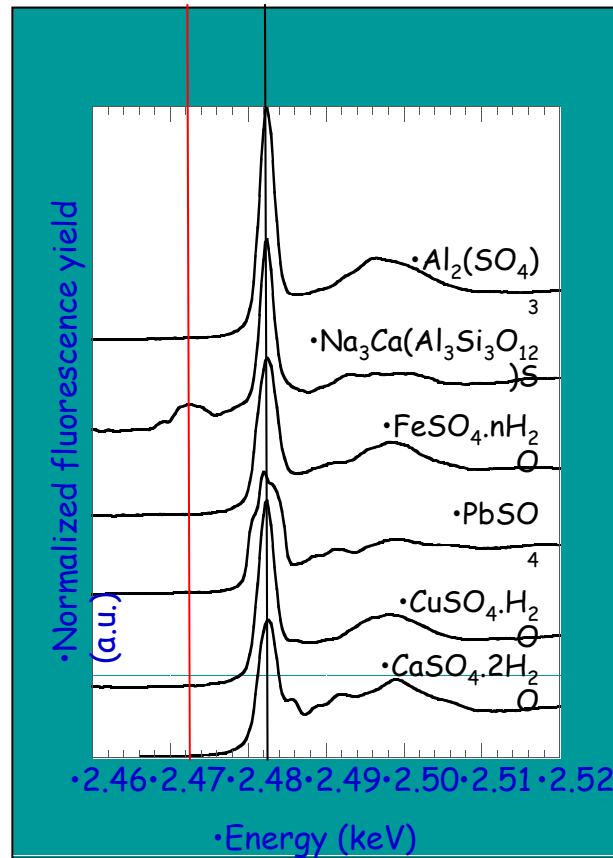
Absorption X

(Sélectivité chimique + Ordre local)

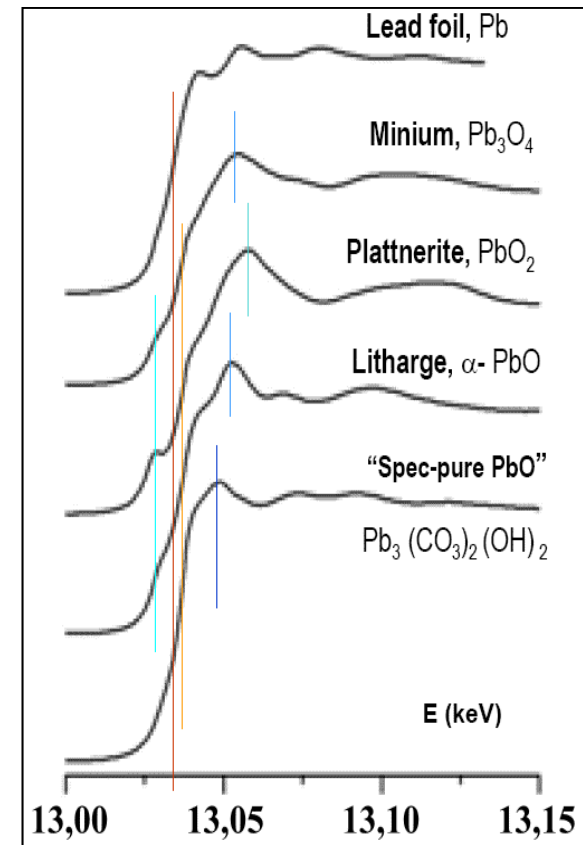
•Sulfures



•Sulfates



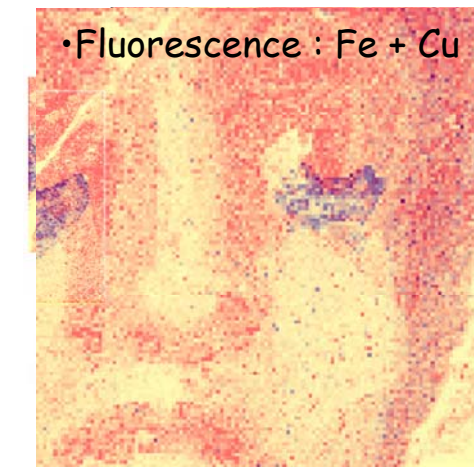
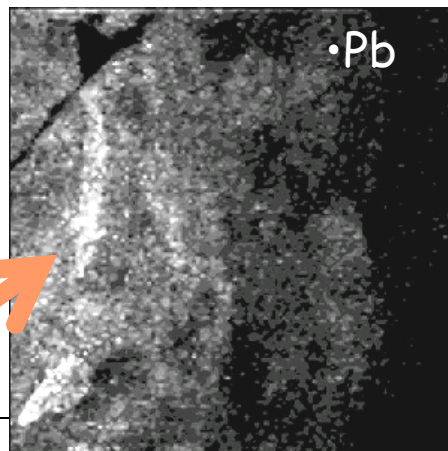
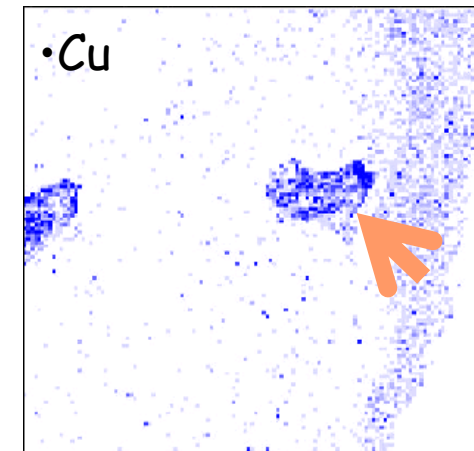
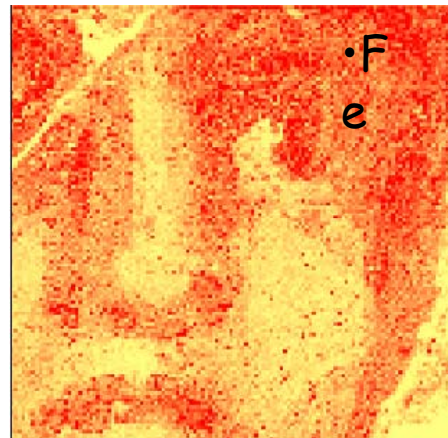
• Plomb



