



**HAL**  
open science

# Etude d'un système d'identification de matériaux par diffraction de rayons X à partir d'acquisitions spectrométriques multi pixels

Bahaa Ghammraoui

► **To cite this version:**

Bahaa Ghammraoui. Etude d'un système d'identification de matériaux par diffraction de rayons X à partir d'acquisitions spectrométriques multi pixels. Autre. INSA de Lyon, 2012. Français. NNT : 2012ISAL0081 . tel-00863855

**HAL Id: tel-00863855**

**<https://theses.hal.science/tel-00863855>**

Submitted on 19 Sep 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

# Etude d'un système d'identification de matériaux par diffraction de rayons X à partir d'acquisitions spectrométriques multi pixels

présentée devant  
L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon

pour obtenir  
le grade de docteur ès Sciences

École doctorale  
Électronique, Électrotechnique et Automatique de Lyon  
Spécialité : STIC santé

Soutenance prévue le 20 septembre 2012

Présentée par  
Bahaa GHAMMRAOUI

## Jury

<i>Rapporteurs :</i>	Jean-Louis HAZEMANN	CNRS UJF Grenoble
	Philippe WALTER	CNRS UPMC Paris 6
<i>Examineurs :</i>	Stéphanie ESCOUBAS	CNRS IM2NP Marseille
	Claude ESNOUF	MATEIS INSA Lyon
<i>Directrice de thèse :</i>	Valérie KAFTANDJIAN	LVA INSA Lyon
<i>Codirecteur de thèse :</i>	Philippe DUVAUCHELLE	LVA INSA Lyon
<i>Invités :</i>	Joachim TABARY	CEA LETI Grenoble
	Pierre BLEUET	CEA LETI Grenoble



## Remerciements

A faire en dernier :-)



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>7</b>
<b>I Principes physiques pour la technique de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie</b>	<b>11</b>
I.1 Interaction matière et rayonnement . . . . .	12
I.1.1 Effet photoélectrique . . . . .	12
I.1.2 Diffusion incohérente . . . . .	12
I.1.3 Diffusion cohérente . . . . .	12
I.1.4 Production de paires . . . . .	13
I.1.5 Dépendance avec l'énergie et le $Z$ du matériau . . . . .	13
I.2 Phénomène d'interférence : la diffraction . . . . .	13
I.2.1 Classification des matériaux . . . . .	13
I.2.2 Formulation de la diffraction de rayons X dans un matériau . . . . .	18
I.3 La physique des détecteurs spectrométriques à semiconducteur . . . . .	23
I.3.1 Paramètres caractéristiques des performances d'un détecteur . . . . .	24
I.3.2 Détecteurs à semiconducteur . . . . .	25
I.4 Conclusion . . . . .	30
<b>II La diffraction : technique innovante pour la détection des explosifs</b>	<b>31</b>
II.1 Etat de l'art des principales techniques de détection des explosifs par rayons X	32
II.1.1 Par transmission classique . . . . .	32
II.1.2 Par transmission bi-énergie . . . . .	33
II.1.3 Par rayonnement rétro-diffusé Compton . . . . .	34
II.1.4 Par tomographie . . . . .	34
II.1.5 En utilisant la méthode multi-énergies . . . . .	35
II.2 Techniques de détection des explosifs par diffraction de rayons X . . . . .	36
II.2.1 Principe général . . . . .	36
II.2.2 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'angle (ADXRD)	36
II.2.3 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD)	37
II.3 Etat de l'art des diffractomètres pour la détection d'explosifs . . . . .	38
II.3.1 Systèmes ADXRD existants . . . . .	38
II.3.2 Systèmes EDXRD existants . . . . .	39
II.3.3 Méthodes de traitement de spectres avec un système de type EDXRD pour l'identification de matériaux . . . . .	51
II.4 Caractéristiques des matériaux explosifs . . . . .	53
II.5 Conclusion . . . . .	60

<b>III</b>	<b>Caractérisation d'un banc de diffraction EDXRD</b>	<b>61</b>
III.1	Présentation du banc expérimental . . . . .	61
III.1.1	Schéma du banc expérimental . . . . .	62
III.1.2	La sonde Minigami . . . . .	63
III.1.3	Calibrage du système . . . . .	64
III.2	Spectres expérimentaux . . . . .	67
III.2.1	Sur des matériaux cristallins simples . . . . .	67
III.2.2	Sur des matériaux polycristallins similaires aux explosifs . . . . .	70
III.2.3	Sur des matériaux amorphes . . . . .	72
III.3	Conclusion . . . . .	77
<b>IV</b>	<b>Modélisation et simulation d'un système de diffraction de rayons X</b>	<b>79</b>
IV.1	Article NIMA "New software to model energy dispersive X-ray diffraction in polycrystalline materials" . . . . .	81
IV.2	Proceeding IEEE "A complete and multi purpose software tool for modeling energy dispersive X-ray diffraction" . . . . .	90
IV.3	Effet du système de collimation sur le spectre en EDXRD (étude par simulation) . . . . .	96
IV.3.1	Effet de la distance (objet-détecteur) . . . . .	96
IV.3.2	Effet du dimensionnement des collimateurs . . . . .	99
IV.3.3	Collimateur à deux fentes Vs collimateur à une fente . . . . .	101
IV.4	Conclusion . . . . .	102
<b>V</b>	<b>Intérêt de la sur-pixellisation pour l'amélioration des performances d'un système EDXRD</b>	<b>105</b>
V.1	Principe et intérêt de la sur-pixellisation . . . . .	106
V.1.1	Principe . . . . .	106
V.1.2	Illustration du gain en résolution angulaire . . . . .	109
V.2	Sur-pixellisation par la méthode de localisation barycentrique . . . . .	112
V.2.1	Principe de la localisation barycentrique . . . . .	114
V.2.2	Résultats du calibrage sur la sonde Minigami . . . . .	118
V.2.3	Interprétation des résultats et améliorations possibles . . . . .	121
V.3	Application de la localisation barycentrique à un système EDXRD pour améliorer ses performances . . . . .	123
V.3.1	Amélioration de la résolution en énergie . . . . .	123
V.3.2	Amélioration de la sensibilité . . . . .	134
V.3.3	Séparabilité de matériaux . . . . .	137
V.4	Conclusion . . . . .	142
<b>VI</b>	<b>Effet des orientations des grains sur le spectre de diffraction en dispersion d'énergie</b>	<b>145</b>
VI.1	Article NIMA "The effect of grain size on the stability of X-ray diffraction patterns for threat detection" . . . . .	146
VI.2	Compléments à l'article . . . . .	154

**Table des matières** **5**

---

VI.2.1 Calcul de l'angle solide et du volume inspecté effectif . . . . .	154
VI.2.2 Calcul de l'angle solide du système tournant . . . . .	155
VI.3 Conclusion . . . . .	155
<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>157</b>
<b>A Annexe 1</b>	<b>161</b>
A.1 Matériaux explosifs . . . . .	161
<b>Bibliographie</b>	<b>167</b>





# Introduction

Après le 11 septembre 2001, la lutte contre le terrorisme est devenue un enjeu majeur. Les consignes de sécurité dans les aéroports se sont renforcées avec l'inspection systématique des bagages enregistrés ou abandonnés par des systèmes de détection de matières illicites. Les études de recherche et de développement dans cette thématique se sont aussitôt multipliées pour concevoir des systèmes de détection aussi performants que possible.

Cette thèse s'inscrit directement dans cette thématique de conception de systèmes de détection par rayons X de substances illicites dans les bagages. Le but est la lutte contre le terrorisme et, en particulier, d'empêcher que des matériaux explosifs soient embarqués à bord des avions ou dissimulés dans des colis abandonnés. Plusieurs systèmes de détection d'explosifs à base de rayon X ont été développés ces dernières années. La plupart - dites techniques d'imagerie par transmission - exploitent l'absorption des rayonnements transmis à travers l'objet examiné. Cette technique, bien qu'étant largement employée à l'heure actuelle dans les aéroports, présente des limitations en termes de caractérisation et séparabilité des matériaux présents dans le bagage.

Par rapport aux mesures par transmission, l'analyse du rayonnement diffracté permet de disposer d'une information beaucoup plus complète sur le matériau inspecté. En effet, la diffraction s'effectue préférentiellement à certaines énergies en fonction des distances inter-atomiques. Dans le cas de structures cristallines, des pics d'énergie apparaissent sur le spectre diffusé et constituent une caractéristique qui diffère potentiellement d'un milieu à l'autre.

Cette technique de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD) nécessite l'utilisation de détecteurs spectrométriques suffisamment résolus en énergie pour permettre la séparation et l'identification des différents pics caractéristiques. Elle est mise en œuvre depuis longtemps dans certains laboratoires pour caractériser la structure cristalline de certains matériaux, mais dans des conditions très spécifiques et inadaptées au contexte de la détection de matériaux illicites dans les bagages.

L'utilisation de détecteurs en CdTe (ou CdZnTe) constitue une solution intéressante : ce semi-conducteur permet d'obtenir des spectres à température ambiante avec une résolution en énergie suffisante pour les besoins de l'identification par analyse de spectres de diffraction. De plus, ces possibilités de pixellisation et d'intégration permettent d'envisager de nouvelles géométries d'acquisition dans des volumes réduits.

Globalement, des gains peuvent être attendus sur les trois critères (durée d'examen, coût, encombrement) qui pénalisent pour l'instant les systèmes en cours de développement.

