

Détection de matières dangereuses par interrogation neutronique

P LE TOURNEUR¹, I LEFESVRE¹, M LHUISSIER¹, K SOUDANI¹

¹SODERN, 20 avenue Descartes, 94451 LIMEIL BREVANNES

philippe.letourneur@sodern.fr, isabelle.lefesvre@sodern.fr, miguel.lhuissier@sodern.fr, karim.soudani@sodern.fr

Résumé – La sécurité du territoire passe par un contrôle accru des matières transportées.

Pour répondre au défi sécuritaire du 21^{ème} siècle et limiter les trafics de matières utilisables à des fins terroristes tout en préservant la fluidité des échanges commerciaux, des méthodes appropriées de contrôle et des instruments de détection doivent être mis en œuvre par les Etats.

Dans ce sens, EADS-Sodern développe des techniques d'investigation active et non intrusive, capables d'identifier et de confirmer dans une logique de levée de doute les menaces de type chimique, explosifs et nucléaire. La technique d'interrogation neutronique est une bonne candidate puisqu'elle s'intéresse au noyau atomique et permet ainsi de signer la matière à identifier.

La communication a pour objet de présenter la technique d'analyse neutronique dans sa généralité et de présenter l'Etat de l'art des tubes et chaînes d'acquisition neutronique puis de signaler les pistes d'investissement scientifique et technologique nécessaires pour avancer encore significativement dans ce domaine.

Des exemples de développement récents dans le domaine de la détection des explosifs et des armes chimiques seront présentés. Ils permettent de situer les ordres de grandeur des performances atteignables et d'ébaucher les concepts d'emploi de cette technologie.

Abstract – *Homeland Security needs an improved control of transported materials and items. To take up the 21th century security challenges and mitigate the traffic and smuggling of materials usable for terrorist objectives while preserving the commerce fluidity, adapted tools and methods must be put in place by states. In that way, EADS Sodern is developing techniques for active and non intrusive investigation, able to identify and confirm (removing any doubt) chemicals, explosive or nuclear threats. Neutron interrogation technique is a good candidate as it addresses the atom composition of matter. The aim of the communication is to present the neutron analysis technique and its state of the art then to outline the ways of the technical and scientific works which are necessary for significant improvement of the results. Exemples of recent development in the field of explosive and chemical detection will also be presented. They allow to guess the achievable performances and to draw the concept of use of the technology.*

1. Introduction

L'utilisation des neutrons pour l'analyse de la matière est répandue dans l'industrie et les laboratoires et connue pour ne pas avoir de technologie concurrente dans nombres de situations. L'analyse des principaux composants atomiques (au-delà de 1 pour mille en masse) d'une matière en vrac comme le minerai entrant dans un procédé industriel (« minerai de calcaire » pour faire du ciment, minerais de cuivre, de nickel, charbon,...) en est un bon exemple. En réalité, compte tenu de certains inconvénients de cette technologie (découlant quasiment tous des aspects de sécurité : impact sur les coûts de développement, sur le design des instruments, leur réalisation, sur l'attitude du public, etc ...) qui sont bien réels mais souvent amplifiés, on lui fait appel quand aucune autre solution technique satisfaisante n'a pu être trouvée... Les développeurs de solutions neutroniques, comme nous sommes à Sodern,

n'ont alors à traiter que des problèmes semblant très ardu : identification de produits chimiques au sein d'un container métallique étanche de plusieurs centimètres d'épaisseur, identification de matière explosive dans un bagage posé dans l'angle d'un mur sans toucher au bagage, mesure de la quantité de soufre dans un charbon défilant sur une bande convoyeuse à 2 mètres par seconde en direction du four d'une centrale thermique, détection et /ou mesure de matières fissiles résiduelles dans 200 kilos de déchets technologiques ou cachées dans un conteneur...

Le contexte de la lutte anti-terroriste depuis 2001 a suscité l'émergence de nouvelles applications où le neutron est parfois la seule solution mais pour lesquelles la technologie neutronique est encore insuffisamment avancée pour permettre la réalisation d'instruments opérationnels immédiatement disponibles. Ces nouvelles applications sont en effet particulièrement exigeantes,

beaucoup plus notamment que les applications d'analyse de la matière en vrac : la connaissance de la composition moyenne d'échantillons de quelques tonnes convient alors que la détection d'un kilogramme d'explosif dans un objet nécessitera d'établir avec une bonne fiabilité la composition moyenne de chaque kilogramme de l'objet...

