



HAL
open science

Caractérisation élémentaire par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée

Wassila El Kanawati

► **To cite this version:**

Wassila El Kanawati. Caractérisation élémentaire par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée. Physique [physics]. Université de Grenoble, 2011. Français. NNT : 2011GRENY024 . tel-00769397

HAL Id: tel-00769397

<https://theses.hal.science/tel-00769397>

Submitted on 1 Jan 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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique Subatomique et Astroparticules**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Wassila El Kanawati

Thèse dirigée par **Johann Collot** et **Jean-Claude Angélique**
Co-encadrée par **Bertrand Pérot** et **Cédric Carasco**

préparée au sein du **Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache**
et au sein de **l'École Doctorale de Physique de Grenoble**

Caractérisation élémentaire par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée

Thèse soutenue publiquement le **13 juillet 2011**
devant le jury composé de :

M. Mourad Ramdhane

Professeur à l'UJF Grenoble, Président

M. Philippe Dessagne

Directeur de recherche à l'IPHC Strasbourg, Rapporteur

M. Bernard Berthier

Directeur de recherche à l'INP Orsay, Rapporteur

M. Johann Collot

Professeur à l'UJF Grenoble, Membre

M. Jean Claude Angélique

Professeur à l'ENSICAEN, Membre

M. Bertrand Pérot

Ingénieur-Chercheur au CEA Cadarache, Membre

M. Cédric Carasco

Ingénieur-Chercheur au CEA Cadarache, Membre



SOMMAIRE

INTRODUCTION.....	1
PARTIE I - ETAT DE L'ART	4
1 LES MESURES NUCLEAIRES NON DESTRUCTIVES.....	4
2 INTERROGATION NEUTRONIQUE	6
2.1 RADIOGRAPHIE COUPLEE NEUTRONIQUE ET PHOTONIQUE.....	8
2.2 DIFFUSION DES NEUTRONS RAPIDES.....	9
2.3 MESURE DES RAYONNEMENTS GAMMA INDUITS PAR INTERACTION NEUTRONIQUE	11
3 INTERROGATION NEUTRONIQUE AVEC MESURE DU TEMPS DE VOL.....	15
3.1 ANALYSE PAR DES IMPULSIONS COURTES DE NEUTRONS RAPIDES	15
3.2 TECHNIQUE DE LA PARTICULE ASSOCIEE	18
3.2.1 <i>Principe Physique</i>	18
3.2.2 <i>Applications de la technique de la particule associée</i>	19
3.2.3 <i>Le système EURITRACK</i>	28
4 RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 1.....	36
PART II – ELEMENTAL GAMMA-RAY SPECTRA DATABASE.....	41
1 INTRODUCTION	42
2 STUDY OF THE GAMMA-RAY PRODUCTION CROSS SECTIONS.....	43
2.1 NUMERICAL MODEL.....	43
2.2 CALCULATED GAMMA-RAY PRODUCTION CROSS SECTIONS	43
2.3 CALCULATED PULSE-HEIGHT SPECTRA	51
3 THIN VS. THICK TARGET SIMULATIONS.....	56
4 EXPERIMENT VS. SIMULATION.....	59
4.1 QUALITATIVE STUDY OF ELEMENTAL GAMMA RAY SPECTRA	60
4.2 QUANTITATIVE STUDY OF GAMMA RAY SPECTRA	70
4.2.1 <i>Water sample</i>	71
4.2.2 <i>Graphite sample</i>	74
4.2.3 <i>Melamine Sample</i>	75
4.2.4 <i>Sample of silicon dioxide (SiO₂)</i>	76
4.2.5 <i>Wood sample</i>	78
4.2.6 <i>Metallic samples</i>	78
5 TEST OF THE NEW DATABASE WITH REAL CARGO CONTAINERS	80
6 CONCLUSION	86
7 REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 2.....	87
PART III – CONVERSION OF COUNTS TO CHEMICAL RATIOS.....	88
1 INTRODUCTION	89
2 CALCULATION OF COUNT TO CHEMICAL RATIOS CONVERSION FACTORS	90
2.1 CALCULATION METHOD	90
2.2 SIMULATED SETUP	90
2.3 CONVERSION FACTORS IN DIFFERENT CARGO MATRIXES	91
3 INTRINSIC VALIDATION OF THE CONVERSION FACTORS	94
4 MATRIX EFFECTS IN CARGO CONTAINERS.....	97
4.1 BASIC PHYSICAL PHENOMENA	97
4.2 ESTIMATION OF SYSTEMATIC ERRORS.....	99
5 EXPERIMENTAL QUALIFICATION OF THE CONVERSION FACTORS.....	106
5.1 BARE THICK TARGETS.....	106

5.1.1	Wood target.....	106
5.1.2	Paper target	107
5.1.3	Melamine Target	108
5.1.4	Ammonium acetate target.....	110
5.2	THICK TARGETS IN THE IRON MATRIX	113
5.2.1	Wood target hidden in the iron matrix	114
5.2.2	Paper target hidden in the iron matrix.....	116
5.2.3	Melamine target hidden in the iron matrix.....	118
5.2.4	Ammonium acetate target hidden in the iron matrix.....	119
6	SIMULATION OF REALISTIC INSPECTIONS.....	120
6.1	EXAMPLES	121
6.2	SYNTHETIC SPECTRA.....	125
7	REAL TRUCKS INSPECTIONS	126
7.1.1	Truck transporting wood materials.....	126
7.1.2	Truck transporting clothes	127
7.1.3	Truck transporting paper	128
8	RECOMMENDATIONS FOR AN INDUSTRIAL SYSTEM.....	129
8.1	ANALYSIS OF ALL THE SIMULATED INSPECTIONS ACQUIRED WITH 32 TOP DETECTORS	130
8.2	ANALYSIS OF SIMULATED INSPECTIONS ACQUIRED WITH REFLECTION DETECTORS	132
9	CONCLUSION	135
10	BIBLIOGRAPHICAL REFERENCES OF CHAPTER 3.....	137
PARTIE IV – CARACTERISATION DES DECHETS RADIOACTIFS		139
1	INTRODUCTION	139
2	CARACTERISTIQUES DES COLIS.....	140
3	OPTIMISATION DU DISPOSITIF EXPERIMENTAL	141
3.1	FUT D’ENROBE BITUMINEUX	142
3.1.1	Réduction du bruit de fond dû à l’émission gamma et neutronique du colis.....	142
3.1.2	Optimisation de l’écran autour du générateur de neutrons	148
3.2	FUT DE BETON FIBRES CBF-C’2.....	150
3.2.1	Bruit de fond dû à l’émission gamma et neutrons du colis.....	150
3.2.2	Estimation du bruit de fond dû au générateur.....	153
3.2.3	Fût de 870 L.....	155
4	CARACTERISATION ELEMENTAIRE DE ZONES D’INTERET DANS LES COLIS	158
4.1	ETUDE DU FUT D’ENROBE BITUMINEUX	158
4.1.1	Zones d’intérêt situées à la périphérie du fût.....	158
4.1.2	Zones d’intérêt situées à mi-rayon du fût.....	162
4.1.3	Zones d’intérêt au centre du fût	164
4.2	ETUDE DU FUT DE BETON FIBRES CBF-C’2	166
4.3	ETUDE DU FUT DE 870 L DU CEA	170
4.3.1	Zones d’intérêt situées à la périphérie du fût.....	170
4.3.2	Zones d’intérêt situées à mi-rayon du fût.....	172
4.3.3	Zones d’intérêt situées au centre du fût.....	173
5	CONCLUSION	175
6	REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE 4.....	177
CONCLUSION GÉNÉRALE		179
APPENDIX 1 – MCNP ESTIMATORS.....		183
APPENDIX 2 – MCNP OUTPUT DATA ANALYSIS SOFTWARE.....		187
APPENDIX 3 – GAMMA SPECTRA OF THE LABR₃(CE) DETECTOR.....		193

Introduction

La caractérisation élémentaire de la matière par interrogation neutronique non destructive est aujourd'hui largement utilisée dans l'industrie nucléaire, mais aussi conventionnelle (contrôle de procédé, contrôles non destructifs, stérilisation des aliments...) et dans de nombreux autres secteurs comme la biologie, la médecine, la sécurité du territoire (lutte anti terroriste) et la non prolifération (contrôles des matières nucléaires).

Dans le contexte de la sécurité, la détection d'explosifs, de drogues et de produits de contrebande dissimulés dans des colis, bagages et conteneurs maritimes ou aériens, est un défi depuis plusieurs décennies, mais l'augmentation des préoccupations de sécurité ont conduit, notamment après les attentats du 11 septembre 2001, à un investissement important dans des technologies susceptibles de relever ce défi.

Les contrôles effectués actuellement reposent largement sur les systèmes d'inspection non intrusifs par radiographie X ou gamma. Néanmoins, si ces dispositifs fournissent des informations très précises sur la forme, la densité et la position des objets inspectés, ils ne permettent cependant pas d'accéder à leur composition chimique et donc de lever l'ambiguïté sur l'identification de matériaux de densité et de numéros atomiques voisins, comme la plupart des matières organiques illicites ou bénignes. Ces contrôles peuvent donc être améliorés par interrogation avec des neutrons rapides. La méthode utilisée repose sur la mesure des rayonnements gamma prompts émis à la suite de réactions neutroniques avec les noyaux des matériaux inspectés (la diffusion inélastique notamment). L'énergie des raies gamma émises en réponse à l'excitation des noyaux par les neutrons est caractéristique des éléments interrogés. En outre, avec la Technique de la Particule Associée (TPA), il est possible d'inspecter un volume spécifique à l'intérieur de l'objet, repéré au préalable par une technique d'imagerie photonique. Cette sélectivité spatiale permet d'améliorer nettement le rapport entre le signal utile de l'élément de volume d'intérêt et le signal parasite généré dans les matériaux environnants. La réaction de fusion ${}^3\text{H}({}^2\text{H},n){}^4\text{He}$ est utilisée pour produire un neutron de 14 MeV et une particule alpha, qui sont émis approximativement à 180° . Les rayonnements gamma induits par le neutron rapide sont détectés en coïncidence avec la particule alpha, laquelle est mesurée avec un détecteur à localisation pour déterminer la direction du neutron, dont le temps de vol est déduit du temps de coïncidence alpha-gamma. Ceci permet une détermination spatiale en trois dimensions du lieu de production des rayonnements gamma à l'intérieur de l'objet inspecté.

Le laboratoire de mesure nucléaire, où cette thèse a été effectuée, a participé très activement au développement du système EURITRACK (*EUROpean Illicit TRAfficking Countermeasures Kit*, projet européen du 6^{ème} PCRD réalisé entre 2004 et 2008), basé sur la TPA. Il permet de détecter de manière non intrusive des explosifs ou autres substances à risques dissimulées dans des conteneurs maritimes transportés par des camions. Un autre projet européen, Eritr@C (*European Riposte against Illicit TR@ffiCing*), mené de 2008 à 2010, a permis notamment d'accroître le retour d'expérience sur le système EURITRACK, en inspectant davantage de conteneurs réels, d'améliorer les réglages électroniques et la base de données de calibration, ainsi que le traitement des données et le logiciel de prise de décision. Une grande partie de cette thèse a été réalisée dans le cadre de ce projet Eritr@C.

La première partie du mémoire présente les différentes méthodes de mesure nucléaire non destructive basées sur l'interrogation neutronique, en particulier la TPA et ses diverses applications. Le dispositif EURITRACK y est décrit en détail.

Le second chapitre aborde l'amélioration des réglages électroniques et de la base de calibration du système EURITRACK. Pour limiter les pertes dans l'électronique, le seuil bas en énergie avait été fixé à 1,35 MeV au cours de la mise en service du système d'acquisition dans le cadre du projet EURITRACK. Dans le cadre du projet Eritr@C, ce seuil a été abaissé à 0,6 MeV pour mieux identifier certains éléments, tels que le fer, le plomb ou le zinc, qui présentent des raies gamma caractéristiques en dessous de 1,35 MeV. L'acquisition des spectres gamma de divers éléments a donc été réalisée (C, O, N, Na, Al, Si, Cl, Ca, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn et Pb) par interrogation de cibles épaisses de divers matériaux avec le faisceau de neutrons signés de 14 MeV du système EURITRACK. Ces spectres ont été traités pour éliminer les contributions parasites (coups dus aux neutrons diffusés vers les détecteurs, signal gamma d'éléments parasites dans les matériaux non purs, etc.) et permettre ainsi l'interprétation des données issues des inspections des conteneurs maritimes. Le spectre gamma à interpréter est en effet déconvolué sur la base de ces signatures gamma élémentaires. Cette base de données expérimentale a ensuite été testée en déconvoluant les spectres gamma de plus de 100 inspections réelles de conteneurs maritimes. Les mesures ont également été simulées avec le code de transport de particules MCNP, basé sur la méthode de Monte Carlo, afin de faciliter l'étalonnage, la compréhension des caractéristiques spectrales, les phénomènes physiques d'influence (modération neutronique, atténuation photonique), et de vérifier les bases données nucléaires utilisées dans les simulations numériques pour pouvoir utiliser cet outil avec confiance dans la suite de la thèse.

Le troisième chapitre concerne l'analyse des données issues de la déconvolution des spectres gamma des marchandises transportées dans les conteneurs maritimes. Le principal objectif du système EURITRACK est la détection d'explosifs ou de drogues, qui sont distingués des matières organiques bénignes par leurs proportions chimiques spécifiques en carbone, oxygène et azote. Toutefois, la détermination de ces proportions grâce aux rayonnements gamma détectés peut être fortement affectée par l'atténuation des photons et la modération neutronique dans les matériaux des conteneurs maritimes. Un ensemble de facteurs de conversion des fractions de coups mesurées (pour C, N, et O), obtenues par la déconvolution des spectres gamma, en proportions chimiques permettant la différenciation des substances organiques, a donc été établi avec le code MCNP. Ces facteurs ont été établis pour divers chargements (nature, densité) et positions de la zone d'intérêt (élément de volume interrogé) pour tenir compte de façon réaliste de la modération des neutrons et de l'atténuation des rayonnements gamma dans les marchandises transportées. Ces facteurs ont été validés expérimentalement avec des mesures de matériaux connus, puis testés avec des conteneurs maritimes réels. La combinaison des incertitudes aléatoires (fluctuations statistiques de comptage) et systématiques (sur les facteurs de conversion) fait l'objet d'une étude détaillée.

Le quatrième chapitre concerne une application qui entre dans le cadre d'une des principales activités du Laboratoire de Mesures Nucléaires du CEA Cadarache, à savoir la caractérisation des déchets radioactifs. Au-delà des méthodes de mesure qui permettent d'accéder au contenu radiologique des colis (spectrométrie gamma, mesures neutroniques passive et active), ce laboratoire développe également des méthodes de caractérisation physique (imagerie photonique) et élémentaire (interrogation neutronique avec détection des rayonnements gamma induits), notamment à des fins de contrôles de qualité (vérification de l'enrobage, du blocage, de la position des objets, etc.), de leur teneur en éléments toxiques ou

potentiellement réactifs, mais aussi pour la prise en compte des effets de matrice (atténuation des rayonnements dans les matériaux constitutifs des déchets). En particulier, en ce qui concerne la TPA, les possibilités de caractérisation élémentaire des matériaux constituant les déchets et les matrices de conditionnement sont examinées par simulation numérique dans cette dernière partie de la thèse. Les études menées portent sur trois familles de colis de déchets radioactifs significatives par leur nombre et leur nature : des fûts de 225 litres contenant des effluents radioactifs enrobés dans du bitume, des conteneurs de 1,2 m³ en béton armé avec des fibres contenant des déchets technologiques divers, et les conteneurs en acier de 870 litres contenant également des déchets divers bloqués dans un liant hydraulique. Le but de l'étude est de d'identifier les éléments présents dans des zones d'intérêt repérées au préalable par imagerie photonique, comme précédemment pour le système EURITRACK, telles que des objets ou hétérogénéités dans une matrice homogène. Un poste de caractérisation élémentaire par interrogation neutronique avec la TPA a été étudié par simulation numérique pour ces trois familles de colis. Des écrans et collimateurs, ainsi que la position des détecteurs gamma, ont été optimisés afin d'éviter leur saturation due à l'émission radiologique (gamma et dans une moindre mesure neutronique) des déchets radioactifs. Un écran autour du générateur de neutrons permet en outre de minimiser le bruit de fond dû à la source interrogatrice. Ensuite, les différents colis de déchets sont étudiés. Pour le fût d'enrobé bitumineux, l'identification d'une poche d'eau, d'un bloc de fer et d'un bloc d'aluminium positionnés en différents endroits à l'intérieur de la matrice, est testée par simulation numérique. Pour le colis de béton-fibres, la caractérisation élémentaire d'étuis contenant du PVC, de l'aluminium ou encore du fer est examinée, et pour le conteneur de 870 litres celle d'un bloc en aluminium et d'une enveloppe en fer remplie d'huile, simulant un bloc moteur a été aussi étudiée.

Partie I - Etat de l’art

1 Les mesures nucléaires non destructives

Le développement des techniques de mesure non destructive pour les besoins de contrôle, de caractérisation et d'analyse de matières radioactives ou non a commencé avec la naissance de la science et des technologies nucléaires. En effet, la propriété qu'a un matériau, dit nucléaire, d'émettre, dans la majorité des cas, des rayonnements caractéristiques spontanés ou provoqués, a fait de sa détection et de sa quantification, via certaines de ses émissions, une démarche naturelle. Cependant, l'établissement et l'utilisation des méthodes de mesure non destructive sont restés limités jusqu'aux années 1960 jusqu'au début de la montée en puissance de l'industrie nucléaire. Le contrôle, la surveillance et le suivi, aussi bien des matières radioactives que du bon fonctionnement des installations nucléaires se sont alors avérés essentiels et primordiaux pour les principales nations concernées. C'est ainsi que les techniques de caractérisation non destructive ont connu leur première réelle impulsion et n'ont cessé, depuis, d'être constamment améliorées et adaptées [1].

La mesure nucléaire non destructive est aujourd'hui largement utilisée dans l'industrie nucléaire et pratiquement dans toutes les étapes du cycle du combustible, de sa production jusqu'à la caractérisation des déchets nucléaires en passant par les mesures en réacteur et le contrôle de procédé dans les usines de retraitement des combustibles usés. Les mesures nucléaires non destructives se subdivisent en deux catégories : les méthodes passives et actives. Dans le cas des mesures passives, les signaux à détecter sont obtenus sans stimulation externe. Ils sont dus aux désintégrations radioactives et aux émissions spontanées de particules issues de l'objet à caractériser. Parmi les méthodes non destructives, ce sont la spectrométrie gamma et le comptage neutronique passif qui sont les plus employés dans le cycle du combustible. Quant aux méthodes actives, elles reposent sur la détection des émissions de particules provoquées à l'aide d'une source externe de rayonnements. Cette source peut être de différents types : source isotopique, générateur de neutrons, d'électrons ou de photons (accélérateur de particules). Les particules interrogatrices et celles détectées sont essentiellement des photons ou/et des neutrons. Ce sont des particules non chargées et donc à fort pouvoir de pénétration dans la matière, facilitant ainsi la détection et/ou la stimulation de rayonnements au sein de l'objet à contrôler. Les plus utilisées, ou étudiées, des méthodes actives sont les mesures de transmission photonique (dont l'imagerie) et parfois neutronique, la mesure des neutrons et dans certains cas des rayonnements gamma de fissions induites par interrogation neutronique, ou éventuellement par des photons de haute énergie (photofission), la mesure des rayonnements gamma prompts ou retardés induits par interrogation neutronique, voire par des photons de haute énergie, ou encore la fluorescence X induite par des sources de rayonnements gamma ou X.

Les mesures nucléaires non destructives sont aussi utilisées dans l'industrie conventionnelle, notamment pour l'analyse en ligne du ciment et du charbon [2] [3], l'étude de la corrosion des éléments métalliques de structure du béton en détectant la présence de chlore [4], dans de très nombreux secteurs (climatologie, médecine, biologie...), ainsi que dans le domaine de la sécurité du territoire et de la non prolifération (*Homeland Security and Safeguards*) [5] [6].

La détection d’explosifs, de drogues et les plus généralement de produits de contrebande dissimulés dans des colis, bagages et conteneurs maritimes ou aériens, est un défi depuis plusieurs décennies, mais l’intensification de la menace terroriste et l’augmentation des préoccupations de sécurité ont conduit, notamment après le 11 septembre 2001, à un investissement important dans des technologies susceptibles de relever ce défi.

Les contrôles effectués actuellement reposent largement sur les systèmes d’inspection non intrusifs par imagerie X ou gamma. Les avantages de cette technologie sont une grande fiabilité, un faible coût de production en utilisant des tubes à rayons X jusqu’à 450 keV ou des accélérateurs linéaires d’électrons (LINAC) couplés à des cibles de conversion par rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) pour des énergies supérieures à 1 MeV. L’intensité élevée de ces sources et le grand pouvoir de pénétration des photons de haute énergie permettent un balayage rapide des objets. De plus, l’existence de détecteurs rapides et efficaces et la possibilité de réaliser des blindages photoniques efficaces permet de limiter la dose délivrée aux opérateurs. Enfin l’absence d’activation des objets contrôlés avec les énergies photoniques utilisées, généralement inférieures à 10 MeV, est aussi un des grands avantages de cette technologie.

La radiographie de transmission à haute résolution est la technique la plus courante, souvent complétée par la collecte de deux images à des énergies différentes afin d’affiner l’identification des matériaux. Cependant l’information supplémentaire apportée reste limitée à une classification grossière des matériaux : organiques, inorganique/métalliques et mixtes, ou encore faible numéro atomique (Z), moyen et élevé. En outre, la tomодensitométrie est utilisée pour le balayage rapide des bagages en soute dans les aéroports pour produire des images en 3 dimensions où la mesure de la densité du matériau fournit une signature utile pour certaines matières explosives [7] et [8]. La rétrodiffusion des rayons X [9] peut également être utilisée pour discriminer les matières organiques et inorganiques à proximité de la surface d’un objet, par exemple pour localiser des armes ou des explosifs cachés dans un véhicule ou un bagage. Néanmoins, ces dispositifs ne fournissent essentiellement des informations sur la forme, la position, la densité et le numéro atomique moyen des objets inspectés, et ne permettent pas d’obtenir la composition chimique de ces derniers. Plusieurs matériaux suspects, dont les explosifs, ont une densité proche de celle de matières inoffensives et peuvent se présenter sous diverses formes. Seule l’expérience du contrôleur et des informations complémentaires permettent alors d’identifier des explosifs. La décision d’une inspection manuelle d’un conteneur de transport n’étant pas sans conséquence économique (coûts de manutention et d’immobilisation de la marchandise), il peut être utile d’apporter des informations complémentaires sur la composition chimique des marchandises.

La plupart des matières organiques se composent principalement d’éléments légers tels que l’hydrogène, le carbone, l’azote et l’oxygène (H, C, N, et O). La plupart des explosifs et des drogues illicites se composent presque exclusivement de ces éléments, qui plus est dans des proportions relatives relativement distinctes de celles de la plupart des matériaux bénins [6], [10]. Les explosifs sont en effet caractérisés par des proportions relativement élevées d’azote et d’oxygène et des proportions relativement faibles de carbone et d’hydrogène. D’autre part, les drogues sont généralement riches en hydrogène et en carbone mais pauvres en azote et en oxygène, voir Figure I - 1.

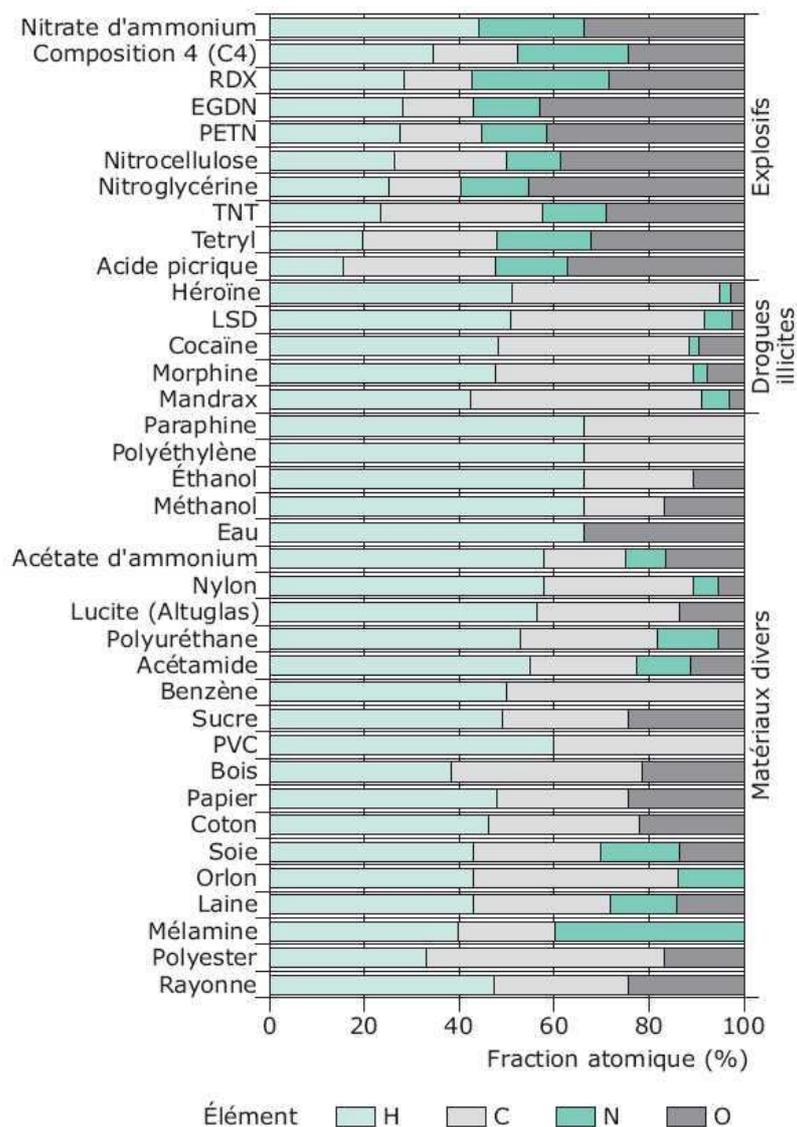


Figure I - 1. Compositions chimiques de diverses matières organiques bénignes, légales comparées à celles de quelques explosifs et drogues [10].

Une caractérisation élémentaire, par exemple via la détection de rayonnements induits par interrogation neutronique, peut donc permettre une meilleure identification des matières inspectées. Des techniques d'absorption résonnante et de fluorescence par interrogation photonique ont également été étudiées [11] [6] [12], mais elles ne sont pas encore arrivées à maturité. Les paragraphes suivants présentent les différentes méthodes d'interrogation neutronique utilisées ou en cours de développement.

2 Interrogation neutronique

Les neutrons sont des sondes efficaces pour la caractérisation élémentaire. Les neutrons interagissent de manière unique en fonction de leur énergie et de la structure du noyau cible. La plupart des nucléides présente ainsi des sections efficaces spécifiques en termes de dépendance énergétique et angulaire. En particulier, les principaux éléments organiques peuvent être différenciés par leurs sections efficaces totales, élastiques et inélastiques, et se traduit par une modification des spectres en énergie des neutrons ou par les énergies des

rayonnements gamma produits lors de collisions inélastiques ou de captures radiatives. Le spectre en énergie et la distribution spatiale des neutrons transmis [13] et diffusés [14] ou la détection des rayonnements gamma induits [15], peuvent être utilisés pour fournir des informations sur les types, les quantités et les positions des éléments interrogés. Dans la plupart des scénarios, l'objet suspect recherché peut ne constituer qu'une petite fraction de la masse totale et du volume interrogés. Cela signifie qu'un système de détection doit être en mesure de localiser l'endroit où l'interaction des neutrons se produit afin de construire une carte des compositions des matériaux en fonction de leur position. Historiquement, cela a été l'aspect le plus difficile à résoudre.

L'interrogation neutronique peut permettre de caractériser plusieurs types de matériaux : des matériaux ordinaires (caractérisation chimique) et des matériaux nucléaires (caractérisation des isotopes fissiles). La quantification non destructive de la masse de noyaux lourds des matériaux nucléaires, au moyen de la mesure neutronique active, repose sur leur stimulation par la réaction de fission et la mesure des neutrons et/ou des rayonnements gamma qui en découlent. Cela suppose une source de particules interrogatrices (source isotopique, générateur de neutrons, accélérateur linéaire d'électrons avec une cible de Bremsstrahlung...), une enceinte de thermalisation destinée à ralentir et à maintenir les neutrons interrogateurs à des énergies où les sections efficaces de fission associées aux isotopes recherchés sont optimales et, enfin, un dispositif de détection des neutrons. Le signal neutronique ou gamma de fission est directement lié à la masse de matière qui a fissionné. Sa connaissance permet, étalonnage à l'appui, de quantifier cette masse.

Ce mémoire de thèse concerne la caractérisation chimique des matériaux non nucléaires. Toutes les techniques d'inspection nucléaire sont basées sur les "signatures" spécifiques des neutrons ou des rayons gamma qui dépendent du processus nucléaire utilisé. Ces différents processus sont schématisés en Figure I - 2 et développés dans les paragraphes suivants.

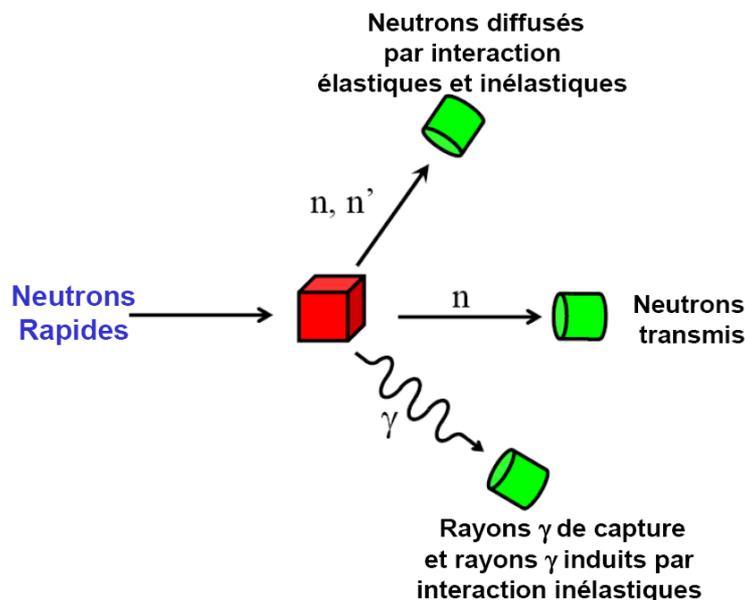


Figure I - 2. Rayonnements transmis, diffusés ou générés lors des interactions des neutrons avec la matière.

2.1 Radiographie couplée neutronique et photonique

La radiographie neutronique avec des neutrons thermiques peut être utilisée dans le domaine du contrôle non destructif industriel avec des réacteurs de recherche du CEA (contrôle des dispositifs pyrotechniques dans l’aérospatiale sur le réacteur ORPHEE [16]), à Budapest ou en Afrique du Sud (contrôle des pales d’hélicoptère [17] [18]), ou dans celui de l’archéologique [19]. Ce sont les propriétés d’interactions des neutrons thermiques (voire froids) avec les éléments légers (H, C, N, O...) qui sont exploitées car elles offrent un contraste plus important pour certaines matières (dispositifs pyrotechniques, résines, joints d’étanchéité, oxydes, corrosion, humidité...) que le contrôle non destructif avec les rayons X, davantage sensible aux éléments de numéro atomique plus élevés (métaux). Des applications avec un tube scellé générateur de neutrons de SODERN peuvent aussi être citées [20] [21] mais elles offrent une qualité d’image moindre en raison d’un flux neutronique plus faible de plusieurs ordres de grandeur (typiquement $5.10^4 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ pour le générateur SODERN et $10^8 \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$ pour un réacteur) et d’un rapport de collimation moindre (longueur de collimation sur diamètre d’entrée dans le réacteur).

Dans le domaine de la sécurité, la nécessité de mesurer des objets volumineux implique l’utilisation de neutrons rapides. L’information apportée par radiographie X ou gamma peut ainsi être complétée par une radiographie neutronique, comme dans le système de double transmission neutronique et photonique développé par CSIRO (Commonwealth Science and Industrial Research Organisation) [22] qui utilise un tube scellé générateur de neutrons de 14 MeV et les photons de 1.173 et 1.332 MeV émis par une source de ^{60}Co . Le système de détection se compose de 700 scintillateurs plastiques de dimension $20 \times 20 \text{ mm}$ chacun pour la détection des neutrons et de 350 détecteurs de rayonnements gamma CsI(Tl) de dimension $10 \times 10 \text{ mm}$ chacun [23]. Dans ce cas, le signal exploité est le ratio des atténuations neutronique et photonique selon la relation suivante :

$$R = \frac{\mu_n}{\mu_\gamma} = \frac{\ln(I_n/I_n^0)}{\ln(I_\gamma/I_\gamma^0)}$$

où

- μ_n et μ_γ sont les coefficients d’atténuation massique neutronique et photonique, respectivement,
- I_n^0 et I_γ^0 sont les intensités des signaux enregistrés sans objet par les détecteurs neutroniques et gamma, respectivement,
- I_n et I_γ sont ces mêmes intensités mesurées en transmission en présence de l’objet à caractériser.

Le rapport R diminue fortement avec le numéro atomique Z [23]. Cette dépendance résulte de la différence des coefficients d’atténuation pour les neutrons et les photons. Les neutrons sont diffusés principalement par les matériaux à faible Z, en particulier l’hydrogène, tandis que les photons sont davantage atténués par les matériaux de Z élevé. Le résultat est que le rapport R pour l’hydrogène est d’environ 4, tandis que cette valeur pour le carbone, l’azote et l’oxygène n’est que légèrement supérieure à l’unité, et que R décroît ensuite régulièrement avec Z, voir Figure I - 3. La matière organique, de forte teneur en hydrogène, peut donc être effectivement distinguée des matériaux inorganiques comme les métaux.

Un inconvénient de cette approche est qu'elle ne permet pas de distinguer spécifiquement l'azote, du carbone et de l'oxygène. Cette technique repose sur la densité relativement élevée des explosifs afin de les distinguer des matières organiques bénignes. Le contraste est cependant limité quand on interroge des objets volumineux car les valeurs observées du rapport R correspondent à l'intégration tout au long de l'objet interrogé, comme dans toutes les méthodes de transmission.

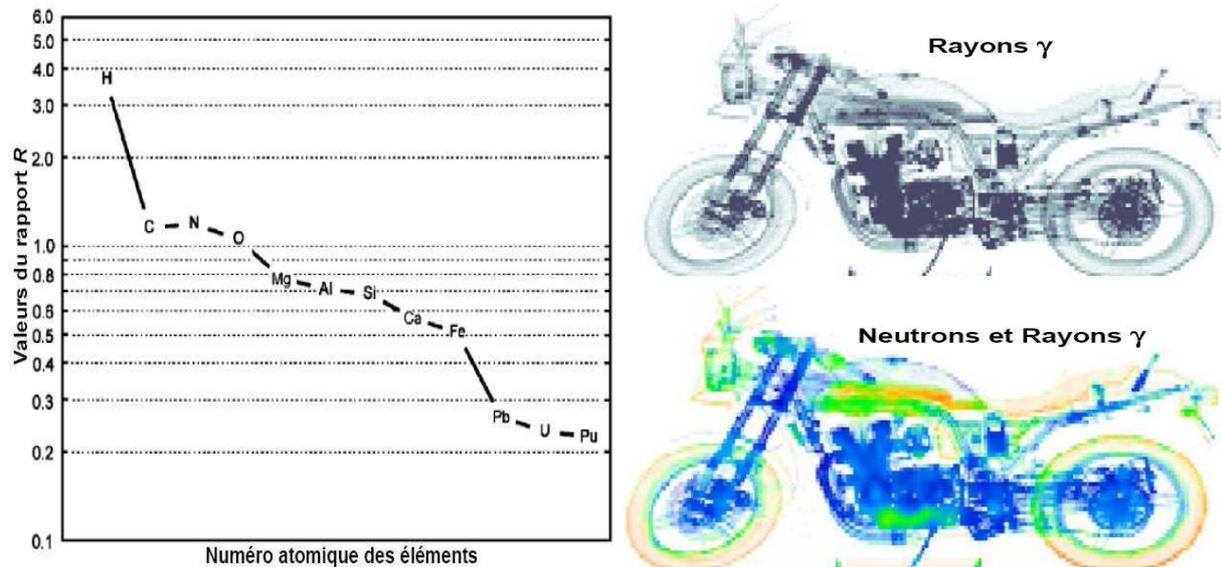


Figure I - 3. Ratio R des coefficients d'atténuation massique des neutrons de 14 MeV et des rayonnements gamma du ^{60}Co pour une gamme d'éléments allant de l'hydrogène au plutonium et exemple de comparaison entre une radiographie par des rayonnements gamma seuls et par des neutrons couplés avec des rayons gamma sont présentés sur la Figure I - 3 [23].

2.2 Diffusion des neutrons rapides

L'analyse par la diffusion des neutrons rapides est une approche alternative dans laquelle les neutrons diffusés par le matériau interrogé sont détectés. Le type, la quantité et les positions des nucléides responsables de la diffusion sont déterminés à partir des mesures de la dépendance angulaire, de l'intensité et de l'énergie des neutrons diffusés [24] [25].

L'échantillon est interrogé avec un faisceau de neutrons mono-énergétiques et les neutrons diffusés par interaction élastique et inélastique sont mesurés à de faibles angles (vers l'avant) et en rétrodiffusion (vers l'arrière), voir Figure I - 4. Les mesures acquises par ces détecteurs sont combinées pour former des « signatures de diffusion » caractéristiques de la nature des nucléides interrogés. Ces signatures sont déconvoluées pour déterminer les fractions atomiques présentes dans l'échantillon et par suite sa composition élémentaire [14], voir Figure I - 5. L'identification des matériaux spécifiques à partir des fractions atomiques mesurées peut être facilitée par l'introduction d'une méthode d'ajustement basée sur le principe des moindres carrés en comparant ces fractions avec celles de matériaux connus apprises lors d'un étalonnage.

Cette technique permet de mesurer les fractions atomiques des éléments dans un échantillon de petite taille (0,2 à 0,8 kg) d'un matériau organique (éléments H, C, N, et O) avec une précision de quelques pourcents, ce qui permet d'identifier de façon fiable des explosifs ou des drogues [14]. Une caractéristique importante de cette technique est qu'elle mesure les

éléments essentiels pour la détection de la contrebande (H, C, N et O) avec une sensibilité similaire. Cette technique n’est cependant pas applicable aux objets cachés dans des conteneurs volumineux car elle manque de sélectivité spatiale.

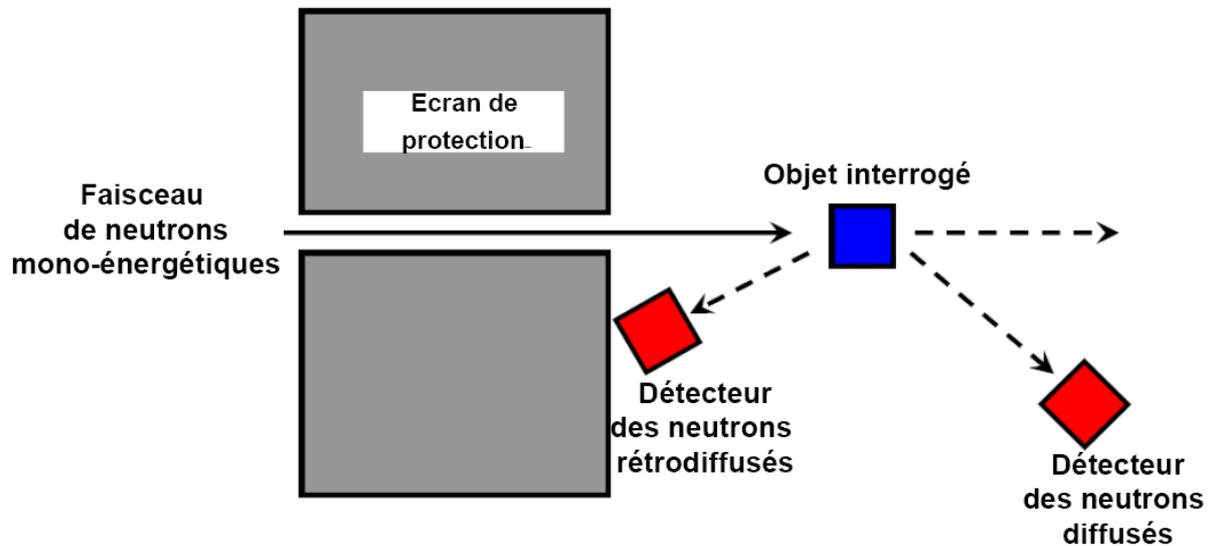


Figure I - 4. Principe de la mesure des neutrons diffusés.

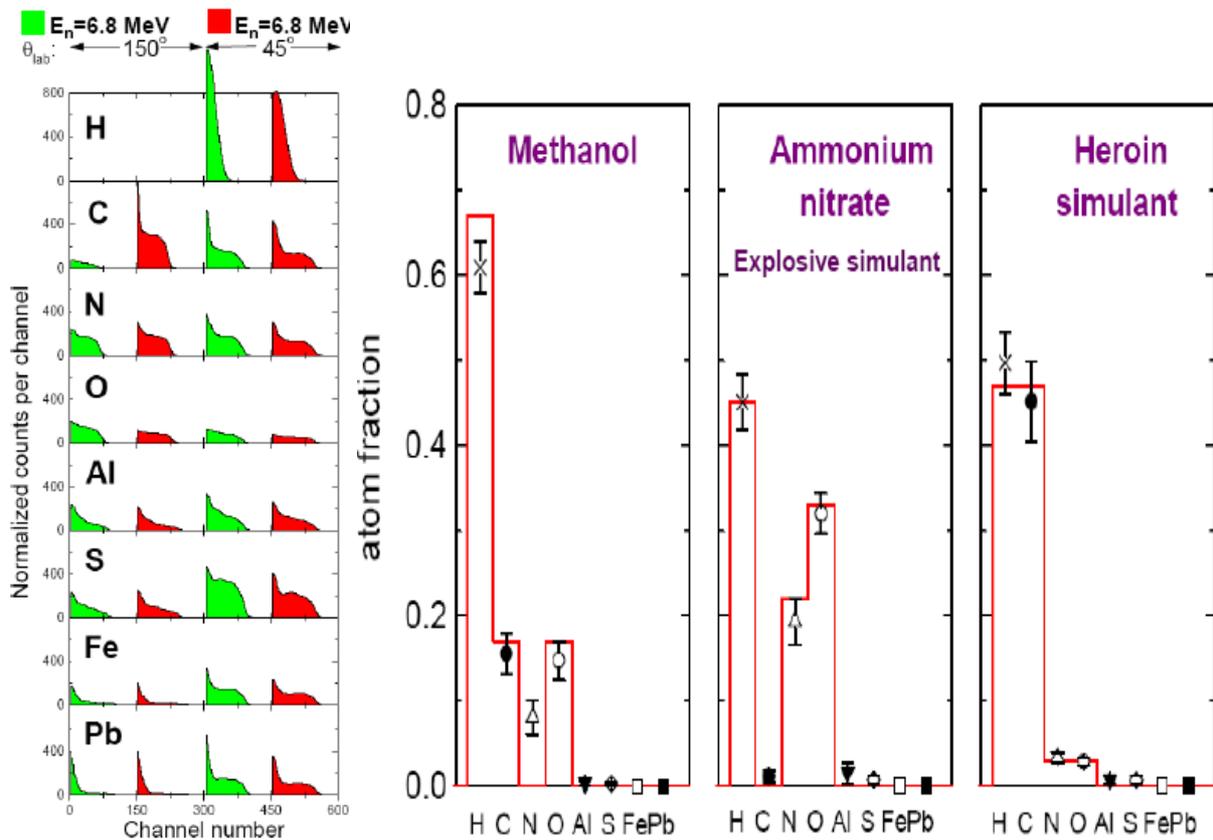


Figure I - 5. Signatures de diffusion pour les éléments H, C, N, O, Al, S, Fe et Pb (à gauche). Les signatures sont normalisées au même nombre de neutrons incidents et au même nombre de noyaux cible. A droite, fractions atomiques mesurées (points) et calculées à partir des formules chimiques (histogrammes) pour trois matériaux différents [14].

2.3 Mesure des rayonnements gamma induits par interaction neutronique

Les neutrons rapides peuvent être produits par des sources radio-isotopiques comme le ^{252}Cf , émetteur de neutrons de fissions spontanées d’énergie moyenne ~ 2 MeV, ou des tubes scellés générateurs de neutrons de ~ 2.5 ou 14 MeV issus de la réaction de fusion deutérium-deutérium ou deutérium-tritium, respectivement. Ces neutrons peuvent être modérés, plus ou moins totalement (jusqu’à ~ 0.025 eV) dans une enceinte de thermalisation et/ou dans l’objet interrogé. Selon les dispositifs, les rayonnements gamma prompts induits par les neutrons rapides, comme ceux de diffusion inélastique, les rayonnements prompts de capture radiative induits par les neutrons thermiques, ou encore les rayonnements de désactivation des radioéléments créés lors de l’irradiation, peuvent être exploités.

En ce qui concerne l’analyse par neutrons thermiques, la détection des explosifs est principalement basée sur l’identification de l’azote et de l’hydrogène via la détection des rayonnements gamma de capture à 2,223 et 10,829 MeV de ^1H et ^{14}N , respectivement. Cette méthode est aussi utilisée pour la caractérisation des colis de déchets radioactifs, en particulier pour évaluer la quantité d’éléments toxiques comme le mercure, le cadmium, le bore ou le plomb [26] [27], ainsi que dans le domaine industriel pour l’étude de la corrosion des structures de renforcement du béton en détectant la présence du chlore [4]. Initialement utilisée en mode d’interrogation continu avec des sources isotopiques [28] ou même des générateurs électriques de neutrons [29], l’acquisition en mode pulsé, entre les impulsions neutroniques, a permis d’améliorer nettement le rapport entre le signal de capture et le bruit dû aux neutrons rapides de la source. En ce qui concerne la détection d’explosifs, bien que la raie de l’azote à 10,829 MeV soit d’énergie supérieure à celle de la plupart des autres éléments, sa section efficace partielle de production (section efficace de capture de l’azote multipliée par l’intensité d’émission absolue de ce rayonnement gamma par capture et par la teneur isotopique en ^{14}N) est très faible, $\sigma_{10,829 \text{ MeV}} = 11,3$ mb. Par suite, il est difficile de la détecter même si l’azote est présent en concentration relativement élevée dans les explosifs militaires (17 à 38 % de la masse totale) [30]. De plus, la mesure des rayonnements de capture ne suffit pas pour différencier les matières organiques en raison de son manque de sensibilité aux éléments carbone et oxygène, qui présentent des sections efficaces partielles de production très faibles, de l’ordre du millibarn pour le carbone et même inférieures pour l’oxygène. Elle doit donc être combinée avec l’interrogation par des neutrons rapides. De même, elle peut être utilisée pour la caractérisation d’armes chimiques via la détection d’éléments qui entrent dans leur composition, comme par exemple le chlore, le soufre, et le fluor [31], mais là aussi elle doit être combinée à la mesure des rayonnements gamma induits par neutrons rapides pour accéder à la détection d’un plus large panel d’éléments chimiques d’intérêt comme le phosphore, le brome ou l’arsenic, ou pour améliorer les limites de détection [32] [33].

Le carbone et l’oxygène, notamment, peuvent ainsi être détectés par leurs rayonnements gamma de diffusion inélastique, ou de désexcitation suite à d’autres réactions avec les neutrons rapides. Il existe différentes méthodes d’interrogation, pulsées ou continues, pour mesurer ces rayonnements. Par exemple, la Figure I - 6 présente un faisceau collimaté de neutrons rapides produit à partir d’un tube scellé générateur de neutrons interrogeant l’objet inspecté [34]. Les rayonnements gamma sont détectés par un ensemble de détecteurs entourant l’objet, protégés de l’exposition directe à la source de neutrons. Les éléments spécifiques présents dans chaque élément de volume (ou « voxel ») de l’objet sont identifiés par la déconvolution des spectres gamma mesurés par chaque détecteur [35]. Les signatures principales utilisées sont issues de la détection des rayons gamma à 4,43 MeV du carbone

(^{12}C), à 1,64, 2,31 et 5,11 MeV de l'azote (^{14}N), et à 6,13 MeV de l'oxygène (^{16}O) [30]. Bien que l'atténuation des neutrons rapides au sein d'un objet soit inférieure à celle des neutrons thermiques, cette technique est également limitée à des petits objets en raison du manque de résolution géométrique quand il y a de grandes distances entre les voxels intérieurs et les détecteurs. Cette sélectivité spatiale très limitée engendre un bruit de fond élevé, ainsi que les interactions des neutrons dans le blindage (écrans de protection) et dans les matériaux des détecteurs dont les éléments présentent généralement des sections efficaces plus élevées que celle du carbone, de l'oxygène et de l'azote. Par conséquent, cette technique est difficilement envisageable pour les objets de grande taille tels que les conteneurs maritimes ou aériens.

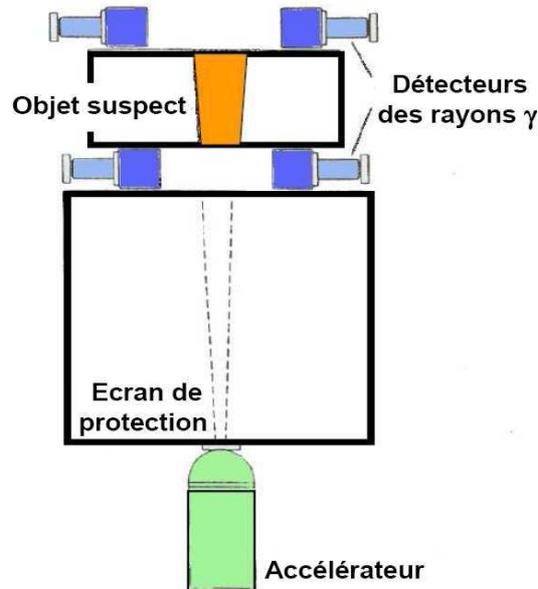


Figure I - 6. Dispositif expérimental de la technique d'analyse par des neutrons rapides [30].

L'analyse par neutrons rapides et thermiques est généralement combinée dans une interrogation pulsée utilisant un tube scellé générateur de neutrons qui produit un train d'impulsions de neutrons 14,1 MeV, de durée de quelques microsecondes à des fréquences de quelques dizaines à centaines de Hz, via la réaction de fusion $^3\text{H}(d,n)^4\text{He}$. Les neutrons rapides incidents sur l'objet inspecté y produisent des réactions de diffusion inélastiques et autres réactions à seuil (n,p), (n, α)... notamment sur les noyaux isotopes carbone et l'oxygène. Les rayonnements gamma prompts de désexcitation sont détectés pendant les impulsions, ceux de capture quelques dizaines à centaines de microsecondes après les impulsions, suite à la thermalisation des neutrons rapides interrogateurs, et éventuellement ceux de désactivation quelques millisecondes plus tard voire après arrêt de l'irradiation. Cette combinaison d'informations obtenues en mode pulsé permet de mesurer un grand nombre d'éléments [36] et [37]. Le principe de fonctionnement de cette analyse est schématisé en Figure I - 7.

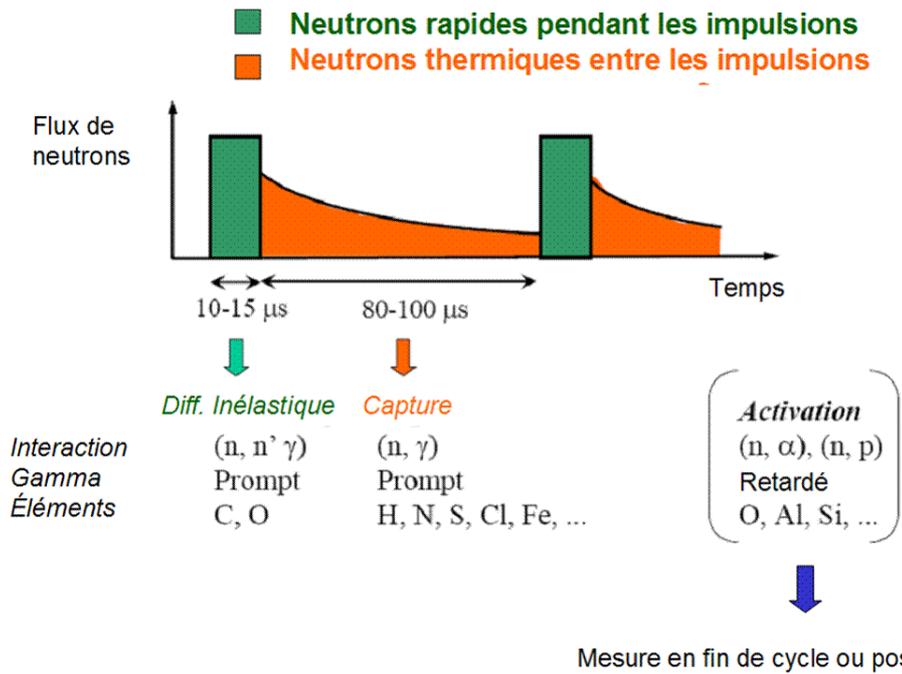


Figure I - 7. Principe de fonctionnement de la technique d’analyse pulsée avec neutrons rapides et thermiques.

Un exemple des spectres que l’on peut ainsi obtenir, dans le cas de l’inspection de conteneurs transportés par des camions (voir Figure I - 8), est représenté en Figure I - 9 pour un conteneur chargé de papier contenant un échantillon de nitrate d'ammonium simulant des explosifs [38]. Le spectre enregistré pendant l’impulsion de neutrons présente un bruit de fond élevé et la signature du carbone, provenant principalement du papier, peut être observée mais avec un mauvais rapport signal sur bruit. Dans le spectre de capture, la présence d'azote, signature des explosifs, et d'hydrogène principalement dû au chargement de papier, peut être observée. Le spectre de désactivation, enregistré quelques millisecondes après l’impulsion et jusqu’à l’impulsion suivante, montre quelques signatures supplémentaires (oxygène), mais aussi un signal résiduel de capture (bore, aluminium).



Figure I - 8. Système d’inspection des camions pour la recherche des explosifs. Le conteneur est scanné des ses deux coté par deux générateurs de neutrons pulsés [38].

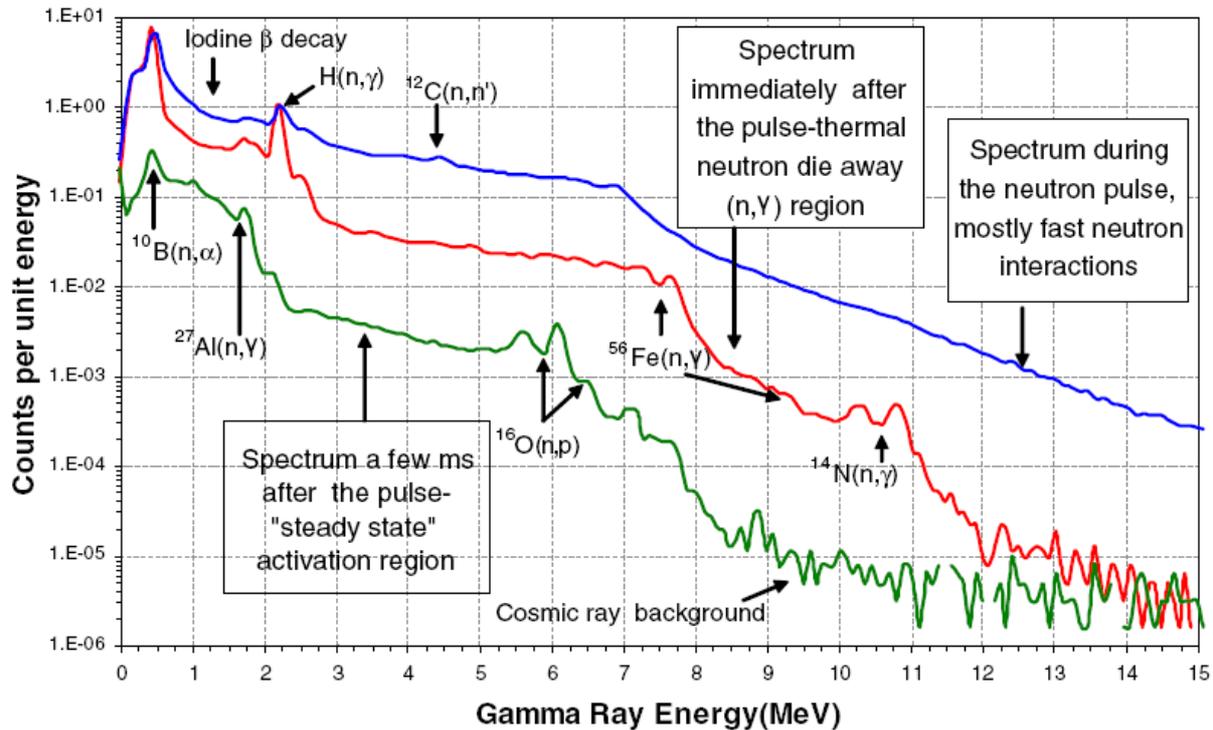


Figure I - 9. Spectres gamma accumulés au cours de différentes fenêtres temporelles par le détecteur NaI(Tl), pendant et après des impulsions de neutrons de 14 MeV interrogeant un conteneur chargé de papier avec un échantillon de nitrate d'ammonium simulant des explosifs. Les signaux de Fe et Al sont dû aux matériaux du générateur, du conteneur, du camion et du détecteur. Le signal de bore est dû au matériau de blindage à l'intérieur et autour de la source [38].

Le fait d'utiliser un faisceau pulsé de neutrons et de mesurer entre les impulsions permet de réduire le bruit de fond pour les rayonnements de capture. Par contre, durant les impulsions, le manque de sélectivité spatiale entraîne un bruit de fond élevé et par suite il reste difficile de caractériser la présence de carbone et d'oxygène.

Les principales limitations qui affectent les techniques précédentes dans le cas d'objets volumineux sont donc l'absence de sélectivité spatiale et le bruit de fond important qui en résulte, entraînant un manque de sensibilité à certains éléments comme le carbone, l'azote et l'oxygène présents dans les régions d'intérêt. Ces inconvénients peuvent être palliés par une interrogation avec un faisceau directionnel de neutrons rapides et par la mesure du temps de vol neutronique. Deux techniques basées sur ce principe peuvent être distinguées : l'analyse par des impulsions courtes (~ 1 ns) de neutrons rapides (*Pulsed Fast Neutron Analysis*, ou PFNA) et la technique de la particule associée (*Associated Particle Technique*, APT ou TPA en Français). Ces deux techniques sont discutées en détail dans le paragraphe suivant.

3 Interrogation neutronique avec mesure du temps de vol

3.1 Analyse par des impulsions courtes de neutrons rapides

L’analyse par des impulsions très courtes (~ 1 ns) de neutrons rapides (*Pulsed Fast Neutron Analysis*, ou PFNA [39]) utilise un faisceau pulsé et collimaté de neutrons de 8,5 MeV afin de déterminer la position et la composition des objets dans des conteneurs aériens, maritimes et routier de grand volume. Les neutrons rapides excitent les noyaux des atomes de l’objet inspecté, qui émettent alors des rayons gamma caractéristiques de la composition élémentaire de l’objet. La collimation détermine la direction du faisceau de neutrons. La position de l’objet le long de leur trajet est déterminée par une mesure du temps de vol neutronique, la vitesse des neutrons de 8,5 MeV étant de ~ 4 cm.n s^{-1} . Le temps de vol représente le temps écoulé entre l’émission des neutrons et le lieu de production des rayonnements gamma. L’origine du rayonnement gamma le long du trajet du neutron est déduite du temps de détection de ces derniers par rapport à l’impulsion neutronique et de la géométrie de mesure (direction du faisceau et position des détecteurs gamma). En balayant le conteneur avec le faisceau de neutrons (mouvement vertical couplé à une translation horizontale du conteneur), une carte tridimensionnelle des compositions élémentaires des matériaux transportés peut être obtenue.

Le faisceau de neutrons est créé par un faisceau de deutérons issu d’un accélérateur de type Van de Graff, frappant une cible contenant du deutérium et produisant les neutrons par réaction de fusion D-D. Bien que les neutrons soient émis préférentiellement dans la direction des deutérons incidents, un blindage doit être utilisé pour obtenir un faisceau de neutrons étroit ou collimaté. L’accélérateur du système PFNA est équipé d’un dispositif qui convertit le faisceau de deutérons en des impulsions de très courte durée, de l’ordre de 1 ns. La fréquence des impulsions est choisi d’être 2,5 - 5 MHz [40], ce qui signifie que les impulsions sont séparées par 16 ou 8 mètres, respectivement dans la direction du faisceau. Par suite une seule impulsion à un instant donné se trouve dans la région d’inspection.

Les rayonnements gamma sont détectés par un ensemble de cent quarante-quatre détecteurs cubiques d’iodure de sodium NaI(Tl) d’arrête 4" (10,16 cm). Ils sont configurés en deux ceintures autour de la section du conteneur, une de chaque côté du plan d’inspection, voir Figure I - 10.

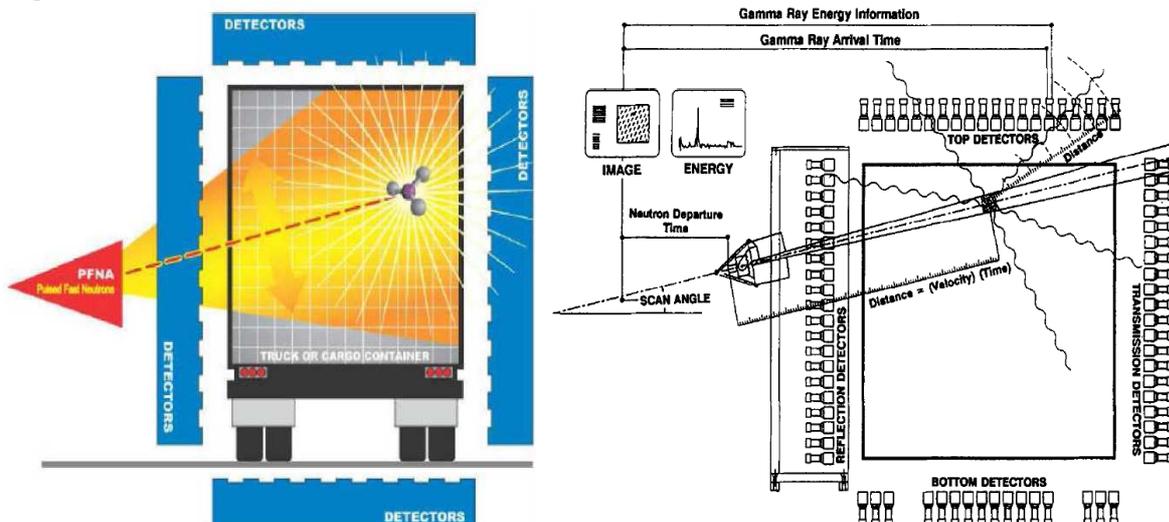


Figure I - 10. Schéma de principe du dispositif PFNA d’inspection des conteneurs par des impulsions courtes de neutrons de 8,5 MeV collimatés [41] [42].

Les détecteurs NaI(Tl) mesurent l'énergie et le temps d'arrivée des rayons gamma. L'analyse des informations spectroscopiques des signaux gamma de distinguer les différents types de matériaux. Dans le but de discriminer les explosifs et les drogues, telles que la cocaïne, des matériaux inoffensifs, le système évalue les quantités respectives d'oxygène, de carbone, de chlore et d'azote dans chaque voxel à l'intérieur du conteneur. La Figure I - 11 montre un exemple d'un spectre obtenu à partir d'une interrogation de trinitrotoluène (TNT) [43]. Les pourcentages massiques réels du TNT pour N, C et O sont de 19%, 42% et 37%. Le reste est constitué d'hydrogène.

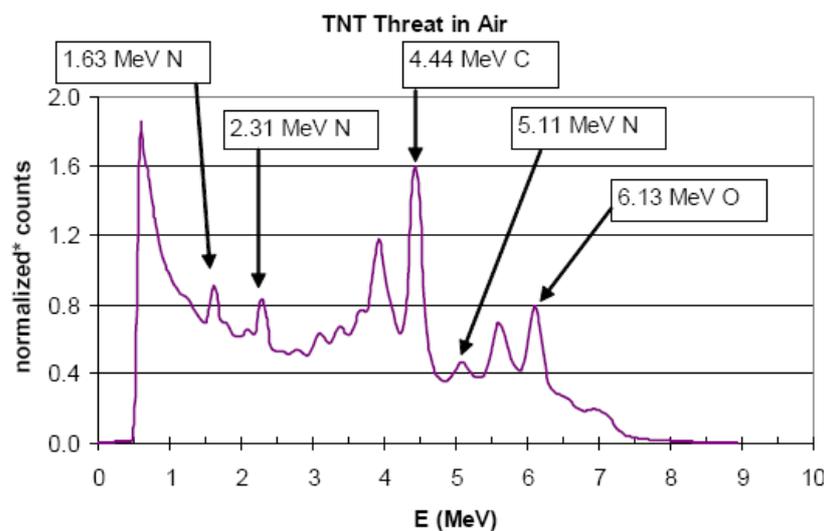


Figure I - 11. Spectre gamma du TNT mesuré par le système PFNA (signature intrinsèque hors conteneur) [43].

Un spectre typique bidimensionnel temps de vol neutronique versus énergie gamma d'un simulant d'explosif est représenté en Figure I - 12 [43]. L'axe horizontal correspond à l'énergie des rayonnements gamma et l'axe vertical au temps de vol. Sur cet histogramme, une fenêtre de temps peut être choisie dans l'échantillon d'explosif pour produire le spectre en énergie des rayons gamma induits, présenté sur le côté droit de la figure. Il convient de noter que les pics des rayonnements gamma du C, O et N sont tous présents pour ce simulant d'explosif C4 (famille des plastics). Le spectre d'énergie correspondant au bruit de fond aléatoire est aussi présenté. Ce spectre est produit majoritairement par des réactions de capture thermique et d'activation, au lieu des réactions de diffusion inélastique. On y remarque notamment le pic à 2,22 MeV produit par la réaction d'absorption des neutrons thermiques par l'hydrogène. Par contre, cet élément ne présentant pas de signature gamma induite par les neutrons rapides, il ne contribue pas au signal utile du système PFNA.

De même, une fenêtre peut être placée autour d'une partie limitée de l'axe d'énergie pour afficher le spectre de temps pour cette région. La Figure I - 12 montre le spectre de temps produit par le choix d'une fenêtre d'énergie autour du pic de 6,1 MeV de l'oxygène (en bas de la figure). Ce spectre montre la forte concentration d'oxygène présente dans la zone de l'explosif. Comme prévu, il y a une forte concentration à la position simulant C4.

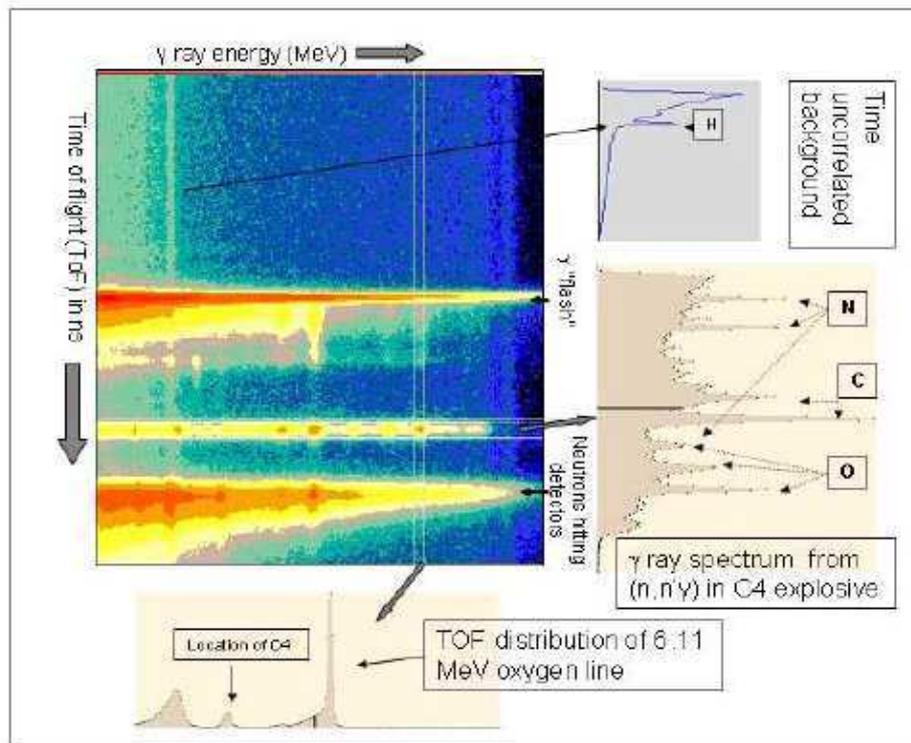


Figure I - 12. Histogramme bidimensionnel des énergies des rayons gamma et de leurs temps de détection [43].

Il convient de noter que le système PFNA possède 96 scintillateurs organiques pour la détection des neutrons transmis afin de réaliser une radiographie (de basse résolution) couplée de transmission neutronique et gamma [44]. Le flux gamma produit par la source, de l'ordre $10^5 \text{ } \gamma \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ dans le plan des détecteurs (à 5 mètres de la source) et d'énergie moyenne 1,6 MeV, est en suffisant pour réaliser cette image (le flux neutronique est encore un peu plus élevé).

Bien que le système PFNA ait montré son efficacité dans le contexte de sécurité, plusieurs facteurs limitent son application [45] :

- l'atténuation des neutrons qui réduit le signal utile et distord les informations sur la composition élémentaire suite à la dégradation de l'énergie des neutrons,
- la diffusion des neutrons qui augmente la taille de l'élément de volume « voxel » inspecté au fur et à mesure que le faisceau pénètre dans les marchandises, qui réduit la contribution des éléments du voxel d'intérêt visé dans le signal utile en augmentant celle des matériaux environnants,
- Les spectres en énergie obtenus sont nets de bruit, mais leur précision statistique est tout de même affectée par la présence de bruit de fond aléatoire, dû principalement à la capture des neutrons thermalisés dans l'objet inspecté et dans d'autres structures (les écrans de protection, les murs...).

En particulier, sa sensibilité pour des conteneurs de grand volume, hydrogénés et denses reste limitée. On notera également que la source d'interrogation du système PFNA est complexe, lourde, volumineuse, coûteuse en terme d'investissement et de maintenance. La dose délivrée aux marchandises inspectées est également très élevée en comparaison à celle produite par des tubes scellés générateurs de neutrons.

3.2 Technique de la particule associée

3.2.1 Principe Physique

La technique de la particule associée (TPA) est utilisée en laboratoire depuis les années 1960 [46]. Elle repose, comme pour le système PFNA, sur la mesure des rayonnements gamma prompts émis à la suite de réactions de neutrons rapides sur les noyaux des matériaux inspectés (diffusions inélastiques notamment) et sur celle du temps de vols neutronique pour localiser le lieu de production des rayonnements gamma. L’énergie des raies gamma émises en réponse à l’excitation du noyau par les neutrons est caractéristique des éléments chimiques interrogés. L’analyse du spectre énergétique d’un élément de volume inspecté par cette technique permet ainsi de remonter à sa composition chimique.

Pour induire les diffusions inélastiques et autres réactions à seuil conduisant à l’émission des raies gamma d’intérêt, les neutrons interrogateurs doivent posséder une énergie élevée car certains seuils atteignent environ 10 MeV. On utilise donc des neutrons de 14,1 MeV produits par la réaction de fusion deutérium-tritium. Les applications hors laboratoire de la technique de la particule associée ont été rendues possibles par le développement, à partir des années 1990, de tubes scellés générateurs de neutrons au sein duquel un faisceau d’ions deutérium, accéléré par une différence de potentiel, impacte une cible tritiée [47]. La réaction de fusion deutérium-tritium, $d(t,\alpha)n$ conduit à l’émission d’un neutron de 14 MeV et d’une particule alpha, émis approximativement à 180° l’un de l’autre. Le tableau 1 résume les valeurs des énergies cinétiques et vitesses correspondantes pour les particules alpha et les neutrons créés par un faisceau de deutérons (ou deutons) accélérés sous une différence de potentiel typique de 100 kV [48].

Tableau 1. Energies cinétiques et vitesses correspondantes des particules alpha et des neutrons créés par réaction de fusion deutérium-tritium entre un faisceau de deutérons (ou deutons), accélérés sous une différence de potentiel typique de 100 kV, et une cible imprégnée de tritium.

Réaction	Energie totale (MeV)	Energie cinétique (MeV)		Vitesse (cm.ns ⁻¹)	
		Neutron	Particule α	Neutron	Particule α
t(d,n)α	17,6	14,1	3,5	5,13	1,31

Les neutrons de 14 MeV produisent alors sur les noyaux rencontrés lors de leur parcours différentes réactions de diffusion inélastique (n,n') ou autres réactions à seuil de type ($n,2n$), (n,α), (n,p), etc., accompagnées de l’émission de rayonnements gamma prompts. Ces derniers, caractéristiques de l’élément ayant subi la réaction, sont enregistrés par des détecteurs gamma afin d’analyser la composition chimique du volume inspecté.

La particule alpha «associée» au neutron, émise simultanément au neutron et approximativement à 180° (à quelques degrés près, selon l’énergie résiduelle du deutéron produisant la réaction, comprise entre 0 et quelques dizaines de kilo électronvolts), est quant à elle détectée par un dispositif permettant sa localisation spatiale. La détermination de sa direction d’émission permet en effet d’accéder à celle du neutron. Connaissant la vitesse des neutrons, la distance D qu’ils parcourent avant d’interagir avec un noyau cible est déterminée grâce à la mesure de leur temps de vol (TOF : time-of-flight) (voir Figure I - 13). Ce dernier correspond à la durée qui sépare l’instant t_1 de l’émission d’un neutron (réaction d-t dans le générateur) de celui t_2 où il engendre une réaction émettrice de rayonnement gamma dans

l’objet inspecté. La détermination du temps de vol se fait par la mesure du temps de coïncidence entre l’instant de détection t_α de la particule alpha et celui t_γ du rayonnement gamma induit, appelé temps de coïncidence alpha-gamma. Le temps de vol TOF_α de la particule alpha depuis la cible tritiée jusqu’au détecteur alpha et celui TOF_γ du rayonnement gamma depuis son lieu de production dans l’objet inspecté jusqu’au détecteur gamma (variable mais déductible de la géométrie de mesure) sont pris en compte pour déterminer le temps de vol TOF_n du neutron :

$$TOF_n = t_2 - t_1 = t_\gamma - t_\alpha + TOF_\alpha - TOF_\gamma$$

À partir de la direction d’émission du neutron, fournie par l’angle solide de détection de la particule alpha, et de son temps de vol, déterminé par la mesure du temps de coïncidence alpha-gamma, il est ainsi possible de remonter à la position de l’interaction dans l’objet inspecté. L’énergie de la raie gamma associée apporte quant à elle une information sur l’élément ayant subi la réaction neutronique.

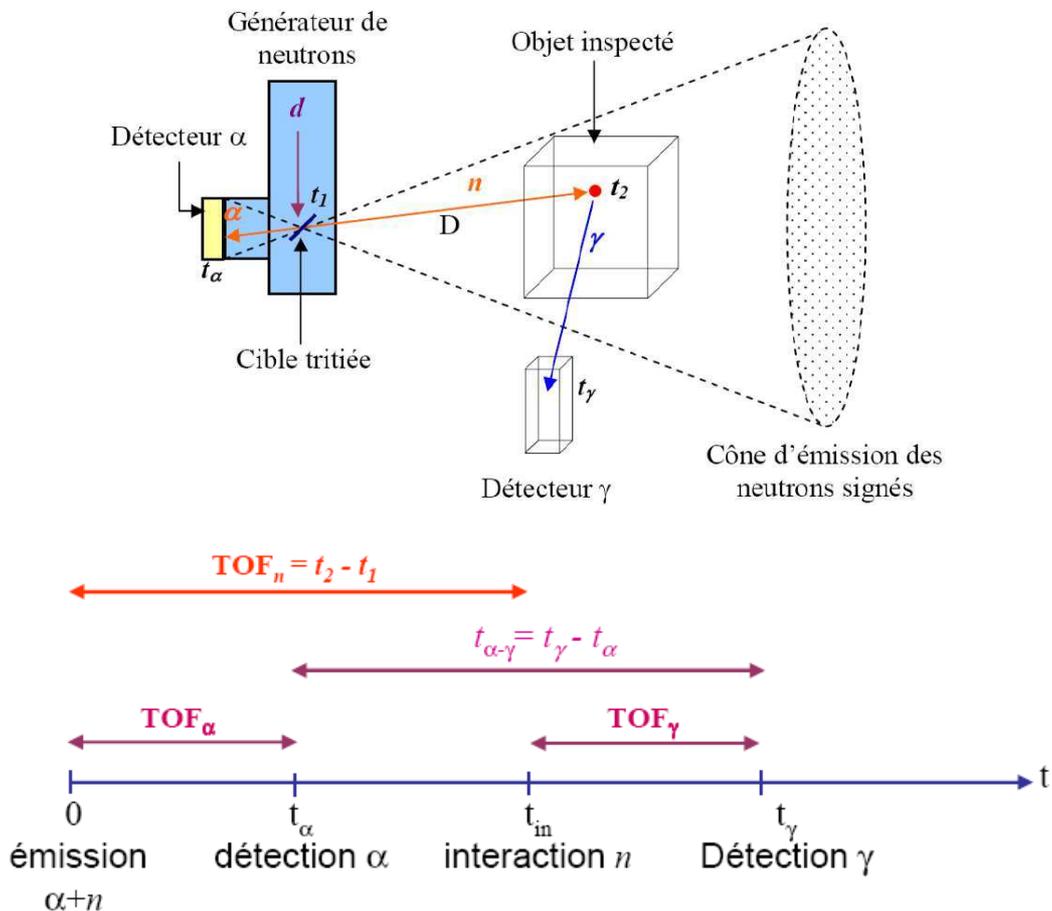


Figure I - 13. Schéma de principe de la technique de la particule associée [48] et de la mesure du temps de vol neutronique.

3.2.2 Applications de la technique de la particule associée

Face aux menaces terroristes de type nucléaire, radiologique, chimique, et plus communément au risque de présence d’explosifs, le besoin de disposer de systèmes d’intervention portables non intrusifs de détection et d’identification revêt aujourd’hui une grande importance pour

inspecter des objets ou véhicules abandonnés afin d'assurer la protection et la sécurisation d'espaces publics ou de sites sensibles. Des dispositifs portables, basés sur la technique de la particule associée, ont été développés notamment en France par EADS SODERN (système ULIS *Unattended Language Inspection System* [49]) et en Russie par l'Institut Radium Khlopin et la société APSTEC (système SENNA [50]).

Ces deux systèmes se présentent sous la forme d'un équipement transportable constitué d'une valise de ~ 40 kg qui renferme les principaux composants, voir Figure I - 14, et d'un ordinateur situé à distance, en dehors du périmètre de sécurité, qui permet de piloter les équipements de mesure et de réaliser l'analyse des données.

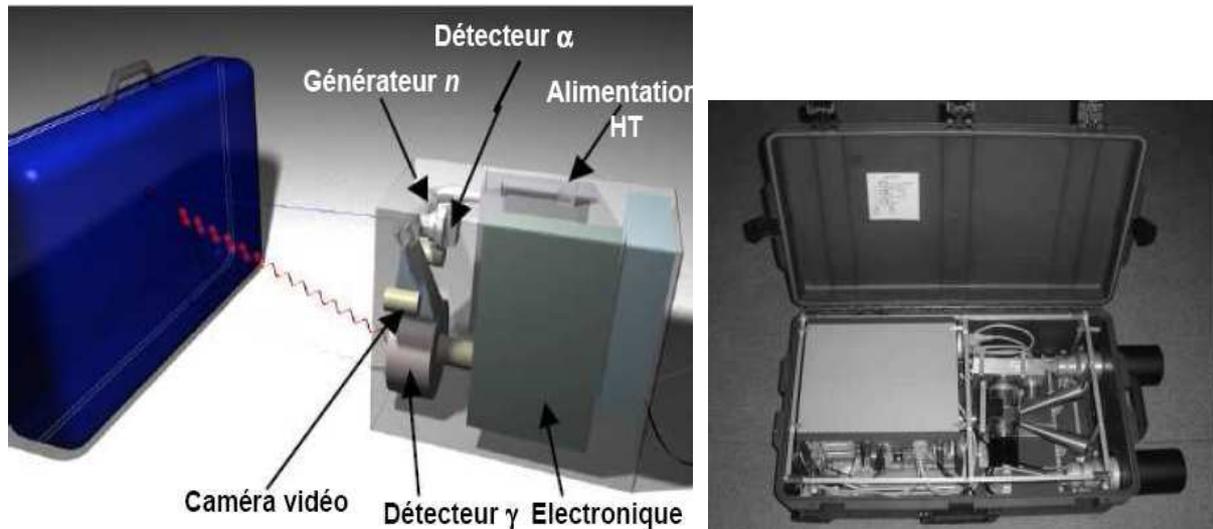


Figure I - 14. Dispositif pour la détection des explosifs ULIS (à gauche) et SENNA (à droite).

Le système de mesure comporte :

- un générateur de neutrons rapides de 14 MeV miniaturisé émettant jusqu'à 2.10^8 n/s (ULIS) et 1.10^8 n/s (SENNA),
- une alimentation haute tension compacte nécessaire au fonctionnement du générateur,
- un module de détection des particules Alpha intégré sur le tube neutronique comportant, pour ULIS, un scintillateur YAP, un photomultiplicateur multi-anodes et une électronique de localisation, et pour SENNA des détecteurs silicium segmentés avec des préamplificateurs,
- un module de détection gamma constitué, pour ULIS, de 2 détecteurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ équipés chacun de leur électronique de proximité, et pour SENNA de 2 à 4 détecteurs BGO remplacés récemment par des détecteurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$,
- un module électronique intégrant l'ensemble des fonctions logicielles permettant le contrôle de l'équipement, l'acquisition et le prétraitement des données ainsi que le transfert des résultats vers le PC de contrôle.

De plus, le système ULIS comporte une source de rayons X de ~ 100 kV à des fins d'imagerie photonique ainsi qu'une caméra vidéo fournissant une image visible de l'objet inspecté.

La Figure I - 15 montre la détection des éléments par le système ULIS. L'interrogation de 1 kg de graphite entouré de 1 kg d'oxyde d'arsenic et 1 litre d'eau pendant quelques minutes montre la capacité du système à détecter la présence du carbone dès une minute de mesure,

puis celle de l’arsenic et de l’oxygène au-delà de ~ 5 minutes avec une bonne précision sur la positions de ces éléments [51].

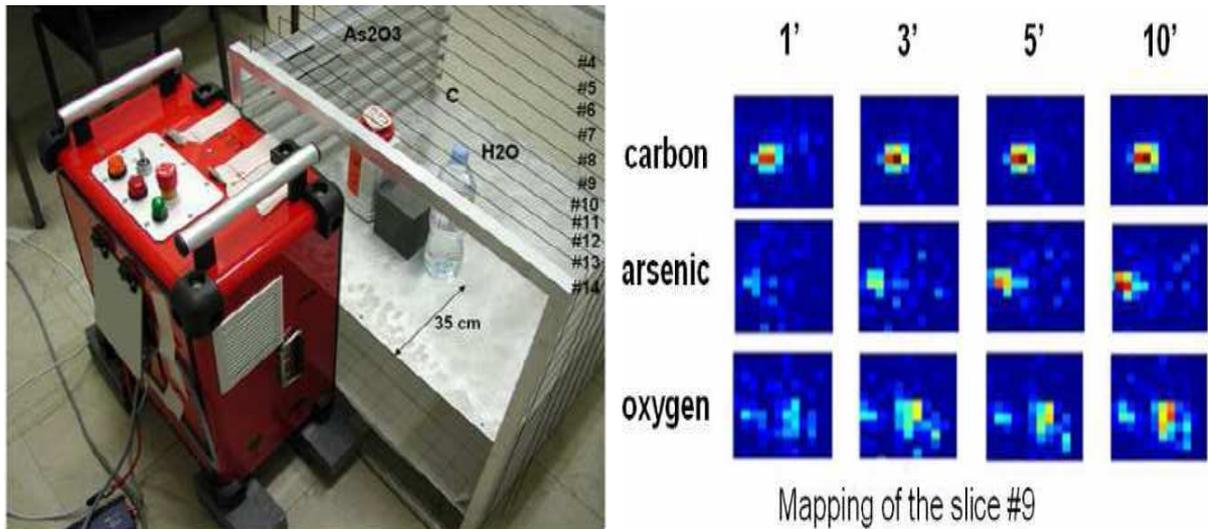


Figure I - 15. L’interrogation d’un Kg d’ As_2O_3 , 1 Kg de graphite et 1 Kg d’eau avec le dispositif portable ULIS (à gauche). La détection du carbone d’oxygène et de l’arsenic après une, trois, cinq et 10 minutes d’inspection [51].

Des expériences avec des échantillons de TNT et de RDX (explosifs) de masses allant de 100 grammes à quelques kilogrammes ont été effectuées avec le dispositif SENNA. Les résultats des ces expériences ont été utilisés pour élaborer des scénarios de détection pour l’inspection des différents objets dans différentes conditions environnementales. La Figure I - 16 montre deux spectres gamma obtenus en une seule mesure avec 400 g de TNT en coïncidence avec les deux segments du détecteur alpha (# 1 et # 3) pour les mêmes distances du générateur de neutrons (3 cm). Le spectre gamma obtenus en coïncidence avec le segment # 1 du détecteur alpha peut être utilisé comme spectre du bruit de fond dans l’analyse du celui obtenu avec le segment # 3 [50].

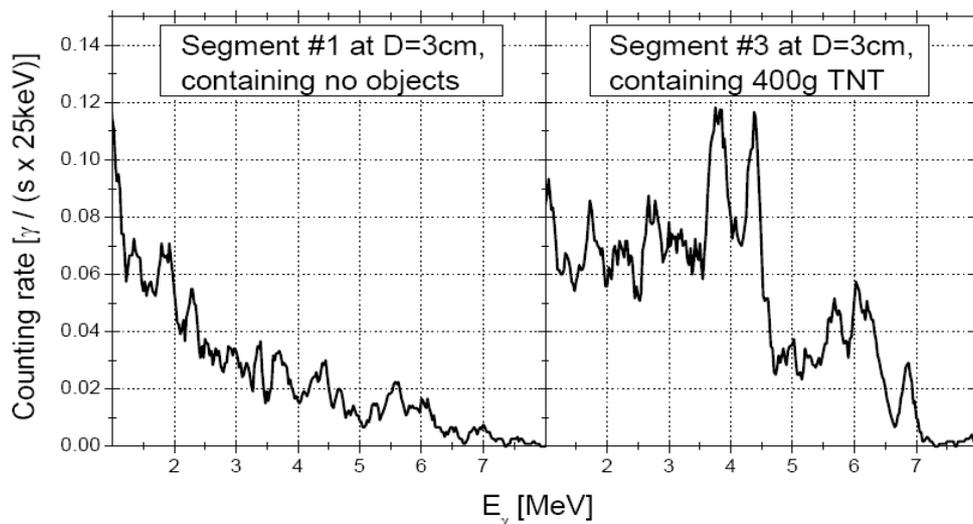


Figure I - 16. Comparaison des spectres gamma mesurés en coïncidence avec deux segments différents du détecteur alpha pour la même profondeur (3 cm) : le segment # 1 ne contient pas des objets, le segment # 3 contient 400 g de TNT [50].

La Figure I - 17 montre la répartition des masses de carbone, d'oxygène et d'azote en profondeur pour la mesure ci-dessus avec 400g du simulateur de TNT. Les maximums de la distribution à environ 3 cm pour le segment # 3 correspondent à la position de l'échantillon de TNT.

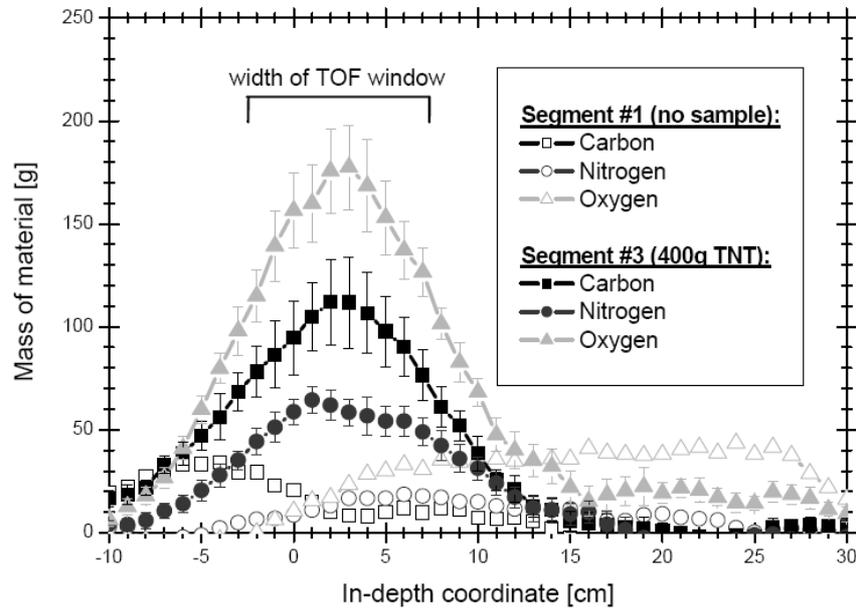


Figure I - 17. Distribution de carbone, d'azote et d'oxygène en profondeur obtenue à partir de l'analyse des spectres mesurés en coïncidence avec les segments # 1 et # 3 du détecteur alpha [50].

La possibilité d'utiliser la technique de la particule associée pour l'identification des armes chimiques via la détection d'éléments tels que le soufre et le chlore [32] [33], ou des munitions n'ayant pas explosé, a été testé expérimentalement en utilisant le dispositif SENNA [52]. Des substituts d'explosifs conventionnels et d'armes chimiques ont été réalisés avec de l'oxyde d'arsenic, du soufre, du graphite, de l'eau et de la mélamine dans des proportions élémentaires similaires à celle des armes recherchées. Les masses mesurées des éléments constituant ces objets ont été comparées aux masses réellement utilisées pour les constituer, voir Figure I - 18.

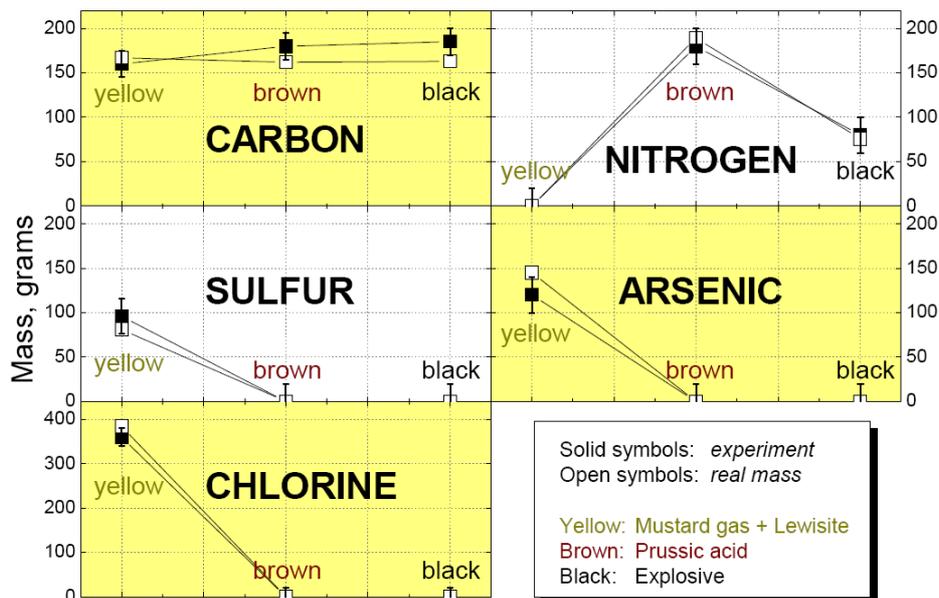


Figure I - 18. Détermination expérimentale avec le dispositif SENNA des masses d’éléments chimiques présents dans des matériaux simulant des armes conventionnelles et chimiques [52]. Les carrés noirs représentent les valeurs mesurées alors que les carrés blancs représentent les masses réelles de carbone, d’azote, de soufre, d’arsenic et de chlore présentes dans les substituts d’explosifs et d’armes chimiques étudiés.