Les travaux proposés dans cette thèse ont donc pour but d'étudier un système EDXRD utilisant un détecteur spectrométrique CdZnTe multi pixels pour l'identification des matériaux illicites dans les bagages. Une première étape a tout d'abord consisté à prendre en main cette technique à la fois expérimentalement avec un banc de diffraction mis à disposition et théoriquement par le biais du développement d'un outil de simulation. La confrontation entre l'expérimentation et la simulation permet de bien comprendre la physique d'un tel système et de mieux analyser ses faiblesses pour pouvoir les corriger. En nous appuyant sur ces deux outils, nous avons alors consacré la fin de la thèse à l'étude et la mise en œuvre de nouveaux concepts pour exploiter au mieux les possibilités des détecteurs CdTe et améliorer les performances du système EDXRD, en termes de résolution, d'intensité et de stabilité des pics de diffraction.

Ce mémoire se décompose en six chapitres.

Dans le chapitre 1, nous rappelons les principes physiques intervenant dans la technique de diffraction X en dispersion d'énergie (EDXRD). Les différents types d'interactions rayonnement matière sont présentés avant de se focaliser plus en détail sur le phénomène de diffraction X. Enfin, le principe de fonctionnement des détecteurs spectrométriques de type CdTe ou CdZnTe est expliqué en détail.

Le chapitre 2 fait ensuite un état de l'art sur la technique de diffraction pour les applications de sécurité. Nous rappelons dans un premier temps les principales techniques existantes de détection des explosifs par rayon X. Nous expliquons ensuite le principe de fonctionnement des systèmes EDXRD avant de fournir une bibliographie détaillée des systèmes existants ou en cours de développement. Les principales méthodes de traitement de spectres EDXRD pour l'identification de matériaux sont aussi brièvement décrites. Enfin, nous listons les paramètres de structure cristalline pour les explosifs en poudre connus pour pouvoir être dissimulés dans des bagages par les terroristes lors d'attentats dans les aéroports.

Le chapitre 3 fait l'objet d'une prise en main expérimentale d'un système de diffraction en dispersion d'énergie utilisant un détecteur spectrométrique CdZnTe. Tout d'abord, nous présentons le banc expérimental avec les différents éléments le constituant, ainsi que les étapes de calibrage énergétique et angulaire à effectuer. Nous présentons ensuite quelques spectres acquis avec notre système. L'objectif est à la fois de démontrer le potentiel des détecteurs spectrométriques pour la technique EDXRD mais également d'identifier certaines faiblesses sur la résolution, l'intensité et l'instabilité des pics de diffraction. Ces faiblesses font l'objet des études détaillées aux chapitres 5 et 6 et qui aboutissent à des propositions d'évolutions du système.

La simulation est un outil essentiel pour mieux comprendre une technique comme

l'EDXRD qui combine à la fois de multiples phénomènes physiques et une géométrie expérimentale complexe. Le chapitre 4 présente, via deux publications, une description complète de l'outil de simulation développé durant cette thèse et appelé SinFullscat. Le premier papier publié dans le journal NIMA se concentre plus sur le fonctionnement de SinFullscat avec la phase polycristalline des matériaux inspectés. Ce papier montre en détail la modélisation physique effectuée et l'algorithme général implémenté dans l'outil. Le deuxième papier est un proceeding d'une communication réalisée à la conférence IEEE-NSS 2011 à Valence. Il reprend la partie théorique de l'article précédent en ajoutant en détail le modèle amélioré pour les matériaux amorphes. L'outil de simulation est ensuite utilisé pour mener une étude paramétrique et souligner l'influence importante de paramètres comme la réponse en énergie du détecteur et la collimation. SinFullscat est ensuite largement utilisé pour les études présentées dans les chapitres 5 et 6.

Le chapitre 5 présente en détail le développement et les tests d'une méthode innovante visant à améliorer les performances de sensibilité et de résolution d'un système de diffraction en énergie dispersive : la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique. Dans un premier temps, le principe et l'intérêt de la sur-pixellisation sont exposés. Ensuite, nous expliquons comment une sur-pixellisation peut être réalisée de manière virtuelle sur des détecteurs CdTe/CdZnTe grâce à la méthode de localisation barycentrique. Enfin dans la troisième partie, nous montrons par simulation et par expérience l'efficacité de la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique pour améliorer à la fois la sensibilité et la résolution en énergie des spectres EDXRD.

Le chapitre 6 traite du problème aperçu dans le chapitre 3 sur l'instabilité des pics de diffraction due aux orientations de grains des matériaux polycristallins. Une étude détaillée a été réalisée sur cette problématique et a fait l'objet d'un article à NIMA présenté en première partie de ce chapitre. Nous y proposons un modèle pour bien comprendre physiquement l'effet d'orientation des grains sur les spectres EDXRD ainsi que quelques solutions expérimentales pour éviter les fausses alarmes qui en découlent. La deuxième partie du chapitre vise à clarifier quelques points de l'article précité.

Pour finir, un résumé des différents résultats obtenus au cours de cette thèse ainsi que les perspectives qu'ouvrent ces travaux seront proposés.



# Principes physiques pour la technique de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie

---

## Sommaire

<b>I.1</b>	<b>Interaction matière et rayonnement</b>	<b>12</b>
I.1.1	Effet photoélectrique	12
I.1.2	Diffusion incohérente	12
I.1.3	Diffusion cohérente	12
I.1.4	Production de paires	13
I.1.5	Dépendance avec l'énergie et le $Z$ du matériau	13
<b>I.2</b>	<b>Phénomène d'interférence : la diffraction</b>	<b>13</b>
I.2.1	Classification des matériaux	13
I.2.2	Formulation de la diffraction de rayons X dans un matériau	18
<b>I.3</b>	<b>La physique des détecteurs spectrométriques à semiconducteur</b>	<b>23</b>
I.3.1	Paramètres caractéristiques des performances d'un détecteur	24
I.3.2	Détecteurs à semiconducteur	25
<b>I.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>30</b>

---

La diffraction des rayons X est une méthode universellement utilisée pour identifier la nature et la structure des matériaux cristallins. Les rayons X interagissent dans la matière et ils sont soit absorbés complètement par interaction photo-électrique avec les atomes soit déviés par diffusion. Dans le cas de diffusion sans changement de longueur d'onde, des phénomènes d'interférence et de diffraction sont observés. L'analyse des figures ou des spectres de diffraction permet une identification des matériaux.

Afin d'introduire le contexte de ce travail de thèse, nous allons présenter les bases physiques des principales interactions rayonnement X-matière intervenant dans la technique de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD). Nous nous focalisons sur la diffusion cohérente qui prédomine à petit angle.

Cette technique (EDXRD) nécessite la mise en œuvre d'un détecteur spectrométrique suffisamment résolu en énergie pour permettre la séparation et l'identification de différentes caractéristiques. Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous décrivons le principe de fonctionnement d'un détecteur spectrométrique à base de semi-conducteurs et plus spécifiquement à base de CdTe/CdZnTe.

## I.1 Interaction matière et rayonnement

Le rayonnement X peut interagir de plusieurs manières avec un atome : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton, la diffusion Rayleigh et l'effet de création de paires.

### I.1.1 Effet photoélectrique

L'interaction du photon incident a lieu avec un électron du cortège électronique de l'atome, entraînant l'absorption totale du photon et l'éjection de cet électron (appelé le photoélectron), provenant de couches plus ou moins profondes. Le trop plein d'énergie se retrouve dans l'énergie cinétique du photoélectron. Le trou laissé par l'électron éjecté induit par la suite des phénomènes de relaxation qui peuvent être de diverses natures : désexcitation radiative (ou fluorescence) par émission de photons caractéristiques de l'atome cible, ou désexcitation non radiative par émission d'électrons Auger. L'effet photoélectrique engendre l'arrêt du photon X.

### I.1.2 Diffusion incohérente

La diffusion incohérente est aussi connue sous le nom de l'effet Compton. Celui-ci correspond à l'interaction d'un photon X avec un électron périphérique de l'atome. Précisément, il s'agit d'une réaction de diffusion d'un photon avec un électron, illustrant ainsi l'aspect corpusculaire de la lumière. Cet effet s'explique donc simplement en appliquant les lois de la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement au choc du photon avec l'électron. Le photon secondaire possède une énergie inférieure à celle du photon primaire, donc une longueur d'onde plus élevée (Fig. I.1).

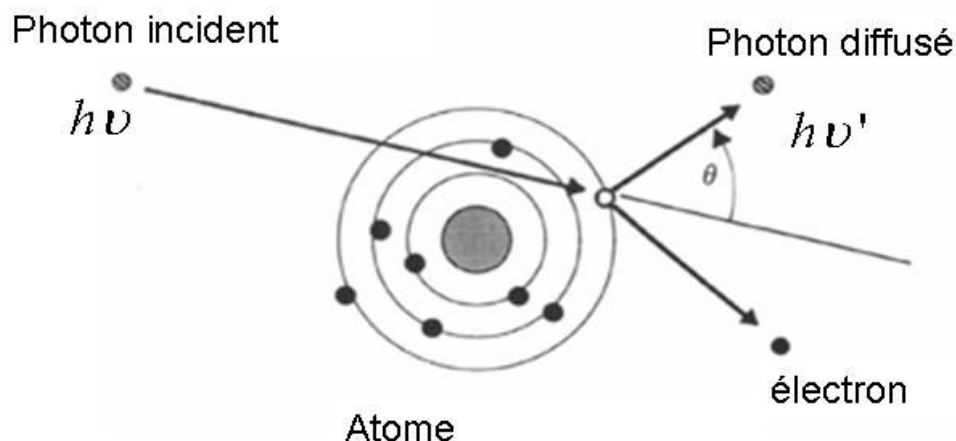


FIGURE I.1 – Diffusion incohérente

### I.1.3 Diffusion cohérente

Au niveau atomique, la diffusion cohérente est décrite par la diffusion Rayleigh qui est un mode de diffusion ondulatoire. L'onde électromagnétique peut être décrite comme un

champ électrique oscillant couplé à un champ magnétique oscillant à la même fréquence. Ce champ électrique va déformer le nuage électronique des atomes, le barycentre des charges négatives oscillant ainsi par rapport au noyau (charge positive). Le dipôle électrostatique ainsi créé rayonne, c'est ce rayonnement induit qui constitue la diffusion Rayleigh. Cela se traduit par une diffusion sans changement de longueur d'onde. Tous les atomes de la matière forment alors un ensemble de sources cohérentes dont les radiations peuvent interférer. De plus, les distances entre les atomes dans les systèmes condensés (solides ou liquides) sont du même ordre de grandeur que la longueur d'onde des rayons X. Grâce à ces conditions favorables, des phénomènes d'interférences peuvent être observés. Ce sont ces effets qui vont être étudiés ultérieurement dans cette thèse.