Nous nous proposons dans cette présentation de dresser l'état de l'art et d'évoquer les perspectives de cette technologie d'interrogation de la matière dans le domaine de la sécurité.

2. Principes de l'interrogation neutronique

2.1 Généralités

Un équipement d'interrogation neutronique comprend au minimum une source de neutrons – ces neutrons vont « interroger » l'objet en étant dirigés vers lui – et un détecteur – ce détecteur a pour mission de détecter, identifier, caractériser les rayonnements ou particules que l'objet va émettre sous l'impact des neutrons. Les rayonnements gamma sont les réponses de la matière les plus intéressants pour l'identifier : leur énergie, c'est-à-dire aussi leur longueur d'onde, est déterminée par les niveaux d'énergie des atomes heurtés par les neutrons. Ces niveaux d'énergie sont spécifiques des atomes et les rayonnements gamma associés signent donc l'atome émetteur que l'on identifie donc.

Schématiquement il y a 3 catégories de sources de neutrons : les sources isotopiques (le californium 252 est une des plus connues), les accélérateurs qui créent des neutrons par une réaction nucléaire obtenue en projetant des projectiles adaptés sur une cible (Deutérium sur tritium est une des plus connues, correspondant à la « fusion de l'hydrogène »), et enfin les réacteurs nucléaires. Pour des raisons de sécurité (sources isotopiques) et d'encombrement (réacteurs), seuls les accélérateurs sont envisageables dans les applications de sécurité. Les générateurs de neutron portables que fabrique SODERN sont des petits accélérateurs. L'application pourra utiliser des neutrons « rapides » (tels que ceux fournis par un tube) ou des neutrons « thermiques » (c'est-à-dire des neutrons lents provenant du ralentissement des premiers), ces 2 catégories de neutron engendrant des réactions différentes plus ou moins intéressantes suivant les corps visés.

Les détecteurs susceptibles d'être utilisés dans ces applications ont généralement pour mission donc de détecter et de mesurer l'énergie des rayonnements gamma émis par l'objet. Cette mesure est obtenue soit en convertissant l'énergie en lumière (utilisation de scintillateurs) mesurée ensuite par un photomultiplicateur, soit en convertissant cette énergie en électrons dont on mesure ensuite le nombre (utilisations de semi

conducteurs). Les 2 caractéristiques importantes sont la capacité à mesurer finement l'énergie (résolution) et l'efficacité de détection.

2.2 Le tube neutronique

Les tubes neutroniques sont donc des accélérateurs. Ils utilisent la fusion de l'hydrogène qui est la réaction « neutronigène » la plus facile à mettre en œuvre du fait d'une section efficace élevée. Le principe est d'accélérer des ions (deutérium ou tritium), produits par une source d'ions, vers une cible qui contient des atomes de même type (tritium ou deutérium). Leur rencontre produit un neutron et une « particule associée » qui est, soit un noyau d'Hélium 3 (production de neutrons de 2.45 MeV par réaction deutérium-deutérium), soit un noyau d'Hélium 4 (production de neutrons de 14 MeV par réaction deutérium-tritium). La tension d'accélération est de l'ordre de 100 kV pour bénéficier d'une section efficace importante comme le montre la figure 1 qui donne la section efficace (probabilité de la réaction) en fonction de l'énergie d'accélération.

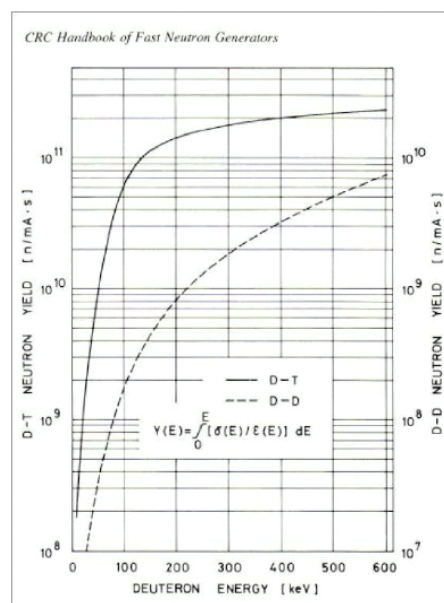


Figure 1 : section efficace de production des neutrons par les réactions DD et DT

L'énergie des neutrons (dans le cas de l'utilisation de la fusion de l'hydrogène) est fixée par la nature : soit 2.45 MeV (réaction DD), soit 14 MeV (réaction DT). Le seul degré de liberté réside uniquement dans le nombre de neutrons produits par unité de temps. L'émission typique des générateurs de neutron « industriels » est de l'ordre de 10^7 n/s à 10^{11} n/s.