Cartographie 2D par fluorescence

Identification des phases & « carto xy » d'une fresque romaine

- Heterogeneous surface, bad sampling → large beam



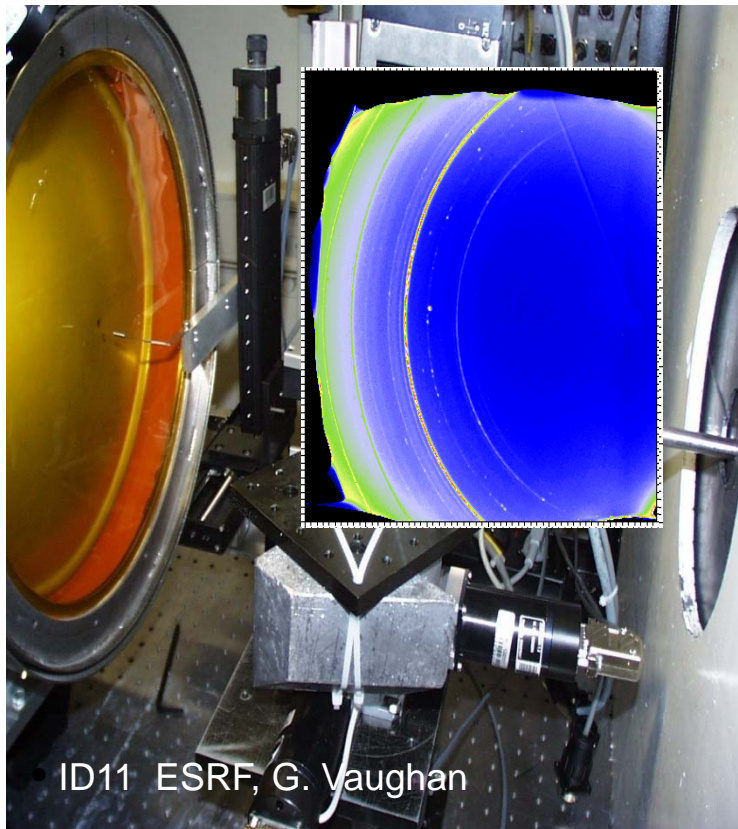
- Other micro-analyses :
- fluorescence analysis
PIXE, AGLAE, C2RMF

Quantitative analysis of phases with common chemical elements? : Diffraction

E. Dooryhee et al. Applied Physics A., Material Science & processing, (2005).

Cartographie 2D par diffraction

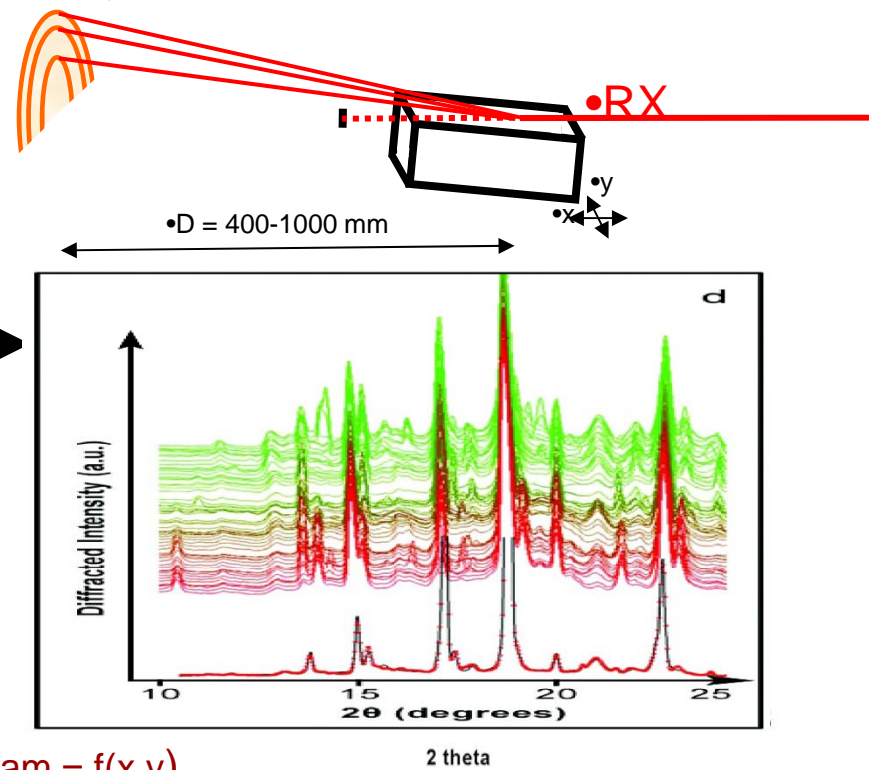
« carto xy » Diffraction d'une fresque romaine



$\lambda = 1 \text{ \AA}$, $0.1 \times 1 \text{ mm}^2$, 4000 images, 10 Go

semi-quantitative Rietveld analysis of every diagram = $f(x,y)$

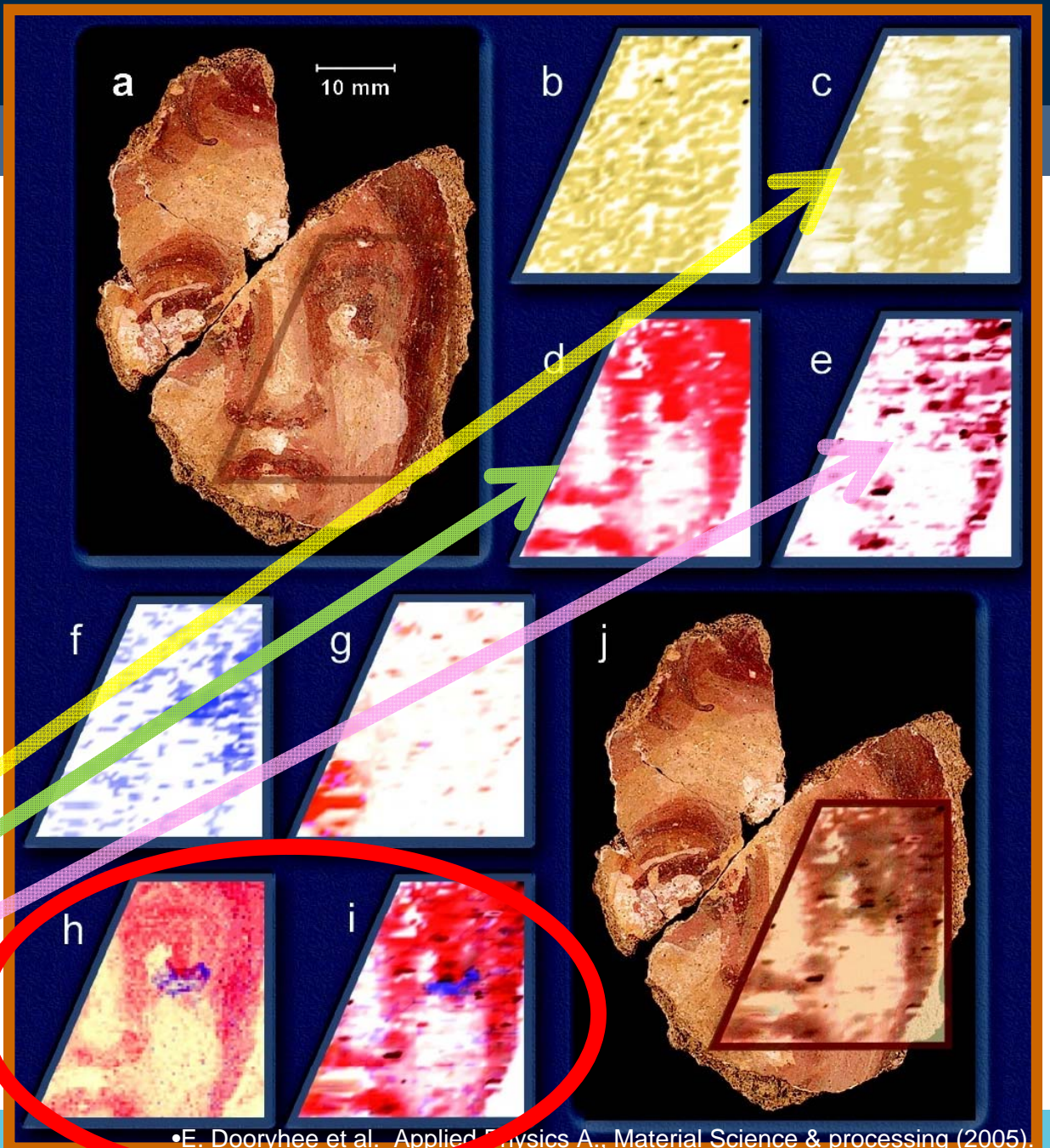
- semi-quantitative phase analysis
- preparation/deposition techniques
- analysis of a « buried » picture