La technique de la particule associée peut encore être utilisée pour le contrôle des bagages dans les aéroports en complément aux rayons X. En 2008, un prototype basé sur cette technique, avec 12 détecteurs gamma BGO et un tube à particule associée similaire à celui du système SENNA [53], a été conçu, fabriqué et testé en Corée du Sud [54], avec deux configurations possibles pour les détecteurs gamma comme indiqué en Figure I - 19. La première géométrie utilise seulement les détecteurs gamma en rétrodiffusion; le générateur de neutrons et les détecteurs gamma sont situés du même côté sous la valise inspectée. Dans la deuxième géométrie, la valise est entre le générateur de neutrons et les détecteurs gamma.

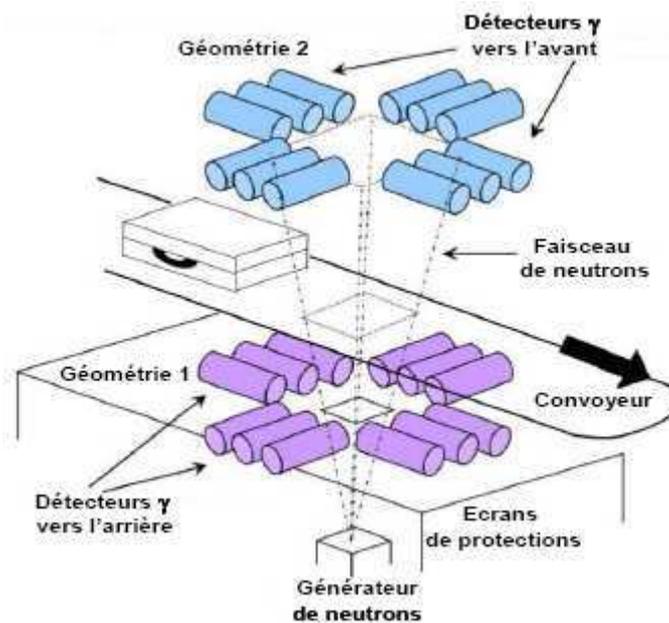


Figure I - 19. Prototype FNIS pour l’interrogation des bagages aux aéroports.

Pour tester le prototype, des explosifs cachés dans une valise remplie de vêtements ont été placés au centre du faisceau de neutrons signés. La Figure I - 20 montre les spectres gamma obtenus en 60 s de mesure pour 300 g de TNT, de RDX, de nitrate d’ammonium (simulant d’explosif) et enfin avec un livre à la place des explosifs.

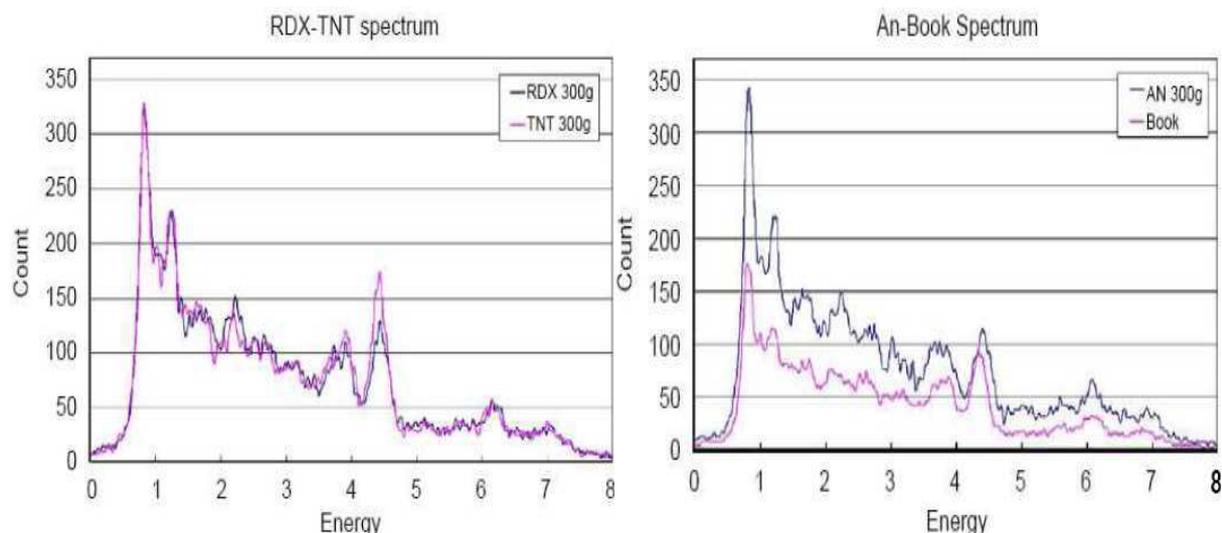


Figure I - 20. Spectres gamma acquis en 60 s avec le prototype FNIS pour 300g de RDX, de TNT, de nitrate d’ammonium (AN) et un livre placés au milieu d’une valise remplie de vêtements [54].

Une autre application importante de la technique de la particule associée dans le domaine de la sécurité est la détection de matières nucléaires. Le département de science nucléaire et de la technologie (*Nuclear Science and Technology Division*) de l’ORNL (*Oak Ridge National Laboratory, USA*) a développé un système d’identification des matières nucléaires appelé NMIS (*Nuclear Material Identification System*). Le système NMIS est basé sur un processeur qui analyse les coïncidences temporelles de détecteurs à scintillation organiques (à proton de recul) pour mettre en évidence la matière nucléaire grâce aux corrélations des rayonnements neutroniques émis lors de fissions induites par des neutrons signés issus d’un tube scellé générateur de neutrons, voir Figure I - 21. Le système intègre aussi un spectromètre gamma haute résolution au germanium, notamment pour la recherche d’agents chimiques, d’explosifs ou de drogues, également avec la méthode TPA [55] comme dans les dispositifs ULIS et SENNA cités plus haut. Le spectromètre gamma est aussi utilisé ici, outre la détection passive des rayonnements émis par le plutonium ou l’uranium, pour la détermination de la présence d’oxygène et de fluor dans les matières fissiles (PuO_2 , U_3O_8 et UF_4) en mesurant les raies gamma de diffusion inélastique des neutrons signés sur ces éléments.

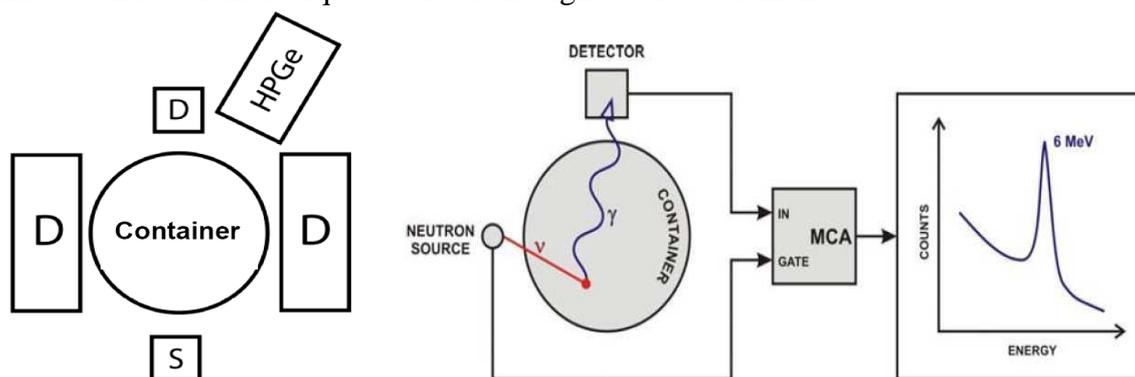


Figure I - 21. A gauche, configuration du système NMIS. S : source ; D : scintillateurs à protons de recul ; HPGe : détecteur gamma au germanium hyper pur. A droite, système principe du spectromètre gamma basé sur la technique de la particule associée.

Un autre système pour la détection des explosifs et des matières nucléaires dans des conteneurs, basé aussi sur la technique de la particule associée avec l’utilisation de plusieurs scintillateurs organiques, est en cours d’étude en Russie par l’institut VNIIA (*All-Russian*

Research Institute of Automatics) [56]. Le Laboratoire de Mesures Nucléaires de Cadarache a également débuté un programme de R&D sur la détection de matières nucléaires par cette technique, en collaboration avec d'autres unités du CEA, car une menace terroriste de type nucléaire est sérieusement envisagée par les agences de renseignement [57].

Dans le domaine de la sécurité environnementale, le développement des systèmes de détection de mines anti-personnel ou d'armes n'ayant pas explosé (bombes aériennes, mines, torpilles...) reposant sur des fonds marins, peut être également cité. En ce qui concerne la détection de mines enterrées, un système développé dans le cadre du projet européen EXPLODET (*EXPLOsive DETection*), un réseau linéaire de compteurs à avalanche (*Parallel Plate Avalanche compteurs PPAC*) utilisés comme détecteurs alpha permet de définir 10 faisceaux de neutrons indépendants qui explorent simultanément 10 pixels sur le sol, de surface environ $10 \times 10 \text{ cm}^2$ chacun. Chaque pixel est contrôlé par un scintillateur gamma BaF_2 en coïncidence avec le détecteur alpha correspondant. L'utilisation de plusieurs faisceaux de neutrons indépendants et des détecteurs de rayons gamma permet également une soustraction en ligne du bruit de fond du spectre de rayons gamma induits par l'objet inspecté. Le dispositif est présenté en Figure I - 22 [58] [59].

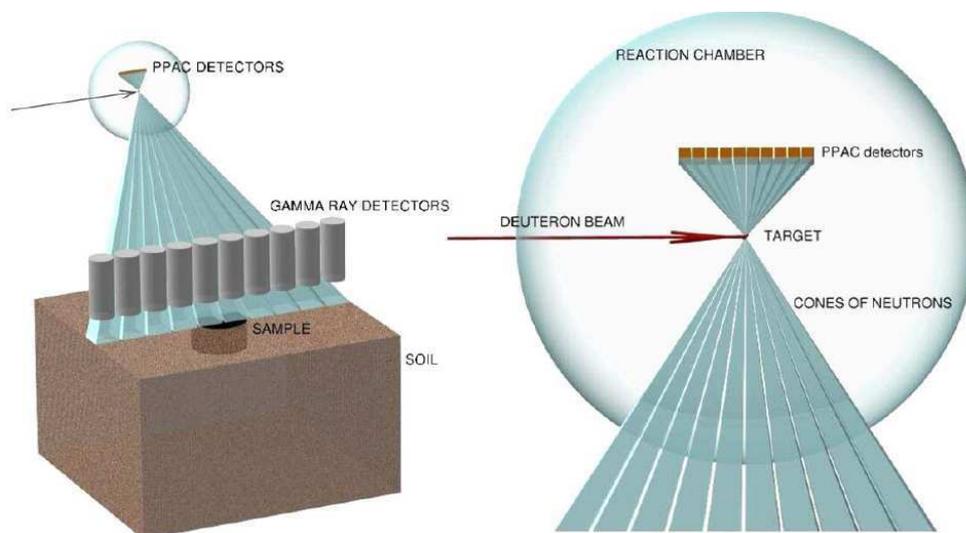


Figure I - 22. Le dispositif de détection de mines EXPLODET [58].

Des spectres gamma induits par irradiation de mines terrestres antipersonnel (de type PROM-1, avec 0,425 kg de TNT et un boîtier externe d'environ 2,5 kg de fer) et antichar (type TMA-2, environ 5.5 kg de TNT, boîtier externe en plastique) avec un faisceau de neutrons signés de 14 MeV ont été obtenus à l'Institut Ruder Boskovic de Zagreb, voir Figure I - 23. Les raies gamma caractéristiques du fer sont identifiées à 0,847 et 1,239 MeV dans le cas de la mine antipersonnel, tandis que les rayons gamma induits sur les noyaux de carbone et d'oxygène du TNT sont faibles, mais plus intenses dans le spectre correspondant à la mine antichar.

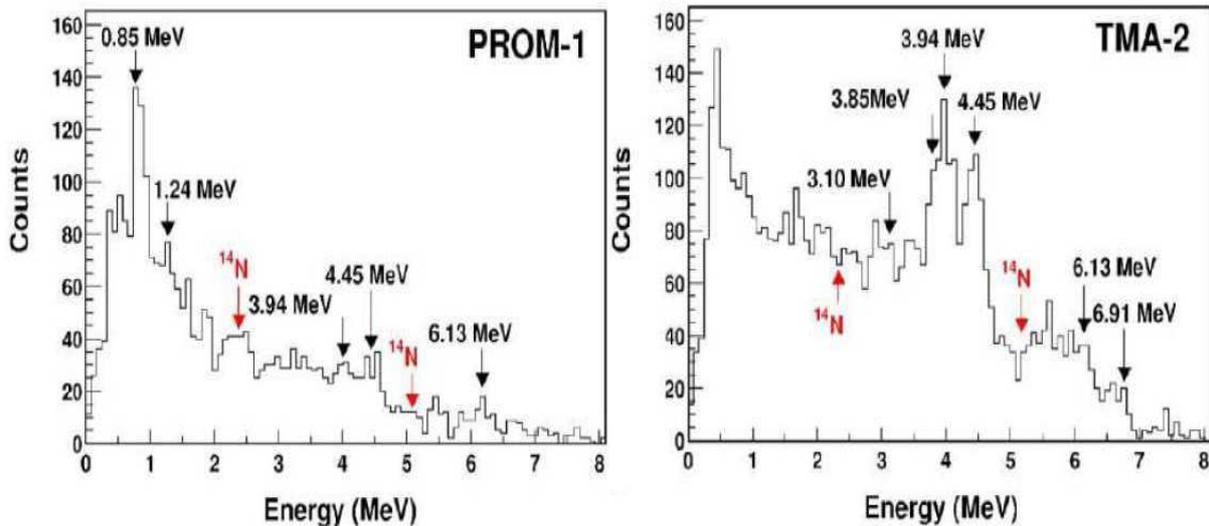


Figure I - 23. Spectres des rayons gamma obtenu par interrogation neutronique de mines terrestres antipersonnel de type PROM-1 et antichar de type TMA-2 [58].

La détection de matières dangereuses dans les zones côtières est également devenue primordiale pour de nombreux pays en raison de l'augmentation du trafic maritime et du tourisme. Un premier prototype de système sous-marin a été développé en Croatie par la société ACT et l'Institut Ruder Boskovic [60] [61] [62], voir Figure I - 25. Le projet UNCOSS (*UNderwater COastal Sea Surveyor*) du 7^{ème} Programme Cadre de Recherche et Développement (PCRD) de l'Union Européenne, débuté en 2009, a pour but de développer et de tester un système d'inspection sous-marin basé sur la technique de la particule associée et intégrant de nombreux capteurs de positionnement. Le capteur neutronique, cœur du procédé, est développé en collaboration entre les partenaires ACT, IRB et le CEA. Le système doit être aussi compact que possible pour être intégré avec les autres capteurs dans un véhicule télé-opéré depuis la surface [63] [64]. Le tube scellé générateur de neutrons est de type ING-27 [53]. Dans le cadre du projet UNCOSS, une comparaison entre plusieurs détecteurs de rayonnements gamma a été réalisée par simulation numérique, montrant que les meilleures performances sont obtenues avec les scintillateurs NaI(Tl) et LaBr₃(Ce). En raison de sa meilleure résolution en énergie et en temps, et sa plus grande efficacité par unité de volume permettant une configuration plus compacte, les calculs ont conduit à choisir un détecteur LaBr₃(Ce) 3"×3". La Figure I - 25 compare des spectres gamma acquis par des détecteurs 3"×3" LaBr₃(Ce) et NaI (Tl) pour 5 kg d'un simulant d'explosif de type RDX mesuré sous eau [64]. Il convient de noter que l'électronique d'acquisition et de traitement de données a été développée spécifiquement pour ce système par le CEA.

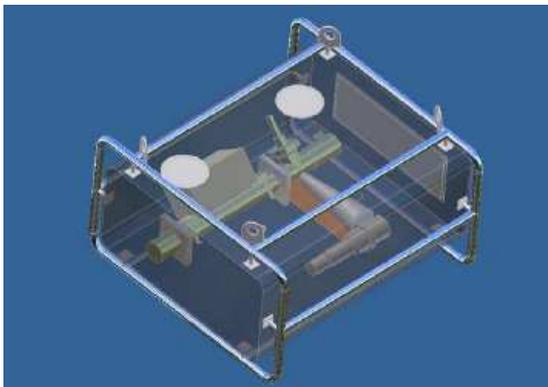


Figure I - 24. Système sous-marin d’inspection des explosifs SURVEYOR [61] [60], utilisé pour les premiers essais de faisabilité du système UNCOSS.

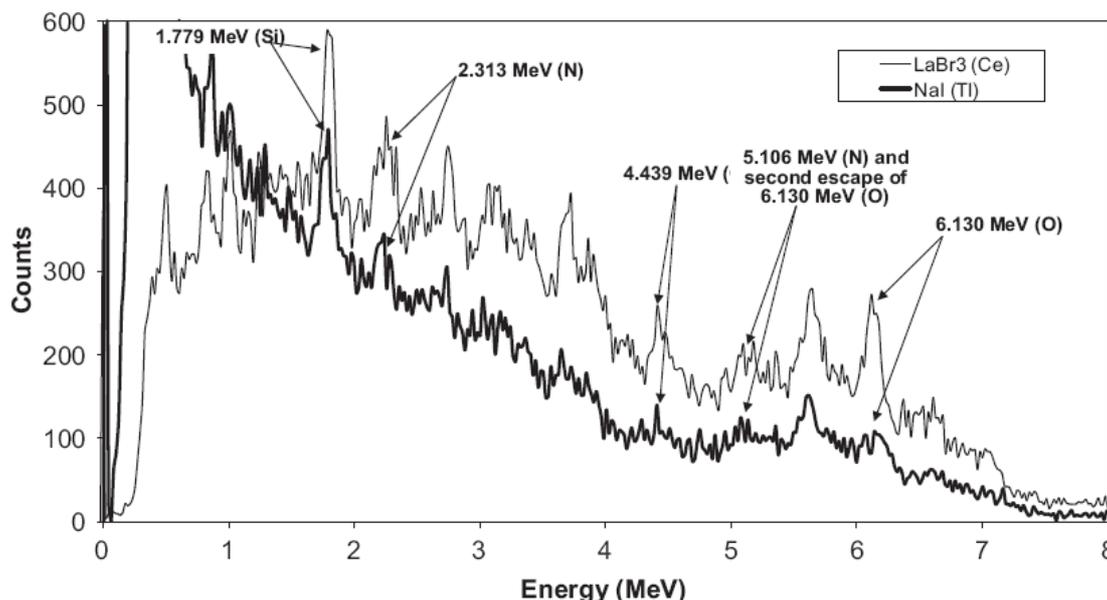


Figure I - 25. Spectres gamma expérimentaux de détecteurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ et $\text{NaI}(\text{Tl})$ 3"×3" obtenus lors d’une mesure sous-marine de 5 kg d’un matériau simulant un explosif de type RDX, constitué d’un mélange de mélamine ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) et de sable (SiO_2). Les largeurs des canaux des deux spectres sont de 20 keV et le nombre total de particules alpha est $4 \cdot 10^7$. Le temps d’acquisition est de 767 s pour le $\text{NaI}(\text{Tl})$ et 820 s pour le $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ [64].

Enfin, pour conclure cette revue des applications de la technique de la particule associée dans le domaine de la sécurité, il faut citer le contrôle des conteneurs maritimes qui est l’objet de cette thèse. Le transport maritime est une industrie qui revêt une importance cruciale puisque 95 % de la cargaison mondiale est transportée par bateau, soit plus de 200 millions de conteneurs échangés tous les ans entre les principaux ports de la planète. Pour lutter contre le trafic illicite, notamment d’explosifs et de drogues, un dispositif d’inspection neutronique basé sur la technique de la particule associée a été développé en Europe dans le cadre du 6^{ème} PCRD. Ce système, appelé EURITRACK (*European Illicit TRAfficking Countermeasures Kit*), constitue le pendant du système américain PFNA en termes de principe physique, de performances et de limitations intrinsèques, mais la technologie mise en œuvre est nettement plus légère ce qui constitue son atout majeur. Le système EURITRACK est décrit en détail dans le paragraphe suivant.

Il existe aussi un intérêt potentiel à utiliser cette technique dans l’industrie nucléaire, par exemple pour la détermination de la quantité et de la distribution de l’hexafluorure d’uranium dans les diffuseurs des usines d’enrichissement. L’ UF_6 solidifié s’accumule au cours de l’exploitation, ce qui peut conduire à l’accumulation d’une masse critique, d’où la nécessité d’une caractérisation du profil spatial et de la masse des dépôts dans ces canalisations [65]. Dans ce but, une plaque simulant de l’ UF_6 , réalisée à partir d’uranium appauvri (9 kg) et de téflon (5,7 kg), a été placée à l’intérieur d’une virole en acier de 6,4 mm d’épaisseur et 65 cm de diamètre semblable à celles des usines de diffusion gazeuse. La Figure I - 26 montre que le matériau simulant l’ UF_6 se distingue nettement au milieu du tuyau [65]. Dans le spectre gamma total (sans sélection spatiale), le pic de l’uranium est presque aussi intense que ceux du fer, bien que la masse d’acier illuminée par le faisceau de neutrons signés soit quatre fois plus grande celle de l’uranium. Dans le spectre correspondant au simulant de l’ UF_6 uniquement (à l’intérieur du tuyau), les pics du fer sont considérablement atténués. Le pic observé à environ

1,35 MeV est dû au fluor. Le pic du carbone à 4,44 MeV est visible dans les deux spectres car il est présent dans l'acier ainsi que dans le matériau simulant l' UF_6 (dans le téflon C_2F_4).

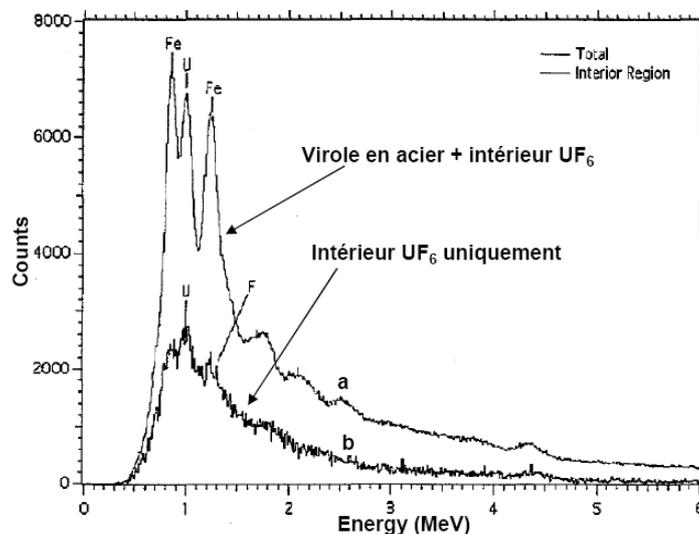


Figure I - 26. Spectre gamma d'une virole en acier contenant un matériau simulant l' UF_6 , et spectre du volume intérieur seul (simulant d' UF_6) [65].

Cette technique est aussi utilisée pour la caractérisation élémentaire des colis de déchets radioactifs afin de détecter les éléments présents dans des zones d'intérêt telles que des objets ou hétérogénéités repérés dans une matrice homogène [66] par imagerie photonique. Cette application fera l'objet du chapitre 4 de la thèse.

3.2.3 Le système EURITRACK

Le projet EURITRACK, mené entre 2004 et 2008, visait à accroître la sécurité des ports maritimes au travers du développement d'un système non intrusif d'inspection neutronique pour détecter des explosifs ou autres substances à risque dissimulées dans des conteneurs de transport maritime. Le concept de base consiste à repérer une zone suspecte dans le conteneur par radiographie photonique (scanner à rayons X déjà existant pour camions) et à focaliser l'interrogation neutronique sur cette zone grâce à la technique de la particule associée, afin d'identifier la présence de matières suspectes ou de contrebande pour éviter d'avoir à décharger inutilement des conteneurs [67] [68] [69]. Le projet européen Eritr@C, mené entre 2008 et 2010, a consisté notamment à optimiser le système de détection [70], la base de calibration [71] et le traitement des données [72] [73]. Une grande partie des travaux de thèse est inscrite dans le cadre de ce projet.

Comme précédemment, cette technique permet d'identifier les matières suspectes grâce à l'analyse spectrométrique des rayonnements gamma émis suite aux interactions neutroniques. Les spectres de raies gamma sont caractéristiques des isotopes des éléments chimiques contenus dans l'élément de volume analysé. Les explosifs ayant des proportions en carbone, oxygène, azote et hydrogène particulières (riches en oxygène et en azote), il est possible de les différencier des autres matières organiques inoffensives grâce aux proportions relatives de ces éléments.

Le système de mesure, développé dans le cadre de ce projet est dénommé Système d'Inspection par Neutrons Signés (TNIS, *Tagged Neutron Inspection System*), utilise la technique de la particule associée. Ceci permet d'améliorer la sensibilité en n'inspectant que

la région suspecte du conteneur et de limiter fortement la complexité de la source de neutrons et la dose délivrée aux marchandises par rapport au système PFNA, qui se fixe pour objectif de scanner l’intégralité des conteneurs, d’où une intensité de faisceau nécessaire supérieure de plusieurs ordres de grandeur. Le concept du TNIS a été développé en Europe juste avant le projet EURITRACK [74] [75] [76] [77] [78] qui a permis de l’intégrer dans un portique d’inspection et de réaliser une démonstration avec des conteneurs réels.

Le design général du dispositif EURITRACK a été défini et optimisé par simulation numérique afin d’atteindre les performances de mesure recherchées. Les principaux paramètres ont été spécifiés (émission neutronique, ouverture du faisceau signé, efficacité et résolution en énergie des détecteurs gamma, résolution temporelle de la mesure des coïncidences, blindages, etc...) et quantifiés par calcul (signal utile, rapport signal sur bruit, taux de comptage total, etc...) [79]. La méthode de simulation a été validée par la suite à l’aide de résultats expérimentaux [80] [81], confirmant ainsi les performances calculées. La Figure I - 27 montre le design final retenu pour le système d’inspection qui est constitué :

- d’un générateur de neutrons à particule associée, équipé d’un détecteur alpha pixellisé (matrice de 8×8 scintillateurs YAP: Ce);
- de trois ensembles de détecteurs gamma : 16 placés au dessus du conteneur (ensemble « supérieur »), 2 à proximité du générateur (ensemble en « émission ») et 4 à l’opposé vis-à-vis du conteneur (ensemble en « transmission »);
- d’un détecteur de neutrons (scintillateur organique liquide) placé à l’opposé du générateur destiné à mesurer l’atténuation neutronique par les marchandises;
- d’un système électronique d’acquisition et de traitement du signal;
- d’un système informatique général de pilotage du dispositif et de l’acquisition, de centralisation et d’analyse des données (y compris la radiographie X et les informations sur les marchandises), et d’aide à la prise de décision pour les utilisateurs finaux (douaniers).

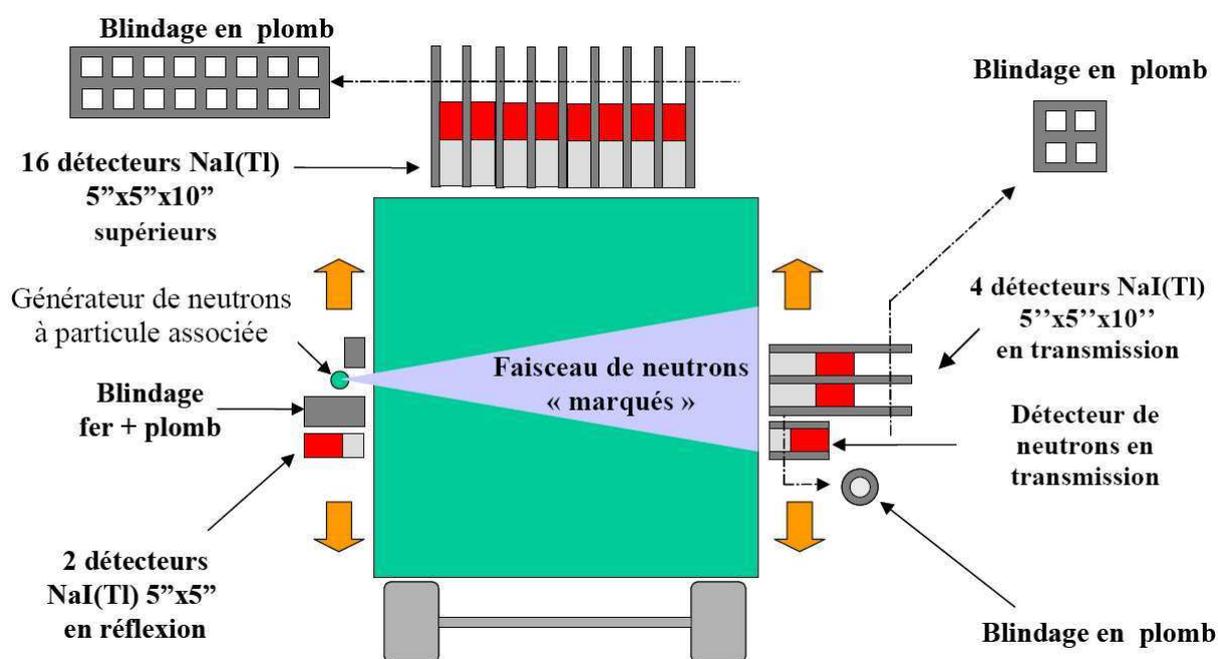


Figure I - 27. Design général du système d’inspection neutronique TNIS du projet EURITRACK.

Au cours d’une inspection, le camion transportant le conteneur est positionné de manière à aligner le générateur de neutrons et la région à inspecter et le bloc d’émission contenant le générateur est positionné à la hauteur de l’élément de volume suspect. Le bloc transmission est placé en face du bloc d’émission, à la même hauteur.

Dans le dispositif d’inspection, le générateur utilisé est composé d’un tube scellé, qui utilise la réaction de fusion deutérium-tritium pour générer un neutron de 14 MeV et une particule alpha, et d’un détecteur alpha pixellisé. Le tube scellé été réalisé par la société EADS SODERN, partenaire du projet EURITRACK. Ses caractéristiques sont les suivantes :

- Emission nominale : $10^8 \text{ n.s}^{-1} [4\pi]$;
- Emission maximale : $5 \times 10^8 \text{ n.s}^{-1} [4\pi]$;
- Durée de vie moyenne : 1000 h à 10^8 n.s^{-1} ;
- Dimensions physiques : diamètre = 12 cm, longueur = 75 cm, masse = 15 kg ;
- Activité tritium : 720 GBq.

La Figure I - 28 montre le tube scellé du générateur de neutrons SODERN (à gauche), avec au dessus l’excroissance contenant le détecteur alpha (au milieu). Une enveloppe métallique de protection, entourant le tube scellé, constitue le générateur (à droite).



Figure I - 28. Générateur de neutrons à particule associée [69].

Le détecteur alpha (voir Figure I - 29) a été développé par l’INFN (*Istituto Nazionale di Fisica Nucleare*), partenaire italien du projet [82]. Il est composé d’une matrice de 8×8 scintillateurs de type YAP:Ce (Yttrium Aluminium Perovskite dopé au Cérium) déposés sur une grille d’acier inoxydable. Les dimensions de chaque cristal sont de $5,8 \times 5,8 \times 0,5 \text{ mm}^3$. L’espace inter-cristal est de 0,2 mm. La matrice est montée dans le tube scellé du générateur de neutrons à une distance de 15 cm de la cible de tritium. Cette dernière étant considérée comme ponctuelle, l’angle solide sous-tendu par chaque pixel est d’environ $1,5 \times 10^{-3}$ stéradians. Les pixels sont couplés à un photomultiplicateur multi-anodes, chacune des 64 anodes faisant face à un cristal. Le photomultiplicateur et les cristaux sont séparés par une fenêtre en saphir de 4 mm d’épaisseur, qui sépare l’intérieur du tube scellé de l’extérieur, sans couplage optique pour des raisons de procédé de fabrication. Les cristaux de YAP:Ce sont recouverts d’une couche d’argent de masse surfacique 1 mg.cm^{-2} afin de les protéger de la lumière et des deutérons diffusés. Le détecteur alpha ainsi constitué définit 64 cônes d’émission de neutrons signés.

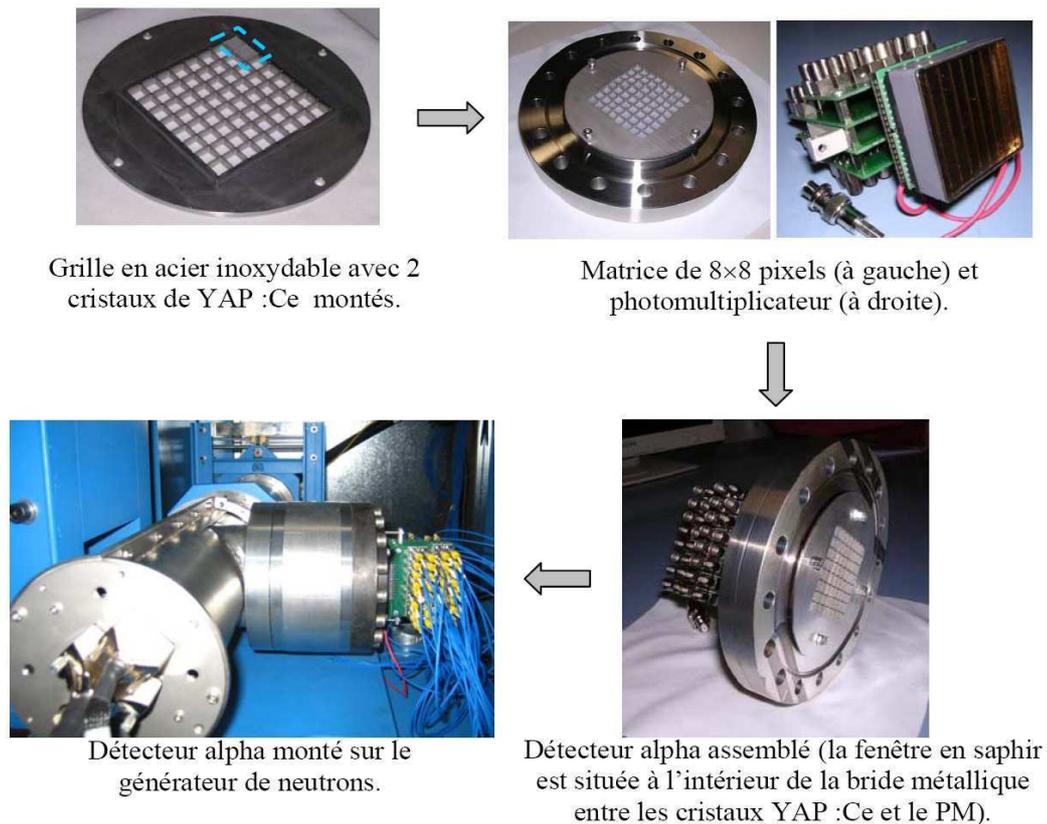


Figure I - 29. Montage du détecteur alpha [69].

Le choix et l’approvisionnement des détecteurs gamma du système EURITRACK, effectués par le CEA, constitue un compromis entre les quatre critères suivants :

- l’efficacité de détection pour les photons de haute énergie, typiquement de 2 à 8 MeV;
- la résolution temporelle: considérant que la vitesse des neutrons de 14 MeV est voisine de $5 \text{ cm}\cdot\text{ns}^{-1}$, pour inspecter des voxels d’une dizaine de centimètres d’arête la résolution temporelle de la mesure de coïncidence alpha-gamma doit être de l’ordre de la nanoseconde. En particulier, la précision sur l’instant de détection d’une impulsion dans les détecteurs gamma doit être de cet ordre de grandeur;
- la résolution en énergie: pour bien séparer et identifier les différents pics observés dans les spectres en énergie, la meilleure résolution possible doit être recherchée en tenant compte des autres critères;
- le coût: afin d’obtenir la meilleure efficacité de détection globale du système à budget fixe, le ratio entre l’efficacité (proportionnelle au nombre de détecteurs utilisés) et le prix des détecteurs doit être pris en compte.

D’autres critères moins cruciaux mais à prendre en compte viennent s’ajouter aux précédents, tels que la robustesse vis-à-vis des radiations neutroniques, le bruit de fond dû à l’activation, la stabilité du rendement lumineux vis-à-vis de la température ou encore le bruit de fond naturel du détecteur. Le choix des détecteurs s’est porté sur des scintillateurs NaI(Tl) de grand volume qui offrent le meilleur compromis entre les paramètres précédents. En effet, ce type de scintillateur peut être produit en grande taille ce qui permet d’atteindre une efficacité de détection élevée pour des photons de haute énergie. De plus, le phénomène de scintillation mis en jeu dans ce type de détecteur est très rapide en comparaison au processus de collection de charges qui intervient dans les semi-conducteurs. Couplés à des photomultiplicateurs

rapides, ils permettent d'atteindre une résolution temporelle de l'ordre de 2 ns, observée lors des essais en laboratoire de détecteurs prototypes réalisés par l'institut polonais IPJ (*Soltan Institute of Nuclear Studies*) pour confirmer le choix des détecteurs [83]. La résolution en énergie de ce type de détecteurs (environ 7 % pour la raie à 661,66 keV du ^{137}Cs et 5 % pour la raie à 4.439 MeV du ^{12}C) est également suffisante pour permettre de déconvoluer des spectres en énergie mesurés, comme on le verra plus loin. Enfin, les détecteurs NaI(Tl) offrent le meilleur rapport entre le prix et l'efficacité de détection.

Deux types de détecteur équipent le TNIS EURITRACK, voir Figure I - 30, correspondant à deux géométries différentes de cristaux NaI(Tl):

- des cristaux parallélépipédiques de 5"x5"x10" (12,7 cm x 12,7 cm x 25,4 cm), au nombre de 16 dans l'ensemble de détection supérieur et de 4 dans celui en transmission,
- deux cristaux cylindriques de 5"x5" dans l'ensemble émission. Ils ont été choisis de plus petite taille car leur proximité par rapport au générateur de neutrons conduit à un taux de comptage supérieur à celui des autres détecteurs.



Figure I - 30. Détecteurs gamma NaI(Tl) 5"x5" (à gauche) et 5"x5"x10" (à droite) [69].

Le rôle du détecteur neutronique placé dans l'ensemble transmission, à l'opposé du générateur de neutrons par rapport au conteneur inspecté, est de mesurer l'atténuation du faisceau de neutrons signés par la matrice de marchandises présente dans le conteneur. Dans le cas d'une trop forte atténuation du faisceau par les matériaux entourant le voxel suspecté, la mesure en 10 minutes est impossible. Ce détecteur est un scintillateur organique liquide de 5"x5", voir Figure I - 31, permettant la discrimination des événements neutroniques et gamma grâce à leurs formes d'impulsions différentes (*Pulse Shape Discrimination*).

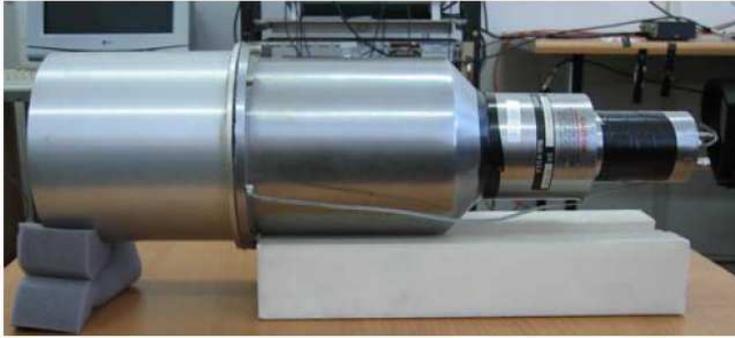


Figure I - 31. Détecteur de neutrons [69].

L’électronique d’acquisition et de traitement du signal, voir Figure I - 32, a été conçue et réalisée par la société italienne CAEN (*Costruzioni Apparecchiatur Elettroniche Nucleari*), également partenaire du projet. Elle permet de mettre en forme les signaux issus des détecteurs alpha, gamma et neutronique, de détecter les coïncidences, de quantifier et de numériser les temps de coïncidence alpha-gamma et l’énergie des photons [84]. L’ensemble est constitué :

- d’un module d’alimentation haute tension (HVPS, *High Voltage Power Supply*) comprenant une voie par détecteur NaI(Tl) (22 voies au total), une voie pour le détecteur de particules alpha et une voie pour le détecteur de neutrons;
- de 4 modules à 16 voies de discriminateurs à fraction constante (CFD, *Constant Fraction Discriminator*) pour le détecteur alpha et de 2 modules supplémentaires pour les détecteurs gamma. Leur rôle est de générer un signal logique à chaque impulsion d’amplitude supérieure à un seuil choisi, avec un repérage temporel de l’instant de détection indépendant de l’amplitude de l’impulsion;
- de deux modules de conversion charge-amplitude (QDC, *Charge to Digital Converter*). Leur rôle est de convertir le signal analogique (charge électrique) issu des détecteurs gamma en grandeur numérique, ces informations étant proportionnelles à l’énergie des photons gamma;
- d’un module de conversion temps-amplitude (TDC, *Time to Digital Converter*) pour transformer la durée séparant les détections de la particule alpha et du neutron en information numérique proportionnelle à cette durée;
- d’une unité de déclenchement (*trigger unit*), qui reçoit les signaux issus des CFD alpha, gamma et neutrons, et détecte les coïncidences alpha-gamma et alpha-neutron et envoie des signaux de déclenchement aux QDC et au TDC;
- d’une boîte de séparation et de lignes à retard, qui scinde les signaux issus des détecteurs gamma en deux voies, l’une connectée aux CFD, l’autre aux QDC. En raison de la méthode de traitement (l’unité de déclenchement pilote les différents modules), les voies reliées aux QDC doivent être retardées d’environ 100 ns et cette fonction est assurée par des câbles de longueur *ad hoc* (la vitesse de propagation des signaux dans les câbles étant typiquement de 20 cm.ns^{-1} , la longueur est de l’ordre de 20 m par voie);
- de deux cartes de traitement spécifiques, dédiées au détecteur neutronique, permettant la mesure du temps de coïncidence alpha-neutron, de l’amplitude et de la forme des impulsions à des fins de discrimination neutron-gamma;
- d’une carte d’interfaçage pour la communication entre l’électronique, via un bus VME, et le PC d’acquisition. La connexion se fait par liaison optique.

Le schéma général de l’électronique est donné en Figure I - 32.

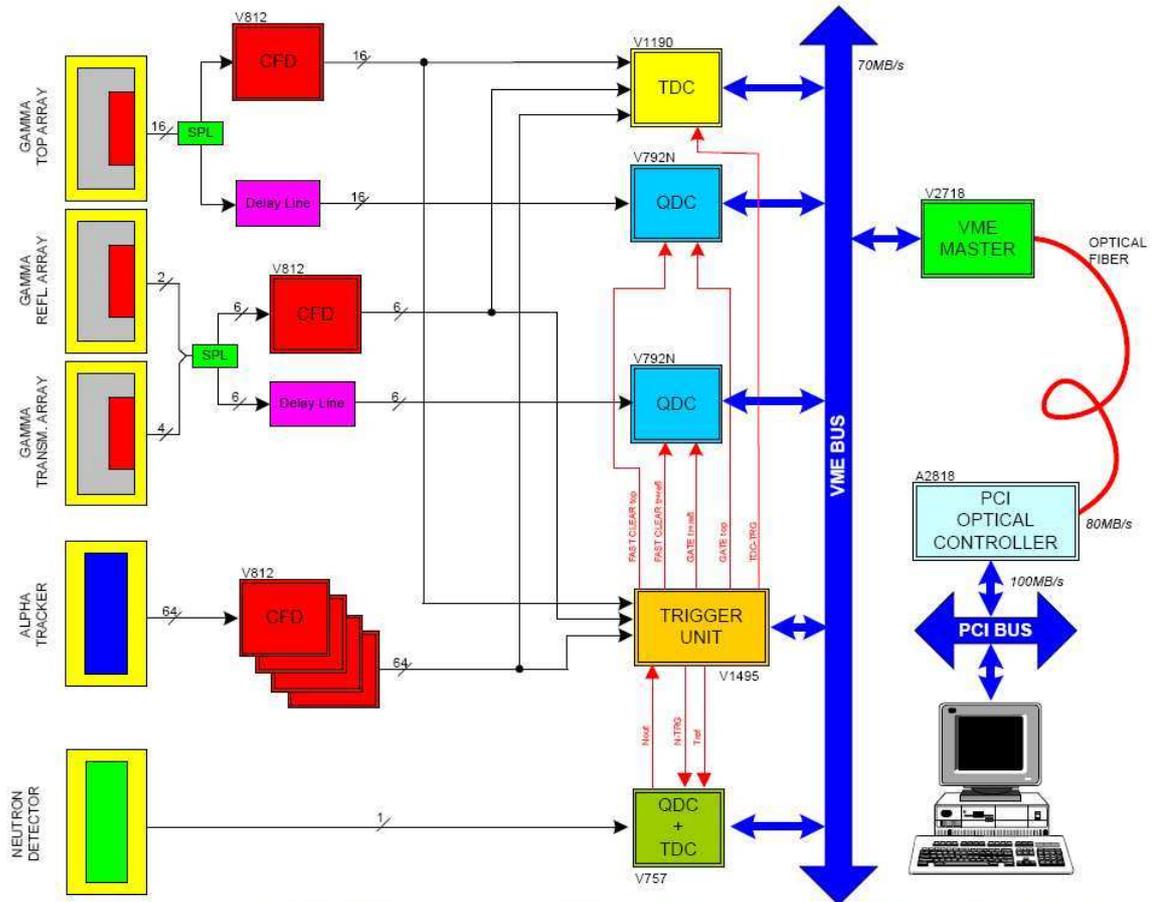


Figure I - 32. Electronique d’acquisition et de traitement de signal [69].

La Figure I - 33 présente le schéma du portique de détection intégrant le TNIS. Les différents éléments y sont identifiés. La Figure I - 34 montre le dispositif final installé au port de Rijeka (Croatie) lors des tests de calibration menés sur un conteneur d’essais.

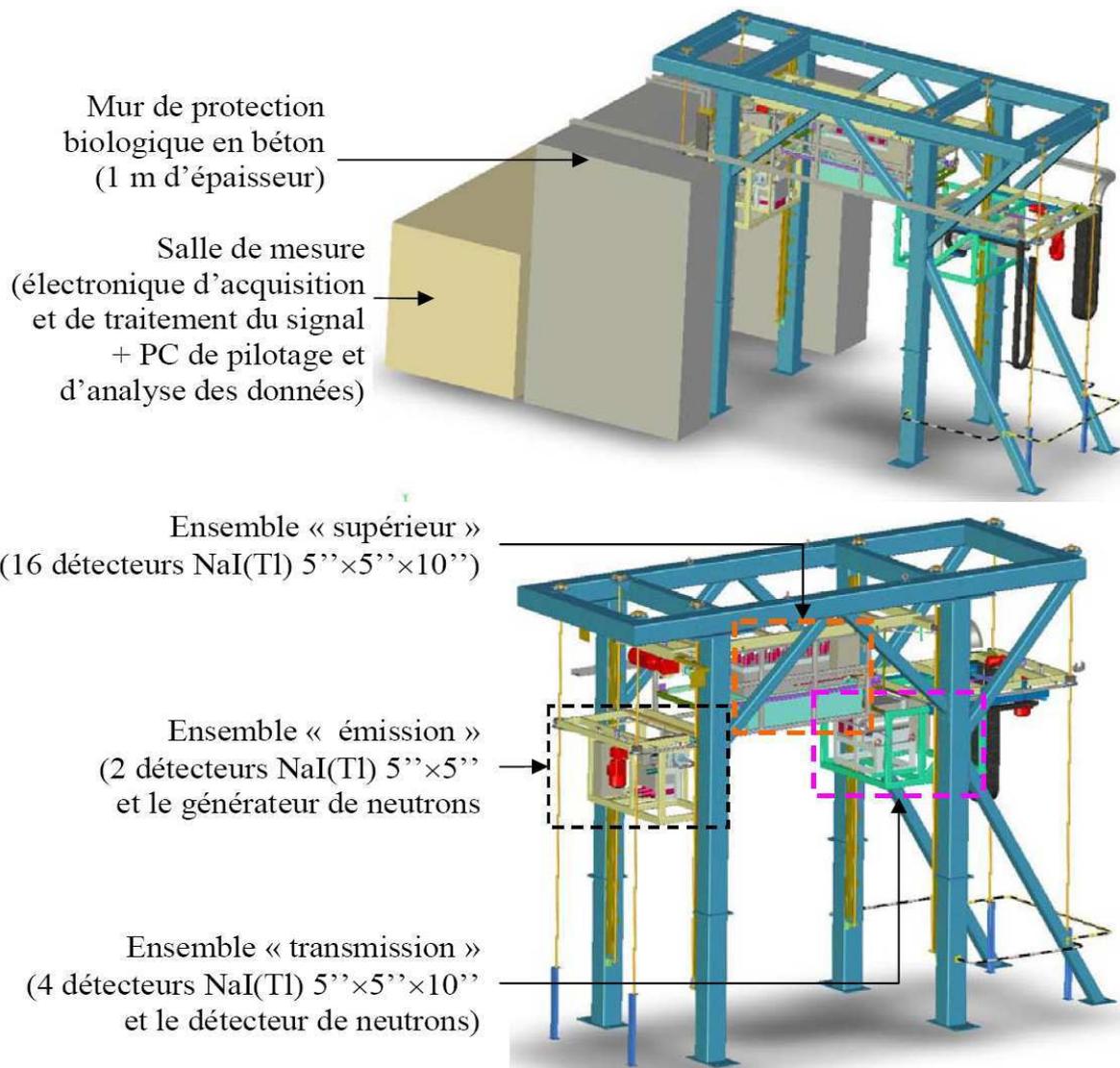


Figure I - 33. Schéma du portique final.



Figure I - 34. Le dispositif final installé dans le port maritime de Rijeka en Croatie durant les tests de démonstration.

La calibration du système, l’acquisition et le traitement de données sont l’objet de la thèse et sont décrits en détail dans les chapitres 2 et 3 qui suivent.

4 Références bibliographiques du chapitre I

- [1] A. Lyoussi et al. “Mesure nucléaire non destructive dans le cycle du combustible. Partie 1 et 2”, Technique de l’ingénieur, BN 3 405 et 406.
- [2] P. Bach, et al. Perspectives for on line analysis of raw material by pulsed neutron irradiation”, SPIE, Vol 2867, 1997.
- [3] P.C. Womble, et al. “Cement analysis using d + D neutrons”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 241, 2005, 765–769.
- [4] A.A. Naqvi, et al. “Prompt gamma analysis of chlorine in concrete for corrosion study”, Applied Radiation and Isotopes 64, 2006, 283–289.
- [5] T. Gozani, “The role of neutron based inspection techniques in the post 9/11/01 era”. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 213, 2004, p. 460.
- [6] R.C. Runkle, “Photon and neutron interrogation techniques for chemical explosives detection in air cargo: A critical review”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 603, 2009, 510-528.
- [7] S. Simanovsky et al. “Apparatus and method for detecting sheet objects in computed tomography data”, US Patent 6,026,143, February 15, 2000
- [8] Z.Ying, et al. “Dual energy computed tomography for explosive detection”, J. X-Ray Sci. Technol. 14, 2006, 235-256
- [9] G.Harding, “Explosives detection with X-ray scatter tomography”, Rad. Phys. Chem., 71, 2004, 869-881.
- [10] A.Buffler, “Contraband detection with fast neutrons”, Rad. Phys. Chem. 71, 2004, 853-861.
- [11] D. Vartsky, et al. “A method for detection of explosives based on nuclear resonance absorption of gamma rays in ^{14}N ”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 348, 1994, 688–691.
- [12] V.V. Verbinski, et al. “Vehicle and cargo inspection system”, Proc. Int. Soc. Opt. Eng. 2867, 1997, 235-238.
- [13] J.C.Overley, “Explosives detection through fast-neutron time-of-flight attenuation measurements”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 99, 1995, 728-732.
- [14] A.Buffler, et al. “Material classification by fast neutron scattering analysis”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 173/4, 2001, 483-502.
- [15] T.Gozani, et al. “Gamma ray spectroscopy features for detection of small explosives”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 505, 2003, 482-485.
- [16] S. Bernard, “La radiographie neutronique : principe, applications et perspectives », Rapport de recherche bibliographique en vue d’obtenir L’Examen Probatoire CNAM en Sciences ET Technologies Nucléaires, 2006.
- [17] M. Balasko, et al., “Composite structure of helicopter rotor blades studied by neutron and X-ray radiography”, Physica B 350, 2004,107-109.
- [18] F.C. de Beer, et al., “Neutron radiography and other NDE tests of main rotor helicopter blades”, Applied Radiation and Isotopes 61, 2004, 609-616.
- [19] E. Deschler-Erb, et al., “The complementary use of neutrons and X-rays for the non-destructive investigation of archaeological objects from Swiss collections”, Archeometry 46, 2004, 647-661.
- [20] S. Cluzeau, et al. “DIANE stationary neutron radiography system image quality and industrial applications”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 89, 1994, 432-436
- [21] S. Cluzeau, et al., “La neutronographie industrielle : application au contrôle des dispositifs pyrotechniques”, Congrès COFREND sur les essais non destructifs, septembre 1997, Nantes.
- [22] B.D. Sowerby, et al. “Recent advances in fast neutron radiography for cargo inspection”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 580, 2007, 799-802.
- [23] Y. Liu, et al. “Comparison of neutron and high-energy X-ray dual-beam radiography for air cargo inspection”, Applied Radiation and Isotopes 66, 2008, 463-473.
- [24] A. Buffler, et al. “Elemental analysis by neutron backscattering”. Proc. Int. Soc. Opt. Eng. 2867, 1997, 192–197.
- [25] F.D. Brooks, et al. “Determination of HCNO concentrations by fast neutron scattering”. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 410, 1998, 319–328.
- [26] J.-L. Ma, C. Carasco, B. Perot, E. Mauerhofer, J. Kettler, A. Havenith, Prompt Gamma Neutron Activation Analysis of toxic elements in radioactive waste packages, to be presented at the IRRMA-8 conference, 26 June - 1st July 2011, Kansas City, USA. <http://www.dce.k-state.edu/conf/irрма/>.
- [27] A.R. Dulloo, et al. “Experimental verification of modeling results for a PGNA system for nondestructive assay of RCRA metals in drums”, Applied Radiation and Isotopes 53, 2000, 499-505.
- [28] P.M. Shea, T. Gozani, et al. “A TNA explosive detection system in airline baggage”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 299, 1990, 444-448.
- [29] W.C. Lee, et al. “Thermal neutron analysis (TNA) explosive detection based on electronic neutron

- generators”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 99, 1995, 739–742.
- [30] T.Gozani, “Novel application of fast neutron interrogation methods”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 353, 1994, 635-640.
- [31] P. Bach, et al. “Chemical weapons detection by fast neutron activation analysis techniques”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 79, 1993, 605-610.
- [32] C. Carasco, et al, “Detection of Chemical Agents with a Portable Neutron Inspection System”, 2008 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, p. 660-666.
- [33] B. Pérot, et al. “Acquisition of neutron-induced gamma signatures of chemical agents”, Proceedings of the International Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators, IAEA, Vienna, Austria, 4-8 May 2009
- [34] T. Gozani, et al. “Apparatus and method of detecting contraband using fast neutron Activation”, U.S. Patent No. 5,098,640 filed 1/90, granted 3/92. .
- [35] R.C. Smith, et al. “System to detect contraband in cargo containers using fast and slow neutron irradiation and collimated gamma detectors”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 99, 1995, 733–735.
- [36] G. Vourvopoulos, et al. “A pulsed fast-thermal neutron system for the detection of hidden explosives”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 79, 1993, 585–589.
- [37] P.C. Womble, et al. “Nondestructive characterization using pulsed fast-thermal neutrons”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 199, 1995, 757–760.
- [38] T.Gozani, et al. “Advances in neutron based bulk explosive detection”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 261, 2007, 311-315.
- [39] D.R. Brown, et al. “Application of pulsed fast neutrons analysis to cargo inspection”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 353, 1994, 684–688.
- [40] D.R. Brown, R. Loveman, et al., “Three dimensional material specific imaging using energetic pulsed neutrons”, Ancore Corporation, Santa Clara, CA, USA.
- [41] T. Gozani, “Hearing on role of military reaserch and development programs in Homeland Security”, Committee on Armed Services Subcommittee on Military Research and Development, United States House of Representatives, Washington, District of Columbia, 2002.
- [42] D.R. Brown, et al., “Cargo inspection system based on pulsed fast neutron analysis”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 99, 1995, 753-756.
- [43] D. Sterllis, et al. “Air Cargo Inspection using Pulsed Fast Neutron Analysis”, <http://www-pub.iaea.org/>.
- [44] J.Rynes , et al., “Gamma-ray and neutron radiography as part of a pulsed fast neutron analysis inspection system”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 422, 1999, 895-899.
- [45] T. Gozani, “Understanding the physics limitations of PFNA - the nanosecond pulsed fast neutron analysis”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 99, 1995, 743-747.
- [46] V.Valkovic, et al., “Applications of time measurements to charged particle detection in reactions with 14.4 MeV neutrons” Nuclear Instruments and Methods, 76, 1969, 23-28.
- [47] E. Rhodes, “New developments in APSTNG neutron probe diagnostics”, Non-Intrusive Inspection Technology Session of 1995 ONDCP International Technology Symposium, 24-27Oct. 1995, Nashua, NH, USA
- [48] S. Bernard, Mise au point d’un système d’inspection neutronique pour la lutte contre le trafic illicite dans le cadre du projet EURITRACK, Mémoire présenté en vue d’obtenir le diplôme d’Ingénieur CNAM en Sciences et technologies Nucléaires, soutenu le 24 septembre 2007.
- [49] I. Lefesvre, et al. “BINGO : Briques pour une Imagerie Neutron Gamma Opérationnelle”, WISG’09, Workshop Interdisciplinaire sur la Sécurité Globale, Université de Technologie de Troyes, 27-28 janvier 2009.
- [50] A.Kuznetsov, et al., “SENNA –Device for Explosives detection based on Nanosecond Neutron Analysis”, Non-Intrusive Inspection Technologies, edited by G.Vourvopoulos, Proc of SPIE Vol. 6213, 2006.
- [51] P. Le Tourneur, “Neutron Based Techniques for the Detection of Illicit Materials and Explosives”, International Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators – VIENNA 2009. Présentation orale disponible sur http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/P1433_CD/datasets/presentations/SM-EN-17.pdf
- [52] A.V. Evsenin, et al. “Detection of Explosives and Other Illicit Materials by Nanosecond Neutron Analysis”, International Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators 4-8 May 2009, Vienna.
- [53] ING- 27 Gas-filled tube based neutron generator for activation analysis equipment: http://www.vniia.ru/eng/ng/docs/ing_27eng.pdf
- [54] C.M.Sim, et al., “Fast neutron interrogation system development for the detection of explosive materials”,

- Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 605, 2009, 65-68.
- [55] J.C. Cooper, et al., “Optimization of Time and Energy Resolution at High Count Rates with a Large Volume Coaxial High Purity Germanium Detector”, Nuclear Science Symposium Conference Record, 2001 IEEE.
- [56] A.A. Ananiev, et al. “Tagged Neutrons from Portable Neutron Generator for Detection of High Explosives and Fissile Materials in Cargo Containers”, International Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators, 4-8 May 2009, Vienna.
- [57] Conférence de presse, Barack Obama, Nuclear Security Summit, Washington, D.C., 13-13 April 2010, <http://www.whitehouse.gov/the-press-office/press-conference-president-nuclear-security-summit>
- [58] M. Lunardon, et al. “Detection of landmines by using 14MeV neutron tagged beams”, Applied Radiation and Isotopes 61, 2004, 43-49.
- [59] S. Pesente, “Development of inspection systems using 14 MeV tagged neutron beams” PhD thesis, Padova University, October 2003.
- [60] V. Valkovic, et al., “An underwater system for explosive detection”, SPIE 2007, 10-12 April 2007, Orlando, Florida, USA. Proceedings of SPIE, vol. 6540, pp. 654013.1-654013.12.
- [61] V. Valkovic, “New /future approaches to explosives/chemicals detection”, CP1099, Application of Accelerators in Research and Industry: 20th International Conference, 2009.
- [62] V. Valkovic, et al. “Environmental security of the adriatic coastal sea floor”, ANIMMA International Conference, 7-10 June 2009.
- [63] C. Eleon, et al. “Preliminary Monte Carlo calculations for the UNCOSS neutron-based explosive detector”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 619, 2010, 234-239.
- [64] C. Eleon, et al. “Experimental and MCNP simulated gamma-ray spectra for the UNCOSS neutron-based explosive detector”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 629, 2011, 220-229.
- [65] B.Nevada, “Associated particle imaging (API)”, Special Technologies Laboratory, Santa Barbara, California, May 1998
- [66] B. Perot, C.Carasco, M. Toure, W. El Kanawati, C. Eleon, “Elemental Characterization of LL-MA Radioactive Waste Packages with the Associated Particle Technique”, ANIMMA International Conference, 6-9 June 2011, Ghent, Belgium.
- [67] B. Perot, G. Perret, A. Mariani, et al., “The EURITRACK project: development of a tagged neutron inspection system for cargo containers” Proc. SPIE 6213 (2006) 621305.
- [68] B. Perot, et al., “Development of the EURITRACK tagged neutron inspection system”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 261, 2007, 295–298.
- [69] J.L. SZABO, et al. “EURITRACK : inspection neutronique pour la lutte contre le trafic illicite”, Technique de l’ingénieur IN 82, 2008.
- [70] W. El Kanawati, B. Perot et al., “Gamma-Ray Signatures Improvement of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System Database”, IEEE TNS (Transaction Nuclear Science), October 2010.
- [71] W. El Kanawati, B. Perot, et al., “Acquisition of prompt gamma-ray spectra induced by 14 MeV neutrons and comparison with Monte Carlo simulations”, ARI (Applied Radiation and Isotopes), Volume 69, Issue 5, May 2011, Pages 732-743.
- [72] M. Aupetit, et al., “Visual Analytics to Check Marine Containers in the Eritr@c Project», International Symposium on Visual Analytics Science and Technology (2010).
- [73] W. El Kanawati, et al., “Conversion Factors from Counts to Chemical Ratios for theEURITRACK Tagged Neutron Inspection System”, submitted to Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A
- [74] G. Viesti, et al. “Detection of hidden explosives by using tagged neutron beams: Status and perspectives”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 241, 2005, 748-752.
- [75] G. Nebbia, et al., “rformance of a tagged neutron inspection system (TNIS) based on portable sealed generators”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 533, 2004, 475-480.
- [76] S. Pesente, et al., “Detection of hidden explosives by using tagged neutron beams with sub-nanosecond time resolution”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 531, 2004, 657-667.
- [77] V. Valkovic et al., “Inspection of shipping containers for threat materials”, Radiation Physics and Chemistry 71, no3-4, 2004, 897-898.
- [78] D. Sudac, et al., “Inspections for contraband in a shipping container using fast neutrons and the associated alpha particle technique: Proof of principle”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 241, 2005, 798-803
- [79] G.Perret et al., “EURITRACK Tagged Neutron Inspection System design”, Journal of Physics: Conference series 41, 2006, 375-383.
- [80] A.Donzella et al., “ Simulation of a tagged neutron inspection system prototype”, Journal of Physics : Conference series 41, 2006, 233.
- [81] S.Bernard, et al., “Development of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System : from simulation to experiment”, NEMEA-3, 3rd Workshop on Neutron Measurements, Evaluations and Applications,

-
- Borovets (Bulgarie), 25-28 oct. 2006. European Commission report EUR 22794 EN, 133 (2007).
- [82] S.Pesente et al., “Progress in Tagged Neutrons Beams for Cargo Inspections”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 261, 268 (2007).
- [83] M.Gierlick, et al., “Comparative study of large NaI(Tl) and BGO scintillators for the EUROpean Illicit TRAfficking Countermeasures Kit project. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 53, no 3, 1737 (2006).
- [84] M.Lunardon, et al., “Front-end electronics and DAQ for the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, B 261, 391 (2007).

Part II – Elemental gamma-ray spectra database

Résumé : base de spectres gamma élémentaires

Les spectres des rayonnements gamma produits sur C, O, N, Fe, Pb, Al, Na, Si, Cl, Cu, Zn, Ni, Cr et Ca par des faisceaux de neutrons de 14 MeV ont été acquis avec le système EURITRACK (projet européen du 6^{ème} PCRD, de 2004 à 2008) en vue de l'inspection des conteneurs maritimes avec un seuil de coupure électronique à 0,6 MeV. Ces spectres constituent une bibliothèque de signatures élémentaires utilisées pour déconvoluer les spectres gamma résultant de l'inspection de container maritimes et de calculer la contribution relative de chaque élément dans le spectre mesuré. Sur la base des compositions élémentaires ainsi déterminées, il est ainsi possible de comparer les résultats des mesures avec les déclarations des marchandises transportées et de détecter la présence éventuelle d'explosifs, de drogues ou de produits de contrebande.

Cette nouvelle base de données a été testée sur plus de 100 inspections de camions effectuées dans le cadre du projet Eritr@C (suite du projet EURITRACK, de 2008 à 2010). La présence de pics significatifs au dessous du seuil de coupure initialement utilisé pendant EURITRACK (1,35 MeV) permet de mieux identifier des éléments comme le fer, le cuivre, le zinc et le plomb, dont les raies gamma les plus caractéristiques étaient situées en dessous du seuil.

D'autre part, des calculs MCNP ont été réalisés avec diverses bibliothèques de données, dont la plus récente disponible ENDF/B-VII.0, et comparés aux spectres expérimentaux. Un accord satisfaisant a été observé pour les principaux éléments constituant les explosifs et les drogues, ainsi que pour ceux fréquemment rencontrés dans les conteneurs réels: C, O, N, Fe, Al, et Si. Pour les autres éléments, toutefois, l'accord n'est que partiel, certaines raies gamma mesurées étant absentes du calcul ou, au contraire, la simulation fournissant des pics qui ne sont pas observés expérimentalement. Enfin, pour le zinc, le désaccord est total, les données nucléaires étant inexistantes dans les bibliothèques récentes et non fiables dans les plus anciennes.

Les calculs ont également révélé des différences très importantes selon les bibliothèques en ce qui concerne la prise en compte de la dépendance angulaire de la production de rayonnements gamma par des neutrons de 14 MeV, ainsi que sur les valeurs des sections efficaces des différentes raies gamma. Les phénomènes de modération neutronique dans les cibles épaisses utilisées pour acquérir les signatures des éléments purs, ainsi que ceux d'auto-absorption et de diffusion des rayonnements gamma, ont aussi été mis en évidence.

Au-delà des comparaisons qualitatives sur la présence ou l'absence des raies gamma, une confrontation quantitative entre expérience et simulation a été effectuée pour des éléments importants comme C, O, Al, Si, Fe et Pb. Pour les trois éléments majeurs C, N, et O permettant de différencier les matières organiques entre elles, l'accord entre calcul et expérience est correct, permettant de légitimer l'utilisation de la simulation numérique dans la partie 3 de cette thèse sur le calcul des facteurs de conversions entre les fractions de coups mesurées et les fractions chimiques recherchées.

1 Introduction

The EURITRACK inspection system based on the APT (Associated Particle Technique) utilizes the interaction of fast neutrons to detect the presence of the constituent elements of the object being inspected. This system is capable of determining the three-dimensional spatial distribution of the various elements in the interrogated volume.

Typically, neutron-gamma Monte Carlo transport codes are employed to simulate these systems. It is recognized that the accuracy of the results depends mainly on the accuracy of the nuclear libraries used in the simulations. Therefore, several evaluated cross-section libraries have been examined in order to identify the best data for the present modelling.

The prompt gamma rays produced by fast neutron interactions on the interrogated elements have been calculated to ease interpretation of the energy spectra obtained from the inspection set-up and to build a database in view of data processing.

The most important elements corresponding to the inspection set-up and to the cargo materials were selected for this study. Carbon, nitrogen and oxygen are the main components of explosives, illicit drugs and other organic materials. The inspection system being mainly composed of iron and lead, the energy spectrum of these two elements is also calculated. The transported materials can be sorted in three large families: organic, metallic and ceramic. Therefore the energy spectra of silicon and aluminium have also been calculated.

For this purpose, a simple thin spherical model was used to determine the intrinsic gamma-ray signature of these elements avoiding neutron slowing-down and photon self-absorption effects, and to evidence the anisotropy of the gamma-ray production.

Then, in order to study the target effect, calculations with thin and thick target models have been compared. The thick target models take in consideration the experimental conditions thus allowing a more realistic comparison with measurements.

An experimental database has indeed been acquired and processed, and the MCNP spectra have been compared to experiment in view to validate the model and nuclear data used in the simulation.

Finally, the experimental database has then tested by unfolding the result of more than 100 real cargo containers inspection data.

2 Study of the gamma-ray production cross sections

2.1 Numerical model

The model used to calculate the elemental response is shown in Figure II - 1. The target is a small sphere of a pure element with a diameter of 0.2 cm. It is irradiated by a mono directional 14 MeV neutron source. The gamma-ray flux is calculated in eight points distributed around the spherical target in order to check if the simulation of the gamma-ray production is isotropic.

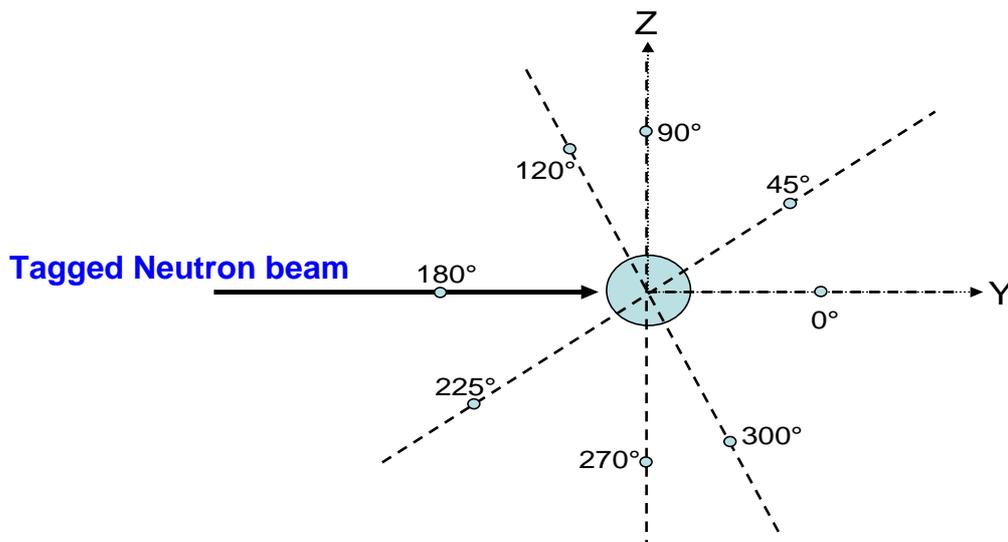
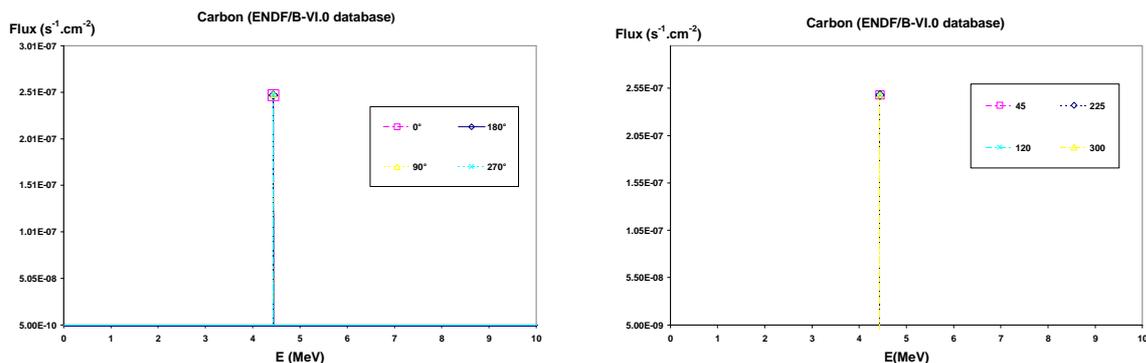


Figure II - 1. Spherical target model used to calculate the gamma ray production flux generated by 14 MeV neutrons on different elements. Dots indicate the location of the F5 point detectors.

The photon flux is calculated using the MCNP type 5 tally, which is a semi-deterministic estimation of the flux at a point detector. The gamma-ray production cross sections used for simulation are taken from the ENDF/B-VI and ENDF/B-VII libraries.

2.2 Calculated gamma-ray production cross sections

The result of the calculation is an energy histogram of the photon flux, with 1-keV energy segmentation, where the gamma rays appear as Dirac lines. The first reported results of carbon, oxygen, and nitrogen flux have been calculated in several directions (see Figure II - 2, Figure II - 4 and Figure II - 5) for the two nuclear libraries mentioned above.



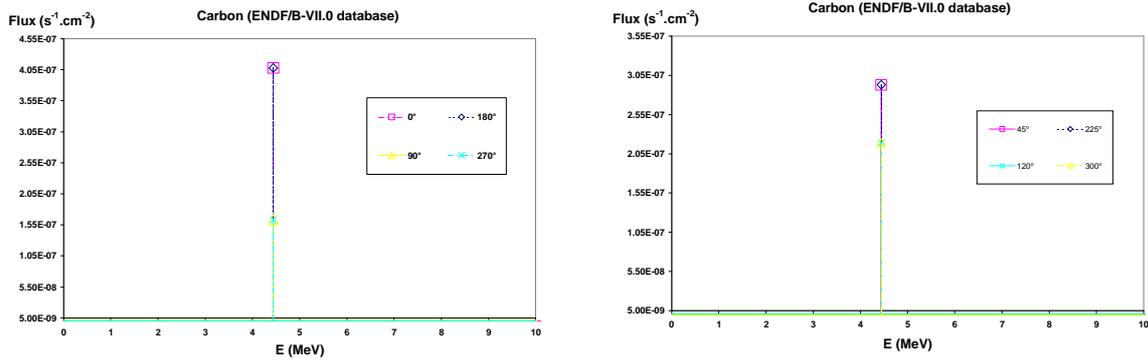


Figure II - 3. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on a carbon thin target for ENDF/B-VI.0 and ENDF/B-VII.0 libraries.

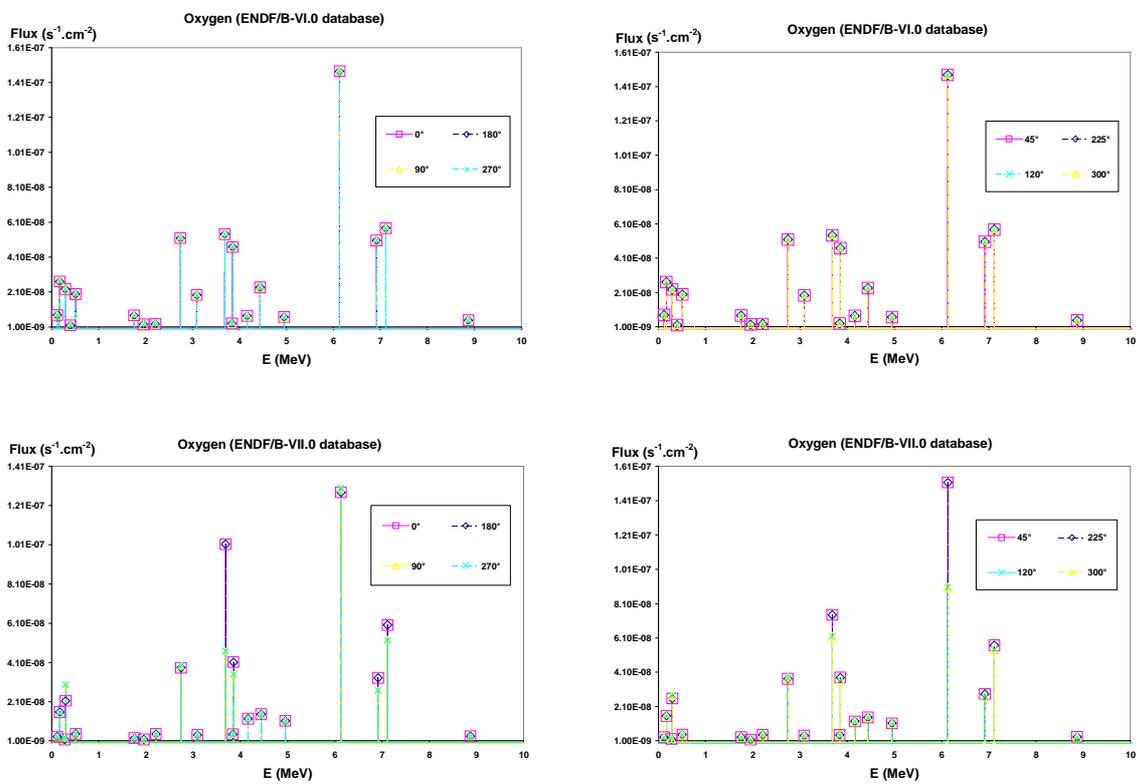
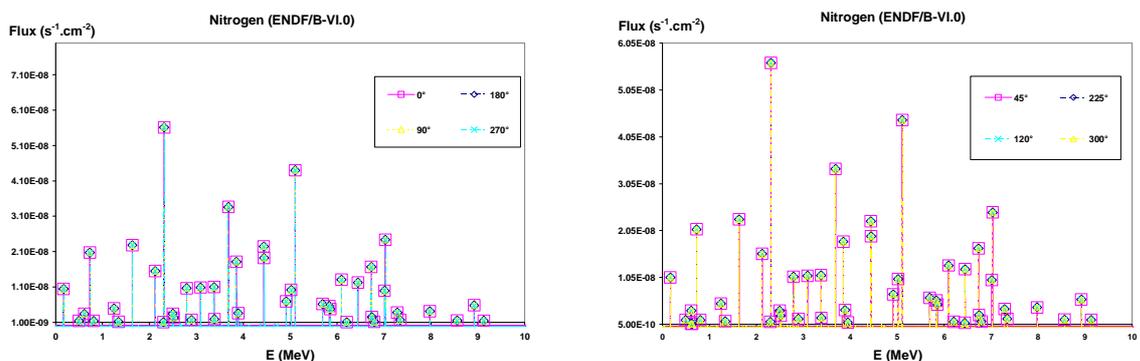


Figure II - 4. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on an oxygen thin target for ENDF/B-VI.0 and ENDF/B-VII.0 libraries.



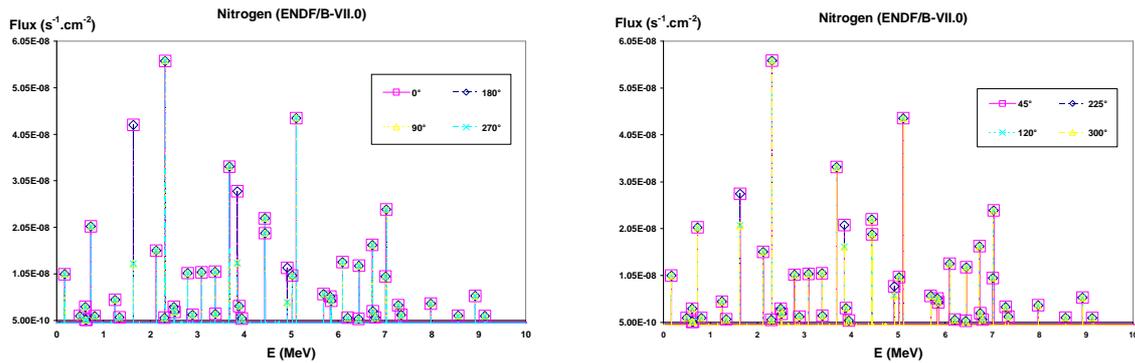


Figure II - 5. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on a nitrogen thin target for ENDF/B-VI.0 and ENDF/B-VII.0 libraries.

The gamma-ray production is isotropic with the ENDF/B-VI.0 library. However, when using the ENDF/B -VII.0 library, the intensity of the 4.44 MeV gamma ray induced by the (n, n') inelastic scattering reaction of 14 MeV neutron on the carbon nucleus, shown in Figure II - 3, depends on the gamma direction [85, 86]. The intensity of some oxygen and nitrogen gamma rays also changes with the angle (see Figure II - 4 and Figure II - 5), but other gamma rays are emitted in an isotropic way.

Carbon, oxygen and nitrogen are the basic elements for the detection of explosives and narcotics. However other elements are also important for the EURITRACK system and should be implemented in the database used for the deconvolution into simple elements, such as iron, lead, aluminum, silicon... The gamma-ray fluxes of these elements calculated with the ENDF/B-VII.0 library are reported in Figure II - 6 to Figure II - 9, showing that the gamma-ray production is isotropic for these elements in ENDF/B-VII.0. Calculations performed with ENDF/B-VI.0 and other libraries have shown the same behaviours, but the gamma-ray intensity changes according to the library.

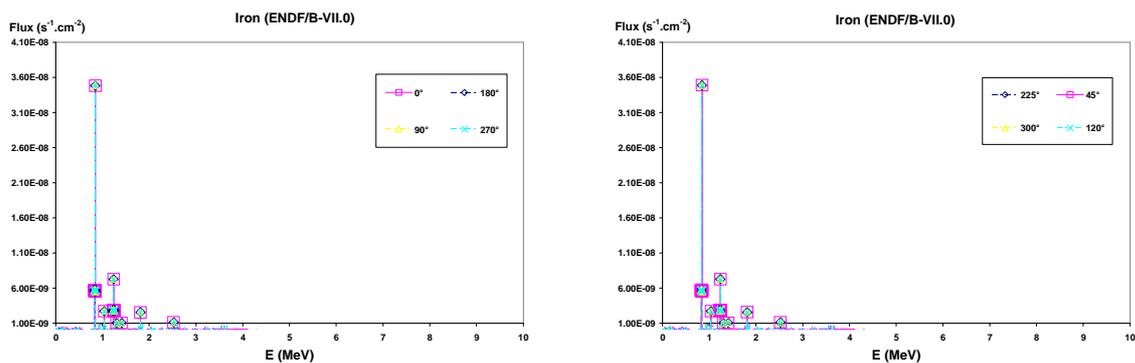


Figure II - 6. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on an iron thin target for ENDF/B-VII.0 library.

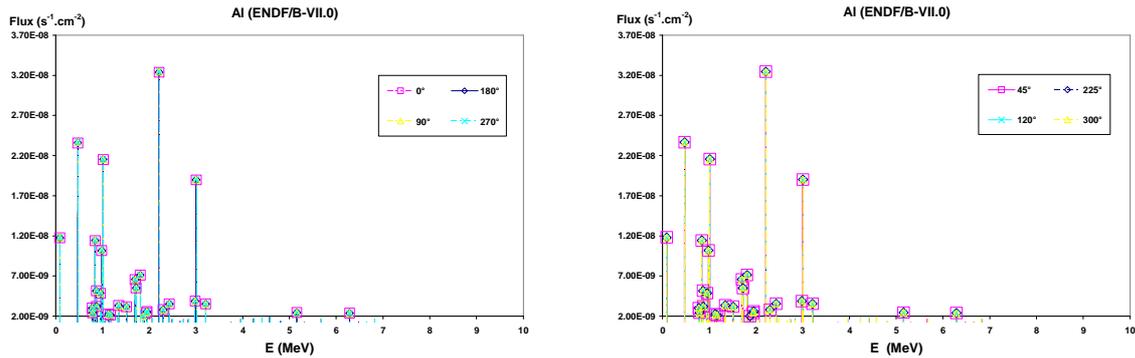


Figure II - 7. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on aluminium thin target for ENDF/B-VII.0 library.

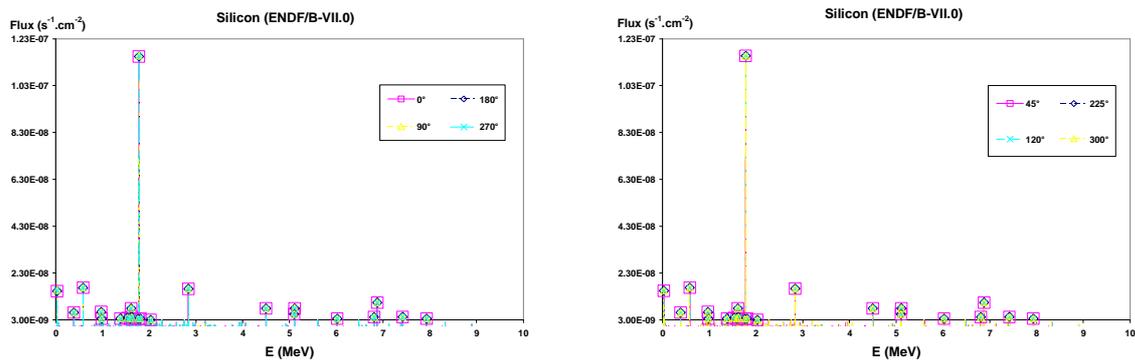


Figure II - 8. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on silicon thin target for ENDF/B-VII.0 library.

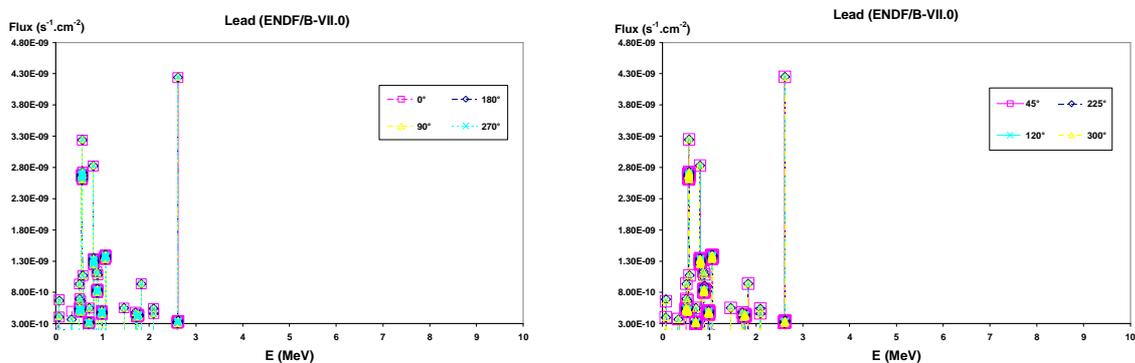


Figure II - 9. Gamma rays produced by 14 MeV neutrons on lead thin target for ENDF/B-VII.0 library.

It can be noticed that the ENDF/B-VII.0 database was processed by the Physics Department of CEA Cadarache, whereas the ENDF/B-VI.0 library was delivered with the MCNP package. In order to investigate in more details the discrepancy between nuclear databases, other libraries have been tested, such as EDF/B-V.0, ENDF/B-VI.6, ENDF/B-VI.8 and JEF 3.1. ENDF/B-VI.8 and JEF 3.1 have also been processed by CEA Cadarache.

In order to study the discrepancies between these libraries, the gamma-ray production cross section (in mb) of each line has been calculated:

$$\sigma(E_\gamma) = \frac{F_5(E_\gamma) \times 4\pi \cdot d^2 \times A}{e \cdot \rho \cdot N_a}$$

where:

- $F_5(E_\gamma)$ is the type 5 tally calculated photon flux (cm^2 per incident 14 MeV neutron);
- d is the distance (cm) between the target and the F5 point detector
- A is the atomic mass of the element constituting the target;
- ρ is the density of the target ($\text{g}\cdot\text{cm}^3$);
- e is the thickness (cm) of the target; here the diameter of the spherical target;
- N_a is the Avogadro number.

The calculated cross sections have been plotted as a function of the gamma-ray angle for each library. Figure II - 10 to Figure II - 12 show the result of calculation for the important gamma rays of organic elements. These graphs confirm that the gamma-ray production is isotropic in the ENDF/B-VI.0 library and show that anisotropy is described in the other libraries [86], but with noticeable discrepancies depending on the gamma rays. The most recent ENDF/B-VI.8, ENDF/B-VII.0, and JEF3.1 cross sections are globally similar. They have all been processed by CEA Cadarache and compilation options are perhaps different than the ones delivered with the MCNP package. In particular, the last version delivered by LANL with MCNP, ENDF/B-VI.6 shows large differences for oxygen.

On the other hand, these data can be compared to a compilation of experimental cross sections reported in [87], see Table 1. The cross sections of Figure II - 10 to Figure II - 12 are qualitatively consistent with the experimental data.

Elements	Energy (MeV)	σ compiled in [87] (mb)
C	4.439 MeV	187 ± 7.5
O	2.742 MeV	38 ± 3.9
	3.684 MeV	57.6 ± 5.4
	6.13 MeV	183 ± 31
	6.917 MeV	47.1 ± 4.5
N	1.632 MeV	21 ± 2.7
	2.313 MeV	41.7 ± 4
	5.106 MeV	45.1 ± 4.4
	7.029 MeV	31.9 ± 4.9
Pb	2.615 MeV	245 ± 18
Fe	0.847 MeV	785 ± 48
Si	1.779 MeV	403 ± 18
Al	1.809 MeV	184 ± 10

Table 1: The compilation of experimental cross sections reported in [87].

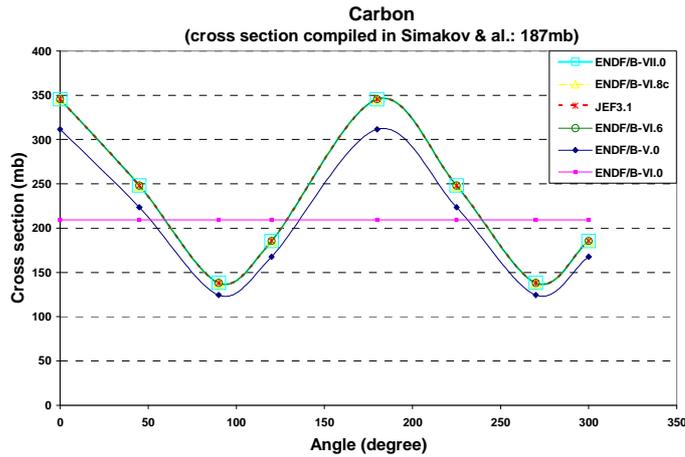


Figure II - 10. Angular distribution of the gamma-ray production cross section induced by 14 MeV neutrons for the 4.439 MeV line of carbon for several nuclear databases.

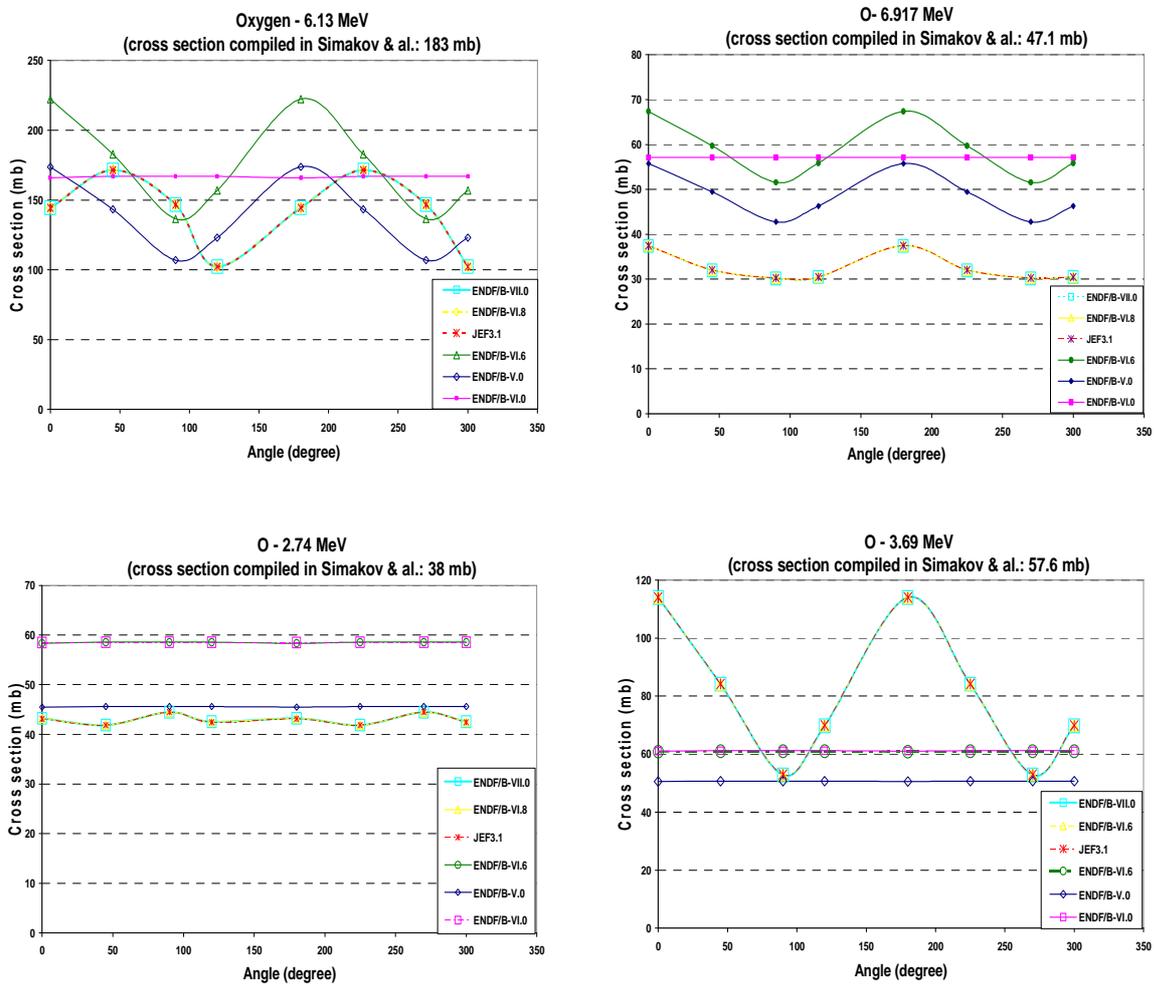


Figure II - 11. Angular distribution of the gamma-ray production cross section induced by 14 MeV neutrons for the 6.13, 6.917, 2.74, and 3.69 MeV lines of oxygen for several nuclear databases.