Figure 2 : tube neutronique Sodern (diamètre 36 mm)

Deux fonctionnalités extrêmement importantes pour l'utilisation des tubes neutroniques dans les applications d'analyse peuvent être utilisées :

- la capacité de pulser l'émission neutronique (exemple = émission de pulses de 200 μ s de large chaque 8 ms soit 125 Hz, ou des pulses de 100 μ s tous les 500 μ s soit 2 kHz). Le « mode pulsé » permet de décaler dans le temps l'émission de neutrons et l'écoute de la réponse de l'objet ce qui permet de gagner en signal sur bruit. Ceci n'est évidemment possible que si effectivement le retour des rayonnements utiles de l'objet est décalé. C'est le cas lorsqu'on utilise comme vecteur d'information la « capture neutronique » basée sur la réaction des neutrons thermiques (lents) avec les atomes. Le décalage temporel entre l'émission des rapides et l'information donnée par les neutrons lents est obtenu grâce au temps nécessaire au ralentissement des neutrons par chocs successifs dans la matière. Cette fonctionnalité est généralement obtenue en modulant la source d'ions du tube.
- La capacité à détecter la particule associée au neutron. Comme dit plus haut, soit un noyau d'Hélium 3 (2 protons et un neutron), soit un noyau d'Hélium 4 (2 protons et 2 neutrons) en fonction de la réaction utilisée : DD (remplissage du tube en gaz deutérium uniquement) ou DT (remplissage à 50-50 de deutérium et de tritium) est créé en même temps que le neutron. Cette particule est émise en direction opposée du neutron. Sa détection, qui ne peut être réalisée que par un détecteur placé au sein du tube car ces particules chargées sont rapidement arrêtées par la matière, apporte donc 2 informations : 1 – un neutron vient d'être émis ; 2 – ce neutron a pris telle direction. Ceci est particulièrement utile pour certains types d'applications qui utilisent les réactions des neutrons rapides sur la matière comme on le verra dans le paragraphe suivant. La difficulté de cette technique réside dans la précision que l'on devra avoir dans la détection des particules pour tenir les performances de

l'application : la précision temporelle (date de l'émission) et la précision spatiale (direction prise par le neutron).

2.3 Les détecteurs

Comme dit plus haut 2 options techniques existent :

- les scintillateurs
- les diodes semi-conductrices.

Les caractéristiques principales sont pour les scintillateurs :

- une efficacité intrinsèque acceptable (probabilité de quelques dizaines de % d'intercepter un rayonnement gamma) associée à la possibilité d'avoir des détecteurs de grands volumes et surfaces,
- Une résolution énergétique faible par rapport au besoin (5 à 20 % pour donner un ordre de grandeur).
- Un coût modeste lorsque l'application ne nécessite pas d'avoir une grande surface de détection et qu'on peut donc se contenter de quelques unités.

Les scintillateurs les plus utilisés dans notre domaine sont l'iodure de sodium (NaI, mis au point il y a 60 ans) et le germanate de bismuth (BGO, 30 ans). De nouveaux scintillateurs à base de Lanthane (LaBr₃, LaCl₃,...) très performants en résolution arrivent sur le marché, malheureusement à des prix assez élevés.

Pour ce qui concerne les diodes semi-conductrices, le Germanium Hyper pur (HPGe) est dominant. Ses caractéristiques sont :

- une efficacité intrinsèque acceptable (un peu plus faible que celle des scintillateurs) mais une limitation à des volumes assez réduits donnant au global une efficacité faible,
- une résolution en énergie très bonne de l'ordre de 20 fois au moins meilleure que celle des scintillateurs,
- un coût élevé.

Les applications de sécurité de la technologie neutronique d'une manière générale consistent en la caractérisation d'un objet : bagage qui défile sur une bande (contrôle de bagage de soute) ou non (bagage abandonné), colis, container. Les rayonnements gamma qu'il va émettre sous l'action des neutrons ne sont malheureusement pas dirigés : ils sont émis sous 4 π stéradians. Pour limiter à la fois le nombre de neutrons nécessaires à l'interrogation

(dans un but de réduire les doses) et le temps d'analyse, il faudrait idéalement entourer l'objet de détecteurs. C'est techniquement faisable (tunnel de détection) et ne pose pas de difficulté pratique sauf que le coût devient rapidement prohibitif.