Cartographie 2D

« carto xy » Diffraction d'une fresque romaine

- **identification** (non destructive) of pigments
 - technics of **color application & mixing**
(texture, granulometry, preparation sublayer)
 - restitution of the **painting** (ageing, interaction with the environment)
- | | |
|------------------------|------------------------|
| • a - Cupid's face | • f - Cu Egyptian Blue |
| • b - Ca sublayer | • g - Pb ageing pigm. |
| • c - Ca Calcite pigm. | • h - fluo PIXE map |
| • d - Fe Hemaetite | • i - diffraction map |
| • e - Fe Goetite | • j - reconstruction |



•E. Dooryhee et al. Applied Physics A., Material Science & processing (2005).

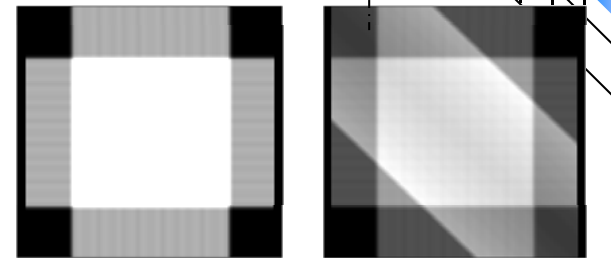
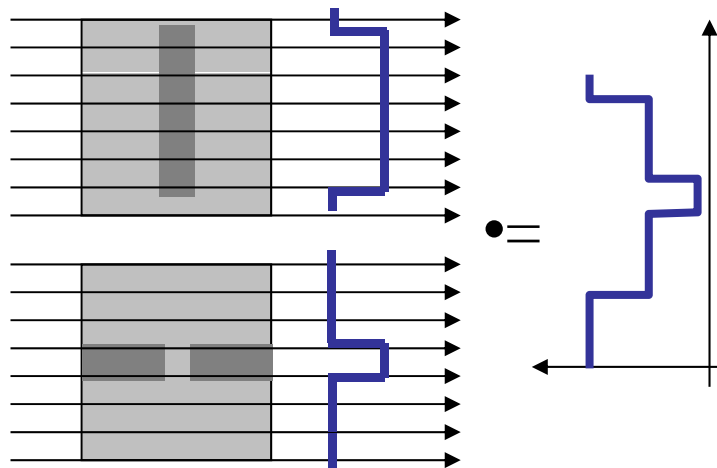
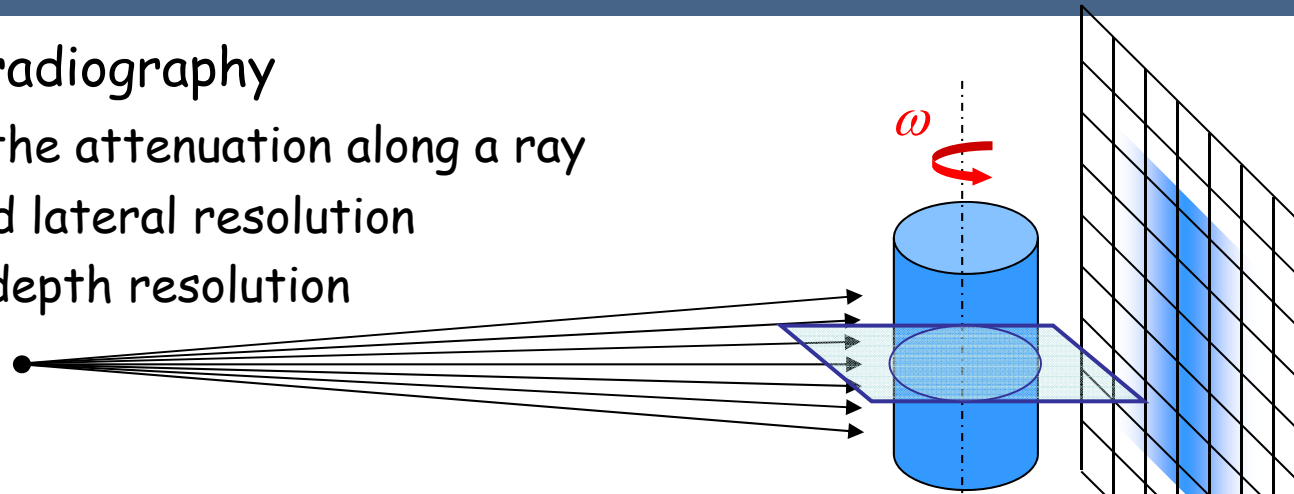
Imagerie 3D par tomographie X