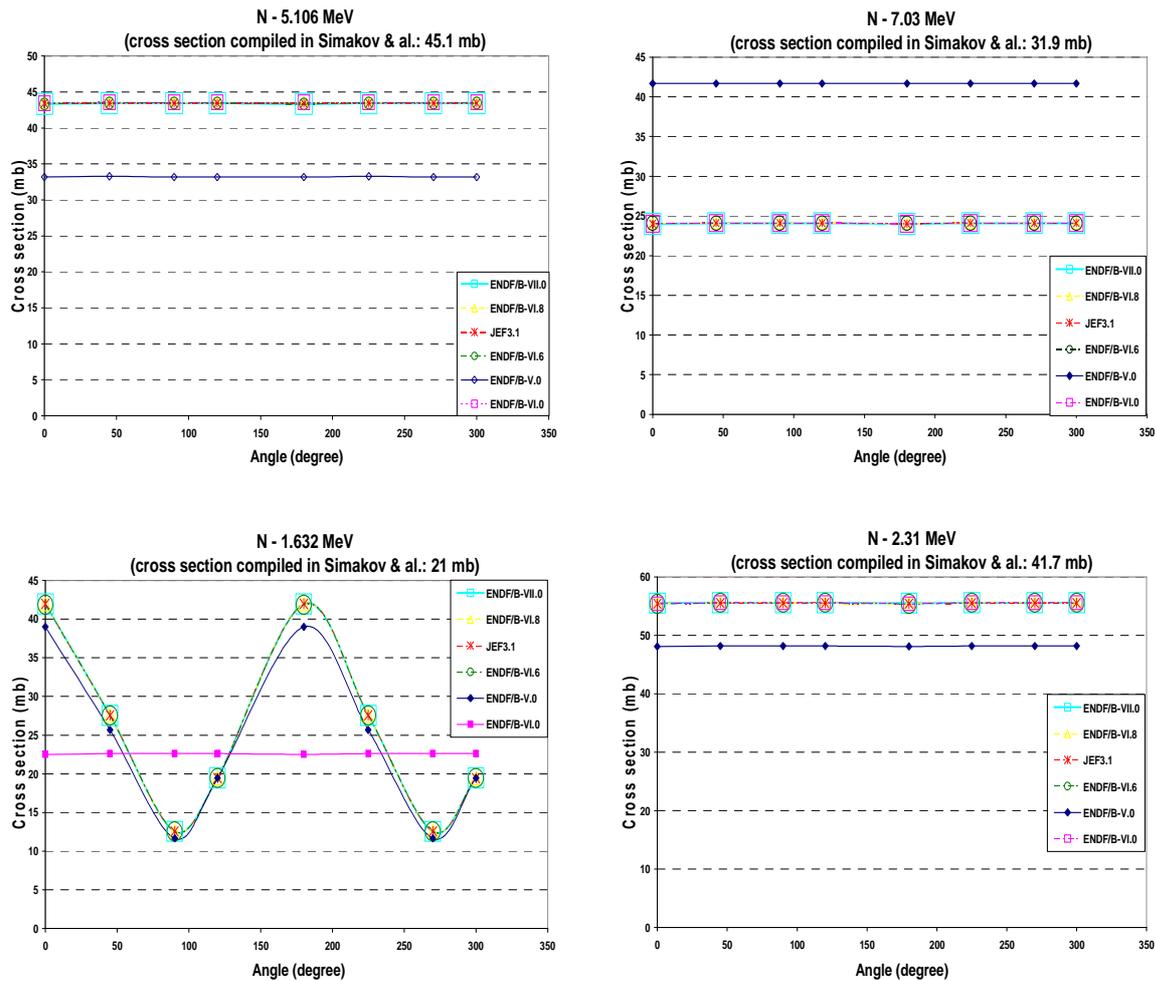


Figure II - 12. Angular distribution of the gamma-ray production cross section induced by 14 MeV neutrons for the 1.632, 2.31, 5.106 and 7.03 MeV lines of nitrogen for several nuclear databases.

Figure II - 13 shows that for iron and lead, the cross sections are isotropic. However, very large differences can be observed between the different libraries. ENDF/B-V.0 is an old library delivered by LANL in 1974, which can explain the observed large discrepancies, but the differences are surprising for ENDF/B-VI.6 and 8 (for the 2.615 MeV line of lead) and JEF3.1 (for the 0.847 MeV line of iron). The compilation reported in [87] gives 245 ± 18 mb and 785 ± 48 mb for these two lines, respectively, which is consistent with the ENDF/B-VII.0 library.

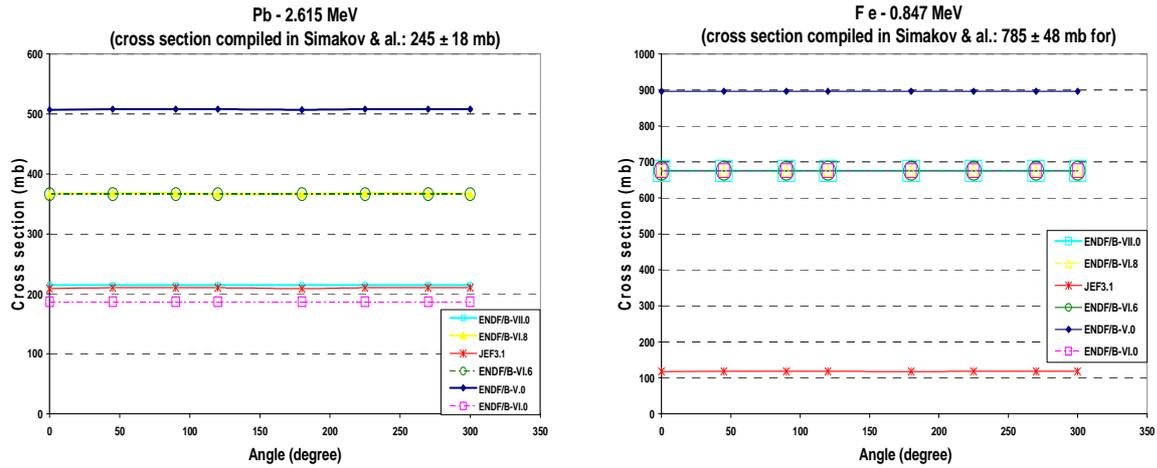


Figure II - 13. Angular distribution of the gamma-ray production cross sections induced by 14 MeV neutrons for 2.615 MeV line of lead and 0.847 MeV line of iron for several libraries.

The graphs of silicon and aluminium (Figure II - 14) show that the cross sections are also isotropic but with significant discrepancies between ENDF/B-V.0, ENDF/B-VI.0, and the grouped ENDF/B-VI.6, ENDF/B-VI.8, ENDF B-VII.0, and JEF3.1. The experimental data compiled in [87] give 403 mb for the 1.779 MeV line of Si and 184 mb for the 1.809 MeV line of Al, which is quite consistent with the recent libraries for Al but much larger for Si.

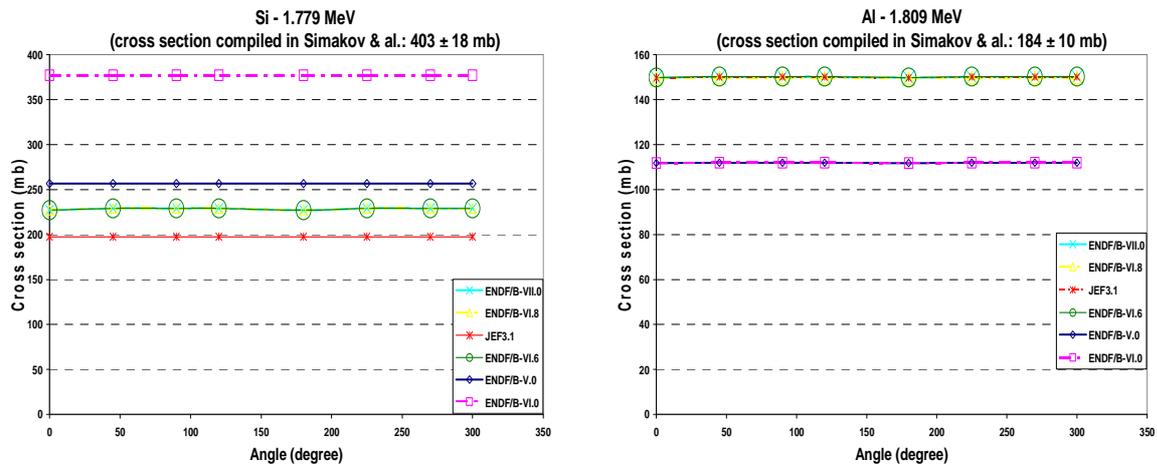


Figure II - 14. Angular distribution of the gamma-ray production cross sections induced by 14 MeV neutrons for 1.779 MeV line of Silicon and 1.809 MeV line of aluminum for several libraries.

In order to study the effect of anisotropy of the gamma-ray spectra, we compare in next section the MCNP pulse height spectra calculated with the ENDF/B-VI.0 and ENDF/B-VII.0 databases.

N.B. The result of MCNP tally 5 calculations have shown that, for some elements like iron, lead, aluminum and silicon, the flux around some gamma rays does not appear like a Dirac line but it is spread over a number of energy bins see Figure II - 15. In order to calculate the cross section, it has been necessary to integrate the fluxes over all energy bins around the gamma ray.

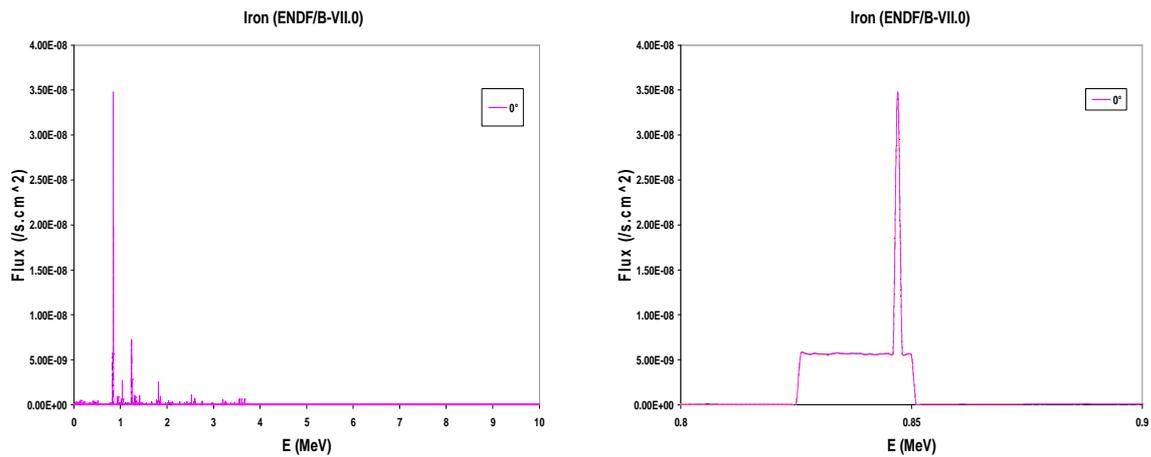
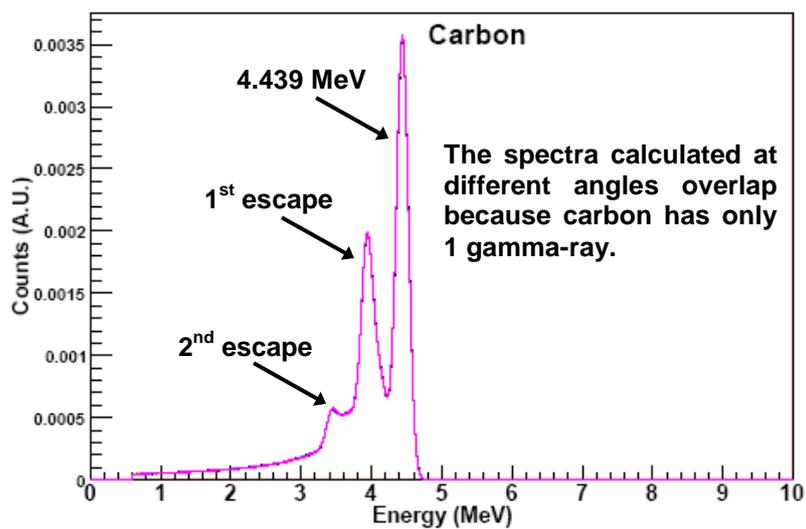
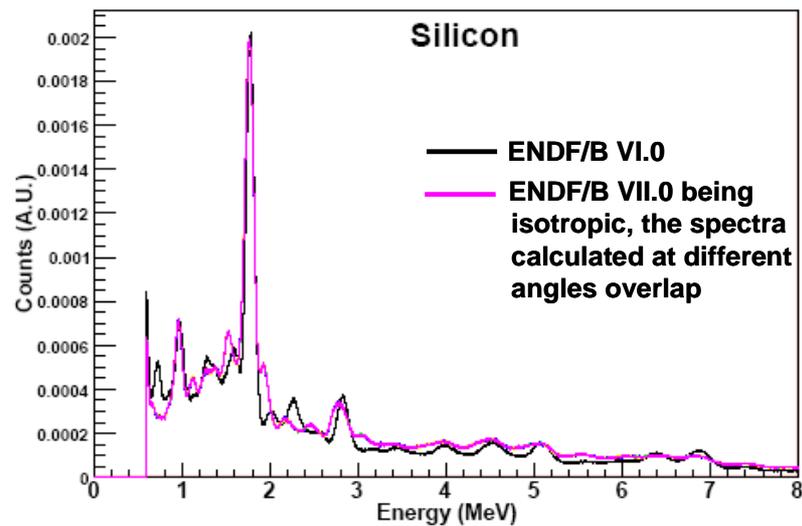
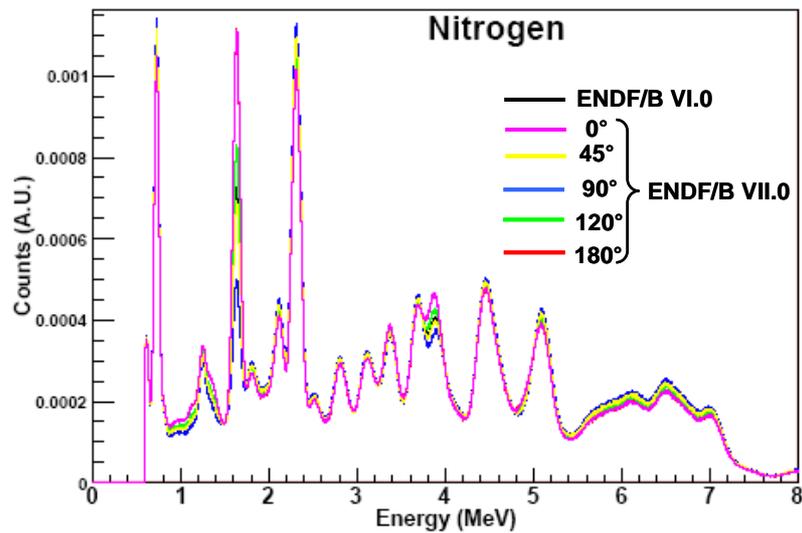
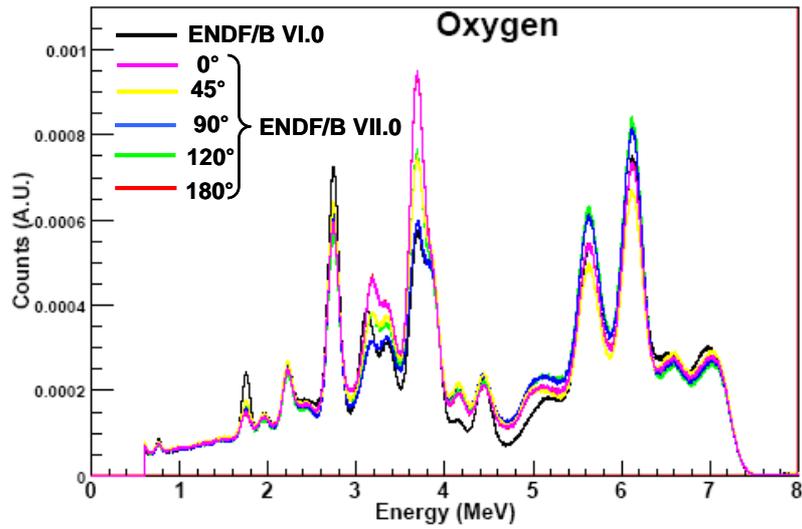


Figure II - 15. The flux of iron calculated with MCNP F5 tally at 0° (right figure), and the zoom on the 0.874 MeV line (left figure).

2.3 Calculated pulse-height spectra

In order to obtain realistic gamma-ray spectra, a second series of calculations has been performed with a type 8 pulse-height tally, by sending the previously calculated photon fluxes into a $5'' \times 5'' \times 10''$ NaI(Tl) detector. The MCNP energy spectra are reported in Figure II - 16. The energy resolution measured with such detectors [92] has been introduced with the Gaussian Energy Broadening (GEB) card of MCNP.





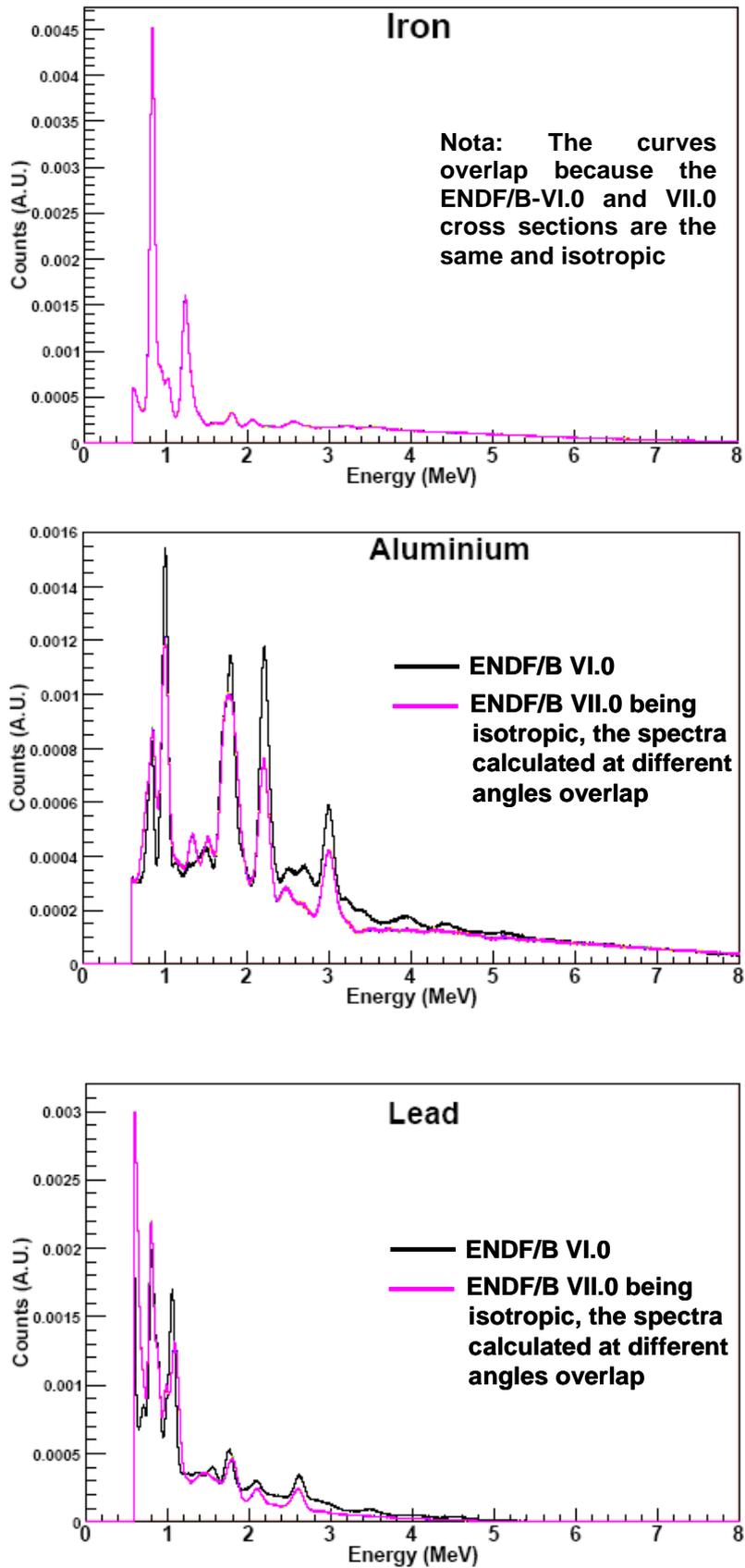
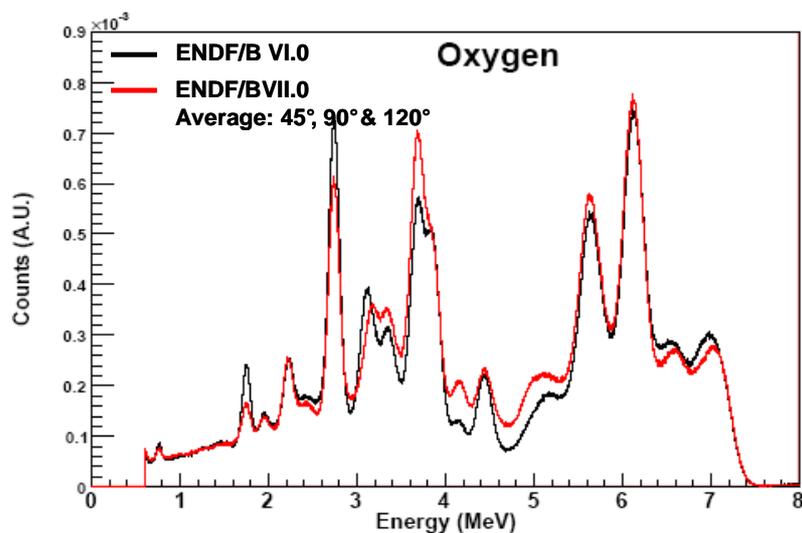


Figure II - 16. MCNP energy spectra of C, O, N, Fe, Pb, Al, and Si for ENDF/B-VI.0 and for several angles for ENDF/B-VII.0. Only 1 or 2 curves appear when several curves overlap. All spectra are normalized to a same total number of counts (equal to one).

The energy spectrum of carbon is the same for all libraries and angles because there is only one gamma ray and the associated 1st and 2nd escape peaks. All spectra are indeed normalized to the same number of counts because only the shape of the spectrum is used to unfold the inspection data into elementary fractions. Therefore, the quantitative discrepancies in the cross sections observed in Figure II - 10 have no effect on the carbon spectrum shape. The spectra of aluminum, lead and silicon show no anisotropy for the ENDF/B-VII.0 library but discrepancies can be observed with the ENDF/B-VI.0 library. For iron, the spectrum is the same for both libraries.

Concerning the oxygen and nitrogen spectra, angular discrepancies have been observed for ENDF/B-VII.0 calculations, which are also different from the results obtained with the ENDF/B-VI.0 library. An average spectrum has been calculated with the 45°, 90° and 120° angles and compared to the ENDF/B-VI.0 spectrum, because the top detectors used to acquire the experimental spectra [88], [89] are positioned between 45° and 135°. The result of this comparison is reported in Figure II - 17, showing a negligible difference for nitrogen, but a significant discrepancy for oxygen. Further, calculations in view of experiment vs. MCNP comparison will be performed with realistic angles, with ENDF/BVII.0 library, and with thick target models representing more realistically the experimental samples.



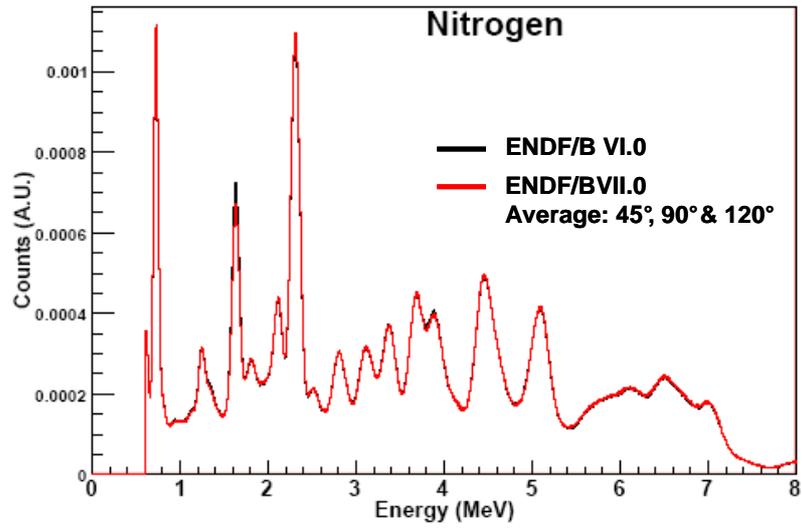
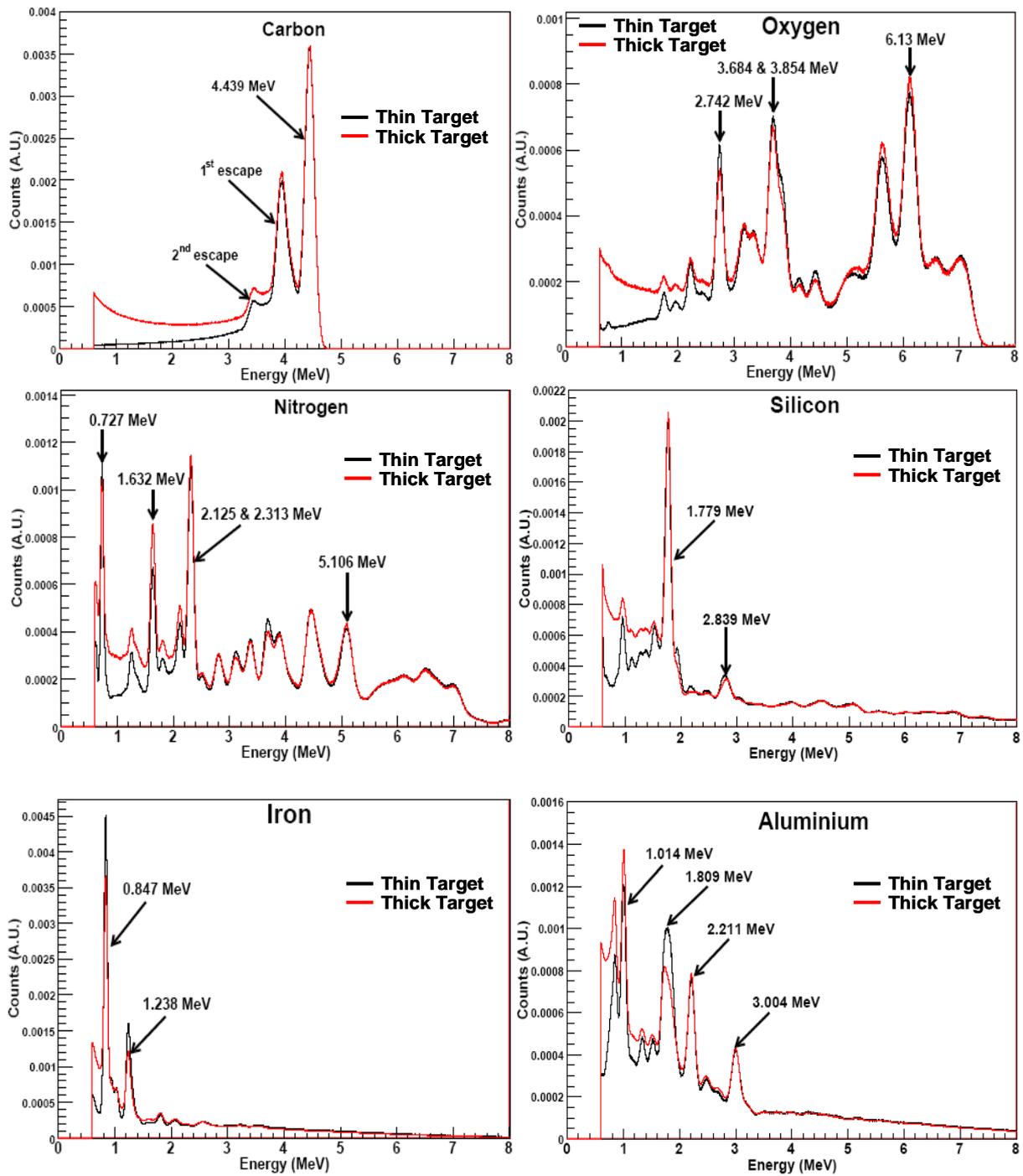


Figure II - 17. The energy spectra of oxygen and nitrogen, for ENDF/B-VI.0 (black curve), and the average of 3 angles (45°, 90°, 120°) for ENDF/B-VII.0 (red curve).



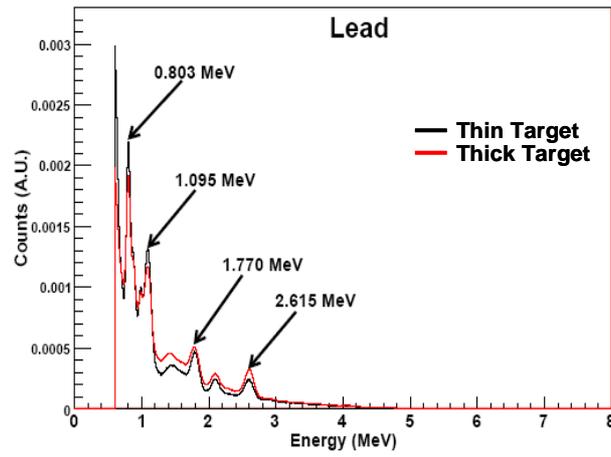


Figure II - 19. Comparison between MCNP calculation for thin and thick target models with ENDF/BVII.0. The black curves are for thin targets average spectra and the red ones are for thick targets average spectra.

4 Experiment vs. simulation

The EURITRACK inspection portal and its major components have been described in chapter 1, and in various references [90], [91], [92] and [93]. To avoid the saturation of the electronic system, the low-energy threshold was fixed to 1.35 MeV during the commissioning of the system in the laboratory, which was sufficient in the frame of the EURITRACK project because the gamma rays of the main elements of interest (C, N, and O) are located above this energy. Then the gamma-ray spectra of various elements have been measured, among which C, N, Na, Al, Si, Cl, K, Ca, Cr, Fe, Ni, Cu, Zn, and Pb [94]. This database of elemental signatures was used to process the cargo container data [95]. Due to the long and difficult process to build this database and because of schedule limitations, the threshold value was not changed up to the end of the EURITRACK project, which was concluded by the implementation of the tagged neutron inspection system (TNIS) on a truck inspection portal and by a demonstration with 52 real cargo containers, in the seaport of Rijeka, Croatia [96].

The Eritr@C project (European Riposte against Illicit TR@fficing, DG Justice Liberty Security “Prevention of and Fight against Crime 2007”), which started in 2008, has provided the opportunity to improve the EURITRACK system in view to find an industrial application. Some of the main objectives are to increase the experimental feedback, by inspecting more cargo containers, and to improve the calibration database, data processing and decision making software. In this context, tests showed that the energy threshold could be reduced to 0.6 MeV without significant count losses due to dead time in the electronics, thus allowing a better identification of the elements that have useable gamma rays below the previously used 1.35 MeV threshold but no distinctive signature above, see for instance Fe and Pb spectra reported above.

This section describes the acquisition and processing of the elemental gamma-ray spectra of major elements constituting explosives, illicit drugs and common transported goods: C, O, N, Fe, Pb, Al, Na, Si, Cl, Cu, Zn, Ni, Cr, and Ca. They were obtained by irradiating bulk samples of various materials (graphite, water, melamine, sand, zinc chloride, sodium chloride, iron, lead, aluminium, copper, chromium oxide, nickel, calcium, and zinc) with the 14 MeV tagged neutrons.

The construction of this new database of elemental spectra was a difficult and long-term task because several samples used during EURITRACK [94] were no more available (e.g. Ni and Cr₂O₃ powders) or unpractical to transfer to Rijeka (e.g. liquid nitrogen), which has required the procurement of new reference materials (e.g. melamine for nitrogen). In addition, measurements have been performed in a seaport environment with field constraints such as a limited measurement time shared between routine calibrations and truck inspection acquisitions [96]. The current database, including the list of elemental gamma-ray signatures mentioned above, has been processed and compared to Monte Carlo simulations performed with the MCNP4C2 computer code [87] and the ENDF/B-VII cross section library, using the calculation method described above and in [94]. The experiment vs. calculation comparison allows possible lacks in the nuclear data to be identified, but it is also a help to calibrate the experimental spectra and to correct physical phenomena such as the neutron scattering contribution, as will be discussed below.

4.1 Qualitative Study of elemental gamma ray spectra

Each sample is centred in the middle of an array of 64 tagged-neutron beams produced by the D-T sealed tube neutron generator. The neutron induced gamma rays are detected by the 16 NaI(Tl) top detectors as describe in Figure II - 20.

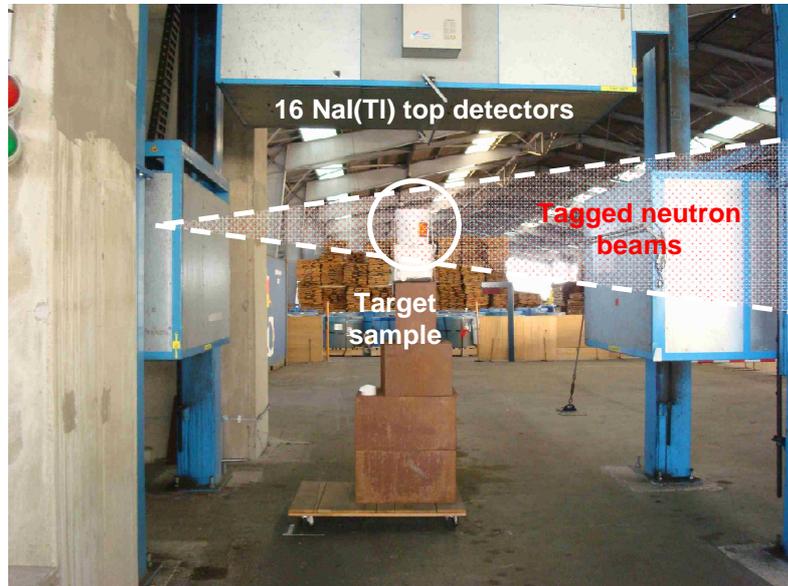


Figure II - 20. Acquisition of simple elements spectra by the EURITRACK system.

After several hours of acquisition, the gamma-ray spectrum is obtained by selecting the pixels of interest that intercept the sample from the segmented alpha detector map, and the part corresponding to the target in the neutron time of flight (TOF) spectrum as shown in Figure II - 21.

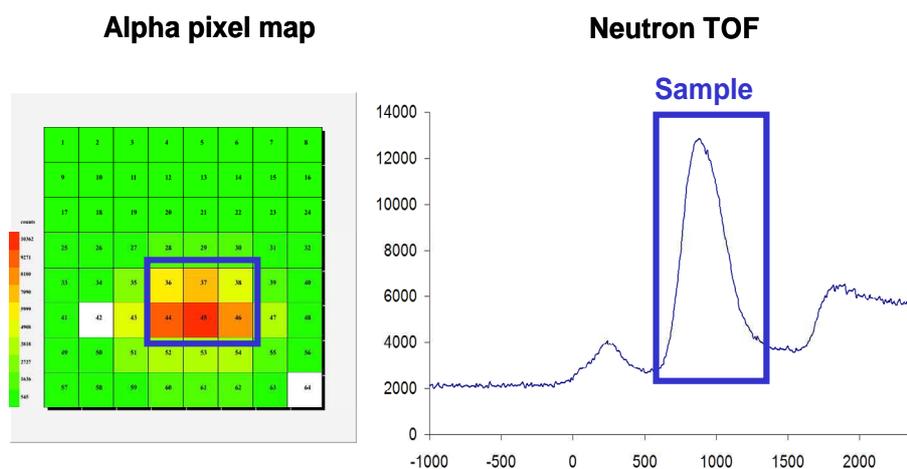


Figure II - 21. Three dimensional selection of the target volume with the segmented alpha detector (left) and neutron TOF (right).

Figure II - 22 presents a typical neutron path (or “position”) spectrum for the 5”×5”×10”

NaI(Tl) top detectors, built from the neutron TOF and alpha position information. This spectrum corresponds to the measurement performed with a graphite sample and shows the positions of neutron interactions along the tagged beam axis. The main elements of the setup crossed by tagged neutrons can be identified: the peak centred around 400 mm is due to the walls of the neutron generator and to nearby materials; the peak at 1300 mm corresponds to the graphite sample; the following broad structure is due to tagged neutrons scattered inside the sample, hitting and interacting in the NaI(Tl) crystals and surrounding materials (lead, iron) [94], [97]. For all measured samples, the gamma-ray spectra are obtained by setting a position window around the sample peak and by subtracting the events corresponding to random coincidences, which can be observed in the negative positions.

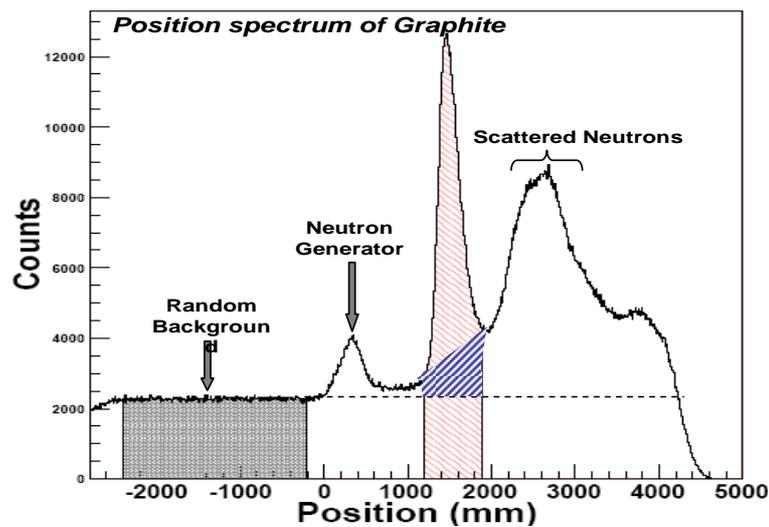


Figure II - 22. Example of neutron distance to interaction spectrum (graphite sample) recorded by the NaI(Tl) top detectors, showing the random background (grey area) and the region of the graphite sample (red dashed area). The blue dashed area corresponds to the fraction of the subtracted scattered neutrons.

The position window of the sample was chosen to minimize the scattered neutron left tail, but a subtraction of its residual contribution was necessary for some samples. The energy spectrum of scattered neutron events is shown in Figure II - 23. The small peaks are related to iron and lead materials surrounding the NaI(Tl) detectors.

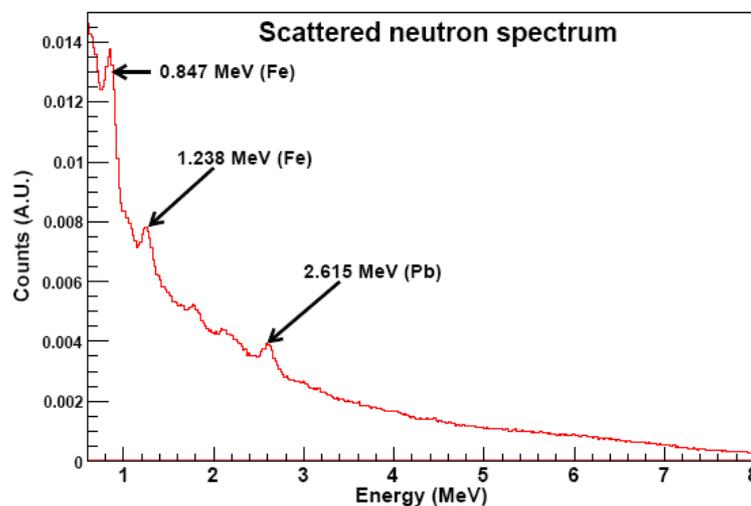


Figure II - 23. Gamma-ray spectrum of the scattered neutron measured with a wood target used for the daily energy calibration. A large number of such calibration data have been summed to obtain a good counting statistics.

The experimental energy spectrum corresponding to the graphite sample (pure carbon signature) is reported in Figure II - 24. As expected from nuclear data [87], the carbon spectrum shows no gamma ray below the former 1.35 MeV electronics threshold and therefore the new 0.6 MeV threshold will not improve carbon detection. As can be seen in Figure II - 22, it is not possible to suppress entirely the scattered neutron contribution by TOF selection. Therefore, a fraction of the scattered neutron spectrum shown in Figure II - 23 was subtracted to get a better agreement with simulation.

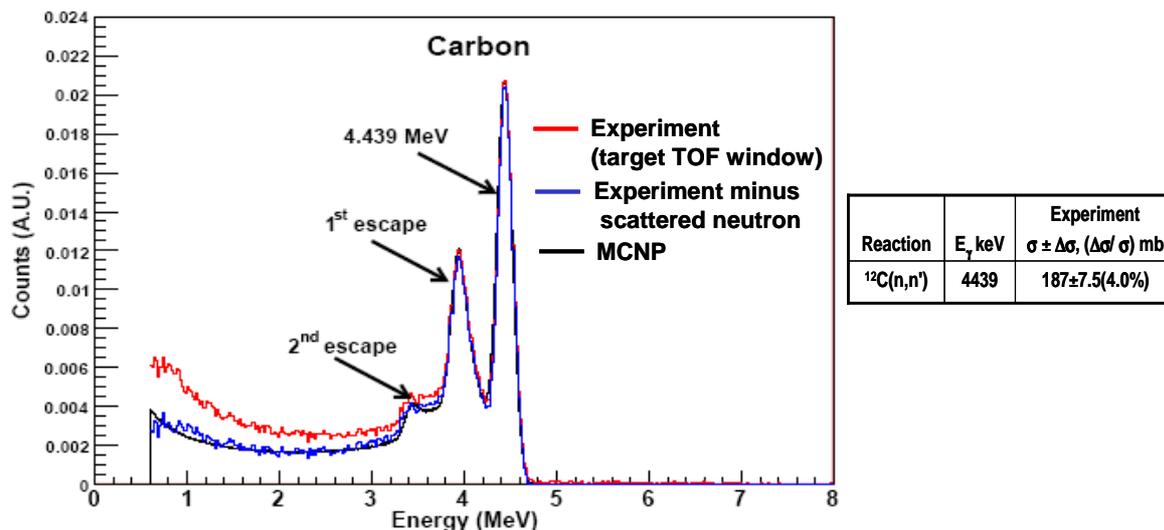


Figure II - 24. Experimental and calculated gamma-ray spectra of carbon (graphite sample), and the table of cross section compiled in Simakov & al.

It was generally observed in the TOF (or “position”) spectra that the largest scattered neutron contributions occurred with samples containing hydrogen (e.g. water, melamine, wood) or carbon, (see Figure II - 25), due to large elastic scattering cross sections. For these samples, the agreement with calculation also required the largest scattered neutron fraction to be subtracted, while this contribution is much reduced for metallic samples in which no subtraction of scattered neutron is needed.

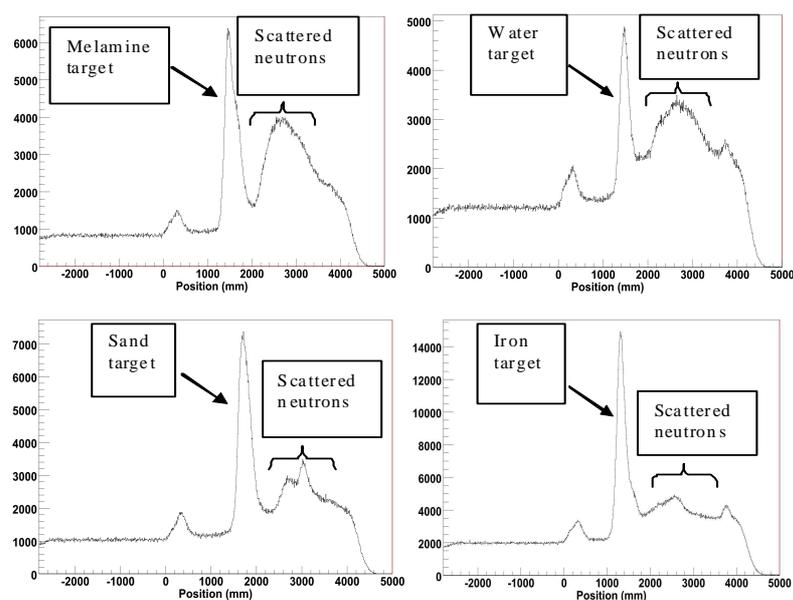


Figure II - 25. “Position” spectra showing the larger contribution of scattered neutrons for materials containing hydrogen (melamine, water).

Figure II - 26 shows the spectrum associated to oxygen measured with a water sample (reminder: fast neutrons do not produce gamma rays on hydrogen), after subtraction of the random background. As for carbon, there is no useable information below the former 1.35 MeV threshold; hence its identification will not be directly improved. As already mentioned, the EURITRACK system is located in a seaport environment and measurements must comply with field requirements. Thus, acquisition times are shorter and counting statistics are not as good as for previous spectra measured in the laboratory [94]. In addition, a large scattered neutron contribution was subtracted to fit to the calculated spectrum.

On the other hand, the significant discrepancy between experiment and simulation for the 3.089 MeV gamma ray of oxygen has already been observed by other groups working in the same field [98] and [99].

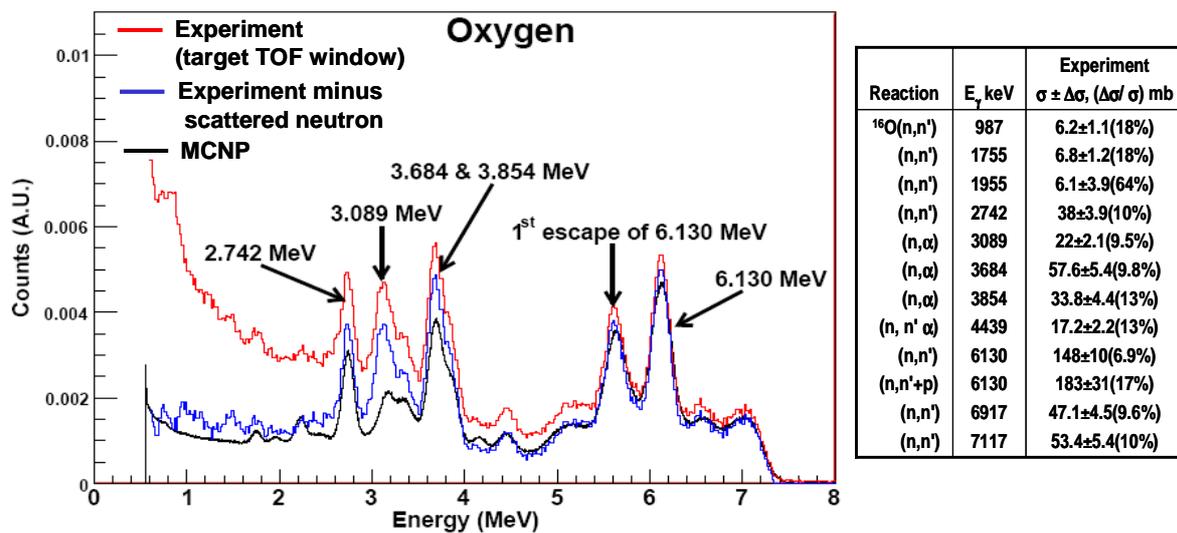


Figure II - 26. Experimental and calculated gamma-ray spectra of oxygen (water sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Plastic containers filled with a melamine ($\text{C}_3\text{H}_6\text{N}_6$) powder have been used to determine the nitrogen spectrum. Since melamine contains carbon, this last should be subtracted from the melamine energy spectrum in order to get the pure nitrogen contribution. The subtraction is not straightforward since carbon and nitrogen have gamma rays at 4.439 MeV and 4.442 MeV, respectively, which cannot be separated due to an insufficient energy resolution of the NaI(Tl) detector. Its FWHM (Full Width at Half Maximum) is indeed roughly 5% at this energy, i.e. about 200 keV [92]. The amount of carbon to be subtracted from the melamine spectrum was determined on the basis of a comparison with the carbon-free spectrum measured with liquid nitrogen during the laboratory campaign [94], the subtracted fraction is 0.27. The amount of carbon that was subtracted allows to keep a good agreement (above the former 1.35 MeV threshold) between the nitrogen spectrum measured with melamine and the one previously acquired with liquid nitrogen.

Figure II - 27 presents the low-energy threshold spectrum associated to nitrogen, where a gamma ray at 0.727 MeV due to the $^{14}\text{N}(n,n')$ reaction clearly appears below the earlier 1.35 MeV threshold, which may improve nitrogen detection. As previously, counting statistics is not as good as in the laboratory, but it is sufficient to test the new database with the 0.6 MeV threshold.

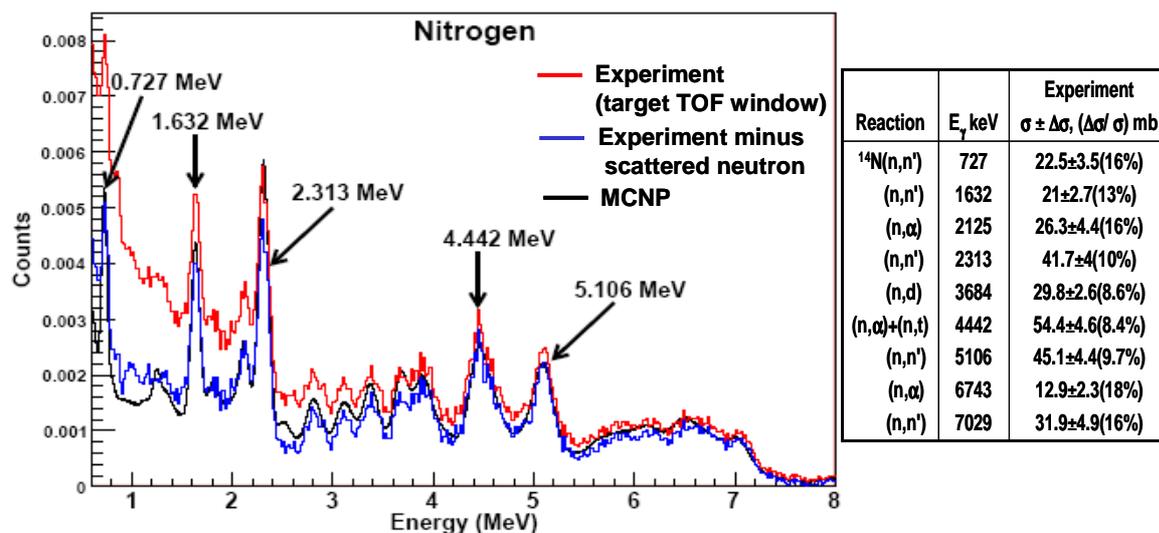


Figure II - 27. Experimental and calculated gamma-ray spectra of nitrogen; (melamine sample after subtraction of the carbon and neutron contributions), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

The experimental spectrum of an iron sample is reported in Figure II - 28. Two intense gamma rays can be observed at 0.847 and 1.238 MeV due to the (n,n') and (n,2n) reactions on ^{56}Fe and ^{57}Fe . As they were cut by the previous 1.35 MeV electronic threshold, iron identification should be greatly improved with the new database. No subtraction of the scattered neutron contribution was performed here, the agreement with simulation being satisfactory. It can be noticed that the energy resolution used to broaden the gamma lines in the simulation is slightly optimistic compared to the mean resolution of the top NaI(Tl) detectors observed in the measured spectrum.

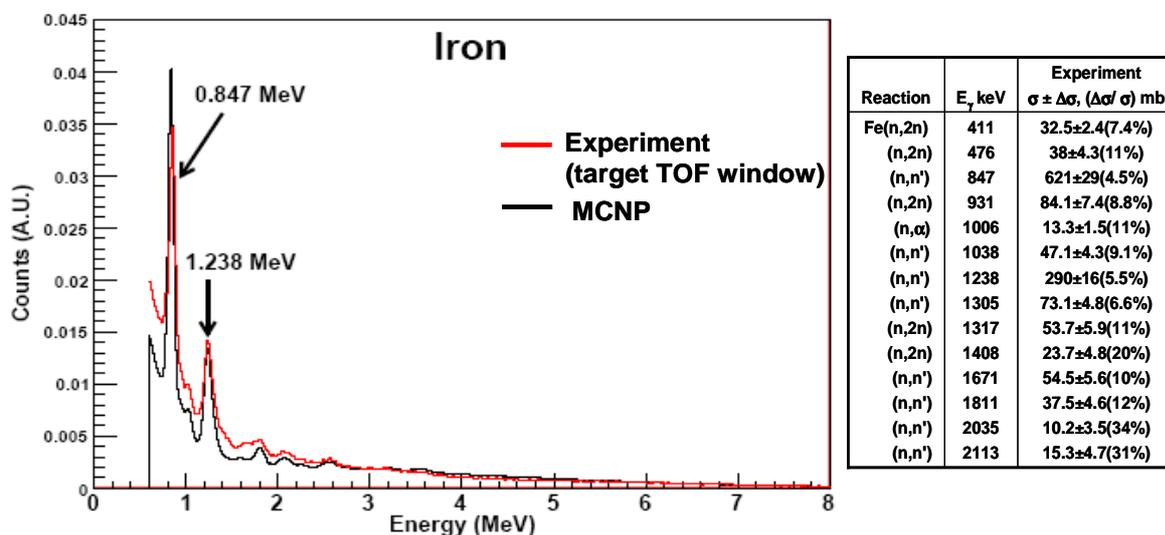


Figure II - 28. Experimental and calculated gamma-ray spectrum of iron (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

The spectra of Al, Cu, Ni, Ca, Zn, and Pb were obtained by irradiating pure samples (metallic blocks, powders, or granulates). However, to obtain the pure signature of the other elements (Si, Cr, Cl, and Na), it was necessary to subtract parasite contributions since pure elemental targets were not available. For instance, sand (SiO_2) and chromium oxide (Cr_2O_3) were used to obtain the signature of silicon and chromium, respectively, after subtracting the oxygen spectrum. A zinc chloride (ZnCl_2) powder was used to provide, after subtraction of zinc, the

chlorine spectrum, which was itself subtracted to a sodium chloride (NaCl) salt measurement to obtain the sodium signature. Owing to these subtractions, the spectra are less precise and reliable than those obtained with pure element materials. In addition to the worsening of counting statistics, neutron slowing down slightly differs from one sample to the other, which may introduce distortions when subtracting a gamma-ray spectrum acquired with a different neutron energy spectrum.

Figure II - 29 shows the silicon spectrum obtained with a sand (SiO_2) sample after subtraction of the oxygen signature, showing only a small additional peak below 1.35 MeV. The agreement with calculation is satisfactory and it is not necessary to subtract scattered neutron contribution to the experimental spectrum.

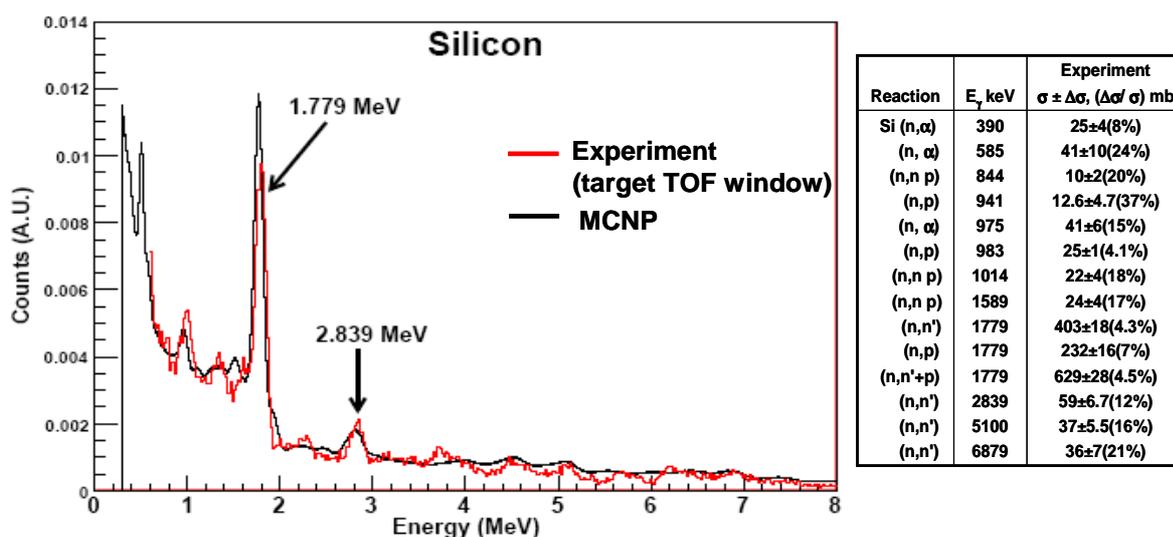


Figure II - 29. Experimental and calculated gamma-ray spectra of silicon; (SiO_2 sample, after subtraction of the oxygen contribution), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 30 shows several gamma rays below 1.35 MeV useable for zinc identification. No scattered neutron contribution was subtracted. On the other hand, all recent nuclear data libraries useable in MCNP lack gamma-ray production cross sections for zinc. Only an old database includes unrealistic data, therefore no calculated spectrum is presented. There is also no experimental data in [87].

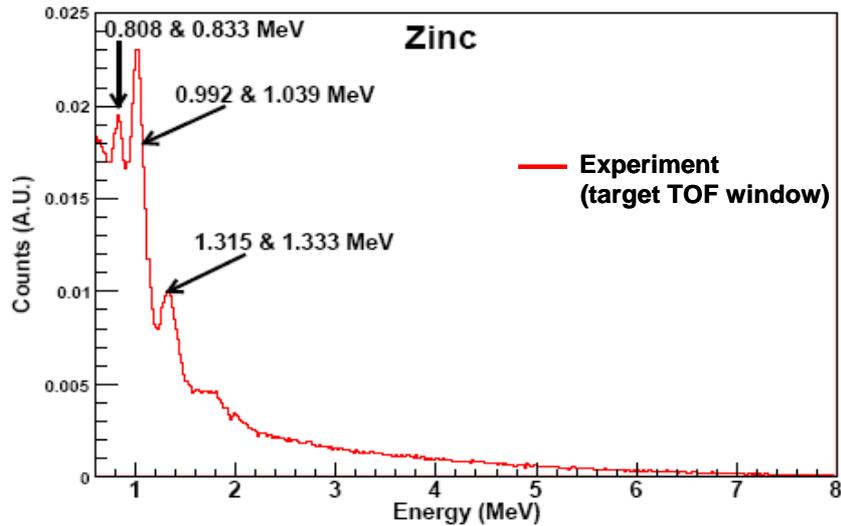


Figure II - 30. Experimental gamma-ray spectrum of zinc (pure sample).

Figure II - 31 shows the chlorine spectrum obtained with a $ZnCl_2$ powder after subtraction of the zinc signature, as well as smaller carbon (plastic container) and scattered neutron contributions. Counting statistics in the net spectrum are not excellent due to these necessary subtractions. Peaks appear below 1.35 MeV, Peaks appear below 1.35 MeV, some of them near 0.8 and 1 MeV being possibly associated to a residual zinc contribution, because they are not present in the calculation or in the data reported in [16]. However, the subtraction of a larger zinc fraction leads to unrealistic hollows (“negative peaks”). The reason could be small differences in the energy calibration between the $ZnCl_2$ and Zn acquisitions, which could not be determined precisely enough owing to the insufficient counting statistics on each detector.

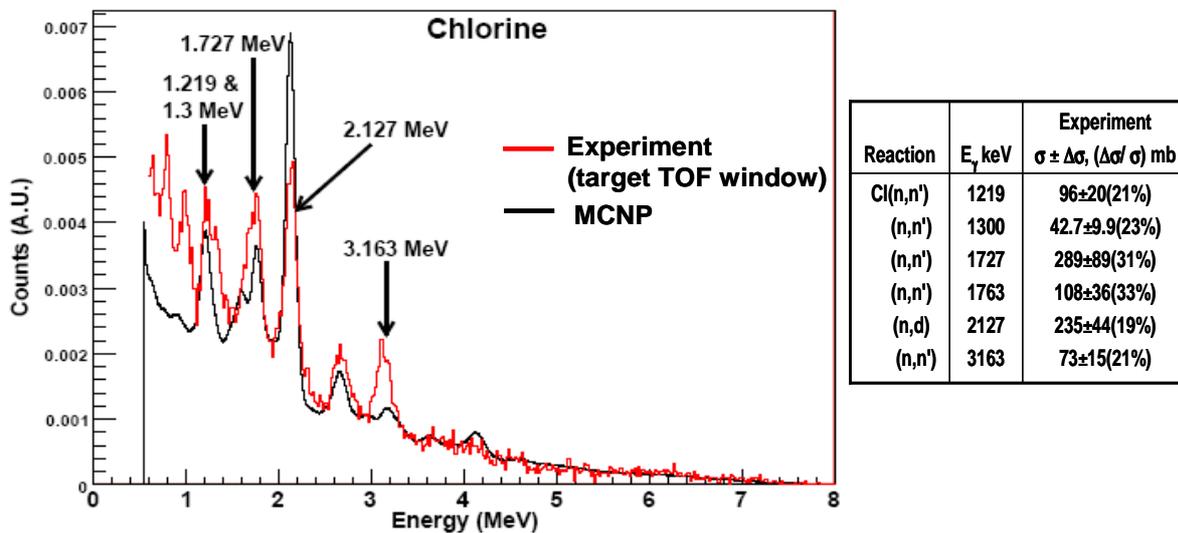


Figure II - 31. Experimental and calculated gamma-ray spectra of chlorine ($ZnCl_2$ sample, after subtraction of the zinc and neutron contributions), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 32 shows the sodium signature obtained with NaCl salt, after subtraction of the chlorine signature, as well as a small scattered neutron contribution. As for chlorine, statistics in the net spectrum is not excellent. A significant peak is present at 1.275 MeV, below the former 1.35 MeV threshold, but the agreement with calculation is not satisfactory.

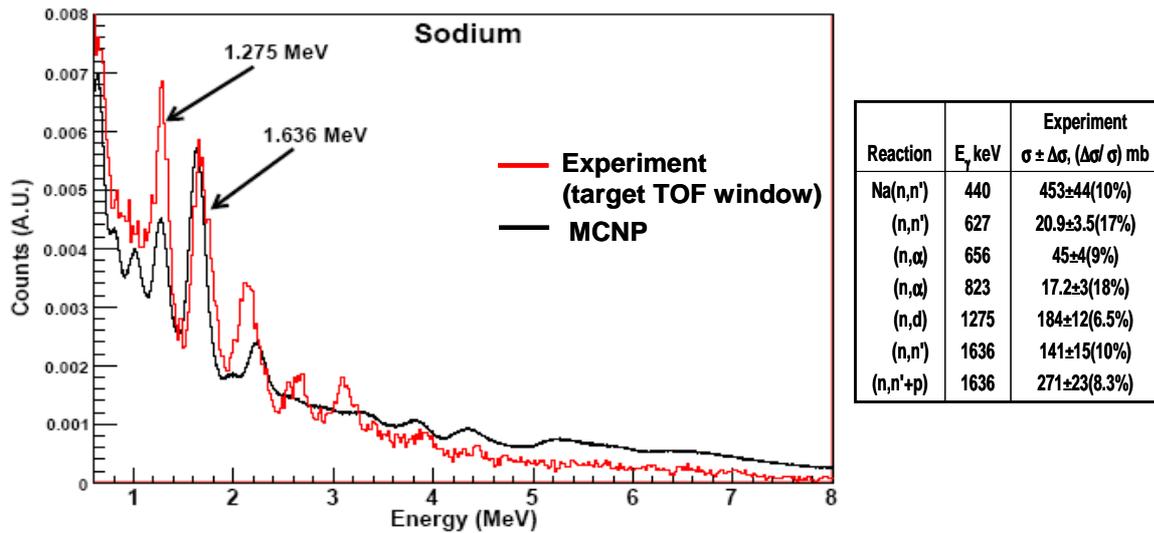


Figure II - 32. Experimental and calculated gamma-ray spectra of sodium (NaCl sample, after subtraction of the chlorine and neutron contributions), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 33 shows also gamma rays below 1.35 MeV useable for aluminium identification, and a quite correct agreement between experiment and calculation. No scattered neutron contribution was subtracted to the experimental spectrum.

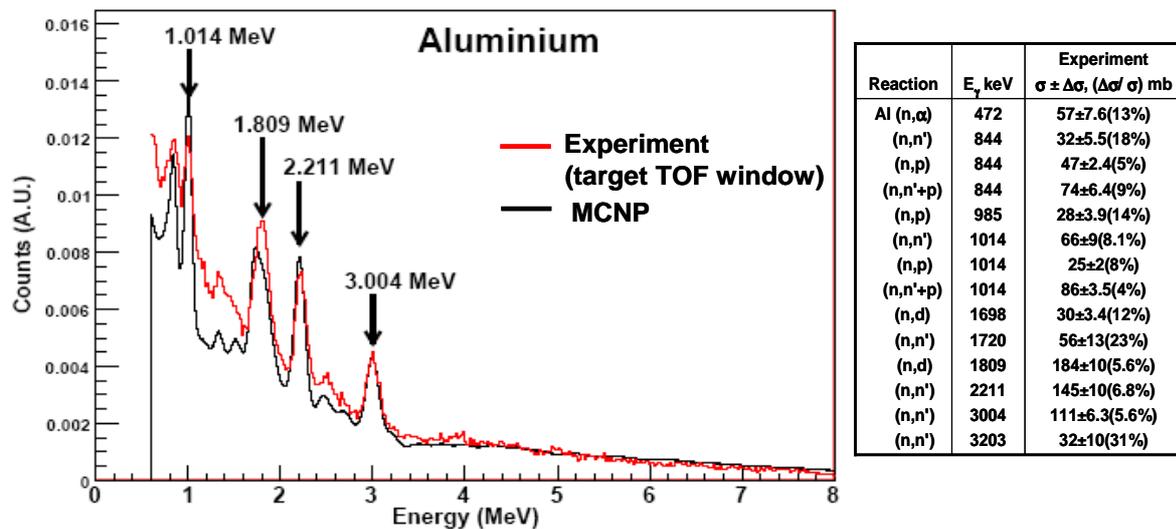


Figure II - 33. Experimental and calculated gamma-ray spectra of Aluminium (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 34 shows a significant peak below the old 1.35 MeV threshold (0.803 MeV gamma ray), which will improve lead identification. On the other hand, the agreement between experiment and calculation is not satisfactory, especially for the 1.095 MeV peak expected from simulation and literature [87] but not observed here. No scattered neutron contribution was subtracted to the experimental spectrum.

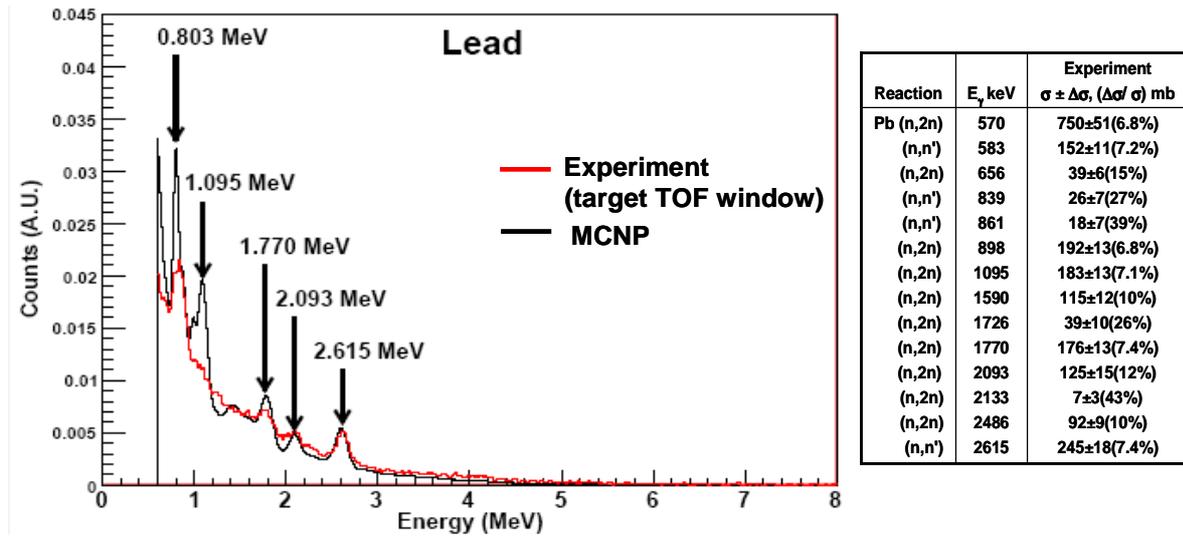


Figure II - 34. Experimental and calculated gamma-ray spectra of lead (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 35 shows the chromium spectrum obtained with a Cr_2O_3 sample after subtraction of the oxygen pure signature, showing additional peaks at 0.935 and 1.334 MeV, which were totally or partially cut by the former 1.35 MeV threshold. The agreement with calculation is satisfactory. No scattered neutron contribution was subtracted to the experimental spectrum.

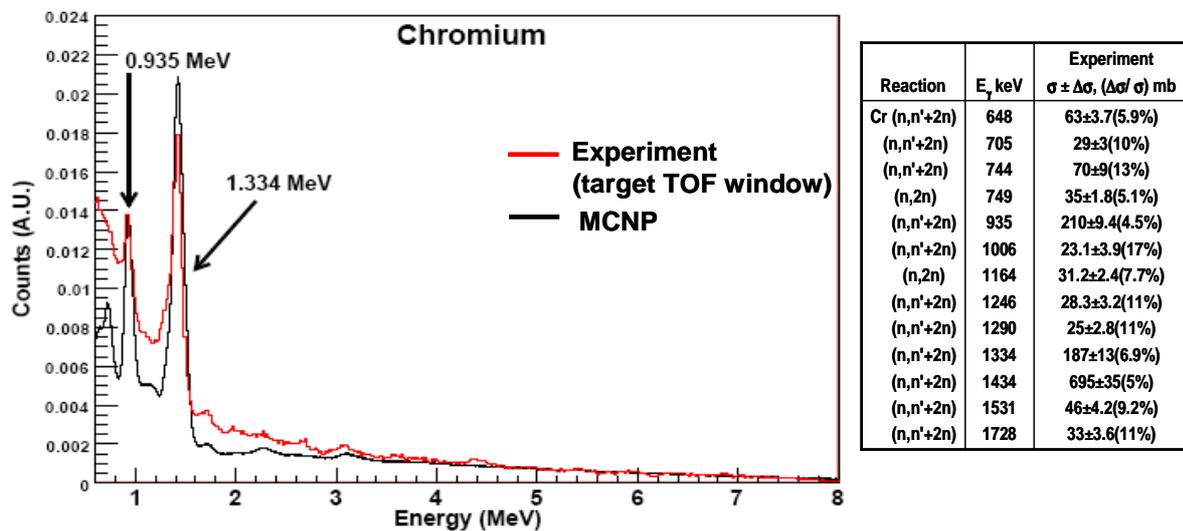


Figure II - 35. Experimental and calculated gamma-ray spectra of chromium (Cr_2O_3 sample, after subtraction of the oxygen contribution), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 36 shows several gamma rays useable for copper identification, which were formerly cut by the 1.35 MeV electronic threshold. The identification of copper will be significantly improved with the new database. However, the agreement between experiment and calculation is not excellent. Copper gamma rays at 1.115, 1.163 and 1.179 MeV are reported in [87]; the MCNP calculation provides a peak that seems to be centered on the 1.115 MeV line. In contrast the experimental spectrum shows a broad peak more consistent with the data of [87], apparently gathering the 1.115, 1.163 and 1.179 MeV gamma rays, which cannot

be separated due to an insufficient energy resolution of the NaI(Tl) detector (~ 60 keV). No scattered neutron contribution was subtracted to the experimental spectrum.

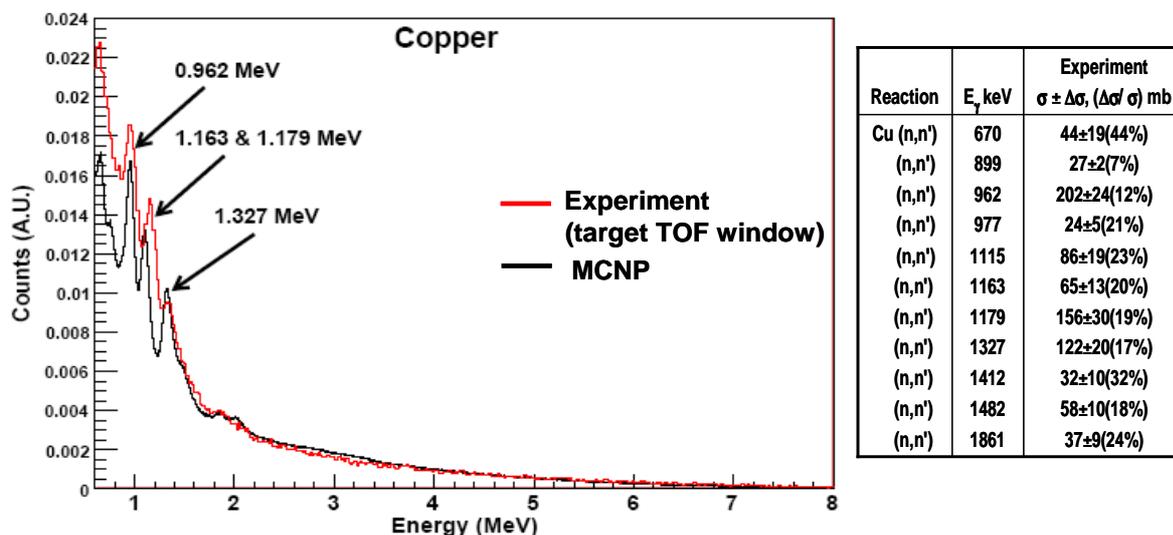


Figure II - 36. Experimental and calculated gamma-ray spectra of copper (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 37 shows the calcium spectrum obtained with a 2 kg sample of pure calcium granulates, showing additional peaks at 0.770 and 0.892 MeV, which were cut by the earlier 1.35 MeV threshold. The agreement with calculation is not fully satisfactory, even if the main expected peaks are present. Finding the origin of the discrepancy between the measured and calculated continuums requires further investigations because the scattered neutron contribution, which was not subtracted here to the experimental spectrum, cannot explain the observed difference concerning the continuum below 3 MeV with such a small, non hydrogenous target. On the other hand, counting statistics is not excellent, despite about 7 hours of acquisition time (interrupted by truck inspections), because of the small mass of calcium (2 Kg).

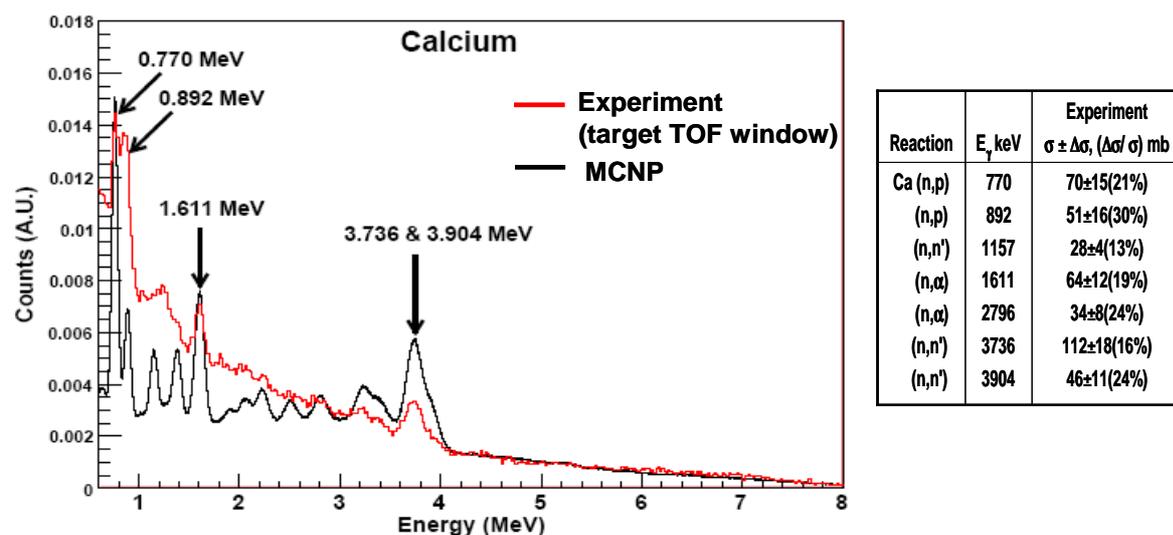


Figure II - 37. Experimental and calculated gamma-ray spectra of calcium (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

Figure II - 38 shows the nickel spectrum obtained with a pure sample, showing useable peaks below or partially cut by the earlier 1.35 MeV threshold. The global shape of the spectrum is correctly reproduced by the simulation, but the agreement below 1.5 MeV is not very satisfactory concerning the relative peaks intensities. No scattered neutron contribution was subtracted to the experimental spectrum.

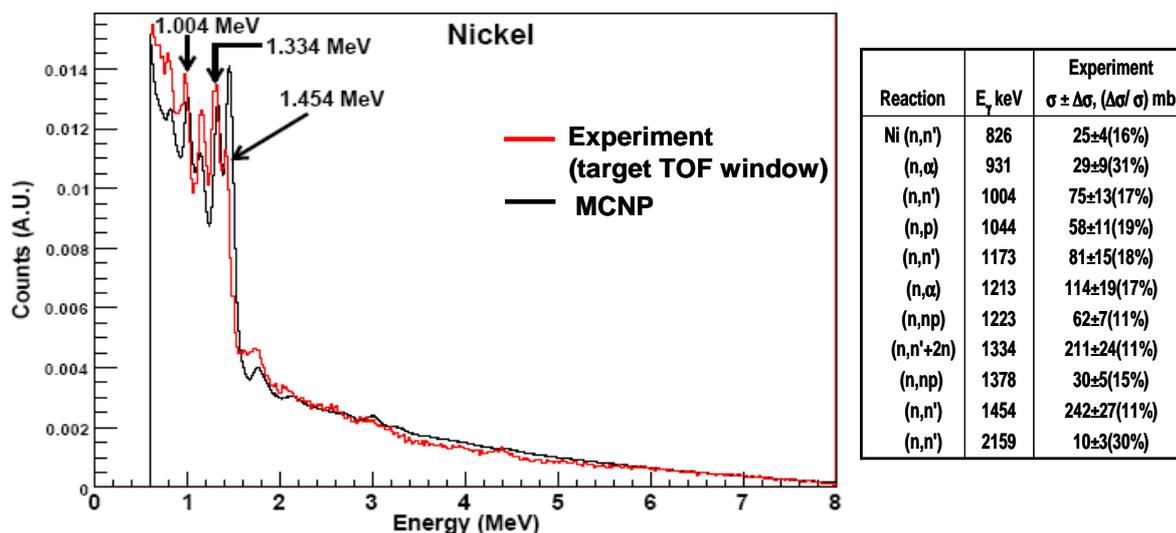


Figure II - 38. Experimental and calculated gamma-ray spectra of nickel (pure sample), and the table of cross sections compiled in Simakov & al.

In conclusion, the observed discrepancies between experiment and simulation show the necessity to acquire experimentally the pure element database. A full numerical calibration is not possible due to the lack of precision and reliability of tabulated nuclear data concerning several elements.

In the next section, a quantitative comparison will be performed for the most important elements.

4.2 Quantitative study of gamma ray spectra

The experimental spectra of simple elements like C, O, Al, Fe and Pb, and composite elements like melamine ($C_3H_6N_6$), wood ($H_{31}C_{22}O_{12}$) and silicon dioxide (SiO_2), have been measured with simple geometries such as the one shown in Figure II - 39 and compared with MCNP calculations. For the MCNP calculation, the neutron-induced photon flux is estimated with eight point detector tallies (type 5 tally of MCNP) located above the target between the two layers of the EURITRACK top gamma-ray detectors shown in Figure II - 39. The obtained photon fluxes are injected in the small face of the NaI(Tl) 5"×5"×10" detector.

The basic model of MCNP represented by a conical beam did not interpret the experimental square-shaped tagged beam correctly. Therefore, the true experimental beam shape has been modeled with MCNP by using a parallelepiped collimator (cell with a neutron importance equal to zero) to convert the conical beam into a square beam having the same dimension as the experimental one.

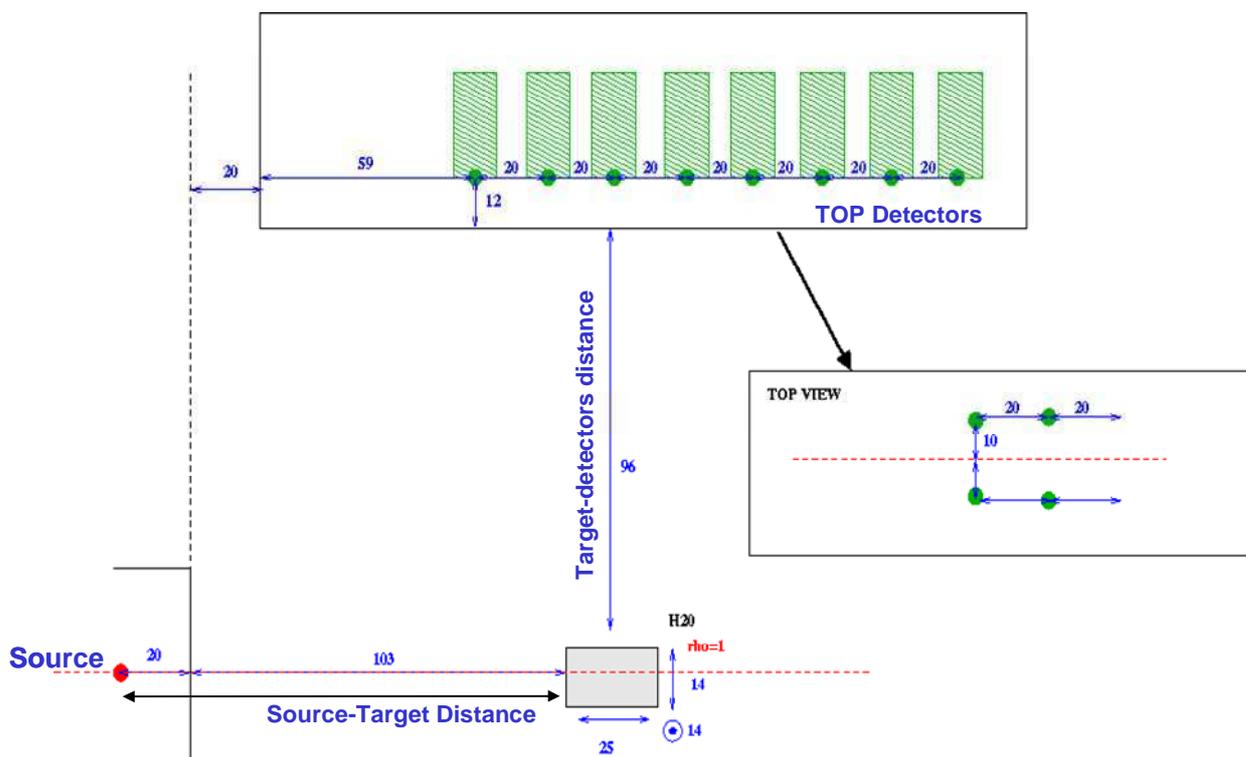


Figure II - 39. Simulated setup of the water target acquisition.

The spectra obtained with the different samples listed in Table 2, as well as the Monte Carlo simulations, are presented and discussed.

Table 2. Geometric information of the different target setups.

Target	Source to target distance (cm)	Target to detector distance (cm)	Density g/cm ³	Dimensions		
				X (cm)	Y (cm)	Z (cm)
Graphite	104	89	1.75	20	30.1	20
Water	103	96	1	25	14	14
Lead	95	100	11.2	5	20	40
Iron	96	97	7.4	1	41	44.5
Melamine	95	89	0.95	15	20	10
Wood	101	91	0.6	46	40	17
Silicon dioxide	85	93	1.75	15	20	6
Aluminium	94.5	100	2.66	Diameter = 20 cm		22.5

4.2.1 Water sample

The time-of-flight (TOF) spectrum of the water sample is presented in Figure II - 40. The black vertical lines show the limits of the random background region, which has been subtracted from the areas of interest. The first peak comes from the walls of the neutron

generator itself and from the surrounding materials. The second one represents the water target, and the broad following structure is due to tagged neutrons scattered inside the sample, hitting and interacting in the NaI(Tl) detectors and surrounding materials (iron parts of the portal, lead collimators). The energy spectrum of the part of the TOF spectrum selected with the red lines shows the presence of oxygen peaks, whereas the part selected with the blue lines represent the scattered neutrons spectrum.

In order to obtain the net oxygen spectrum, the contribution of scattered neutrons must be subtracted. The scattered neutron contribution in the water energy spectrum is due to an overlap in the TOF spectrum between these two signals. To estimate the amount of scattered neutrons in the water sample TOF peak, the peaks associated to water and to scattered neutrons have been modeled with the Gaussian functions shown in Figure II - 40. The fraction of the neutron signal to be subtracted has been estimated to be about 28%.

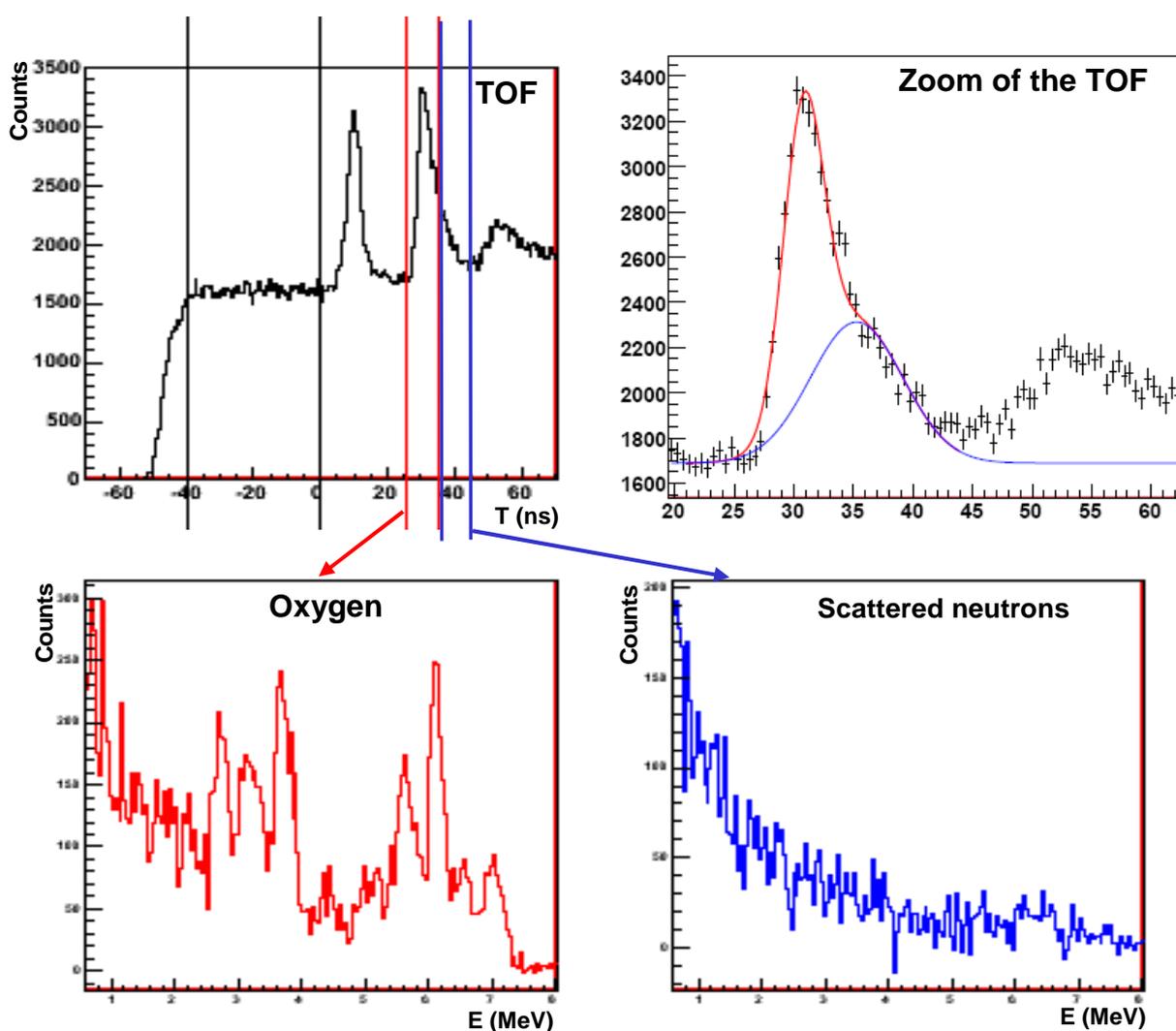


Figure II - 40. Above, TOF spectrum of the water target acquisition and fit of the useful time peak with two Gaussian functions: red for oxygen and blue for scattered neutrons. Below, the energy spectra corresponding to the oxygen and scattered neutrons signatures.

The result of this subtraction is shown in Figure II - 41. The agreement of simulation with experiment is globally correct, except for the 3.089 MeV gamma ray. As already noticed in section 4.1, this discrepancy has been observed by other groups working in the same field, [98] and [99].

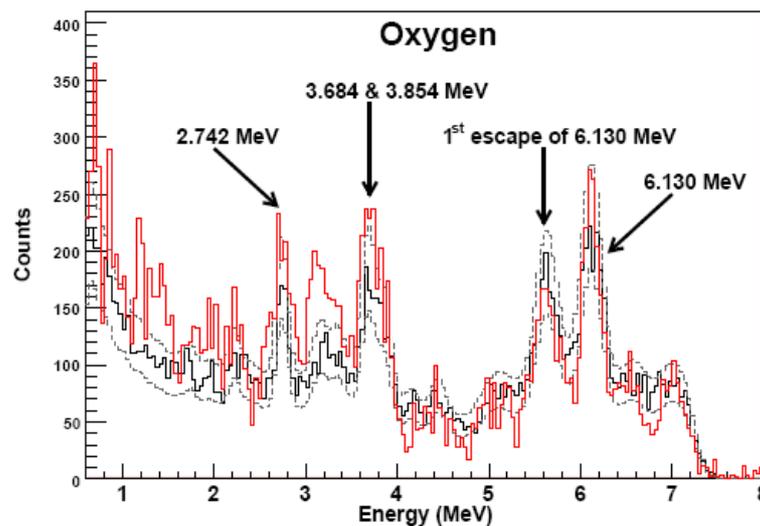


Figure II - 41. Experimental (red) and simulated (black) energy spectra of oxygen. The grey lines represent envelop simulation spectra with minus and plus 20% of systematic uncertainties.