#### I.1.4 Production de paires

Un autre phénomène peut intervenir pour les photons de haute énergie ( $\geq 1022$  keV) qui passent à proximité du noyau : la création de paires. Plus précisément, les photons sont totalement absorbés et génèrent la création d'une paire électron-positon. Ce processus est suivi d'une annihilation d'un positon avec un électron, générant une paire de photons de 511 keV émis à  $180^\circ$  l'un de l'autre.

#### I.1.5 Dépendance avec l'énergie et le $Z$ du matériau

La probabilité de réalisation de ces différentes interactions dépend à la fois de l'énergie des photons X incidents et du numéro atomique du matériau cible. (Fig. I.2). Pour la gamme d'énergie utilisée (quelques keV jusqu'à 200 keV) et les matériaux organiques (c.à.d.  $Z \leq 10$ ) visés pour notre application, on remarque que les effets de diffusion cohérente et incohérente sont prépondérants.

## I.2 Phénomène d'interférence : la diffraction

Le phénomène d'interférence se produit dans le cas de la diffusion cohérente où il n'y a pas de changement de longueur d'onde. Tous les atomes de la matière forment alors un ensemble de sources cohérentes dont les radiations peuvent interférer. Le comportement de ce phénomène varie d'un matériau à un autre selon l'arrangement des atomes (sources cohérentes).

### I.2.1 Classification des matériaux

Les matériaux se divisent en deux classes : les matériaux cristallins et les matériaux amorphes.

#### I.2.1.1 Les matériaux cristallins

Une grande partie de la matière solide (métaux, oxydes, minéraux, sels...) se trouve sous forme cristalline. Cette notion de forme cristalline fut révélée en 1912 par les expériences de diffraction de rayons X sur la matière réalisées par Laue : la figure de



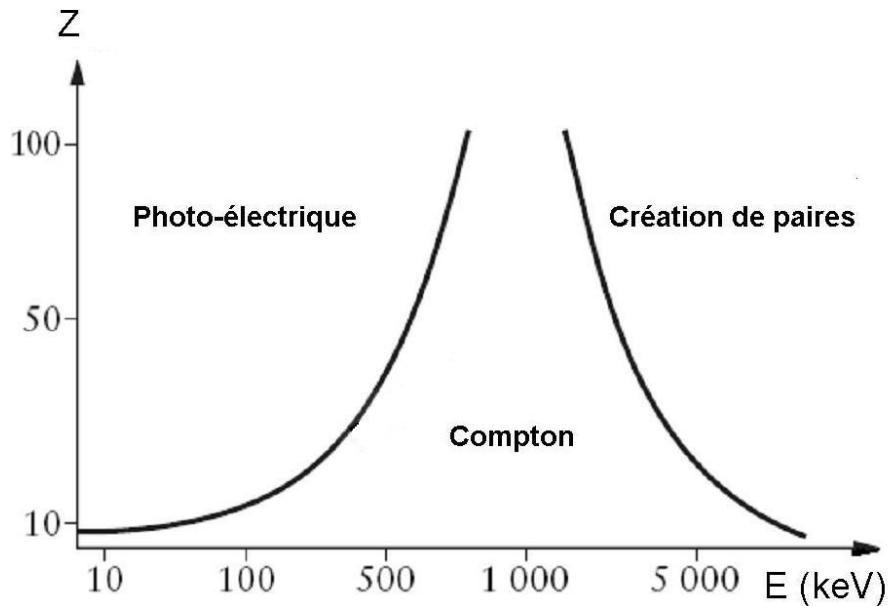


FIGURE I.2 – Importance relative des phénomènes d'interaction en fonction de l'énergie des photons et du numéro atomique  $Z$  de l'absorbeur [Evans 1998]

diffraction étant elle-même un réseau ordonné, cela ne peut s'expliquer que s'il y a une périodicité spatiale dans la structure du matériau.

### Le Cristal :

Il correspond à un empilement 3D et régulier de motifs identiques, un motif pouvant comporter un atome, une ou plusieurs molécules. On peut illustrer ces notions de motif (Fig. I.3) et de réseau avec un carrelage : les carreaux sont les motifs, et leurs emplacements sont les noeuds d'un réseau.

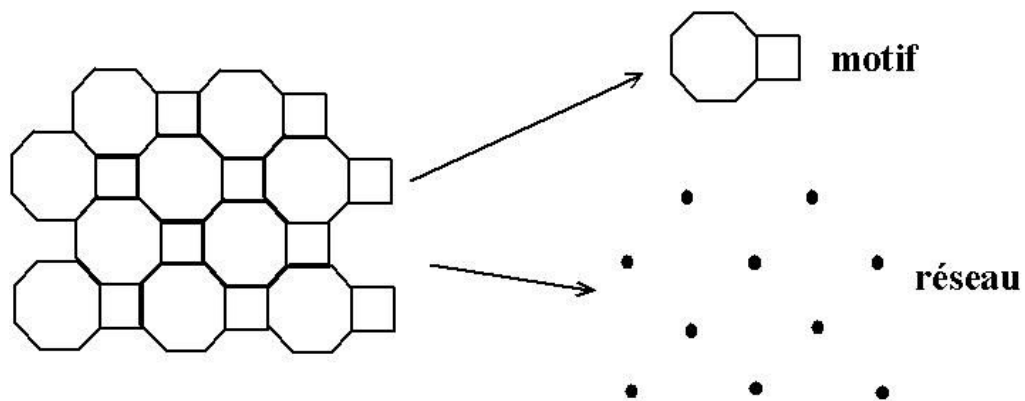


FIGURE I.3 – Illustration de la notion de motif et de réseau dans un cristal

On voit que l'on peut découper le réseau en mailles, une maille étant la plus petite portion (Fig. I.4) du réseau ayant les mêmes symétries que le réseau lui-même. Une maille est donc un prisme composé de plusieurs noeuds ; le réseau est un empilement de mailles

élémentaires. Les motifs sont donc situés aux noeuds du réseau, c'est à dire aux sommets de la maille élémentaire.

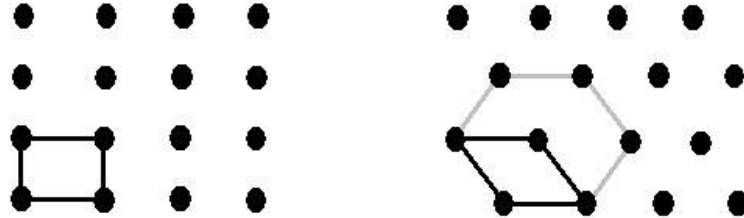


FIGURE I.4 – Exemple de mailles élémentaires dans des réseaux à deux dimensions, les lignes noires représentent les mailles élémentaires et les lignes grises représentent une maille.

#### Paramètres de maille :

Les paramètres de maille désignent les dimensions de la maille élémentaire (Fig. I.5). Dans le cas le plus complexe, le réseau triclinique, on a 6 paramètres : trois dimensions  $a$ ,  $b$  et  $c$ , et trois angles,  $\alpha$ ,  $\beta$  et  $\gamma$ . Dans le cas du réseau cubique, on n'a qu'un paramètre de maille,  $a$  (car  $a = b = c$ , et  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ ). Dans le cas d'un réseau orthorhombique, on a trois paramètres,  $a$ ,  $b$  et  $c$  (puisque  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ ), ainsi que dans le cas hexagonal, avec  $a$ ,  $c$  et  $\alpha = 120^\circ$  (car  $a = b$ , et  $\beta = \gamma = 90^\circ$ ).