- Absorption radiography

Sum of the attenuation along a ray

→ Good lateral resolution

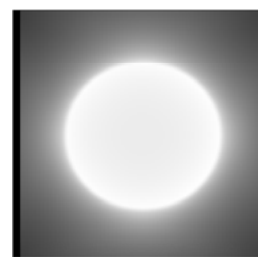
→ No depth resolution



•2 radiographs 0, 90 ° •3 radiographs 0, 45, 90 °



•30 radiographs



•1000 radiographs



•1000 radiographs

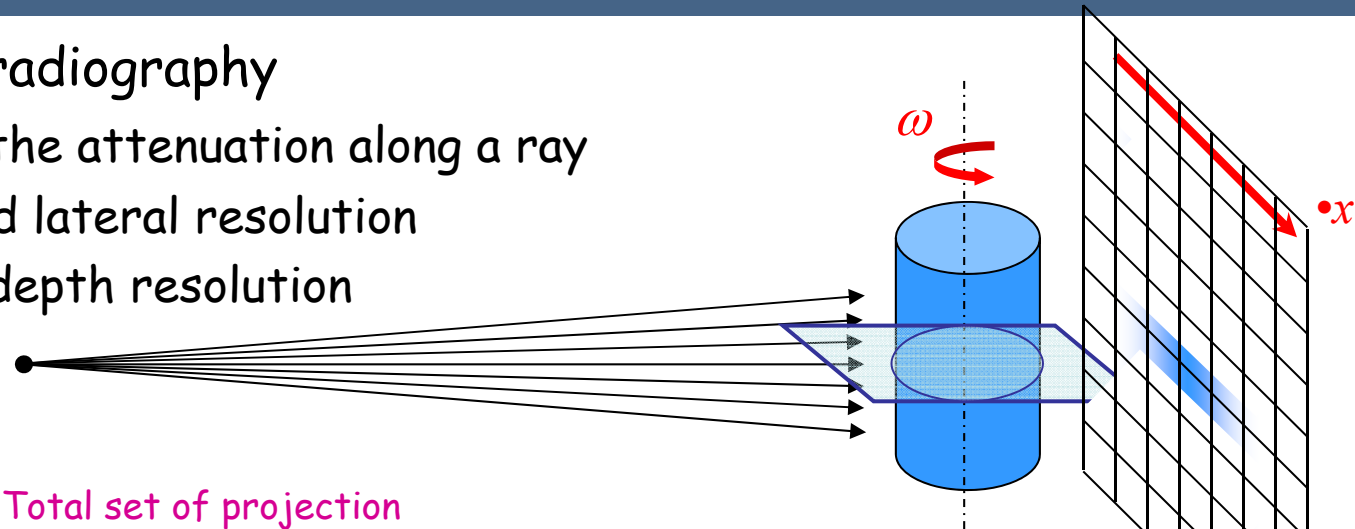
Imagerie 3D par tomographie X

- Absorption radiography

Sum of the attenuation along a ray

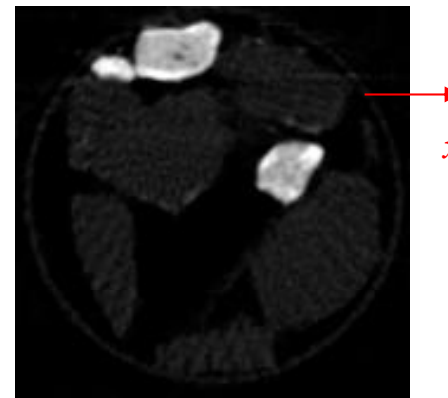
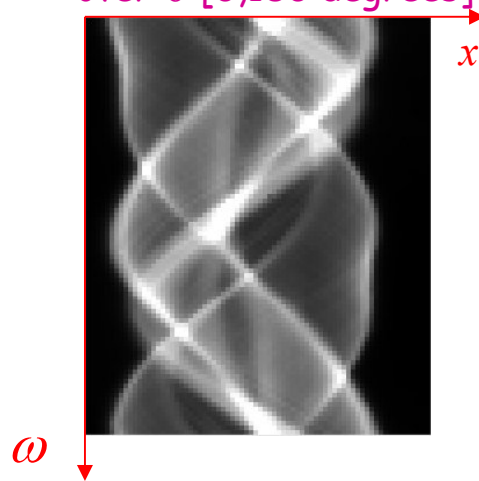
→ Good lateral resolution

→ No depth resolution



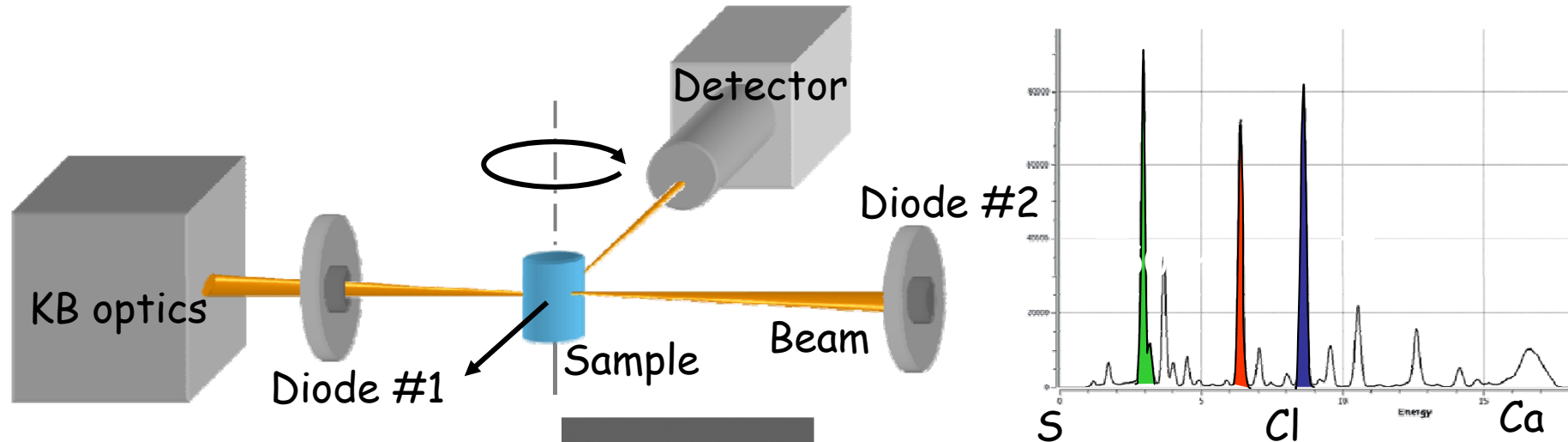
• Total set of projection

• over θ [0,180 degrees]