In addition to large statistical uncertainties, due both to the limited acquisition time available for physics experiment on the Rijeka seaport and to the restricted number of gamma-ray detectors, systematic errors have been taken into account in the comparison with the experimental spectra. The most important causes of systematic errors are:

- The uncertainties of the cross sections used in MCNP simulations. An illustration of the very large spread in the available experimental data is reported in [87]. The compilation of these gamma-ray production data is reported with large standard deviations generally in the range $\Delta\sigma \sim 10\text{--}20\%$.
- The anisotropy of the gamma-ray production cross sections calculated with ENDF/BVII.0 library (see part 2). This is taken into account by the different positions of F5 tallies.
- The modeling uncertainties or approximations:
 - geometrical description of the neutron beam and of the setup
 - geometry, density, and composition of the sample materials,
 - two steps of calculation (tally F5 and F8) and then the leakage of information on the gamma-ray incident angle in the detectors. Indeed, the F8 calculation considers that the direction of the gamma rays is perpendicular to the detector surface, which is not the case in reality, see Figure II - 39. To limit the impact of this approximation, we only used the three pairs of top detectors directly located above the target, instead of the whole sixteen detectors
- High count rate related count losses in the data acquisition system and data filtering must be taken into account when scaling simulation results for a quantitative comparison with experiment. Count losses have been limited by the use of a low neutron emission rate, with a total isotropic emission of 107 n/s, among which approximately 1% of tagged neutrons. This leads to less than three thousands of useful alpha-gamma coincidences per second to be processed by the EURITRACK front-end electronics. The dead-time being close to 5 μs , essentially due to the QDC conversion time [100], count losses are lower than 1.5%. On the other hand, a filtering algorithm is used to suppress multiple alpha or gamma hits, and other unwanted events. The filtering ratio between good and total events is significant, typically 50%, and only good events have been used to scale calculations. A fraction of the rejected events could however lead to real events, such as the coincidence between one alpha particle

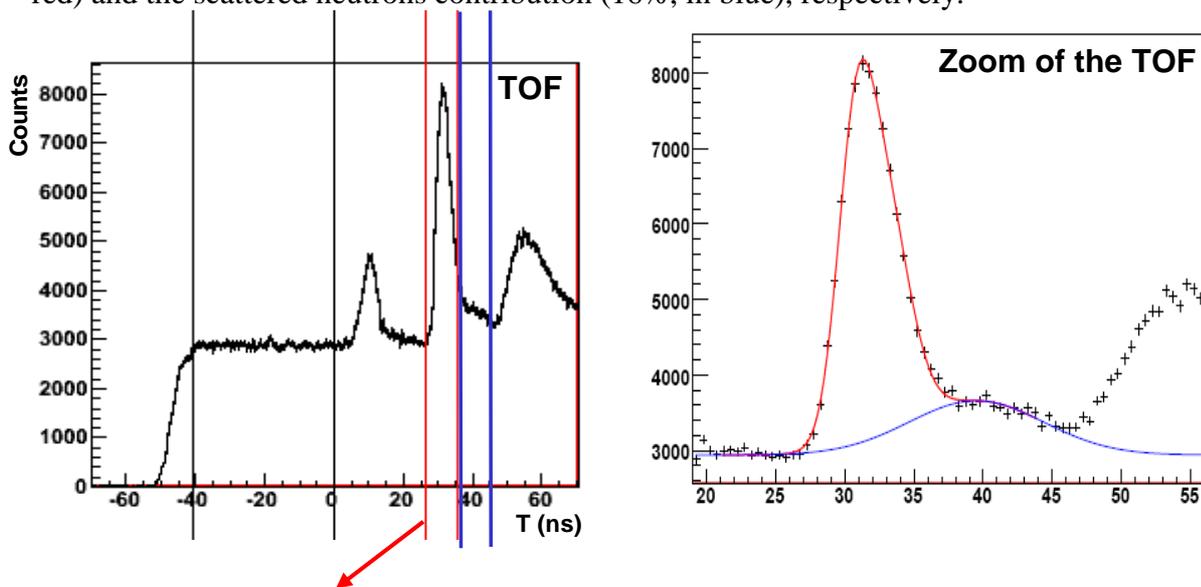
and two cascade gamma rays induced by the tagged neutron. The fraction of events rejected due to a gamma multiplicity larger than one is generally smaller than 10%, among which these cascade gamma rays. This leads to slightly underestimate the experimental signal with respect to simulation, but the bias should not exceed a few percents.

To simplify, we have qualitatively estimated the relative standard deviation associated to the simulated spectrum to be about 20%, which is underestimated for some specific gamma rays suffering from doubtful or erroneous nuclear data, and which conversely is overestimated in infrequent cases like the well-known carbon 4.439 MeV line. Therefore, experiment vs. simulation plots shown in Figure II - 41 and in next paragraphs include two envelop spectra around the calculated one ($\pm 20\%$).

4.2.2 Graphite sample

The TOF spectrum of the graphite sample is shown in Figure II - 42. The energy spectrum of the part of the TOF spectrum selected with the red lines shows the presence of the carbon peak and its first escape, whereas the part selected with the blue lines represent the scattered neutrons spectrum.

In order to calculate the fraction of the subtracted scattered neutrons, the peaks corresponding to the carbon target is fitted by two Gaussian functions representing the signal of carbon (in red) and the scattered neutrons contribution (16%, in blue), respectively.



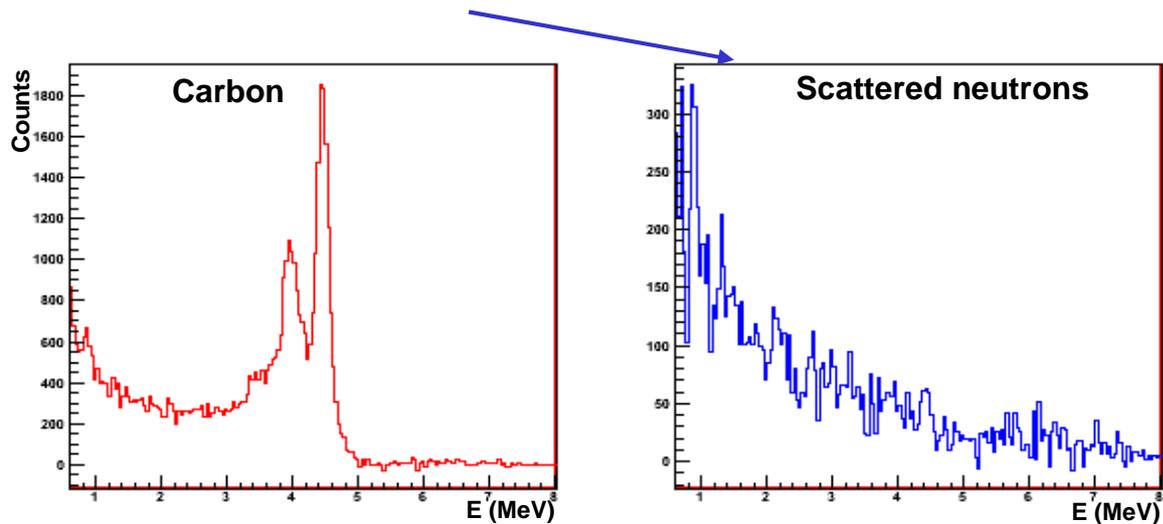


Figure II - 42. Above, TOF spectrum of the graphite target and useful area fitted with two Gaussian functions (red for oxygen and blue for scattered neutrons). Below, energy spectra corresponding to the carbon and scattered neutron signatures.

The comparison between the simulation and the experimental carbon spectrum after the subtraction of scattered neutrons contribution shown in Figure II - 43 is very satisfactory.

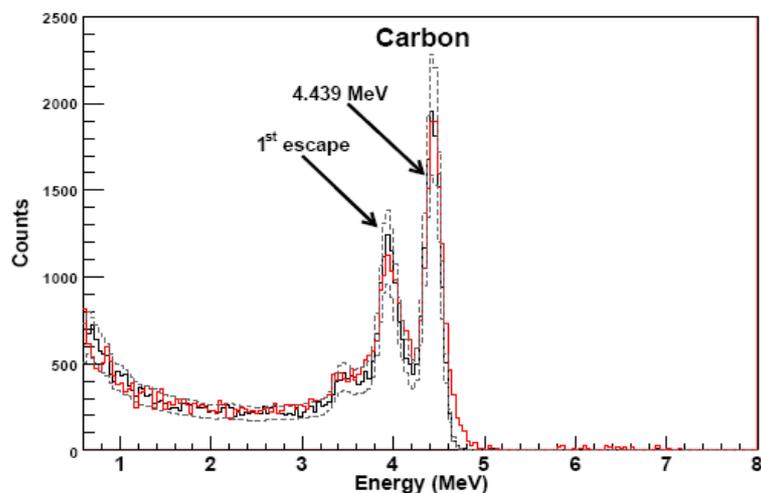


Figure II - 43. Experimental (red) and simulated (black) of carbon energy spectra. The dashed grey lines represent envelop simulation spectra with minus and plus 20% of systematic uncertainties.

4.2.3 Melamine Sample

Figure II - 44 shows the TOF spectrum of the melamine sample. The peak corresponding to the melamine target is fitted by three Gaussian functions. The first one represents the melamine signal and, in order to describe the shape of the scattered neutrons contribution in the TOF, two additional Gaussian functions have been used.

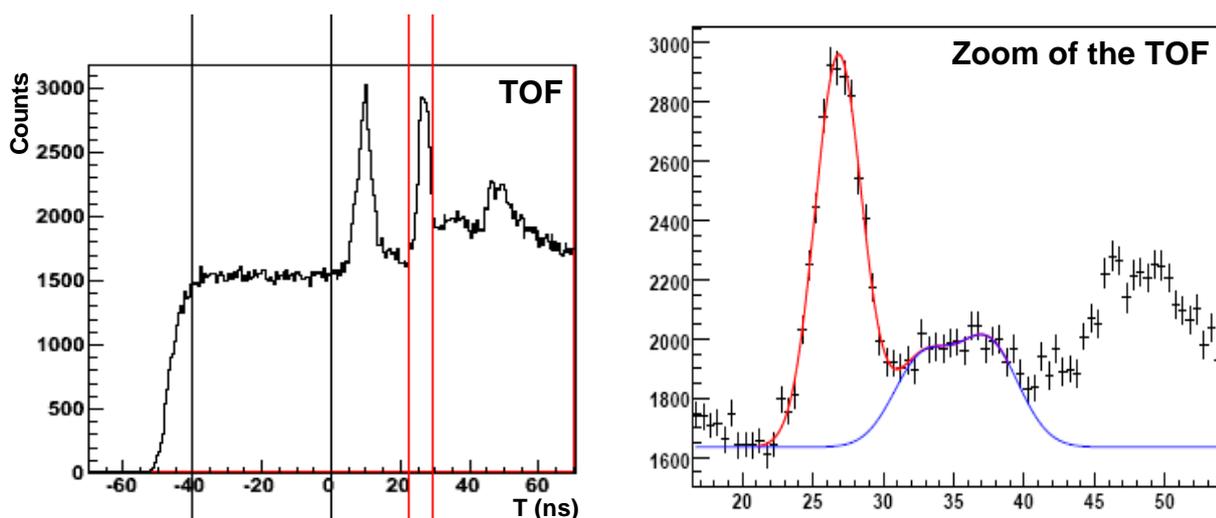


Figure II - 44. Above, TOF spectrum of the melamine target and useful area fitted with three Gaussian functions (red for oxygen and blue for scattered neutrons).

The fraction of the subtracted neutrons is about 2%, which was considered as negligible, and no subtraction of the scattered neutron contribution has been performed. Figure II - 45 shows that the agreement between simulation and experiment is satisfactory.

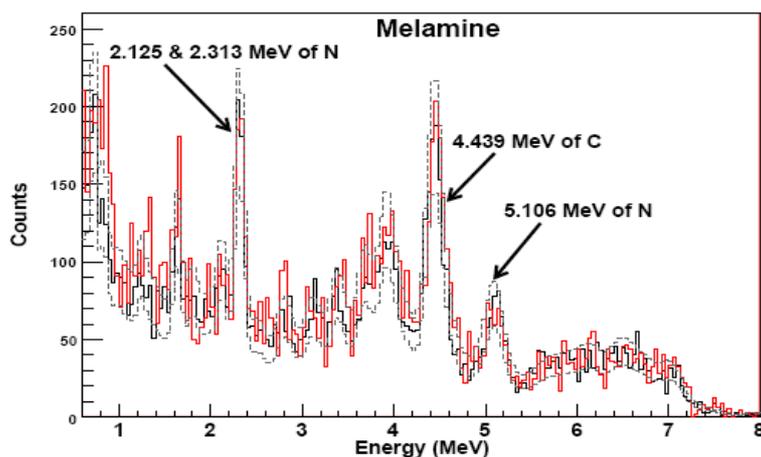


Figure II - 45. Experimental (red) and simulated (black) of melamine energy spectra. The dashed grey lines represent envelop simulation spectra with minus and plus 20% of systematic uncertainties.

4.2.4 Sample of silicon dioxide (SiO_2)

Sand (SiO_2) has been used to observe the peaks of silicon, which is commonly observed in real cargo containers transporting ceramics, glass, fiberglass wool, etc. The energy spectrum of the part of the TOF spectrum, shown in Figure II - 46, selected with the red lines shows the presence of silicon and oxygen peaks, whereas the part selected with the blue lines represent the scattered neutrons spectrum. The peaks corresponding to the target is fitted by two Gaussian functions representing the silicon dioxide signal and the scattered neutrons contribution.

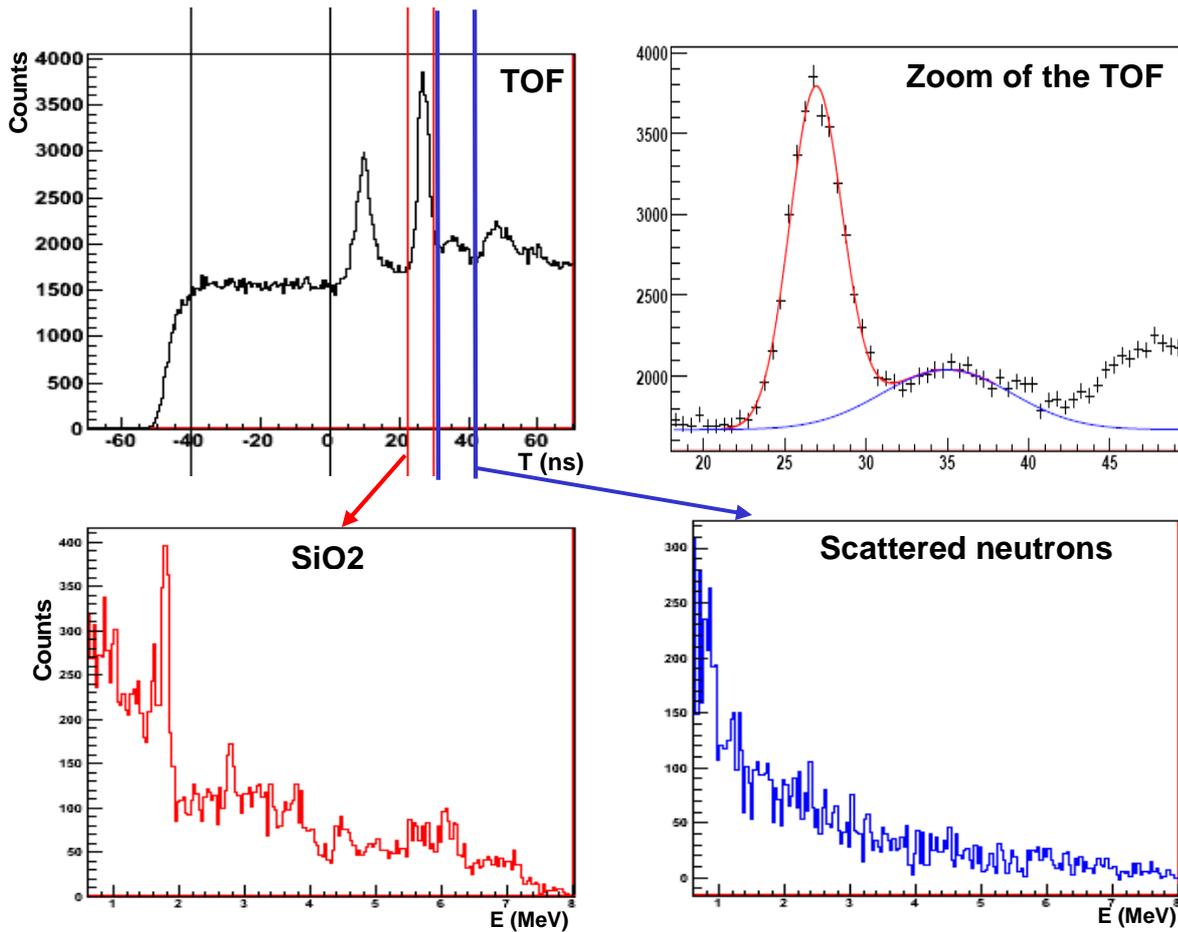


Figure II - 46. Above, TOF spectrum of the silicon dioxide target and useful area fitted with two Gaussian functions (red for oxygen and blue for scattered neutrons). Below, the energy spectra corresponding to the SiO₂ and scattered neutron signatures.

The fraction of the subtracted neutrons is about 10%. Figure II - 47 shows that the agreement between simulation and experiment is satisfactory.

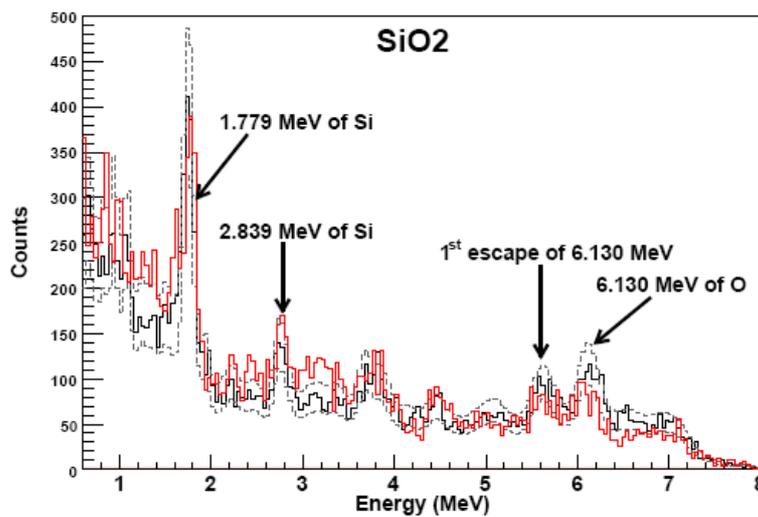


Figure II - 47. The experimental (red) and simulated (black) energy spectra of silicon dioxide. The dashed grey lines represent envelop simulation spectra with minus and plus 20% of uncertainties.

4.2.5 Wood sample

Wood ($H_{31}C_{22}O_{12}$) is also been frequently found in cargo containers transporting it as a raw material or manufactured in furniture, toys, etc. Figure II - 48 shows the TOF spectrum of the wood sample. The peak corresponding to the target is fitted by two Gaussian functions. The first one represents the signal of the wood and the second one is used to fit the scattered neutron contribution in the TOF spectrum.

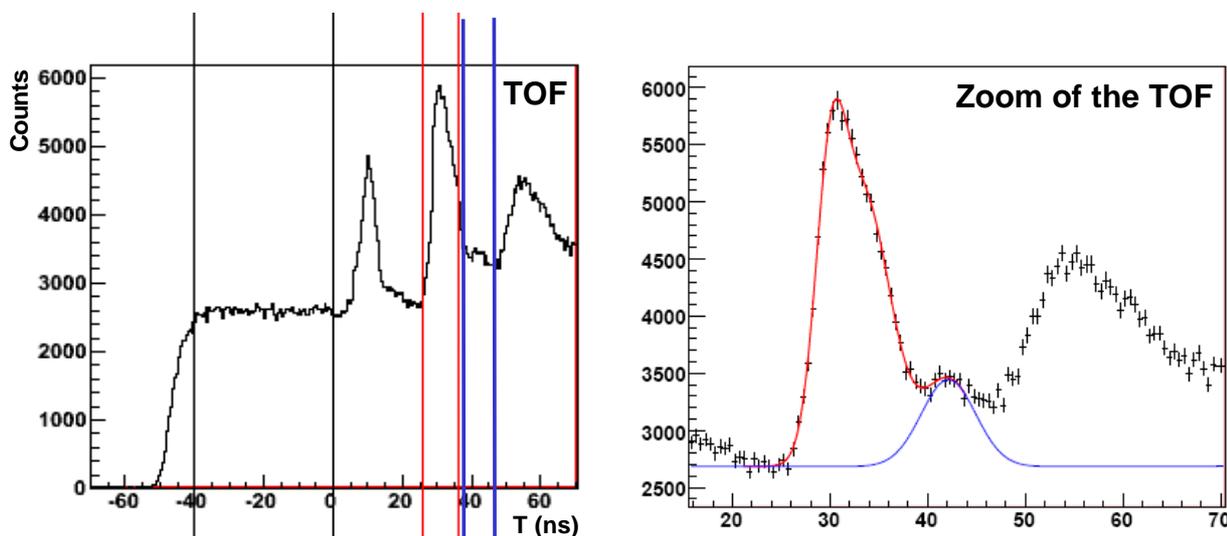


Figure II - 48. TOF spectrum of the wood target and useful area fitted with 2 Gaussian functions (red for oxygen and blue for scattered neutrons).

The fraction of the scattered neutrons is about 1.6%. Since this neutron contribution is very small, its subtraction has not been performed. Figure II - 49 shows that the agreement between simulation and experiment is very satisfactory, except for the 3.089 MeV gamma ray of oxygen as mentioned previously.

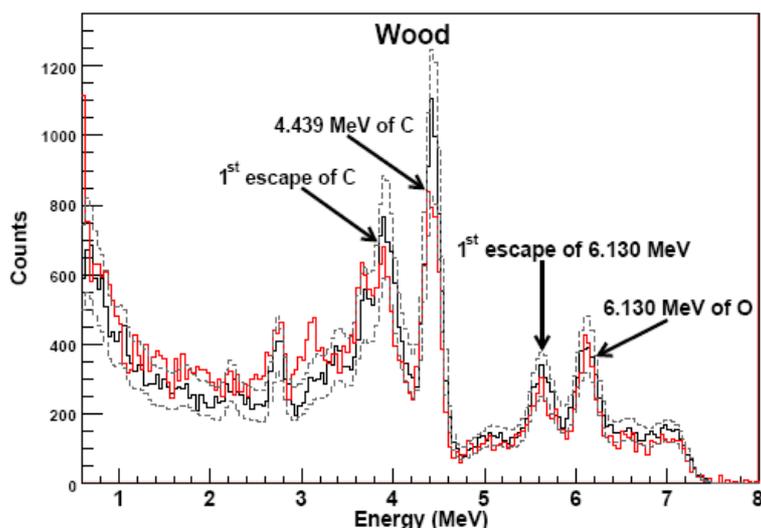


Figure II - 49. The experimental (red) and simulated (black) energy spectra of the wood. The dashed gray lines represent the simulation spectra with minus and plus 20% of uncertainties.

4.2.6 Metallic samples

Aluminium can be found in cargo containers and iron is frequently observed in machines, tools, car pieces, pipes, nails, etc. Lead is present in the EURITRACK portal and it can be observed in the inspection spectra if the volume of interest is close to a detector shield. Indeed, due to the opening angle of the tagged neutron beam and to neutron scattering, the spatial resolution of the associated particle technique is not sufficient in specific regions of the cargo container to separate the signals of the lead shield and of the cargo. The broad structure due to scattered neutrons in the TOF spectrum of metallic samples is much smaller than previously. Therefore, no subtraction of the scattered neutrons contribution has been performed for these samples. Figure II - 50 shows the TOF spectrum of the aluminum target and the corresponding energy spectra. The experimental and simulated spectra for iron and lead are shown in Figure II - 51.

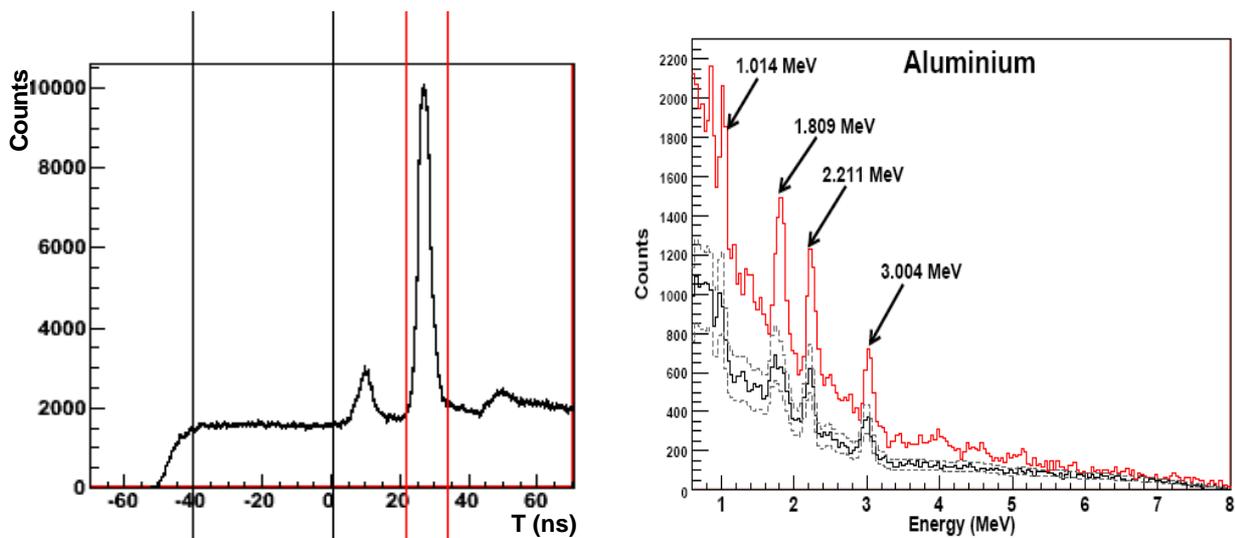


Figure II - 50. TOF spectrum of the aluminum target (left). Experimental (red) and simulated (black) energy spectra of aluminum (right). The dashed gray lines represent the simulation spectra with minus and plus 20% of systematic uncertainties.

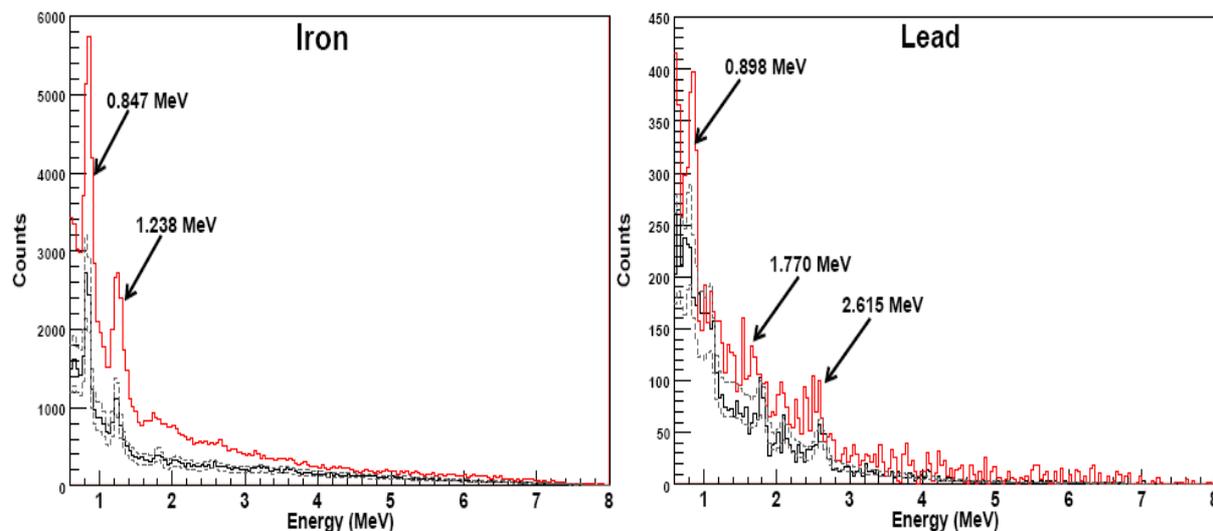


Figure II - 51. Experimental (red) and simulated (black) energy spectra of iron (left) and lead targets (right). The dashed gray lines represent the simulation spectra with minus and plus 20% of systematic uncertainties.

The comparison between the experimental and simulated energy spectra shows a significant underestimation (roughly a factor of two) of the counts by numerical simulations, even if the main expected peaks are present. These measurements have been performed with dense and

thick samples. Therefore, simulations have been performed by changing the target densities by $\pm 10\%$ to study the effect of an imprecise knowledge of this important parameter, but the impact on the simulated spectra is negligible. The uncertainty in the gamma-ray production cross sections of Al, Fe, and Pb is a possible cause of the observed discrepancy, but it is also not excluded that a systematic bias has not been identified so far, such as a wrong scaling factor to convert simulation results into measured counts.

Although the quantitative comparison is not satisfactory for these metallic elements, they will be correctly identified by the unfolding algorithm because the shape of the spectra is correct. However, their relative proportions with respect to C, N, O, or Si would be biased if they were to be calculated, which is not the case in the EURITRACK system. Indeed, the organic material identification only relies on the relative C, N, and O proportions, for which the qualitative and quantitative agreement between experiment and simulation is correct. Therefore, the calculation of correction factors to take into account the gamma-ray production cross sections of these elements, as well as the neutron and gamma interactions in the cargo materials (see chapter 3), can be performed without noticeable bias because the relative C, N, and O counts would be the same.

5 Test of the new database with real cargo containers

The current database, including the elemental gamma-ray signatures mentioned above, has been tested with recent truck inspection data performed within the Eritr@C project. The spectra measured with real cargo containers are unfolded to determine the relative elemental fractions of the transported materials, as described in [95], [96]. Data processing with the old and new databases are compared to show the improvement of unfolding uncertainties. More than 100 trucks have already been inspected within the Eritr@C project. Acquisition time for each inspection is 10 minutes with an average neutron flux of 10^7 n/s, the tagged flux being around 10^5 n/s. A typical histogram of the gamma-ray origins (“position” spectrum along the tagged beam with respect to the neutron source) is shown in Figure II - 52 for a truck transporting metallic materials, mostly iron. The limits of the 2400 mm wide container depend on its position with respect to the neutron generator, the truck being positioned manually by the truck driver under the inspection portal. The first wall of the container is typically located between 400 and 800 mm away from the peak centred near 400 mm, which is associated to the neutron generator and its surrounding materials. In Figure II - 52 the peak at 1000 mm is due to the first wall of the container and to the beginning of the metallic cargo.

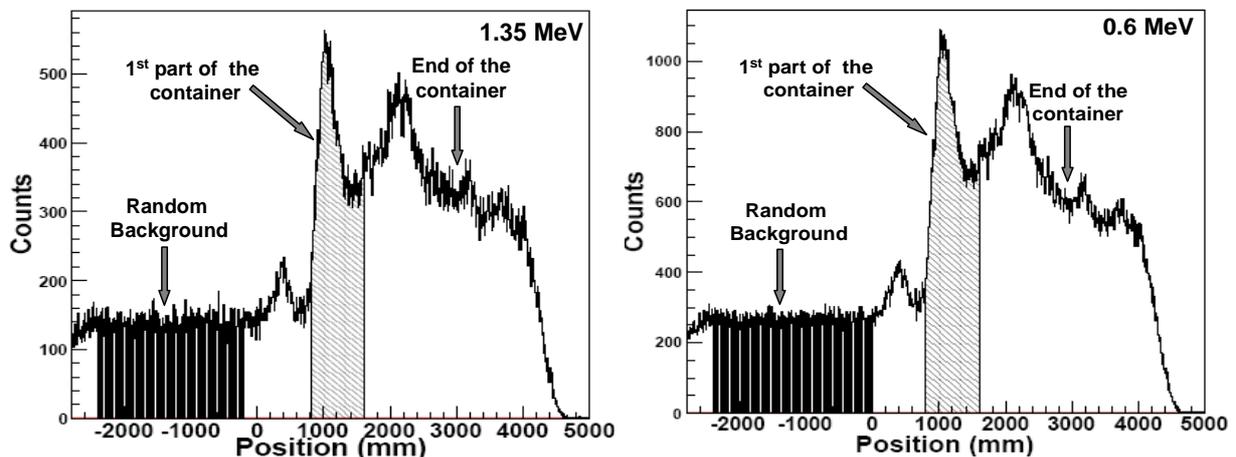


Figure II - 52. Flight path distribution associated to a 10 min. acquisition of a container transporting metallic goods with an energy threshold of 1.35 MeV (left) and 0.6 MeV (right), showing the random background (dark area) and the region related to the first part of the container (diagonally dashed).

After plotting the position spectrum, the data are processed to produce the gamma-ray energy spectra for neutron flight path (or “position”) windows selected by the operator (manual mode) or for an automatic slicing of the cargo container.

The energy spectra associated to the inspected area of three trucks transporting metallic items is shown in Figure II - 53, together with the unfolding results. The spectra were unfolded with the database of pure elemental spectra to determine the contribution of each element, with the former 1.35 MeV threshold database and with the new 0.6 MeV threshold database. The low energy iron peaks greatly improve the identification of iron with the new database, leading to a spectacular reduction of the uncertainty associated to the iron fraction.

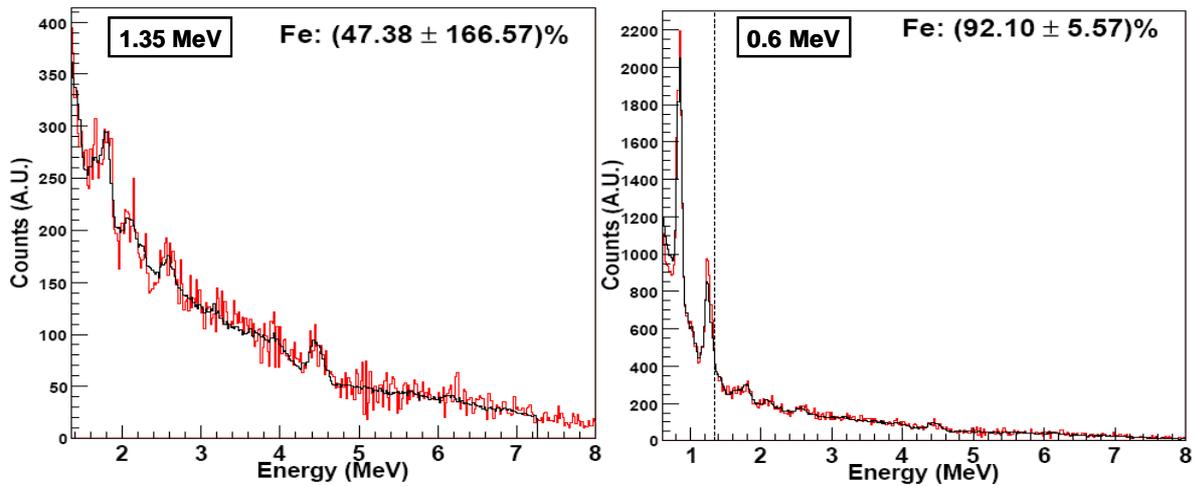
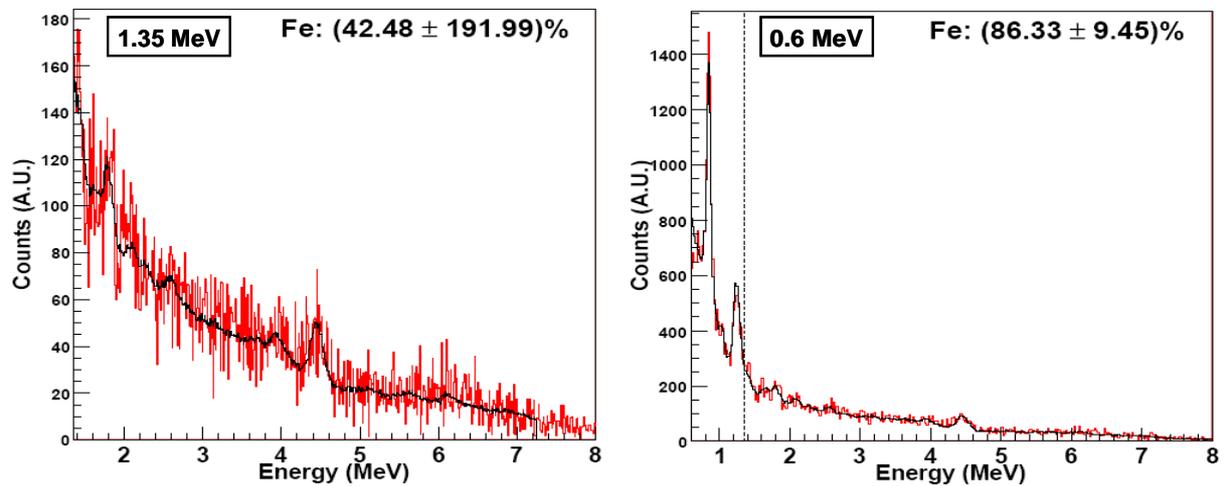
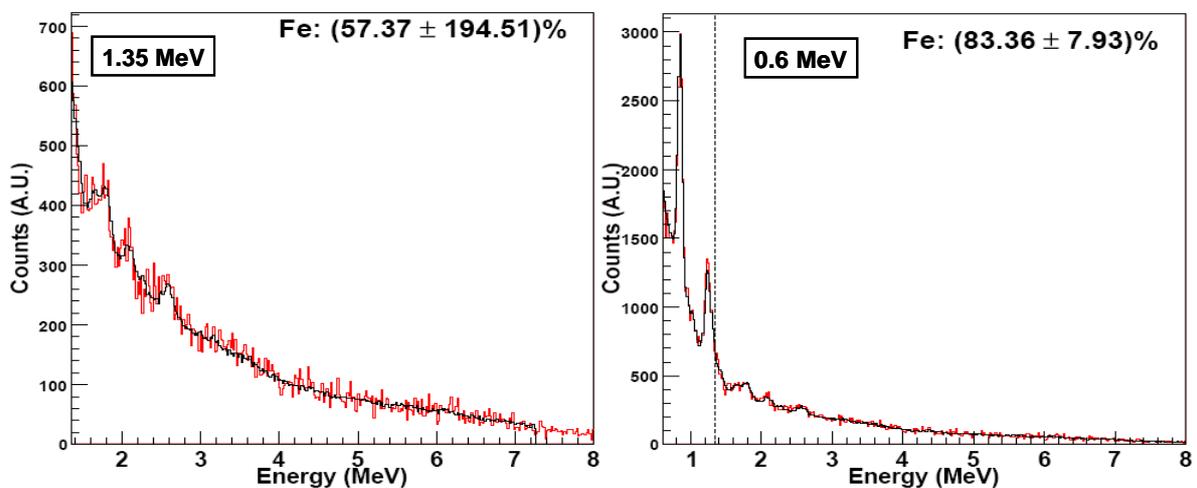
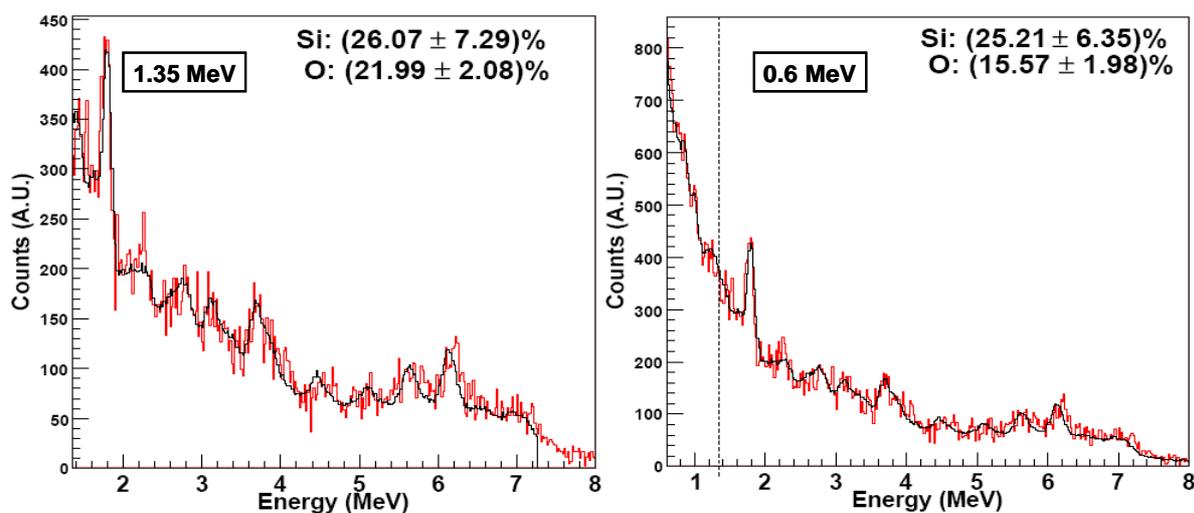
1st metallic container transporting iron chairs**2nd metallic container transporting machines****3rd metallic container transporting pipes**

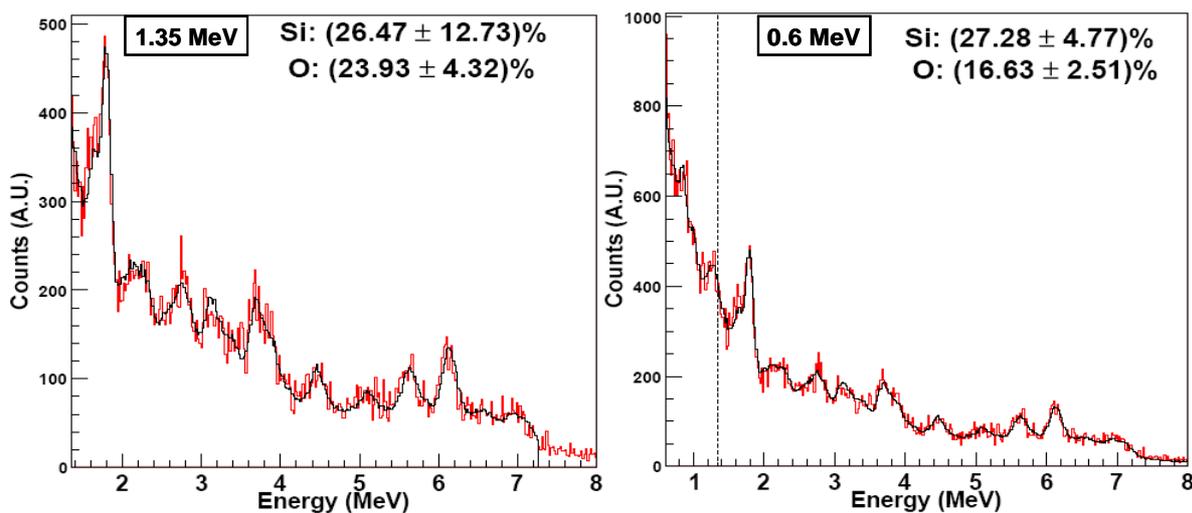
Figure II - 53. Energy spectra and unfolding results for three containers transporting metallic goods, with low-energy thresholds of 1.35 MeV (left) and 0.6 MeV (right); the dashed vertical line represents the earlier 1.35 MeV threshold. Black lines correspond to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

The energy spectra of a second series of trucks transporting fibreglass and other SiO₂ based materials are reported in Figure II - 54. The detection of silicon and oxygen in these containers agrees well with the expected declared materials. The improvement of uncertainties is, however, less marked than in the case of iron since the most representative peaks of Si and O are above the earlier 1.35 MeV threshold.

1st container transporting fibreglass



2nd container transporting wool blanket



3rd container transporting mixed goods (ground tiles and locks)

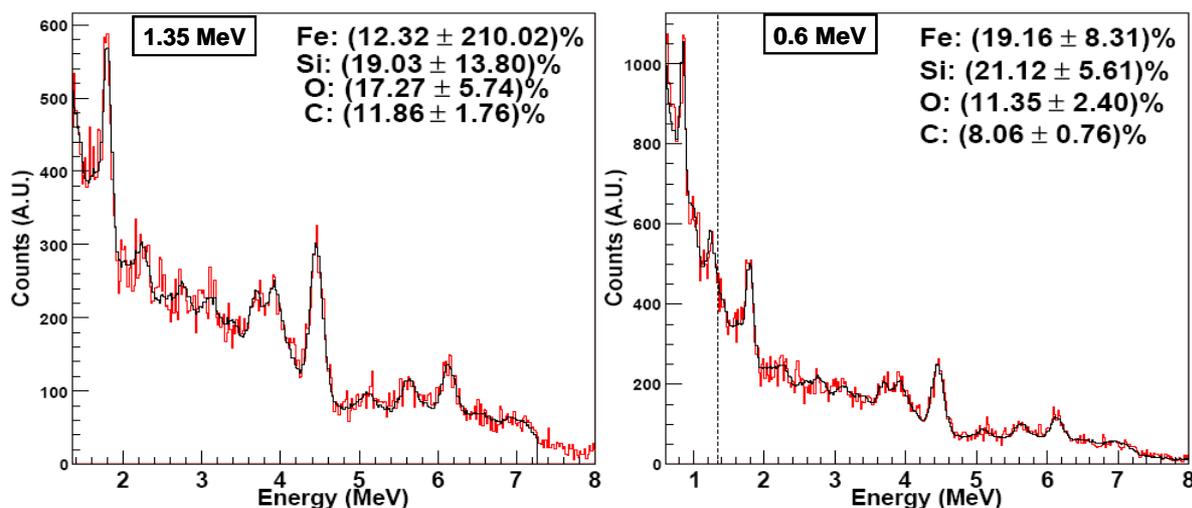
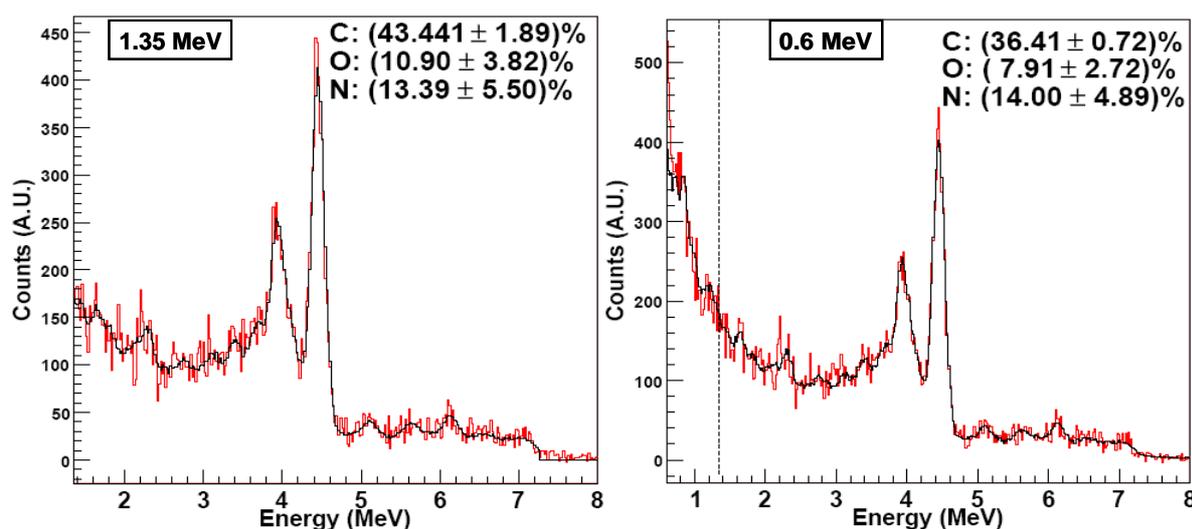


Figure II - 54. Energy spectra and unfolding results for three containers transporting SiO_2 based materials, with low-energy thresholds of 1.35 MeV (left) and 0.6 MeV (right); the dashed vertical line represents the 1.35 MeV threshold. Black lines correspond to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

Figure II - 55 shows the energy spectra associated to three trucks transporting organic goods; in the first one ("clothes"), a significant contribution of carbon, oxygen and nitrogen can be noted. Nitrogen is probably present in synthetic fibbers like nylon. Uncertainties are slightly improved with the new database, but again, the impact is less striking than in the case of iron since the most significant peaks of C, O and N are above the previous 1.35 MeV energy threshold.

1st container transporting organic goods (women clothes)



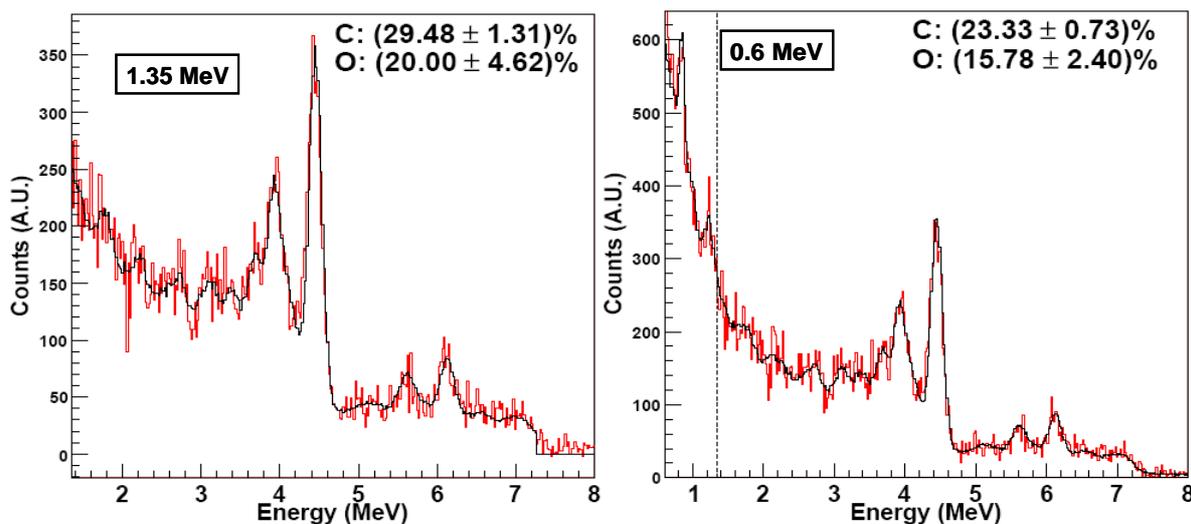
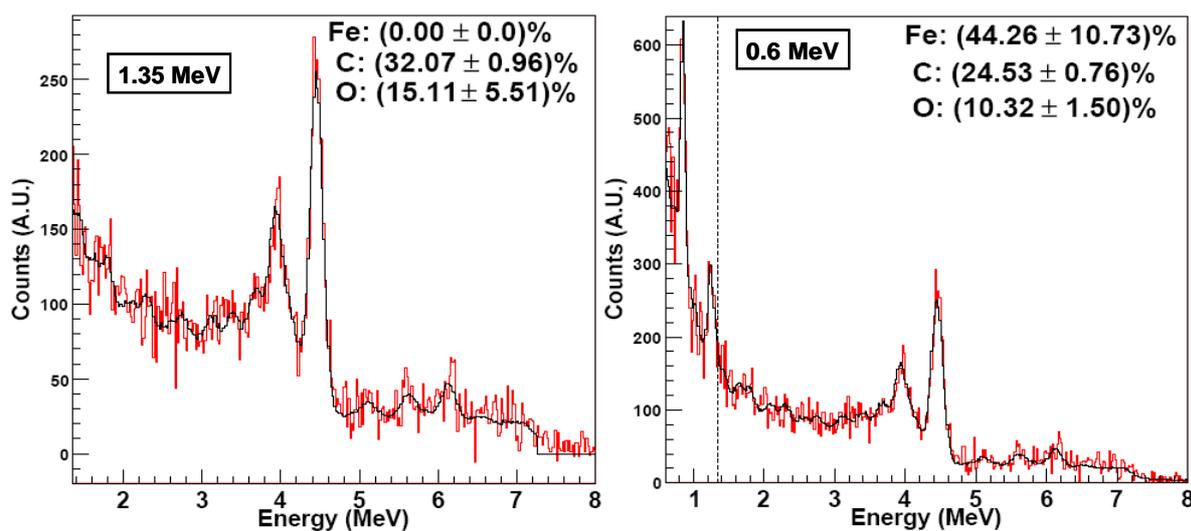
2nd container transporting organic goods (hats, cases and bags)**3rd container transporting mixed goods (textile and other metallic materials)**

Figure II - 55. Energy spectra and unfolding results for three containers transporting organic and mixed goods, with low-energy thresholds of 1.35 MeV (left) and 0.6 MeV (right); the dashed vertical line represents the 1.35 MeV threshold. Black lines correspond to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

6 Conclusion

Gamma-ray spectra produced on C, O, N, Fe, Pb, Al, Na, Si, Cl, Cu, Zn, Ni, Cr, and Ca by 14 MeV neutrons beams have been recorded with the EURITRACK system in view of cargo container inspections, after reducing the initial low-energy electronic threshold from 1.35 to 0.6 MeV. These spectra form a new library of elemental signatures used to unfold the gamma-ray spectra resulting from the inspections and to calculate the relative fraction of each element, thus allowing a comparison with the declared goods.

This new database has been tested with more than 100 truck inspection data performed within the Eritr@C project. The presence of significant peaks below 1.35 MeV allow to better identify elements like iron, copper, zinc, and lead, whose most characteristic gamma rays were cut by the earlier electronic threshold.

On the other hand, MCNP calculations have been performed and compared to the experimental spectra. A satisfactory agreement has been observed for the main elements constituting explosives and illicit drugs and for those frequently measured in real cargo container: C, O, N, Fe, Al, and Si. For the other elements, however, the agreement is only partly correct, some measured gamma rays being absent of the calculation or, conversely, simulation providing peaks that are not observed experimentally. For zinc, calculation does not even provide any reliable result.

Monte Carlo calculation have also evidenced the angular dependence of the gamma-ray production with 14 MeV neutrons, and the importance of photon self absorption and scattering, as well as neutron moderation in the thick targets used to acquire pure element signatures.

A quantitative study has been performed for simple elements like C, O, Al, Fe and Pb, and composite elements like melamine, wood and silicon dioxide. Fortunately, for the three major organic C, N, and O elements, the agreement is correct between calculation and experiment. This is of importance as numerical simulation will be extensively used to study the modification of their relative signatures due to neutron and gamma-ray interactions in the cargo containers, see part 3 of this thesis.

In the next chapter, the simulated database will be used to unfold realistic inspection simulations with explosives and illicit drugs hidden in various cargos. Numerical simulation will also be used to study the impact of neutron moderation and gamma attenuation in the cargo in view to correct these effects in the data processing algorithms.

7 Références bibliographiques du chapitre II

- [86] J. Bendahan, J. Cayton and al., “Measurements and analysis of carbon and oxygen neutron inelastic cross sections below 10 MeV”, Nucl. Instr. and Meth. B 505-508, 1995.
- [87] S.P. Simakov, A. Pavlik, H. Vonach, S. Hlavac, “Status of experimental and evaluated discrete gamma-ray production at En=14.5 MeV”, IAEA Nuclear Data Section, INDC(CCP)-413, 1998. Available from <http://www-nds.iaea.org/reports-new/indc-reports/indc-ccp/>
- [88] B. Perot, C. Carasco et al., “Measurement of 14 MeV neutron-induced prompt gamma-ray spectra from 15 elements found in cargo containers”, Applied Radiation and Isotopes ARI 66 (2008).
- [89] W. El Kanawati, C. Carasco, B. Perot et al. “Improvement of the calibration database in the EURITRACK tagged neutron inspection system”, ANIMMA conference, 2009.
- [90] S. Pesente, G. Nebbia, G. Viesti, F. Daniele, D. Fabris, M. Lunardon, S. Moretto, K. Nad, D. Sudac, V. Valkovic´. “Progress in tagged neutron beams for cargo inspection”. Nucl. Instr. and Meth. B 261, 2007, 268–271.
- [91] S. Pesente, M. Lunardon, G. Nebbia, G. Viesti, D. Sudac, V. Valkovic´. “Monte Carlo analysis of tagged neutron beams for cargo container inspection”. Appl. Radiat. Isot. 65, 2007, 1322-1329.
- [92] M. Gierlik, T. Batsch, M. Moszynski, T. Szczesniak, D. Wolski, W. Klamra, B. Perot, G. Perret. “Comparative study of large NaI (Tl) and BGO scintillators for the EUROpean Illicit TRAfficking Countermeasures Kit project”. IEEE Trans. Nucl. Sci. 53, 2005, 1508–1514.
- [93] M. Lunardon, C. Bottosso, D. Fabris, S. Moretto, G. Nebbia, S. Pesente, G. Viesti, A. Bigongiari, A. Colonna, C. Tintori, V. Valkovic´, D. Sudac, P. Peerani, V. Sequeira, M. Salvato. “Front-end electronics and DAQ for the EURITRACK tagged neutron inspection system”. Nucl. Instr. and Meth. B 261, 2007, 391–395.
- [94] B. Perot, C. Carasco et al., “Measurement of 14 MeV neutron-induced prompt gamma-ray spectra from 15 elements found in cargo containers”, Applied Radiation and Isotopes ARI 66 (2008).
- [95] C. Carasco, B. Perot et al., “Photon attenuation and neutron moderation correction factors for the inspection of cargo containers with tagged neutrons”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 582 (2007) 638–643.
- [96] C. Carasco, B. Perot et al., “In-field tests of the EURITRACK tagged neutron inspection system”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 588, 2008, 397–405.
- [97] O. Hausser, M.A. Lone, T.K. Alexander, S.A. Kushneriuk, J. Gascon. “The prompt response of bismuth germanate and NaI (Tl) scintillation detectors to fast neutrons”. Nucl. Instr. and Meth. 213, 1983, 301–309.
- [98] SODERN, private communication.
- [99] D.N. Vakhtin, A. Evsenin, O. Osetrov and al., “Detection of explosives and other illicit materials by nanosecond neutron analysis”, Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators conference, 2009.
- [100] M. Lunardon, C. Bottosso, D. Fabris, S. Moretto, G. Nebbia, S. Pesente, G. Viesti, A. Bigongiari, A. Colonna, C. Tintori, V. Valkovic´, D. Sudac, P. Peerani, V. Sequeira, M. Salvato. “Front-end electronics and DAQ for the EURITRACK tagged neutron inspection system”. Nucl. Instr. and Meth. B 261, 2007, 391–395.

Part III – Conversion of counts to chemical ratios

Résumé : conversion des ratios de coups en proportions chimiques

La déconvolution des spectres gamma mesurés avec le système d'inspection des neutrons signés EURITRACK fournit des fractions de coups des éléments C, N, O qu'il faut convertir en proportions chimiques pour pouvoir différencier les matières organiques (explosifs, drogues, produits bénins, produits de contrebande).

Un ensemble de facteurs de conversion a été établi avec le code MCNP et la bibliothèque ENDF/B-VII.0, prenant en compte la modération des neutrons et l'atténuation des rayonnements gamma dans les marchandises transportées. Ces facteurs ont été validés expérimentalement avec des cibles épaisses nues (hors conteneur) puis en différentes positions dans une matrice test en fer de densité 0,2.

L'utilisation de ces facteurs de conversion a ensuite été testée grâce à des données de simulation correspondant à l'inspection de matériaux illicites (TNT, cocaïne) placés en différentes positions dans diverses matrices. Ces calculs ont permis d'estimer les biais systématiques entre les ratios chimiques réels et ceux obtenus grâce aux facteurs de conversion pour chacune des situations simulées, indépendamment des incertitudes statistiques.

Ensuite, des spectres correspondant à des inspections réalistes en 10 minutes d'acquisition ont été calculés avec les fluctuations statistiques associées, afin de tester le processus complet de traitement des données, et notamment la combinaison des incertitudes aléatoires et systématiques par une méthode de Monte Carlo. Ce travail a montré que le démonstrateur actuel EURITRACK pourrait être sensiblement amélioré dans un futur système industriel en utilisant plus de détecteurs, ainsi qu'un écran de protection autour du générateur de neutrons pour limiter le bruit de fond aléatoire dû à son émission totale isotrope, dont le faisceau de neutrons signés ne représente qu'une très petite fraction de l'ordre du pourcent. Les résultats montrent cependant qu'avec un système industriel comprenant typiquement deux à quatre fois plus de détecteurs (selon la possibilité ou non d'en implémenter sous les camions) et un générateur de neutron supplémentaire (pour inspecter la face opposée du conteneur), les explosifs et les drogues peuvent être détectés sans ambiguïté dans la grande majorité des cas étudiés.

Des données d'inspection de conteneurs réels chargés de matières organiques (bois, tissus, papier) ont également été traitées afin de tester les facteurs de correction dans des conditions opérationnelles, confirmant la capacité du système EURITRACK existant à identifier ces matériaux, mais aussi la nécessité d'améliorer la statistiques de comptage.

1 Introduction

The development of non-intrusive devices for the detection of explosives hidden in cargo containers is playing a major place in Homeland Security R&D programs. Controls based on X- or gamma-ray scanners provide only information on the shape, position, and density of the transported goods and can be greatly improved by the use of fast neutrons, which give information about elemental composition of the irradiated goods [101]. Prompt gamma rays following fast-neutron-induced reactions are specific to a given nucleus and can be used to identify chemical elements. Consequently, the yield of specific gamma rays in the recorded energy spectrum can be related to the amount of the corresponding element. In particular, explosive materials can be in principle identified by means of fast neutron interrogation and discriminated against common goods, due to their specific oxygen-to-carbon (O/C) and nitrogen-to-carbon (N/C) chemical ratios. However, the detected gamma-ray yield can be strongly affected by photon attenuation and neutron moderation effects in the cargo container materials. Consequently, in order to avoid misidentification, the O/C and N/C ratios inferred from the measured gamma-ray spectrum have to be corrected for the above effects.

In a first approach within the EURITRACK project, an analytical method has been developed to obtain the chemical oxygen-to-carbon and nitrogen-to-carbon ratios from the gamma-ray energy spectra [102].

One of the main objectives of the Eritr@C project is to improve data processing and decision making software. In particular, statistical and systematic errors have to be studied in more details. Statistical errors come from the limited measurement time whereas systematic errors come from the unfolding of the measured gamma-ray energy spectrum with the database of pure element signatures. Indeed, this database has been built with a 14 MeV neutron beam [103], [104], while the neutron energy spectrum is modified inside hydrogenous cargos leading to changes in the relative intensities of the induced gamma rays. Therefore, an extensive set of conversion factors based on Monte Carlo numerical simulations has been calculated, taking into account the experimental feedback of the EURITRACK system [105], in order to replace the analytical method in future data processing algorithms. These conversion factors will be used to convert the C, N, and O count fractions (obtained by the unfolding of gamma-ray spectra into elemental contributions) into chemical fractions.

The calculation of the conversion factors and their intrinsic validation are first presented in this section. The basic physical phenomena of matrix effects in the container are also discussed. Then, a validation of the method with experimental results is presented by comparing the measured chemical proportions of known materials, in the form of bare samples or hidden in a cargo container, to their real chemical composition. Also, realistic calculations in which explosives and illicit drugs are hidden in various cargos (wood, iron, ceramic...) and in several positions illustrate the performances of the current EURITRACK system and validate the new set of conversion factors. These Monte Carlo simulations provide time vs. energy 2D histograms mimicking real inspection data. Calculations indeed take into account the time and energy smearing associated to the finite resolutions of the detectors and data acquisition system, as well as the counting statistics associated to 10 min. inspections with a limited number of detectors. Testing the method with real trucks inspections is also presented. Finally, an overview of the improvements that should be achieved in view of an industrial system is performed.

2 Calculation of count to chemical ratios conversion factors

2.1 Calculation method

To design and estimate the performance of the EURITRACK system, the neutron and gamma transport code MCNP [106], has been used successfully for the elements the isotopes of which show reliable neutron-induced gamma rays cross sections [103]. An input file specifies the setup geometry, such as materials, shapes, densities and compositions, as well as the particle type of the source, its energy, its location and its initial propagation direction. Tallies can be defined to estimate the average particle flux or current associated to points, surfaces or volumes related to the gamma-ray detectors. Energy and time cards allow the total gamma flux or current to be subdivided into energy and time groups, to study the time-energy correlation. The time-energy data are normalized to one source particle. Usually, realistic particle energy deposit in detectors is calculated with MCNP in a two step process involving type-5 followed by type 8 tallies. In the first step, the photon flux energy spectrum associated to a time region is selected and serves as a source energy distribution for the second step [103]. Thus, several files must be manipulated before getting the result, which can be time consuming if one needs to study several time regions or different detector configurations. In addition, since the finite time resolution of the simulated detector cannot be modeled with MCNP, systems in which time-energy correlation is crucial cannot be described in a satisfactory way.

In order to overcome the previous limitations, the MODAR software (MCNP Output Data Analysis with ROOT) based on CERN's ROOT software, has been designed to handle time-energy data issued by MCNP simulations of neutron inspection devices using the associated particle technique [107]. MODAR exploits ROOT to visualize and process MCNP simulation results in a fast and user-friendly way. MODAR allows to take into account the detection system time resolution, which is not possible with the type-8 tally of MCNP, as well as detectors energy response function and counting statistics in a straightforward way, (see annex MODAR).

2.2 Simulated setup

Explosives and illicit drugs materials can be identified by specific O/C and N/C chemical ratios, which are proportional to the O/C and N/C count ratios. The proportionality conversion factors, used to convert count ratios into chemical ratios, depend on:

1. the gamma-ray production “cross sections” induced by 14 MeV neutrons and by lower energy neutrons that have been slowed down in the cargo container,
2. the angle between the tagged neutron beam and gamma detectors,
3. the attenuation of the gamma rays from their production point to the NaI(Tl) detectors, which can be important in the container matrix,
4. the detectors efficiency.

In order to build a set of conversion factors, MCNP simulations have been performed for the three large categories of containers (metallic, organic and ceramic) observed in the field [108], varying the container-to-source and container-to-detectors distances. The neutron-

induced photon flux is estimated with eight point detector tallies (type 5 tally of MCNP) located above the container in the position of the top gamma-ray detectors of the EURITRACK system, see Figure III - 1. Eight pairs of 5"x5"x10" NaI(Tl) top detectors are located in two parallel rows above the container in the real system, and only one point detector per pair has been used. The obtained photon fluxes are injected in the large face of the NaI(Tl) 5"x5"x10" detectors.

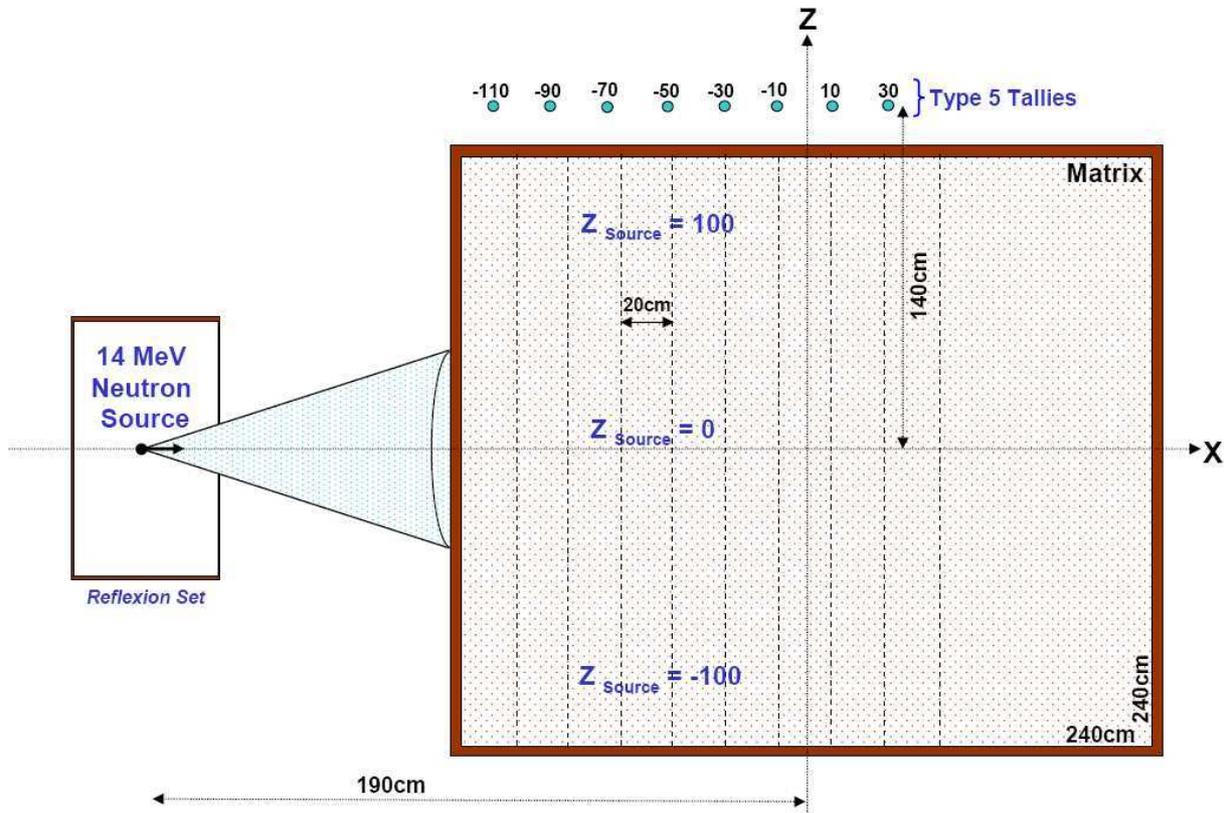


Figure III - 1. Simulated setup of the cargo containers inspection system. The dashed vertical lines represent the different calculation areas of the conversion factors.

2.3 Conversion factors in different cargo matrixes

MCNP simulations have been performed for containers filled with organic materials (0.2 and 0.4 g.cm⁻³ wool and ammonium acetate), as well as for the most penalizing case of a container transporting paper and water that strongly limits neutron penetration due to their high hydrogen concentration. The O/C and N/C count ratios have been calculated for 20 cm slices placed deeper and deeper along the x-axis in these matrixes, and at different source heights in the middle of the container ($Z_{\text{source}} = 0$ cm), near its base ($Z_{\text{source}} = -100$ cm), and near the top ($Z_{\text{source}} = 100$ cm).

The O/C and N/C conversion factors for the organic matrixes are presented in Figure III - 2. The average of each depth (X) with different densities and heights shows a standard deviation less than 33% and 18% for O/C and N/C respectively.

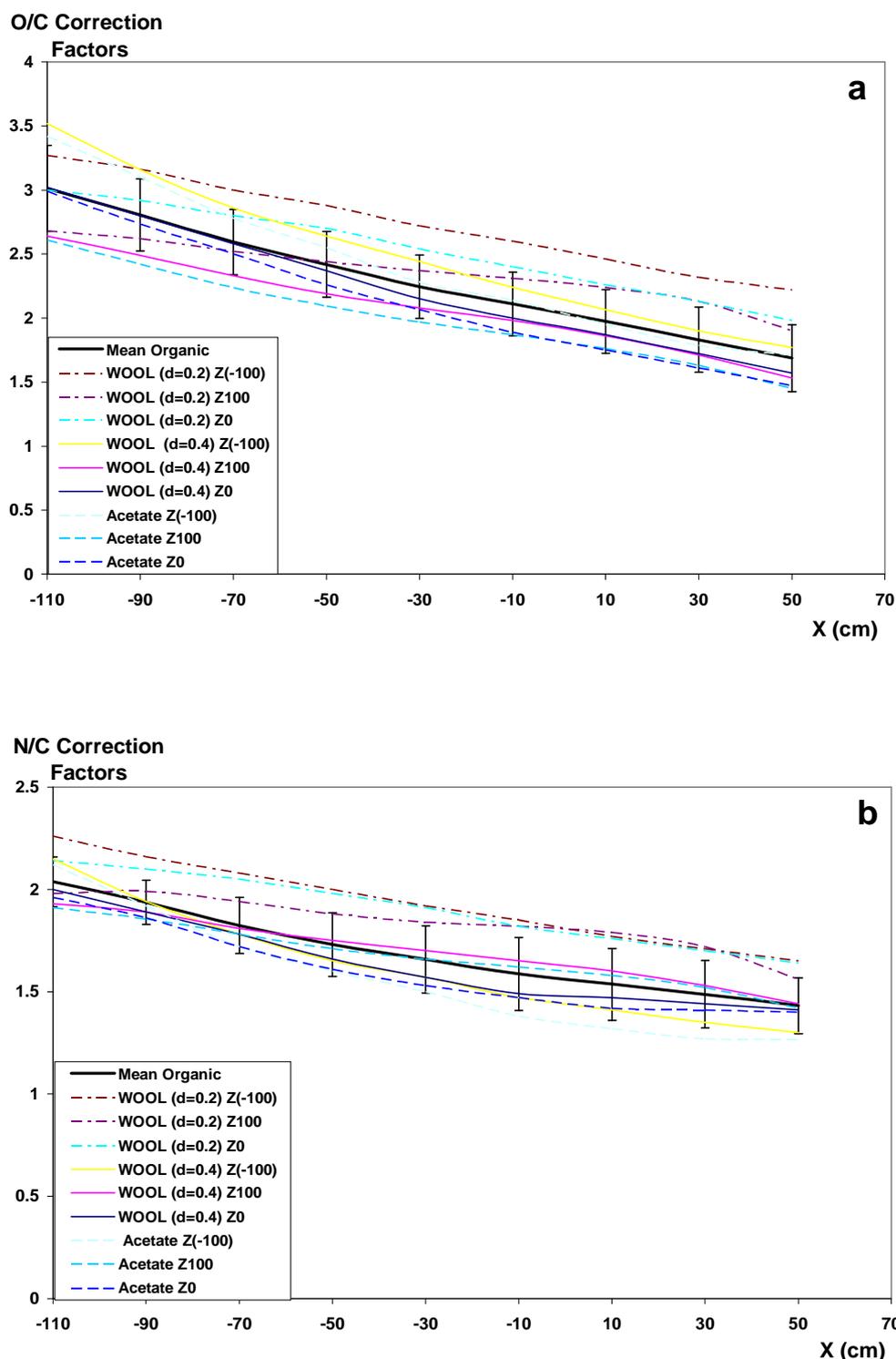
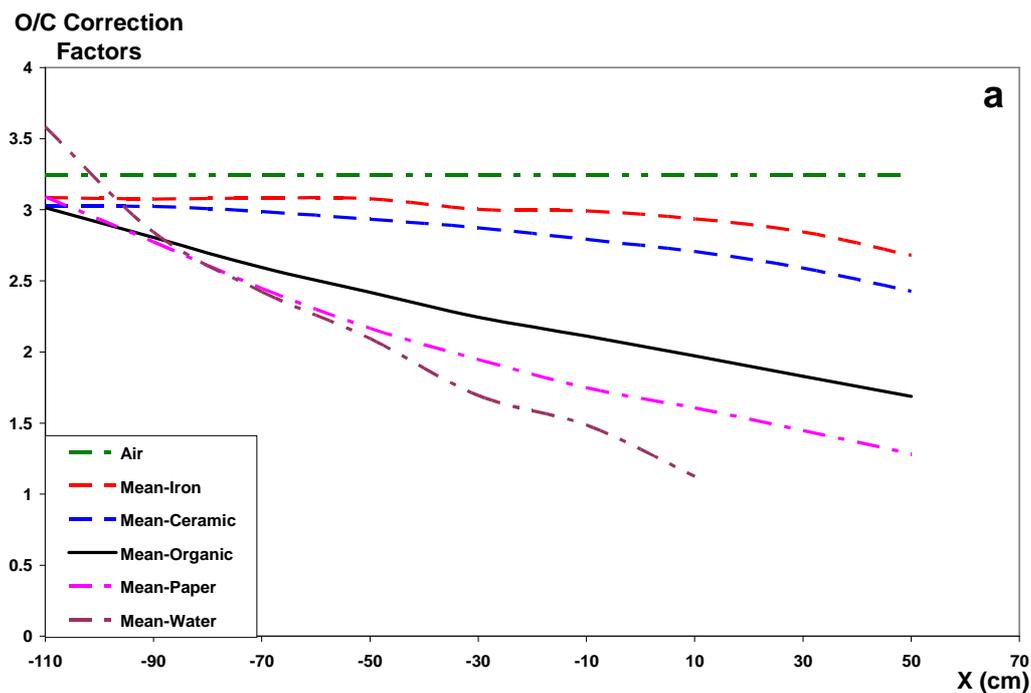


Figure III - 2. O/C (a) and N/C (b) conversion factors for different organic matrixes (wool and acetate) at different source heights (Z) and depth (X) inside the container. The mean of all these values is also presented (black lines) with their standard deviation.

MCNP simulations have been also performed for containers filled with $0.2 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ density of iron and silicon dioxide materials. Small additional atomic fractions (1%) of C, O, and N have been introduced in these matrixes and the MCNP PIKMT card has been used to obtain only the spectra associated to these carbon, oxygen and nitrogen additives (excluding the oxygen

of the SiO_2 matrix). The average O/C and N/C count ratios calculated at the different heights are reported in Figure III - 3, along with the mean of the organic materials (from Figure III - 2), as well as the paper and water matrixes. The case without neutron moderation and gamma-ray attenuation is calculated with thin targets of TNT and ammonium acetate in air (no matrix) and is also shown in this figure. These intrinsic values of O/C and N/C are respectively 3.24 and 2.61 which are quite different from the ones calculated analytically (2.57 and 1.86 respectively) in [102]. This is mainly due to the anisotropic emission of the C, N, and O neutron-induced gamma-rays as reported in chapter 2. In the analytical method, the F5 tally was indeed calculated with tallies placed in the backward position relative to the neutron direction, with the ENDF-BVI library where the gamma-ray production is isotropic, while the point detectors are here placed above the container representing the top detectors of the system.

The mean value of all the factors calculated for the metallic and ceramic matrixes for different source heights and thicknesses inside the cargo container has a standard deviation smaller than 10% at each X (depth) position. On the other hand, it must be noted that the same values of O/C and N/C conversion factors have been obtained by using the small face of the NaI(Tl) 5"×5"×10" detectors instead of the large face.



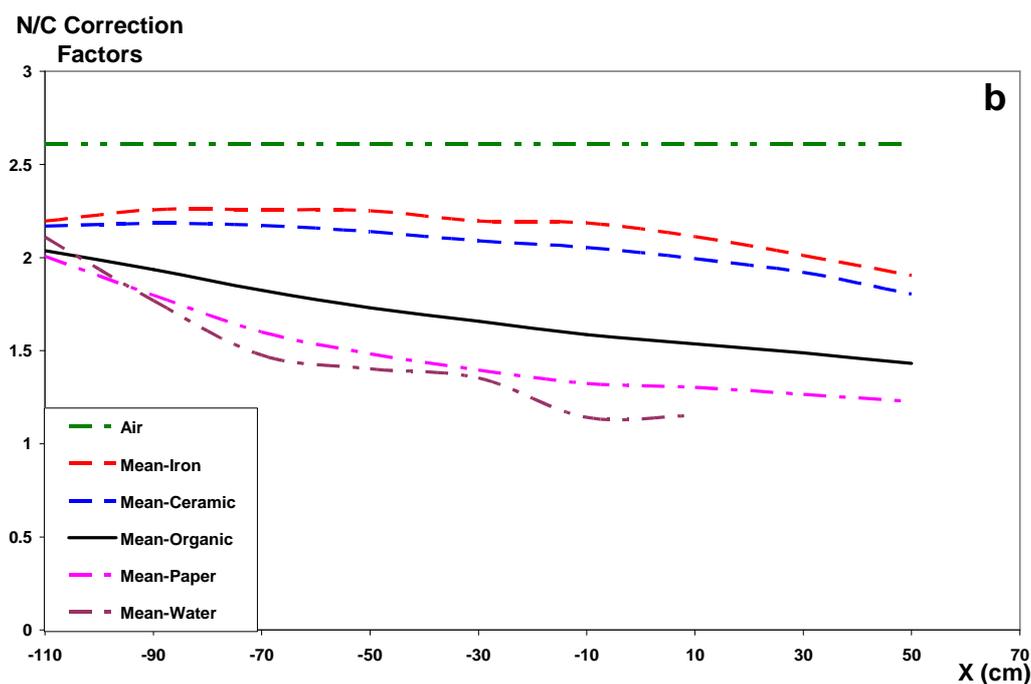


Figure III - 3. Average O/C (a) and N/C (b) conversion factors for metallic, ceramic and organic at different source heights relative to the thickness inside the container. The black lines represent the organic mean, the blue ones are for the ceramic mean, and the red ones are for the metallic mean (iron). The purple lines represent the most penalizing organic case: water and the pink line is for paper. The cases for no gamma attenuation and no neutron moderation are also drawn (green lines).

3 Intrinsic validation of the conversion factors

In order to validate the accuracy of the calculated conversion factors and of the least square algorithm used to unfold the energy spectra into elemental contributions, gamma-ray spectra calculated using a thin target model have been first used. The target is a small sphere of an organic element with a diameter of 0.2 cm. It is irradiated by a mono directional 14 MeV neutron source. The gamma-ray spectra is calculated in eight positions of the 5''x5''x10'' NaI(Tl) detectors as in the EURITRACK system.

Figure III - 4 presents the energy spectrum corresponding to a TNT thin target. The unfolding into pure element spectra of C, N, and O provides the counts fractions (in %) of these elements, without statistical uncertainties which have not been introduced in the simulation. The O/C and N/C count ratios are then converted into chemical ratios with conversion factors calculated specifically for the thin target, providing O/C = 0.87 and N/C = 0.42 consistent with the true chemical proportions of TNT ($C_7H_5O_6N_3$), which are 0.86 and 0.43, respectively. The “measured point” (so called because this final representation of the data processing result will be used for real inspections) overlaps with the TNT point in the barycentric triangle representation of the relative C, N, and O proportions shown in Figure III - 4, see [109].

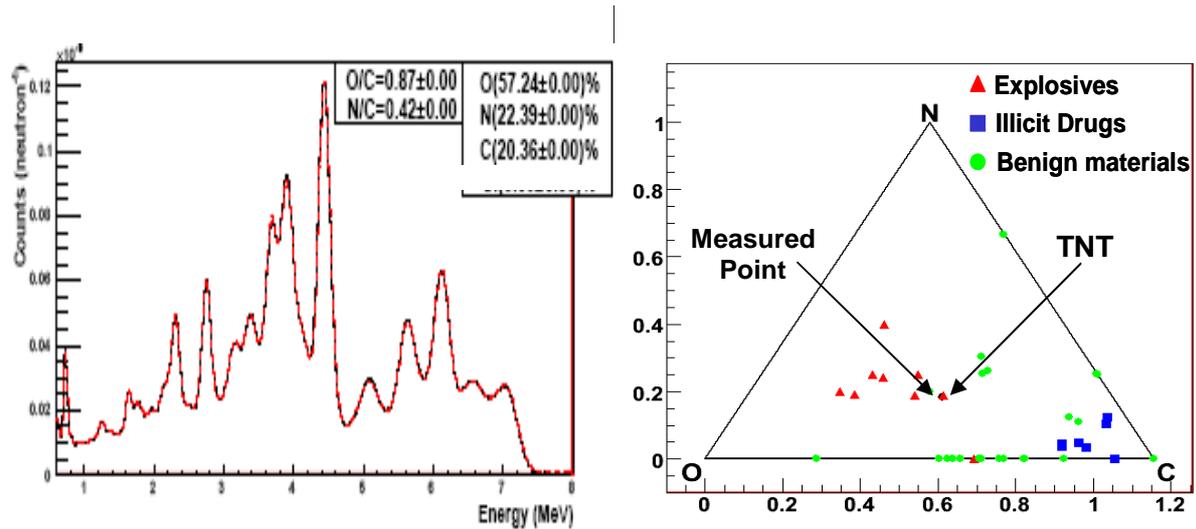


Figure III - 4. Energy spectrum of a thin TNT target (left) showing the count proportions in % stemming from the unfolding into elementary spectra, and the O/C and N/C chemical fractions obtained with the conversion factors of section 2.3. On the right, barycentric triangle diagram showing the measured point with respect to explosives, illicit drugs, and benign materials.

The O/C and N/C obtained for a wood thin target (0.55 and 0 respectively) are also in good agreement with the real chemical ratios (0.545 and 0 respectively) as shown in Figure III - 5. Here again, the measured point overlaps with the wood point. These results show that the intrinsic conversion factors calculated above and the unfolding algorithm allow the ratios to be determined correctly from the simulated gamma-ray spectra.

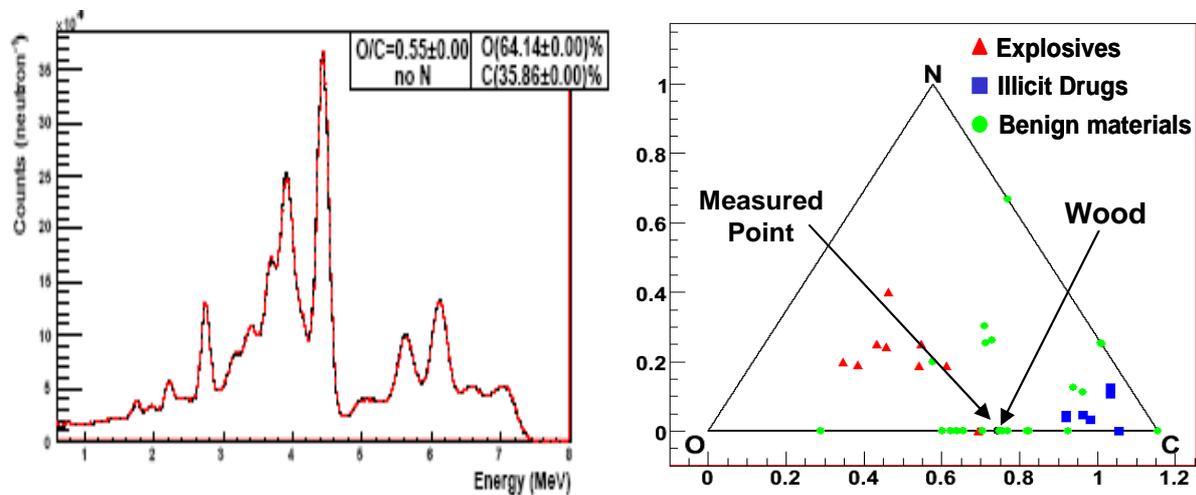


Figure III - 5. Energy spectrum of a thin wood target and corresponding triangle diagram (logically, no nitrogen is found in this wood target).

Since the experimental spectra have been acquired with thick targets, and in order to validate the conversion factors in more realistic cases including neutron moderation and gamma attenuation, a thick target model irradiated by a 14 MeV conical neutron beam has been used. Counting statistics and the cargo matrix are so far not introduced in the simulation.

Figure III - 6 shows a small deviation of the simulated O/C and N/C ratios for the TNT thick target with respect to the real chemical ones. The triangle diagram shows that the measured point is, however, still close to the TNT point.

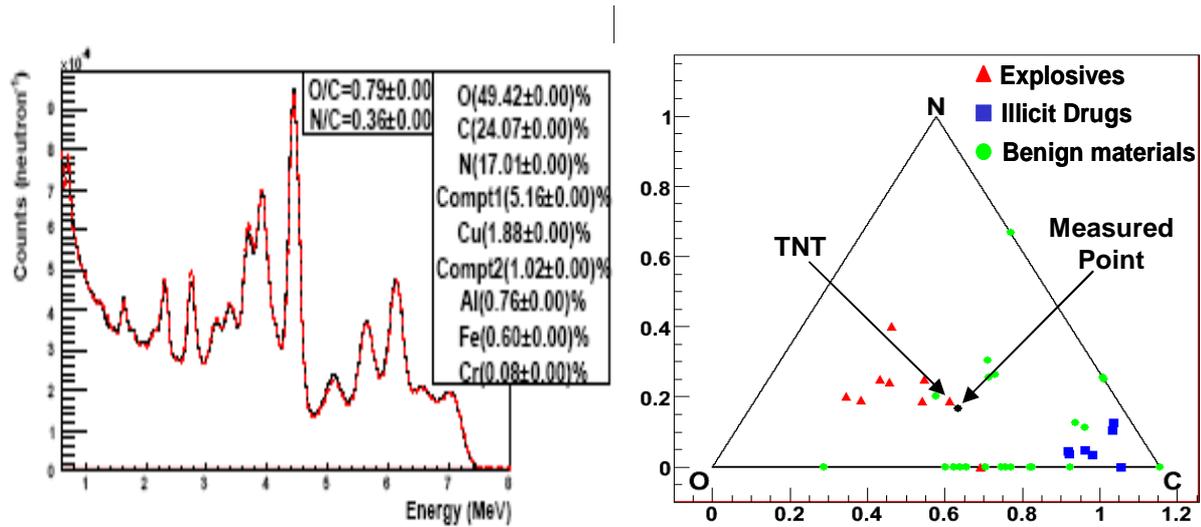


Figure III - 6. The Energy spectrum of a TNT thick target and the corresponding triangle diagram of the nitrogen and oxygen amounts relative to carbon of the illicit and benign materials.

The discrepancy between the O/C simulated ratio of the thick wood target and the true chemical one is also very small, see Figure III - 7.

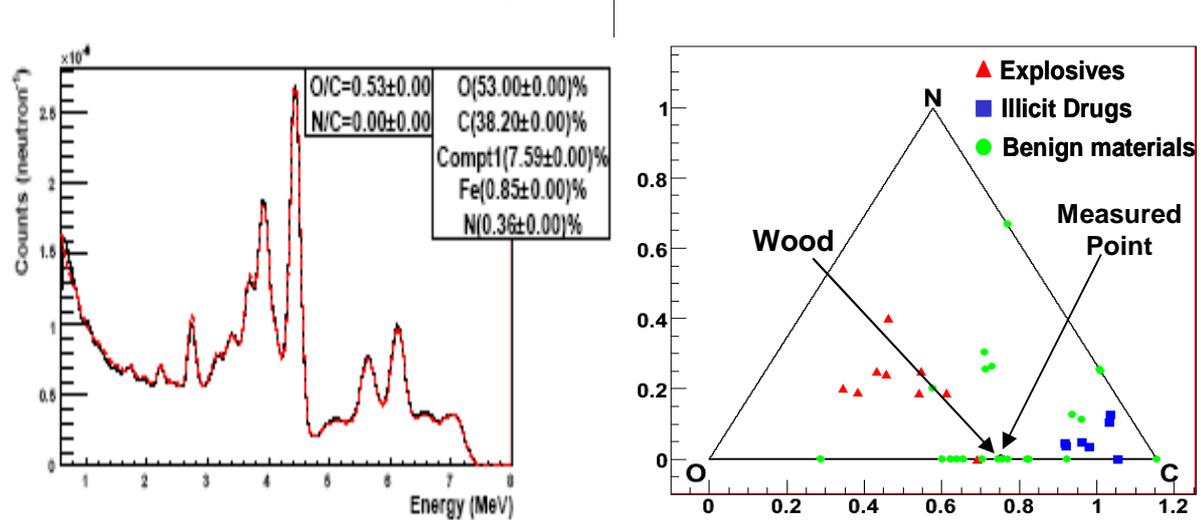


Figure III - 7. The Energy spectrum of a wood thick target and the corresponding triangle diagram of the nitrogen and oxygen amounts relative to carbon of the illicit and benign materials.

The main causes of these small deviations are photon scattering and self absorption in the thick target, which increases the low-energy Compton continuum and modifies the relative peaks intensities. In addition, for these samples containing hydrogen (wood, TNT), the modification of the average neutron energy by elastic scattering also participates to the relative peak intensity modification because the gamma-ray production cross sections show very different energy thresholds and variations with the neutron energy. These effects may largely increase in a container filled with cargo materials. This is the subject of the next section.

4 Matrix effects in cargo containers

4.1 Basic physical phenomena

Figure III - 8 shows the energy distribution of the neutron fluxes inside containers filled with organic matrixes (wool and ammonium acetate with a density of 0.4 g.cm^{-3}), ceramic and iron matrixes with 0.2 g.cm^{-3} density. Neutron moderation increases with the depth inside the container. This is mainly due to elastic scattering on hydrogen for organic matrixes.