On a une certaine tendance à considérer le tube neutronique comme étant le composant critique des applications d'analyse neutronique. Y compris sur le plan financier, or le prix d'un tube correspond approximativement à 0.2 m² de détecteurs (scintillateurs)... Cette tendance est donc infondée et les limites de performances sont souvent la traduction des limites technologiques de la détection qui se traduisent in fine par des coûts élevés. En conséquence les progrès à faire les plus importants relèvent de ces aspects de détection.

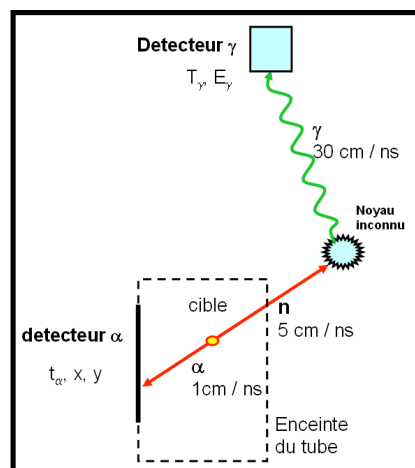


Figure 3 : principe de la technique de la particule associée

3. La technique de la particule associée

Cette technique particulière qui nécessite donc la mise en place d'un détecteur de « particule associée » dans le tube apporte 2 avantages importants :

- elle permet d'obtenir un meilleur rapport signal / bruit (de l'ordre d'un facteur compris entre 10 et 100) de la mesure des gammas issus de la diffusion inélastique des neutrons rapides (à distinguer donc des neutrons lents) sur la matière,
- elle permet de localiser l'origine géométrique du rayonnement gamma détecté.

Cette technique est connue depuis qu'on a imaginé faire des tubes neutroniques à partir de la fusion de l'hydrogène (voir la référence [2] présentant en 1962 le principe d'un tube à particule associée). Elle est particulièrement adaptée à la détection d'explosifs : d'une part carbone et oxygène notamment, composants présents dans la plupart des explosifs, sont très sensibles à la diffusion inélastique des neutrons et d'autre part et surtout la localisation des gammas est indispensable. Elle seule permet en effet de « deviner » la nature des molécules constituée des atomes que les neutrons ont identifiés. Sans cette capacité de localisation, l'analyse d'un bagage se solderait par la liste des atomes qui la compose sans idée des molécules qu'ils peuvent former entre eux. Avec cette capacité qui regroupe les atomes par volumes élémentaires, la nature des produits formés peut être estimée.

Le neutron quitte la cible dans une direction quelconque (non maîtrisable) à une vitesse (fixe) d'environ 5 centimètres par nanoseconde (correspondant à une énergie de 14 MeV) . Le noyau d'hélium 4 (dit particule alpha) part dans la direction opposée à une vitesse (fixe) de l'ordre du centimètre par nanoseconde (correspondant à une énergie de l'ordre de 3 MeV). Elle est détectée dans le détecteur alpha à l'instant t_α (mesuré avec une certaine précision) en un endroit (x,y) (mesuré avec une certaine précision). Le point (x,y) et la cible, dont la particule alpha est sortie, déterminent une droite représentant la trajectoire sur laquelle le neutron se déplace, qui devient donc connue dès lors que l'on a l'information (x,y). Le neutron rencontre l'atome inconnu qui émet alors un rayonnement gamma se déplaçant à la vitesse de la lumière (30 cm / ns). Sa détection par le détecteur gamma permettra de connaître son énergie E_g qui permettra d'accéder à la nature de l'atome. Les instants de détection t_α et t_γ (respectivement instants de détection de l'alpha et du gamma) permettent de connaître les temps de vol cumulés du neutron et du gamma dont on déduit, grâce à la connaissance a priori des vitesses, la position du point sur la trajectoire du neutron où il a rencontré l'atome dont a mesuré le gamma caractéristique.

La précision de la localisation dépend de la précision de mesure des temps : une erreur de 1 nanoseconde entraîne une erreur de 5cm. On mesure donc l'exigence en terme de physique des détecteurs (les détecteurs précis mais lents dans la genèse de leur signal ne peuvent a priori être employés)) et d'électronique de mesure. Cette exigence explique d'ailleurs pourquoi il a fallu attendre pratiquement 50 ans pour que les tubes imaginés dans les années 60 soient enfin réalisés et utilisés dans des applications à but opérationnel.

La capacité de cette technique neutronique à établir une cartographie en 3 dimensions des atomes constituant un

La figure 3 présente le principe de la technique.

objet est totalement inédite. Son inconvénient est sa lenteur relative due au fait que l'image est obtenue par l'accumulation de coups individuels traités un à un. On ne peut obtenir une réponse par un seul « flash ».