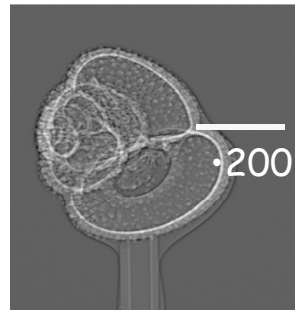


• Spatial distribution of the
• Absorption Coefficient

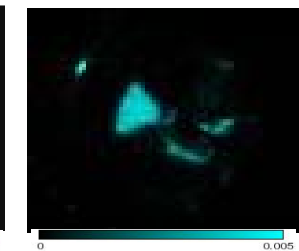
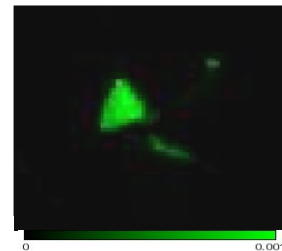
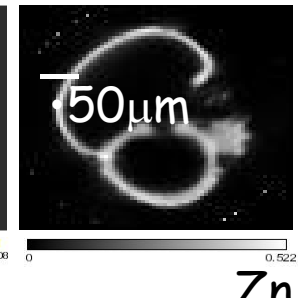
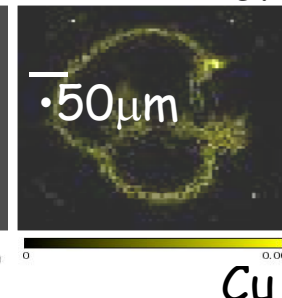
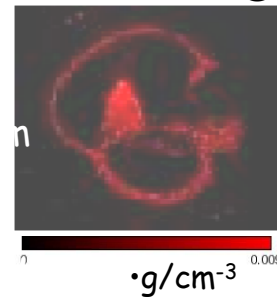
Imagerie 3D par tomographie X par fluorescence



- Collection of spectra at different position/angles
- 3D reconstruction for each element



• Radiograph
• *Globorotalia inflata*

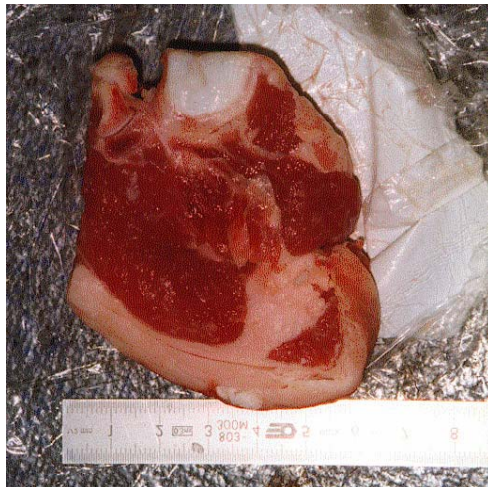


Shell example (*globorotalia inflata*)

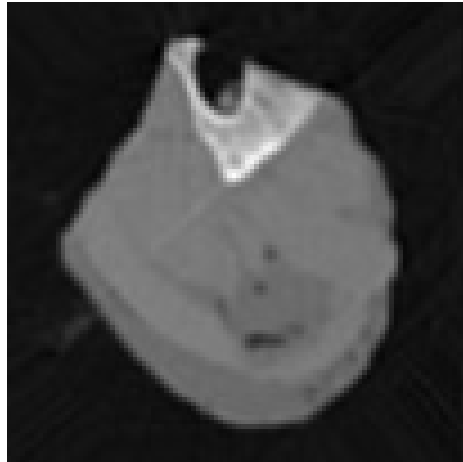
P. Bleuet ESRF, collaboration with ENS-Lyon

Imagerie 3D par tomographie X par diffusion

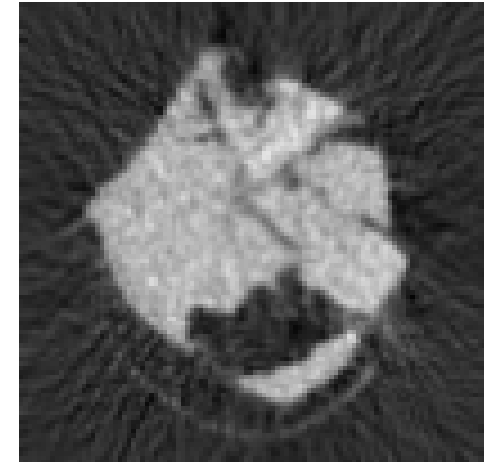
A pioneer **medical**
imaging application
of **diffraction**
tomography



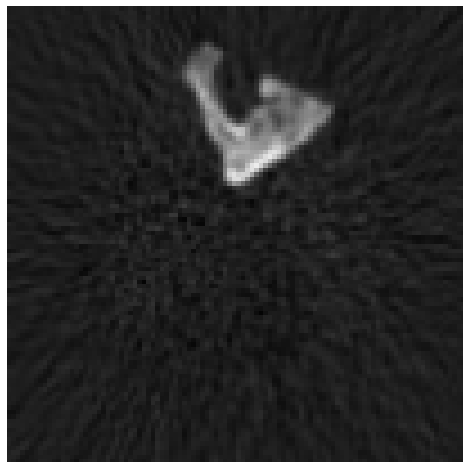
- Kleuker et al.
- Phys. Med. Biol. 43 (1998)



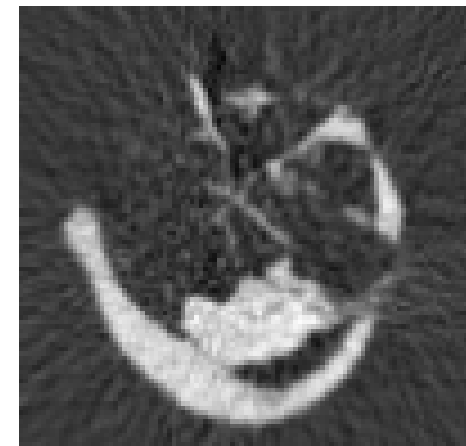
•Absorption slice



•Diffraction slice (muscle)



•Diffraction slice (bone)