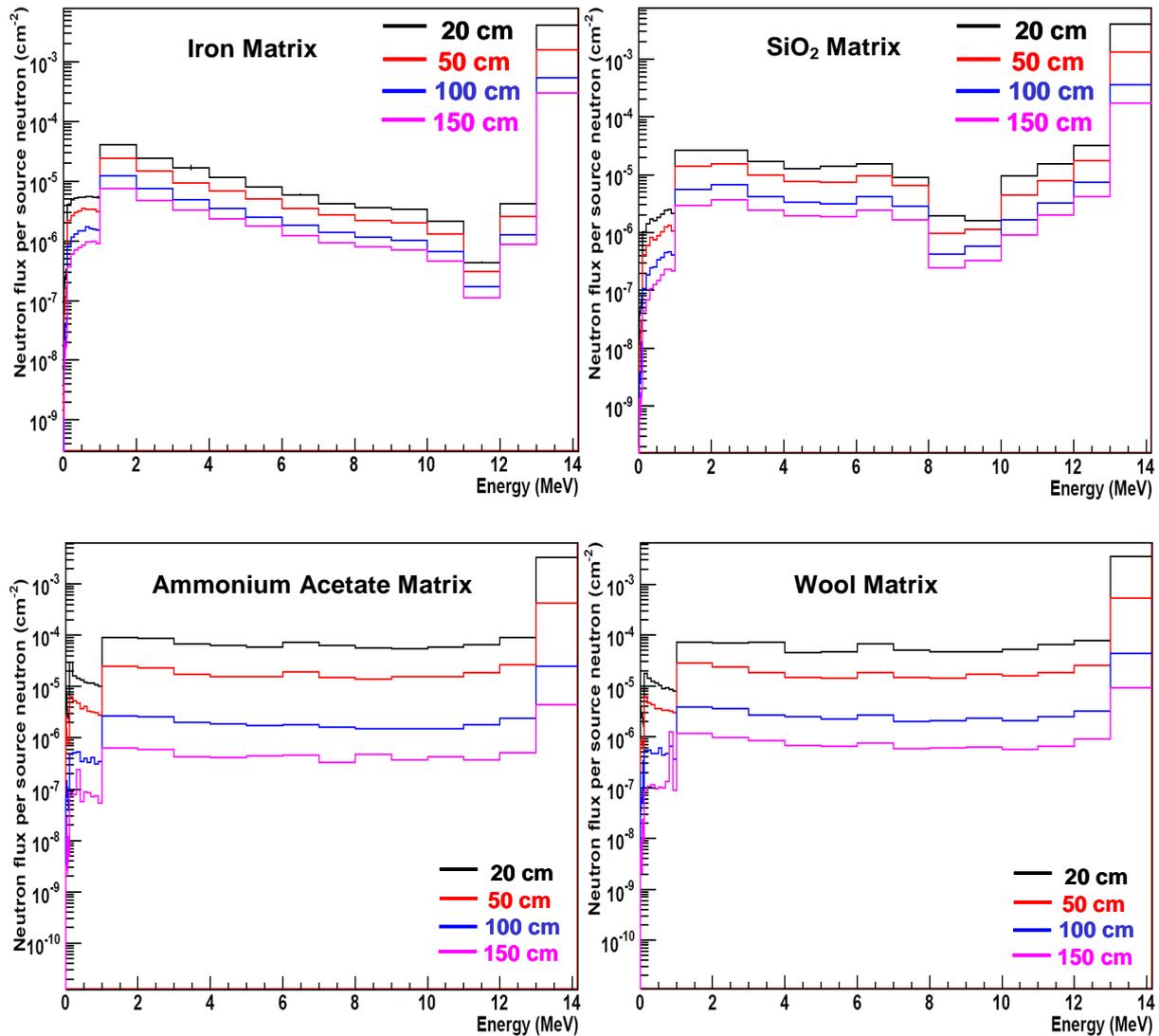


Figure III - 8. Logarithmic distribution of the neutron flux at different depths inside a container filled with different matrixes.

Another consequence of neutron scattering is that a part of the tagged neutron beam is deviated from its original direction (see Figure III - 9), leading to a reduction of the spatial selectivity. As a consequence, the materials of the cargo surrounding the targeted voxel to be inspected also contribute to the signal and may change the measured C, N, and O proportions.

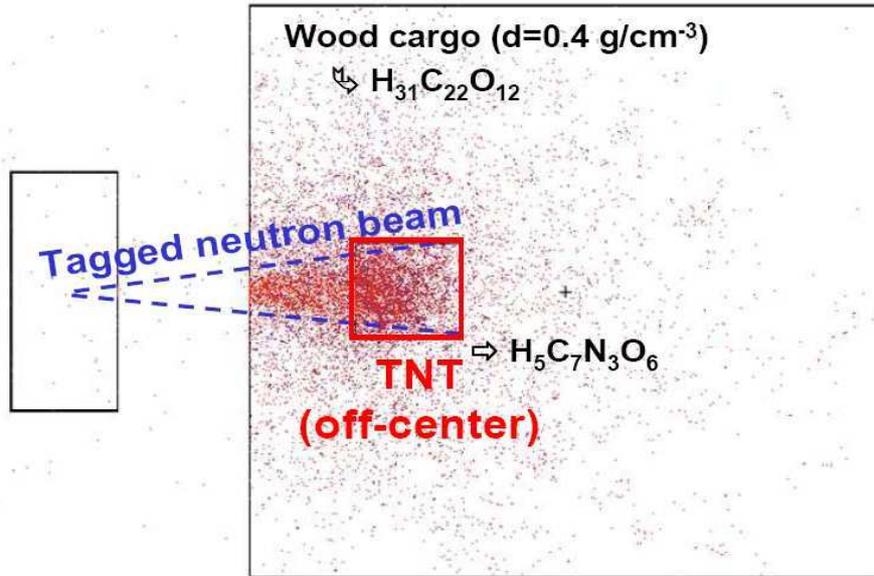
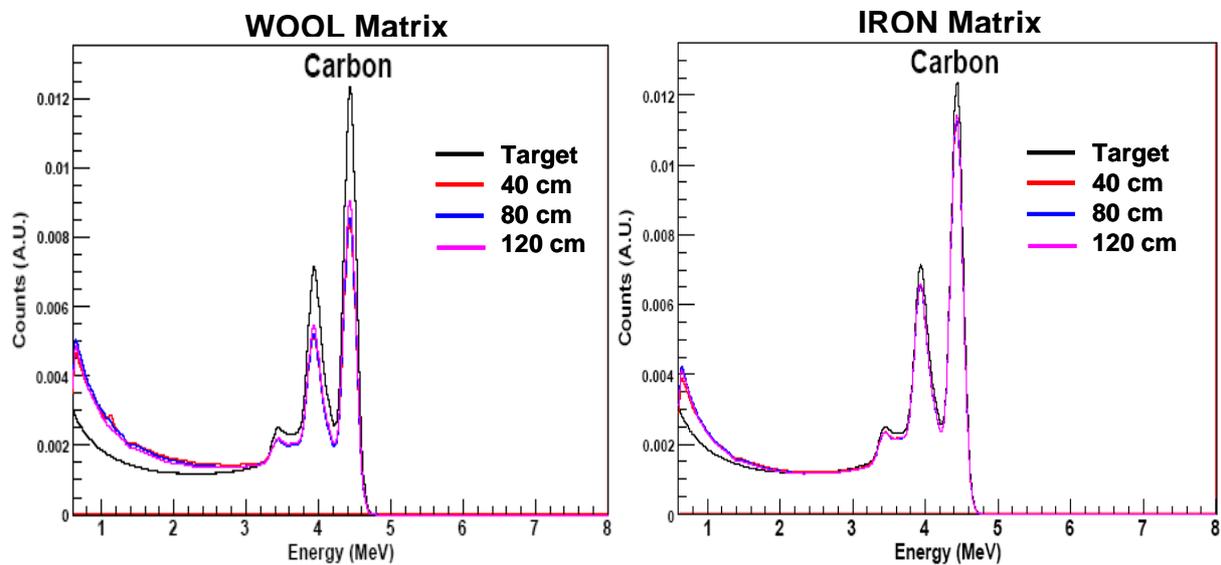


Figure III - 9. Position of neutrons interactions obtained by VISED (Visual Editor of MCNP) inside a container filled with wood matrix and containing a TNT block hidden in position 2.

The gamma-ray spectra of carbon, oxygen and nitrogen calculated for bare thick targets of graphite, water, and melamine (not surrounded by cargo materials as described in chapter 2, sections 3 and 4) are compared in Figure III - 10 to the spectra calculated with the MCNP PIKMT card at different depths inside the 0.4 g.cm⁻³ wool and 0.2 g.cm⁻³ iron matrixes. Compton scattering in the cargo materials increases the low-energy continuum and, in combination with neutron moderation, photon absorption modifies the relative peaks intensities.



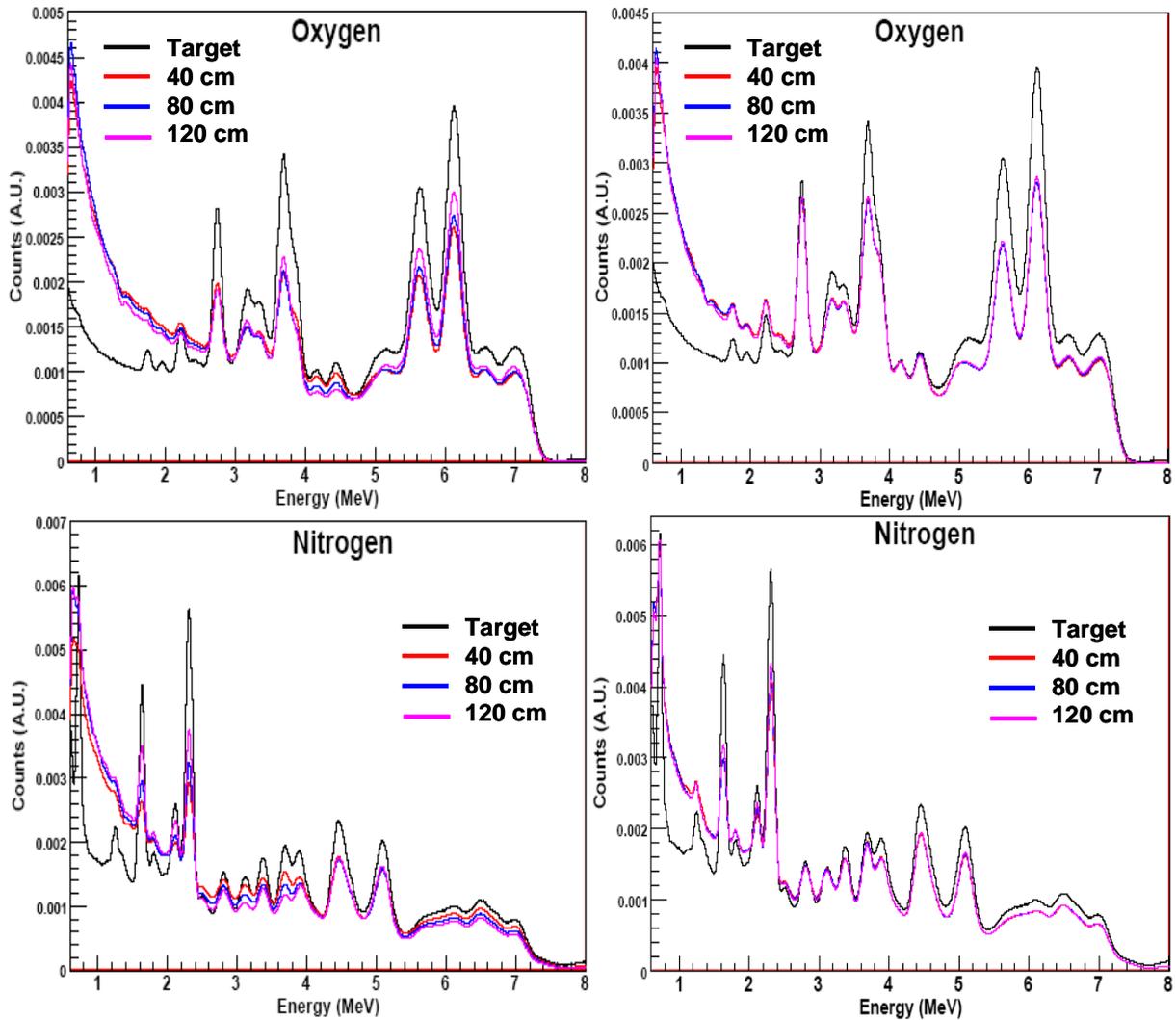


Figure III - 10. Simulated gamma-ray spectra of carbon, oxygen and nitrogen for bare thick targets of graphite, water and melamine, and for the same elements at different depths inside a container filled with wool (left column) and iron matrix (right column).

The elemental spectra used by the unfolding algorithm have been acquired with thick targets in the air. The systematic error induced by the modification of the spectra has been estimated for different positions and heights inside the matrix.

4.2 Estimation of systematic errors

In view to demonstrate possible biases in the determination of the chemical C, N, and O proportions from the measured gamma-ray spectra, realistic inspection simulations have been performed with blocks of TNT ($C_7H_5O_6N_3$) and cocaine hydro-chlorine ($C_{17}O_4H_{22}NCl$) placed in different positions inside containers filled with the three main categories of goods: iron, materials mainly containing SiO_2 (glass, ceramic, fiberglass wool...), and wood ($H_{31}C_{22}O_{12}$). To assess the systematic biases only, statistical fluctuations have not been taken into account here.

Due to the strong neutron attenuation in dense, organic cargos (such as wood), a second neutron generator should be implemented in a future industrial system to inspect the “second

half” of the container with respect to the neutron source. Therefore, only the positions in the first half of the container have been studied, see Figure III - 11. The MCNP calculation results have been processed with MODAR in order to obtain the time and energy 2D spectrum for each of the eight positions, using the response function of a NaI(Tl) scintillation detector and the time resolution of the actual EURITRACK system. Finally, taking into account the source-to-detectors distances, the individual 2D spectra can be added together to form a unique 2D spectrum as usually done with the EURITRACK system [105].

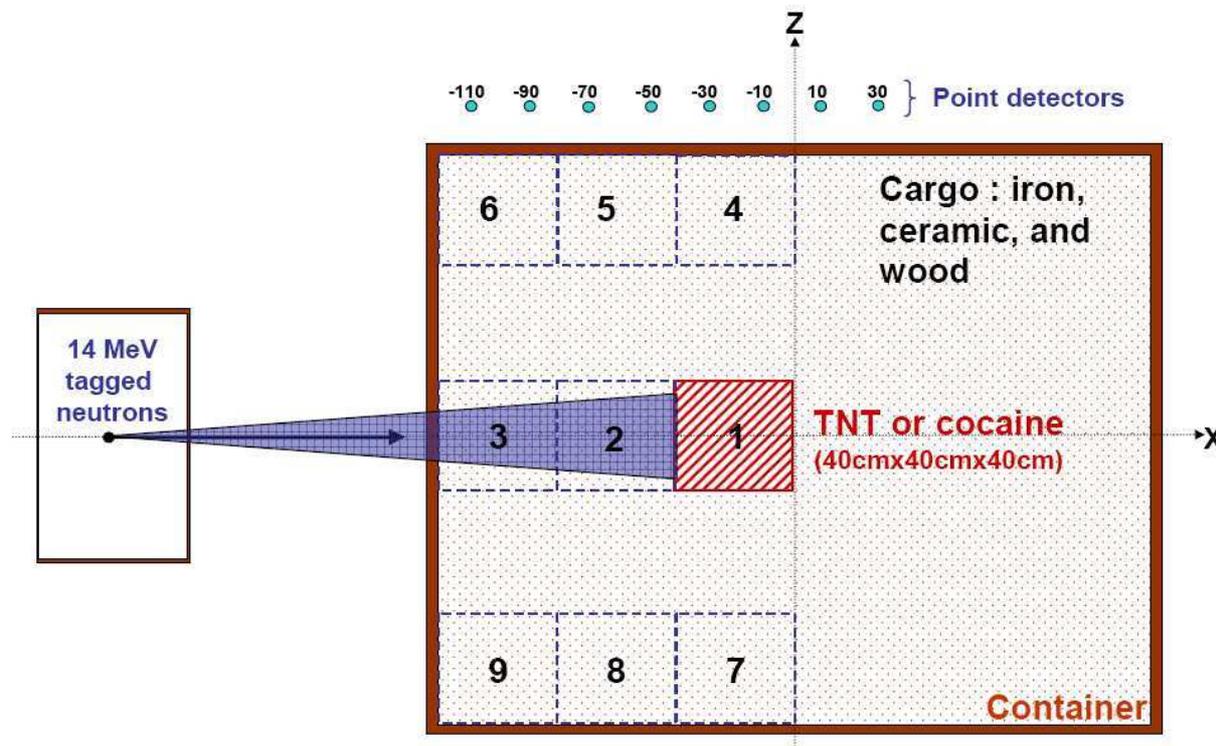


Figure III - 11. Simulated setup in which TNT or cocaine are hidden inside the cargo container in nine possible positions.

Figure III - 12 shows the TOF (Time Of Flight) spectrum, converted into a distance-to-interaction spectrum, associated to a TNT block placed in position #1 in a container filled with a 0.2 g.cm^{-3} density iron matrix. The peak around -170 cm comes from the walls of the neutron generator itself and from the box containing the neutron generator. The signal beginning at -130 cm corresponds to the iron container and iron matrix (the origin of the space axes is the middle of the container), and the peak at -30 cm is due to the TNT block which has a higher density (1.6 g.cm^{-3}) than the iron matrix (0.2 g.cm^{-3}). The energy spectrum of the part of the TOF spectrum selected with the red lines shows the presence of iron peaks only.

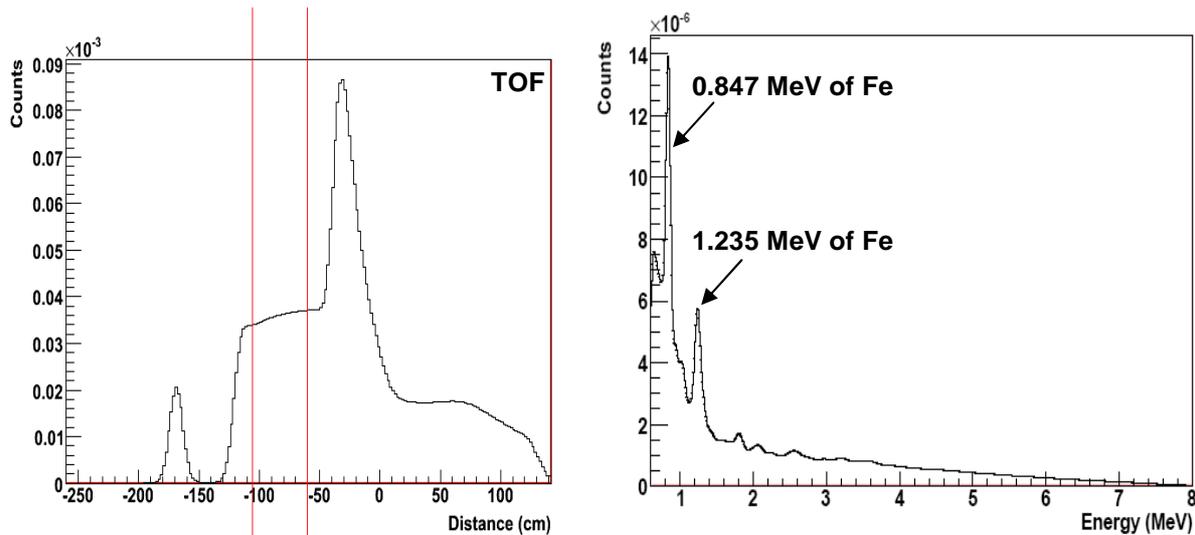


Figure III - 12. The Time of flight TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to the iron matrix inside the cargo container.

In Figure III - 13 the selected part in the time of flight spectrum corresponds to the TNT box which is located in position #1 of Figure III - 11, close to the centre of the container. The unfolding of the energy spectrum associated to the TNT area gives individual elements contributions, in counts, to the total energy spectrum [105]. In addition to the iron peaks, the presence of carbon, oxygen and nitrogen peaks has been detected. The O/C and N/C count ratios have been converted into chemical proportions, O/C = 0.74 and N/C = 0.37, with the factors calculated in section 2.3 taking into account neutron moderation and photon attenuation. These simulated ratios are consistent with the chemical proportions of TNT ($C_7H_5O_6N_3$), which are 0.86 and 0.43, respectively. Figure III - 14 shows that these ratios place the measurement point close to TNT (red triangle), in the region of well-known explosives.

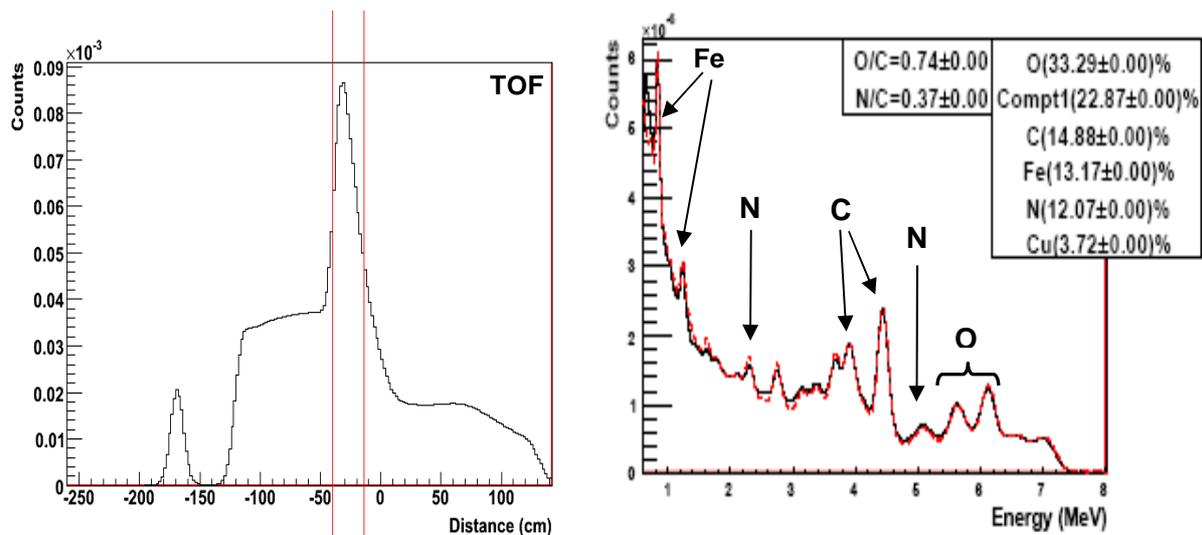


Figure III - 13. Time Of flight TOF (left) and energy (right) spectra corresponding to the TNT box in position #1 of Figure III - 11 (close to the center) of the cargo container filled with a 0.2 g.cm^{-3} iron matrix. The red dashed line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra of C, N, O, Fe, etc.

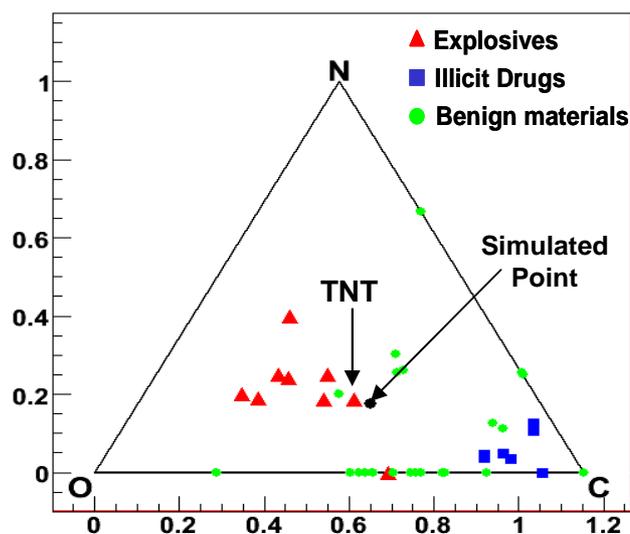


Figure III - 14. Barycentric diagram of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the gamma-ray spectrum of Figure III - 13.

The O/C and N/C chemical ratios deduced from the simulated spectra by using the appropriate conversion factors (for each matrix and TNT or cocaine position) are presented in Table 1 with the relative error comparatively to the true chemical ratio.

$$\Delta(\%) = \frac{\text{Ratio deduced from the simulated spectrum} - \text{True chemical ratio}}{\text{True chemical ratio}} \times 100$$

Table 1: O/C and N/C ratios of TNT and cocaine blocks deduced from the simulated spectra, and relative deviation with respect to the true chemical ratios for different matrixes and positions in the cargo container.

Matrix	Block	Position	True chemical ratio		Simulated ratio		Error (%)	
			O/C	N/C	O/C	N/C	Δ (O/C)	Δ (N/C)
Iron	TNT	1	0.857	0.429	0.71	0.32	-17.15	-25.41
		2	0.857	0.429	0.72	0.32	-15.99	-25.41
		3	0.857	0.429	0.72	0.28	-15.99	-34.73
		4	0.857	0.429	0.71	0.29	-17.15	-32.4
		5	0.857	0.429	0.72	0.28	-15.99	-34.73
		6	0.857	0.429	0.73	0.29	-14.82	-32.4
		7	0.857	0.429	0.74	0.38	-13.65	-11.42
		8	0.857	0.429	0.81	0.46	-5.48	7.23
		9	0.857	0.429	0.72	0.27	-15.99	-37.06
	Cocaine	1	0.235	0.059	0.2	0.08	-14.89	35.59
		2	0.235	0.059	0.2	0.08	-14.89	35.59
		3	0.235	0.059	0.2	0.05	-14.89	-15.25
		4	0.235	0.059	0.18	0.03	-23.4	-49.15
		5	0.235	0.059	0.19	0.04	-19.15	-32.2
		6	0.235	0.059	0.19	0.04	-19.15	-32.2
		7	0.235	0.059	0.23	0.13	-2.13	120.34
		8	0.235	0.059	0.22	0.1	-6.38	69.49
		9	0.235	0.059	0.2	0.05	-14.89	-15.25
Ceramic	TNT	1	0.857	0.429	1.01	0.35	17.85	-18.41
		2	0.857	0.429	0.87	0.32	1.52	-25.41
		3	0.857	0.429	0.78	0.28	-8.98	-34.73
		4	0.857	0.429	0.8	0.29	-6.65	-32.4
		5	0.857	0.429	0.78	0.3	-8.98	-30.07
		6	0.857	0.429	0.77	0.29	-10.15	-32.4
		7	0.857	0.429	1.04	0.39	21.35	-9.09
		8	0.857	0.429	0.9	0.34	5.02	-20.75
		9	0.857	0.429	0.79	0.28	-7.82	-34.73
	Cocaine	1	0.235	0.059	0.38	0.08	61.7	35.59
		2	0.235	0.059	0.28	0.07	19.15	18.64
		3	0.235	0.059	0.21	0.05	-10.64	-15.25
		4	0.235	0.059	0.24	0.03	2.13	-49.15
		5	0.235	0.059	0.22	0.04	-6.38	-32.2
		6	0.235	0.059	0.2	0.04	-14.89	-32.2
		7	0.235	0.059	0.39	0.18	65.96	205.08
		8	0.235	0.059	0.29	0.09	23.4	52.54
		9	0.235	0.059	0.22	0.05	-6.38	-15.25
Wood	TNT	1	0.857	0.429	0.66	0.15	-22.99	-65.03
		2	0.857	0.429	0.76	0.24	-11.32	-44.06
		3	0.857	0.429	0.89	0.34	3.85	-20.75
		4	0.857	0.429	0.65	0.16	-24.15	-62.7
		5	0.857	0.429	0.69	0.24	-19.49	-44.06
		6	0.857	0.429	0.8	0.31	-6.65	-27.74
		7	0.857	0.429	0.78	0.22	-8.89	-48.72
		8	0.857	0.429	0.86	0.28	0.35	-34.73
		9	0.857	0.429	0.98	0.36	14.35	-16.08
	Cocaine	1	0.235	0.059	0.44	0.06	87.23	1.69
		2	0.235	0.059	0.34	0.05	44.68	-15.25
		3	0.235	0.059	0.24	0.05	2.13	-15.25
		4	0.235	0.059	0.29	0.02	23.4	-66.1
		5	0.235	0.059	0.25	0.03	6.38	-49.15

		6	0.235	0.059	0.21	0.05	-10.64	-15.25
		7	0.235	0.059	0.48	0.11	104.26	86.44
		8	0.235	0.059	0.38	0.09	61.7	52.54
		9	0.235	0.059	0.27	0.04	14.89	-32.2

The variation of the O/C relative error as a function of depth, height, and matrix inside the container are presented in Figure III - 15. The smallest error is observed for the iron matrix which does not includes C, N, and O elements interfering with the ones of TNT or cocaine. For the ceramic and wood matrixes, however, part of the tagged neutron beam is scattered away from the block, see Figure III - 9 in section 4.1, thus modifying the measured oxygen (and carbon in wood) fractions in the TNT or cocaine voxels. This effect combines with neutron moderation and photon attenuation to produce the global observed biases. Therefore, using the O/C ratio to identify cocaine deep inside the wood or ceramic matrixes is a priori not possible.

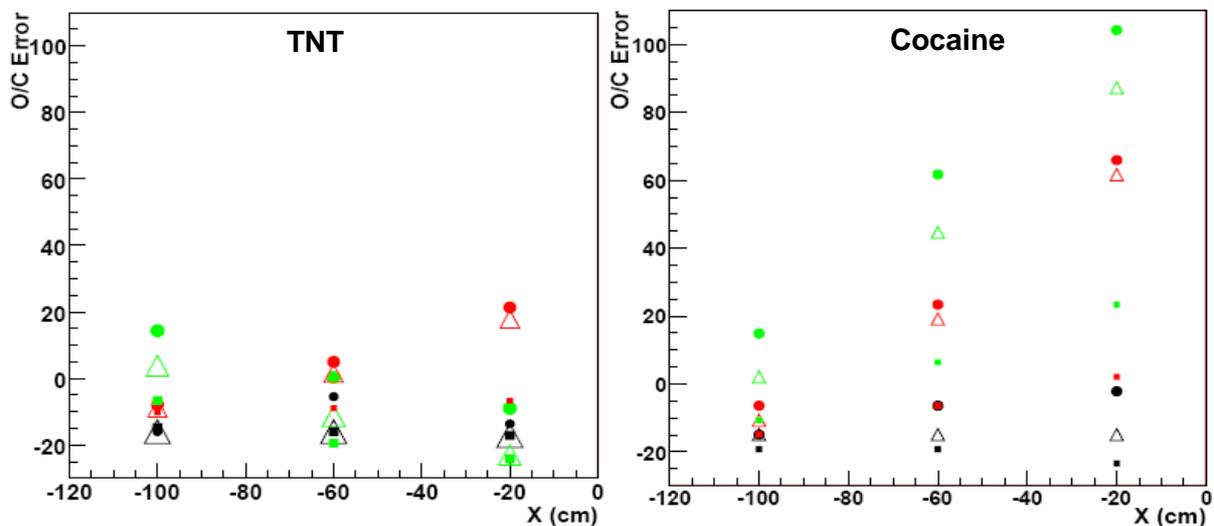


Figure III - 15. Variation of the O/C relative error (in %) for a box of TNT (left) and cocaine (right) hidden in different positions inside a container filled of iron (black markers), ceramic (red markers) and wood (green markers) as a function of depth inside the matrix: $X = 0$ is the center of the container, and the middle of the TNT or cocaine blocks are located at $X = -100$ cm (beginning of the cargo), -60 cm and -20 cm. The markers style represents the neutron source height: empty triangles for $Z_{source} = 0$ cm, full squares for $Z_{source} = 100$ cm and full circles for $Z_{source} = -100$ cm.

Figure III - 16 shows the variation of the N/C relative error as a function of depth, height, and matrix inside the container. The error is here significant for the iron matrix as well, and in all matrixes it is getting very high with the increasing depth.

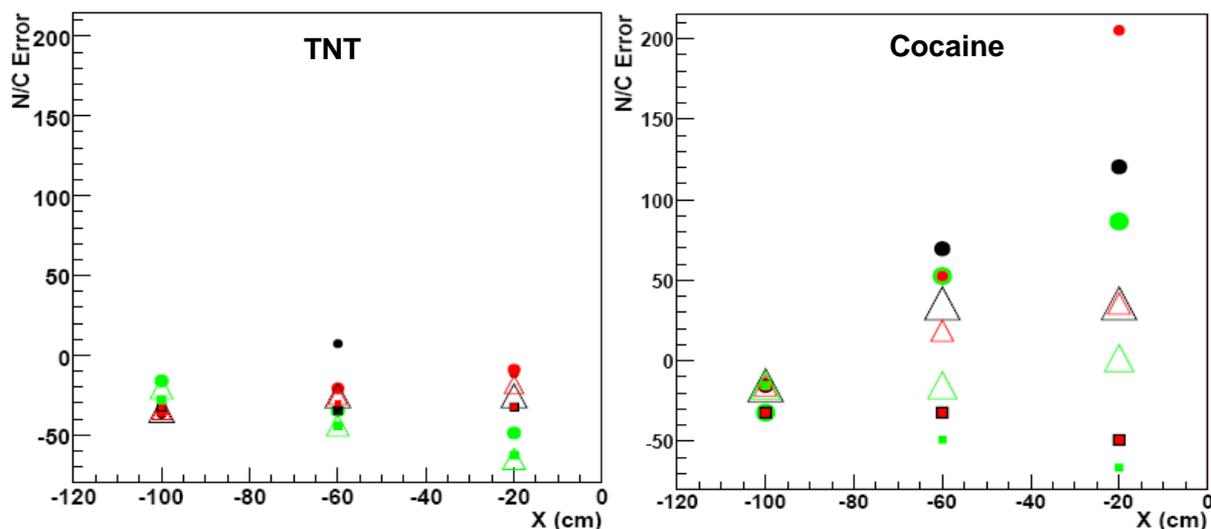


Figure III - 16. Variation of the N/C relative error (in %) for a box of TNT (left) and cocaine (right) hidden in different positions inside a container filled of iron (black markers), ceramic (red markers) and wood (green markers) as a function of depth inside the matrix ($X = 0$ cm is the center of the container). The markers style represents the neutron source height: empty triangles for $Z_{\text{source}} = 0$ cm, full squares for $Z_{\text{source}} = 100$ cm and full circles for $Z_{\text{source}} = -100$ cm.

It must be noticed that the error obtained for the cocaine target are not very reliable due to its small nitrogen fraction (0.059). Indeed, even without taking into account statistical fluctuations, small count fractions (few percents) cannot be determined with a good precision by the unfolding algorithm.

In general, the relative errors increase as a function of the depth inside the container and of the distance between the neutron source and the set of top NaI(Tl) detectors. This is indeed due to the neutron moderation and gamma attenuation. The interval of variation of the systematic error in the different positions inside the cargo container is summarized in Table 2.

Table 2: Error ranges of O/C and N/C ratios for the different positions of Figure III - 11 inside the cargo container.

Position	X (cm)	Z (cm)	O/C Error Range %	N/C Error Range %
1	-20	0	[-23:87]	[-65:-36]
2	-60	0	[-16:45]	[-44:-36]
3	-100	0	[-16:4]	[-35:-15]
4	-20	100	[-24:23]	[-66:-32]
5	-60	100	[-19:7]	[-49:-30]
6	-100	100	[-19:6]	[-32:-15]
7	-20	-100	[-14:104]	[-49:205]
8	-60	-100	[-6:62]	[-35:69]
9	-100	-100	[-16:15]	[-37:-15]

These error ranges are not symmetric and their values are very large due to the difficulty to detect nitrogen in the cocaine ($C_{17}O_4NH_{22}Cl$) target because of its small nitrogen atomic fraction (0.022) as mentioned before. Furthermore, these ranges would be reduced if the matrix were known based on the manifest declaration of the transported goods. And, in reality, the shape and the elemental composition of the inspected voxels are not known.

Consequently, the error range of the O/C and N/C conversion factors for iron and silicon matrixes are considered to be $\pm 20\%$ and $\pm 35\%$ respectively. For the wood matrix, these ranges are considered to be a little larger $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$ respectively. These values have been obtained from Table 1, taking into account the average only of the uncertainties for the TNT target hidden in different positions inside these matrixes.

5 Experimental qualification of the conversion factors

5.1 Bare thick targets

After the intrinsic qualification of the conversion factors and the estimation of the systematic errors entirely based on numerical simulation, an experimental validation is necessary. For this purpose, thick target acquisitions have been performed and the energy spectra have been unfolded into simple elements spectra. The O/C and N/C ratios obtained by the unfolding algorithm have been converted into chemical proportions taking into account specific conversion factors calculated with the same methodology as previously but with a numerical model describing as close as possible the measurements with the targets. The systematic errors for all bare targets are considered to be $\pm 10\%$ and $\pm 20\%$ for the O/C and N/C conversion factors respectively, based on the deviations observed between the measured point and the true chemical ratios in section 3 about intrinsic validation with thick targets (see Figure III - 6 and Figure III - 7). These systematic errors have been combined with counting statistical uncertainties by using a Monte Carlo method (see annex MODAR).

5.1.1 Wood target

The experimental TOF and energy spectra obtained with the wood ($C_{22}O_{12}H_{31}$) thick target are presented in Figure III - 17. The unfolding of the energy spectrum into simple elements shows the presence of carbon and oxygen peaks. The measured O/C chemical ratio is 0.59 ± 0.04 and nitrogen was not detected, which is in good agreement with the true O/C chemical ratio for wood (0.545) and the absence of nitrogen in this material. It must be pointed that the uncertainty on the conversion factor reported in the spectrum of Figure III - 17 is calculated by an analytical method combining statistical and systematic uncertainties. Statistical uncertainty is deduced from the unfolding counts uncertainty, and systematic uncertainty is obtained from the conversion factors uncertainty based on uniform distribution in the interval $\pm 10\%$ and $\pm 20\%$ for O/C and N/C, respectively. Combining these uncertainties with a Monte Carlo method as mentioned above is shown in the Dalitz plot of Figure III - 18. The uncertainty area does not clearly appear in Figure III - 18 because the points are distributed on the O – C axis (no nitrogen found). It will be clear in next paragraph (see Figure III - 20).

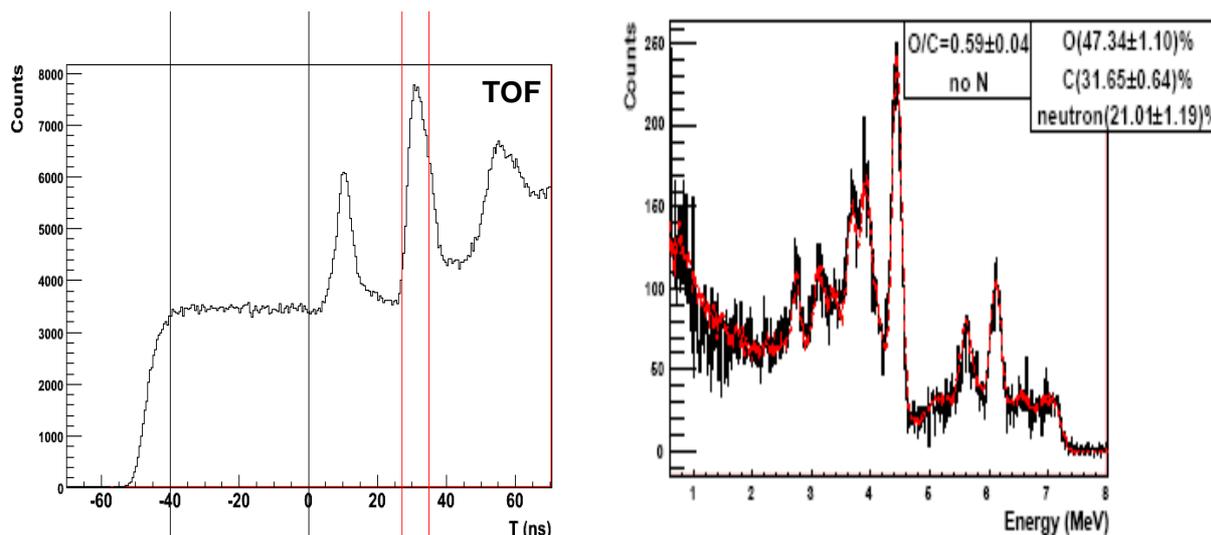


Figure III - 17. TOF (right) and energy (left) spectra for the wood thick target. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

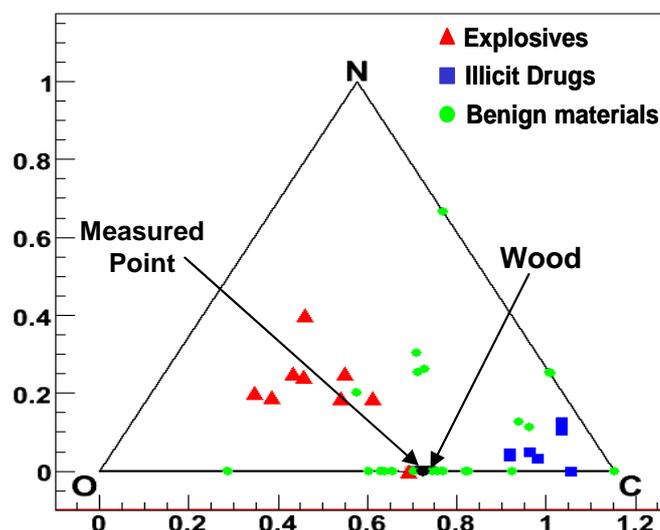


Figure III - 18. Triangle diagram of the carbon, nitrogen and oxygen relative amounts showing the measured wood target proportion relatively to illicit and benign materials (including wood).

5.1.2 Paper target

The TOF and energy spectra corresponding to the paper ($C_6O_5H_{10}$) target are presented in Figure III - 19. The measured O/C ratio (0.71 ± 0.16) obtained by the unfolding algorithm is consistent with the true chemical ratio (0.833) but with a little discrepancy due to neutron moderation and photon self-absorption in the thick target. Figure III - 20 shows the area including statistical and systematic uncertainties, which is here more visible due to the detection of a small (statistically non significant) fraction of nitrogen.

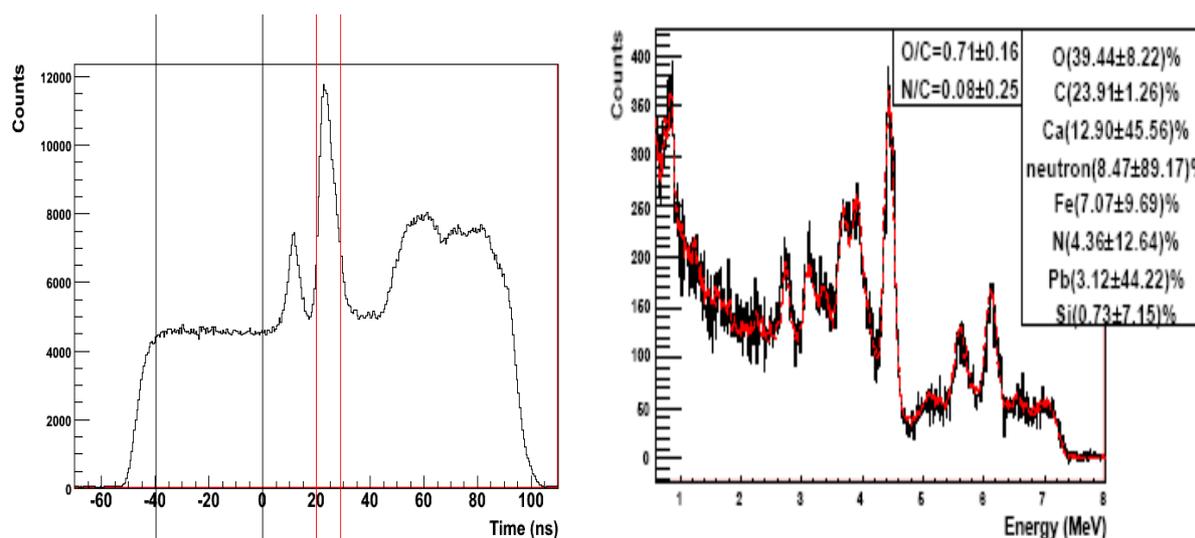


Figure III - 19. TOF (right) and energy (left) spectra for paper thick target. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

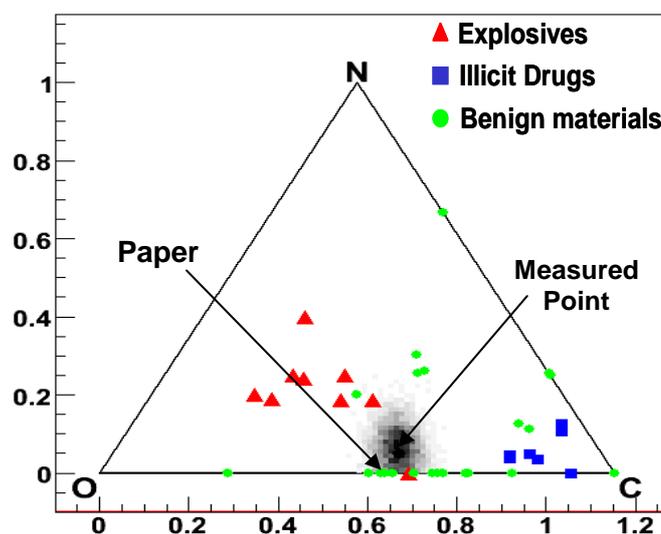


Figure III - 20. Triangle diagram of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts for the measured paper target relative to illicit and benign materials (including paper). The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials.

5.1.3 Melamine Target

The energy spectrum corresponding to the signal selected in the TOF spectrum in the melamine ($C_3N_6H_6$) thick target area is shown in Figure III - 21. The unfolding into simple elemental spectra and the conversion factors provides O/C and N/C ratios of 0.12 ± 0.08 and 2.16 ± 0.62 , respectively. These values are consistent with the true melamine chemical ratios, which are 0 and 2 for O/C and N/C, respectively. The measured point in the triangle diagram shown in Figure III - 22 is very close to the melamine point. The uncertainty area on the N/C ratio is due to counting statistics and to a systematic error interval of $\pm 10\%$ on the conversion factor. The detection of a small oxygen fraction is due to the counting statistical fluctuations and to the fact that oxygen and nitrogen intrinsic gamma-ray spectra show some similitude especially above 5.5 MeV, see chapter 2.

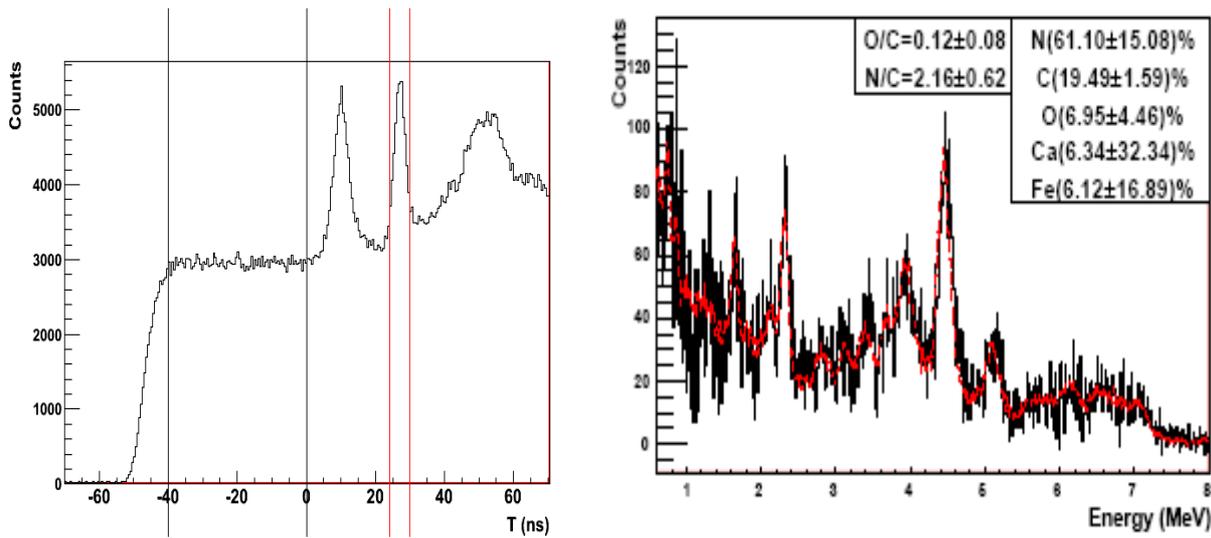


Figure III - 21. TOF (right) and energy (left) spectra for a melamine thick target. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

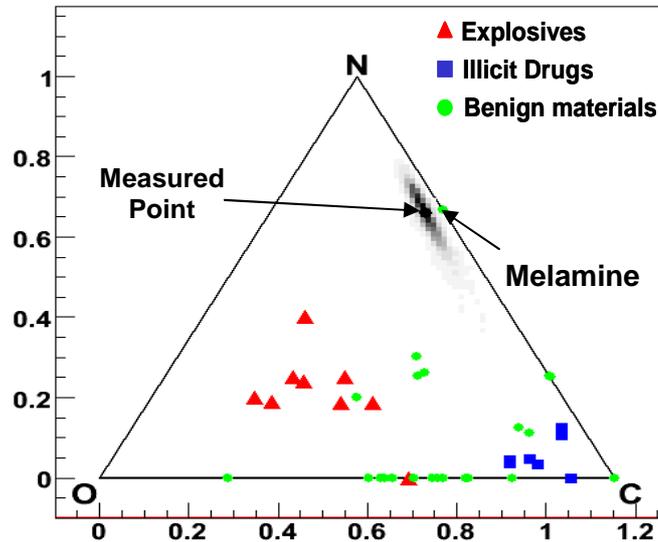


Figure III - 22. Triangle diagram of the carbon, nitrogen and oxygen relative amounts for the measured melamine target and for illicit and benign materials (among which melamine).

The Monte Carlo distribution shown in Figure III - 22 does not cover the melamine point, even if very broad systematic error ranges for the conversion factors are used. This discrepancy is due to the mistaken detection of oxygen by the unfolding algorithm. Indeed, around a few percents, the fraction of an element cannot be considered as reliable, because the algorithm may use other elemental similar signature to fit, or even, sometimes the fit of small peaks is not very good. Therefore, to take into account this reliability problem and keep the possibility that this element is not present, the fraction distribution used to propagate the uncertainties with the Monte Carlo method (see Annex MODAR) is taken uniform between 0 and the fraction of the element. By applying this calculation to the melamine spectrum, the uncertainties area covers the melamine point in the Dalitz plot, as shown in Figure III - 23.

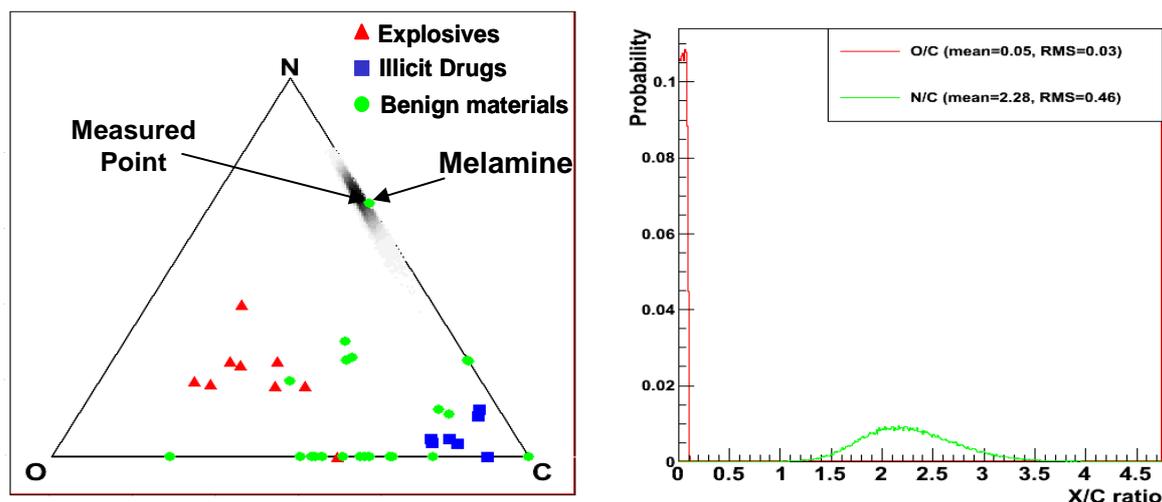


Figure III - 23. Triangle diagram (left) of the carbon, nitrogen and oxygen relative amounts for the measured melamine target and for illicit and benign materials (among which melamine). And the distribution for O/C and N/C ratios obtained (right).

5.1.4 Ammonium acetate target

The TOF and energy spectra corresponding to the ammonium acetate ($C_2O_2NH_7$) target are presented in Figure III - 24. The measured O/C and N/C ratios are 0.65 ± 0.21 and 0.47 ± 0.46 , while the true chemical ratios are 1 and 0.5, respectively. The O/C ratio is underestimated by the measurement, which also clearly appears in the triangle diagram of Figure III - 25. It must be noted that ammonium acetate has been provided as a pure chemical powder (as well as for melamine) and filled in a metallic container to avoid the influence of the original plastic packages (rich in carbon) on the measured O/C ratio.

On the other hand, since for this qualification test the target is a known material (ammonium acetate), the energy spectrum has been unfolded again with a database that only contains carbon, oxygen, nitrogen and iron signatures, in addition to the scattered neutron spectrum, because the chromium, lead, and silicon elements are not supposed to be present in the spectrum. The O/C and N/C obtained ratios becomes 0.62 ± 0.05 and 0.34 ± 0.14 , respectively, which is not much different as in Figure III - 24 in terms of O/C. On the other hand, the N/C uncertainty is now smaller and the obtained ratio underestimates the real one. Similar unfolding tests have been performed with the previous thick targets (wood, paper, and melamine) and the reduced database (only C, N, O, and scattered neutrons). The O/C and N/C ratios are similar to the one already obtained for each target with the complete database, see Table 3. In conclusion, the use of a reduced database does not allow to explain the discrepancy on the O/C measured and real ratios, but the impact can be significant as shown by the effect on the N/C ratio.

Table 3: O/C and N/C ratios obtained after unfolding with a reduced database with a 0.6 MeV threshold limited to the C, N, and O spectra, and to the scattered neutron spectrum.

Target	True O/C ratio	O/C measured ratio	True N/C ratio	N/C measured ratio
Wood	0.57	0.59 ± 0.04	0	no N
Paper	0.833	0.69 ± 0.05	0	0.01 ± 0.08
Melamine	0	0.11 ± 0.06	2	2.08 ± 0.50

Ammonium acetate	1	0.62 ± 0.05	0.5	0.34 ± 0.14
------------------	---	-----------------	-----	-----------------

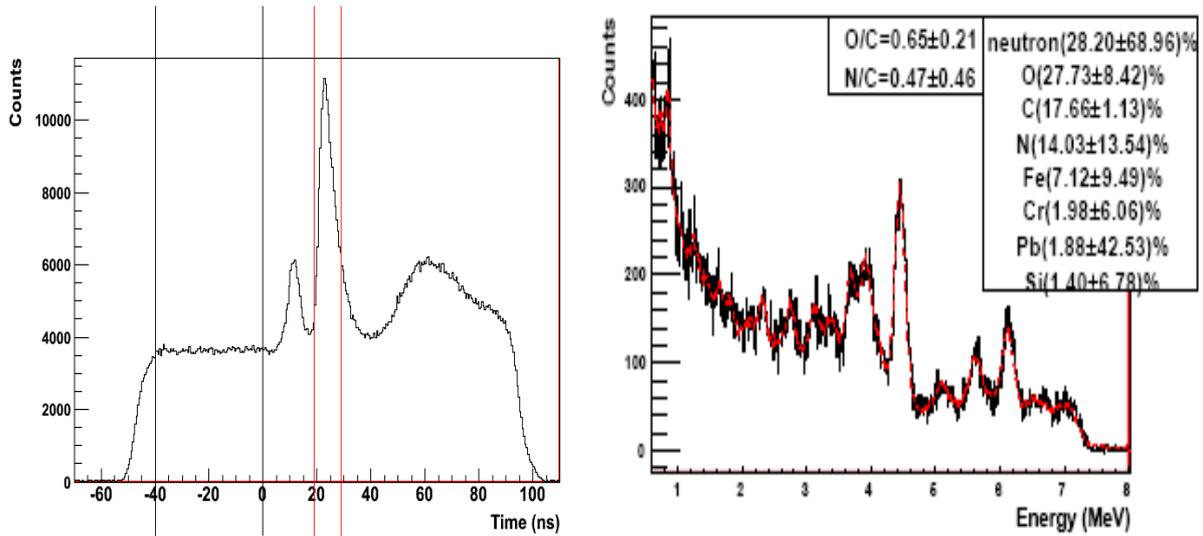


Figure III - 24. TOF (left) and energy (right) spectra for an ammonium acetate thick target. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

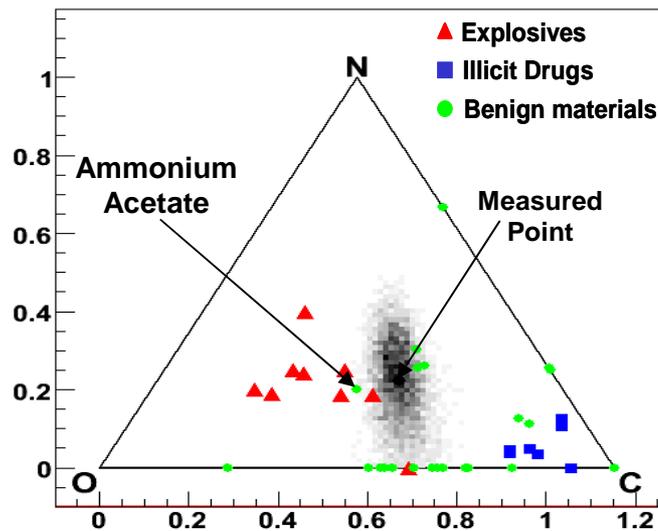


Figure III - 25. Triangle diagram of the carbon, nitrogen and oxygen relative amounts for the measured ammonium acetate target and for illicit and benign materials (including ammonium acetate, which is often used as an explosive surrogate for calibration purpose).

In order to investigate the reason of this O/C underestimation, this result has been compared with an experience performed within the EURITRACK project [102] with the old 1.35 MeV energy threshold and with the database created at 1.35MeV, without the subtraction of the scattered neutron contribution described in chapter 2. Figure III - 26 shows the results obtained with the recent data processing tool MODAR [107] with conversion factors calculated for this energy threshold. The obtained O/C is now consistent with the real ratio and the measured N/C is not much modified, despite its very large uncertainty. Hence, the measured point is now very close from the ammonium acetate point in the triangle plot. This result illustrates the high sensibility of the unfolded count fractions to the pure element database and to counting statistics, which is clearly poorer in Figure III - 26 than in Figure III - 24.

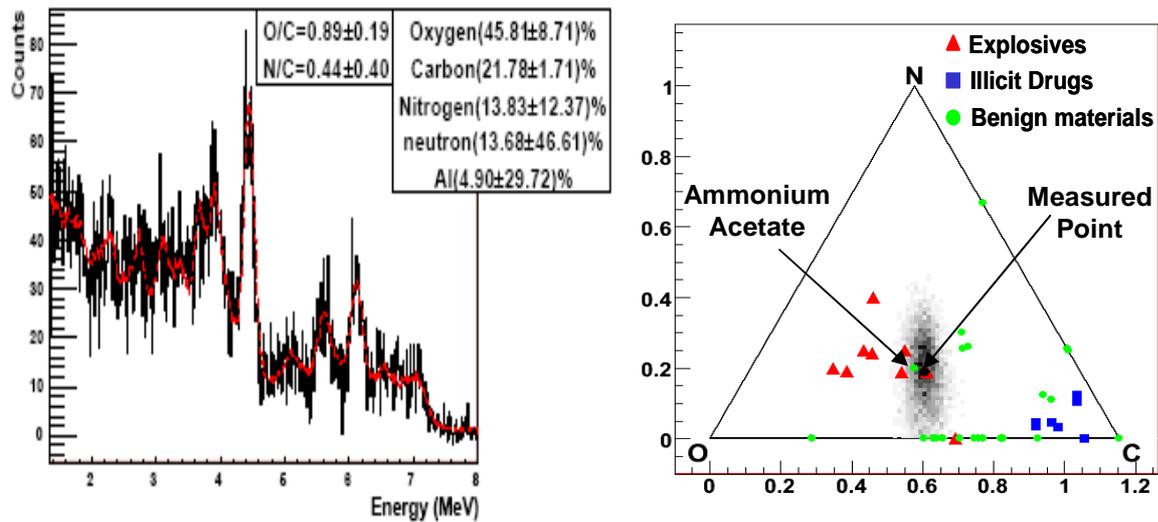


Figure III - 26. Energy (left) spectrum for an ammonium acetate thick target unfolded with the database acquired at 1.35 MeV energy threshold. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts showing the measured point with respect to the illicit and benign materials (including ammonium acetate).

Another test has been performed with the recent measurement data of Figure III - 24 and the new energy threshold of 0.6 MeV, but with a database created without subtraction of the scattered neutron contribution (see chapter 2, section 4) for the carbon, oxygen, and nitrogen pure element spectra, as in the former EURITRACK database. Figure III - 27 shows that the O/C and N/C obtained ratios are closer to the true chemical values. In particular, the oxygen count fraction is here close to 47% while it is only about 28% in Figure III - 24 where a large fraction of counts was attributed to the “neutron” pure signature. This is due to the very large neutron component observed when measuring the oxygen signature with a thick water target, see chapter 2, Figure II - 25. All these observations confirm the strong impact of the pure element database on the unfolding result.

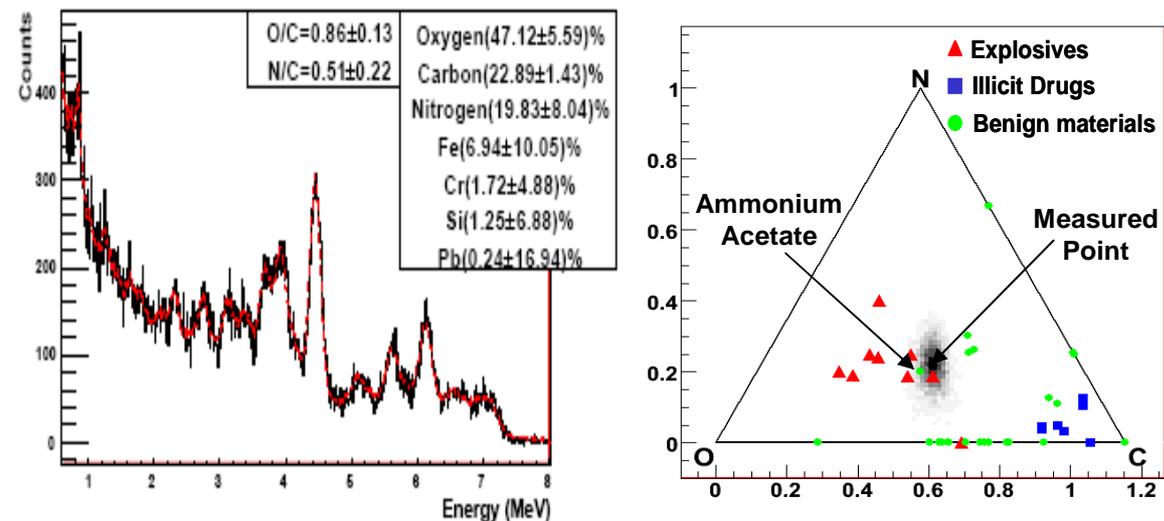


Figure III - 27. Energy (left) spectrum for an ammonium acetate thick target unfolded with a database created without subtraction of the scattered neutron contribution in the pure element spectra. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts showing the ammonium acetate measured point relatively to illicit and benign materials.

The spectra of the other targets (wood, paper and melamine) have also been unfolded with the database created without the scattered neutron subtraction, and compared to the previous results reported with the database created with neutron subtraction. The influence on the O/C and N/C measured ratios are summarized in Table 4, showing indeed a significant effect. In the following of this work, we will keep using the database created after the subtraction of the scattered neutron contribution because the spectra of the simple elements are less correlated to each other due to this common neutron background.

Table 4. O/C and N/C ratios obtained after unfolding with the database created with (above) and without (below) neutron subtraction for wood, paper, and melamine targets.

Database with scattered neutron subtraction (0.6 MeV threshold)				
Target	True O/C ratio	O/C measured ratio	True N/C ratio	N/C measured ratio
Wood	0.57	0.59 ± 0.04	0	no N
Paper	0.833	0.71 ± 0.16	0	0.08 ± 0.24
Melamine	0	0.12 ± 0.08	2	2.16 ± 0.62
Ammonium acetate	1	0.65 ± 0.21	0.5	0.47 ± 0.46
Database without scattered neutron subtraction (0.6 MeV threshold)				
Target	True O/C ratio	O/C obtained ratio	True N/C ratio	N/C obtained ratio
Wood	0.57	0.59 ± 0.04	0	no N
Paper	0.833	0.91 ± 0.06	0	no N
Melamine	0	0.11 ± 0.15	2	1.51 ± 0.35
Ammonium acetate	1	0.86 ± 0.13	0.5	0.51 ± 0.22

To conclude with the ammonium acetate measurements, it must be pointed out that the ratios reported in ref. [102] were $C/O = 1.17 \pm 0.10$ (i.e. $O/C = 0.85$) and $C/N = 4.10 \pm 3.20$ (i.e. $N/C = 0.24$), which is quite consistent in terms of O/C but very different to the N/C ratios obtained in Figure III - 24 to Figure III - 27. The O/C and N/C conversion factors used in ref. [102] were 2.57 and 1.86, respectively, in air. They had been calculated with an analytical formula using the gamma-ray production cross section estimated with MCNP in a backward position of the detector with respect to the neutron beam. The conversion factors estimated here purely by Monte Carlo simulations (2.37 and 1.45, respectively) have been specifically calculated for the thick ammonium acetate target and for the appropriate beam-to-detectors angles of the experimental EURITRACK setup. This difference in the conversion factors is, however, not sufficient to entirely explain the large difference between the N/C chemical ratios measured here and in ref. [102]. The other reasons are the different statistical precisions (see Figure III - 24 vs. Figure III - 26), especially for the unfolded nitrogen counts, and again the different pure element databases, which both significantly influence the nitrogen-to-carbon count ratio.

5.2 Thick targets in the iron matrix

The objective of the EURITRACK system being the detection of explosives and illicit drugs hidden in cargo containers, the set of conversion factors established previously should be validated experimentally in such conditions. Unfortunately, it is not allowed to keep these materials at the port of Rijeka for a long series of tests. Only measurements performed from

time to time (one day with severe police control) have been possible during the EURITRACK project with real illicit drug samples [110]. For this reason, we have performed additional measurements with thick targets of several organic materials placed in a test iron matrix in order to mimic realistic inspections.

The targets are placed in positions 1 and 3 of Figure III - 11 in the testing iron matrix of apparent density 0.2 g.cm^{-3} made of iron boxes filled with iron wire balls. MCNP simulations of the different experimental configurations have been performed, and the O/C and N/C conversion factors of each case have been specifically calculated to transform the unfolded count ratios into chemical proportions. Since all the targets are hidden in an iron matrix, according to the calculation of errors ranges presented in section 4.2, a $\pm 20\%$ and 35% systematic uncertainties has been considered for O/C and N/C conversion factors respectively.

5.2.1 Wood target hidden in the iron matrix

The wood target is hidden in position #3 of the iron matrix of density 0.2 g.cm^{-3} . The black vertical lines of the TOF spectrum shown in Figure III - 28 correspond to an iron matrix area. The energy spectrum of the selected area shows the presence of iron peaks only.

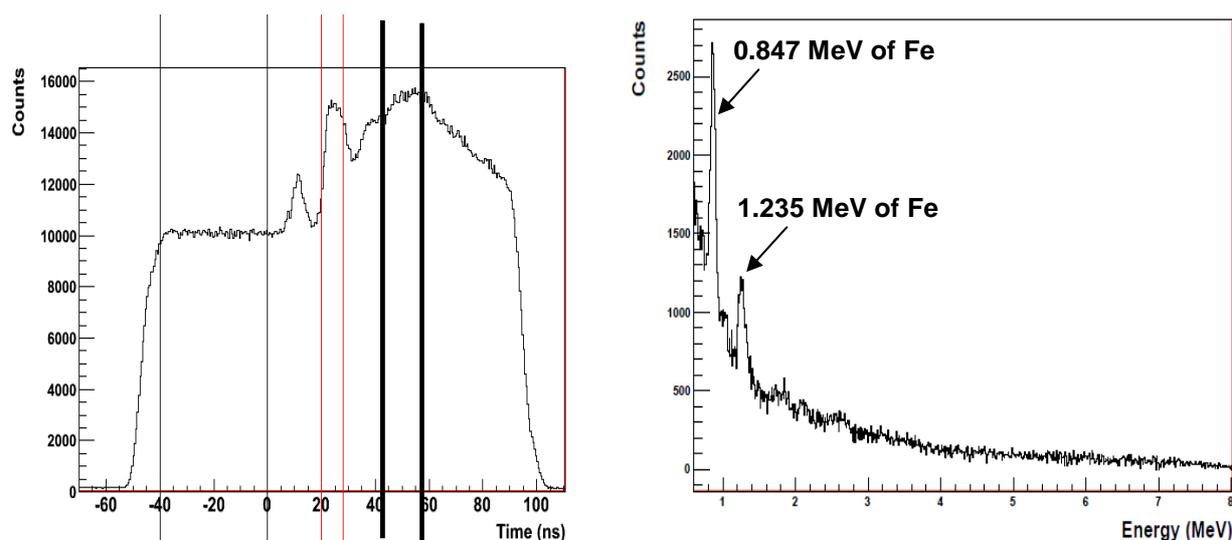


Figure III - 28. TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to the iron matrix.

The red vertical lines correspond to the wood target, whose apparent density is 0.6 g.cm^{-3} . The energy spectrum of this area shows the presence of carbon and oxygen peaks, see Figure III - 29. The measured O/C ratio is 0.51 ± 0.11 , taking into account the conversion factors for this setup obtained by numerical simulation, which is in good agreement with the wood chemical ratio of 0.545. Figure III - 29 shows that the measurement point is very close to the wood point.

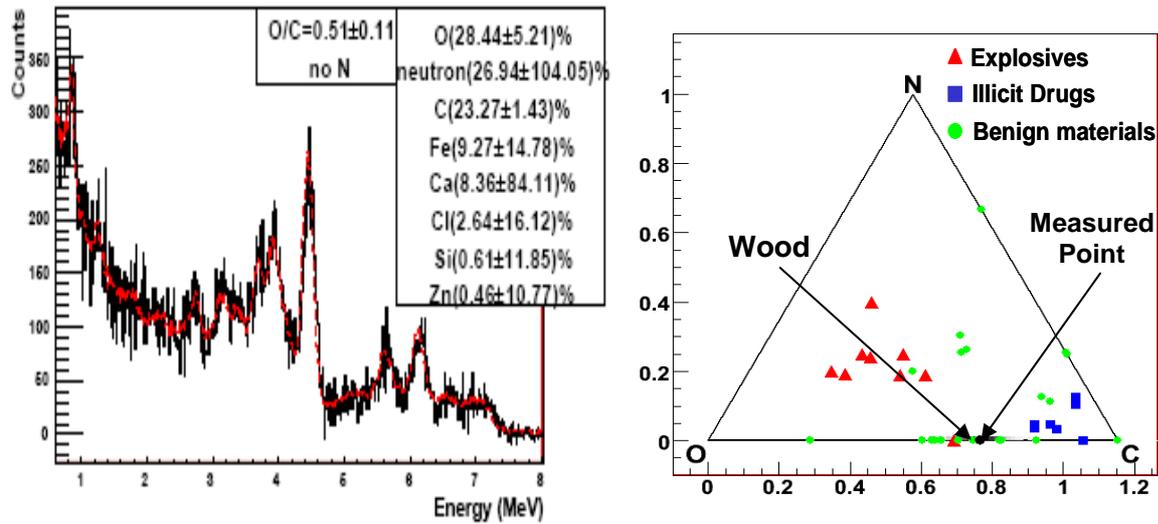


Figure III - 29. Energy spectra (left) of the wood target hidden in position #3 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the real wood position.

The TOF and the energy spectra of the wood target hidden in position #1 of Figure III - 11 are represented in Figure III - 30. Despite intense iron peaks due to neutron scattering which spreads part of the tagged beam out of the target, the O/C ratio obtained after unfolding into simple element and using the appropriate conversion factors for this experimental setup is 0.51 ± 0.17 , which is also very close to the real wood chemical ratio as shown in Figure III - 31.

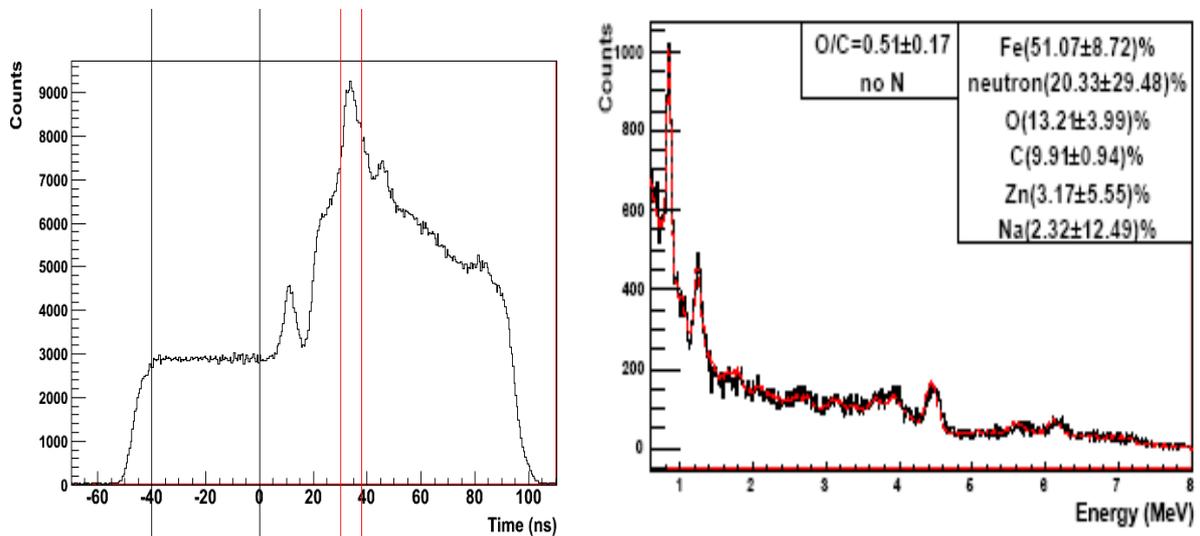


Figure III - 30. TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to wood target hidden in the position #1 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

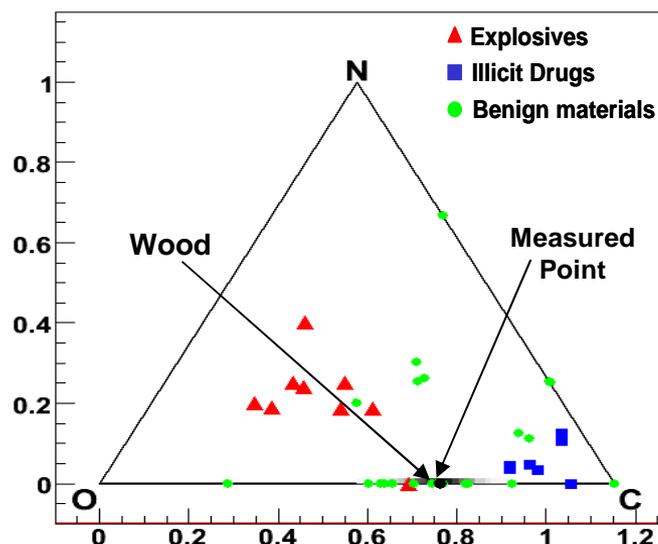


Figure III - 31. Triangle diagram of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the real wood position.

5.2.2 Paper target hidden in the iron matrix

Figure III - 32 represents the TOF and the energy spectra of the paper target (density 0.72 g.cm^{-3}) hidden in position #3 of the iron matrix. The measured O/C ratio is 0.70 ± 0.28 , which is consistent with the paper chemical ratio of 0.833. The unfolded percentage of nitrogen counts is not significant regarding statistical uncertainty but it shifts the measured point as shown in Figure III - 33.

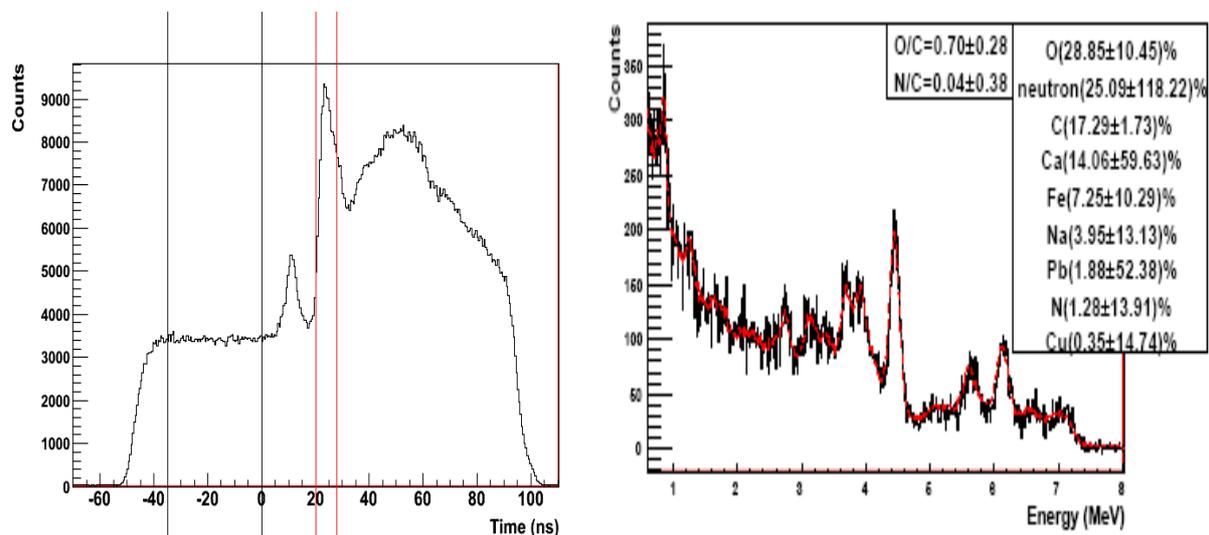


Figure III - 32. TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to paper target hidden in position #3 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

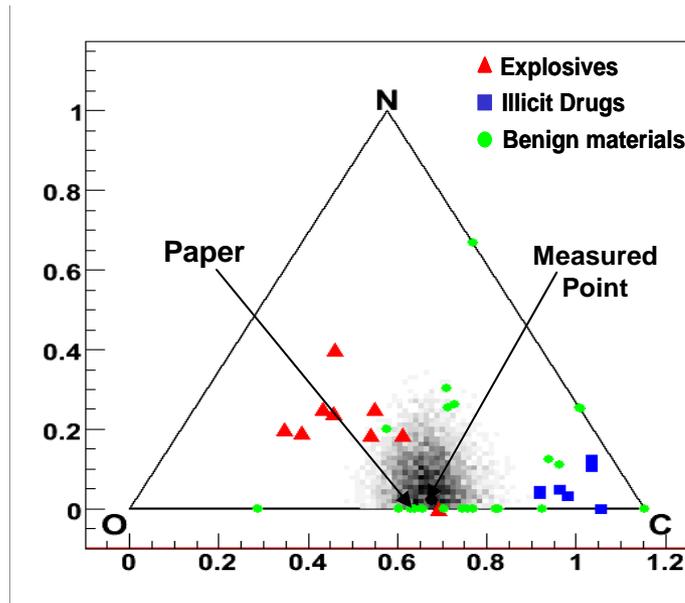


Figure III - 33. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the expected paper position.

When the paper target is hidden in position #1 of Figure III - 11, the measured O/C ratio is 0.69 ± 0.33 , see Figure III - 34. The uncertainty is larger than in position #1 due to a lower counting statistics and to a smaller percentage of C and O counts, a very large fraction of the spectrum counts stemming here from iron. Nevertheless, the measurement is consistent with paper taking into account the statistical and systematic uncertainties.

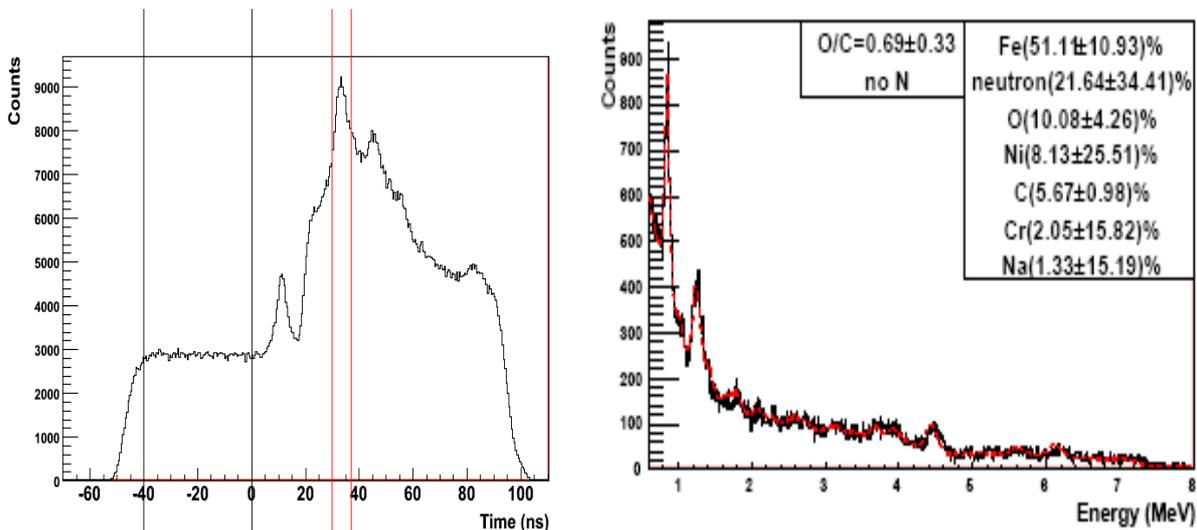


Figure III - 34. TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to paper target hidden in position #1 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

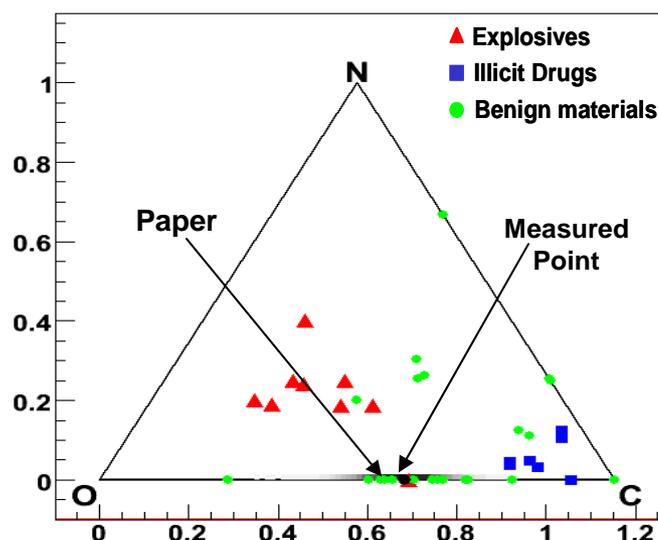


Figure III - 35. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the expected paper position.

5.2.3 Melamine target hidden in the iron matrix

The energy spectrum corresponding to the melamine target (density $0.95 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) hidden in position #3 of Figure III - 11 is shown in Figure III - 36. The measured N/C ratio is 1.51 ± 0.57 , which is still consistent with the real chemical ratio of 2 taking into account the statistical and systematic uncertainties. In the triangle plot, melamine is located in the uncertainty area associated to the measured point.

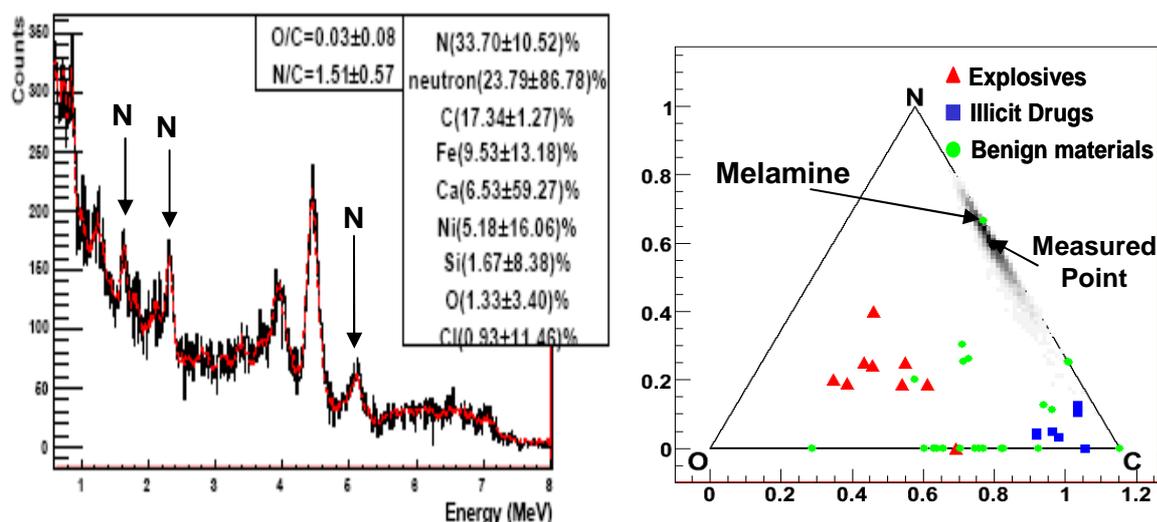


Figure III - 36. Energy spectra (left) of the melamine target hidden in position #3 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the expected melamine position.

When the melamine target is located in position #1 of Figure III - 11, the measured O/C ratio is 1.37 ± 1.34 , see Figure III - 37. This underestimation of the true chemical ratio is mainly

due to the large statistical uncertainty on the nitrogen unfolded count fraction. Indeed, the main peaks of nitrogen can barely be distinguished.

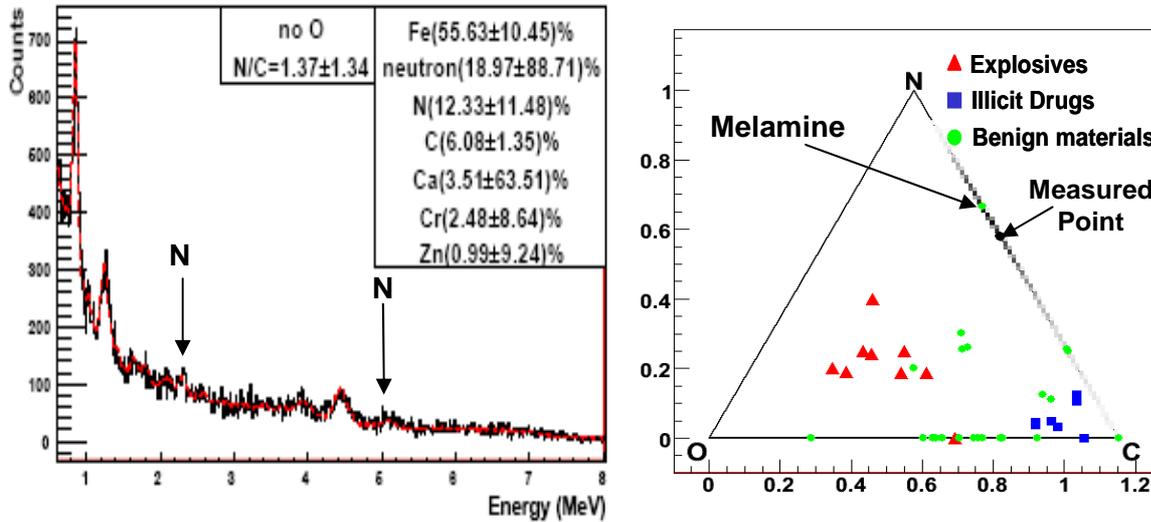


Figure III - 37. The energy spectra (right) of melamine target hidden in position #1 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the expected melamine position.

5.2.4 Ammonium acetate target hidden in the iron matrix

Figure III - 38 shows the energy spectrum corresponding to the ammonium acetate target (density $0.75 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$) hidden in position #3 of Figure III - 11. As previously with the bare ammonium acetate target, the measured O/C ratio of 0.56 ± 0.13 is significantly underestimated with respect to the true chemical ratio of 1, but the measured N/C ratio of 0.48 ± 0.38 is in good agreement with the chemical one of 0.5. In the triangle plot, ammonium acetate does not lie in the uncertainty area of the measured point.

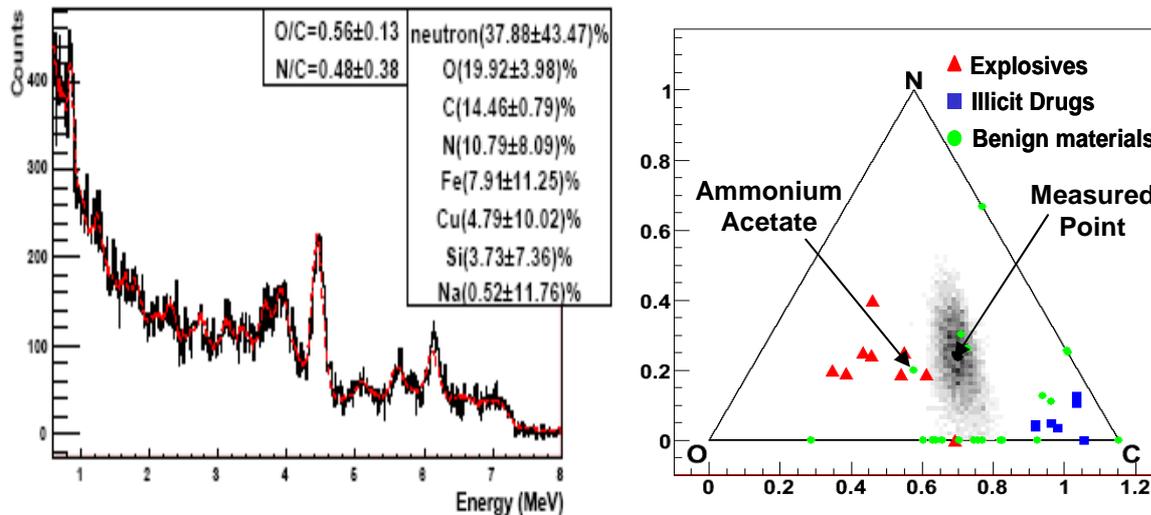


Figure III - 38. Energy spectra (left) of the ammonium acetate target hidden in position #1 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the ammonium acetate position.

When the target is hidden in position #1 of Figure III - 11, the measured O/C and N/C ratios shown in Figure III - 39 are 0.68 ± 0.19 and 0.44 ± 0.51 , respectively. Here, the largest uncertainties make an overlap with the expected ammonium acetate composition possible, but the bias in the O/C ratio is still obvious.

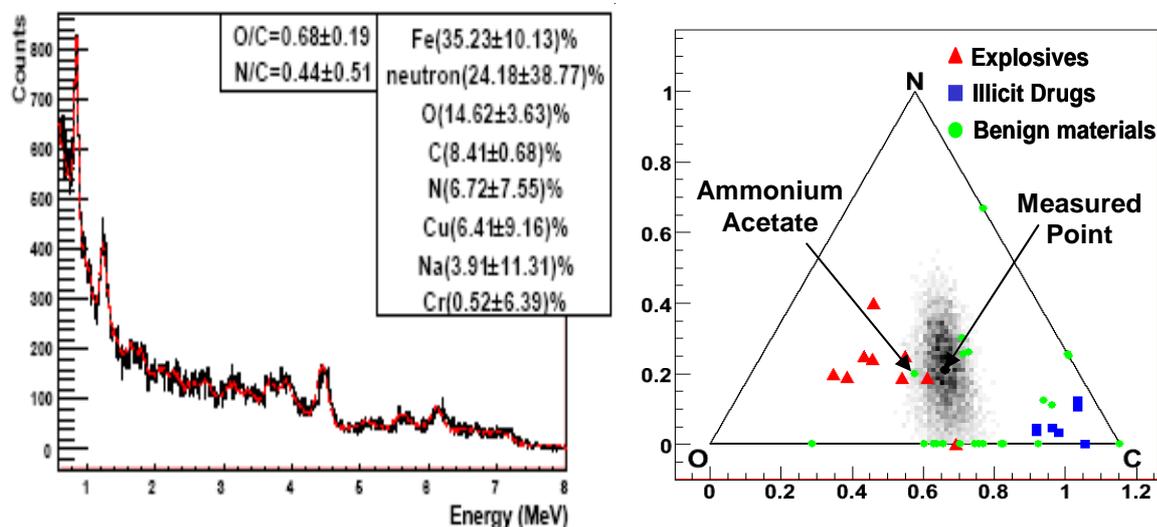


Figure III - 39. The energy spectra (right) of ammonium acetate target hidden in position #1 of Figure III - 11. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the ammonium acetate position.