4. L'état de l'art à Sodern

Sodern fabrique des tubes neutroniques depuis 45 ans et de générateurs de neutrons pour l'industrie depuis 20 ans. Les systèmes d'analyse neutronique basés sur des techniques conventionnelles (n'utilisant pas de tube à particule associée) sont commercialisés dans les industries du ciment, du charbon et des mines depuis une dizaine d'années.

Dans le domaine de la sécurité, les premiers travaux ont concerné les armes chimiques, la technologie neutronique étant la seule capable de résoudre le problème de l'identification d'un composé chimique dans une munition étanche. Cette application résulte des besoins d'identification des vieilles munitions datant de la première guerre mondiale que l'on retrouve au fil du temps dans le Nord Est de la France (et ailleurs : Belgique, Angleterre, Etats-Unis, Chine, Japon, ...) et des besoins de contrôle faisant suite au traité signé par 183 pays ayant trait à l'interdiction de la fabrication d'armes chimiques. Dans ce cadre, Sodern a récemment livré à l'OPCW (Organisation for the Prohibition of Chemical Weapons) un instrument d'expertise baptisé NIPPS (Neutron-Induced Prompt Photon Spectrometer) permettant l'analyse de munitions. Cet équipement est basé sur l'utilisation d'un tube « DD » (c'est-à-dire sans tritium), émettant environ $2 \cdot 10^7$ neutrons de 2.45 MeV par seconde et d'un détecteur unique de type HPGe (Germanium). Les 2 caisses de transport contenant les modules de détection et d'émission sont représentés en figure 4. Il n'est pas nécessaire de sortir les matériels qui peuvent être utilisés en restant dans leur caisse.



Figure 4 : les modules d'émission et de détection du NIPPS (et un objet en bas à droite)

Les éléments identifiés et les limites de détection correspondantes (en grammes, pour un intervalle de confiance de 97.5%) sont les suivants pour une acquisition de 30 minutes :

P	S	As	Cl	Br	I	Ti	H	F
40	90	20	15	60	95	25	30	20

Un système portable utilisant cette fois un détecteur de type scintillateur (LaBr3) est à l'étude.

Dans le domaine de la technologie de la particule associée, un travail important a été réalisé à la fois sur les composants et les aspects systèmes.

Au niveau composant, nous avons développé un tube neutronique à particule associée dont aujourd'hui une dizaine d'exemplaires ont été fabriqués. Parmi ceux-ci le tube qui a été utilisé par le projet Euritrack [3] dont le détecteur alpha à base de YAP a été développé par INFN (Istituto Nazionale de la Fisica Nucleare).

Notre tube aujourd'hui peut émettre jusqu'à 10^9 n/s (sachant qu'en pratique il n'est pas utilisé aujourd'hui au-delà de 10^8 n/s pour des raisons de coïncidences fortuites entre événements), a une durée de vie (non vérifiée expérimentalement) estimée à quelques milliers d'heures. L'angle solide utile correspondant à l'angle d'émission de neutrons dont on peut détecter la particule associée a un angle au sommet de 60° . La surface de détection du détecteur alpha est de 25 cm^2 ($5 \text{ cm} \times 5 \text{ cm}$). La précision temporelle sur la mesure de la particule alpha est de l'ordre de la nanoseconde alors que la précision spatiale est de l'ordre de 2 mm (ce qui conduit à une précision spatiale de l'interaction neutron matière de l'ordre de 2 cm à 50 cm de la cible du tube). La prochaine étape de développement consistera d'une part à élargir considérablement l'angle solide de façon à élargir le champ utile et d'autre part à développer une version miniaturisée permettant la réalisation d'instruments de détection portables. Dans la rubrique de la chaîne d'acquisition, un effort important a également été réalisé pour la conception et la réalisation de cartes d'acquisition rapides capables de traiter les coïncidences d'événements entre détecteurs. Notre système actuel gère 120 détecteurs gamma constituant l'ossature d'un détecteur d'explosif dédié aux bagages de soute (application aéroport). Enfin le troisième point majeur sur l'aspect des composants est le développement des logiciels et algorithmes spécifiques qu'exige cette technique. Ils couvrent essentiellement 3 domaines relativement distincts:

- le domaine de la reconstruction des images 3D . Ceci consiste pour chaque rayonnement détecté à calculer la localisation dans l'espace du point dont il a été émis et à cumuler toutes ces informations pour aboutir à l'image de l'objet.