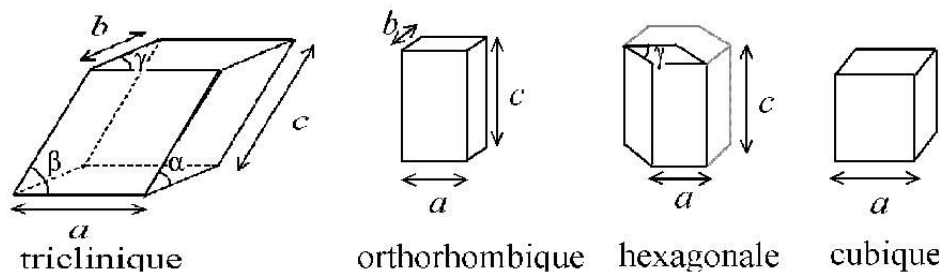


FIGURE I.5 – Paramètres de 4 types de maille classique

#### Plans nodaux (plans atomiques) et indices de Miller :

On appelle un plan nodal (Fig. I.6) l'ensemble des noeuds situés sur un plan de l'espace. Cette notion joue un rôle très important dans les phénomènes de diffraction ainsi que pour la déformation plastique. Étant donné que la plupart des motifs étudiés sont des atomes uniques, on parle souvent de "plan atomique". Un plan nodal est décrit par ses trois "indices de Miller" traditionnellement appelés  $h$ ,  $k$  et  $l$ . On parle ainsi de plans  $(100)$ ,  $(110)$ ... Précisément, ces indices donnent l'orientation du vecteur normal du plan nodal dans la base vectorielle du réseau, composée par les arêtes de la maille élémentaire. Hormis le cas de la structure cubique, il est important de savoir que la base du réseau est quelconque, c'est à dire ni orthogonale, ni normée.

L'orientation d'un plan est donc décrite, comme en mathématique, par les coordonnées

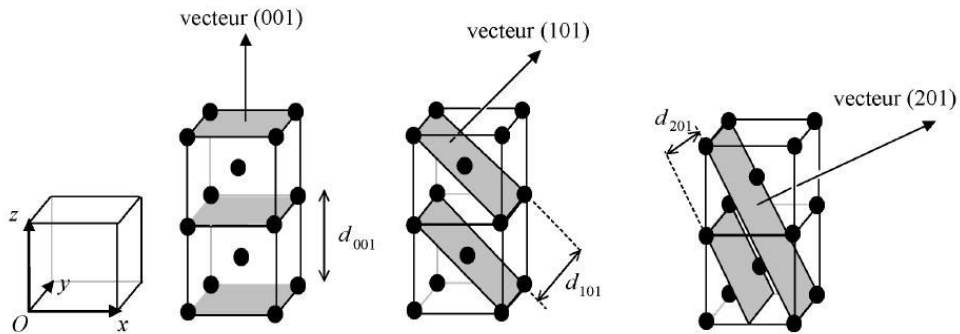


FIGURE I.6 – Plans nodaux, vecteurs normaux et distance inter-réticulaire

de son vecteur normal. Dans le cas d'un réseau cubique, ce vecteur est perpendiculaire au plan. Dans le cas d'un réseau quelconque, il n'est plus perpendiculaire au sens "angle droit", mais si on déformait la maille pour la rendre cubique, alors il le deviendrait. Du fait de l'invariance par translation du cristal, il y a une infinité de plans parallèles entre eux. La distance qui sépare deux plans parallèles voisins est appelée "distance inter-réticulaire" et est notée  $d_{hkl}$ . On remarque que plus les indices de Miller sont grands, plus les plans sont proches (et plus les  $d_{hkl}$  sont petits).

Dans le cas où il y a des noeuds au centre des mailles ou des faces, il peut y avoir des "sous plans" (Fig. I.7) d'indices supérieurs.

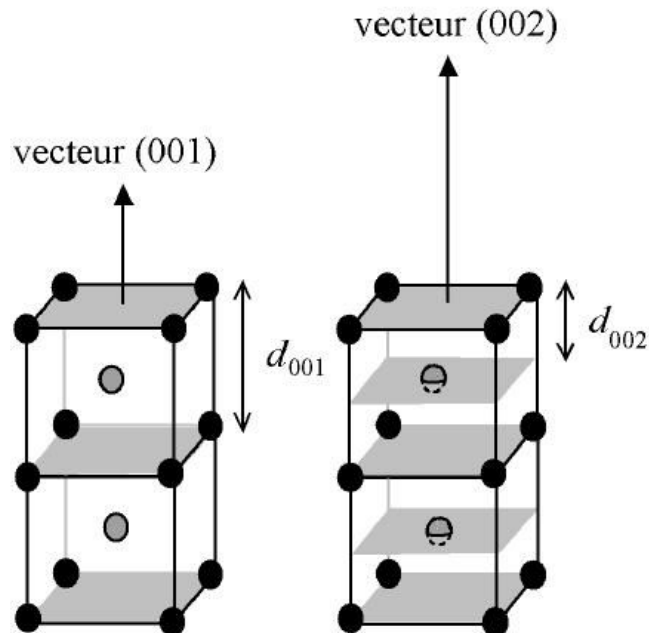


FIGURE I.7 – Exemples de plans et sous plans nodaux dans un réseau cubique

### I.2.1.2 Polycristal et monocristal

Une poudre ou un matériau polycristallin est un matériau solide constitué d'une multitude de petits cristaux appelés cristallites ou grains de tailles et d'orientations variées, par opposition à un matériau monocristallin constitué d'un seul et unique cristal (Fig. I.8). La plupart des métaux et des céramiques sont de natures polycristallines. De même la plupart des explosifs plastiques (comme le RDX et le TNT) sont des matériaux polycristallins.

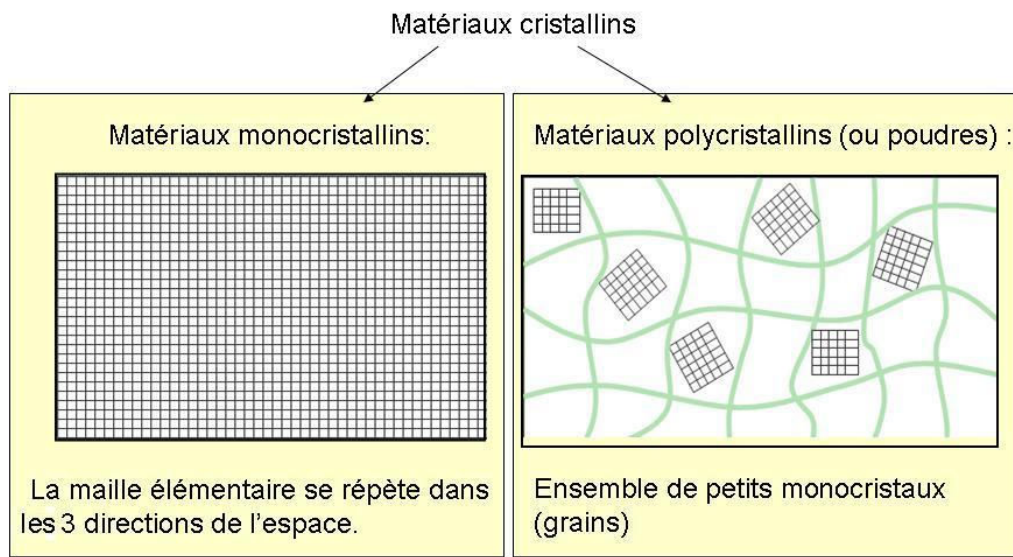


FIGURE I.8 – Différence entre matériaux monocristallins et polycristallins.

### I.2.1.3 Les matériaux amorphes

A l'opposé des matériaux cristallins où les atomes sont disposés régulièrement suivant un réseau tridimensionnel, l'état amorphe est caractérisé par des atomes placés de façon irrégulière avec lesquels on ne peut construire aucun réseau à distance [Popescu 1996]. Sa structure inaccessible par les rayons X ou par la diffraction électronique est donc plus difficile à étudier.

Dans certains matériaux amorphes, il peut exister cependant une certaine périodicité à petite distance (quelques diamètres atomiques, ordre à courte distance). Pour les matériaux amorphes, les informations portées par la diffraction des rayons X représentent une vue moyenne sur l'entourage de chaque atome ou molécule (ex.  $\rho(r)$  : la probabilité de trouver un atome ou une molécule à la distance  $r$ ). Les matériaux amorphes comprennent les liquides, les verres, de nombreux polymères de poids moléculaire élevé ainsi que quelques composés inorganiques (Fig. I.9).

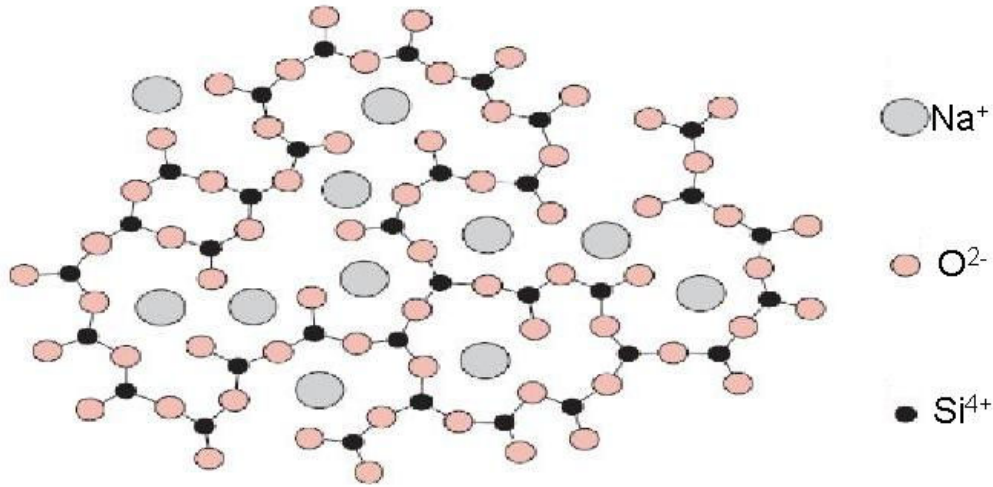


FIGURE I.9 – Exemple de matériaux amorphes : structure du verre de silicate de sodium

## I.2.2 Formulation de la diffraction de rayons X dans un matériau

### I.2.2.1 Diffusion par un électron libre

Les phénomènes d'interférence ne peuvent être observés que dans le cas de la diffusion cohérente car la diffusion s'effectue sans changement de longueur d'onde. Pour décrire le phénomène d'interférence, on commence par exprimer la diffusion cohérente d'un photon sur un électron libre, c'est-à-dire non lié à un atome. Le rayonnement électromagnétique est absorbé puis réémis par l'électron. La direction de propagation de l'onde électromagnétique associée au photon change sans variation d'énergie.