These experiments performed with the targets in the iron matrix show that the measured O/C and N/C ratios obtained after unfolding into simple elements and applying the conversion factors appropriate to each position are almost not modified with respect to the measurements with the bare targets in air. This is due to a low neutron moderation in iron and to a limited gamma-ray attenuation in this 0.2 g.cm^{-3} matrix, at least for the $Z = 0$ cm height (positions #1 and #3). The effective iron matrix thickness crossed by the gamma rays toward the top detectors is about 80 cm in these experiments.

6 Simulation of realistic inspections

The purpose of the EURITRACK system is the detection of explosives and illicit drugs in cargo containers but trucks carrying such items are – by definition – very rare and cannot be used to validate the data processing tools. For this reason, simulated realistic inspections have been performed in order to validate the assessment of the C, N, and O proportions and the associated systematic and statistical uncertainties, these last corresponding to 10 minute acquisitions with a 10^7 n/s total neutron flux and with the large face of the 16 NaI(Tl) top detectors. It must be pointed out that the tagged neutron beam of the EURITRACK system, which creates the useful coincident signal, represents about 1% of the total emission.

In all these simulations, neither the count losses in the data acquisition by the electronics nor the filtering factor used to reject multiple alpha nor gamma events (see section 4.2 of chapter 2) have been taken into account. On the other hand, the random background due to accidental coincidences has been introduced in the simulations in order to obtain realistic counting fluctuations.

6.1 Examples

The first case corresponds to a TNT box hidden in position #3 (X= -100 cm and Z = 0 cm, cf. Figure III - 11) of a cargo container transporting SiO₂ based materials (like fiberglass wool, glass or ceramics) with a density of 0.2 g.cm⁻³. The red vertical lines of the TOF spectrum shown in Figure III - 40 correspond to the part of the container filled with silicon dioxide. The energy spectrum of the selected area shows the presence of silicon and oxygen peaks.

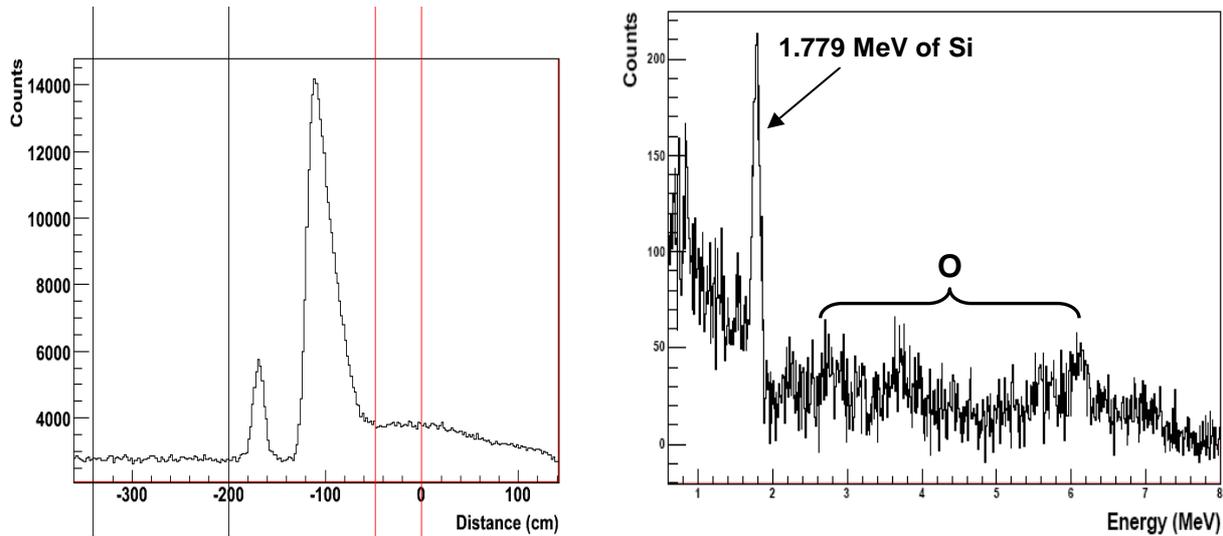


Figure III - 40. TOF spectrum (left) corresponding to a TNT block hidden in position #3 inside a cargo container (see Figure III - 11) filled with a SiO₂ matrix, and energy spectra (right) corresponding to the SiO₂ matrix.

The unfolding of the energy spectrum associated to the peak at -100 cm in the TOF spectrum shown in Figure III - 41 indicates the unexpected presence of carbon and nitrogen in addition to oxygen, while silicon is no more detected. Furthermore, the O/C and N/C ratios obtained with the appropriate neutron moderation and gamma attenuation conversion factors (in terms of position) are 0.80 ± 0.12 and 0.29 ± 0.10 respectively, which is compatible with TNT as can be seen in Figure III - 42. The $\pm 20\%$ and $\pm 35\%$ symmetric error ranges, assessed in section 4.2 for SiO₂ and iron matrixes, have been used for the O/C and N/C conversion factors, respectively.

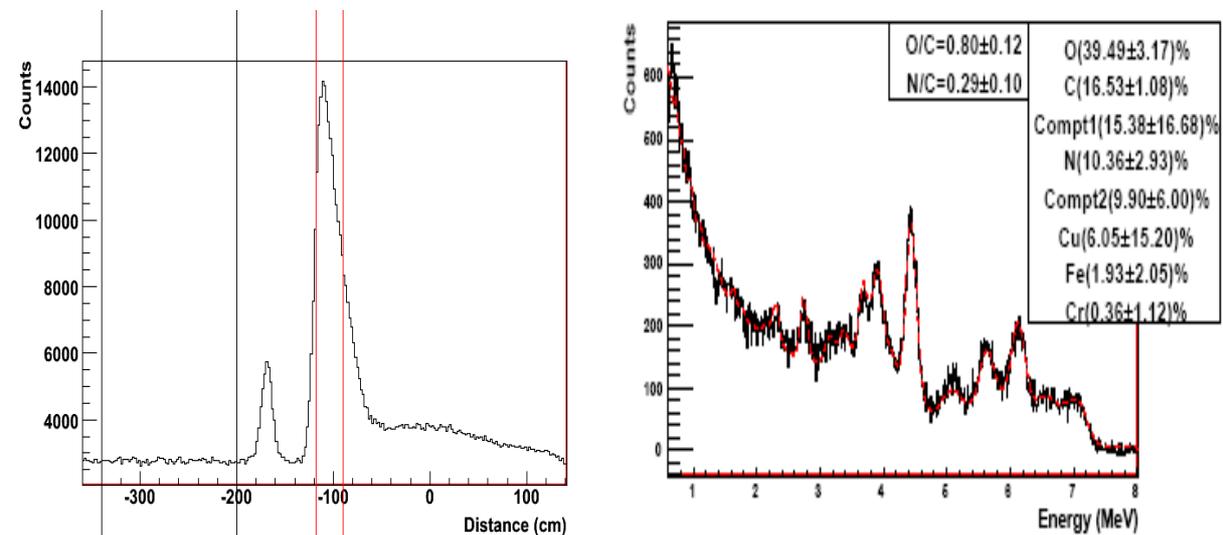


Figure III - 41. TOF (left) and the energy (right) spectra corresponding to the TNT box in the position #3 of Figure III - 11, inside the cargo container filled with the SiO₂ matrix. The dashed red line corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

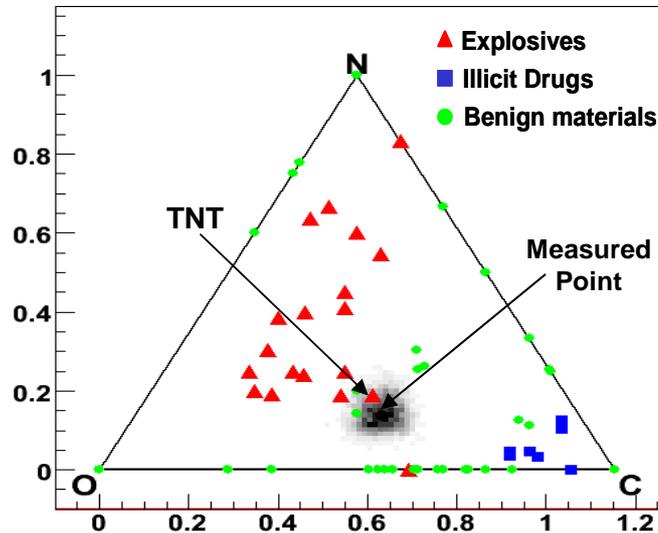


Figure III - 42. Barycentric diagram of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the TNT spectrum shown in Figure III - 41. The grey uncertainty area around the dot has been obtained with a Monte Carlo approach including systematic and statistical uncertainties.

The second case presented corresponds to a cocaine (C₁₇O₄NH₂₂Cl) target with a density of 0.8 g.cm⁻³ hidden in position #5 ((X= -60 cm and Z = 100 cm cf. Figure III - 11) of an iron matrix of density 0.2 g.cm⁻³. The TOF and energy spectra of the target, shown in Figure III - 43, evidence the presence of carbon, oxygen and nitrogen in the iron matrix. The O/C and N/C ratios are in good agreement with the cocaine chemical ratios with only a little discrepancy on O/C ratio. Figure III - 44 shows that, despite this little discrepancy, the measured point is located in the illicit drugs area. The same ±20% and ±35% symmetric error ranges have been used for the O/C and N/C conversion factors, respectively.

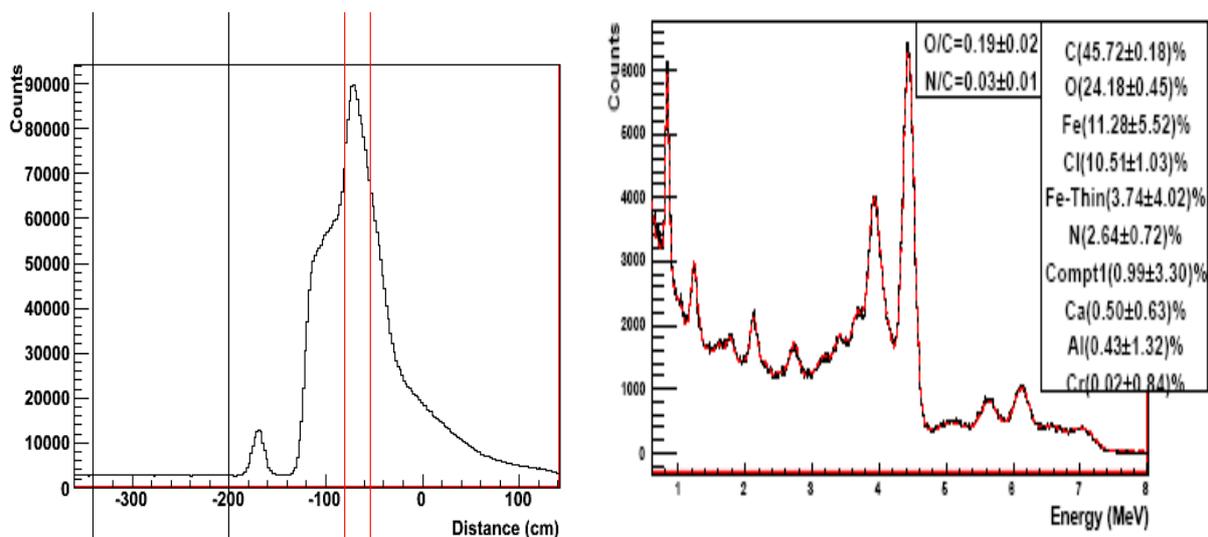


Figure III - 43. TOF (left) and energy (right) spectra corresponding to the cocaine box in position #5 of Figure III - 11, inside the cargo container filled with the 0.2 g.cm^{-3} iron matrix. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

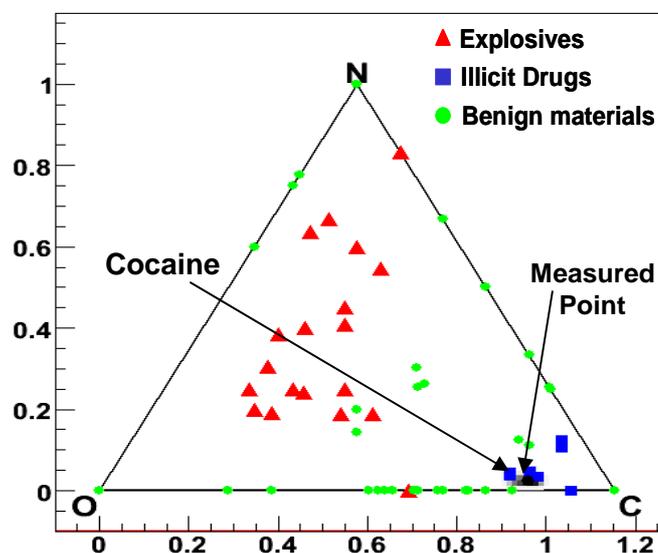


Figure III - 44. Barycentric diagram of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the cocaine spectrum shown in Figure III - 43.

Contrariwise, one of the most penalizing case with a large error range in Table 2 corresponds to position #8 of Figure III - 11 ($X = -60 \text{ cm}$; $Z = -100 \text{ cm}$), and particularly for a container transporting a wood matrix with a density of 0.4 g.cm^{-3} due to its high hydrogen concentration limiting neutron penetration. In Figure III - 45, though the presence of the TNT block is still visible around -70 cm in the TOF spectrum (signal increase due to its high density), the unfolding of the corresponding energy spectrum does not allow nitrogen to be evidenced, mainly due to insufficient counting statistics. The measured O/C ratio is 0.71 ± 0.40 , taking into account the correction factor for this position obtained by numerical simulation, which is consistent with the true TNT chemical ratio of 0.86. Due to the non detection of nitrogen, however, the triangle plot of the carbon, nitrogen, and oxygen relative amounts does not show a measured point in the explosives area (see Figure III - 46). According to section 4.2, $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$ symmetric error ranges have been considered here for the uncertainties on the O/C and N/C conversion factors respectively.

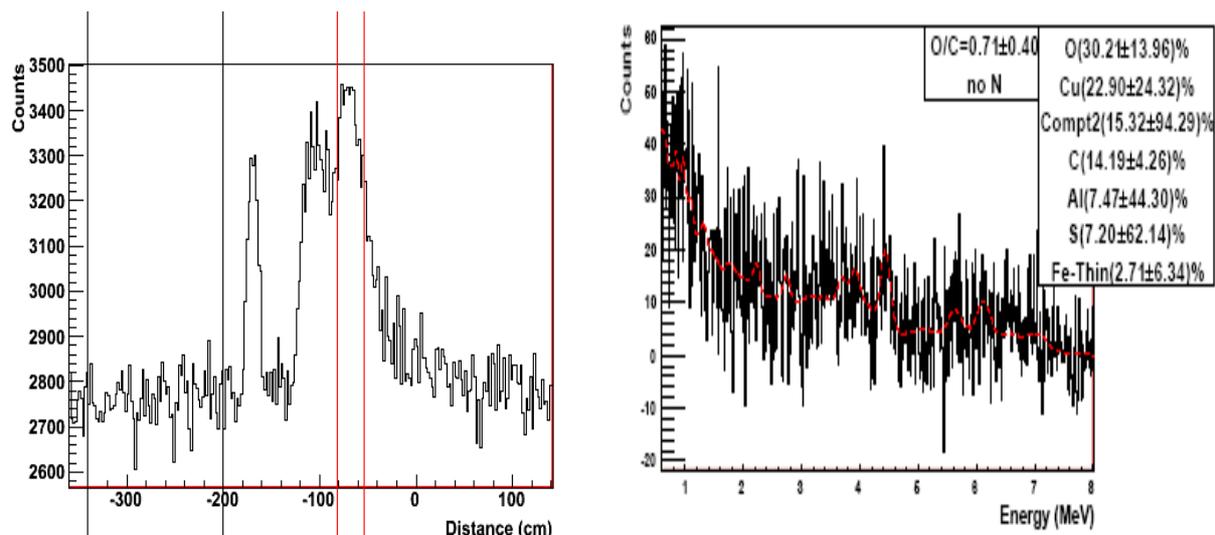


Figure III - 45. TOF (left) and energy (right) spectra corresponding to a TNT block hidden in position #8 of Figure III - 11 inside a $0.4 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ wood matrix. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

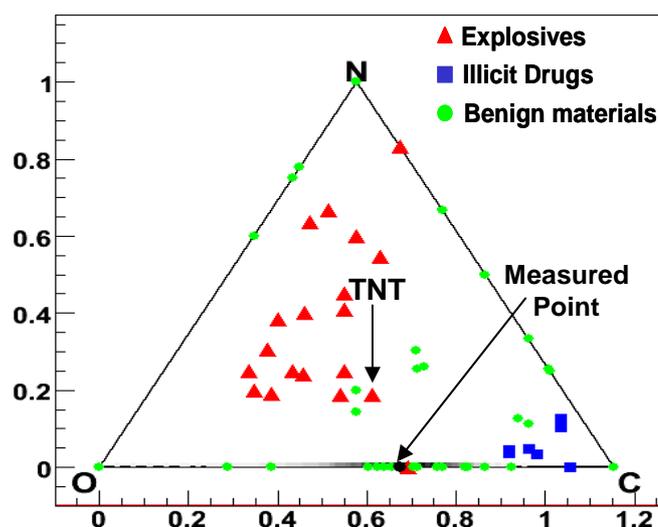


Figure III - 46. Barycentric diagram of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the TNT spectrum shown in Figure III - 45.

However, counting statistics could be improved in a future industrial system. The current simulations include the sixteen top gamma-ray detectors of the EURITRACK system. Existing comparable systems [111] include about 10 times more detectors. Therefore, we have performed another calculation for the same TNT position in the wood matrix but with 32 NaI(Tl) detectors in the top position, which is a maximum in practice due to the large size of these detectors. Figure III - 47 shows that the detection of nitrogen is now possible thanks to the improved counting statistics but the detected quantity is still not statistically significant. Such a penalizing case could be largely improved also by implementing more NaI(Tl) detectors below the cargo container as suggested in section 8.

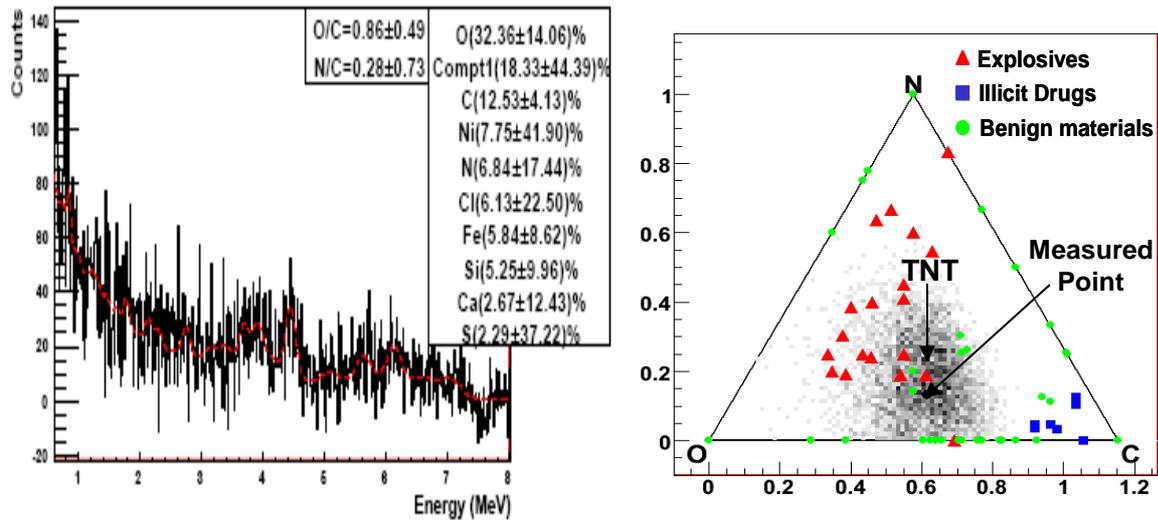


Figure III - 47. Energy spectrum (left) and corresponding triangle plot (right) for the TNT box in position #8 of Figure III - 11, inside the cargo container filled with the wood matrix measured with 32 NaI(Tl) top detectors. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

6.2 Synthetic spectra

In order to reduce the statistical uncertainties on element detection (especially nitrogen) by the unfolding algorithm, a new module has been developed in MODAR using the generation of synthetic spectra with a Monte Carlo approach, see Annex MODAR. A synthetic spectrum is generated from the measured energy spectrum of the truck inspection by modifying all bin contents according to a Gaussian law. For each measured energy spectrum, 300 synthetic spectra have been generated. Each of these synthetic spectra is then unfolded to provide 300 count proportions and thus, for each element, a count fraction distribution, see Figure III - 48. This distribution is fitted with a Gaussian function, the mean of which μ_i is used as the most probable count fraction with a standard deviation σ_i . If the distribution is too broad, the element is considered as absent from the gamma-ray spectrum of the inspected truck.

By applying this method to the gamma-ray spectrum of Figure III - 47 (TNT target hidden in position # 8 of the wood matrix, 32 NaI(Tl) detectors), a nitrogen count fraction of 6.78% has been detected in average, and in 20 % of the synthetic spectra no nitrogen was found by the unfolding algorithm, see Figure III - 48. These “no detection” occurrences are used in the calculation of the global uncertainty area in the Dalitz representation, see Figure III - 49.

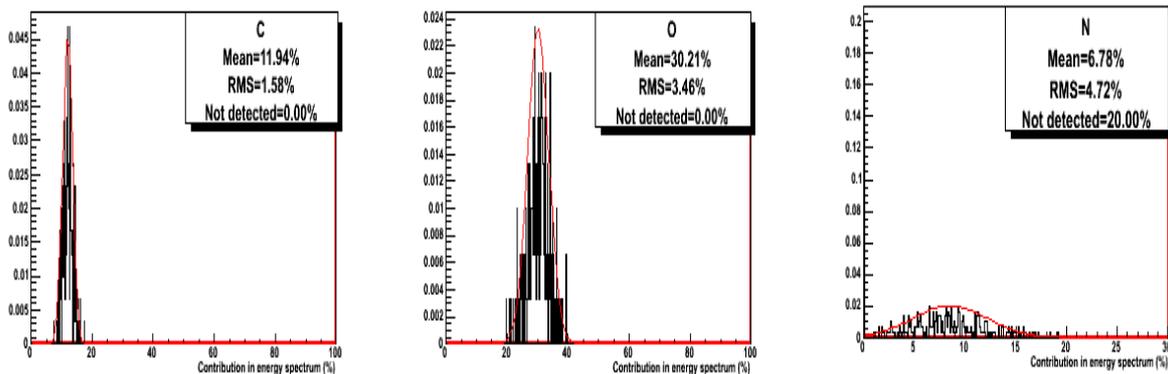


Figure III - 48. Distribution of carbon, oxygen and nitrogen elements presented in the TNT target hidden in position #7 of the wood matrix.

The O/C and N/C chemical ratios deduced from the above count proportions and from the corrections factors are 0.88 ± 0.21 and 0.32 ± 0.24 , respectively, with a 20% probability of no nitrogen detection. These ratios are consistent with the TNT ones. Figure III - 49 also reports the heights (in decreasing order) of explosives, narcotics and other benign materials on the 3D uncertainty area. All heights have been normalized to the maximal height of the probability distribution. TNT is found with a 32.4% relative height obtained by Monte Carlo sampling. The so called “measured point” corresponds to the barycenter of the probability distribution.

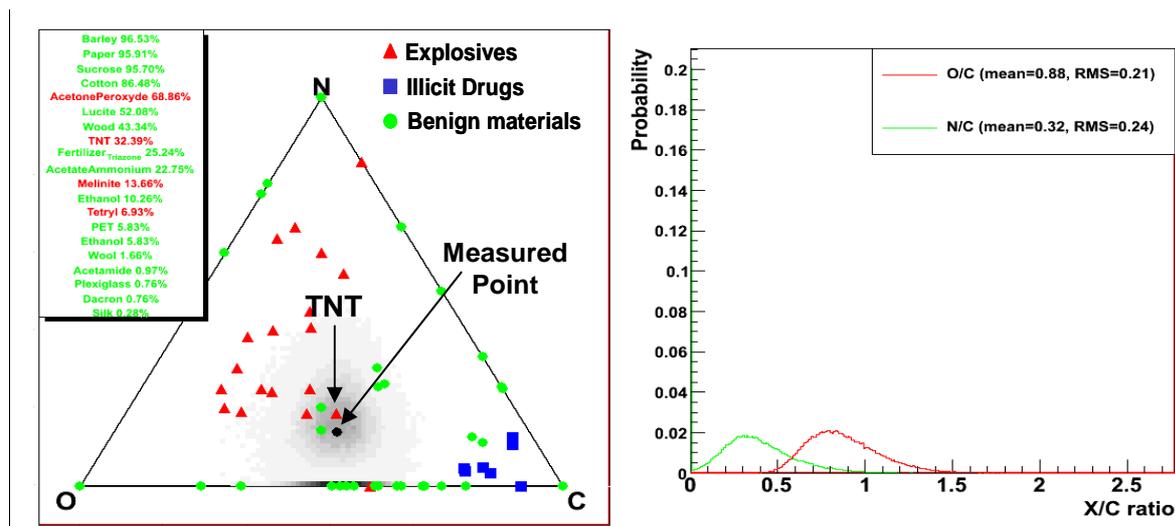


Figure III - 49. Barycentric diagram (left) of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials, with an indication of the most probable materials and associated likelihood. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the TNT elemental distribution shown in Figure III - 48. The distributions of the obtained O/C and N/C ratios are shown on the right.

7 Real trucks inspections

Real truck inspection data acquired during the EURITRACK and Eritr@C projects have been analysed to test the calculated conversion factors. For this purpose, trucks transporting organic materials have been selected based on their transported goods declaration (wood, nylon and paper) and their gamma-ray spectra have been analysed using the correction factor established for the appropriate X and Z positions (taken from Figure III - 2 and Figure III - 3) of the interrogated region inside the container.

7.1.1 Truck transporting wood materials

The TOF and energy spectra of a truck transporting wood materials (“bamboo poles”, Eritr@C truck #100) inspected in its middle height are presented in Figure III - 50. By using the unfolding algorithm directly on the energy spectrum, no nitrogen was detected and the measured O/C ratio (0.59 ± 0.20) is in good agreement with the wood chemical ratio. Figure III - 51 shows, that by applying the synthetic spectra method, the uncertainties would be largely improved. The O/C and N/C measured ratios are 0.56 ± 0.09 and 0.04 ± 0.09 respectively. And in 82% of the synthetic spectra, no nitrogen was found. Consequently, the measured point is

located very close to wood in the triangle diagram. The O/C and N/C systematic uncertainties are $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$, respectively.

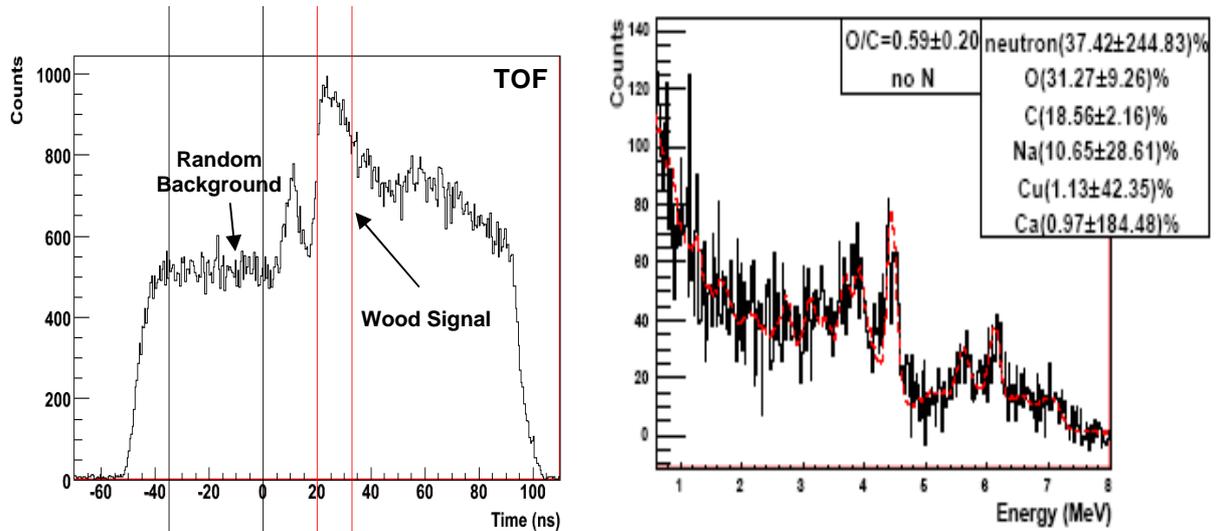


Figure III - 50. TOF (left) and energy spectra (right) of a truck transporting wood. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

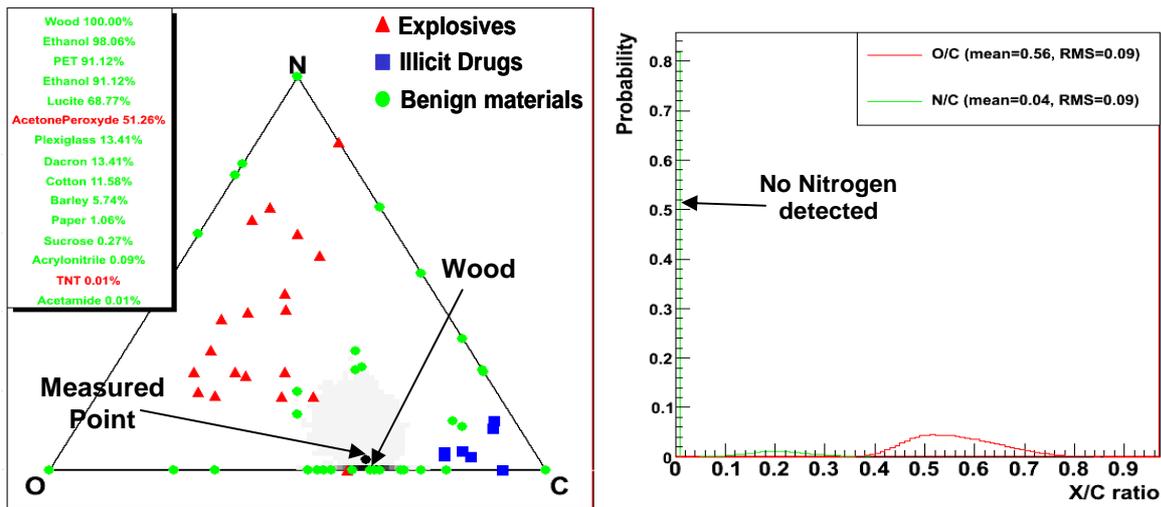


Figure III - 51. Barycentric diagram (left) of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials, with an indication of the most probable materials and associated likelihood. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The distributions of the O/C and N/C obtained ratios are shown on the right.

7.1.2 Truck transporting clothes

Figure III - 52 shows the TOF and the energy spectra associated to a truck transporting clothes (Eitr@C truck #71), where significant contributions of carbon, oxygen and nitrogen can be noted. Nitrogen is probably present in synthetic fibers like nylon, for which $O/C = N/C = 0.166$. By using the synthetic spectra method, the uncertainties are largely reduced, see Figure III - 53. The barycentric diagram shows that the nylon is the second probable detected material with a height of 19.64% on the 3D uncertainties area. The O/C and N/C systematic uncertainties are $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$, respectively.

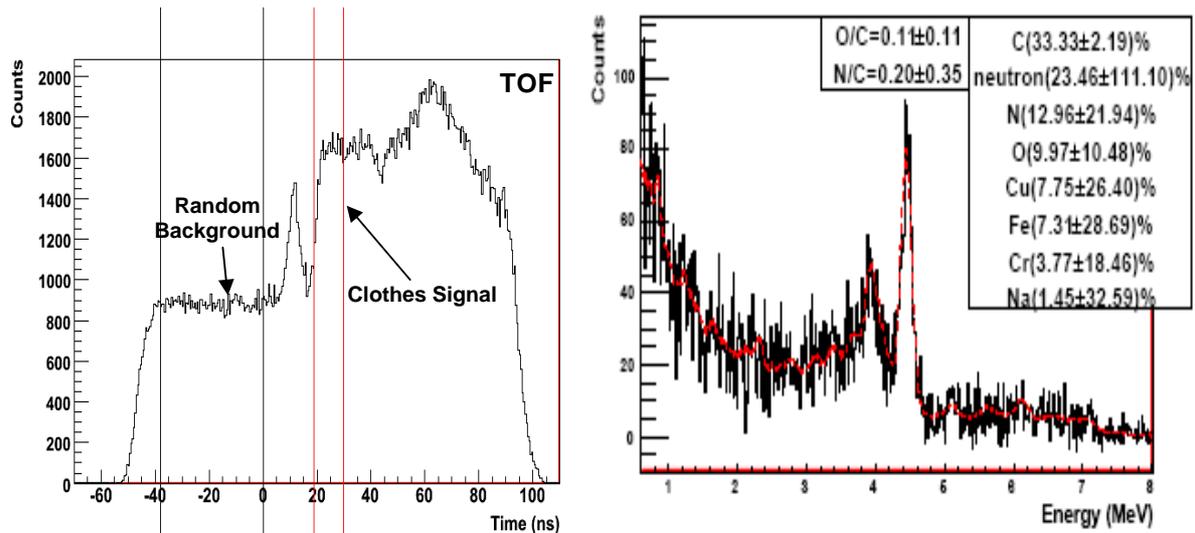


Figure III - 52. TOF (left) and energy spectra (right) of a truck transporting clothes. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

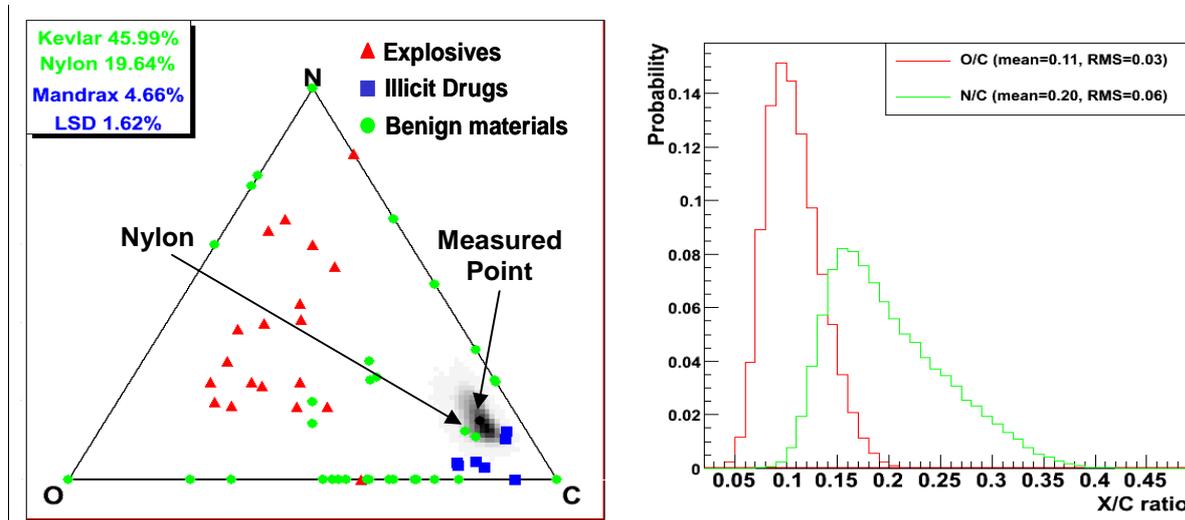


Figure III - 53. Barycentric diagram (left) of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials, with an indication of the most probable materials and associated likelihood. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The distributions of the O/C and N/C obtained ratios are shown on the right.

7.1.3 Truck transporting paper

The TOF and energy spectra of a truck transporting paper inspected during the EURITRACK project with the 1.35 MeV threshold (EURITRACK truck #51) in its middle height are presented in Figure III - 54. The measured O/C ratio 0.86 ± 0.27 is in good agreement with the true chemical ratio of paper (0.833). To reduce the uncertainty of the O/C ratio, the synthetic spectra method has been applied, see Figure III - 55. On the other hand, the percentage of nitrogen found by the unfolding algorithm is not statistically significant, which is consistent with the absence of nitrogen in paper. Therefore, the position of the measured point on the triangle plot is only meaningful regarding the O/C ratio, i.e. its projection on the O-C axis. The Dalitz plot shows also that paper is the third probable detected material with a

height of 92.33% on the 3D uncertainties area. The O/C and N/C systematic uncertainties are $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$, respectively.

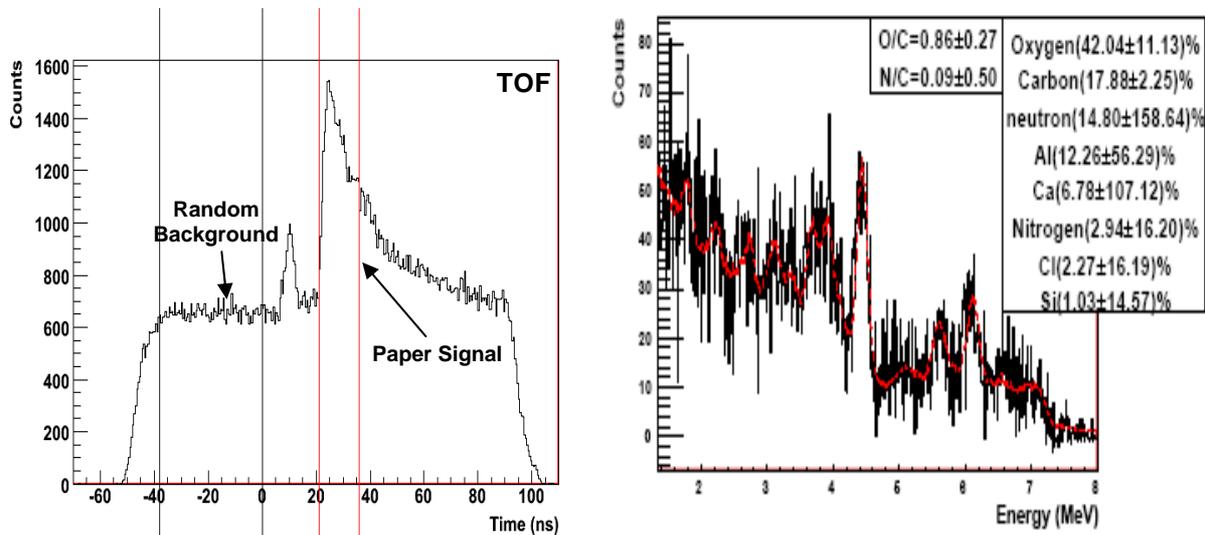


Figure III - 54. TOF (left) and energy spectra (right) of a truck transporting paper. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

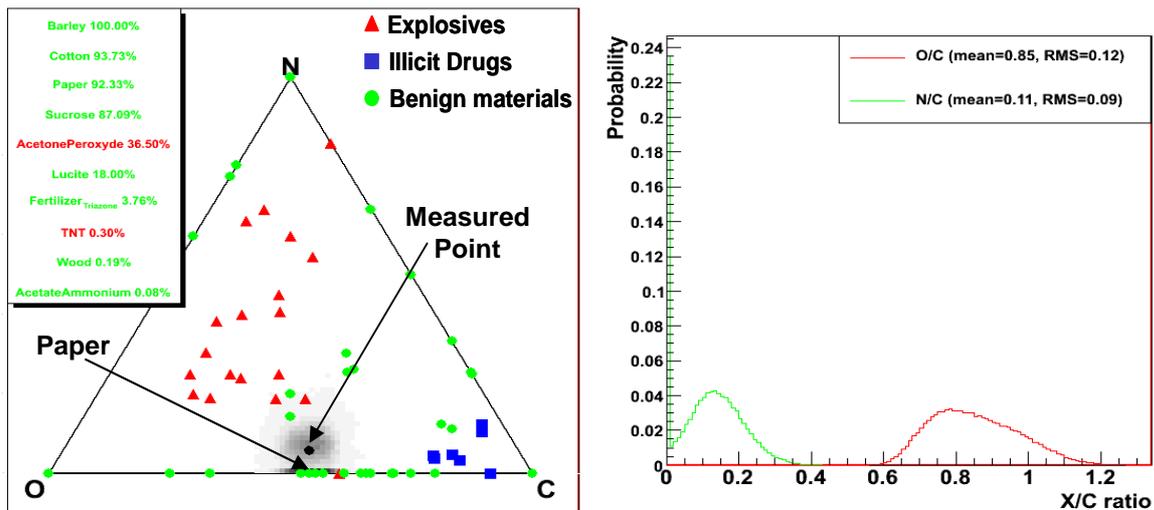


Figure III - 55. Barycentric diagram (left) of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The distributions of the O/C and N/C obtained ratios are shown on the right.

8 Recommendations for an industrial system

Counting statistics for truck inspections with the 16 top NaI(Tl) detectors of the EURITRACK demonstrator being often not sufficient, as shown in section 7, the current system must be improved. In view of an industrial system, a second neutron generator should be implemented in order to inspect the “second half” of the container with respect to the neutron source, due to the strong neutron attenuation in dense, organic cargos (such as wood). The NaI(Tl) detectors should be distributed around of the container in the top position (typically 32 detectors), in reflection (~10 detectors on each side), and under the container(~32 detectors also). The truck could pass on rails below which the bottom NaI(Tl)

detectors could be placed. These rails should be made of iron material due to the low neutron moderation in iron. The reflection set would largely improve the detection of targets hidden in low Z positions if bottom detectors cannot be implemented below the truck or in case they would be blinded by its lower parts (fuel tanks, wheels, metallic axels...). Existing comparable industrial systems based on neutron interrogation [111] include more than 100 detectors. A possible design for such an industrial system is shown in Figure III - 56. This artist view just shows the principle of the neutron generators and detectors positioning, but not the real number and setup of detectors.

Also in a future industrial system the existing lead shielding would be removed and the gamma rays emitted would be detected by the large face of the NaI(Tl) detectors to improve counting statistics.

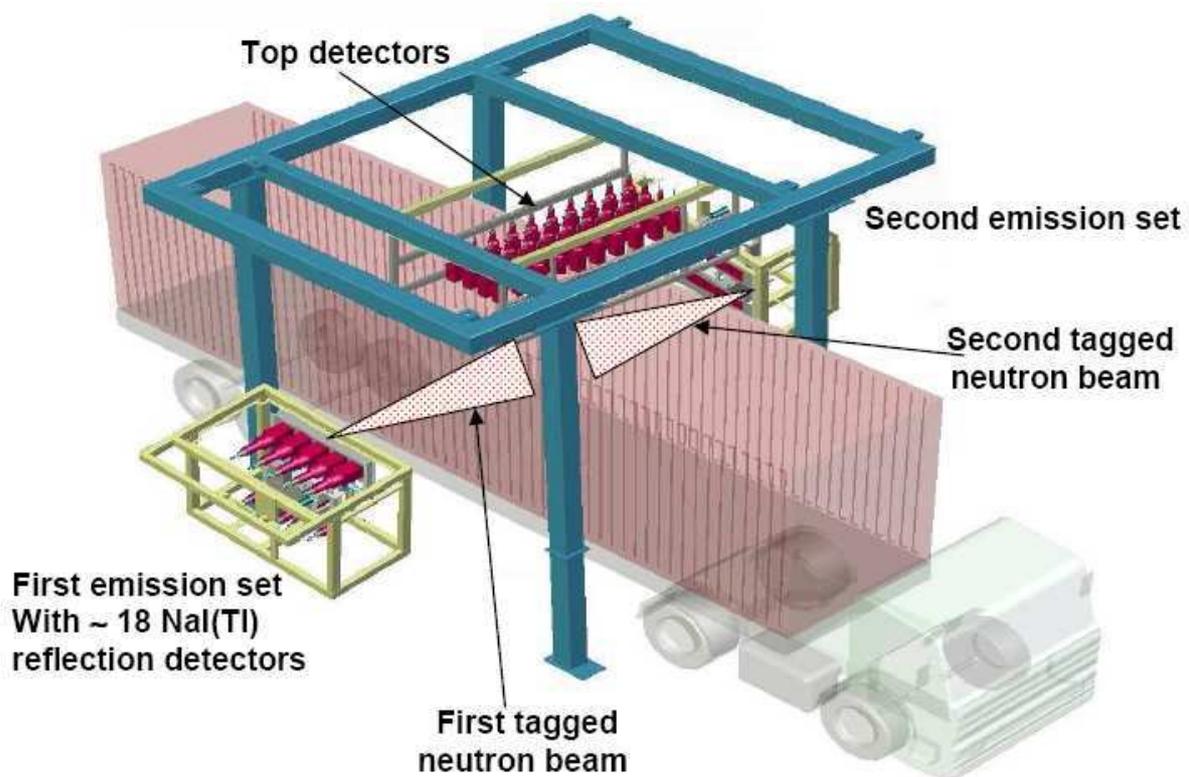


Figure III - 56. Artist view of the future industrial system including much more detectors than the current demonstrator and two neutron generators to symmetrically inspect the cargo container.

8.1 Analysis of all the simulated inspections acquired with 32 top detectors

The simulations of TNT and cocaine boxes hidden in different positions inside iron, ceramic and wood matrixes have been performed with 32 NaI(Tl) top detectors. Counting statistics fluctuations corresponding to 10 minute acquisitions have been injected and the synthetic spectra method has been applied to all the cases presented in Table 1. The error ranges of the O/C and N/C conversion factors for iron and silicon dioxide matrixes were considered to be $\pm 20\%$ and $\pm 35\%$, respectively. For organic matrix (wood), these ranges were considered to be a little larger $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$ respectively (see section 4.2).

The results of data processing of all the simulated inspections are presented in

Table 5. The label “OK” means that explosive or illicit drugs can be suspected from the measured data from the observations of the TOF, energy and Dalitz spectra. In the present situation, this is an expert assessment, but automated decision making using also the X-ray scanner and cargo manifest declaration can be envisaged for the industrial system [112]. The label “Not OK” means that the system failed in finding these illicit items, mainly due to matrix effects. The label “~ OK” means that the measured point is not very close to TNT or cocaine, but the uncertainty area encompasses these items.

Table 5. O/C and N/C obtained ratios by the synthetic spectra method with $\pm 20\%$ (O/C ratio) and $\pm 35\%$ (N/C ratio) systematic uncertainties confidence intervals for the iron and S_iO_2 matrixes, and $\pm 25\%$ (O/C) and $\pm 40\%$ (N/C) in the wood matrix.

Matrix	Block	Position	Measured ratio		OK / NOT OK
			O/C	N/C	
Iron	TNT O/C=0.86 N/C=0.429	1	0.71±0.08	0.36±0.08	OK
		2	0.75±0.09	0.32±0.07	OK
		3	0.73±0.09	0.35±0.08	OK
		4	0.73±0.09	0.30±0.06	OK
		5	0.75±0.09	0.31±0.07	OK
		6	0.76±0.09	0.32±0.07	OK
		7	0.73±0.10	0.40±0.09	OK
		8	0.87±0.16	0.25±0.18	~ OK
		9	0.77±0.09	0.27±0.07	OK
	Cocaine O/C=0.235 N/C=0.059	1	0.19±0.02	0.01±0.02	~ OK
		2	0.20±0.02	0.06±0.02	OK
		3	0.19±0.02	0.05±0.01	OK
		4	0.19±0.02	0.03±0.01	OK
		5	0.19±0.02	0.04±0.01	OK
		6	0.19±0.02	0.04±0.01	OK
		7	0.23±0.04	0.08±0.06	OK
		8	0.19±0.03	0.07±0.04	OK
		9	0.18±0.03	0.06±0.04	OK
Ceramic	TNT O/C=0.86 N/C=0.429	1	1.08±0.13	0.44±0.10	OK
		2	0.90±0.11	0.41±0.09	OK
		3	0.79±0.09	0.30±0.06	OK
		4	0.83±0.10	0.29±0.06	OK
		5	0.81±0.10	0.31±0.07	OK
		6	0.79±0.09	0.31±0.07	OK
		7	1.09±0.14	0.35±0.09	~ OK
		8	0.91±0.12	0.38±0.09	OK
		9	0.81±0.10	0.30±0.12	OK
	Cocaine O/C=0.235 N/C=0.059	1	0.39±0.05	0.08±0.02	NOT OK
		2	0.29±0.03	0.05±0.01	OK
		3	0.20±0.02	0.06±0.01	OK
		4	0.27±0.03	0.03±0.01	~ OK
		5	0.20±0.02	0.03±0.01	OK
		6	0.20±0.02	0.04±0.01	OK
		7	0.43±0.06	0.01±0.01	NOT OK
		8	0.30±0.04	0.07±0.03	~ OK
		9	0.23±0.03	0.01±0.03	~ OK
Wood	TNT O/C=0.86 N/C=0.429T	1	0.68±0.10	0.15±0.05	NOT OK
		2	0.76±0.12	0.25±0.07	OK
		3	0.92±0.14	0.34±0.09	OK

		4	0.68±0.10	0.15±0.10	NOT OK	
		5	0.71±0.10	0.24±0.06	~ OK	
		6	0.83±0.12	0.34±0.08	OK	
		7	0.71±0.21	0.13±0.23	NOT OK	
		8	0.88±0.21	0.32±0.24	OK	
		9	1.03±0.20	0.41±0.16	~ OK	
		Cocaine O/C=0.235 N/C=0.059	1	0.46±0.07	0.06±0.04	NOT OK
			2	0.32±0.05	0.04±0.03	~ OK
			3	0.22±0.03	0.06±0.02	OK
	4		0.31±0.05	0.01±0.003	NOT OK	
	5		0.27±0.04	0.03±0.01	OK	
	6		0.21±0.03	0.05±0.01	OK	
	7		0.43±0.17	0.05±0.15	NOT OK	
	8		0.36±0.09	0.10±0.12	~ OK	
	9		0.17±0.04	0.05±0.06	OK	

It is important to underline that both TNT and cocaine are penalizing explosive and illicit drug, respectively, in terms of C, N, and O proportions because they are very close to benign materials, see the Dalitz representation of Figure III - 42 and Figure III - 44 for instance. With other explosives and narcotics, the detection would be much easier.

The positions corresponding to the bottom of the container (#7, and #8 of -) would be largely improved by using the 32 NaI(Tl) detectors under the container, which would provide similar results as for the top positions (#4 and #5). And the reflection detectors would improve counting statistics and thus the detection of these boxes also in position (#8 and #9).

8.2 Analysis of simulated inspections acquired with reflection detectors

The energy spectra of a TNT target hidden in position #9 (see Figure III - 11: bottom, near the neutron source) in a container filled with water (for instance container carrying water bottles or fruit juice), acquired with the 32 top detectors, and with the 10 NaI(Tl) detectors of the reflection set, respectively, are presented in Figure III - 57. The random background due to accidental coincidences has also been introduced in the simulations in order to obtain realistic counting fluctuations.

The water matrix is clearly the most penalizing organic matrix due to its very high hydrogen concentration limiting neutron penetration. Gamma rays are also largely attenuated in such a dense matrix. For these reasons the energy spectrum acquired by the top detectors is very poor in counting statistics and the detection of TNT is impossible. On the other side, the signal is largely improved using the set of reflection detectors. By unfolding this spectrum and by applying the conversion factors calculated specifically for this case, the O/C and N/C measured chemical ratios (O/C = 0.82±0.12 and N/C = 0.26±0.07) are in good agreement with the TNT chemical ratios (0.86 and 0.429 respectively), and the TNT could be detected with a relative height of 18.19% as shown in Figure III - 58. The O/C and N/C systematic uncertainties considered for this water cargo are ±30% and ±45%, respectively.

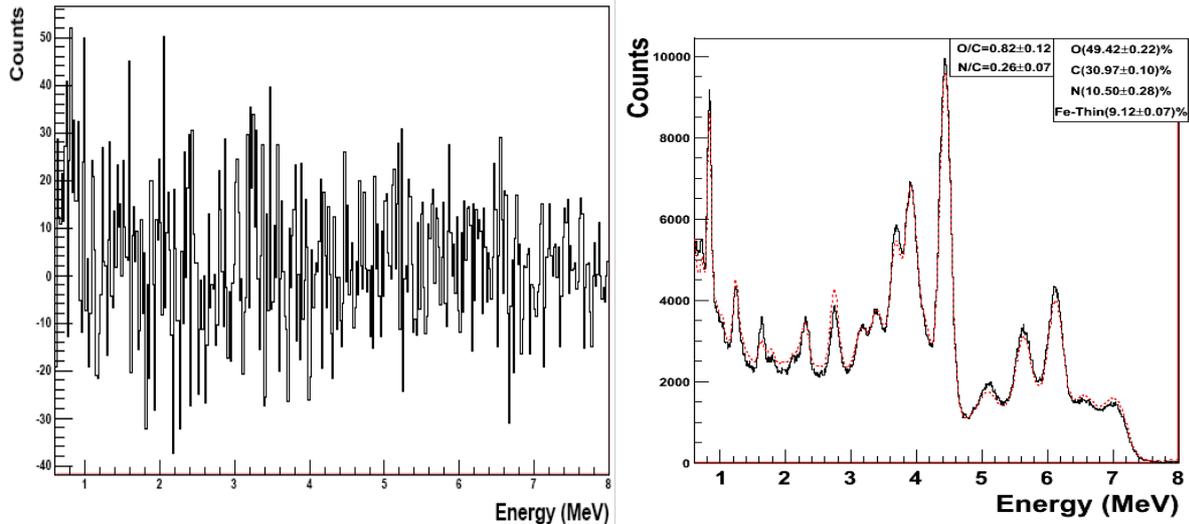


Figure III - 57. Energy spectra of a TNT target hidden in position #9 of a water matrix acquired with the 32 top detectors (left) and with the 10 reflection detectors of a future industrial system (right). The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra.

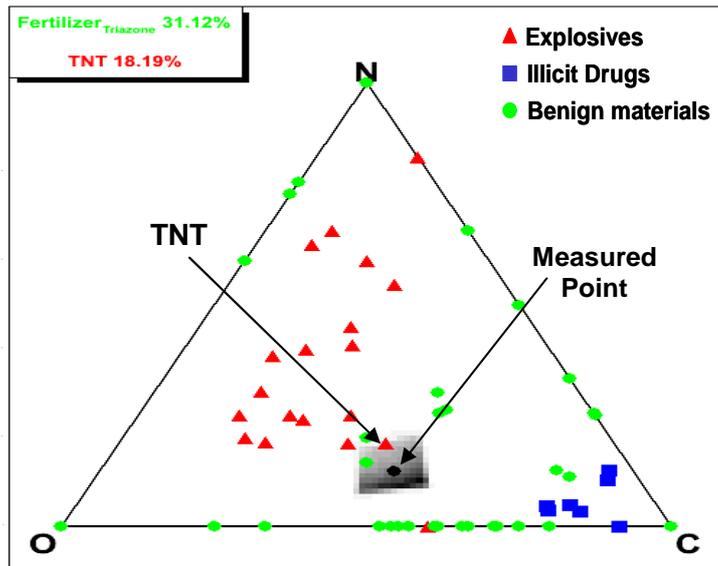


Figure III - 58. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point and the TNT position.

However, even the reflection set is not able to detect a TNT target hidden in position #8 (see Figure III - 11: bottom, 40cm deep inside the water matrix) due to the very high neutron moderation in the 40 cm thick water shield. The energy spectrum of Figure III - 59 shows that, even by applying the conversion factors calculated for this case, the O/C and N/C ratios are very far from the TNT chemical ones, the measured point overlapping with the water point located at the corner O of the Dalitz plot.

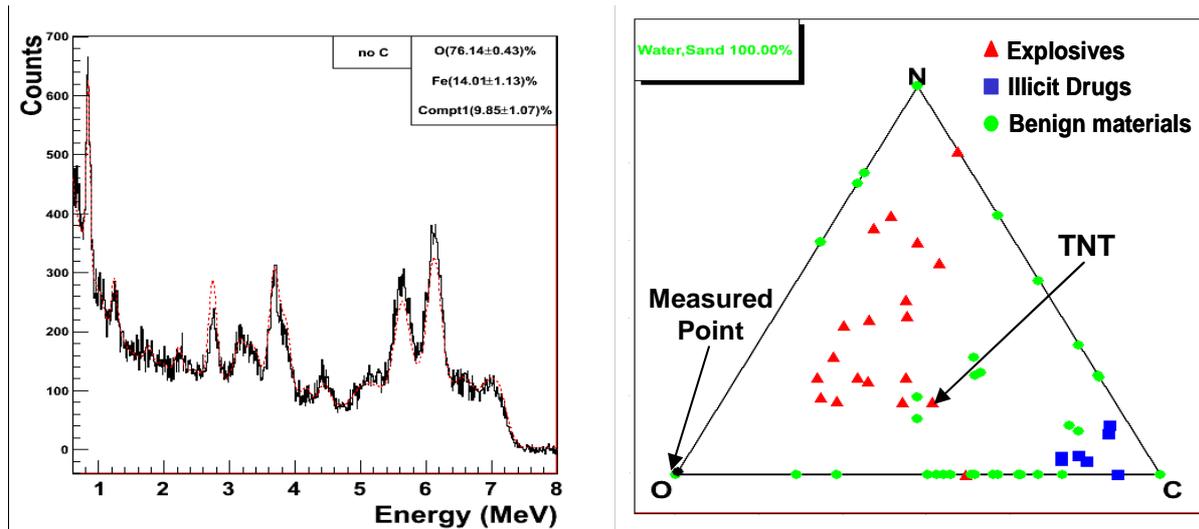


Figure III - 59. Energy spectra (left) corresponding to the TNT target hidden in position #8 of a water matrix acquired with the reflection detectors. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. Triangle diagram (right) of the carbon, nitrogen, and oxygen amounts relative to illicit and benign materials, showing the measured point.

Figure III - 60 shows the interaction of the tagged neutron beam inside the water matrix. Only a little proportion of the 14MeV neutrons reaches the TNT block, and a majority of tagged neutrons are scattered in water, producing oxygen gamma rays with a TOF included in the time window expected for the TNT gamma rays. So the spatial selectivity of the method is much reduced, which explains the error on the measured ratios.

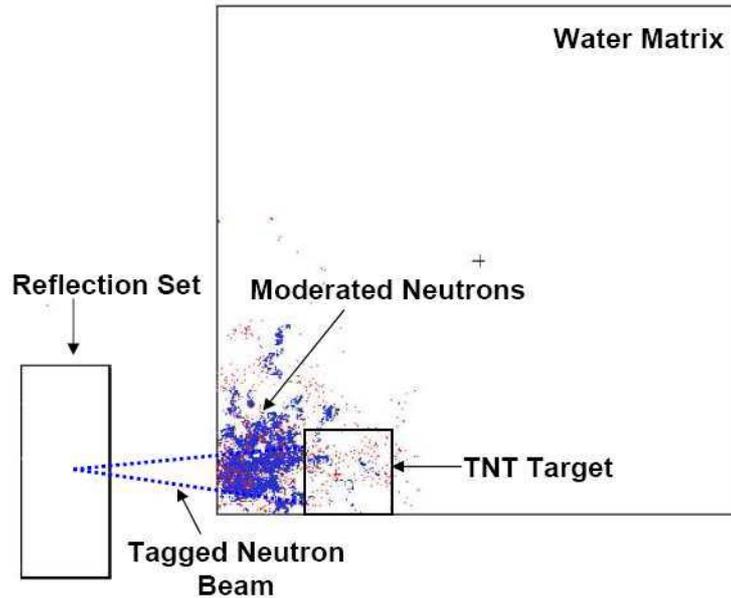


Figure III - 60. Position of neutrons interactions obtained by VISED (Visual Editor of MCNP) inside a container filled with a water matrix and containing a TNT block hidden in position #8.

However a container entirely filled with $1\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ water cargo is not common; it was not observed among the 160 trucks inspected within the EURITRACK and Eritr@c projects. For a truck carrying a $0.4\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ wood matrix, which is a more realistic case, a TNT target hidden in position #8 can still be detected by the reflection set. The energy spectra of the TNT target, acquired by the 32 NaI(Tl) top detectors and by the reflection set, see Figure III - 47 and

Figure III - 61, respectively, show that counting statistics is much larger with the reflection detectors.

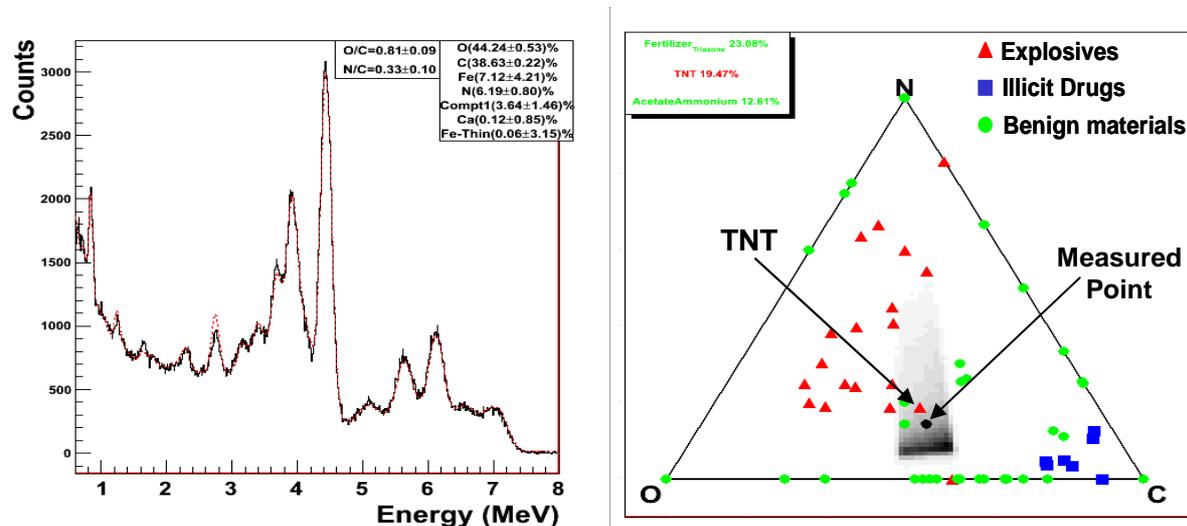


Figure III - 61. Energy spectrum (left) and corresponding triangle plot (right) of a TNT target hidden in position #8 of a wood matrix acquired with the 10 reflection detectors of a future industrial system.

Using the conversion factors calculated specifically for this case in the reflection position, the O/C and N/C obtained ratios are 0.81 ± 0.09 and 0.33 ± 0.10 , respectively, taking into account $\pm 25\%$ and $\pm 40\%$ systematic error ranges on the O/C and N/C conversion factors, respectively. They are in good agreement with the TNT chemical ones as shown in Figure III - 61.

Another significant improvement could also be brought to the neutron generator shielding in an industrial system. This will be studied in more details in next chapter about radioactive-waste characterisation. A typical 60 cm polyethylene shield completed with 10 cm of iron would allow the random background and dose rate to be strongly reduced, thus permitting to use a neutron emission larger than 10^7 n/s and to improve again counting statistics.

This has not been done here but on the other hand count losses in the electronics and data filtering software have not been taken into account. In fact, the simulations presented here provide a realistic order of magnitude of the counting statistics in a future industrial system.

9 Conclusion

The simulation of realistic inspection situations illustrates the correctness of the data processing method used to recover the chemical C, N, and O fractions from the unfolded counts of the gamma-ray spectra acquired with the EURITRACK tagged neutron inspection system.

A set of conversion factors has been established, which takes into account neutron moderation and gamma-ray attenuation in containers filled by the most frequent cargo materials observed during the operation of the EURITRACK system (organic, metallic, and SiO_2 based cargos). These factors have been validated by experiments with bare thick targets and with targets placed in different positions inside a testing iron matrix.

The validity of these conversion factors has been controlled by simulating inspection spectra for different positions of threat materials (TNT, cocaine) hidden in the different cargo matrixes. These simulations have been first used to estimate the bias between the measured and true chemical ratios in each situation, without introducing counting fluctuations in the numerical model. This allowed to estimate the systematic uncertainty intervals for the conversion factors that will be used in the field for the inspection of unknown cargo materials.

Secondly, realistic inspection spectra have been calculated by injecting counting statistical fluctuations corresponding to 10 minute acquisitions with a future industrial system, so as to test the entire data processing including both random and systematic uncertainties. This work has shown that the current EURITRACK demonstrator could be significantly improved in a future industrial system by using more detectors, and a shield around the neutron generator (see next chapter).

Real truck inspection data of wood, fabrics, and paper organic cargos have also been processed to test the conversion factors in realistic conditions, confirming the capacity of the EURITRACK system to identify these materials, but also the need to improve counting statistics.

On the other hand, the established set of conversion factors has been used to test the global data processing developed within the Eritr@C project, including decision making algorithms [112]. The Monte Carlo method proposed to process statistical and systematic uncertainties and to estimate the most probable detected materials in the Dalitz representation of the C, N, and O proportions has been developed after this work, but as it significantly improves decision making, it should be also implemented in a future industrial system.

10 Bibliographical references of chapter III

- [101] B. Perot, G. Perret, A. Mariani, et al., “The EURITRACK project: development of a tagged neutron inspection system for cargo containers” Proc. SPIE 6213 (2006) 621305.
- [102] C. Carasco, B. Perot et al., “Photon attenuation and neutron moderation conversion factors for the inspection of cargo containers with tagged neutrons”, NIM A 582 (2007) 638–643.
- [103] B. Perot, C. Carasco et al., “Measurement of 14 MeV neutron-induced prompt gamma-ray spectra from 15 elements found in cargo containers”, ARI 66 (2008) 421-434.
- [104] W. El Kanawati, C. Carasco, B. Perot, A. Mariani, V. Valkovic, D. Sudac, “Improvement of the calibration database of the EURITRACK tagged neutron inspection system”, ANIMMA Conference, 2009, published in IEEE TNS October 2010.
- [105] C. Carasco, B. Perot, S. Bernard, and al, “In-field test of EURITRACK tagged neutron inspection system”, NIM A 588 (2008) 397–405.
- [106] MCNP4C, Monte Carlo N-Particle Transport Code System, RSICC CODE PACKAGE CCC-700, Radiation Safety Information Computational Center, Oak Ridge National Laboratory.
- [107] C. Carasco, “MCNP Output Data Analysis with ROOT (MODAR)”, Computer Physics Communications 181 (2010) 1161-1166.
- [108] J. Obhodas, D. Sudac, V. Valkovic, et al. “Analysis of containerized cargo in the ship container terminal”, NIM A 619 (2010) 460-466.
- [109] R. H. Dalitz, “Decay of τ Mesons of Known Charge”, Physical review, volume 94, number 4 (1995).
- [110] Perot, B.; Carasco, C.; Valkovic, V.; Sudac, D.; Franulovic, A. *Detection of Illicit Drugs with the EURITRACK System*, APPLICATION OF ACCELERATORS IN RESEARCH AND INDUSTRY: Twentieth International Conference. AIP Conference Proceedings, Volume 1099, pp. 565-569 (2009). DOI: 10.1063/1.3120100
- [111] D. Strellis, T. Gozani and J. Stevenson, “Air Cargo Inspection using Pulsed Fast Neutron Analysis”, International Topical Meeting on Nuclear Research Applications and Utilization of Accelerators, 4-8 May 2009, Vienna.
- [112] L. Allano et al., “Le projet Eritr@c: du neutron à l'aide à la décision pour le contrôle de conteneurs», WISG2010.

Partie IV – Caractérisation des déchets radioactifs

1 Introduction

Dans le cadre de la loi du 28 juin 2006 relative à la gestion durable des matières et déchets radioactifs, le CEA conduit des études sur la caractérisation par des méthodes de mesures nucléaires non destructives de colis MAVL (Moyenne Activité à Vie Longue) destinés au stockage en couche géologique profonde à l'horizon 2025. En particulier, en ce qui concerne la technique de la particule associée (TPA), les possibilités de caractérisation élémentaire des matériaux constituant les déchets et les matrices de conditionnement sont examinées par simulation numérique dans cette partie. Les études menées portent sur trois familles de colis de déchets radioactifs significatives par le nombre et la nature des colis, selon l'Inventaire national des matières et déchets radioactifs publié par l'Agence nationale pour la gestion des déchets radioactifs (ANDRA) [113]: les fûts STEL (Station de Traitement des Effluents Liquides, site CEA de Marcoule) d'enrobé bitumineux de 225 litres reconditionnés en sur-fûts EIP (Entreposage Intermédiaire Polyvalent) ; les conteneurs en béton armé avec des fibres CBF-C'2 (AREVA La Hague) contenant des déchets technologiques divers et les conteneurs en acier de 870 litres contenant des déchets divers du CEA.

Le but sera de l'étude est de caractériser les éléments présents dans des zones d'intérêt repérées au préalable par imagerie photonique, telles que des objets ou hétérogénéités dans une matrice homogène. Les conteneurs CSD-C (Conteneurs Standard de Déchets Compactés, site AREVA La Hague), contenant un mélange de coques et embouts et de déchets technologiques métalliques sont également des colis MAVL d'intérêt mais ils sont très irradiants, avec notamment des activités en ^{60}Co et en ^{137}Cs de l'ordre de 10^{13} Bq [113], et par conséquent leur caractérisation via la spectrométrie de rayonnements gamma induits par interrogation neutronique ne peut pas être envisagée.

Ainsi, un dimensionnement par simulation numérique d'un poste de caractérisation élémentaire par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée a été étudié pour les trois familles de colis primaires. La première partie de l'étude porte sur l'optimisation de la position, des écrans et collimateurs des détecteurs de rayonnement gamma situés autour du colis de déchets à caractériser, afin d'éviter leur saturation due à l'émission gamma et neutronique des déchets radioactifs. Cette partie comprend également l'optimisation d'un écran autour du générateur de neutrons pour minimiser le bruit de fond aléatoire dû principalement à l'environnement dans lequel les neutrons non signés interagissent (murs, sol, plafond, ensemble du colis, structure mécanique du poste de mesure, autres équipements de levage ou de radioprotection présents dans la cellule d'irradiation).

Ensuite les différents colis de déchets décrits dans [113] sont étudiés, en commençant par le fût d'enrobé bitumineux pour lequel l'identification d'une poche d'eau, d'un bloc de fer et d'un bloc d'aluminium positionnés en différents endroits à l'intérieur de la matrice a été testée par simulation numérique. Ensuite le fût CBF-C'2 est abordé, qui présente un volume d'environ $1,2\text{ m}^3$ et contient une matrice de béton fibres enrobant des étuis remplis de déchets technologiques d'origine diverse. La caractérisation élémentaire de modèles d'étuis contenant du PVC, de l'aluminium ou encore du fer a été testée. Enfin un conteneur de 870 litres contenant des déchets divers du CEA a été étudié, avec pour objectif la caractérisation d'un bloc en aluminium et d'une enveloppe en fer remplie d'huile simulant un bloc moteur.

Dans chaque cas étudié, des conditions réalistes de mesure sont approchées en prenant en compte le bruit aléatoire et les fluctuations statistiques de comptage pour une heure d'acquisition. Le niveau d'émission du générateur de neutrons a été fixé à 2.10^8 n/s, maximum envisageable avec les tubes scellés à particule associée actuellement disponibles sur le marché, en tenant compte de l'écran autour de la source mentionné plus haut qui permet de limiter le bruit de fond aléatoire dû au générateur. Les collimateurs et écrans autour des détecteurs gamma sont également utilisés pour limiter le bruit dû au colis. Ceci permet de maximiser le rapport entre le signal utile des rayonnements gamma caractéristiques des éléments recherchés et les différentes sources de bruit.

2 Caractéristiques des colis

Les différents colis de déchets ont été modélisés avec MCNP en utilisant des données extraites de [113] et des informations disponibles au Laboratoire de Mesures Nucléaires pour les colis de déchets du CEA en prenant en compte aussi précisément que possible la géométrie, la composition chimique et la densité des matériaux et structures constituant les colis.

La matrice du fût STEL utilisée pour cette étude est un enrobé bitumineux de densité $\sim 1,3$ comprenant notamment du carbone (~ 48 % massiques), de l'oxygène (~ 16 %), de l'hydrogène (~ 6 %), du soufre (~ 5 %) et du fer (~ 4 %) remplissant de façon homogène un fût de 225 L de diamètre ~ 60 cm et de hauteur ~ 88 cm. Une partie de ces colis est reconditionnée dans des sur-fûts EIP en acier inoxydable de diamètre ~ 74 cm et de hauteur ~ 100 cm.

Le conteneur béton fibres CBF-C'2 contient des déchets technologiques divers contenus dans des étuis, poubelles ou fûts, ces emballages étant bloqués dans du béton fibres. La modélisation MCNP a été réalisée pour des étuis contenant de l'aluminium pur, du fer pur ou encore du PVC pur. Le conteneur a une hauteur extérieure hors tout de 150 cm et un diamètre extérieur hors tout de 100 cm. La coque et la matrice sont en béton fibres de densité $\sim 2,3$ composé notamment d'oxygène (~ 53 %), de silicium (~ 36 %), de calcium (~ 7 %), d'aluminium (~ 1 %) et d'hydrogène ($\sim 0,8$ %). Quatre étuis cylindriques en acier non allié de hauteur 110 cm ont été modélisés, deux de diamètre ~ 30 cm et deux de diamètre ~ 13 cm.

Le dernier type de colis étudié est le conteneur de 870 litres contenant des déchets divers du CEA. Ces colis de hauteur ~ 116 cm et de diamètre ~ 98 cm contiennent des déchets en vrac ou compactés, immobilisés dans un liant hydraulique. Seuls les colis qui contiennent des déchets en vrac sont étudiés ici. Un mélange homogène de liant hydraulique et de déchets a été décrit comme matrice de ce fût. Le liant hydraulique pur présent en périphérie du fût présente une densité de $\sim 2,2$ et se compose notamment d'oxygène (~ 53 %), de silicium (~ 28 %), de calcium (~ 10 %), d'azote (~ 3 %), d'aluminium (~ 2 %), d'hydrogène ($\sim 1,3$ %) et de fer ($\sim 0,9$ %). Le mélange de déchets et de liant hydraulique présente une densité de $\sim 2,3$ et se compose notamment d'oxygène (~ 37 %), de silicium (~ 18 %), de fer (~ 17 %), de calcium (~ 8 %), de chlore (~ 6 %), de carbone (~ 3 %), d'aluminium (~ 2 %), d'azote (~ 2 %) et d'hydrogène ($\sim 1,9$ %).



Figure IV - 1. Fût métallique d'enrobé bitumineux et surfût inox EIP (à gauche), conteneur béton fibres cylindrique CBFC'2 (au milieu) et conteneurs métalliques (870 L) de déchets solides [113].

3 Optimisation du dispositif expérimental

Chaque type de colis présente ses propres émissions gamma et neutronique, et par suite il est nécessaire d'optimiser la distance entre chaque colis et les détecteurs afin de limiter leur taux de comptage total. De plus, les neutrons émis de façon isotrope par le générateur (dont ceux du faisceau marqué ne représentent qu'une petite fraction) interagissent dans le colis de déchets et dans l'environnement de mesure (murs, sols, plafond, blindage...), contribuant aussi à ce taux de comptage responsable du bruit de fond aléatoire observé dans les mesures de coïncidence. Ce bruit correspond à l'enregistrement dans le détecteur gamma d'évènements non corrélés à la particule alpha qui a déclenché l'ouverture d'une fenêtre temporelle d'inspection, c'est-à-dire non provoqués par le neutron signé associé à cette particule alpha. Ces coïncidences accidentelles sont d'autant plus fréquentes que le taux de comptage dans les détecteurs gamma, enregistré sans coïncidence avec le détecteur alpha, est élevé. Le bruit aléatoire dépend de ce taux de comptage total ainsi que de celui du détecteur alpha, et de la durée de la fenêtre temporelle d'inspection ouverte après la détection de la particule alpha :

$$TC_{BA} = TC_{\alpha} \times \Delta t \times TC_{\gamma}$$

où

TC_{BA} est le taux de comptage du bruit aléatoire du détecteur gamma (coups/s),

TC_{α} est le taux de comptage mesuré par le détecteur alpha (coups/s),

Δt est la largeur de la fenêtre temporelle d'inspection (secondes),

TC_{γ} est le taux de comptage total mesuré par le détecteur gamma (coups/s).

Le bruit aléatoire peut être minimisé en limitant le taux de comptage total des détecteurs gamma à l'aide d'un écran de protection autour du générateur et de collimateurs et écrans autour des détecteurs. La distance entre les détecteurs et le colis constitue également un paramètre d'ajustement. En fonction de cette distance, il faut également s'assurer qu'il n'y a pas un recouvrement trop important entre le signal utile dû aux rayonnements gamma induits par les neutrons marqués interrogateurs et le signal parasite dû à une fraction de ces neutrons rétrodiffusés vers les détecteurs. Ces différentes optimisations ont été étudiées.

3.1 Fût d'enrobé bitumineux

3.1.1 Réduction du bruit de fond dû à l'émission gamma et neutronique du colis

Les premiers calculs de simulation réalisés avec MCNP concernent l'optimisation de la position des détecteurs de rayonnements gamma autour de l'objet à inspecter. Des études antérieures ont permis de comparer la sensibilité de détecteurs placés à 90°, 120° et 150° par rapport au faisceau de neutrons, comme indiqué en Figure IV - 2, pour la caractérisation élémentaire d'objets dans les colis de déchets [120]. Le cas des angles 210°, 240° et 270° est symétrique par rapport au faisceau et les positions situées entre 300° et 90° (deuxième moitié du fût par rapport au faisceau incident) ne sont pas favorables à la détection. La partie du colis à inspecter devra être placée devant le faisceau de neutrons signés à l'aide d'un plateau tournant, qui devra aussi permettre une translation verticale pour permettre d'inspecter l'intégralité du fût avec un minimum de détecteurs.

Le but de l'optimisation présentée ici est de minimiser le bruit dû à l'émission gamma et neutronique du colis de déchets radioactifs. Les détecteurs envisagés dans un premier temps sont des cristaux de NaI(Tl) de dimensions 12,7 cm × 12,7 cm × 25,4 cm (5"×5"×10"), comme ceux équipant le système EURITRACK, orientés de façon à présenter au fût leur face la plus large. Des détecteurs cylindriques de 3"×3" au LaBr₃(Ce) ont ensuite été envisagés pour limiter le taux de comptage tout en préservant une bonne sensibilité grâce à une densité plus élevée (5,29 contre 3,67 pour le NaI) et une meilleure résolution en énergie (par exemple 29,26 keV à 1 MeV contre 73,19 keV pour le NaI). Pour chaque distance, le taux de comptage dans le détecteur a été calculé avec MCNP, en mode de transport photonique pour le bruit dû au rayonnement gamma du colis et en mode mixte neutron-photon pour l'émission neutronique, grâce à l'estimateur « tally F8 » qui fournit l'histogramme des dépôts d'énergie des photons dans le détecteur. Le calcul en mode photonique est fiable et l'approche pour le calcul mixte a été validée expérimentalement pour ce type de détecteurs NaI(Tl) avec le système EURITRACK [114] [115].

Dans les fûts d'enrobé bitumineux, l'activité des radioéléments émetteurs bêta peut être très élevée, de l'ordre de 10¹² Bq par colis pour le principal émetteur gamma qui est le ¹³⁷Cs (raie gamma à 661,7 keV de son descendant radioactif, le ^{137m}Ba). L'émission gamma totale considérée pour cette étude est de ~ 10¹² γ.s⁻¹. Les principaux isotopes radioactifs ainsi que leur émission gamma sont présentés dans le Tableau 2. Les isotopes ¹³⁴Cs et ⁶⁰Co, bien que de périodes radioactives courtes ((2,06 ans et 5,27 ans, respectivement) par rapport à celle du ¹³⁷Cs (30,1 ans), ont été pris en compte suite au retour d'expérience du Laboratoire de Mesures Nucléaires car ces deux isotopes apparaissent dans les mesures de spectrométrie gamma même à un faible niveau d'activité. Nous les avons donc introduits dans les simulations à hauteur de ~ 1 % de l'activité du ¹³⁷Cs, qui est le principal émetteur gamma dans ces colis.

Tableau 2. Principales émissions gamma simulées dans le colis bitumineux.

Isotopes	Energie (MeV)	Emission (γ.s ⁻¹)
¹³⁷ Cs	0,6617	~ 10 ¹²
⁶⁰ Co	1,332	~10 ¹⁰
⁶⁰ Co	1,173	~10 ¹⁰
¹³⁴ Cs	0,605	~ 10 ¹⁰
¹³⁴ Cs	0,796	~ 10 ¹⁰
²⁴¹ Am	0,059	~ 2.10 ⁹

^{134}Cs	0,569	$\sim 2.10^9$
^{134}Cs	0,802	$\sim 10^9$
^{134}Cs	0,563	$\sim 10^9$

Les détecteurs ont été placés à 10, 20 et 40 cm avec et sans un collimateur de plomb d'épaisseur 5 cm. La Figure IV - 2 montre la géométrie de la modélisation dans le cas des détecteurs de 3"×3" en LaBr₃(ce).

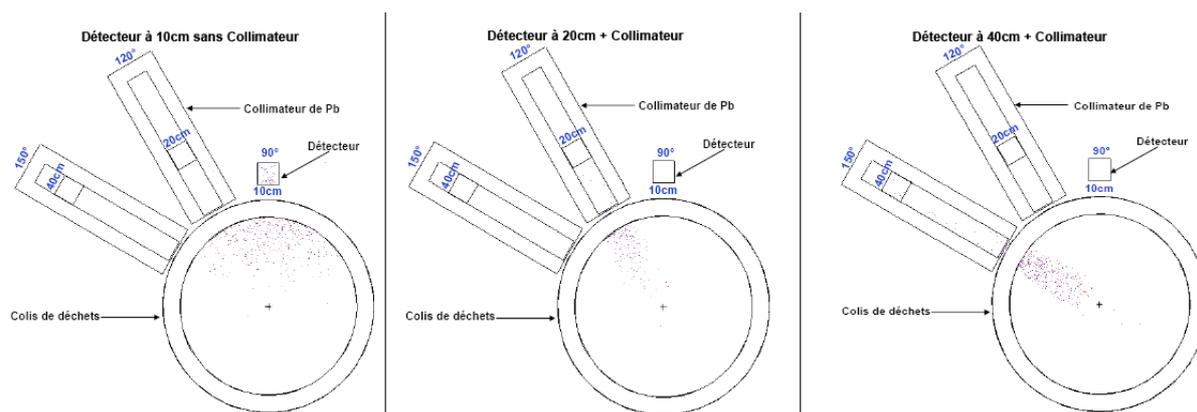


Figure IV - 2. Visualisation de l'origine des rayonnements gamma détectés avec MCNP Visual Editor (Vised). Le cas de gauche correspond aux photons détectés par le détecteur à 90° sans collimateur, celui du milieu au détecteur à 120° placé à 20 cm dans un collimateur en plomb et celui de droite au détecteur à 150° placé à 40 cm au fond du collimateur. Les angles sont définis par rapport au faisceau de neutron signés (qui vient de la gauche, non représenté ici car ce calcul a pour source les photons émis dans le colis). Les points rouges représentent l'énergie maximale (1,332 MeV) et les points bleus correspondent à l'énergie minimale (0,283 MeV) des photons.

Pour limiter encore le taux de comptage, le collimateur est fermé côté colis par un écran de plomb de faible épaisseur qui atténue préférentiellement les rayonnements gamma du ^{137}Cs à 661,7 keV, mais moins ceux utiles créés par les neutrons signés dans le colis (la raie utile de plus faible énergie est celle du fer à 847 keV).

Le Tableau 3 compare les taux de comptage des détecteurs NaI(Tl) et LaBr₃(Ce) calculés pour une source isotrope de rayonnements gamma tirés de façon uniforme dans la matrice d'enrobé bitumineux (bruit de fond), avec les flux de photons produits par un faisceau de neutrons signés d'ouverture conique de demi-angle 2,15° (signal utile). Ces derniers sont calculés avec un estimateur semi déterministe de MCNP appelé détecteur point (« tally F5 »), qui donne une estimation du flux de particules arrivant en un point de l'espace, ici la position du détecteur à 150°, qui présente généralement la meilleure sensibilité [120].

Tableau 3. Taux de comptage totaux (bruit) et flux de photons en coïncidence (signal utile dans une fenêtre de temps de vol « TOF » correspondant au colis à caractériser) pour les détecteurs NaI(Tl) 5"×5"×10" et LaBr₃(Ce) 3"×3".

Géométries	Taux de comptage NaI(Tl) par photon source émis dans le colis	Taux de comptage LaBr ₃ (Ce) par photon source émis dans le colis	Signal NaI(Tl) par neutron source du faisceau de neutrons marqués	Signal LaBr ₃ (Ce) par neutron source du faisceau de neutrons marqués
Détecteur à 10cm sans collimateur	$2,35.10^{-3}$	$7,90.10^{-4}$	TOF (23→28) ns	TOF (23→28) ns

			$6,75.10^{-3}$	$2,13.10^{-3}$
Détecteur à 20cm + collimateur Pb d'épaisseur 5cm	$3,00.10^{-4}$	$4,30.10^{-5}$	$TOF (23 \rightarrow 28) ns$ $3,75.10^{-3}$	$TOF (23 \rightarrow 28) ns$ $1,18.10^{-3}$
Détecteur à 40cm + 5cm collimateur Pb	$8,81.10^{-5}$	$1,08.10^{-5}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $1,78.10^{-3}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $5,61.10^{-4}$
Détecteur à 40cm + 5cm collimateur Pb + 5 mm écran de Pb	$3,31.10^{-5}$	$4,23.10^{-6}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $1,57.10^{-3}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $4,94.10^{-4}$
Détecteur à 40cm + 5cm collimateur Pb + 1 cm écran de Pb	$1,82.10^{-5}$	$2,43.10^{-6}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $1,39.10^{-3}$	$TOF (24 \rightarrow 29) ns$ $4,41.10^{-4}$

Les deux dernières configurations présentent les plus faibles taux de comptage mais augmenter l'épaisseur de l'écran de plomb de 0,5 à 1 cm ne permet qu'un gain relativement limité sur ce bruit par rapport au gain observé entre 0 cm (sans écran) et 0,5 cm. Compte tenu de la perte de signal utile (photons produits par les neutrons signés) due à l'écran de plomb, une épaisseur de 0,5 cm a été choisie.

Les calculs montrent que le taux de comptage pour un détecteur NaI(Tl) 5"×5"×10" placé à 40 cm du colis dans un collimateur de plomb d'épaisseur 5 cm et derrière un écran de plomb de 0,5 cm est de $\sim 4.10^7$ coups/s. Le taux d'empilement des événements dans le détecteur est donné par la loi de Poisson :

$$TE = 1 - e^{-TC_{\gamma} \times 3\tau}$$

où

TE est le taux d'empilements (exprimé par la suite en %),

TC_{γ} est le taux de comptage total du détecteur gamma (s^{-1}),

τ est la constante de décroissance du cristal scintillateur (s), la durée d'une impulsion étant ici estimée à 3τ .

Pour un détecteur NaI(Tl), 3τ vaut 690 ns [116], et par suite le taux d'empilement à 40 cm est de 100 %, ce qui rend impossible la mesure de l'énergie des événements enregistrés. Avec un détecteur LaBr₃(Ce) cylindrique de 3"×3", pour lequel $3\tau \sim 78$ ns [117], le taux de comptage à 40 cm dans le collimateur en plomb est $\sim 5.10^6$ coups/s et le taux d'empilement ~ 32 %.

Par conséquent, les détecteurs seront placés à 40 cm du colis dans un collimateur en plomb d'épaisseur 5 cm et derrière un écran de protection de 0,5 cm de plomb. Le spectre du bruit de fond dû à l'émission gamma du colis et celui de temps de vol de cette configuration sont présentés en Figure IV - 3. Pour mieux rendre compte de la très grande amplitude du bruit par rapport au signal, l'échelle verticale du spectre de temps de vol commence à zéro. Donc, à l'échelle du bruit, le pic associé au signal est à peine discernable.

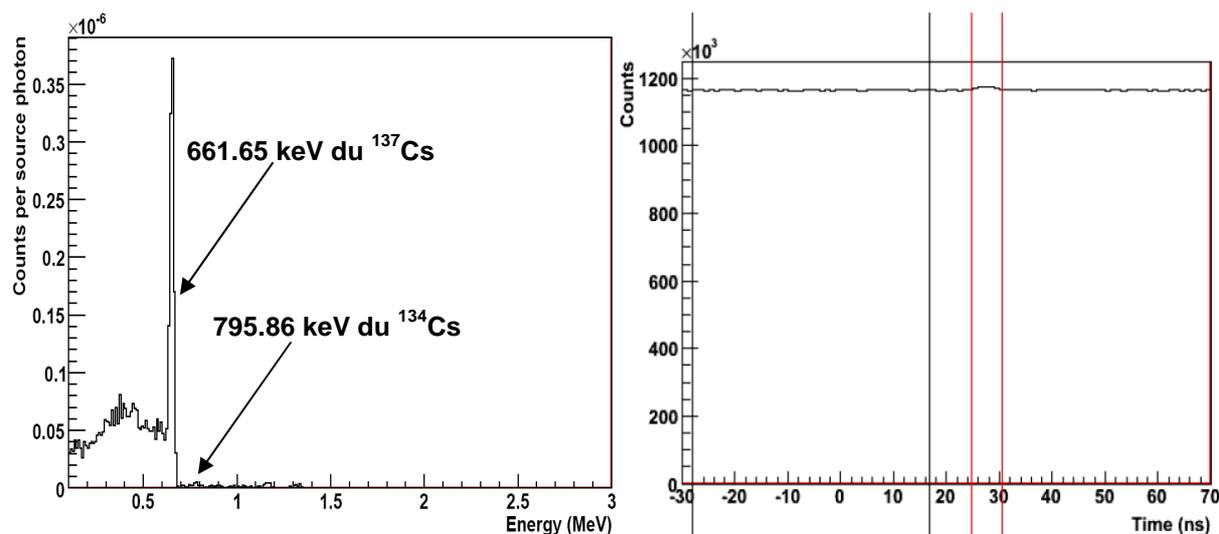


Figure IV - 3. Spectre gamma du bruit de fond dû à l'émission gamma propre du colis (à gauche) et spectre de temps de vol (à droite) montrant l'importance du bruit de fond aléatoire dû à cette émission gamma, pour un détecteur placé à 40 cm dans un collimateur en plomb d'épaisseur 5 cm et avec un écran de protection de 5 mm. Les barres verticales représentent les zones temporelles du bruit de fond (en noir) et du signal utile coïncident dû aux rayonnements gamma produits par les neutrons signés dans le colis (en rouge).

Les énergies des rayonnements gamma émis par les radioéléments présents dans le colis sont en grande majorité inférieures à 1,4 MeV, avec un pic intense à 661,7 keV émis par le ^{137}Cs , ainsi que des raies de plus faible amplitude à 795,9 keV émis par le ^{134}Cs , et de 1173 keV et 1332 keV émises par le ^{60}Co . La raie du ^{134}Cs peut être séparée du pic à 847 keV induit par les neutrons signés sur le ^{56}Fe grâce à la bonne résolution en énergie du détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ [118] (largeur à mi hauteur de ~ 27 keV à 847 keV). Ainsi, afin de réduire le bruit de fond aléatoire dû à l'émission gamma du colis sans perdre des informations sur le signal utile à la caractérisation élémentaire du fer (les raies des autres éléments d'intérêt principaux comme C, O, Al, Si, Ca et Cl se situent à plus haute énergie), le seuil de coupure du système d'acquisition a été placé à 790 keV. La Figure IV - 4 montre le spectre de temps de vol correspondant et la nette amélioration du rapport signal sur bruit qui en résulte par rapport à la figure précédente, où le seuil était placé à 100 keV.

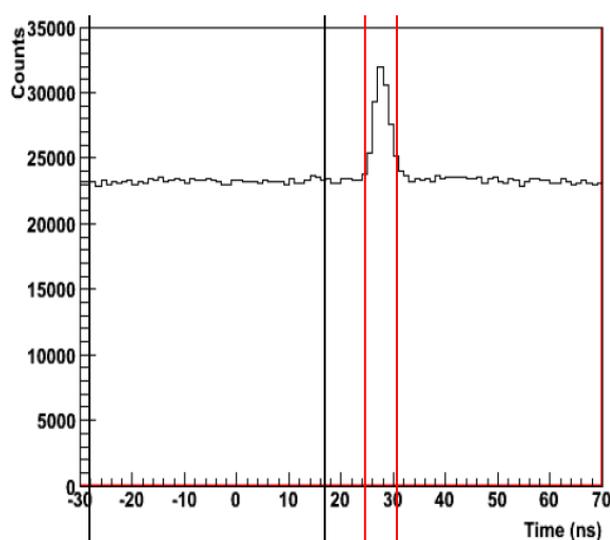


Figure IV - 4. Spectre de temps de vol du colis bitumineux avec le bruit de fond aléatoire dû aux rayonnements gamma émis dans le colis et en appliquant un seuil de coupure en énergie de 790 keV.