- le domaine relatif à la décomposition des spectres en contributions élémentaires. Il s'agit là des algorithmes qui vont permettre de convertir un spectre (c'est-à-dire un

histogramme énergie – nombre d'événements) en densité de présence d'éléments simples. Dans la problématique de la détection explicitée plus haut, cet aspect prend une grande importance, l'enjeu étant d'identifier les atomes présents avec le moins possible d'événements...

- le domaine relatif à la « décision ». Cet aspect est également très important en terme de performance finale. Il s'agit des algorithmes qui, à partir des seules informations de densité et de présence d'éléments simples par unités de volume, vont permettre de reconnaître des matières à partir d'une base de données et vont permettre de communiquer à l'utilisateur (ou au système superviseur) des probabilités de présence de tel ou tel produit, en l'occurrence d'explosifs ou de produits chimiques dans la plupart des applications de sécurité.

Après ces développements de composants et sous ensembles matériels et logiciels, des démonstrateurs ont été réalisés notamment dans le domaine de la détection des mines (détection effective de mines enterrées jusqu'à 30 cm dans le sol). Nous sommes maintenant dans une phase d'intégration de systèmes qui doit nous permettre de proposer sur le marché des solutions possibles pour la détection de matières illicites.

5. Perspectives et conclusion

La capacité de la technologie neutronique à résoudre un certain nombre de problèmes d'inspection d'objet dans un but de détection de matières illicites est absolument indéniable. Jusqu'à aujourd'hui la preuve par la démonstration sur le terrain d'une application commerciale n'a pas été réellement apportée (alors que des applications industrielles fonctionnent dans d'autres domaines). Nous estimons que ceci est dû essentiellement à l'immaturité de la technologie dont la réussite implique la tenue de challenges technologiques dans les domaines que nous avons vus : tube neutronique, détection alpha, électronique d'acquisition, algorithmie.

A court terme des démonstrations significatives devraient être apportées dans les applications où le volume interrogé reste de taille modeste : colis ou bagages avec des systèmes en ligne (fixes) ou au contraire des systèmes portables. Les capacités devraient être de pouvoir détecter des masses de matière inférieures au kilogramme dans des temps de l'ordre de la minute (systèmes portables) ou de la dizaine de seconde (systèmes fixes). Dans ce dernier cas, les performances seront très significativement améliorées avec l'association à un système d'acquisition à rayons X : les rayons X identifient les objets par leur forme et leur position, les neutrons caractérisent leur matière. La connaissance de la frontière entre ces objets acquis par les

rayons X est une donnée importante pour le traitement pertinent de l'information neutron. Il semble qu'un travail extrêmement important est à réaliser sur l'algorithmie et le traitement d'image. Les analogies de la technique de l'imagerie 3D neutron avec la tomographie X et avec les techniques de PET (Positron Emission Tomography), qui est également une technique de coïncidence, devraient permettre des avancées significatives.

D'ici quelques années on devrait voir se développer la diffusion de systèmes portables de levée de doute pour l'équipement d'équipes d'intervention (« first-responders »). Les progrès techniques (miniaturisation, algorithmie) devraient en effet permettre d'avoir des performances satisfaisantes (bonne probabilité de détection en peu de temps) associée à une utilisation facile et sûre. Ce dernier point de la sécurité, que nous n'avons pas abordé dans ce papier, nécessitera des réponses techniques (allant dans le sens de la diminution de l'émission neutronique pour une quantité donnée d'information en retour) et des réponses réglementaires basées sur une juste analyse des nuisances induites par de tels systèmes dont le caractère nouveau fait que la réglementation existante ne les prend pas en compte. A noter que nous commençons à aborder cette question dans le cadre du projet BINGO [4] supporté par l'ANR avec la contribution de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire.

Les gros systèmes paraissent à portée plus lointaine. Les investissements nécessaires sont notamment importants sur le poste de la détection. Des progrès significatifs sur ces aspects sont nécessaires pour ne pas dépasser des limites prohibitives.

Références

- [1] J.Csikai, *CRC Handbook of Fast Neutron Generators*, CRC Press, Boca Raton, 1987.
- [2] J. Wood. A sealed-off 14 MeV neutron source incorporating a solid state alpha-particle detector. *Nuc. Inst. And Meth.* 21 (49-62) 1963.
- [3] www.euritrack.org
- [4] Briques pour une Imagerie Neutron Gamma Opérationnelle. Projet ANR-07-CSOSG