Dans ce cas la section efficace différentielle qui décrit le taux de diffusion est donnée par Thomson :

$$\frac{d\sigma_{Th}}{d\Omega} = r_e^2 \frac{1 + \cos^2\theta}{2} \quad (I.1)$$

$r_e$  est le rayon classique de l'électron ( $r_e = 2.818 \times 10^{-13}$  m),  $\theta$  est l'angle entre la direction du photon incident et la direction du photon diffusé.

### I.2.2.2 Diffusion par un atome

Dans le cas de la diffusion par un atome, ce sont les électrons liés à l'atome qui diffusent les rayons X. Les électrons forment un ensemble de sources cohérentes dont les radiations peuvent interférer. La section efficace Rayleigh est donnée par :

$$\frac{d\sigma_{Ray}}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{Th}}{d\Omega} F^2(x, Z) \quad (I.2)$$

$x = \sin(\theta/2)/\lambda$  est le transfert de quantité de mouvement avec  $\lambda$  la longueur d'onde du photon incident,  $Z$  le numéro atomique.  $F(x, Z)$  est appelé facteur de diffusion atomique ou facteur de forme de l'atome, il correspond à la transformée de Fourier de la densité électronique. Ce facteur décrit l'interférence entre les ondes diffusées par les électrons d'un

même atome. Les valeurs prises par  $F(x, Z)$  sont comprises entre 0 et  $Z$  et ont été tabulées par Hubbell [Hubbell 1975] pour  $Z$  allant de 1 à 100. Dans le cas d'un transfert de quantité de mouvement nul, le facteur de diffusion atomique est égal au numéro atomique  $Z$ . La figure I.10 montre l'allure du facteur de diffusion atomique en fonction du transfert de quantité de mouvement  $x$  et du numéro atomique  $Z$ .

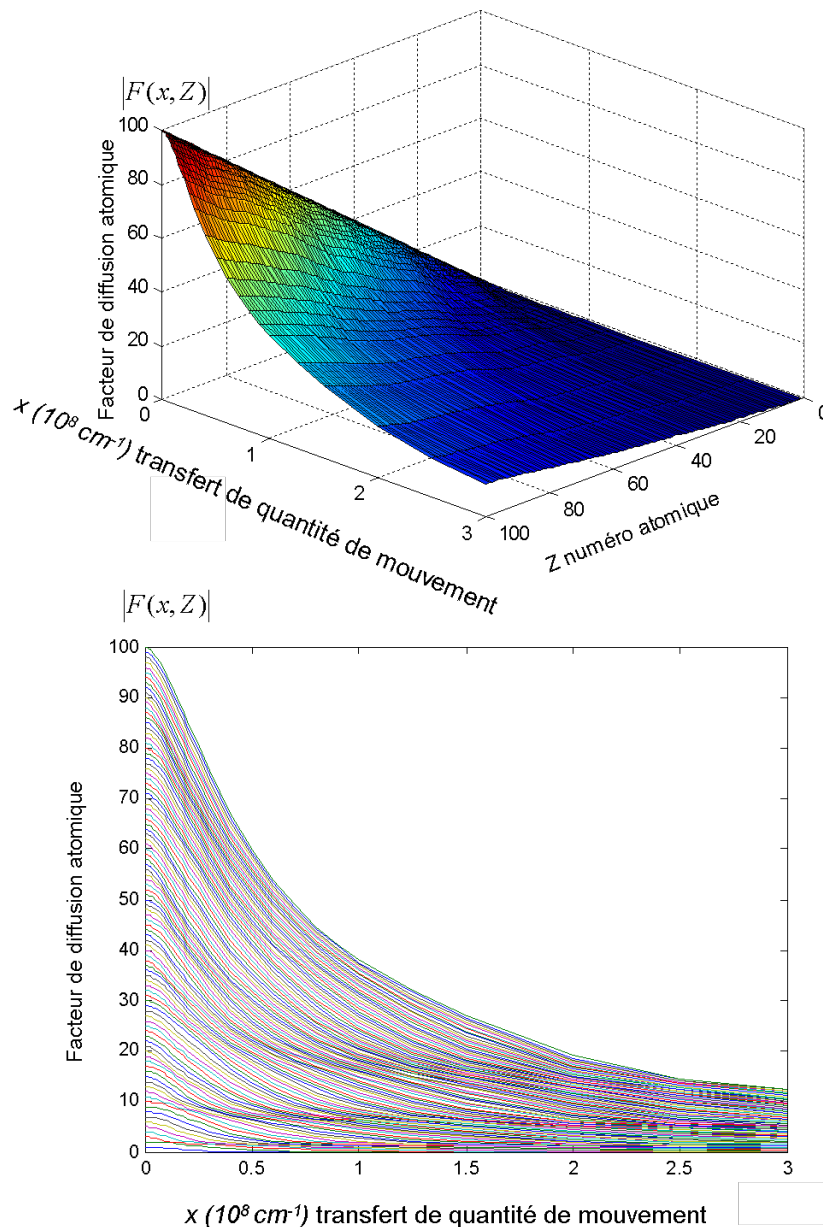


FIGURE I.10 – Module du facteur de diffusion atomique  $\|F(x, Z)\|$  en fonction du transfert de quantité de mouvement  $x$  et du numéro atomique  $Z$ . Chaque courbe de la figure du bas correspond à un numéro atomique de 1 jusqu'à 100. La diffusion cohérente est plus intense pour des faibles valeurs de  $x$ .

### I.2.2.3 Diffusion par un ensemble d'atomes d'une structure cristalline (diffraction et loi de Bragg)

On assiste au phénomène de diffraction dans une direction donnée lorsque les ondes du rayonnement diffusées par les noeuds des différents plans réticulaires d'un réseau cristallin engendrent une interférence constructive dans cette même direction. Cette condition s'exprime par la condition de Laue.

Considérons un réseau dont les noeuds sont occupés par des atomes et envoyons sur ce cristal une onde (dans notre cas un faisceau de rayon X) dont la direction de propagation est donnée par le vecteur d'onde  $\vec{k}$  et dont la longueur d'onde est  $\lambda$ . Ce faisceau interagit avec les électrons de chaque atome en provoquant une oscillation des électrons. Cela induit alors l'émission d'une onde secondaire dont le vecteur d'onde est  $\vec{k}'$  (Fig. I.11). La condition de Laue peut être exprimée en effectuant le produit scalaire de  $\Delta\vec{k} = \vec{k}' - \vec{k}$  avec les vecteurs du réseau cristallin  $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$ . On écrit alors :

$$\vec{a} \cdot \Delta\vec{k} = 2\pi n_1 \quad \vec{b} \cdot \Delta\vec{k} = 2\pi n_2 \quad \vec{c} \cdot \Delta\vec{k} = 2\pi n_3; \quad (\text{I.3})$$

Avec  $n_1, n_2$  et  $n_3$  des nombres entiers et :

$$\|\vec{k}\| = \|\vec{k}'\| = 2\pi/\lambda$$

L'interprétation de la condition de Laue peut se décomposer en deux conditions [Cullity 1956] :

1. l'interprétation scalaire donne la loi de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin(\theta/2) = n\lambda \quad (\text{I.4})$$

2. l'interprétation vectorielle illustre une contrainte géométrique du cristal par rapport au rayonnement : la normale au plan doit être parallèle au vecteur de diffraction  $\Delta\vec{k}$  (Fig. I.11).

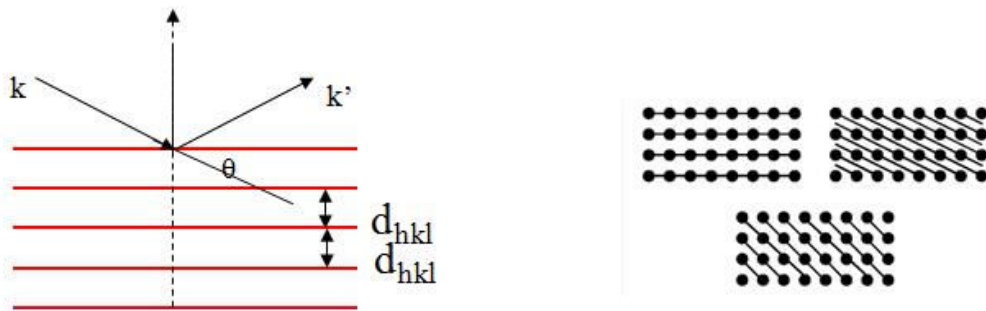


FIGURE I.11 – Les plans parallèles des atomes coupant la maille définissent les orientations et les distances dans le cristal

La figure I.12 présente deux cas. Dans le premier cas et pour la famille de plans représentés, la condition géométrique de Laue est bien vérifiée alors qu'elle ne l'est pas dans le deuxième cas. Pour les matériaux polycristallins, il faut noter que cette

condition géométrique est moins problématique car la présence de multiples microcristaux augmentent la probabilité de bonnes orientations. Ce point sera plus amplement discuté dans le mémoire, et plus particulièrement au chapitre VI.