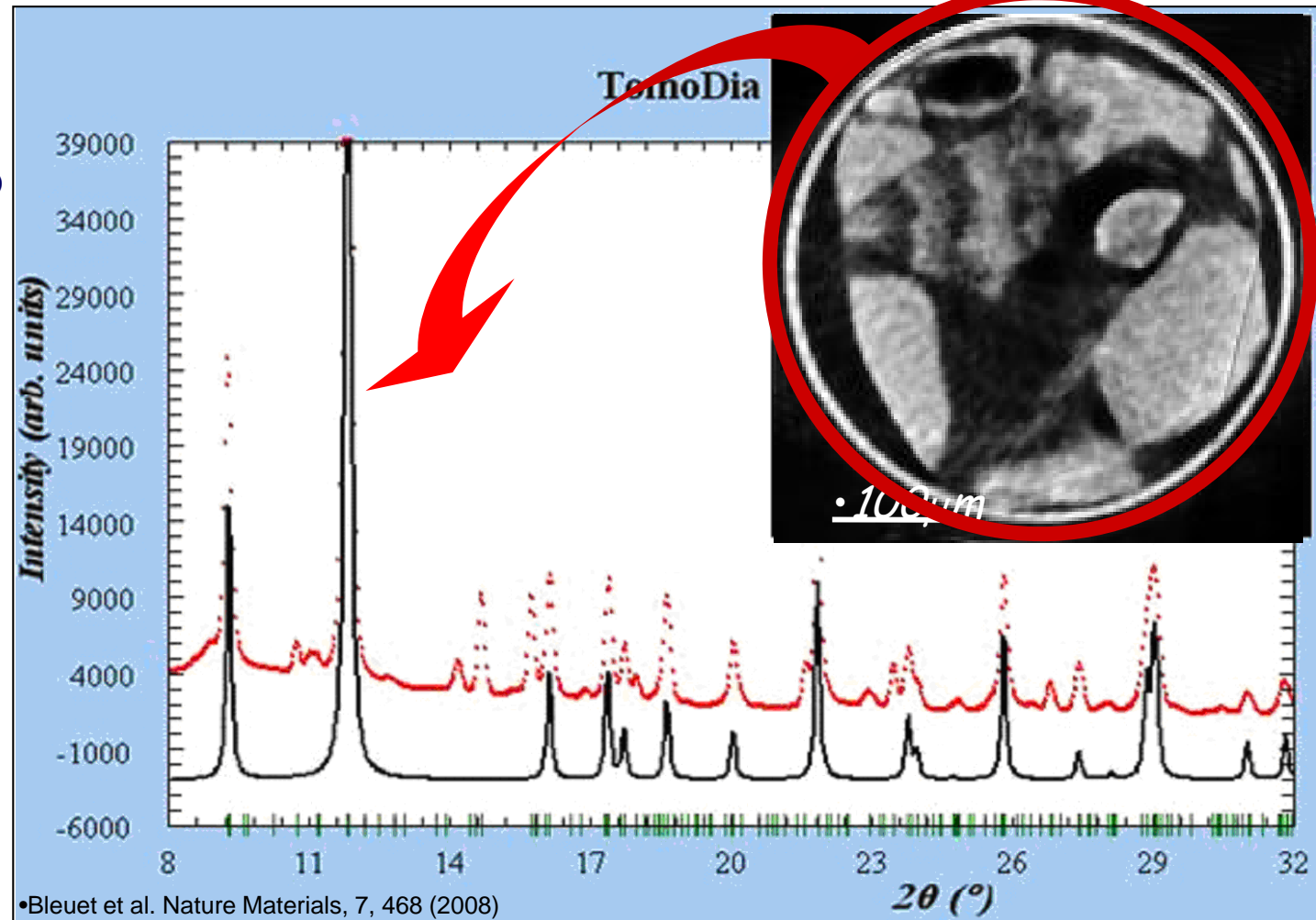


•Diffraction slice (fat)