Une fois les distances entre les détecteurs et le colis définies, il est nécessaire de vérifier le pourcentage de recouvrement des spectres temporels obtenus pour les rayonnements gamma (signal utile créé dans le colis) et neutroniques (neutrons rétrodiffusés vers les détecteurs, qui interagissent dans les détecteurs eux même ou à proximité). En effet, des neutrons signés diffusés en périphérie du fût et dans les collimateurs peuvent arriver dans des plages temporelles correspondant à celle des rayonnements gamma produits ultérieurement dans le colis mais qui, en raison de leur vitesse supérieure, parviennent en même temps aux détecteurs. Le signal induit par ces neutrons diffusés constitue un bruit parasite qu'il convient de minimiser. La Figure IV - 5 montre la variation des flux associés aux rayonnements gamma utiles et aux neutrons diffusés calculés avec le « tally F5 » (détecteur point) de MCNP en fonction du temps depuis l'émission des neutrons source signés, et arrivant à des détecteurs placés à 10 et 40 cm du colis, et aux angles 90°, 120° et 150° par rapport au faisceau. Pour un angle de 150°, le pourcentage de recouvrement de l'aire du flux photonique par le flux neutronique passe de 25 % pour une distance colis-détecteur de 10 cm à 19 % pour 40 cm (voir Tableau 4). Par ailleurs, il faut noter que le signal utile correspondant au colis d'enrobés bitumineux se trouve entre 26 et 36 ns, zone dans laquelle le flux neutronique est faible (à 10 cm) voire négligeable (à 40 cm). L'aire de recouvrement utile entre les spectres des rayonnements gamma et des neutronique diminue progressivement lorsque la distance des détecteurs au colis augmente, du fait de la vitesse supérieure des rayonnements gamma : 30 cm.ns⁻¹ contre moins de 5 cm.ns⁻¹ (vitesse à 14 MeV) pour les neutrons diffusés, d'énergie inférieure à 14 MeV.

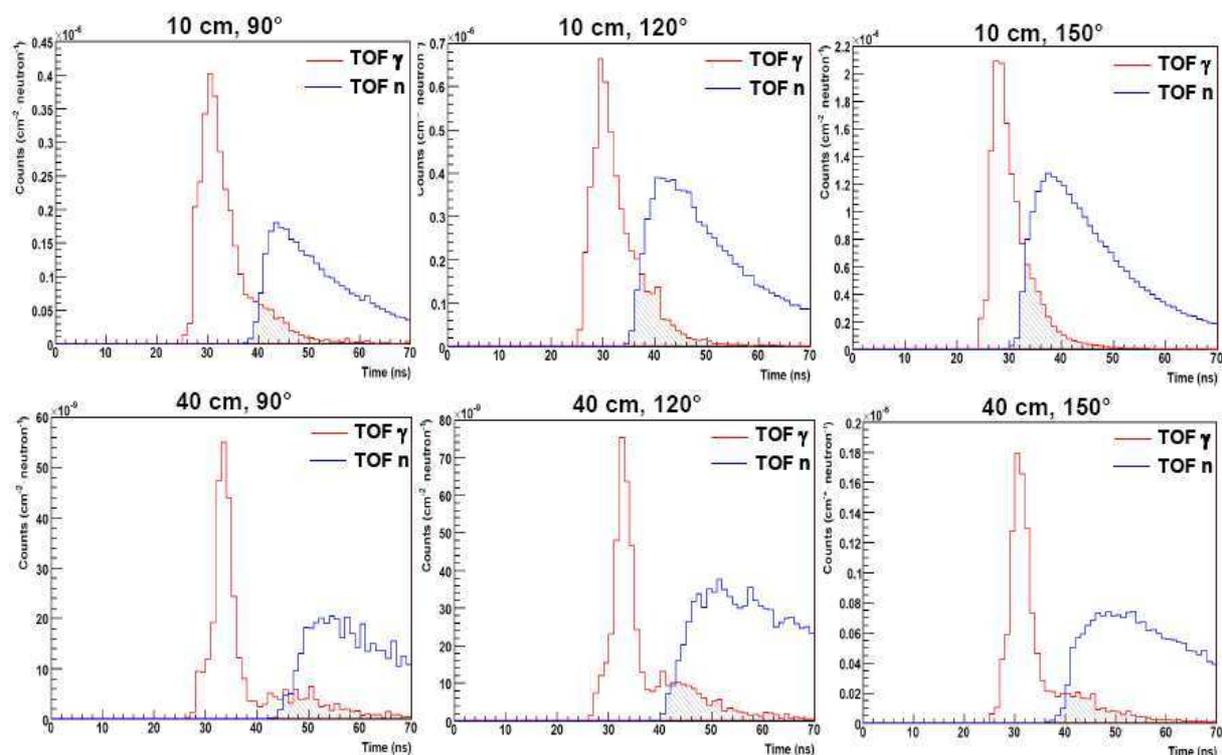


Figure IV - 5. Recouvrement (gris) des flux neutroniques (bleu) et gamma (rouge) au niveau des détecteurs à 10 et 40cm et à 90°, 120° et 150°.

Tableau 4. Pourcentage de recouvrement des flux neutroniques et gamma au niveau des détecteurs à 10 et 40cm et à 90°, 120° et 150°

Distance colis-détecteur (cm)	Angles (°)	Recouvrement total des TOF n et γ (%)
10	90	13.71

10	120	21.31
10	150	25.22
40	90	18.19
40	120	23.83
40	150	19.44

Après avoir calculé le bruit de fond dû à l'émission gamma du fût d'enrobé bitumineux, il faut estimer le bruit de fond neutronique apporté par le colis. L'émission neutronique totale prise en compte pour la modélisation est de $\sim 3.10^5$ n/s. On constate que le taux de comptage correspondant, estimé comme expliqué plus haut en mode de transport mixte neutron-photon et avec le « tally F8 » de MCNP, est anormalement faible pour le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 3"×3" par rapport à celui calculé avec un détecteur $\text{NaI}(\text{Tl})$ de mêmes dimensions. Le retour d'expérience montre que ce taux de comptage devrait être comparable à celui du cristal $\text{NaI}(\text{Tl})$ [118]. Les sections efficaces de production de rayonnements gamma par excitation des éléments La et Br avec des neutrons rapides ne sont probablement pas fiables dans la bibliothèque ENDF/B-VII.0 utilisée. Par conséquent, le taux de comptage neutronique pour ce détecteur est calculé en deux étapes en utilisant les estimateurs F5 et F8 de MCNP. Les flux photonique et neutronique sont calculés avec les détecteurs points F5:P et F5:N, respectivement, placés à 40 cm du colis. Pour cette étape, la distribution en énergie des neutrons source est modélisée par un spectre de fission de Watt :

$$f(E) = C \exp\left(-\frac{E}{a}\right) \sinh(bE)^{\frac{1}{2}}$$

où

a et b sont les paramètres du spectre qui varient d'un isotope à un autre, $a=0.906$ et $b=3.848$ pour le ^{244}Cm ,

C est la constante de normalisation qui dépend des coefficients a et b ,

E est l'énergie des neutrons.

Ensuite le flux photonique F5:P a été utilisé comme source de photons en incidence normale dans un cristal $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ de 3"×3" pour un calcul de dépôt d'énergie avec l'estimateur F8, afin d'estimer le taux de comptage dû aux rayonnements gamma induits par les neutrons issus du colis en dehors du cristal de $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$. Pour palier le manque de réalisme de la simulation en ce qui concerne la production de rayonnements gamma par excitation neutroniques dans le $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$, le flux neutronique F5:N a été utilisé comme source en incidence normale dans un cristal $\text{NaI}(\text{Tl})$ 3"×3" afin d'estimer l'ordre de grandeur du taux de comptage associé. Le taux de comptage total résultant de ces deux calculs est de ~ 27 coups/s (dont ~ 8 coups/s dus au flux photonique et ~ 19 coups/s dus au flux neutronique), ce qui est totalement négligeable par rapport au taux de comptage dû à l'émission gamma du colis. Le spectre du bruit de fond neutronique du colis ainsi que le spectre de temps de vol incluant ce bruit du fond présentés en Figure IV - 6 montrent qu'il est négligeable par rapport au signal dû aux interactions des neutrons marqués dans le bitume. Le spectre du bruit de fond montre la présence de deux pics remarquables l'un à 2,223 MeV dû aux rayonnements gamma de capture sur l'hydrogène et l'autre à 440 keV dû à la diffusion inélastique des neutrons sur le sodium du détecteur $\text{NaI}(\text{Tl})$ 3"×3", utilisé pour estimer le taux de comptage pour le flux neutronique.

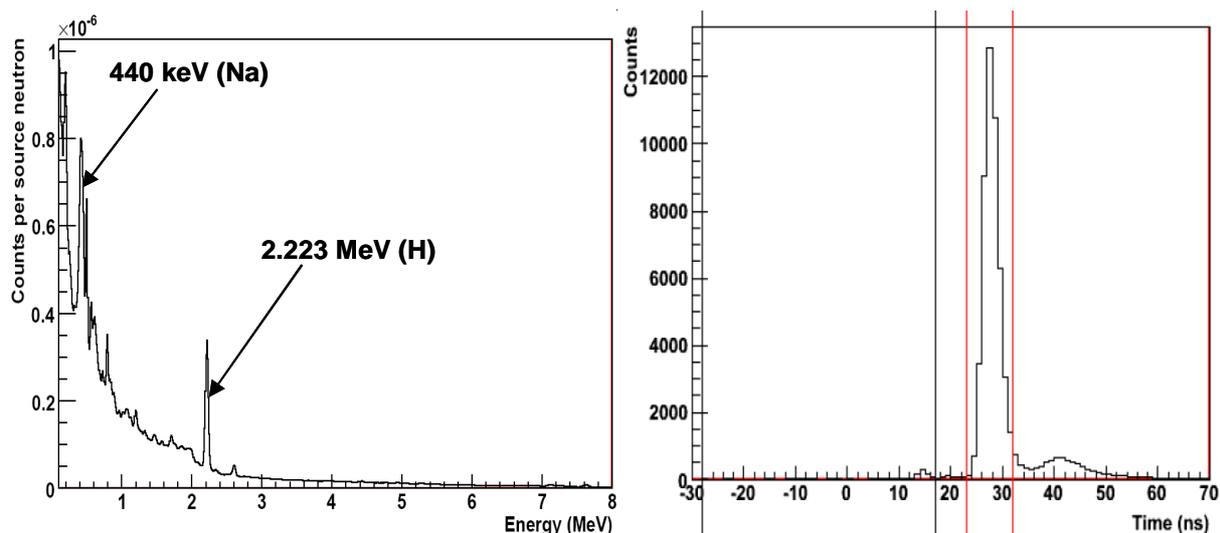


Figure IV - 6. Spectre gamma du bruit de fond dû à l'émission neutronique propre du colis (à gauche) et spectre de temps de vol (à droite) montrant l'importance du bruit de fond aléatoire dû à cette émission gamma, pour un détecteur placé à 40 cm dans un collimateur en plomb d'épaisseur 5 cm et avec un écran de protection de 5 mm. Les barres verticales représentent les zones temporelles du bruit de fond (en noir) et du signal utile coïncident dû aux rayonnements gamma produits par les neutrons signés dans le colis (en rouge).

Par la suite, compte tenu de la forte émission de rayonnements gamma dans le fût bitumineux issue des données de [113] ($\sim 10^{12} \gamma \cdot s^{-1}$), les détecteurs seront placés à 40 cm du colis dans un collimateur de plomb d'épaisseur 5 cm avec un écran de protection de 0,5 cm. Cependant, le retour d'expérience du Laboratoire de Mesures Nucléaires [119] montre que ce niveau d'activité doit être considéré comme une valeur enveloppe. Il existe en effet plusieurs décades en terme d'activité selon les colis d'enrobés bitumineux. A titre d'essai, un colis d'émission gamma totale 100 fois moins actif a donc été étudié par simulation, soit une émission de $\sim 10^{10} \gamma \cdot s^{-1}$. Dans ce cas, le détecteur pourrait même être placé plus près du colis (20 cm voire 10 cm), tout en restant dans le collimateur de plomb. Ainsi, il faudra, dans la réalisation du poste de mesure, prévoir un dispositif permettant de déplacer le détecteur dans le collimateur, et le collimateur par rapport au colis de déchets, en translation afin de s'adapter au diamètre de ce dernier et même en rotation pour viser spécifiquement les zones à inspecter.

3.1.2 Optimisation de l'écran autour du générateur de neutrons

Comme expliqué au début du paragraphe 3, le bruit aléatoire dépend du taux de comptage des détecteurs alpha et gamma. Le premier varie proportionnellement avec le niveau d'émission neutronique du générateur de neutrons, et le second dépend aussi, en plus de l'émission radiologique du colis étudiée précédemment, de celle du générateur de neutrons. Il faut donc chercher à limiter le taux de comptage du détecteur gamma dû à l'émission de ce dernier. Une source isotrope de neutrons d'énergie 14 MeV de taux d'émission $2 \cdot 10^8 \text{ n} \cdot \text{s}^{-1}$ (limite technologique pour les tubes scellés à particule associée) a été modélisée et le détecteur le plus proche du générateur (150°) a été étudié. Le polyéthylène $(\text{CH}_2)_n$ a été utilisé comme écran de protection car ce matériau est très efficace pour ralentir puis absorber les neutrons grâce à sa grande teneur en noyaux d'hydrogène.

L'épaisseur maximale de cet écran est volontairement limitée pour ne pas trop éloigner le générateur du colis. Il faut en effet respecter une distance suffisante entre l'écran et le colis pour que les neutrons rétrodiffusés par le colis n'induisent pas un signal significatif dans l'écran qui se superpose temporellement avec le signal utile, créant ainsi un signal parasite

(« fantôme » de polyéthylène dans la zone temporelle utile). Cette distance écran – colis doit être de l'ordre de la taille de l'objet à inspecter, de façon à ce que le temps de vol des neutrons rétrodiffusés parvenant à l'écran soit plus grand que celui des neutrons directs parvenant à l'extrémité du colis. Les colis étant placés sur un plateau tournant, il est inutile (et inefficace du point de vue de la mesure) d'inspecter la deuxième partie des colis. Il faut donc que l'écran se situe au moins à 60 cm, plus grand des rayons des colis étudiés (celui de 870 litres). Cette valeur est conservatoire car elle considère que les neutrons rétrodiffusés ont la même vitesse que ceux interrogateurs de 14 MeV.

Une étude antérieure [120] a montré qu'une épaisseur de 60 cm de polyéthylène est suffisante pour réduire le bruit de fond aléatoire d'un facteur 10 et obtenir un bon rapport signal sur bruit même à forte émission neutronique (2.10^8 n/s). Le modèle MCNP du dispositif expérimental avec cet écran est présenté en Figure IV - 7.

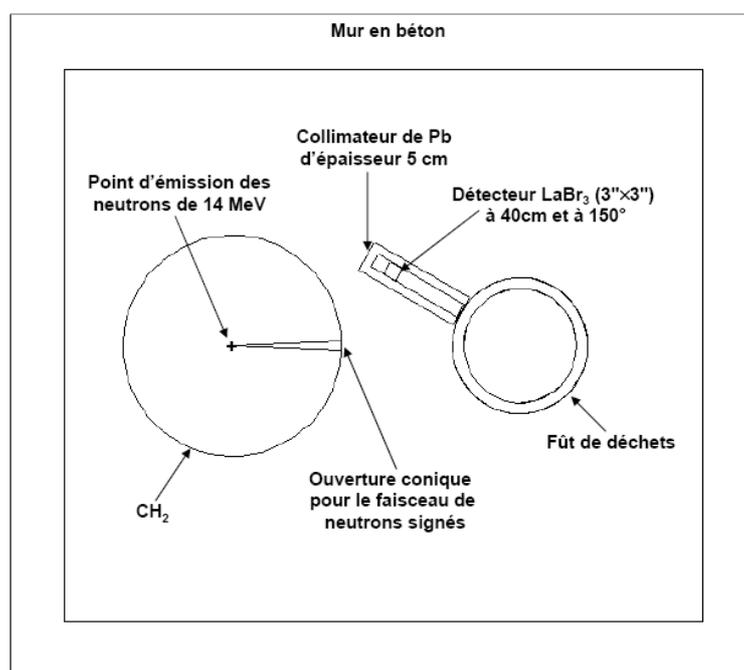


Figure IV - 7. Modélisation MCNP du dispositif expérimental avec l'écran autour du générateur de neutrons.

Etant donné l'incertitude sur les sections efficaces associées à la production gamma de La et Br, et par suite les rayonnements gamma créés par les interactions des neutrons rapides dans le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ n'étant pas correctement reproduites avec MCNP, le taux de comptage total dû à l'émission du générateur a été estimé de la même manière que celui dû à l'émission du colis, voir à la fin du paragraphe 3.1.1. Ce taux est ici de $5,22.10^3$ coups/s, soit nettement plus que celui dû aux neutrons émis par les déchets radioactifs, mais nettement moins que celui dû à leurs rayonnements gamma. Le spectre en énergie du bruit de fond aléatoire dû au générateur de neutrons de 14 MeV, ainsi que le spectre de temps de vol après la prise en compte de ce bruit du fond et en appliquant un seuil d'énergie de 790 keV, sont présentés en Figure IV - 8. Grâce aux 60 cm de polyéthylène, le bruit de fond neutronique est faible par rapport au signal utile.

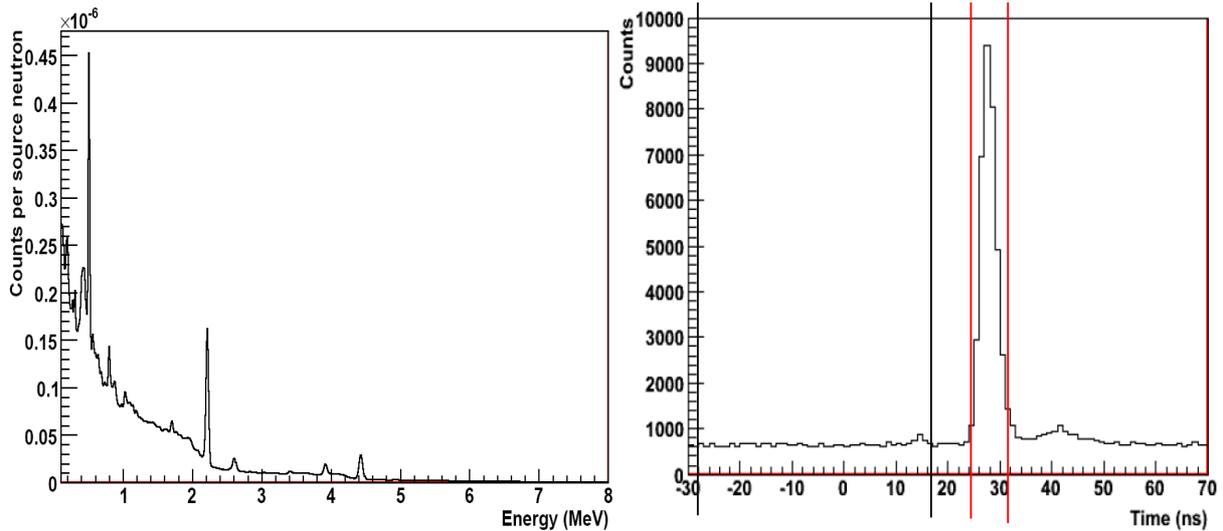


Figure IV - 8. Spectre gamma du bruit de fond aléatoire dû au générateur et spectre de temps de vol (avec ce bruit de fond) pour un détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ placé à 40 cm du colis d'enrobé bitumineux. Les barres verticales noires encadrent la zone du bruit de fond et les barres rouges celle du signal du colis.

Le bruit de fond aléatoire total obtenu en sommant les contributions des émissions gamma et neutronique dans le fût d'enrobé bitumineux et celle du générateur est donc quasiment identique à celui dû à la seule émission gamma du colis, voir Figure IV - 9 ci-dessous et Figure IV - 4 page 145.

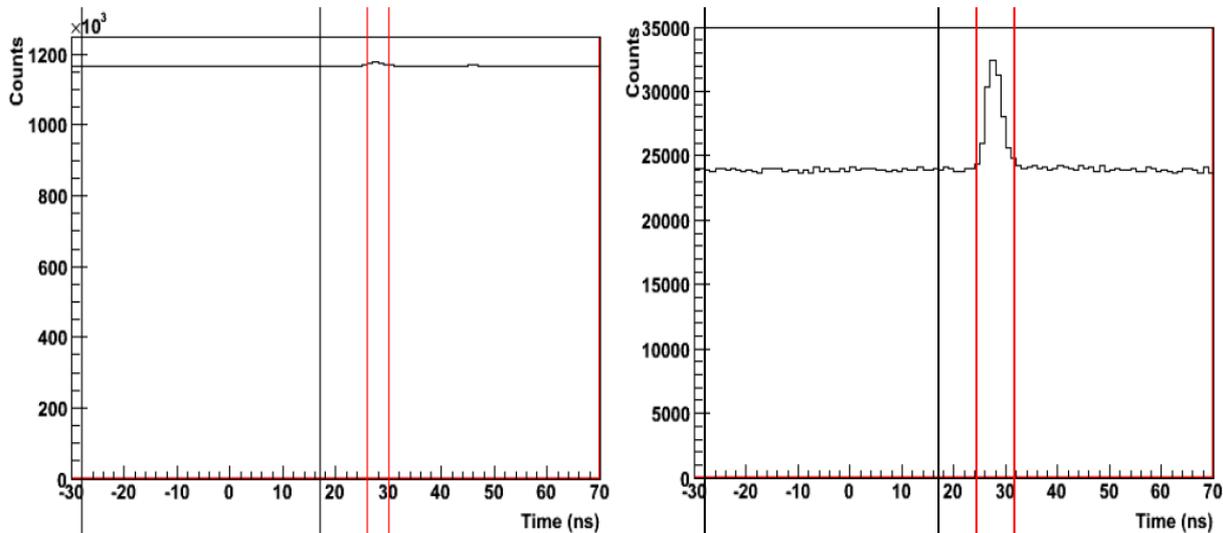


Figure IV - 9. Spectres de temps de vol du colis bitumineux avec le bruit de fond aléatoire total pour des seuils de coupure en énergie de 100 keV (à gauche) et 790 keV (à droite). Les barres verticales noires encadrent la zone du bruit de fond et les barres rouges celle du signal du colis d'enrobés bitumineux.

3.2 Fût de béton fibres CBF-C'2

3.2.1 Bruit de fond dû à l'émission gamma et neutrons du colis

L'activité totale des émetteurs bêta du colis de béton fibres est supérieure à 10^{12} Bq, notamment pour le principal émetteur bêta-gamma qui est ici aussi le ^{137}Cs . L'activité est concentrée dans les étuis qui contiennent des déchets technologiques divers. Les émissions gamma principales simulées sont présentées dans le Tableau 5.

Tableau 5. Principales émissions gamma simulées dans le colis de béton fibre.

Isotopes	Energie (MeV)	Emission ($\gamma.s^{-1}$)
^{137}Cs	0,661	$\sim 10^{12}$
^{241}Am	0,059	$\sim 10^{11}$
^{134}Cs	0,605	$\sim 10^{10}$
^{134}Cs	0,796	$\sim 10^{10}$
^{241}Am	0,026	$\sim 10^{10}$
^{134}Cs	0,569	$\sim 10^9$
^{134}Cs	0,802	$\sim 10^9$
^{134}Cs	0,563	$\sim 10^9$
^{134}Cs	1,365	$\sim 10^9$

Les détecteurs $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ ont été placés à 10, 20 et 40 cm dans le collimateur de plomb d'épaisseur 5 cm avec l'écran de 0,5 cm défini dans le cas du fût bitumineux. Les résultats du taux de comptage par photon source émis dans le colis pour ces distances, ainsi que le signal utile par neutron source marqué, sont donnés dans le Tableau 6.

Tableau 6. Taux de comptage par photon source émis dans le colis CBFC'2 pour le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ et signal par neutron source du faisceau marqué pour les différentes configurations étudiées.

Géométries	Taux de comptage $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ par γ source émis dans le colis	Signal $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ par neutron source du faisceau marqué
Détecteur à 10 cm + 5 cm collimateur Pb + 5 mm écran de Pb	$7,19.10^{-5}$	<i>TOF (22→29) ns</i> $1,14.10^{-3}$
Détecteur à 20 cm + collimateur Pb d'épaisseur 5 cm + 5 mm écran de Pb	$2,01.10^{-5}$	<i>TOF (21→28) ns</i> $1,76.10^{-4}$
Détecteur à 40 cm + 5cm collimateur Pb + 5 mm écran de Pb	$4,94.10^{-6}$	<i>TOF (24→29) ns</i> $4,72.10^{-5}$

La Figure IV - 10 montre la géométrie de la modélisation à 40 cm. Le taux de comptage associé aux photons émis dans le colis est $\sim 8.10^6$ coups/s. Par conséquent le taux d'empilement dans le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ est proche de 46 %. Les limites des électroniques d'acquisition sont ici atteintes et il sera probablement nécessaire pour des colis d'une telle activité d'augmenter l'épaisseur de l'écran en plomb devant le détecteur, voire d'éloigner encore le détecteur dans le collimateur. Cependant de tels niveaux d'activité sont à prendre comme des cas enveloppe et, comme pour le colis bitume, un cas sera aussi étudié avec une activité 100 fois plus faible.

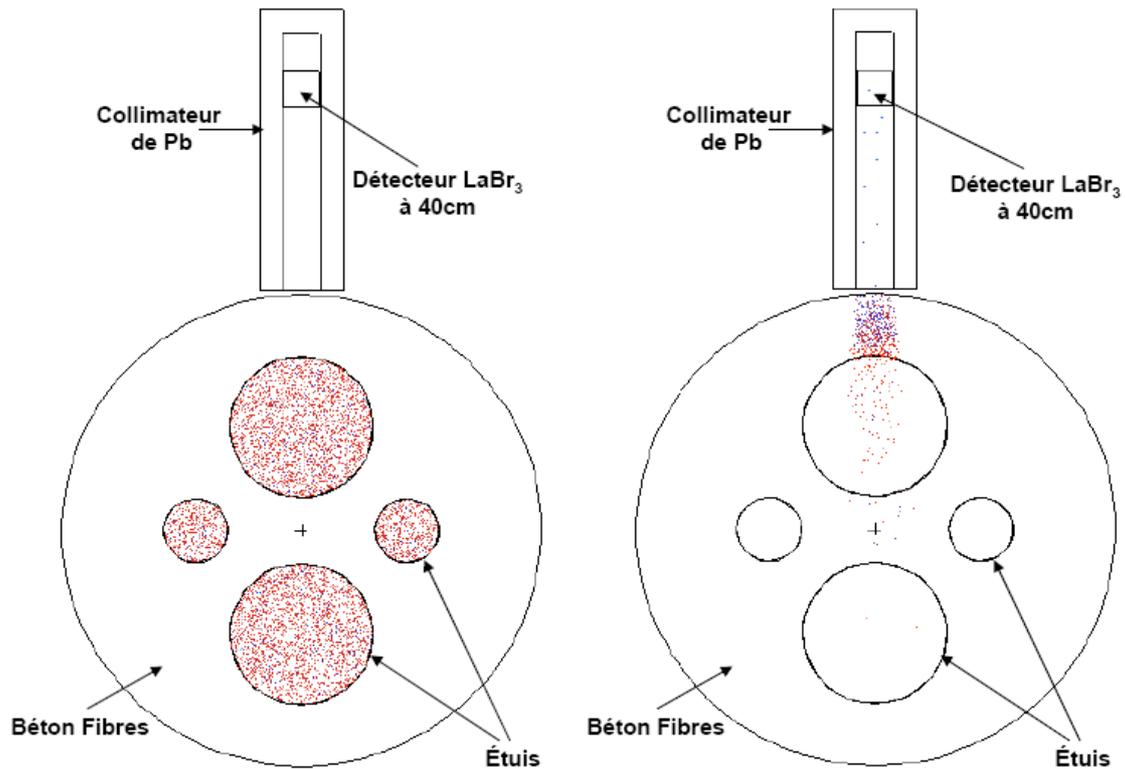


Figure IV - 10. Visualisation avec MCNP VisEd des lieux d'émission des photons source (à gauche) et de la provenance des rayonnements gamma détectés (à droite), montrant l'effet du collimateur. Les points rouges représentent l'énergie maximale (1,365 MeV) et les points bleus correspondent à l'énergie minimale (0,51 MeV).

Le spectre du bruit de fond dû à l'émission gamma du colis et celui de temps de vol de cette configuration sont présentés en Figure IV - 11. L'ouverture du faisceau de neutrons signés a été adaptée pour ce calcul à la taille d'un étui de 30 cm de diamètre, avec un angle total de 12,58° (contre 4,3° précédemment pour le colis bitume où le faisceau est destiné à viser des objets de plus petites dimensions). L'adaptation de la taille du faisceau sera décrite plus en détail dans les études de cas au paragraphe 4.

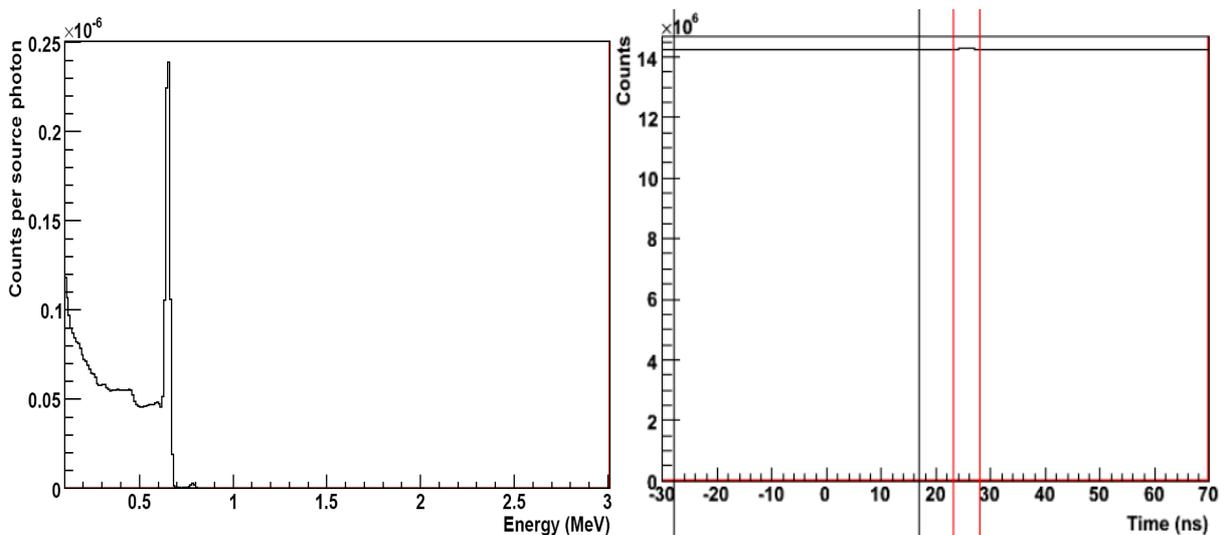


Figure IV - 11. Spectre du bruit de fond dû à l'émission gamma du colis et spectre de temps de vol (avec le bruit de fond gamma du colis et un seuil de coupure à 100 keV) pour un détecteur placé à 40 cm dans un collimateur

de plomb d'épaisseur 5 cm et avec un écran de protection de 0,5 cm. Les barres noires verticales indiquent la zone temporelle du bruit de fond aléatoire et les barres rouges celle du signal du colis.

En plaçant le seuil de détection à 790 keV, le bruit de fond aléatoire dû à l'émission gamma du colis peut être en grande partie éliminé sans perte d'information sur le signal utile. L'amélioration du rapport signal sur bruit est illustrée en Figure IV - 12.

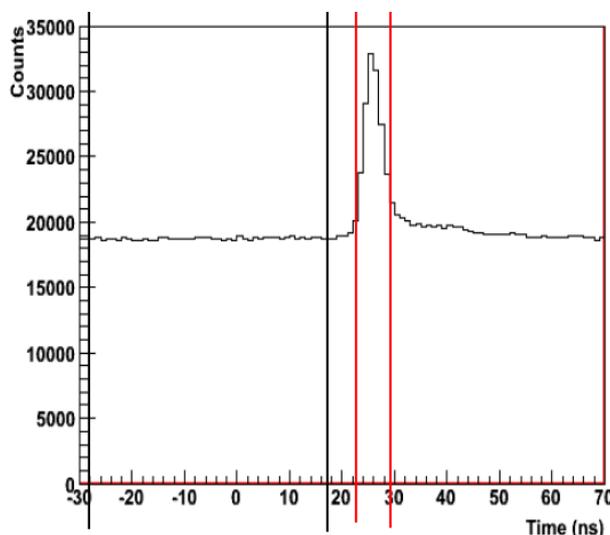


Figure IV - 12. Spectre de temps de vol du colis CBF-C'2 avec le bruit de fond aléatoire dû aux rayonnements gamma émis dans le colis et avec un seuil de coupure à 790 keV.

L'émission neutronique du CBF-C'2 simulée est de $\sim 7 \cdot 10^5$ n/s. Le taux de comptage du détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ dû à ces émissions neutroniques, calculé de la même manière qu'au paragraphe 3.1.1, est de ~ 43 coups/s, ce qui indique que la contribution du bruit de fond neutronique dû au colis lui-même est négligeable. Le spectre du bruit de fond obtenu ainsi que sa contribution au spectre de temps de vol sont présentés en Figure IV - 13.

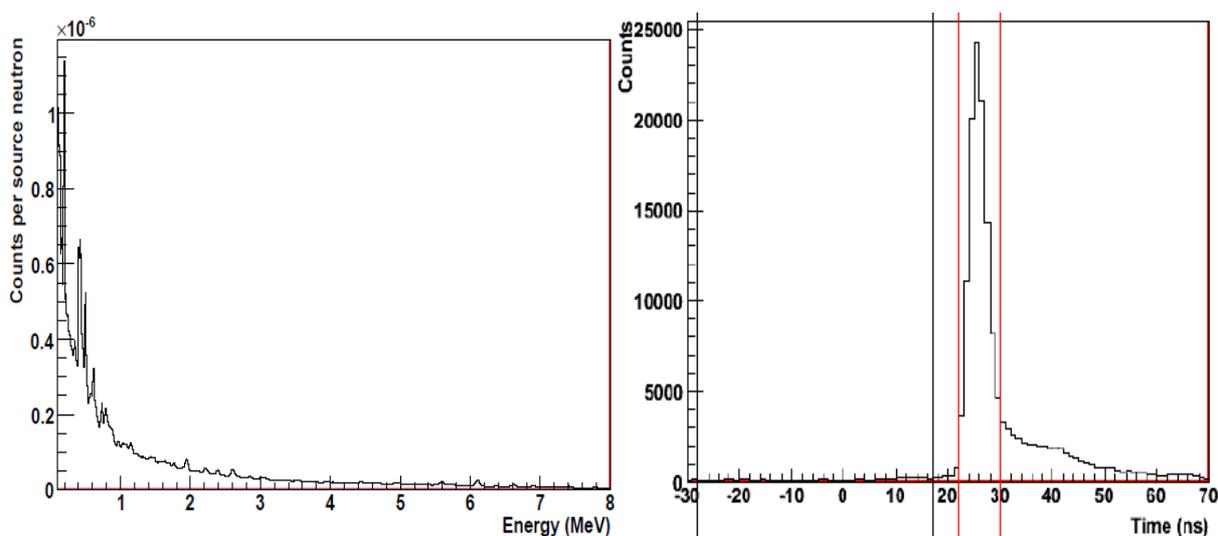


Figure IV - 13. Spectre du bruit de fond dû à l'émission neutronique du colis et spectre de temps de vol (avec ce bruit de fond) pour un détecteur placé à 40 cm. Les barres noires représentent le bruit de fond et les barres rouges déterminent le signal du CBF-C'2.

3.2.2 Estimation du bruit de fond dû au générateur

L'écran autour du générateur est le même qu'au paragraphe 3.1.2, c'est-à-dire une sphère d'épaisseur 60 cm en polyéthylène (CH₂)_n. On reprend également la méthode décrite au paragraphe 3.1.1 pour estimer le taux de comptage dans le détecteur LaBr₃(Ce) avec une source neutronique, conduisant ici à $6,40 \cdot 10^3$ coups/s pour celui à 150° proche du générateur, ce qui est du même ordre de grandeur qu'avec le colis d'enrobé bitumineux ($5,22 \cdot 10^3$ coups/s). Le spectre du bruit de fond aléatoire dû à la source neutronique de 14 MeV, ainsi que le spectre de temps de vol en tenant compte de ce bruit de fond, sont présentés en Figure IV - 14, montrant un bon rapport signal sur bruit. En plaçant le seuil de coupure en énergie à 790 keV, ce rapport est encore amélioré, voir Figure IV - 15.

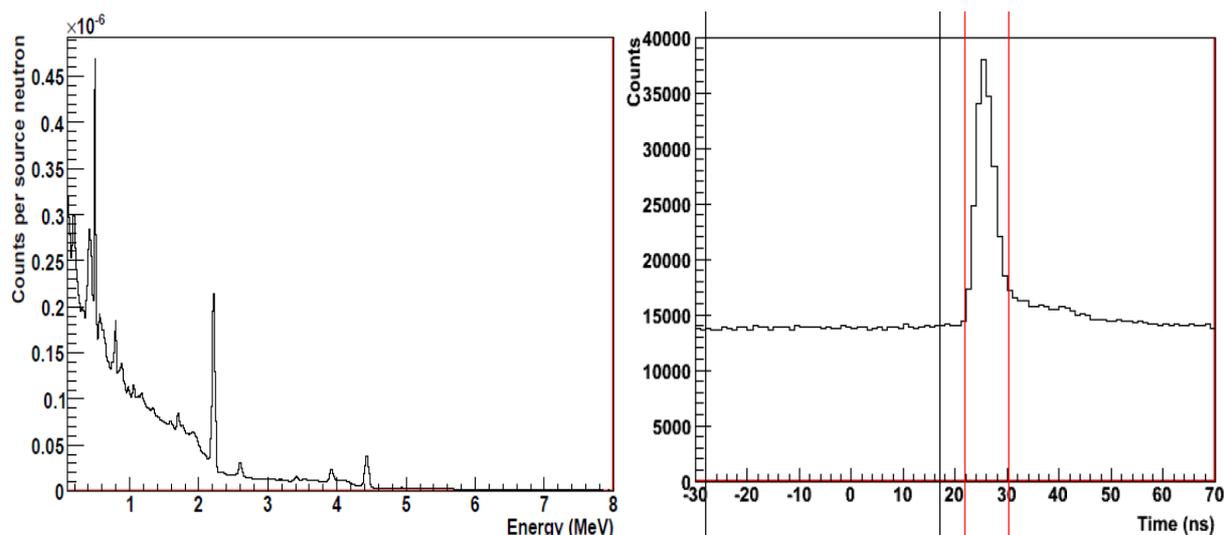


Figure IV - 14. Spectre en énergie du bruit de fond aléatoire dû au générateur et spectre de temps de vol (avec ce bruit de fond) pour un détecteur LaBr₃(Ce) placé à 40 cm du colis CBF-C'2. Les barres verticales noires encadrent la zone du bruit de fond et les barres rouges celle du signal du colis.

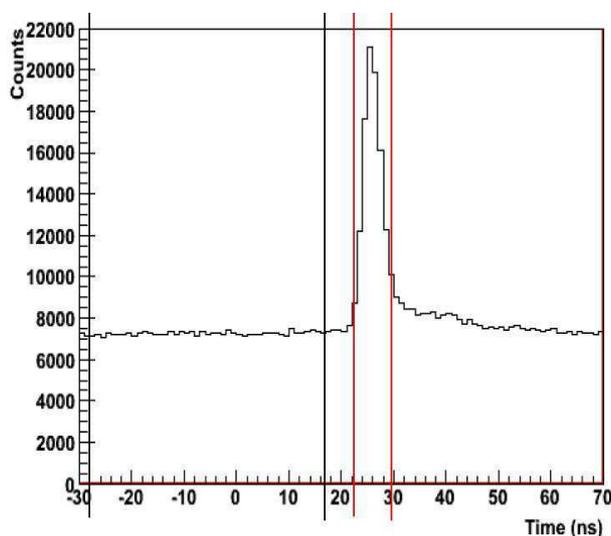


Figure IV - 15. Spectre de temps de vol du colis CBF-C'2 avec le bruit de fond aléatoire total pour un seuil de coupure en énergie à 790 keV.

Le bruit de fond aléatoire total dû à l'émission neutronique et photonique du colis ainsi qu'à l'émission neutronique du générateur est présentée en Figure IV - 16, avant et après avoir placé le seuil en énergie à 790 keV. Il est du même ordre que celui dû à la seule émission gamma du colis, voir Figure IV - 11.

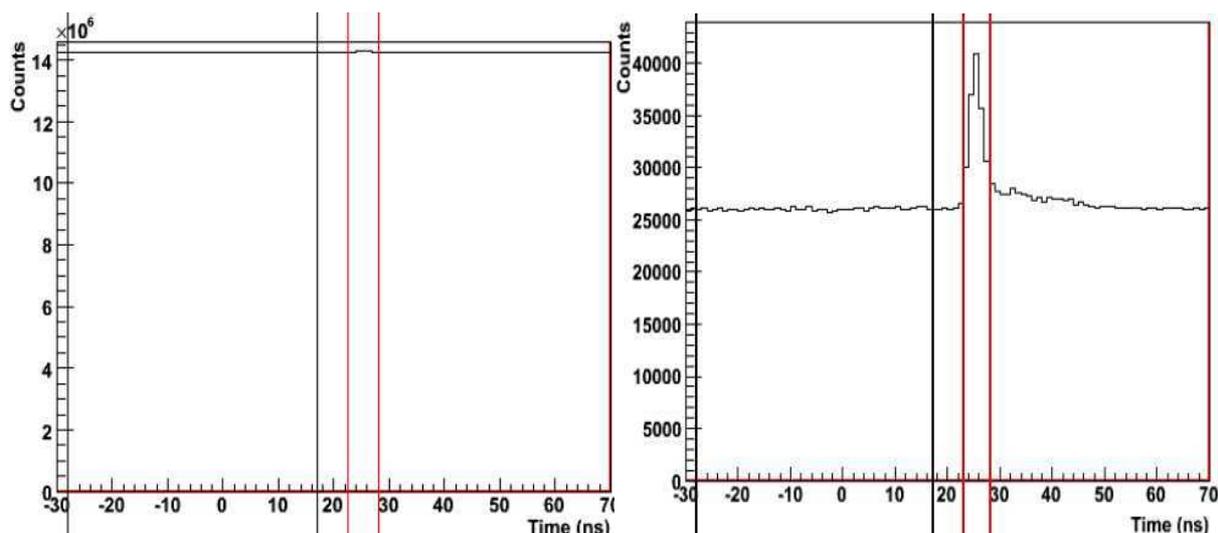


Figure IV - 16. Spectres de temps de vol du colis CBF-C'2 avec le bruit de fond aléatoire total pour un seuil de coupure en énergie de 100 keV (à gauche) et 790 keV (à droite).

3.2.3 Fût de 870 L

3.2.3.1 Bruit de fond dû à l'émission gamma et neutrons du colis

Ce fût est caractérisé par une activité moins élevée et donc une émission gamma de l'ordre de $10^{11} \gamma \cdot s^{-1}$ plus faible que celle des colis précédents. Les principales émissions sont présentées dans le Tableau 7.

Tableau 7. Principales émissions gamma simulées dans le colis de 870 L.

Isotopes	Energie (MeV)	Emission ($\gamma \cdot s^{-1}$)
^{241}Am	0,059	$\sim 10^{11}$
^{137}Cs	0,661	$\sim 10^{10}$
^{241}Am	0,026	$\sim 10^9$
^{241}Am	0,033	$\sim 10^8$
^{243}Am	0,074	$\sim 10^8$
^{241}Am	0,043	$\sim 10^8$
^{60}Co	1,332	$\sim 10^8$
^{60}Co	1,173	$\sim 10^8$
^{134}Cs	0,605	$\sim 10^8$
^{134}Cs	0,796	$\sim 10^8$

Pour de telles émissions gamma, dont celles de l'Am à très faible énergie sont arrêtées dans le liant hydraulique qui entoure le déchet (voir Figure IV - 17), le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ peut être placé à 10 cm du colis où sont taux de comptage est de $\sim 5 \cdot 10^4$ coups/s. Le taux d'empilement correspondant est négligeable ($\sim 0,4\%$).

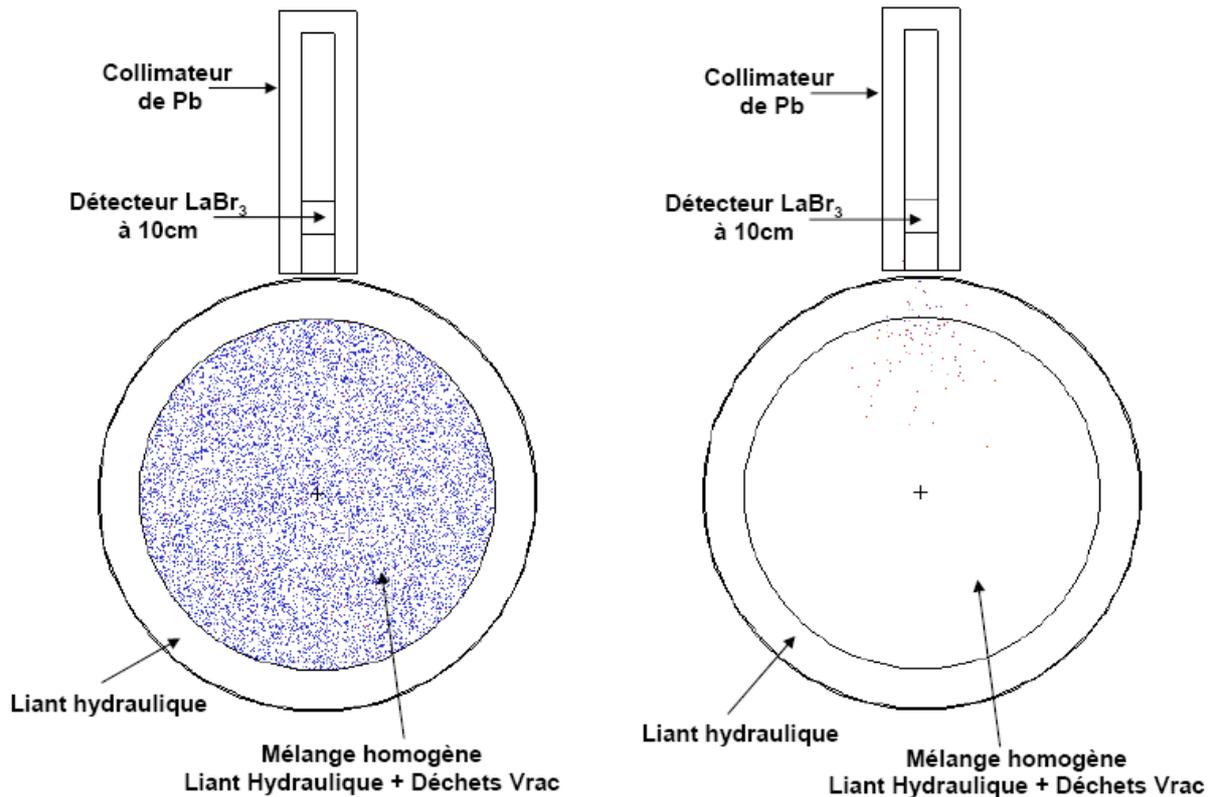


Figure IV - 17. Visualisation avec MCNP Vised des lieux d'émission des photons source (à gauche) et de la provenance des rayonnements gamma détectés (à droite). Les points rouges représentent l'énergie maximale (1,332 MeV) et les points bleus correspondent à l'énergie minimale (0,53 MeV).

La Figure IV - 18 présente le spectre du bruit de fond dû à l'activité gamma du colis et sa faible contribution au spectre de temps de vol. L'angle total d'ouverture du faisceau conique de neutrons marqués est de 7,24° pour cette simulation.

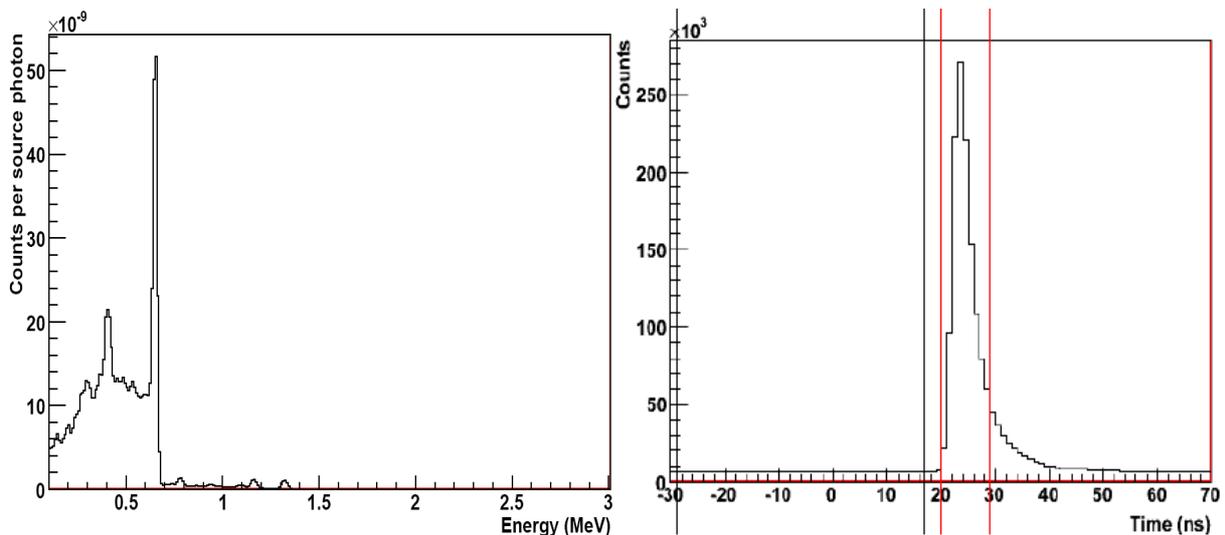


Figure IV - 18. Spectre du bruit de fond dû à l'émission gamma du colis et spectre de temps de vol (avec le bruit de fond gamma du colis) pour un détecteur placé à 10 cm dans un collimateur de plomb d'épaisseur 5 cm et avec un écran de protection de 0,5 cm. Les barres noires verticales encadrent la zone du bruit de fond et les barres rouges celle du signal du colis.

Pour le conteneur en acier de 870 L, l'émission neutronique totale simulée est de $\sim 2 \cdot 10^6$ n/s. La méthode de calcul est toujours la même qu'au paragraphe 3.1.1 et le taux de comptage

obtenu est de $\sim 3.10^2$ coups/s. Le spectre correspondant est présenté dans la Figure IV - 19, ainsi que sa contribution au signal au spectre du TOF du signal utile.

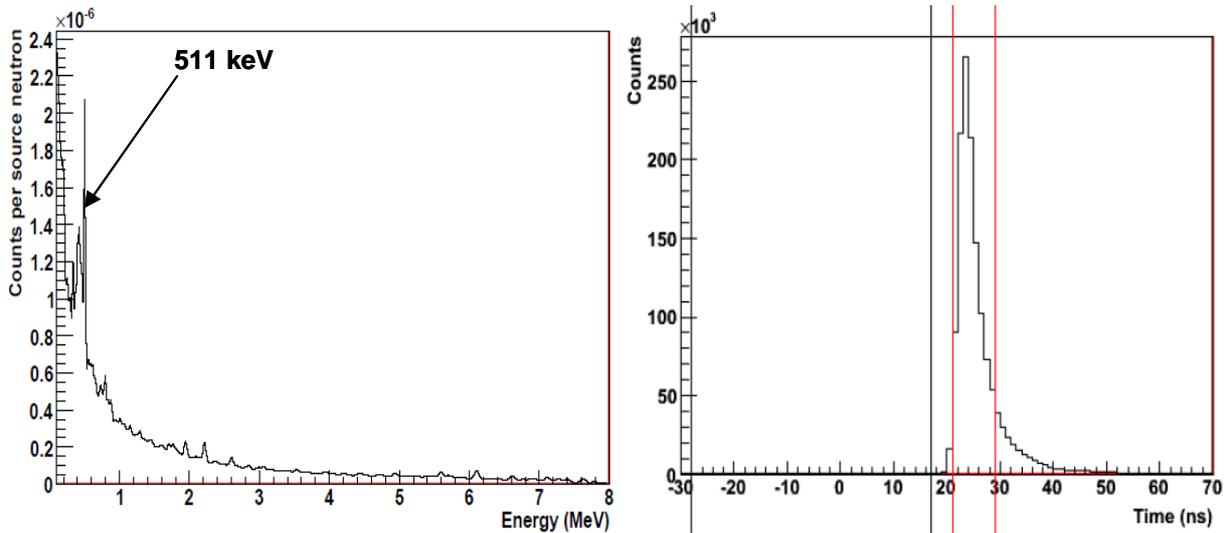


Figure IV - 19. Spectre du bruit de fond dû à l'émission neutronique du colis et celui de temps de vol (avec ce bruit de fond) pour un détecteur placé à 10 cm. Les barres noires délimitent la zone le bruit de fond et les barres rouges celle du signal du conteneur de 870 L.

3.2.3.2 Estimation du bruit de fond dû au générateur de neutrons

Le taux de comptage du détecteur à 10 cm du colis dû au générateur de neutrons de 14 MeV entouré d'une sphère de polyéthylène de 60 cm de rayon, estimé comme précédemment expliqué au paragraphe 3.1.1, est de $4,80.10^3$ coups/s, toujours du même ordre que pour les colis bitume et CBF-C'2 ($5,22.10^3$ et $6,40.10^3$ coups/s respectivement). Le spectre du bruit aléatoire qui en résulte et sa contribution au spectre de temps de vol sont présentés en Figure IV - 20.

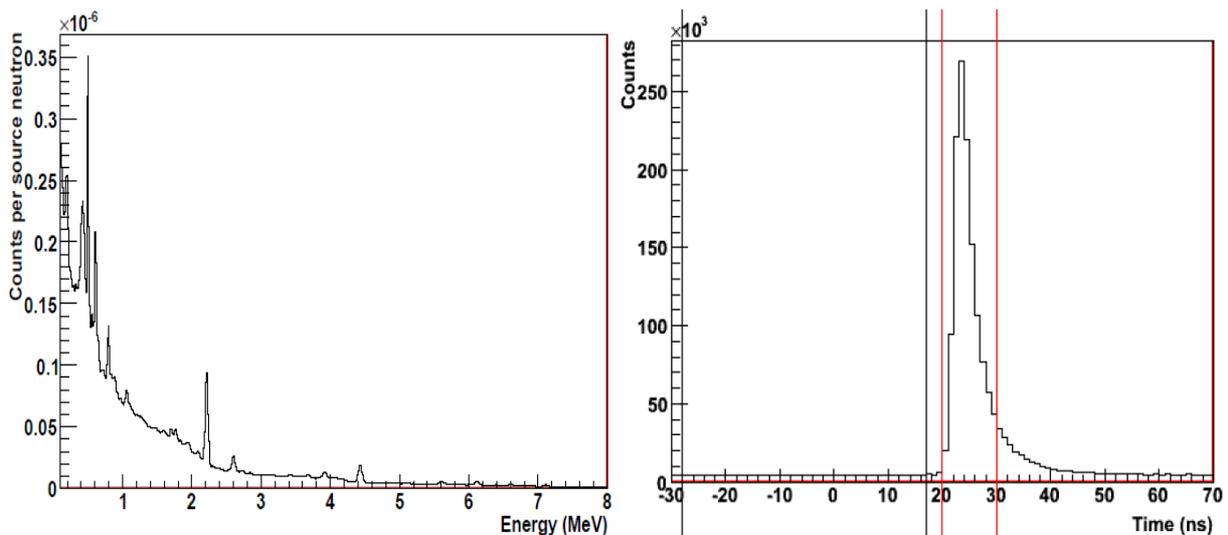


Figure IV - 20. Spectre gamma du bruit de fond aléatoire et spectre de temps de vol (avec ce bruit de fond) pour un détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ placé à 10 cm du colis de 870 L. Les barres verticales noires encadrent la zone du bruit de fond et les barres rouges celle du signal du colis.

Du fait de la faible émission neutronique et photonique du colis, et grâce à l'efficacité de l'écran en polyéthylène autour du générateur, le bruit de fond aléatoire total présenté en Figure IV - 21 avec le seuil en énergie à 790 keV est négligeable.

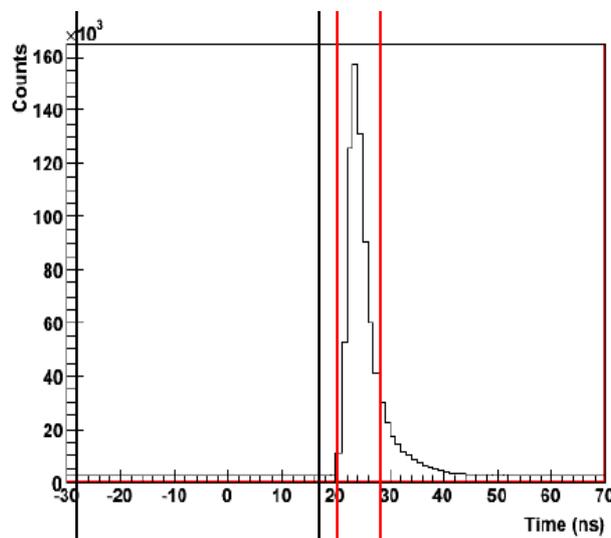


Figure IV - 21. Spectre de temps de vol du conteneur de 870 L avec le bruit de fond aléatoire total pour un seuil en énergie à 790 keV.

4 Caractérisation élémentaire de zones d'intérêt dans les colis

Dans ce qui suit, la caractérisation élémentaire d'objets étrangers ou d'étuis présents dans les colis de déchets en différentes positions est étudiée. Une caractérisation physique des colis par radiographie et tomographie γ ou X est supposée avoir été réalisée au préalable pour localiser les zones d'intérêt à interroger à l'intérieur des colis de déchets. C'est en effet dans le cadre d'un couplage avec l'imagerie photonique que la technique de la particule associée peut être utilisée de façon optimale en apportant des informations complémentaires sur la composition élémentaire des objets repérés par imagerie.

4.1 Etude du fût d'enrobé bitumineux

Une poche d'eau (sphère de 10 cm de diamètre) et des blocs cylindriques en fer ou aluminium (hauteur et diamètre de 10 cm) à différentes profondeurs à l'intérieur du colis d'enrobé bitumineux ont été étudiés afin de les identifier.

4.1.1 Zones d'intérêt situées à la périphérie du fût

Les objets à identifier sont de petites dimensions. L'ouverture angulaire totale du faisceau de neutrons signés est de $4,3^\circ$, ce qui correspond à un cercle de diamètre 5 cm au centre du colis situé à 150 cm de la cible de tritium où sont émis les neutrons du générateur. Les collimateurs sont orientés de façon à viser la zone d'intérêt, voir Figure IV - 22. Le détecteur à 150° permet d'enregistrer le plus grand nombre de coups et offre la meilleure sensibilité.

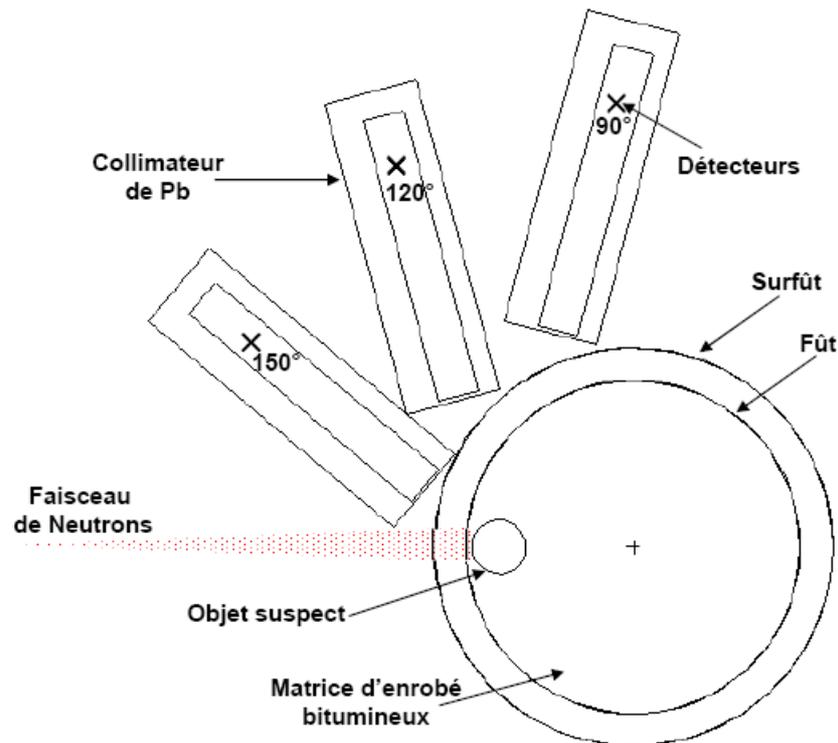


Figure IV - 22. Dispositif de détection pour un objet situé au bord du fût d'enrobé bitumineux.

En prenant en compte l'émission neutronique maximale de 2.10^8 n/s accessible avec un tube à articule associée, une émission gamma et neutronique du colis de $\sim 10^{12}$ γ /s et $\sim 3.10^5$ n/s, une durée d'acquisition de 60 minutes, les spectres incluant les fluctuations statistiques ont été établis pour les différents cas étudiés.

Une mesure de référence doit d'abord être réalisée dans une zone de visée où ne se trouve pas l'objet à inspecter, après une rotation du colis, afin d'obtenir le spectre intrinsèque de la matrice d'enrobé bitumineux. Le spectre de temps de vol correspondant à cette inspection avec un seuil d'énergie de 790 keV est présenté en Figure IV - 23. Les lignes noires verticales montrent la zone du bruit de fond aléatoire qui doit être soustrait du signal correspondant au colis bitumineux qui se trouve entre les deux barres rouges. La déconvolution du spectre gamma du colis sur une base de signatures élémentaires (voir en annexe C la base calculée pour le détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ 3"×3") permet d'estimer le nombre de coups apporté par chaque élément au spectre gamma. Les fractions de coups des éléments majoritaires sont indiquées sur la figure. Il convient de noter la présence de carbone, élément majoritaire dans l'enrobé bitumineux (fraction massique de ~ 48 %), d'oxygène (~ 16 % massiques de l'enrobé), de fer (~ 4 % massiques de l'enrobé et présence du fût en fer en périphérie) et d'aluminium (fraction de coups statistiquement non significative, l'aluminium représentant seulement ~ 1 % massique de la matrice).

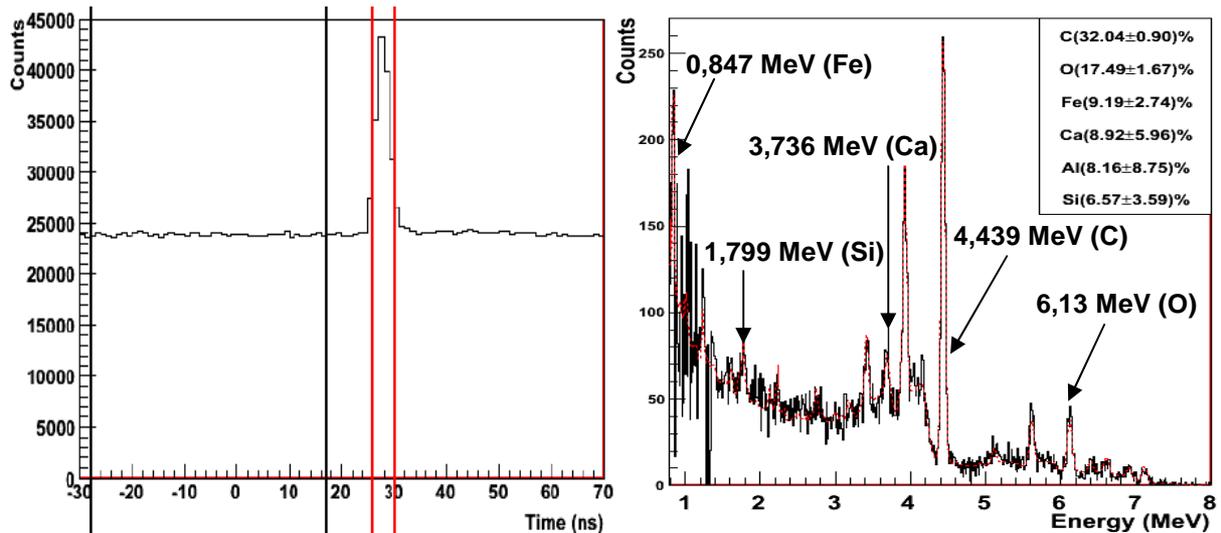


Figure IV - 23. Spectre de temps de vol du colis d'enrobé bitumineux et spectre gamma d'une zone d'intérêt située en périphérie du fût (26-30 ns) après soustraction du bruit aléatoire.

Le bloc d'aluminium de densité 2,7 a été placé en périphérie du fût d'enrobé bitumineux. L'imagerie photonique a permis de détecter le bloc du fait de sa différence de densité avec la matrice d'enrobé bitumineux (environ 1,3) et de le localiser précisément par tomographie. La déconvolution élémentaire du spectre gamma correspondant à la zone temporelle du bloc d'aluminium, voir Figure IV - 24, indique un pourcentage d'aluminium très supérieur à la fraction non significative trouvée en l'absence du bloc (~ 69 % contre 8 %). La présence du bloc en périphérie de colis est donc confirmée sans ambiguïté.

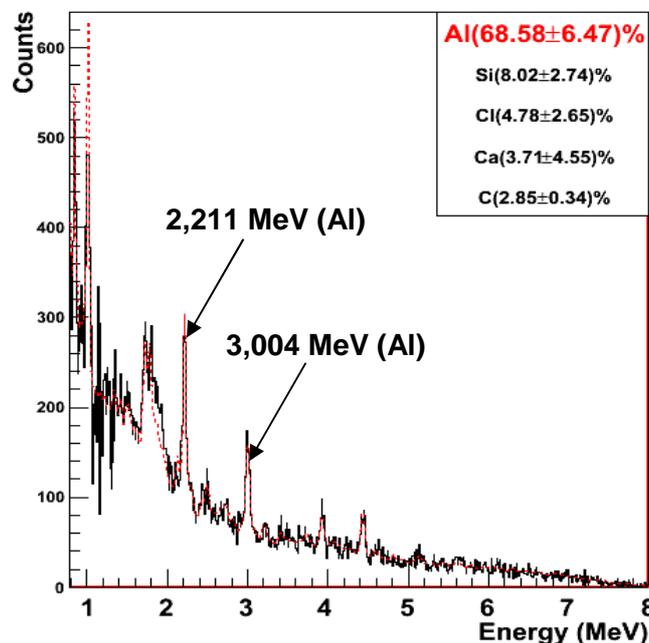


Figure IV - 24. Spectre en énergie de la zone temporelle correspondant au bloc d'aluminium en périphérie du fût bitumineux et pourcentages de coups élémentaires dans le spectre obtenus par l'algorithme de déconvolution.

La simulation avec le bloc de fer de densité 7.87 en périphérie du colis d'enrobé bitumineux conduit au spectre de la Figure IV - 25, dont la déconvolution révèle aussi très clairement la présence du bloc de fer avec un pourcentage de ~ 53 % contre 19 % dans la matrice d'enrobé bitumineux seul.

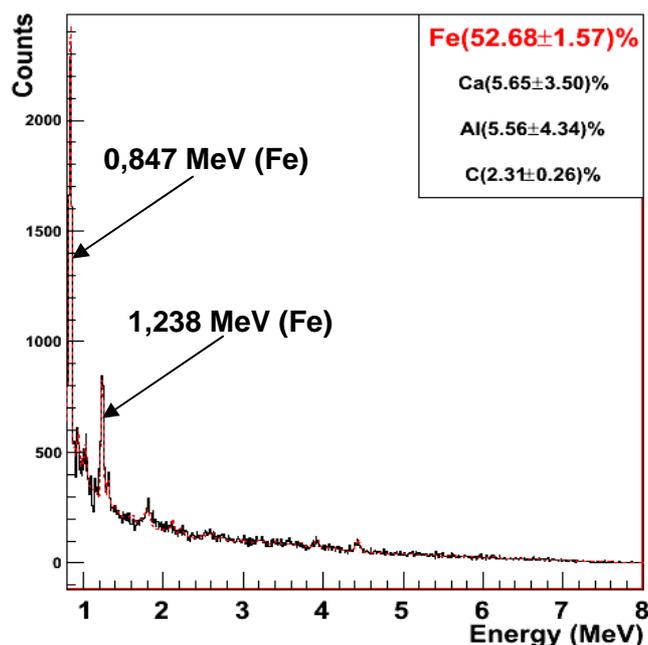


Figure IV - 25. Spectre gamma de la zone temporelle correspondant au bloc de fer en périphérie du fût bitumineux et pourcentages de coups élémentaires obtenus par l'algorithme de déconvolution.

Pour la poche d'eau périphérie du colis d'enrobé, le spectre en énergie présenté en Figure IV - 26 met en évidence la présence d'un objet riche en oxygène avec $\sim 54\%$ contre 17% pour la matrice d'enrobé seule. Il subsiste une fraction significative de carbone due aux zones voisines de l'enrobé et de fer due au fût en métal puisque la poche d'eau est ici située en périphérie du colis. Il existe un recouvrement des zones dû à la diffusion des neutrons dans le surfût et dans le fût, ainsi qu'à la résolution temporelle du système d'acquisition prise en compte dans les simulations (largeur totale à mi hauteur de 1.32 ns pour le détecteur LaBr_3 3"×3" [118])

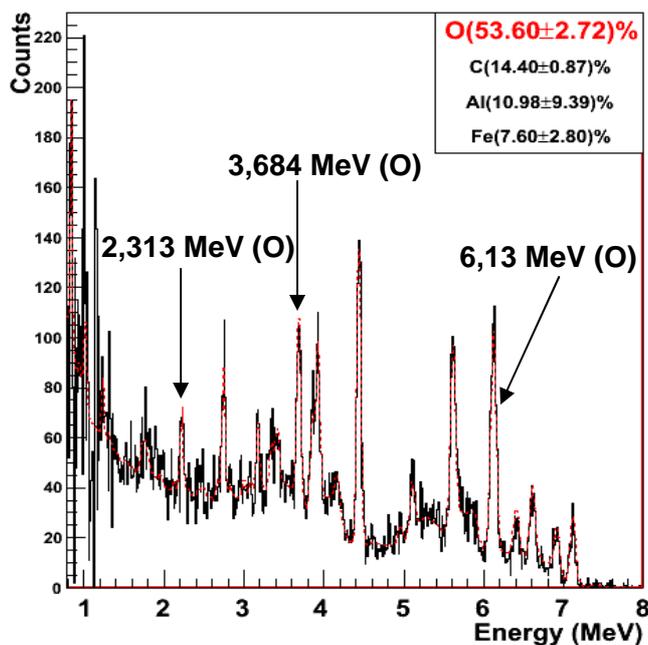


Figure IV - 26. Spectre gamma de la zone temporelle correspondant à la poche d'eau en périphérie du fût bitumineux et pourcentages de coups élémentaires obtenus par l'algorithme de déconvolution.

4.1.2 Zones d'intérêt situées à mi-rayon du fût

L'angle d'ouverture total du faisceau est ici fixé à 4° pour ne viser que la zone d'intérêt à mi-rayon du colis d'enrobé bitumineux. La Figure IV - 27 montre que le fait d'orienter les collimateurs pour viser cette zone à interroger permet une meilleure détection car seulement une petite partie du colis est vue par le détecteur. Dans ce cas aussi, le détecteur à 150° apporte la meilleure information sur la zone interrogée.

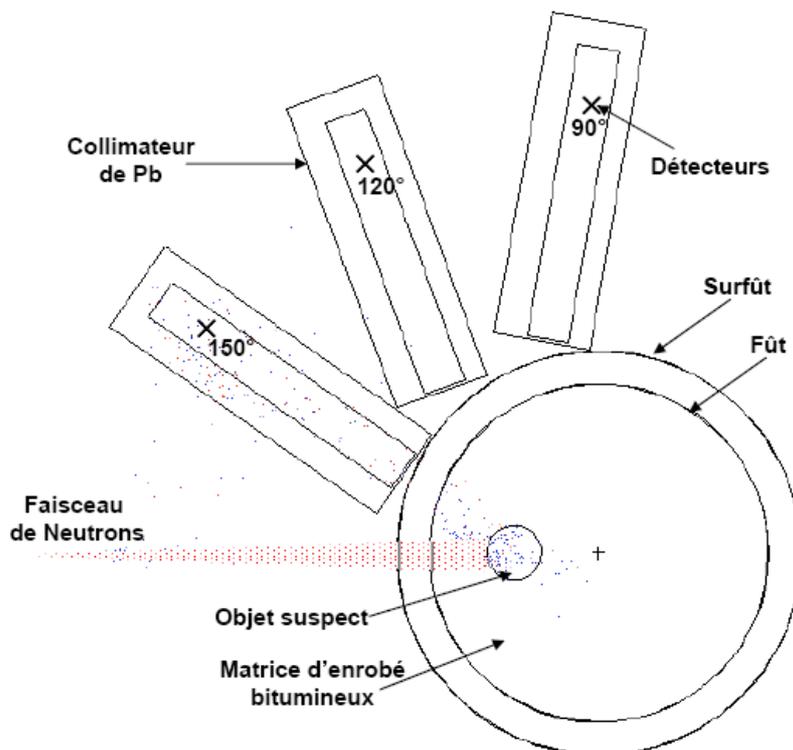


Figure IV - 27. Dispositif de détection pour le colis d'enrobé bitumineux dans le cas d'un objet suspect à mi-rayon.

Le spectre gamma de la zone temporelle du bloc d'aluminium à mi-rayon du colis bitumineux (28 à 32 ns) est présenté en Figure IV - 28. L'aluminium est détecté avec un pourcentage de coups de $\sim 41\%$ alors qu'il est absent du spectre de l'enrobé seul. L'incertitude sur la présence de cet élément peut être réduite en améliorant la statistique par utilisation de plusieurs détecteurs à 150° , comme nous le verrons plus loin sur des cas plus critiques en termes de fluctuations statistiques.

Il faut noter que des études antérieures avaient montré l'intérêt des détecteurs à 90° et 120° dans certaines configurations pour améliorer le rapport entre le signal de la zone d'intérêt et le bruit dû à la matrice, selon l'énergie des rayonnements gamma des éléments recherchés [120]. Cependant, l'étude ici réalisée en tenant compte de l'activité des colis montre dans tout les cas que le détecteur situé à 150° offre la meilleure sensibilité, grâce au collimateur qui permet de viser plus précisément la zone d'intérêt.

Pour le bloc de fer à mi-rayon dans le colis bitumineux, le spectre en énergie présenté en Figure IV - 28 montre la présence des pics de fer à 0,847 MeV et 1,238 MeV, et l'algorithme de déconvolution détecte le fer avec un pourcentage de coups de $\sim 32\%$ comme étant l'élément majoritaire dans la zone interrogée, contre une faible fraction non significative du

point de vue statistique dans la même zone pour l'enrobé bitumineux seul. Les rayonnements gamma du fer sont fortement atténués dans la matrice d'enrobé en raison de leur faible énergie, ce qui explique cette faible détection non significative du fer dans l'enrobé pur contrairement au cas en périphérie. La proportion de carbone détecté est plus grande que dans le cas du bloc de fer en périphérie à cause de la diffusion neutronique dans le colis, mais elle reste faible.

La déconvolution du spectre en énergie d'une poche d'eau à mi-rayon, également présenté en Figure IV - 28, montre que la proportion de rayonnements gamma caractéristiques de l'oxygène est de ~ 38 % alors qu'elle n'est que de ~ 16 % dans l'enrobé bitumineux. Malgré la présence de carbone dans la zone de l'eau due à la diffusion neutronique, la présence d'un objet riche en oxygène est clairement mise en évidence. Cette information, corroborée par une densité légèrement inférieure à celle de l'enrobé (1 vs. 1,3) mesurée par tomographie photonique, peut permettre de conclure à la présence d'eau avec un bon niveau de confiance.

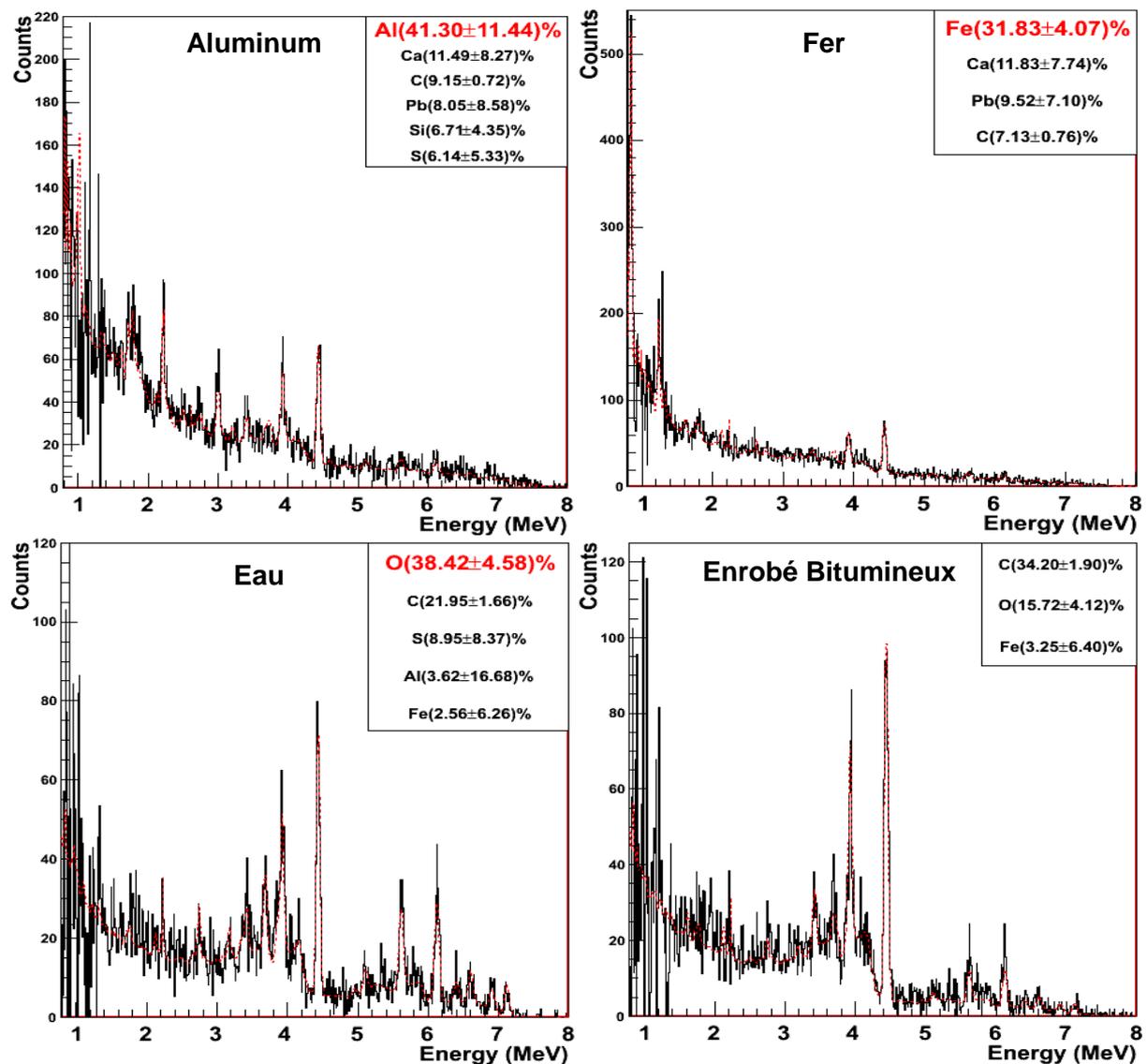


Figure IV - 28. Spectres gamma correspondants au bloc d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite), à la poche d'eau (en bas à gauche) et au bitume seul (en bas à droite) à mi-rayon du colis d'enrobé bitumineux.

4.1.3 Zones d'intérêt au centre du fût

Afin d'interroger une zone d'intérêt au centre du colis, l'angle d'ouverture total du faisceau est fixé à $3,6^\circ$. Les détecteurs sont orientés pour viser le centre du colis comme le montre la Figure IV - 29. La diffusion des neutrons réduit ici très fortement la sélectivité spatiale et conduit à interroger des zones de la matrice située autour de l'objet.

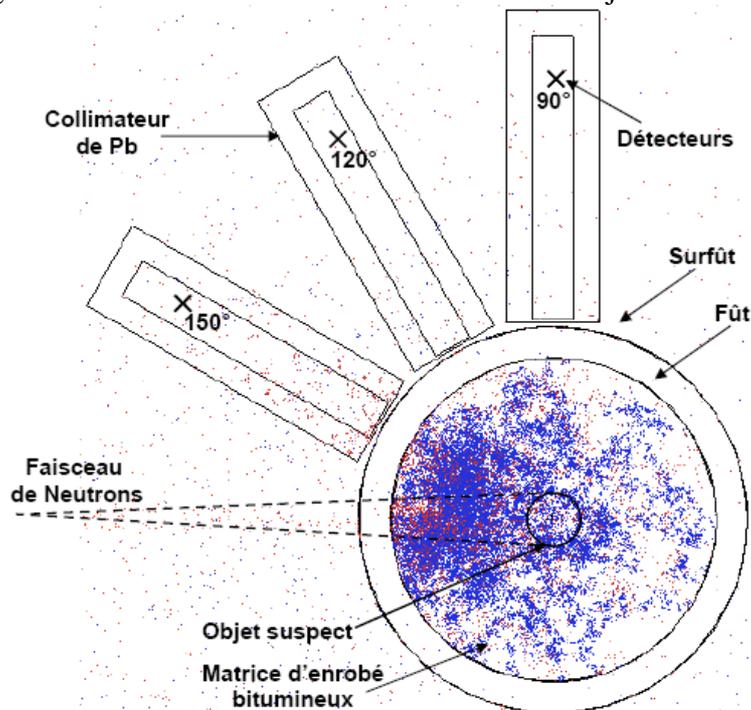


Figure IV - 29. Dispositif de détection pour le colis d'enrobé bitumineux dans le cas d'une zone d'intérêt au centre du colis, et lieux d'interaction des neutrons dans la matrice obtenus avec MCNP VisEd. Les points rouges représentent l'énergie maximale des neutrons (14 MeV) et les points bleus correspondent à une énergie minimale de 10 meV.

En plus de la perte de sélectivité spatiale due à la diffusion neutronique, la forte émission gamma du colis d'enrobé bitumineux ($\sim 10^{12} \gamma/s$) rend impossible la détection des blocs métalliques ou de la poche d'eau à cause du faible rapport signal sur bruit au centre du colis. Le cas d'une activité 100 fois plus faible a donc été étudié, mais même avec une émission de $\sim 10^{10} \gamma/s$, il reste difficile de caractériser les zones interrogées à cause des importantes fluctuations statistiques due à la très forte atténuation des rayonnements par la matrice. La Figure IV - 30 présente les spectres en énergie de la zone temporelle du bloc d'aluminium au centre (32 à 35 ns) avec l'émission gamma maximale du colis bitumineux et avec 1% de cette émission. Dans ces deux cas, l'incertitude statistique rend impossible la détection du bloc.

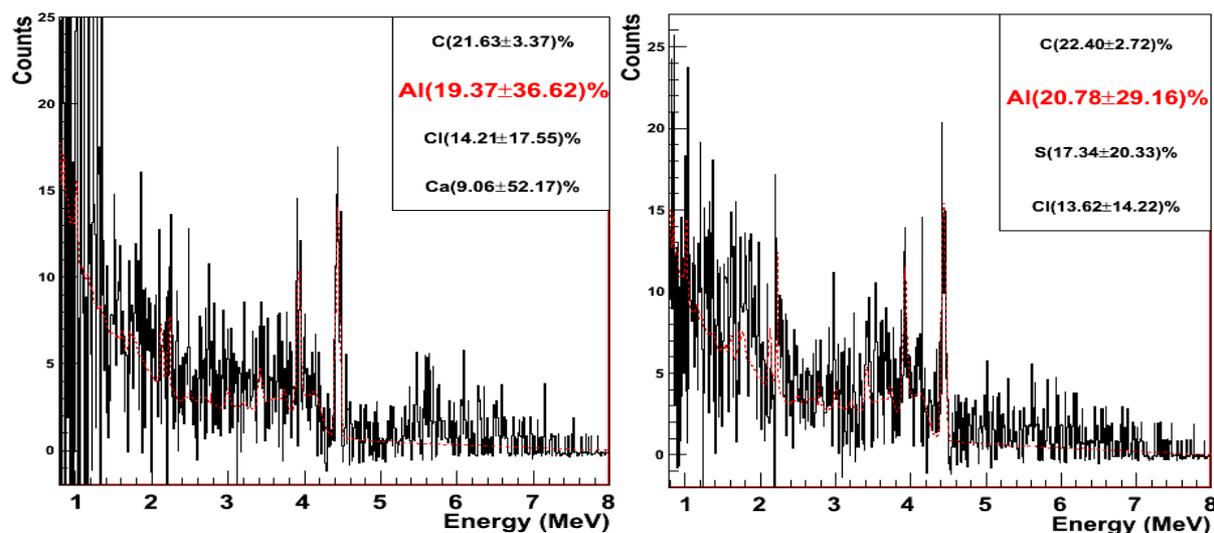


Figure IV - 30. Spectres en énergie correspondants au bloc d'aluminium avec une émission gamma maximale de $\sim 10^{12}$ γ/s (à gauche), et avec 1% de l'émission maximale soit $\sim 10^{10}$ γ/s (à droite).

Cependant, pour un système industriel, plusieurs détecteurs pourraient être mise en œuvre. Avec 10 détecteurs LaBr_3 3"×3" placés à 150° en couronne tout autour du faisceau de neutrons signés, et avec une émission gamma de $\sim 10^{10}$ γ/s , il est alors possible de caractériser avec une précision globalement satisfaisante la composition élémentaire des zones interrogées au centre du colis d'enrobé bitumineux, voir Figure IV - 31. Une autre alternative pour améliorer la précision statistique serait de rapprocher le détecteur du colis, ce qui est possible pour des activités de cet ordre. Cette option sera étudiée dans le cas du CBFC'2, voir paragraphe 4.2.

L'aluminium contribuant à $\sim 21\%$ en nombre de coups dans le spectre est ainsi détecté. Même si l'incertitude est élevée, la fraction détectée reste significative, et il sera aussi possible d'augmenter le temps de mesure (ici 60 min). Cet élément est absent du spectre de la matrice d'enrobé seul.

Pour le bloc de fer au centre du colis bitumineux, le spectre en énergie présenté sur la Figure IV - 31 montre la présence des pics caractéristiques à 0,847 MeV et 1,238 MeV, et l'algorithme de déconvolution détecte le fer avec $\sim 14\%$ du nombre de coups dans le spectre comme étant l'élément majoritaire dans la zone interrogée alors qu'il est absent du spectre de l'enrobé seul. La proportion de carbone venant de l'enrobé bitumineux est encore accrue par rapport au cas à mi rayon à cause de la diffusion neutronique et de l'atténuation plus grande dans le colis des rayonnements gamma de faible énergie du fer.

La déconvolution du spectre en énergie de la poche d'eau au centre du colis présenté en Figure IV - 31 montre une proportion de rayonnements gamma caractéristiques de l'oxygène de $\sim 28\%$ alors qu'elle n'est que de $\sim 14\%$ dans l'enrobé seul. Malgré la présence de carbone dans la zone de l'eau due à la forte diffusion neutronique et la présence d'une proportion significative d'oxygène dans la matrice d'enrobé bitumineux, il est possible de caractériser la présence d'un matériau riche en oxygène grâce au rapport des nombres de coups O/C qui est de 0,51 dans l'enrobé seul contre 1,22 avec la poche d'eau.

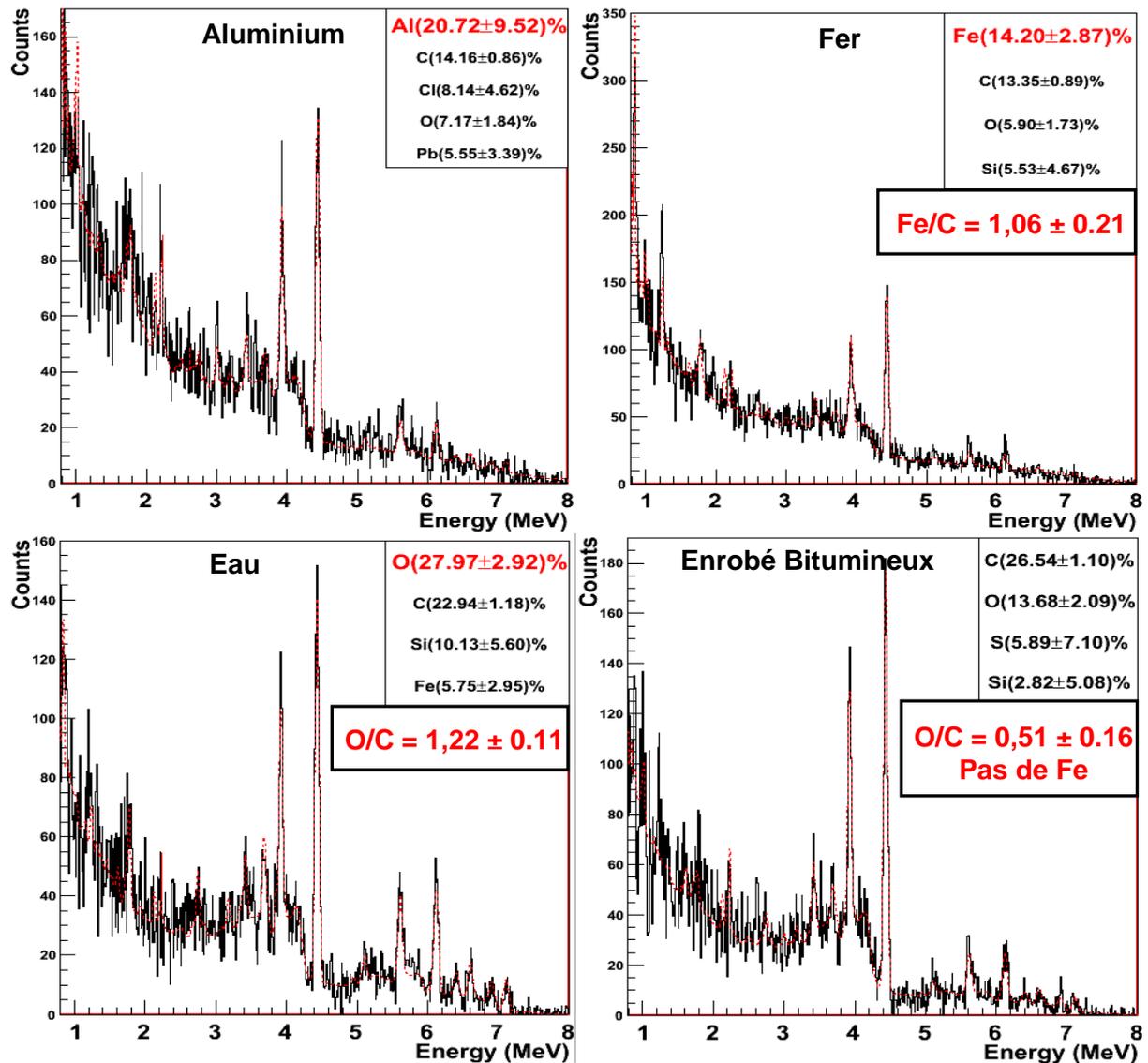


Figure IV - 31. Spectres en énergie correspondant au bloc d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite), à la poche d'eau (en bas à gauche) et au bitume seul (en bas à droite) au centre du colis d'enrobé bitumineux avec une émission gamma du colis de $\sim 10^{10}$ γ/s et avec 10 détecteurs $LaBr_3(Ce)$.