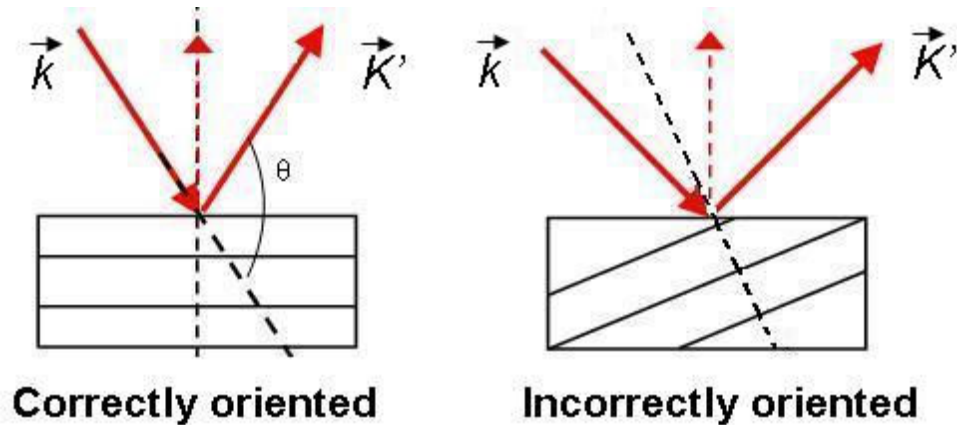


FIGURE I.12 – Exemple d'un cristal bien orienté et d'un autre mal orienté pour la diffraction du plan atomique représenté

#### Intensité diffusée et facteur de structure :

L'intensité diffusée  $I_{hkl}$  correspondant à la surface d'un pic de diffraction est l'énergie diffractée par le plan  $(hkl)$ . Elle est proportionnelle au carré d'un facteur appelé facteur de structure et noté  $F_{hkl}$ . Il faut également prendre en compte :

1. la facteur de polarisation  $P(\theta) = (1 + \cos^2(\theta))/2$  du faisceau incident.
2. le facteur de Lorentz  $L(\theta)$ , qui regroupe les termes indépendants de  $E$  et variant avec  $\theta$  et qui dépend de la géométrie du montage [Lauriat 2003, Cullity 1956].

$$I_{hkl} \propto F_{hkl}^2 P(\theta) L(\theta) \quad (\text{I.5})$$

Le facteur de structure est le facteur qui prend en compte l'interférence des ondes diffusées par les atomes de la maille. Chaque atome dans la maille a une amplitude de diffusion  $f$  (qui correspond au facteur de diffusion atomique noté  $F$  au paragraphe I.2.2.2). Le facteur de structure s'écrit alors :

$$F_{hkl} = \sum_{i=1}^N f_i \cdot \exp(2j\pi(x_i h + y_i k + z_i l)) \quad (\text{I.6})$$

Avec  $N$  le nombre d'atomes dans la maille et  $(x_i, y_i, z_i)$  les coordonnées de l'atome  $i$  par rapport à une origine donnée. L'intensité de rayonnement diffusé sera étudiée ultérieurement en détail.

#### I.2.2.4 Diffusion par un ensemble d'atomes d'une structure amorphe

Pour les corps amorphes, on peut trouver deux modèles dans la littérature [Peplow 1998, Harding 2010b] :



- Le premier modèle est le modèle de gaz libre ou modèle d'atomes indépendants (IAM). Ce modèle ne considère pas le phénomène d'interférence entre les ondes diffusées par différents atomes. La section efficace est alors donnée par :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{Th}}{d\Omega} F_{IAM}^2(x) \quad (I.7)$$

Tel que  $F_{IAM}^2(x) = \sum_{i=1}^N n_i f_i^2(x, Z)$  avec N le nombre d'atomes dans la molécule,  $n_i$  les proportions atomiques des composants et  $f_i$  les facteurs de diffusion atomique (notés F au paragraphe I.2.2.2).

- Le second modèle est le modèle moléculaire : il tient compte du fait que beaucoup de matériaux amorphes ont des arrangements réguliers sur des distances nanométriques (ordre à courte distance). Ce type d'ordre est déterminé par des liaisons chimiques fortes pour les liaisons covalentes et ioniques. Cet ordre à petite distance provoque des interférences intra-atomiques et intermoléculaires. Dans ce cas, la section efficace s'écrit :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{d\sigma_{Th}}{d\Omega} F_{MOL}^2(x) \quad (I.8)$$

$F_{MOL}^2(x)$  est appelé facteur de forme moléculaire et est estimé expérimentalement (Fig. I.13, Fig. I.14). Il peut être exprimé ainsi :

$$F_{MOL}^2(x) = F_{IAM}^2(x) s(x) \quad (I.9)$$

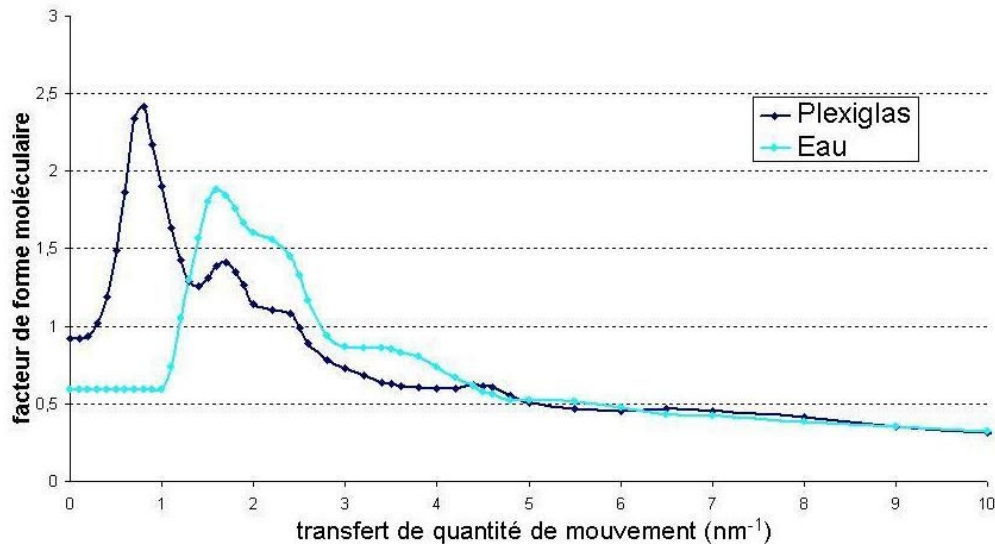


FIGURE I.13 – Facteur de forme moléculaire  $F_{MOL}$  pour l'eau et le plexiglas [Peplow 1998].

Où  $s(x)$  est la fonction d'interférence moléculaire : cette fonction oscillante tient compte des effets d'interférences moléculaires et intermoléculaires. Elle oscille généralement autour de 1 et converge vers 1 pour  $x \rightarrow \infty$ . En effet, pour les grandes valeurs de  $x$  ( $x > 3nm^{-1}$ ), le modèle IAM prédomine. Mathématiquement,  $s(x)$

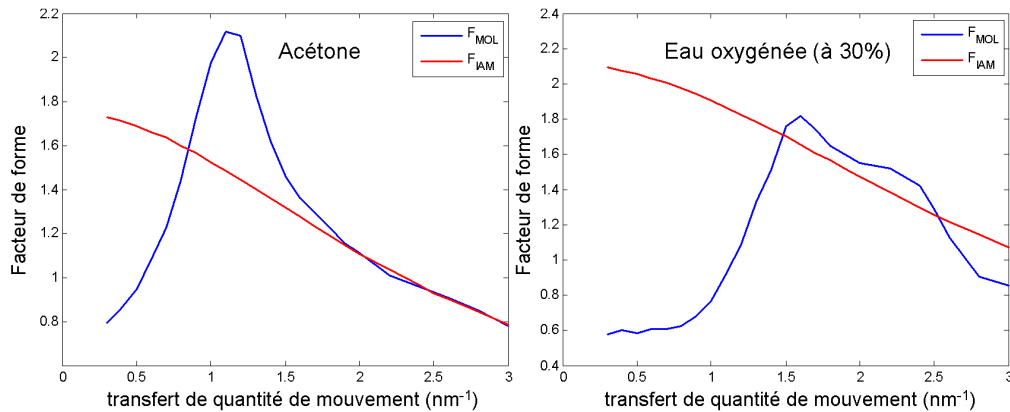


FIGURE I.14 –  $F_{MOL}$  (modèle moléculaire) et  $F_{IAM}$  (modèle d'atome libre) pour l'acétone et l'eau oxygénée (à 30%) [Cozzini 2010].

est étroitement liée à la fonction de distribution radiale  $g(r)$  (probabilité de trouver une molécule à la distance  $r$ ). En pratique,  $g(r)$  n'est pas connue mais peut être modélisée (ex : modèle des sphères dures [Harding 2010b]) pour trouver une signification physique à l'allure de  $s(x)$ . Il n'existe pas de bases de données complètes des fonctions d'interférence moléculaire. Cependant, quelques publications ([Peplow 1998, Cozzini 2010, Tartari 2002, Chaparian 2009, King 2002]) les ont mesurées pour certains matériaux (eau, kapton, acétone, eau oxygénée, plexiglas) et certains tissus (gras, foie, coeur,...).

### I.3 La physique des détecteurs spectrométriques à semiconducteur

Un spectre de diffraction donne la position des pics de Bragg d'un matériau en fonction du transfert de quantité de mouvement, ce qui constitue une signature spécifique des matériaux. De même, pour certains matériaux amorphes, un spectre de diffraction peut révéler des signatures particulières de matériaux (liées à la fonction d'interférence moléculaire  $s(x)$ ).