Imagerie 3D par tomographie X par diffraction

Diff-Tomo reverse & direct analyses on Chalcedony-Fe-pigment powder

↪ Diff-Tomo image from the whole XRD diagram, measured chalcedony pattern

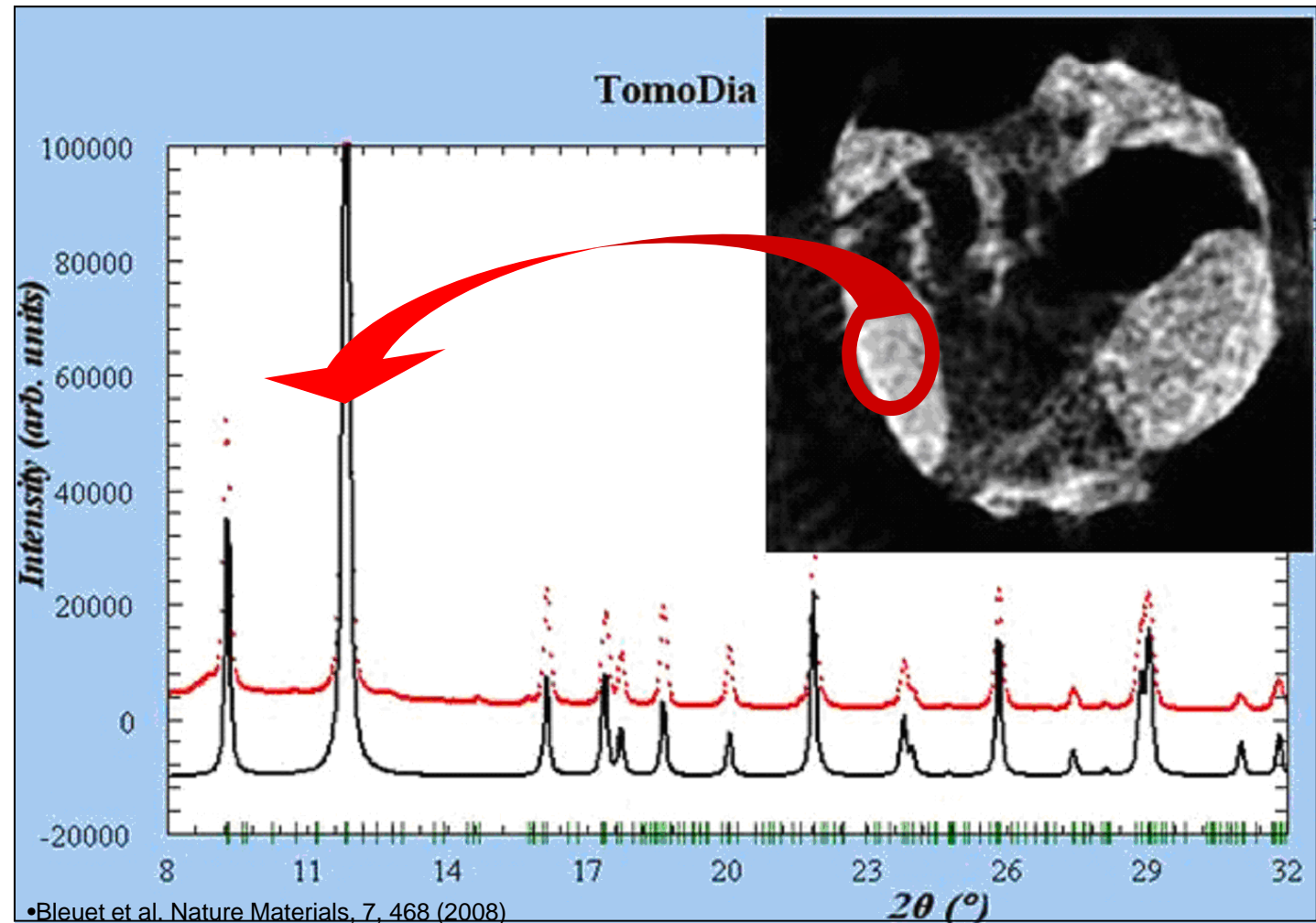


Imagerie 3D par tomographie X par diffraction

Diff-Tomo reverse & direct analyses on Chalcedony-Fe-pigment powder

↳ Diff-Tomo
image from
Chalcedony,

SiO₂,
trigonal P3121, $a = 0.49134$
nm $c = 0.54052$ nm

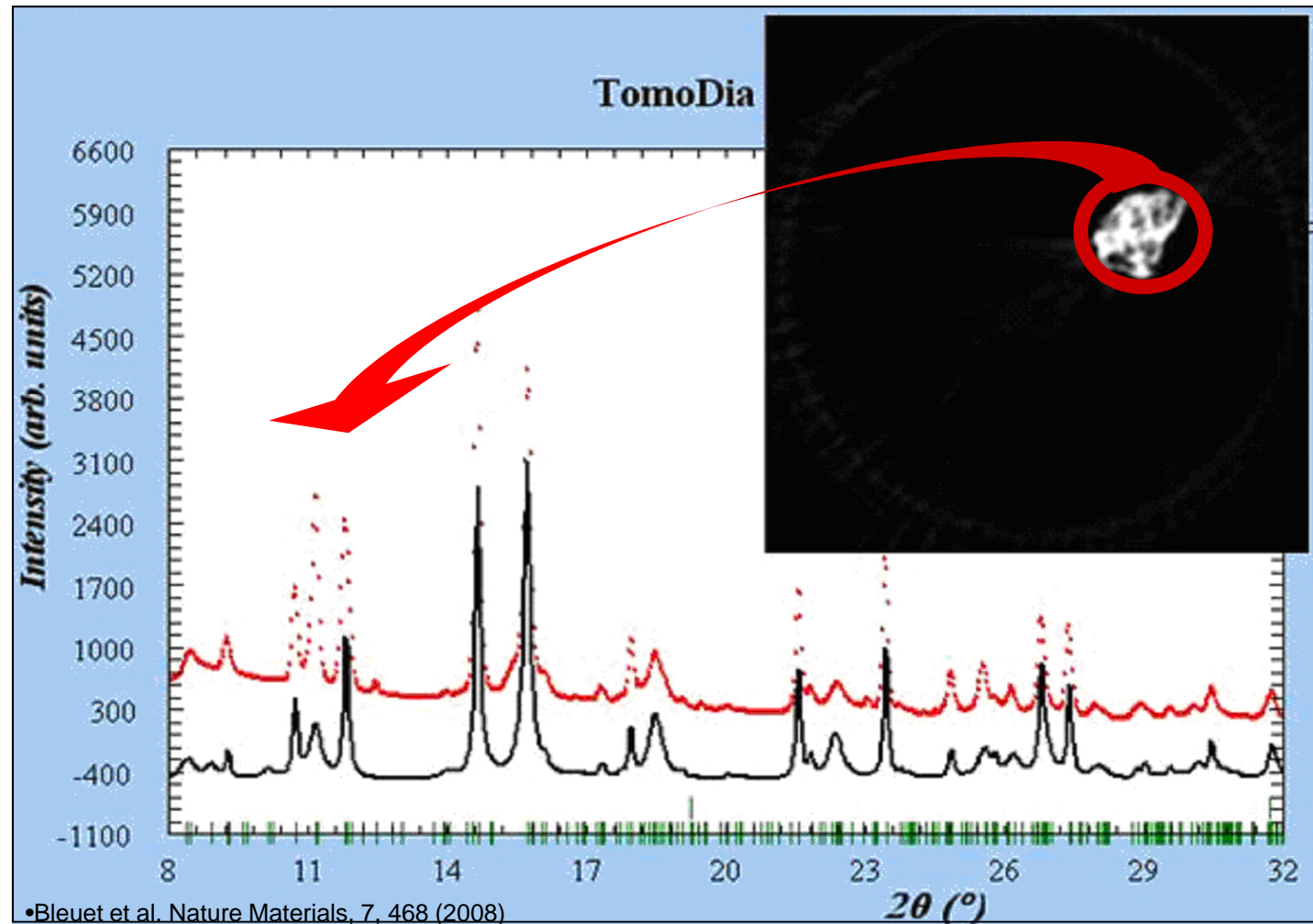


Imagerie 3D par tomographie X par diffraction

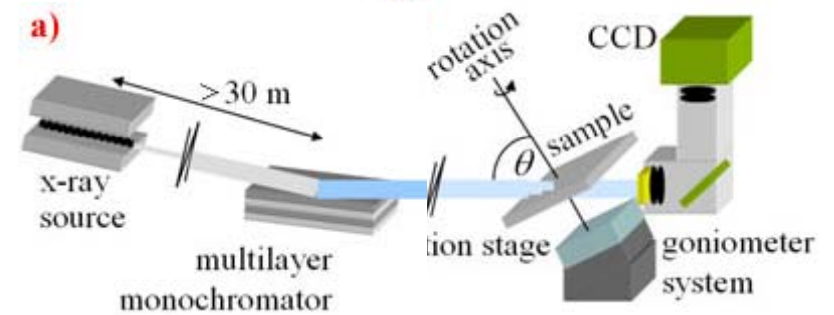
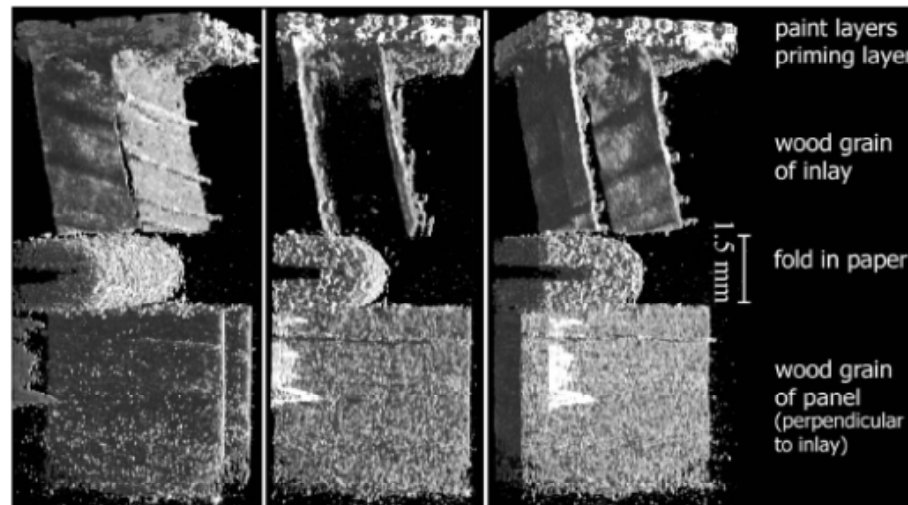
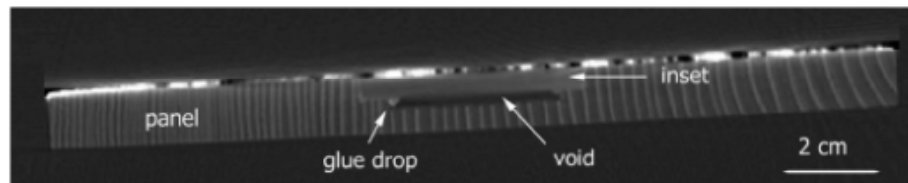
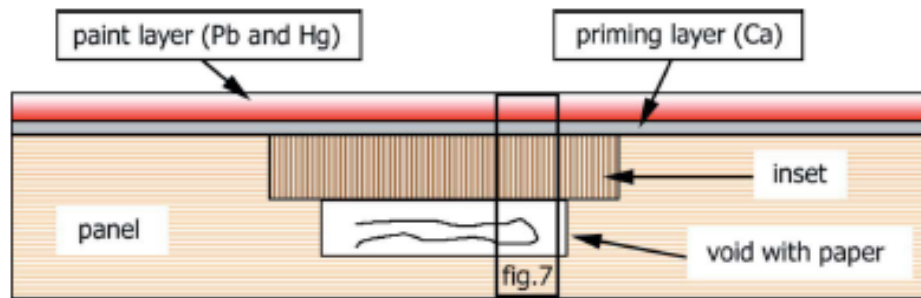
Diff-Tomo reverse & direct analyses on Chalcedony-Fe-pigment powder