4.2 Etude du fût de béton fibres CBF-C'2

Afin d'identifier les déchets technologiques divers dans les étuis du colis de béton fibre, l'un des deux étuis de diamètre 30 cm, contenant du PVC, de l'aluminium ou encore du fer, a été interrogé. La taille du faisceau est adaptée au grand étui (en termes de diamètre) et par suite son ouverture totale est de $12,58^\circ$. Les collimateurs sont orientés de façon à viser la zone d'intérêt, voir Figure IV - 32. Le détecteur à 150° permet d'enregistrer le plus grand nombre de coups et offre la meilleure sensibilité.

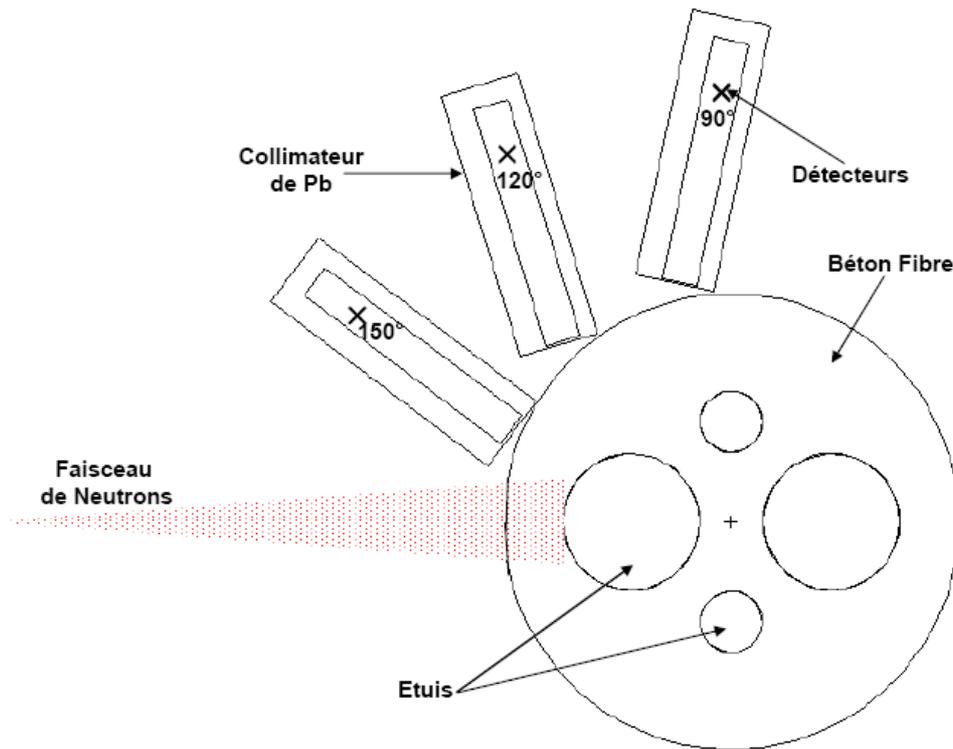


Figure IV - 32. Dispositif d'identification des déchets technologiques divers dans les étuis des colis du béton fibre.

Le premier étui modélisé est rempli d'aluminium pur de densité 2,7. La densité de l'aluminium est quasiment la même que celle du béton et la différence des sections efficaces de production gamma dans ces matériaux n'est pas suffisante pour différencier le signal dans le spectre de temps de vol. C'est donc l'imagerie photonique qui permet le repérage de la position de l'étui dans le colis de béton fibres. Le spectre de temps de vol correspondant à cette inspection avec un seuil d'énergie de 790 keV est présenté en

Figure IV - 33. Les lignes noires verticales montrent la zone du bruit du fond aléatoire qui doit être soustrait du signal correspondant à la matrice, qui se trouve entre les deux barres grises en pointillés. La déconvolution du spectre gamma de cette zone de béton fibres révèle principalement la présence d'oxygène, élément majoritaire dans cette matrice (~ 53 % massiques) et de silicium (~ 36 %), les autres éléments détectés étant non significatifs en terme d'incertitude.

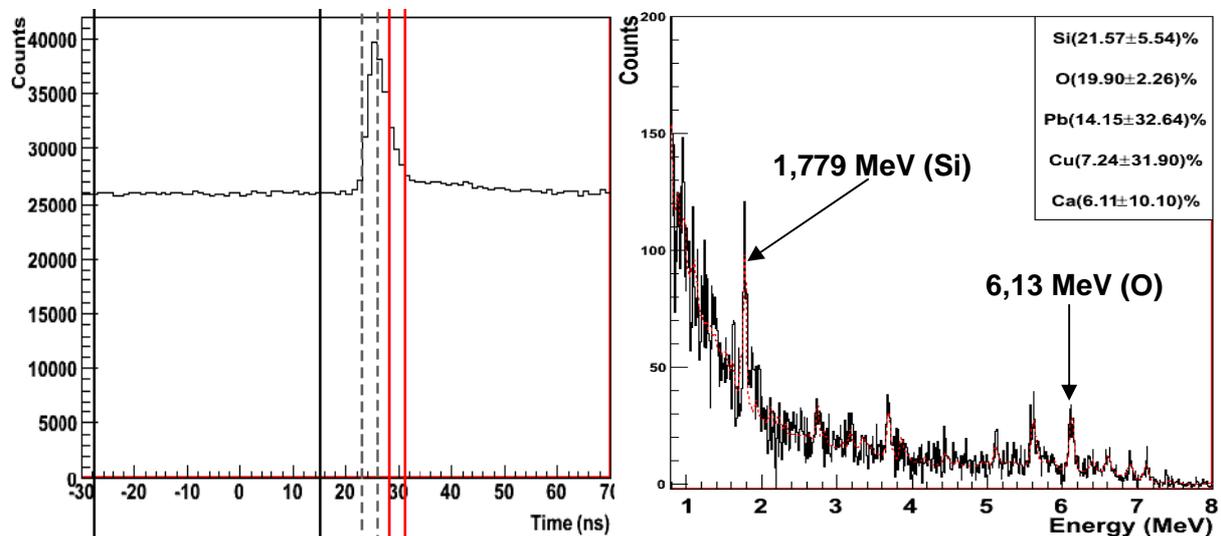
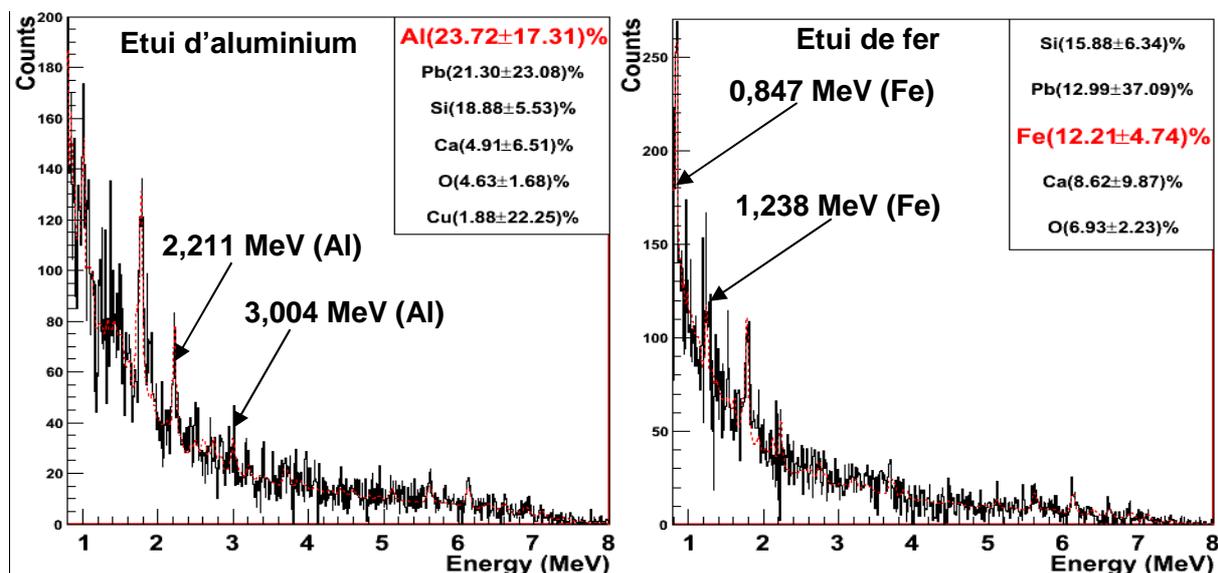


Figure IV - 33. A gauche, spectre de temps de vol du colis CBF-C'2 avec un grand étui rempli d'aluminium. Les barres verticales noires encadrent la zone du bruit de fond, les barres grises celle de la matrice du colis de béton fibres et les barres rouges correspondent au signal du grand étui contenant de l'aluminium. A droite, spectre gamma de la matrice de béton fibres située en périphérie du fût (22-25 ns) après soustraction du bruit aléatoire.

La déconvolution du spectre gamma de la zone de l'étui rempli d'aluminium, présenté sur la Figure IV - 34, indique une proportion de coups importante pour l'aluminium (~ 24 %) avec cependant une incertitude relativement élevée due aux importantes fluctuations statistiques et au fait que le pic de l'aluminium à 1,809 MeV est confondu avec celui du silicium à 1,779 MeV. L'aluminium est néanmoins détecté sans ambiguïté grâce à ses deux autres raies à 2,211 MeV et 3,004 MeV. Dans la zone de béton fibres sélectionnée, il n'y avait pas de coups attribués à l'aluminium.

Le spectre en énergie pour un étui rempli de fer de densité 7.87 est également présenté en Figure IV - 34. Le fer est identifié sans ambiguïté avec une fraction de coups de ~ 12 % tandis qu'il n'est pas détecté dans la zone du béton fibres. A la différence du fût d'enrobé bitumineux, il n'y a pas ici de fer dans la matrice de béton fibres ce qui facilite la détection de cet élément dans l'étui.

La déconvolution du spectre gamma correspondant à un étui rempli de PVC (C_2H_3Cl)_n de densité 1, présenté aussi en Figure IV - 34, montre que le nombre de coups attribués au chlore pour la zone de l'étui est de ~ 9 % mais avec une très grande incertitude due principalement aux fluctuations statistiques, rendant sa détection non significative.



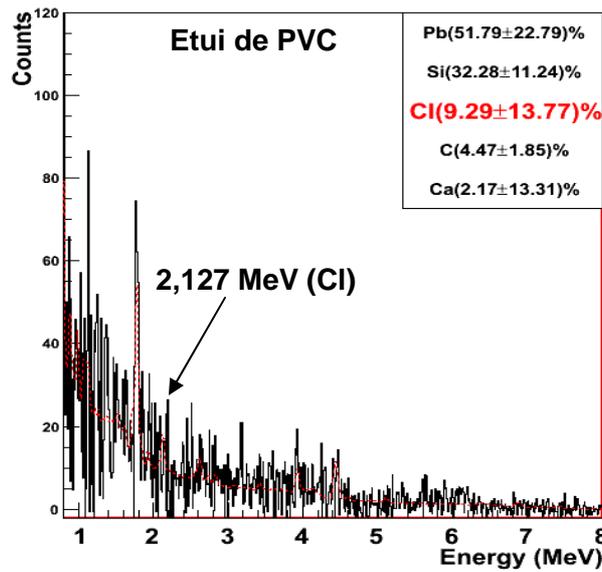
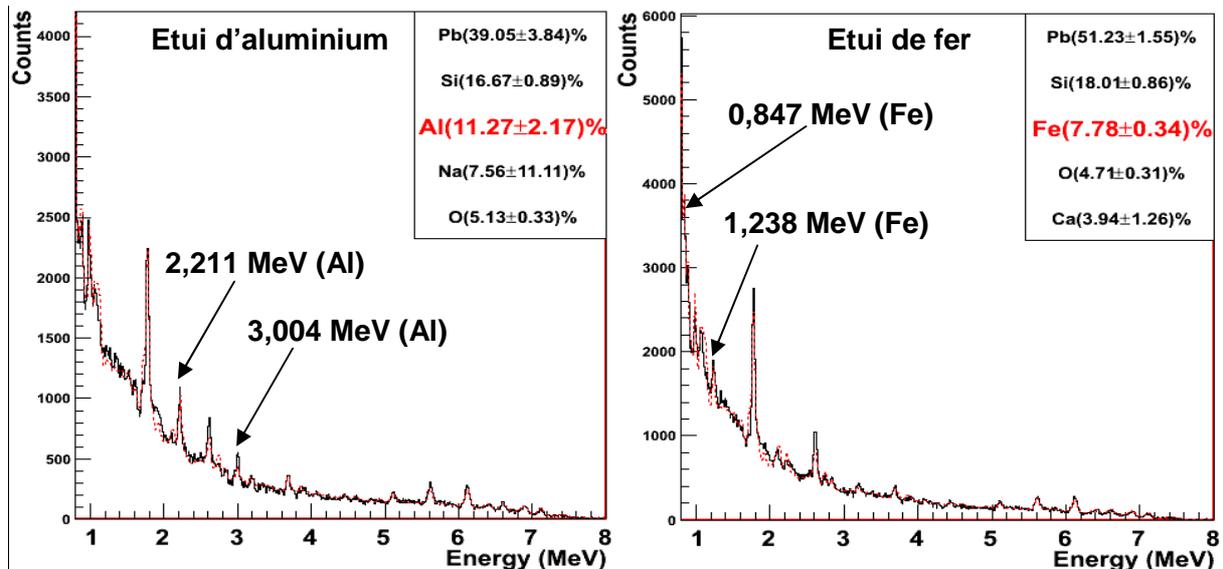


Figure IV - 34. Spectres gamma de la zone temporelle correspondant au grand étui rempli d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite) et de PVC (en bas) dans le colis de béton fibres avec une émission gamma de $\sim 10^{12}$ γ/s , et pourcentages de coups élémentaires obtenus par l'algorithme de déconvolution.

Cette incertitude est due en grande partie à la forte émission gamma du colis ($\sim 10^{12}$ γ/s). Comme pour le fût d'enrobé bitumineux, le cas d'une activité 100 fois plus faible a été étudié, soit $\sim 10^{10}$ γ/s . Avec cette émission gamma, le détecteur LaBr₃(Ce) peut être placé à 10 cm du colis, conduisant à un taux de comptage de $\sim 10^6$ coups/s et donc à un taux d'empilement voisin de 7 %. Les spectres en énergie correspondants sont présentés en Figure IV - 35. Le fer, l'aluminium et le chlore sont identifiés sans ambiguïté avec des proportions de coups de ~ 8 %, ~ 11 % et ~ 7 %, respectivement, et des incertitudes beaucoup plus faibles. Dans le spectre correspondant au béton fibres, le fer et l'aluminium sont détectés avec de très faibles pourcentages de coups et le chlore est absent du spectre.



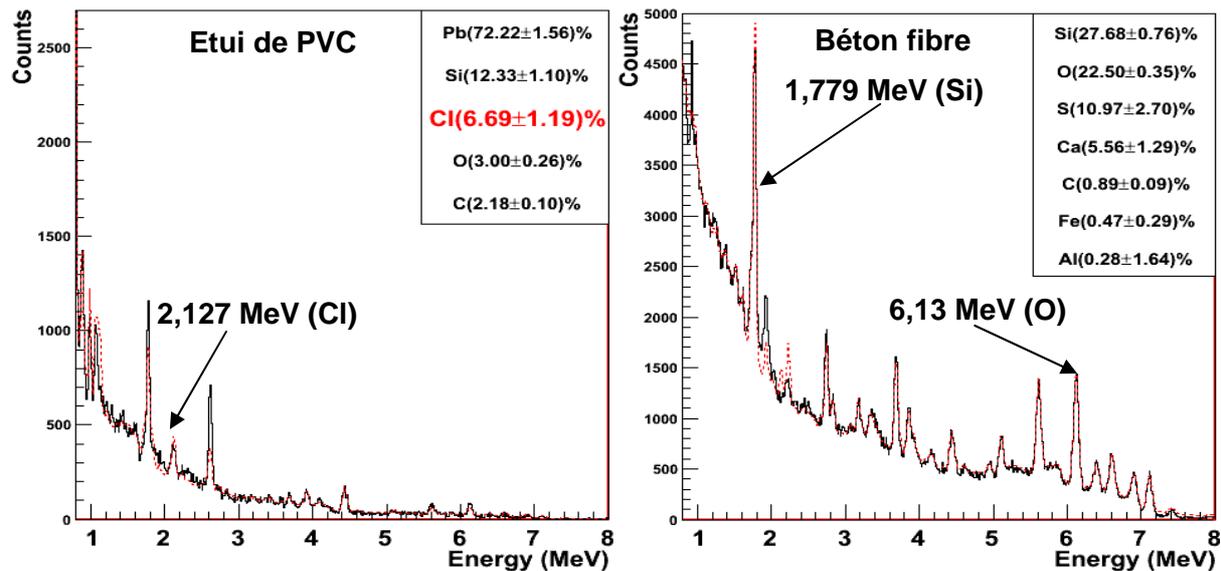


Figure IV - 35. Spectres gamma de la zone temporelle correspondant au grand étui rempli d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite) et de PVC (en bas à gauche), et celui de la matrice de béton fibres (en bas à droite), pour une émission gamma de $\sim 10^{10}$ γ/s , et pourcentages de coups élémentaires obtenus par l'algorithme de déconvolution.

Remarques.

- Une autre solution pour réduire les fluctuations statistiques est d'utiliser un plus grand nombre de détecteurs comme dans le cas du colis d'enrobé bitumineux. Il est tout à fait possible de combiner différentes options (rapprochement du détecteur, accroissement de leur nombre, temps de mesure plus long) selon l'activité du colis et les fluctuations statistiques observées.
- Le plomb est observé dans les spectres en raison de la rétrodiffusion de neutrons signés par le colis vers le collimateur, ce qui crée un signal coïncident dans la même fenêtre de temps de vol que l'étui (effet « fantôme »). Cet effet peut être réduit en éloignant le collimateur du colis de 10 cm. Un calcul a été réalisé pour un étui d'aluminium, montrant que le pourcentage de coups dus au plomb trouvé par l'algorithme de déconvolution reste significatif, environ 25 %. Pour pallier cet inconvénient, notamment si on recherche du plomb dans les colis, il conviendrait de prévoir un autre matériau pour les collimateurs.

4.3 Etude du fût de 870 L du CEA

La détection d'un bloc cylindrique d'aluminium (hauteur et diamètre de 20 cm), et celle d'un bloc moteur cubique d'arrête 20 cm, avec des parois en fer d'épaisseur 5 cm et contenant de l'huile, placés à différentes profondeurs à l'intérieur du colis de 870 L, ont été étudiées.

4.3.1 Zones d'intérêt situées à la périphérie du fût

L'ouverture angulaire totale du faisceau de neutrons signés est de $8,92^\circ$. Les collimateurs sont orientés de façon à viser la zone d'intérêt, voir Figure IV - 36. Le détecteur à 150° permet d'enregistrer le plus grand nombre de coups et offre la meilleure sensibilité.

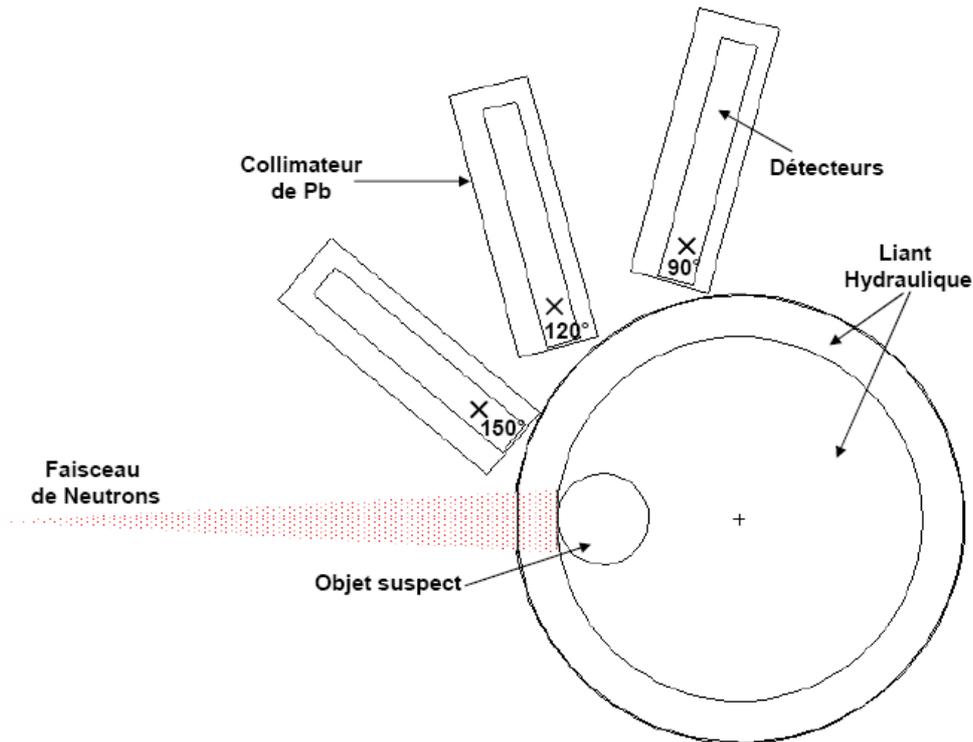


Figure IV - 36. Dispositif de détection pour un objet situé au bord du fût de 870 L.

Une mesure de référence doit d'abord être réalisée dans une zone de visée où ne se trouve pas l'objet à inspecter, après une rotation du colis, afin d'obtenir le spectre intrinsèque du liant hydraulique. Le spectre de temps de vol correspondant à cette inspection avec un seuil d'énergie de 790 keV est présenté en Figure IV - 37. Les lignes noires verticales montrent la zone de bruit de fond aléatoire qui doit être soustrait du signal correspondant à la matrice qui se trouve entre les deux barres rouges. La déconvolution du spectre gamma montre la présence d'oxygène, élément majoritaire dans le liant (fraction massique de ~ 53 %), de silicium (~ 28 %) et de calcium (~ 10 %). Les autres éléments ne sont présents qu'en faible quantité dans le liant et les proportions de coups détectées sont faibles, voire non significatives.

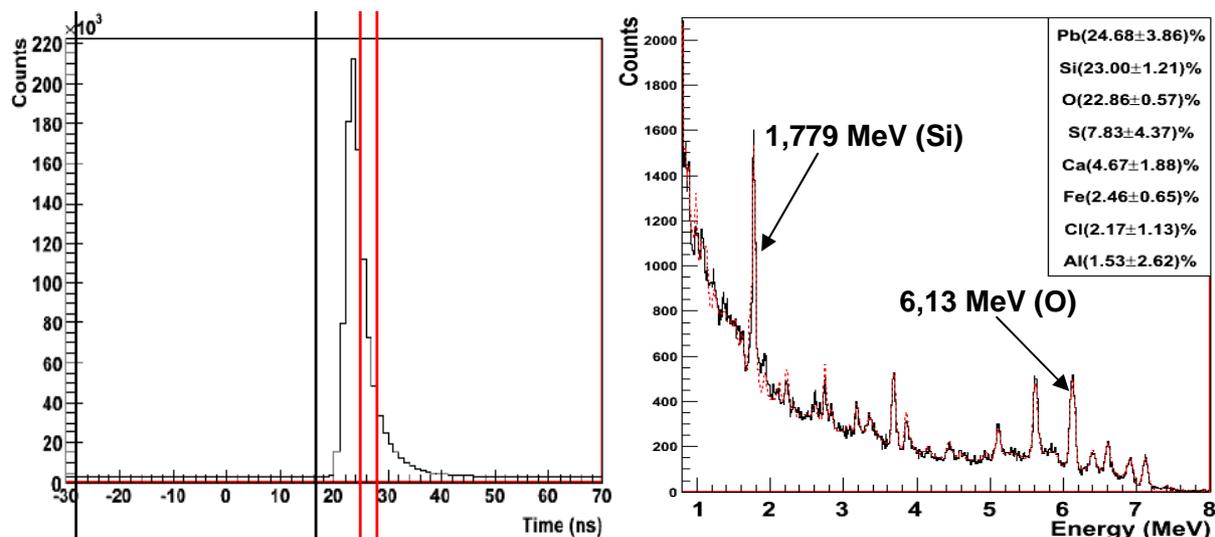


Figure IV - 37. Spectre de temps de vol du colis 870 L sans objets inclus et spectre gamma d'une zone d'intérêt située en périphérie du fût (25-28 ns) après soustraction du bruit aléatoire.

Le bloc d'aluminium de densité 2,7 a été placé en périphérie du fût de 870 L. La déconvolution élémentaire du spectre gamma correspondant à la zone temporelle du bloc d'aluminium (25 à 28 ns), voir Figure IV - 38, indique une fraction de coups pour l'aluminium (~ 16 % avec une faible incertitude) très supérieure au pourcentage non significatif détecté en l'absence du bloc.

La déconvolution du spectre obtenu par la simulation avec le bloc moteur en périphérie du colis de 870 L révèle aussi très clairement la présence du bloc de fer avec un pourcentage de ~ 11 % contre ~ 2 % dans la matrice du liant hydraulique seul.

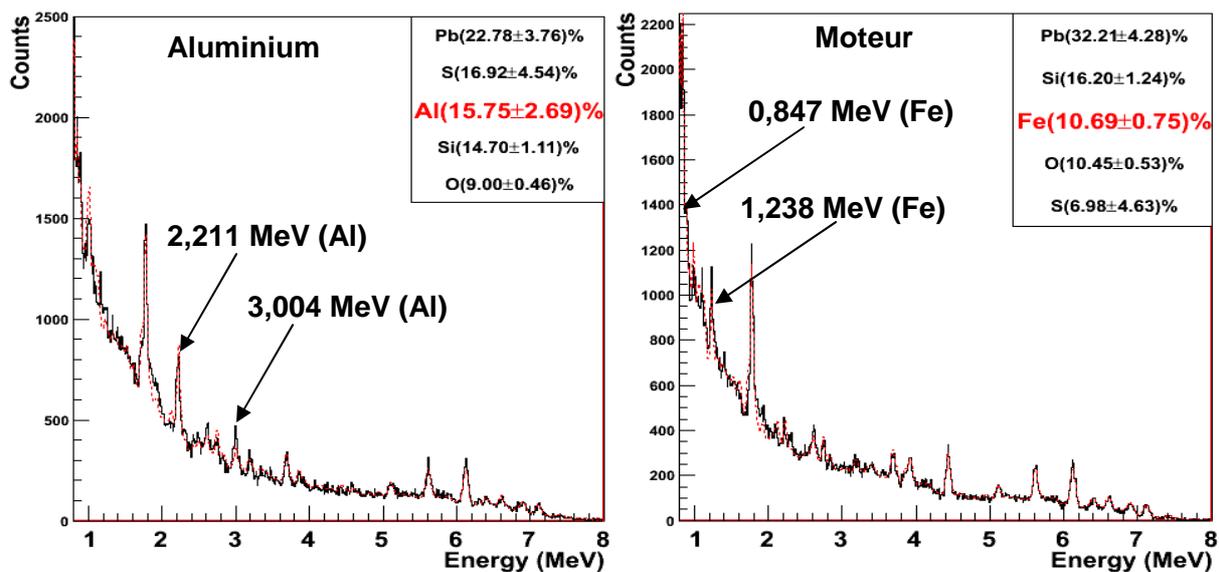


Figure IV - 38. Spectres gamma de la zone temporelle de 25 à 28 ns correspondant au bloc d'aluminium (à gauche) et au bloc moteur (à droite) situés en périphérie du fût de 870 L, et pourcentages de coups élémentaires obtenus par l'algorithme de déconvolution.

4.3.2 Zones d'intérêt situées à mi-rayon du fût

L'angle d'ouverture total du faisceau est ici fixé à $8,28^\circ$ pour ne viser que la zone d'intérêt à mi-rayon du colis de 870 L. Le fait d'orienter les collimateurs pour viser cette zone à interroger permet une meilleure sélectivité spatiale car les collimateurs limitent la détection des rayonnements gamma induits dans les zones voisines par des neutrons ayant diffusé hors du cône de neutrons signés. Dans ce cas aussi, le détecteur à 150° apporte la meilleure information sur la zone interrogée.

Le spectre gamma de la zone temporelle du bloc d'aluminium à mi-rayon du colis de 870 L est présenté en Figure IV - 39. L'aluminium est détecté avec un pourcentage de coups non significatif ($\sim 3,5 \% \pm 4 \%$).

Pour le bloc moteur à mi-rayon dans le colis, le spectre en énergie présenté en Figure IV - 39 montre la présence de fer avec un pourcentage de coups de $\sim 6 \%$, contre une fraction plus faible dans la même zone pour le liant hydraulique seul.

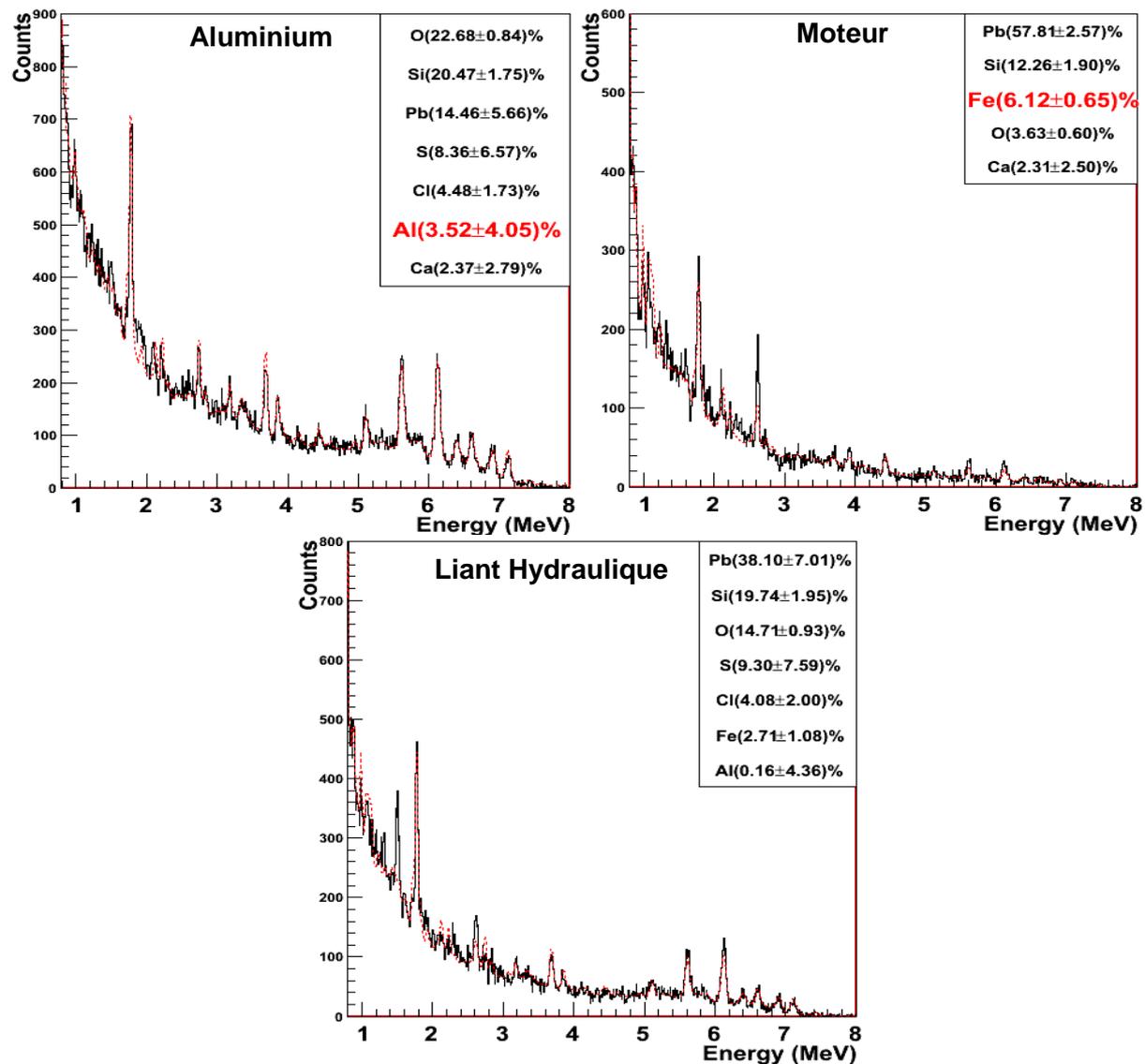


Figure IV - 39. Spectres gamma correspondants au bloc d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite), et au liant seul (en bas) à mi-rayon du colis de 870 L.

4.3.3 Zones d'intérêt situées au centre du fût

Il est difficile d'interroger une zone d'intérêt au centre du colis sans rencontrer des objets immobilisés dans le liant hydraulique, pour cette raison la matrice est décrite par un mélange du liant hydraulique et des déchets en vrac. L'angle d'ouverture total du faisceau est fixé à 7,24°. Les détecteurs sont orientés pour viser le centre du colis comme le montre la Figure IV - 40. La diffusion des neutrons réduit ici très fortement la sélectivité spatiale et conduit à interroger des zones de la matrice située autour de l'objet.

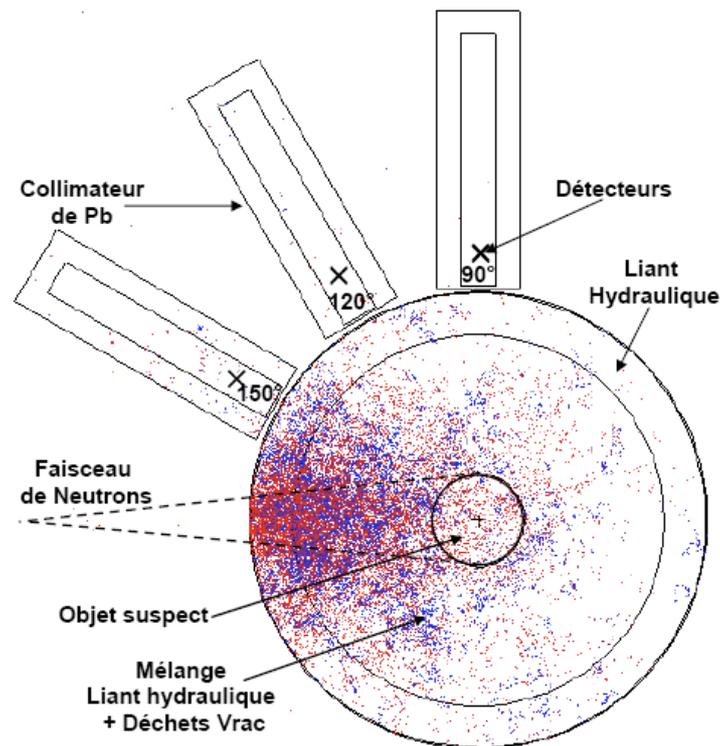
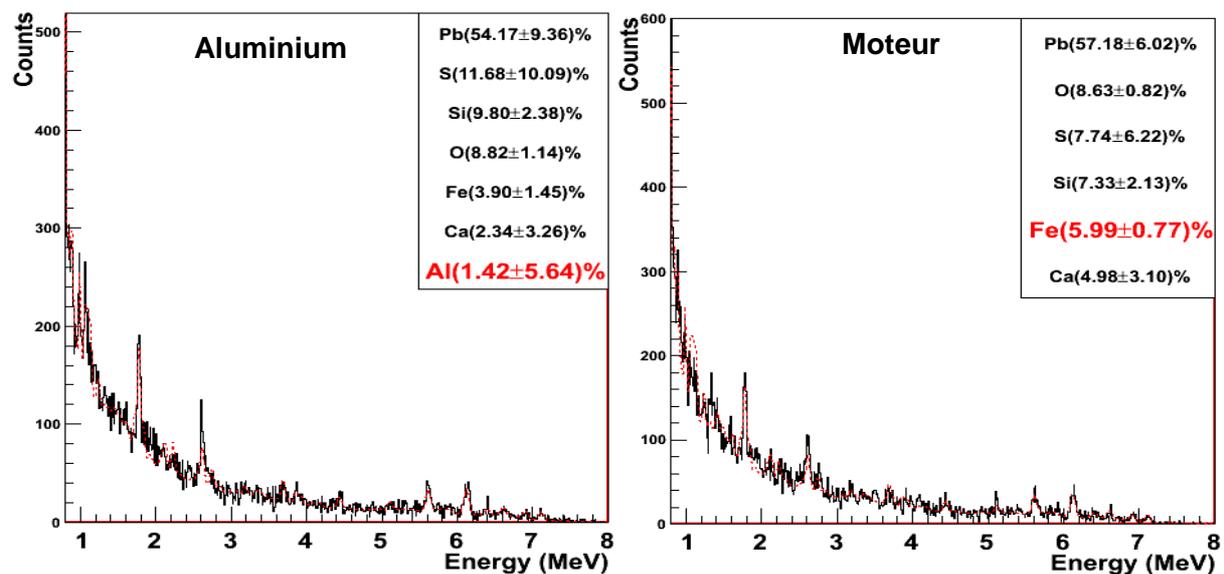


Figure IV - 40. Dispositif de détection pour le colis d'enrobé bitumineux dans le cas d'une zone d'intérêt au centre du colis, et lieux d'interaction des neutrons dans la matrice obtenus avec MCNP VisEd. Les points rouges représentent l'énergie maximale de 14 MeV et les points bleus correspondent à l'énergie minimale de 10 meV des neutrons.

La déconvolution du spectre en énergie du bloc d'aluminium au centre du colis présenté en Figure IV - 41 montre une proportion de rayonnements gamma caractéristiques de l'aluminium, non significative ce qui montre qu'il est définitivement très difficile de détecter la présence de l'aluminium dans une matrice de déchets en vrac.

Pour le moteur au centre du colis, la Figure IV - 41 montre que le fer est détecté avec un pourcentage de ~ 6 % supérieur à celui trouvé dans le spectre du mélange seul (~ 3 %).



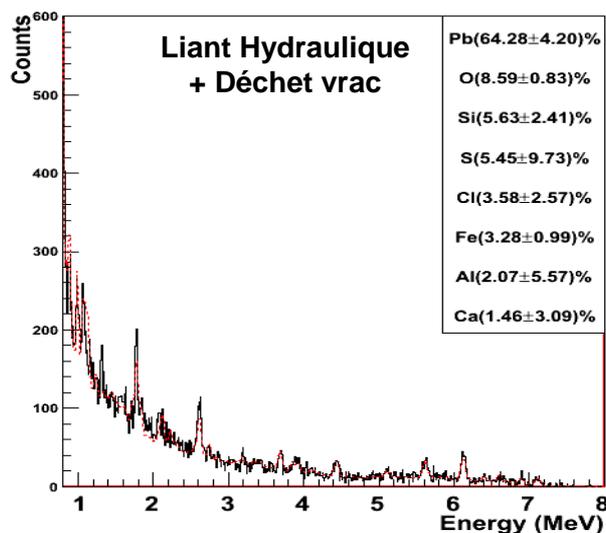


Figure IV - 41. Spectres gamma correspondants au bloc d'aluminium (en haut à gauche), de fer (en haut à droite), et mélange liant + déchets (en bas) au centre du colis de 870 L

5 Conclusion

Le dimensionnement par simulation numérique du poste de mesure par interrogation neutronique avec la technique de la particule associée des colis de déchets radioactifs MAVL (Moyenne Activité Vie Longue) a permis de déterminer le blindage, l'écran et la position des détecteurs par rapport aux colis. L'objectif principal était de limiter le taux de comptage dû à l'émission radiologique (essentiellement gamma) des déchets et le bruit aléatoire associé. Un blindage de la source neutronique a aussi été modélisé pour ne pas accroître ce bruit déjà très important.

Dans tous les cas présentés, les détecteurs sont entourés d'un collimateur de 5 cm d'épaisseur et d'un écran de protection vis-à-vis du colis de 0.5 cm d'épaisseur, tous deux en plomb. Le taux de comptage total calculé pour un scintillateur au $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ de dimensions 3"×3" situé à 40 cm du colis en fond de collimateur est alors supérieur à 10^6 coups/s pour les fûts d'enrobé bitumineux et de béton fibres les plus actifs (plus de 10^{12} Bq de ^{137}Cs). Avec de tels taux de comptage, les taux d'empilement dans les détecteurs et le débit d'information à traiter par l'électronique sont critiques. Ce niveau d'activité est cependant à prendre comme une valeur supérieure des activités réellement présentes dans les colis. Des calculs complémentaires ont donc aussi été réalisés avec des niveaux d'activité plus faibles. Il faudra éventuellement envisager de reculer encore les détecteurs dans les collimateurs et d'accroître l'épaisseur des écrans pour les colis les plus actifs, au détriment de la sensibilité et donc au prix d'un accroissement de la durée de mesure (60 min pour les simulations présentées). Par contre, pour le colis de 870 L du CEA, moins actif, la distance du détecteur par rapport au fût peut être réduite à 10 cm. Pour ces différentes configurations, il a aussi été vérifié par simulation que le recouvrement entre le signal gamma utile induit par les neutrons signés et le signal parasite dû à la rétrodiffusion d'une partie de ces neutrons vers les détecteurs reste négligeable.

Par ailleurs, le blindage autour du générateur de neutrons, constitué d'une sphère de polyéthylène de 60 cm de rayon, permet de réduire de près d'un facteur 10 le taux de comptage des détecteurs gamma dû à cette source interrogatrice, et de le rendre négligeable par rapport au taux de comptage dû à l'émission gamma des déchets. Ceci permet notamment

d'utiliser le générateur à un niveau d'émission neutronique de $2 \cdot 10^8$ n/s, valeur maximale pour les tubes à particule associée disponibles sur le marché, permettant ainsi un gain significatif en sensibilité par rapport aux systèmes de mesure sans écran générateur qui fonctionnent à quelques 10^7 n/s. Il faudra également tenir compte, au niveau des spécifications de l'électronique, d'un taux de comptage très élevé du (ou des) détecteur(s) alpha, typiquement de l'ordre du pourcent de l'émission totale.

Sans tenir compte de ces effets de saturation potentiels dans les détecteurs et l'électronique d'acquisition, les simulations ont ensuite montré que la caractérisation élémentaire d'objets inclus dans les colis d'enrobés bitumineux, de béton fibres CBFC'2 et de 870 L (déchets en vrac bloqués dans du béton) apporte, dans la plupart des cas étudiés, des informations exploitables en une heure d'acquisition, malgré l'influence du bruit de fond aléatoire estimé précédemment. L'utilisation d'un seuil de coupure électronique à 790 keV permet notamment d'améliorer significativement le rapport signal sur bruit, ce dernier étant dû principalement à l'émission gamma à 661,7 keV du ^{137}Cs présent dans les colis. Ces informations sur la composition élémentaire des matériaux interrogés, en complément de celles apportées par l'imagerie photonique, peuvent permettre d'identifier la nature d'objets ou de zones des colis repérés préalablement par cette technique.

Les cas les plus pénalisants concernent la caractérisation d'objets situés en profondeur dans les colis très actifs, comme ceux d'enrobé bitumineux et de béton fibre. Les fluctuations statistiques de comptage rendent difficile la détection des éléments d'intérêt. Elles peuvent être réduites en utilisant plus de détecteurs. Il est aussi envisageable, en cas de colis d'activité plus faible, de rapprocher les détecteurs du colis. Il est également envisageable d'accroître le temps de mesure. Néanmoins, une autre limitation importante est la diffusion des neutrons dans la matrice des déchets, qui dévie en partie le faisceau de neutrons signés de l'objet à caractériser et réduit la sélectivité spatiale de la technique de la particule associée. Dans certains cas, comme celui d'objets au centre du colis de 870 L, même avec une bonne précision statistique de comptage, la caractérisation élémentaire de la zone d'intérêt est impossible.

Enfin, il serait avantageux de coupler la technique de la particule associée avec d'autres méthodes d'investigation telle que l'interrogation neutronique pulsée, avec laquelle on peut mesurer les rayonnements gamma de capture de certains éléments dont les sections efficaces sont de plusieurs centaines de barns, comme pour les toxiques chimiques que sont le bore, le cadmium et le mercure [121]. Les inconvénients de cette technique sont l'absence de sélectivité spatiale et la forte absorption du flux neutronique thermique interrogateur, mais la sensibilité pour ces éléments est a priori plus grande et les deux méthodes peuvent être utilisées de façon complémentaire pour répondre à différents objectifs de caractérisation élémentaire des colis de déchets MAVL.

6 Références bibliographiques du chapitre IV

- [113] ANDRA, Inventaire national des matières et déchets radioactifs, 2009. Disponible sur <http://www.andra.fr/download/site-principal/document/editions/350.pdf>
- [114] A. Donzella, I. Bodini, A. Zenoni, A. Fontana, B. Pérot et al., “Experimental validation of MCNP simulations for the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System”, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 261 (2007)
- [115] S. Bernard, B. Pérot et al., “Development of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System: from simulation to experiment”, proc. of NEMEA-3, 3rd Workshop on Neutron Measurements, Evaluations and Applications, Borovets (Bulgaria), 25-28 October 2006. European Commission report EUR 22794 EN, Editor : A. Plompen
- [116] G. F. Knoll, “Radiation Detection and Measurement”, second edition.
- [117] A. Iltis, M.R. Mayhugh, et al. Lanthanum halide scintillators: Properties and applications, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 563 (2006)
- [118] C. Eleon, B. Perot, et al. “Experimental and MCNP simulated gamma-ray spectra for the UNCOSS neutron-based explosive detector”, NIM A 629 (2011) 220-229.
- [119] B. Pérot et al., Experimental qualification with a scale one mock-up of the “measurement and sorting unit” for bituminized waste drums, Proc. of ICEM’03, 9th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, 21-25 Sept. 2003, Oxford, England.
- [120] B. Perot, C.Carasco, M. Toure, W. El Kanawati, C. Eleon, “Elemental Characterization of LL-MA Radioactive Waste Packages with the Associated Particle Technique”, ANIMMA International Conference, 6-9 June 2011, Ghent, Belgium.
- [121] J.-L. Ma, C. Carasco, B. Perot, E. Mauerhofer, J. Kettler, A. Havenith, Prompt Gamma Neutron Activation Analysis of toxic elements in radioactive waste packages, to be presented at the IRRMA-8 conference, 26 June - 1st July 2011, Kansas City, USA <http://www.dce.k-state.edu/conf/irrama/>

Conclusion générale

Les spectres des rayonnements gamma produits sur C, O, N, Fe, Pb, Al, Na, Si, Cl, Cu, Zn, Ni, Cr et Ca par des faisceaux de neutrons signés de 14 MeV ont été acquis avec le système EURITRACK en vue de l'inspection des conteneurs maritimes avec un seuil de coupure électronique à 0,6 MeV. La bibliothèque de signatures élémentaires ainsi constituée a été utilisée pour déconvoluer les spectres gamma résultant de l'inspection de container maritimes et ainsi calculer la contribution relative de chaque élément dans le spectre mesuré. Sur la base des compositions élémentaires ainsi déterminées, il a ainsi été possible de comparer les résultats des mesures avec les déclarations des marchandises transportées lors de l'inspection d'une centaine de camions effectuées dans le cadre du projet Eritr@C (suite du projet EURITRACK, menée entre 2008 et 2010). La présence de pics significatifs au dessous du seuil de coupure initialement utilisé pendant EURITRACK (1,35 MeV) a permis de mieux identifier des éléments comme le fer, le cuivre, le zinc et le plomb, dont les raies gamma les plus caractéristiques étaient situées en dessous du seuil.

D'autre part, des calculs MCNP ont été réalisés avec diverses bibliothèques de données, dont la plus récente disponible ENDF/B-VII.0. Les calculs ont révélé des différences très importantes selon les bibliothèques en ce qui concerne la prise en compte de la dépendance angulaire de la production de rayonnements gamma par des neutrons de 14 MeV, ainsi que sur les valeurs des sections efficaces des différentes raies gamma. Les calculs effectués avec la bibliothèque ENDF/B-VII ont ensuite été comparés aux spectres expérimentaux. Un accord satisfaisant a été observé pour les principaux éléments constituant les explosifs et les drogues, ainsi que pour ceux fréquemment rencontrés dans les conteneurs réels: C, O, N, Fe, Al, et Si. Pour les autres éléments, toutefois, l'accord n'est que partiel, certaines raies gamma mesurées étant absentes du calcul ou, au contraire, la simulation fournissant des pics qui ne sont pas observés expérimentalement. Enfin, pour le zinc, le désaccord est total, les données nucléaires étant inexistantes dans les bibliothèques récentes et non fiables dans les plus anciennes. Au-delà de la comparaison qualitative entre expérience et simulation (hauteurs relatives des raies gamma et du continuum), une comparaison quantitative a aussi montré un bon accord entre nombres de coups mesurés et calculés pour les trois éléments organiques majeurs C, N, et O essentiels pour la détection des explosifs et des drogues. Cette vérification était essentielle car la simulation numérique a été largement utilisée par la suite

La déconvolution des spectres gamma mesurés avec le système EURITRACK fournit les fractions de coups des éléments C, N, O qu'il faut convertir en proportions chimiques pour pouvoir différencier les matières organiques (explosifs, drogues, produits bénins, produits de contrebande). Le code MCNP, avec la bibliothèque ENDF/B-VII.0, a été utilisé intensivement pour calculer un ensemble de facteurs de conversion a prenant en compte la modération des neutrons et l'atténuation des rayonnements gamma dans les marchandises transportées. Ces facteurs ont été validés expérimentalement avec des cibles épaisses de matériaux connus (bois, papier, mélamine...), d'abord seules puis placées en différentes positions dans un conteneur rempli d'une matrice test en fer de densité 0,2. En permettant de simuler l'inspection de matériaux illicites (TNT, cocaïne) placés en différentes positions dans diverses matrices, l'outil numérique a aussi permis de tester la validité de ces facteurs de conversion. Ces calculs ont d'abord permis d'estimer les biais systématiques entre les ratios chimiques réels et ceux obtenus grâce aux facteurs de conversion pour chacune des situations simulées,

indépendamment des incertitudes statistiques. Ensuite, des spectres correspondant à des inspections réalistes en 10 minutes d'acquisition ont été calculés avec les fluctuations statistiques associées pour tester le processus complet de traitement des données, notamment la combinaison des incertitudes aléatoires et systématiques par une méthode de Monte Carlo. Finalement, des données d'inspection pour des zones de conteneurs réels chargés de matières organiques (bois, tissus, papier), préalablement repérées par un scanner à rayons X, ont également été traitées afin de tester les facteurs de correction avec des données obtenues en conditions opérationnelles, confirmant la capacité du système EURITRACK existant à identifier ces matériaux mais aussi la nécessité de réduire les fluctuations statistiques de comptage.

Ce travail a montré que le démonstrateur actuel EURITRACK pourrait être sensiblement amélioré dans un futur système industriel en utilisant plus de détecteurs gamma ainsi qu'un écran de protection autour du générateur de neutrons pour limiter le bruit de fond aléatoire qu'il engendre. Les résultats montrent cependant qu'avec un système industriel comprenant typiquement deux à quatre fois plus de détecteurs en haut et en bas du conteneur, selon la possibilité d'en implémenter ou non sous les camions, ainsi que des détecteurs en réflexion et un générateur de neutrons supplémentaire pour inspecter la face opposée du conteneur, les explosifs et les drogues peuvent être détectés sans ambiguïté dans la grande majorité des cas étudiés.

La technique de la particule associée a été également utilisée pour la caractérisation élémentaire des déchets radioactifs de moyenne activité à vie longue. Dans ce but, un poste de mesure dédié à ces colis a été dimensionné par simulation numérique. Cette étude a permis de déterminer le blindage, l'écran et la position des détecteurs par rapport aux colis, l'objectif principal étant de limiter le taux de comptage dû à l'émission radiologique des déchets, d'origine essentiellement gamma et dans une moindre mesure neutronique, ainsi que le bruit aléatoire qui en résulte. Les détecteurs ont donc été entourés d'un collimateur de 5 cm d'épaisseur et d'un écran de protection vis-à-vis du colis de 0.5 cm d'épaisseur, tous deux en plomb. Le taux de comptage total calculé pour un détecteur $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ de dimensions 3"×3" situé à 40 cm du colis en fond de collimateur est alors supérieur à 10^6 coups/s pour les fûts d'enrobé bitumineux et de béton fibres les plus actifs. Par conséquent, les taux d'empilement dans les détecteurs et le débit d'information à traiter par l'électronique sont critiques. Il faudra donc envisager de reculer encore les détecteurs dans les collimateurs et d'accroître l'épaisseur des écrans pour les colis les plus actifs, au détriment de la sensibilité qui pourra être compensé par un accroissement de la durée de mesure (60 minutes pour les simulations présentées). Les niveaux d'activités simulés sont cependant à prendre comme des valeurs supérieures de ceux réellement présents dans les colis. Des calculs complémentaires ont donc aussi été réalisés avec des niveaux d'activité plus faibles. Par contre, pour le colis de 870 L du CEA, moins actif, la distance du détecteur par rapport au fût peut être réduite à 10 cm. Pour ces différentes configurations, le recouvrement entre le signal gamma utile induit par les neutrons signés et le signal parasite dû à la rétrodiffusion d'une partie de ces neutrons vers les détecteurs reste négligeable. Par ailleurs, un blindage a aussi été modélisé autour du générateur de neutrons, constitué d'une sphère de polyéthylène de 60 cm de rayon, ce qui permet de réduire de près d'un facteur 10 le taux de comptage des détecteurs gamma dû à cette source interrogatrice et de le rendre négligeable par rapport au taux de comptage dû à l'émission gamma des déchets. Ceci permet théoriquement, abstraction faite d'une potentielle saturation du détecteur alpha, d'utiliser le générateur aux capacités maximales d'émission neutronique de 2.10^8 n/s disponibles avec les tubes à particule associée présents sur le marché.

Les simulations ont ensuite montré, avec le poste de mesure optimisé, que la caractérisation élémentaire d'objets inclus dans les colis d'enrobés bitumineux, de béton fibres, et de déchets en vrac bloqués par du béton dans un fût de 870 L, apporte dans la plupart des cas étudiés des informations exploitables en une heure d'acquisition malgré le bruit de fond aléatoire estimé précédemment. L'utilisation d'un seuil de coupure électronique à 790 keV permet notamment d'améliorer significativement le rapport signal sur bruit, ce dernier étant dû principalement à l'émission gamma à 661,7 keV du ^{137}Cs présent dans les colis. Les informations sur la composition élémentaire des matériaux interrogés, en complément de celles apportées par l'imagerie photonique, permettent d'identifier la nature d'objets ou de zones des colis repérés préalablement par radiographie et tomographie photonique. Les cas les plus pénalisants concernent la caractérisation d'objets situés en profondeur dans les colis très actifs, comme ceux d'enrobé bitumineux et de béton fibres. Les fluctuations statistiques de comptage rendent en effet difficile la détection des éléments d'intérêt. Elles peuvent être réduites en utilisant plus de détecteurs. Il est aussi envisageable, en cas de colis d'activité plus faible, de rapprocher les détecteurs du colis, et dans tous les cas difficiles d'accroître le temps de mesure. Néanmoins, une autre limitation importante est la diffusion des neutrons dans la matrice des déchets, qui dévie en partie le faisceau de neutrons signés de l'objet à caractériser et réduit la sélectivité spatiale de la technique de la particule associée. Dans certains cas, comme celui d'objets au centre du colis de 870 L, même avec une bonne précision statistique de comptage, la caractérisation élémentaire de la zone d'intérêt est impossible.

Enfin, en plus de l'imagerie photonique avec laquelle le couplage est absolument essentiel, il serait avantageux de combiner la technique de la particule associée avec d'autres méthodes d'investigation telle que l'interrogation neutronique pulsée qui permet de mesurer les rayonnements gamma de capture de certains éléments dont les sections efficaces sont de plusieurs centaines de barns, comme le bore, le cadmium et le mercure qui constituent des toxiques chimiques à contrôler. Les inconvénients de cette technique sont l'absence de sélectivité spatiale et la forte absorption du flux neutronique thermique interrogateur, mais la sensibilité pour ces éléments est a priori plus grande qu'avec la technique de la particule associée car les sections efficaces d'interaction avec les neutrons rapides ne sont, en comparaison, que de quelques dizaines à centaines de millibarns. Ces deux méthodes d'interrogation neutronique peuvent donc être utilisées de façon complémentaire pour répondre à différents objectifs de caractérisation élémentaire des colis de déchets.

Appendix 1 – MCNP estimators

F5 and F8 estimators

The MCNP F5 “point detector tally” is widely used in this thesis to estimate the photon and neutron fluxes associated to point detectors. Energy and time cards allow the total flux to be subdivided into energy and time groups. The time-energy data, normalized to one source particle, are presented in an output ascii file under the form of a time vs. energy matrix, from which the relevant parts can be processed. Such a procedure is simple when dealing with one dimensional data, for instance when only energy cards are defined. However, it becomes very unpractical to handle two dimensional time-energy data. The approach proposed here is based on MODAR¹, see appendix C.

The MCNP F8 “pulse height tally” is also largely used to calculate the energy distribution of pulses created in a cell that models a physical detector. Such calculation is not time dependent and it is very slow compared to F5 tally. The pulse height tally is an inherently analog process. Therefore, it does not work well with neutrons, which are not transported in MCNP in an analog way (for instance after (n,2n) reactions, only one outgoing neutron is transported with an increased weight), and it does not work at all with most variance reduction schemes. The pulse height tally depends on sampling the joint density of all particles exiting a collision event. MCNP does not currently sample this joint density for neutron collisions. Thus neutron F8 tallies must be used with extreme caution when more than one neutron can exit a collision.

The F8 tally is also used to estimate detector response function and also in this thesis to calculate the total count rate in the detector using gamma or neutron sources. The calculation is reliable when using photon source, but MCNP warns the user that it is unreliable with neutron source for the reason mentioned above. Our experimental feedback shows however that it can be used with NaI(Tl) detector to estimate the order of magnitude of the experimental count rate^{2,3}.

The detailed explanation of tallies F5 and F8 given in the MCNP manual⁴ is presented below.

F5 point detector tally (from MCNP manual)

A point detector is a deterministic estimate (from the current event point) of the flux at a point in space. Contributions to the point detector tally are made at source and collision events throughout the random walk. Suppose $p(\mu, \phi)d\Omega$ is the probability of the particle’s scattering or being born into the solid angle $d\Omega$ about the direction (μ, ϕ) , where ϕ is the azimuthal angle and μ is the cosine of the angle between the incident particle direction and the direction

¹ C.Carasco, "MCNP Output Data Analysis with ROOT (MODAR)", Computer science, Computer Physics Communications, Volume 181, Issue 12, December 2010, Pages 2210-2211.

² S. Bernard, et al. “Development of the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System: from simulation to experiment”, NEMEA-3 Neutron Measurements, Evaluations and Applications International Conference, October 2006, Borovets, Bulgaria.

³ A. Donzella, et al. “Experimental validation of MCNP simulations for the EURITRACK Tagged Neutron Inspection System”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 261, 2007, 291-294.

⁴ J. F. Briesmeister, “MCNPTM—A General Monte Carlo N-Particle Transport Code Version”, Los Alamos National Laboratory Manual, 2000.

from the collision point to the detector. If R is the distance to the detector from the collision or source point, then

$$p(\mu, \phi) d\Omega e^{-\int_0^R \sum_t(s) ds}$$

yields the probability of scattering into $d\Omega$ about (μ, ϕ) and arriving at the detector point with no further collisions. The attenuation of a beam of monoenergetic particles passing through a material medium is given by $\exp\left[-\int_0^R \sum_t(s) ds\right]$ where s is measured along the direction from the collision or source point to the detector and $\sum_t(s)$ is the macroscopic total cross section at s . If dA is an element of area normal to the scattered line of flight to the detector, $d\Omega = dA/R^2$ and therefore

$$p(\mu, \phi) \frac{dA}{R^2} e^{-\int_0^R \sum_t(s) ds}$$

is the expression giving the probability of scattering toward the detector and passing through the element of area dA normal to the line of flight to the detector. Because the flux is by definition the number of particles passing through a unit area normal to the scattered direction, the general expression for the contribution to the flux is given by

$$\frac{p(\mu, \phi)}{R^2} e^{-\int_0^R \sum_t(s) ds}$$

In all the MCNP scattering distributions and in the standard sources, we assume azimuthal symmetry. Therefore,

$$p(\mu) = \int_0^{2\pi} p(\mu, \phi) d\phi$$

and ϕ is sampled uniformly on $(0, 2\pi)$. That is, $p(\mu, \phi) = p(\mu)/2\pi$.

If $p(\mu, \phi) = p(\mu)/2\pi$ is substituted in the expression for the flux, the expression used in MCNP is arrived at:

$$\Phi\left(\vec{r}, E, t, \mu\right) = Wp(\vec{\omega})e^{-\lambda}/2\pi R^2$$

When,

W = particle weight;

$\lambda = \int_0^R \sum_t(s) ds$ = total number of mean free paths integrated over the trajectory from the source

or collision point to the detector;

R = distance from source or collision event to detector; and

$p(\mu)$ = value of probability density function at μ , the cosine of the angle between the particle trajectory and the direction to the detector.

A point detector is known as a “next-event estimator” because it is a tally of the flux at a point if the next event is a trajectory without further collision directly to the point detector.

A contribution to the point detector is made at every source or collision event. The $e^{-\lambda}$ term accounts for attenuation between the present event and the detector point. The $1/2\pi R^2$ term accounts for the solid angle effect. The $p(\mu)$ term accounts for the probability of scattering toward the detector instead of the direction selected in the random walk. For an isotropic source or scatter, $p(\mu) = 0.5$ and the solid angle terms reduce to the expected $1/4\pi R^2$. (Note that $p(\mu)$ can be larger than unity, because it is the value of a density function and not a probability.) Each contribution to the detector can be thought of as the transport of a pseudo-particle to the detector.

The R^2 term in the denominator of the point detector causes a singularity that makes the theoretical variance of this estimator infinite. That is, if a source or collision event occurs near the detector point, R approaches zero and the flux approaches infinity. The technique is still valid and unbiased, but convergence is slower and often impractical. If the detector is not in a source or scattering medium, a source or collision close to the detector is impossible. For problems where there are many scattering events near the detector, a cell or surface estimator should be used instead of a point detector tally. If there are so few scattering events near the detector that cell and surface tallies are impossible, a point detector can still be used with a specified average flux region close to the detector. This region is defined by a fictitious sphere of radius R_0 surrounding the point detector. R_0 can be specified either in centimeters or in mean free paths. If R_0 is specified in centimeters and if $R < R_0$, the point detector estimation inside R_0 is assumed to be the average flux uniformly distributed in volume.

$$\begin{aligned}\Phi(R < R_0) &= \frac{\int \Phi dV}{\int dV} \\ &= Wp(\mu) \frac{\int_0^{R_0} e^{-\frac{\Sigma_t r}{r}} 4\pi r^2 dr}{\frac{4}{3}\pi R_0^3} \\ &= \frac{Wp(\mu) \left(1 - e^{-\frac{\Sigma_t R_0}{r}}\right)}{\frac{2}{3}\pi R_0^3 \Sigma_t}\end{aligned}$$

If $\Sigma_t = 0$, the detector is not in a scattering medium, no collision can occur, and

$$\Phi(R < R_0, \Sigma_t = 0) = \frac{Wp(\mu)R_0}{\frac{2}{3}\pi R_0^3}$$

If the fictitious sphere radius is specified in mean free paths λ_0 , then $\lambda_0 = \Sigma_t R_0$ and

$$\Phi(\lambda < \lambda_0) = \frac{Wp(\mu)(1 - e^{-\lambda_0})\Sigma_t^2}{\frac{2}{3}\pi R_0^3}$$

The choice of R_0 may require some experimentation. For a detector in a void region or a region with very few collisions (such as air), R_0 can be set to zero. For a typical problem, setting R_0 to a mean free path or some fraction thereof is usually adequate. If R_0 is in centimeters, it should correspond to the mean free path for some average energy in the sphere. Be certain when defining R_0 that the sphere it defines does not encompass more than one material unless you understand the consequences. This is especially true when defining R_0 in terms of mean free path because R_0 becomes a function of energy and can vary widely. In particular, if R_0 is defined in terms of mean free paths and if a detector is on a surface that bounds a void on one side and a material on the other, the contribution to the detector from the direction of the void will be zero even though the importance of the void is nonzero. The reason is simply that the volume of the artificial sphere is infinite in a void. Contributions to the detector from the other direction (that is, across the material) will be accounted for. Detectors differing only in R_0 are coincident detectors, and there is little cost incurred by experimenting with several detectors that differ only by R_0 in a single problem.

F8 pulse height tallies (from MCNP manual)

The pulse height tally provides the energy distribution of pulses created in a cell that models a physical detector. It also can provide the energy deposition in a cell. Although the entries on the F8 card are cells, this is not a track length cell tally. F8 tallies are made at source points and at surface crossings.

The pulse height tally is analogous to a physical detector. The F8 energy bins correspond to the total energy deposited in a detector in the specified channels by each physical particle. All the other MCNP tallies record the energy of a scoring track in the energy bin.

In an experimental configuration, suppose a source emits 100 photons at 10 MeV, and ten of these get to the detector cell. Further, suppose that the first photon (and any of its progeny created in the cell) deposits 1 keV in the detector before escaping, the second deposits 2 keV, and so on up to the tenth photon which deposits 10 keV. Then the pulse height measurement at the detector would be one pulse in the 1 keV energy bin, 1 pulse in the 2 keV energy bin, and so on up to 1 pulse in the 10 keV bin.

In the analogous MCNP pulse height tally, the source cell is credited with the energy times the weight of the source particle. When a particle crosses a surface, the energy times the weight of the particle is subtracted from the account of the cell that it is leaving and is added to the account of the cell that it is entering. The energy is the kinetic energy of the particle plus $2mc^2 = 1.022016$ if the particle is a positron. At the end of the history, the account in each tally cell is divided by the source weight. The resulting energy determines which energy bin the score is put in. The value of the score is the source weight for an F8 tally and the source weight times the energy in the account for a *F8 tally. The value of the score is zero if no track entered the cell during the history.

Appendix 2 – MCNP Output Data Analysis software

Introduction

MODAR software offers the basic tools to analyze the time-of-flight and energy spectra of the interrogated object. It allows the gamma-ray spectrum to be unfolded into pure elemental count proportions, mainly C, N, O, Fe, Al, Si, and Pb. The C, N, and O count fractions are converted into chemical proportions by taking into account the gamma-ray production cross sections, as well as neutron and photon attenuation in the different shield between the neutron generator and the interrogated area. These chemical ratios are plotted in a two-dimensional (2D) barycentric representation and compared to materials with known chemical composition also shown in the barycentric representation. The systematic uncertainty due to the above attenuation affects and counting statistical fluctuations are combined with a Monte Carlo method to provide a 3D uncertainty area in a barycentric plot, which allows to determine the most probable detected materials in view to make a decision about the presence of explosive, or narcotics.

Data analysis with MODAR software

MODAR software is a tool based on the free ROOT package which is commonly used in the physics community for the analysis of large data files. MODAR software takes advantage of the large panel of ROOT tools to display and process histogram and mathematical functions, to generate high quality graphics and to define Graphical User Interfaces (GUI).

The MODAR data processing software allows to select areas in the TOF gamma window associated to the suspected object which has been detected by the 16 top NaI(Tl) detectors of the EURITRACK system. Once the area of interest is selected, the time/energy spectra can be investigated using energy/time cuts, see Figure 1.

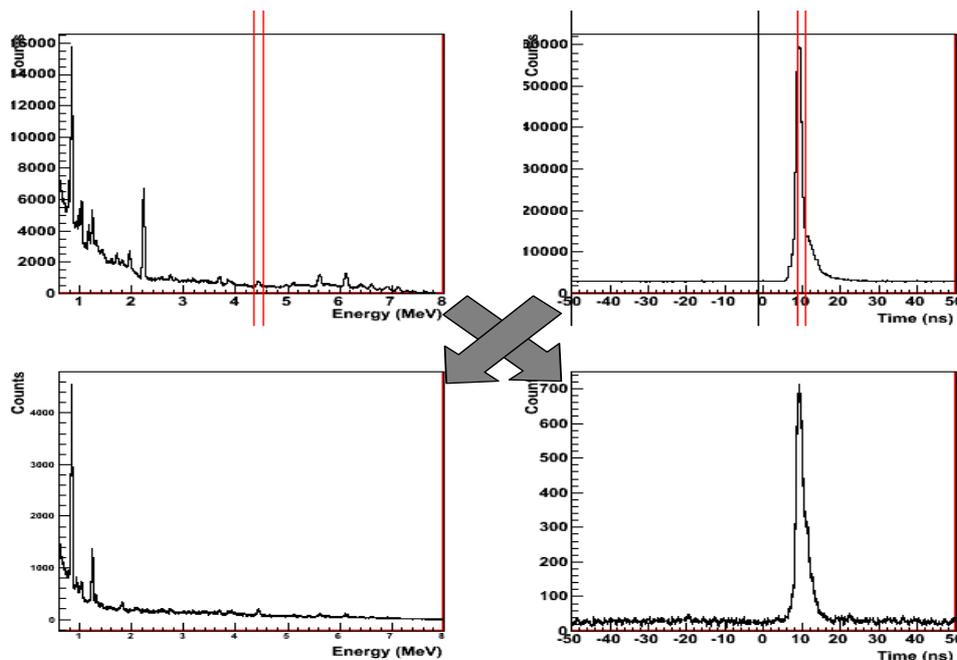


Figure 1. Events selection in the energy and time-of-flight spectra with MODAR software.

MODAR software is also able to unfold the spectrum of the interrogated object into elementary contributions by using a pure element spectra database (C, O, N, Al...). Originally, the energy spectra are unfolded with a least square algorithm to get the best matching linear combination of the pure elemental spectra of the database, see Figure 2.

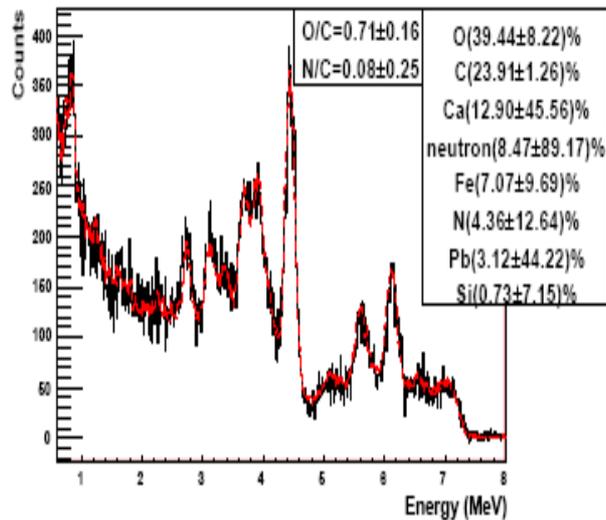


Figure 2. Example of an energy spectrum for a paper thick target. The dashed red line in the energy spectrum corresponds to the fit with a linear combination of the pure element spectra. The deconvolution into elemental contribution is also presented.

However, when statistical fluctuations are large, the unfolding can identify elements that are not present in the inspected item. To better appreciate the relevance of the results provided by the unfolding, large sets of synthetic spectra are produced from the measured energy spectrum, in which the bin contents are modified according to a Gaussian law. The standard deviation of each bin is equal to the square root of the number of counts according to a Poisson counting statistics. All these synthetic spectra are unfolded and the count fractions distributions for all elements are plotted, as shown in Figure 3 with experimental data. In Figure 3, elements which are likely to exist in the inspected object appear with a well defined Gaussian-shaped distribution, the width of which indicates the uncertainty associated to the element count fraction. In the opposite way, an element which would be detected by accident shows a flat distribution. Note also that, in the histograms shown in Figure 3, a zero bin allows to account for the non-detection probability for each element.

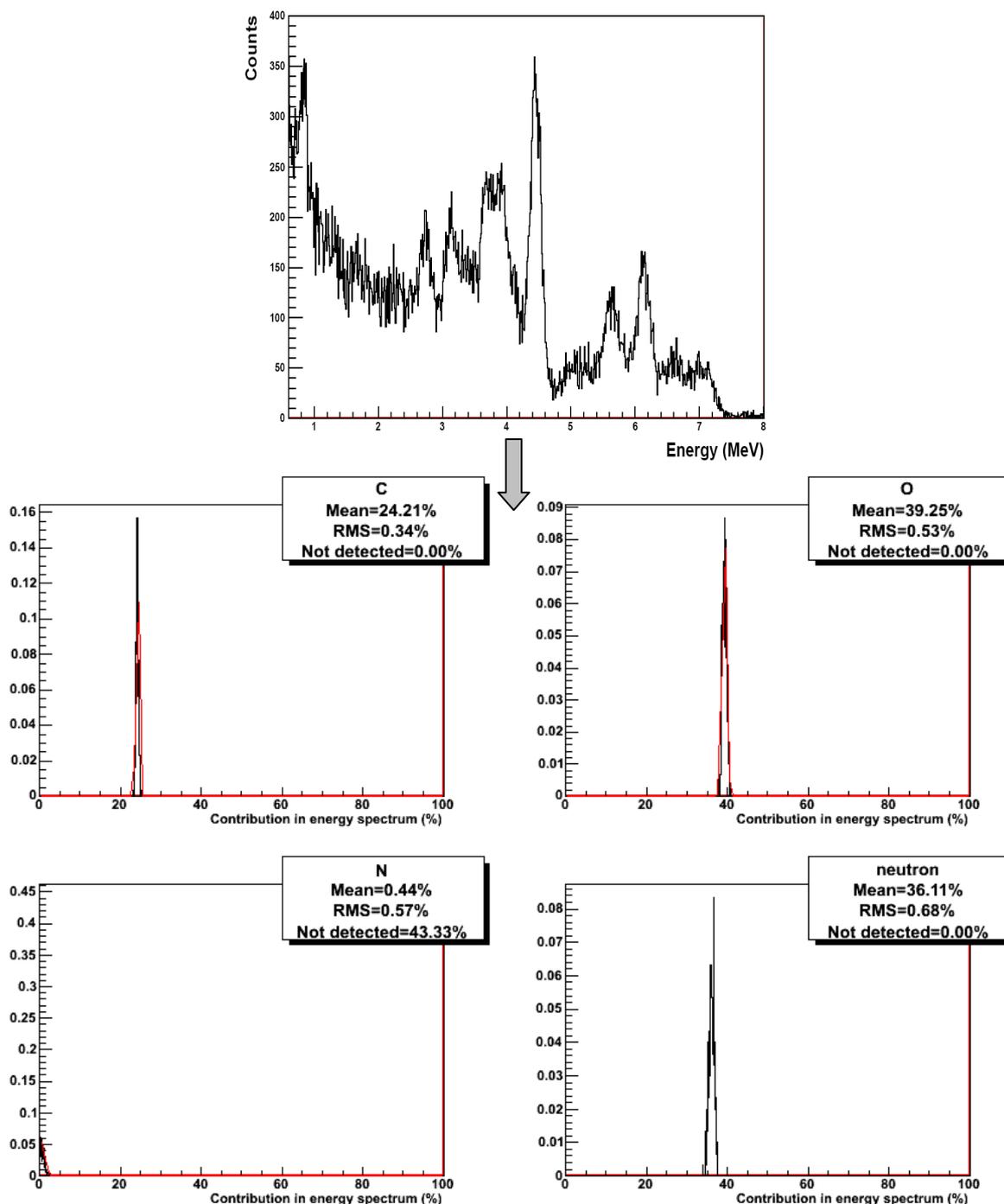


Figure 3. Distribution of the pure elements count fractions (below) deduced from the unfolding of 1000 calculated synthetic spectra generated from the experimental energy spectrum. The distributions of the element fraction (in black on the right curves) are fitted with Gauss functions (red).

Conversion of C, N, and O count ratios into chemical proportions

It is necessary to use correction factors to convert the unfolded O/C and N/C count fractions into chemical ratio which are of first importance for the explosives and narcotics identification. The C/O and C/N correction factors, respectively τ_n and τ_o , depend essentially on the density, atomic number and mass attenuation coefficient of the materials in which the neutrons and gamma rays are transported, and on the detection efficiency of the NaI(Tl) scintillators. τ_n and τ_o have been estimated with the MCNP code for the 5"×5"×10" NaI(Tl) detector, using different matrixes (iron, ceramic and organic matrixes), by dividing the O/C

and N/C unfolding count ratios by the real chemical ratios. In view to demonstrate possible biases in the determination of the chemical C, N, and O proportions from the measured gamma-ray spectra, realistic inspection simulations have been performed with blocks of TNT ($C_7H_5O_6N_3$) and cocaine hydro-chlorine ($C_{17}O_4H_{22}NCl$) placed in different positions inside containers filled with the three main categories of goods: iron, materials mainly containing SiO_2 (glass, ceramic, fiberglass wool...), and wood ($H_{31}C_{22}O_{12}$).

The relative error on O/C and N/C chemical ratios deduced from the simulated spectra by using the appropriate conversion factors τ_n and τ_o (for each matrix and TNT or cocaine position) are calculated using the following formula:

$$\Delta(\%) = \frac{\text{Ratio deduced from the simulated spectrum} - \text{True chemical ratio}}{\text{True chemical ratio}} \times 100$$

The bias ranges observed for iron, silicon dioxide and organic matrixes have been used to associate systematic uncertainties to τ_n and τ_o with a uniform probability density function (PDF) for each matrix.

Barycentric representation

The relative proportions of carbon, oxygen and nitrogen can be represented in a barycentric representation, originally used in particle physics to study three body decays. The barycentric representation is based on the fact that, given any point P inside an equilateral triangle, the sum of distances from P to the three triangle sides is constant. The fractions c, n and o, of carbon, nitrogen and oxygen, are normalized to get a new set of variables: $c_{\perp} = c / (c + n \times \tau_n + o \times \tau_o)$, $n_{\perp} = n \times \tau_n / (c + n \times \tau_n + o \times \tau_o)$ and $o_{\perp} = o \times \tau_o / (c + n \times \tau_n + o \times \tau_o)$, such that $c_{\perp} + o_{\perp} + n_{\perp} = 1$.

These three variables describe any point P $(1/\sqrt{3}(c_{\perp} - o_{\perp}) + d/2; d\sqrt{3}/2 - (o_{\perp} - c_{\perp}))$ with perpendicular heights c_{\perp} , o_{\perp} and n_{\perp} in the equilateral triangle with side lengths $d = 2/\sqrt{3}$, as illustrated in Figure 4.

Using the uncertainties on c, n, and o estimated from the synthetic spectra unfolding and the PDF associated to τ_n and τ_o , a large set of points P are produced by a Monte Carlo approach to fill a two-dimensional histogram, as the one shown in Figure 4. Once normalized, the two-dimensional histogram represents the PDF of the measurement and allows to calculate the likelihood that can be associated to different materials which are thus sorted according to the similarity of their C, N, and O proportions with the measured data, as shown in Figure 4.

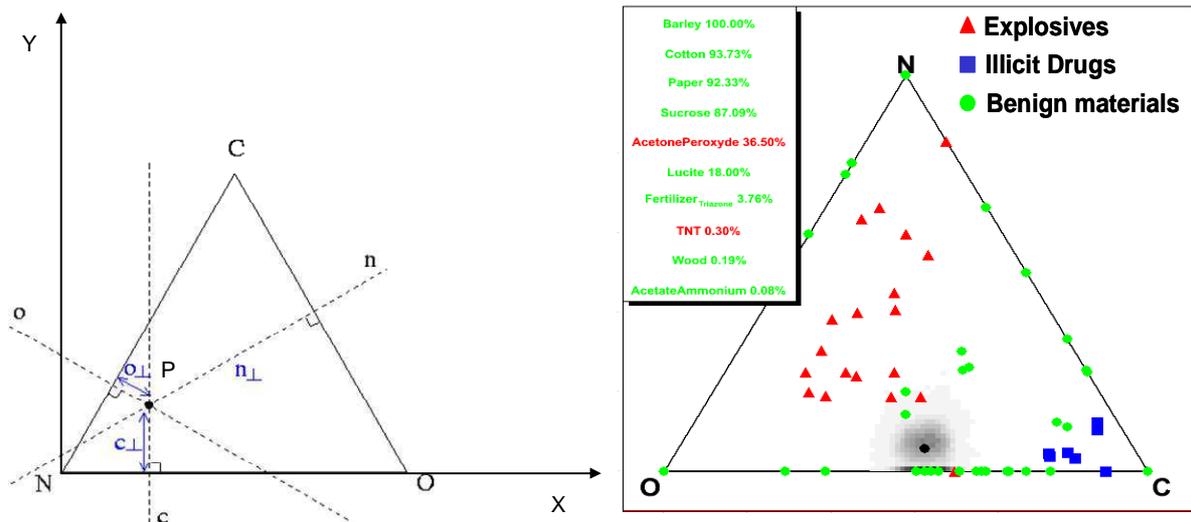
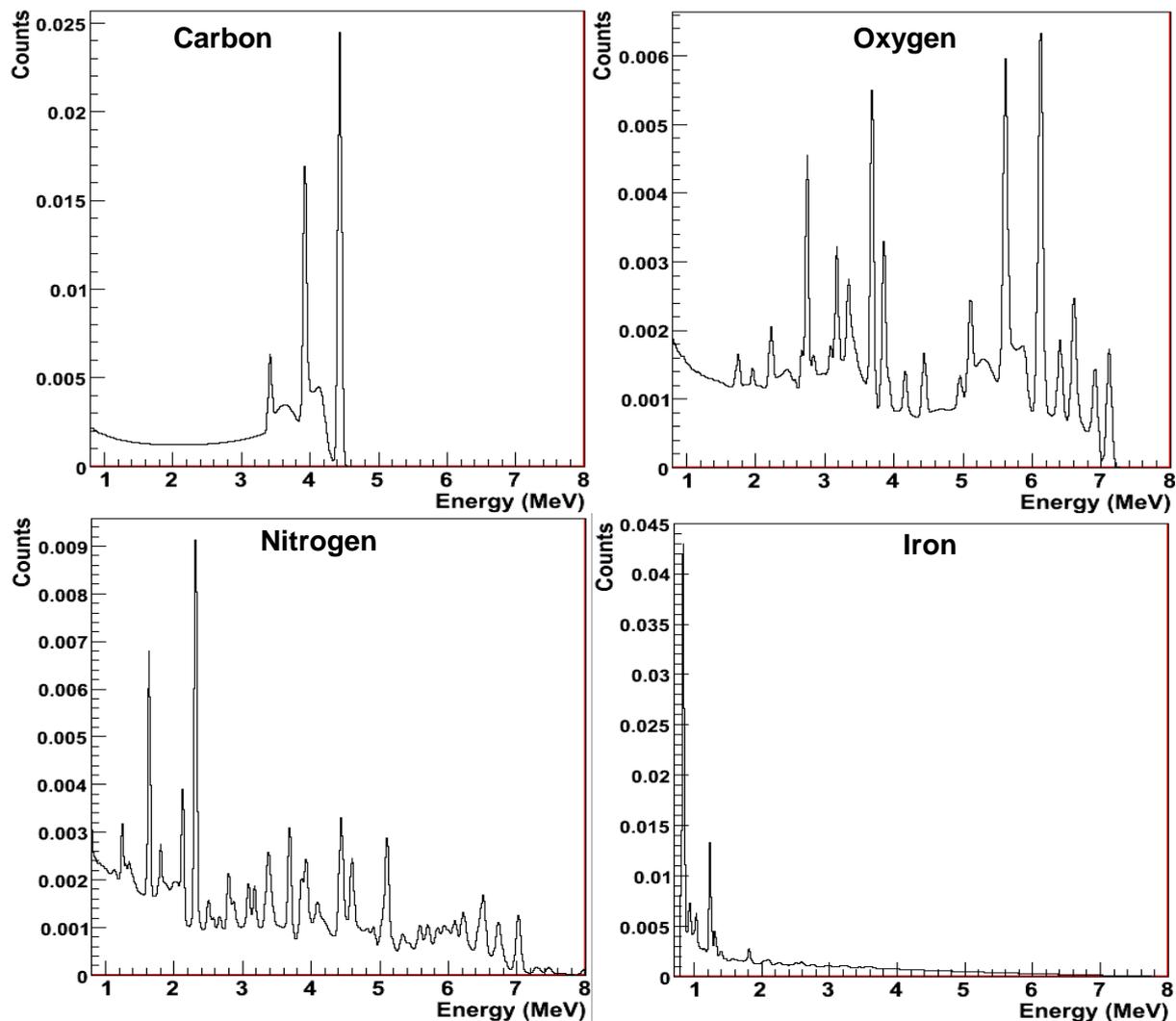
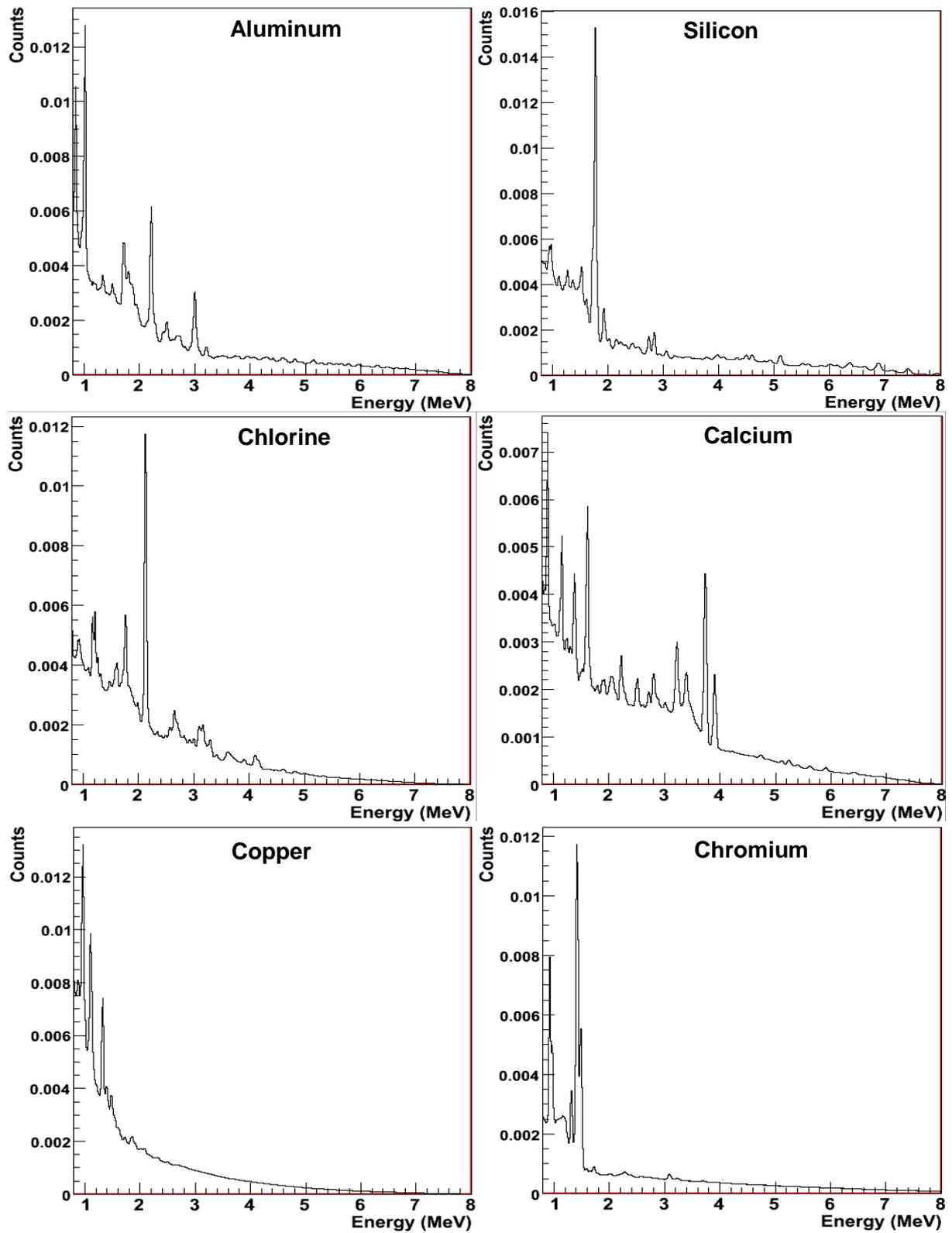


Figure 4. Barycentric diagram of the carbon, nitrogen and oxygen amounts of the illicit and benign materials. The red triangles represent the explosive material, the blue squares represent illicit drugs and the green full circles represent benign materials. The black dot indicates the measured fractions extracted from the paper spectrum shown in Figure 3. The grey uncertainty area around the dot has been obtained with a Monte Carlo approach including systematic and statistical uncertainties.

Appendix 3 – Gamma spectra of the LaBr₃(Ce) detector

The gamma-ray spectra produced in a series of pure element materials by 14 MeV neutrons in the LaBr₃(Ce) 3"×3" detector have been calculated with MCNP and the ENDF/B-VII.0 library for C, N, O, Fe, Al, Si, Cl, Ca, Cu, Cr, Na, Ni, Pb, Ti and S, see Figure 5.





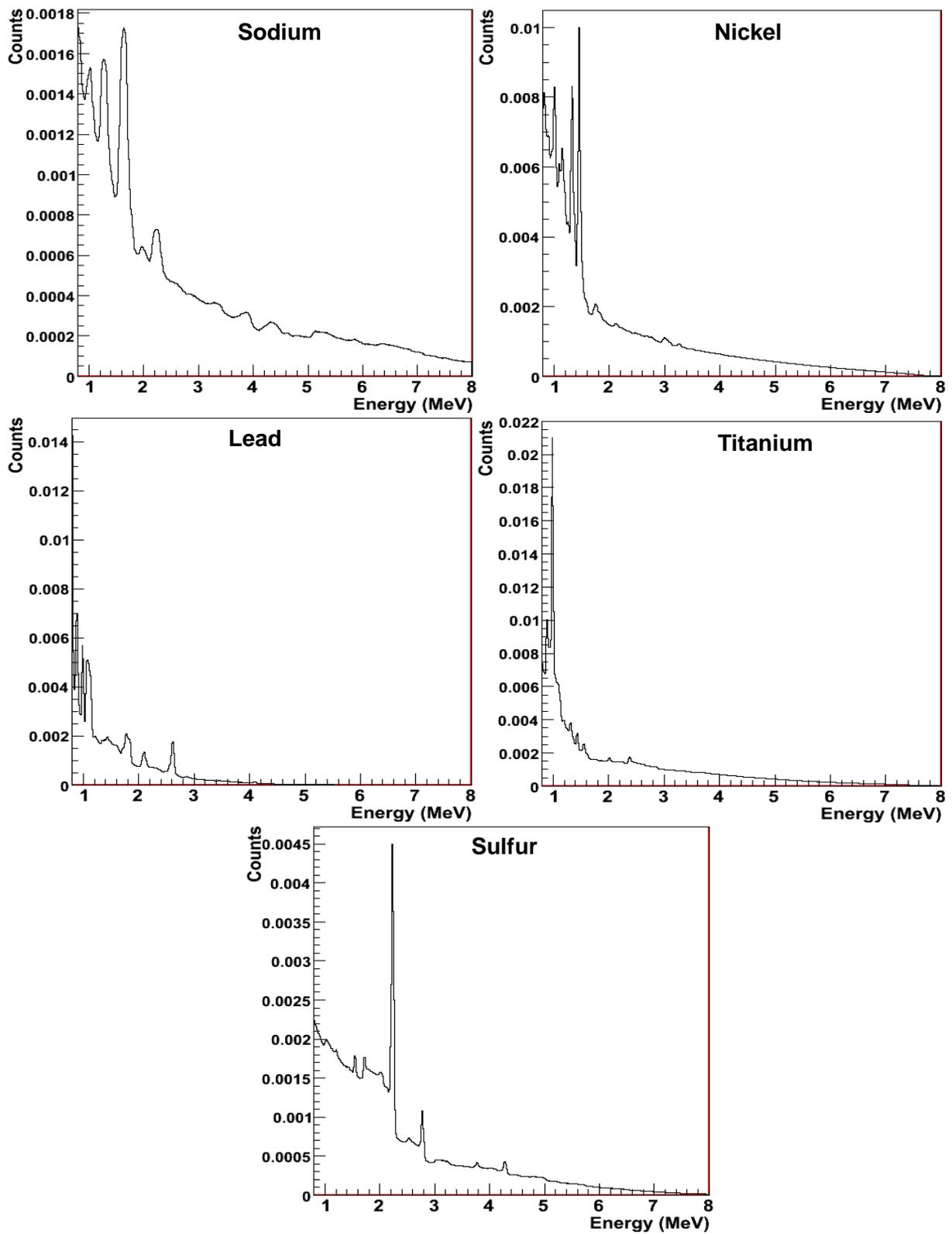


Figure 5. Calculated gamma-ray spectra produced by 14 MeV neutrons.