La technique étudiée dans cette thèse est la diffraction des rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD). Elle nécessite l'utilisation d'un détecteur spectrométrique. La résolution des spectres de diffraction mesurés dépend en partie de la résolution des détecteurs spectrométriques utilisés. Des détecteurs en Germanium offrent une bonne résolution en énergie mais ont l'inconvénient de devoir être refroidis. Cette thèse se focalise sur la faisabilité et l'optimisation de l'utilisation des détecteurs à base de CdTe ou CdZnTe pour mesurer des spectres dans des systèmes EDXRD. Le choix d'utiliser des détecteurs CdTe se justifie car ils offrent des performances raisonnables et peuvent fonctionner à température ambiante. L'objectif de ce paragraphe est de décrire le principe de fonctionnement d'un détecteur spectrométrique CdTe ou CdZnTe.

### I.3.1 Paramètres caractéristiques des performances d'un détecteur

#### I.3.1.1 Résolution en énergie

Le principe d'un détecteur de rayonnement gamma et X est de convertir l'énergie déposée dans le volume détecteur lors des différentes interactions en un signal mesurable (Fig. I.15).

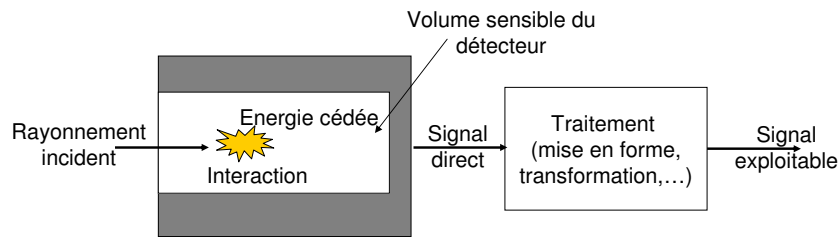


FIGURE I.15 – Schéma de principe d'une chaîne de détection.

L'objectif est de recueillir pour chaque interaction du photon dans le détecteur un signal porteur d'informations exploitables par un dispositif d'analyse qualitative ou quantitative. Suivant le principe de fonctionnement et la nature du détecteur, le signal peut contenir une ou plusieurs informations sur le rayonnement incident : la position et l'énergie déposée pour chaque interaction dans le matériau détectant. Pour des applications spectrométriques ou de comptage, on cherche à connaître le nombre de photons incidents et l'énergie déposée dans le détecteur par chacun de ces photons.

En réponse à l'interaction d'un rayonnement monoénergétique, les informations délivrées par un détecteur n'ont pas toutes la même amplitude. En effet, chaque interaction ne produit pas des signaux rigoureusement identiques pour des énergies totales déposées similaires. Cependant, si l'on veut mesurer des spectres en énergie à partir des signaux recueillis, il est essentiel que le signal soit, à des fluctuations statistiques près, proportionnel à l'énergie cédée par le rayonnement au détecteur, cette proportionnalité (ou linéarité) devant exister sur une gamme d'énergies suffisamment étendue. On cherche donc à recueillir un spectre représentant le nombre de photons détectés en fonction de leur énergie. Dans le cas idéal et pour une irradiation monochromatique, ce spectre comporte un pic traduisant la raie correspondante. Cependant, expérimentalement, ce pic présente une largeur totale à mi-hauteur (*FWHM* : Full Width at Half Maximum), qui indique la dispersion des informations délivrées par le détecteur lorsqu'il est soumis à une même sollicitation (Fig. I.16). Cet écart permet de chiffrer la résolution en énergie du détecteur et caractérise sa capacité à distinguer deux énergies proches. Une résolution de l'ordre de 1% est généralement considérée comme bonne, mais certains détecteurs sont loin d'atteindre ce niveau de performance.

Dans la suite du manuscrit, la résolution est définie comme la largeur à mi hauteur d'un pic ; elle pourra être exprimée en keV à une énergie donnée  $H_0$ , ou en %, correspondant alors à la grandeur  $FWHM/H_0$ .

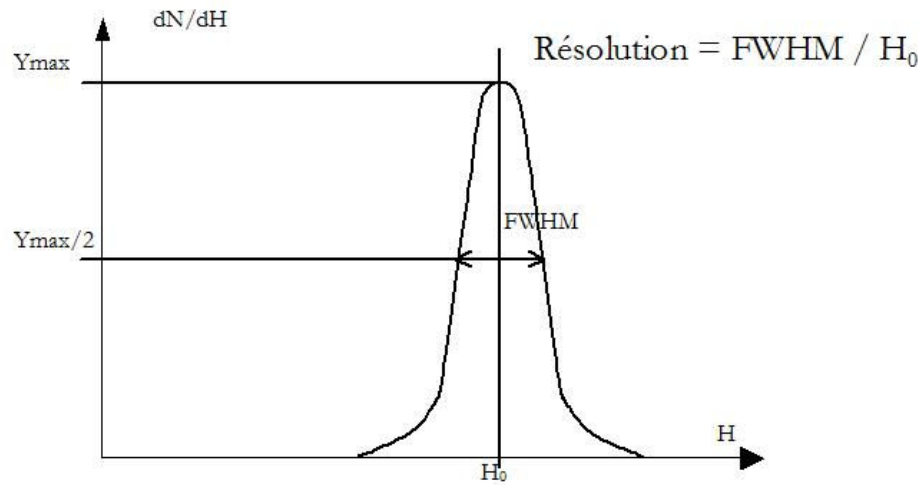


FIGURE I.16 – Résolution en énergie d’un détecteur.

### I.3.1.2 Efficacité de détection

Lorsque l’on détecte des particules chargées, et compte tenu de leur parcours, il est parfois possible de mettre en œuvre des géométries de détection dans lesquelles pratiquement 100% des rayonnements incidents interagissent dans le détecteur. Cependant, les impératifs expérimentaux, économiques et la nature des rayonnements à mesurer tendent à s’éloigner en général de la situation idéale. C’est pourquoi il est nécessaire de définir la notion d’efficacité de détection intrinsèque  $Eff_{int}$ .

$$Eff_{int} = \frac{\text{Energie des signaux délivrés par le détecteur}}{\text{Energie de rayonnement pénétrant le détecteur}} \quad (\text{I.10})$$

Pour obtenir une bonne efficacité, il est préférable d’utiliser des matériaux dont la composition chimique comporte des éléments de numéro atomique élevé, car la probabilité d’interaction dépend du numéro atomique.

## I.3.2 Détecteurs à semiconducteur

### I.3.2.1 Principe de fonctionnement des détecteurs à semiconducteur

Les qualités des détecteurs à semiconducteurs (bonne résolution en énergie notamment) leur ont permis de supplanter les détecteurs à gaz et à scintillation dans de nombreuses applications. Leur densité, due à leur état solide, permet la détection des rayonnements X et gamma avec une bonne efficacité. L’interaction des photons dans le cristal semiconducteur crée des paires électron trou dont le nombre est proportionnel à l’énergie déposée. Sous l’action d’un champ électrique appliqué, ces porteurs libres migrent dans le matériau (Fig. I.17). Le transport des porteurs libres induit un signal de variation de charge aux électrodes du détecteur. Ce signal est ensuite exploité par une électronique dédiée. Ce phénomène de conversion directe entre photons incidents et création de porteurs libres présente un double avantage :

- les charges créées à l'endroit de l'interaction sont drainées sous l'action du champ électrique appliqué en conservant l'information spatiale. Ainsi, on peut avoir un détecteur épais sans détruire la résolution spatiale, ce qui n'est pas le cas d'un scintillateur dans lequel la lumière diffuse de manière isotrope.
- le nombre de charges créées, suite à une interaction, est bien plus important dans le cas d'un détecteur à semiconducteur que dans celui d'un scintillateur (environ 10 fois plus). Le bruit qui entache la mesure est donc réduit.

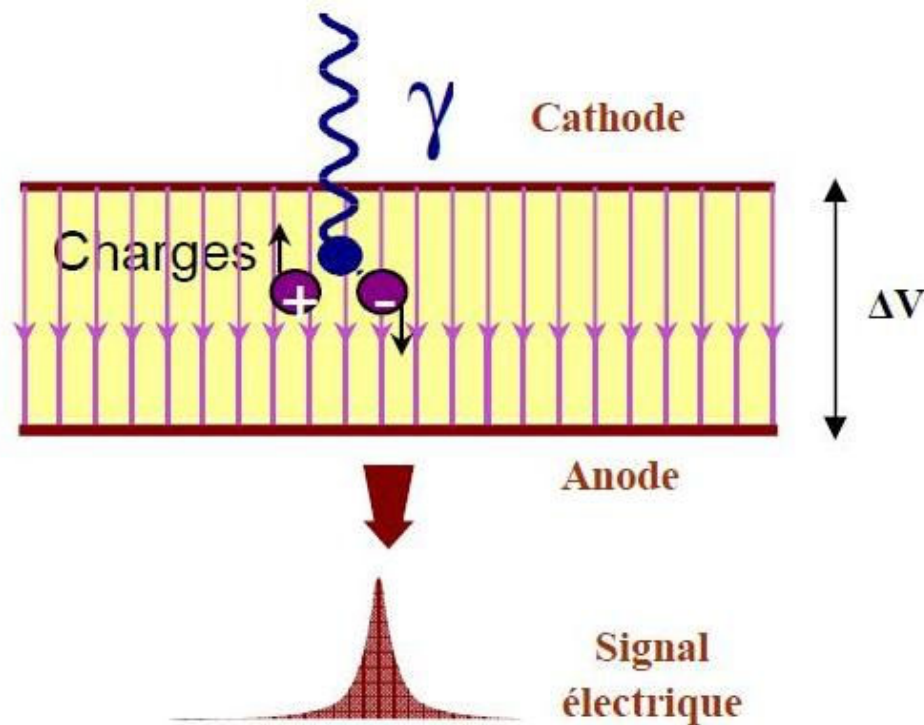


FIGURE I.17 – Conversion directe d'un rayonnement gamma dans un détecteur à semi-conducteur.