↪ Diff-Tomo image from Hematite and Greenalite,

Fe_2O_3 , trigonal R-3c, $a = 0.50355 \text{ nm}$ $c = 1.3747 \text{ nm}$,
 $\text{Fe}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$, monoclinic C2/m, $a = 0.5390 \text{ nm}$ $b = 0.9336 \text{ nm}$ $c = 1.4166 \text{ nm}$, $b = 90.01^\circ$



Imagerie 3D par laminographie X



•J. Dik, T. Baumbach et al & ESRF

Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

- **Imageries 2D/3D sélectives Patrimoine, Matériaux et Médicales**
 - besoin d'un faisceau RX aux énergies optimales

- Tomographie d'absorption, de fluorescence, de diffraction

Technique courante en médecine : éléments chimiques de drogues (Lu, I , Xe, Pt, Gd)

Si mesure précise : accès direct à la concentration →

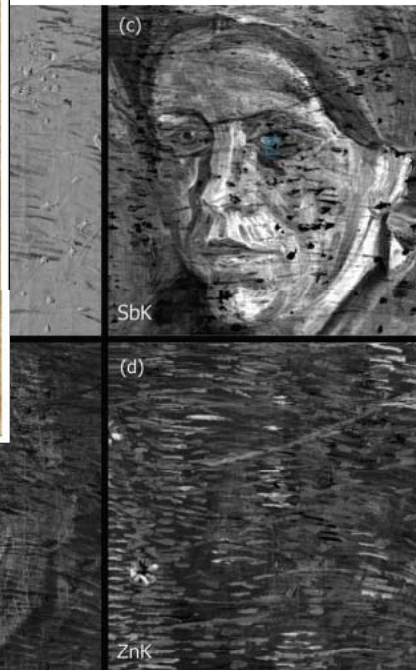
- pour comprendre une fonction et/ou une pathologie
- comprendre la pharmacocinétique et la biodistribution de drogues (thérapie)

- **Intérêts pour la paléontologie, le patrimoine, les matériaux, la médecine**

Imagerie 2D

« grand champ »

- Applications matériaux du Patrimoine :
 - besoin d'analyses multi-points d'objets



•Analyse d'une peinture de Vincent Van Gogh par Sy-XRF

•K. Janssens, J. Dik, et al. Anal. Chem, 2008

Imagerie 3D

par faisceau cohérent

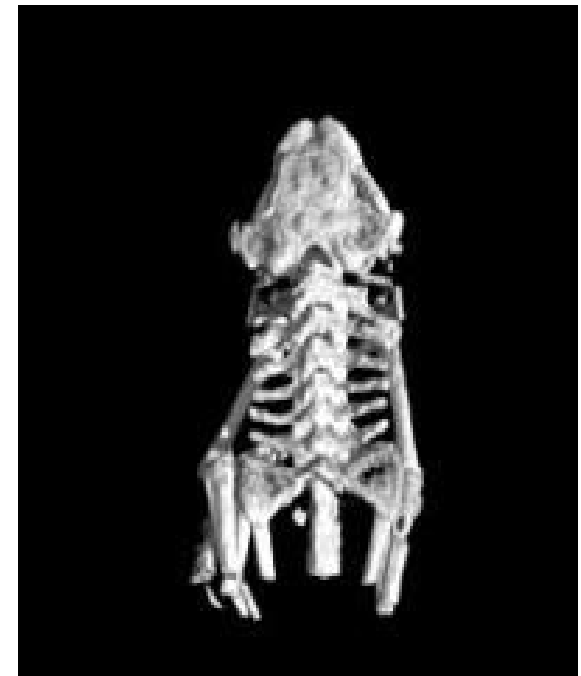
- **Imageries 2D/3D Médicales & Matériaux et Patrimoine**
besoin d'un faisceau cohérent + RX énergies optimales
- Imagerie de phase avec '**grating interferometer**'
- Microtomographie 3D

semble pas optimal pour les techniques imageries utilisant un cristal analyseur

Source compactes : Résolution temporelle de 5i/sec (dose ?) est possible

Tomographic image of the frog above was reconstructed from 60 transmission projections recorded over 360 degrees.

•Franz Pfeiffer & Lyncean Technologies, Inc.



Opportunités scientifiques issues de la réalisation d'une telle ligne d'application sur une source compacte de rayons X durs

- En **science du patrimoine**, des études précises **structurales** et d'analyses **chimiques** et non destructives sont indispensables sur de larges **corpus**.
- En **science des matériaux**, des études **structurales** monochromatiques à haute énergie pourraient se développer grâce au comblement du manque de telles sources de laboratoires et permettre l'extension de ces études
- En **thérapie médicale**, cette ligne devrait permettre plus facilement l'utilisation pour les cas cliniques des méthodes développées notamment à l'ESRF sur la ligne médicale qui a un accès présentement limité.

Le développement actuel dans les TGE (rayonnement synchrotron et neutrons) de nouvelles techniques d'**imagerie/tomographie**, permettra de les étendre à différentes échelles dans le **Médical, Patrimoine et Matériaux**