### I.3.2.2 Critères de sélection des matériaux semi-conducteurs

Les principaux matériaux à semi-conducteurs présents sur le marché (Si, Ge, CdTe...) ont été comparés précédemment dans le laboratoire. Cette comparaison permet de justifier le choix du matériau fait au cours de cette thèse.

#### Critères de sélection :

Afin d'être un bon candidat pour la diffraction, le matériau semi-conducteur doit posséder des propriétés qui lui garantissent un bon pouvoir d'arrêt des photons et de bonnes performances spectrométriques. Une masse volumique  $\rho$  et un numéro atomique  $Z$  élevés confèrent au matériau un bon pouvoir d'arrêt des photons. Il faut préciser que selon l'application visée (et donc de gamme d'énergie utilisée), ce critère de pouvoir d'arrêt est plus ou moins facilement atteint. De plus, plusieurs critères supplémentaires doivent être remplis pour assurer au matériau une bonne efficacité de détection :

### I.3. La physique des détecteurs spectrométriques à semiconducteur 27

	absorption	résistivité	transport des charges	qualité cristalline
Si	*	**	*****	*****
Ge	**	*	*****	*****
CdTe	***	***	***	***
CdZnTe	***	****	****	**
HgI <sub>2</sub>	*****	*****	**	**
	Efficacité	Bruit à température ambiante	Perf. spectrométriques	Rendement/coût

TABLE I.1 – Comparaison qualitative des différents matériaux semi-conducteurs utilisés pour la détection des photons X et gamma [Verger 2004].

- une énergie de création de paires électron-trou faible pour que le nombre de porteurs générés soit élevé.
- une résistivité élevée qui garantit au matériau un bruit, due aux fluctuations du courant d'obscurité, faible. La résistivité dépend de la mobilité des porteurs, de la largeur de la bande interdite, des impuretés, des défauts cristallins et de la température.
- un produit  $\mu\tau$  maximal,  $\mu$  étant la mobilité des charges et  $\tau$  leur durée de vie. En effet, plus les charges sont mobiles et plus leur durée de vie est longue, meilleures sont les propriétés de collection des charges.
- une bonne qualité cristalline. Ce critère implique que la croissance du matériau soit bien maîtrisée et que celle-ci soit la plus homogène possible.

#### Comparaison des performances des semi-conducteurs :

L'étude de la performance des matériaux Ge (germanium), Si (silicium), CdTe, CdZnTe et HgI<sub>2</sub>, qui sont les semi-conducteurs les plus couramment utilisés, nous permet de déduire le tableau I.1 qui compare ces matériaux entre eux.

Le HgI<sub>2</sub> présente deux inconvénients majeurs : une croissance mal maîtrisée et une toxicité importante. Les propriétés des semi-conducteurs Si et Ge sont assez semblables. Tous les deux possèdent un numéro atomique et une masse volumique faibles qui entraînent une mauvaise absorption. De plus, à cause de leur faible résistivité, ils doivent généralement être refroidis à l'azote liquide. Leur utilisation semble, du fait de ces deux inconvénients, assez compromise pour notre application car ils ont trop coûteux.

Les matériaux les plus adaptés sont donc ceux issus de la famille des tellures de cadmium (CdTe et CdZnTe). Ils bénéficient d'une bonne qualité d'absorption : 5 mm de CdTe seulement sont nécessaires pour arrêter 85% des photons à 140 keV, et peuvent être utilisés à température ambiante grâce à leur forte résistivité. Ils ne sont, néanmoins, pas sans inconvénient. Ils présentent, en effet, des qualités cristallines limitées, une énergie de création de paires électron-trou élevée et de mauvaises propriétés de transport des porteurs de charges. Ces mauvaises propriétés résultent principalement du piégeage des trous lors de leur migration vers la cathode. Ce piégeage, majoritairement dû aux nombreux défauts présents dans le matériau, induit une dégradation des performances spectrométriques des

détecteurs. En effet, les trous étant souvent piégés avant d'atteindre la cathode, le signal total mesuré sur les électrodes est essentiellement dû aux électrons. Des techniques de correction, qui sont détaillées dans le chapitre V, sont nécessaires pour améliorer la résolution en énergie.

### I.3.2.3 Détecteurs monolithiques pixellisés

Dans le but d'obtenir une migration des porteurs de charges générés suite à l'interaction du rayon X dans le détecteur, des électrodes sont déposées sur chaque surface du détecteur. L'or, le platine et l'indium sont les matériaux les plus souvent utilisés pour réaliser ces contacts métalliques. Suivant la façon dont est structurée l'électrode anode, on distingue deux types de détecteurs : les détecteurs planaires et les détecteurs monolithiques pixellisés. On notera, qu'à l'heure actuelle, les détecteurs monolithiques pixellisés sont, de par leurs propriétés, les plus couramment utilisés. Ils seront par conséquent les seuls considérés dans la suite de cette thèse.

Les détecteurs monolithiques pixellisés (Fig. I.18) possèdent une anode segmentée et une cathode non-segmentée. De ce fait, le pixel détecteur est défini comme la zone d'intérêt comprise entre une électrode anodique et la cathode. Grâce à la pixellisation de l'anode, chacune des électrodes peut être traitée indépendamment. Cette caractéristique offrant une connaissance des lieux des interactions dans le détecteur au pixel près et la taille des pixels accessibles aujourd'hui étant petite ( $< \text{mm}$ ), les détecteurs monolithiques pixellisés possèdent une très bonne résolution spatiale intrinsèque. Enfin, de grandes surfaces de détection peuvent être obtenues par juxtaposition de plusieurs de ces détecteurs.

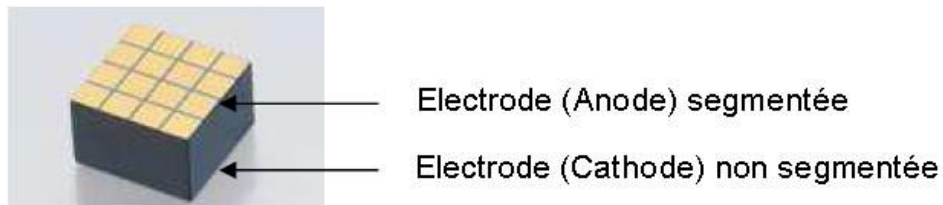


FIGURE I.18 – Photo d'un détecteur monolithique pixellisé : contrairement aux détecteurs planaires, ils présentent une anode segmentée [Guérin 2007].

### I.3.2.4 Amélioration de la résolution intrinsèque du détecteur par correction de l'effet de la profondeur d'interaction

Le CdTe et surtout le CdZnTe souffrent de mauvaises propriétés de transport des trous qui sont piégés durant leur migration. Ce piégeage est notamment dû aux nombreux défauts intrinsèques du CdTe (notamment les lacunes de Cd). Il rend l'amplitude du signal mesuré dépendante de la profondeur de l'interaction du photon dans le détecteur. La conséquence est un élargissement du spectre en énergie et principalement une traînée vers les basses énergies. Cependant, la profondeur d'interaction peut être mesurée et il est donc possible de corriger cet effet.

### I.3. La physique des détecteurs spectrométriques à semiconducteur 29

Le spectre mesuré peut être corrigé, par l'intermédiaire de la mesure du temps de montée du signal des anodes, afin d'améliorer la résolution en énergie des détecteurs semi-conducteurs. Pour cela, le temps pendant lequel une charge est induite sur l'anode est calculé pour chaque interaction. Ce temps est en effet proportionnel à la profondeur d'interaction dans le cas où le champ électrique est homogène dans le détecteur (Fig I.19).

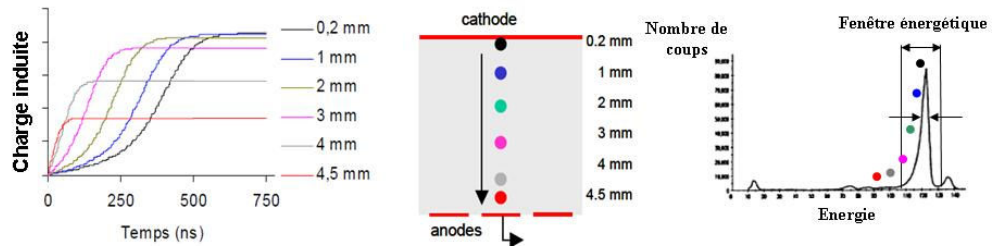


FIGURE I.19 – Charge induite selon la profondeur d'interaction du photon dans le détecteur et spectre en énergie pour un détecteur monolithique.

Pour corriger le spectre de l'effet de la profondeur d'interaction, un spectre bi-paramétrique est tracé (Fig I.20). Ce spectre représente, en ordonnée, une information proportionnelle à la profondeur d'interaction (typiquement le temps de transit des électrons du signal anode) et, en abscisse, une information proportionnelle à l'énergie du photon incident (l'amplitude du signal mesurée à l'anode). Connaissant pour chaque temps de montée les énergies maximales mesurées et incidentes, ce spectre brut est corrigé par homothétie de l'axe des énergies selon le temps. La résolution en énergie est donc significativement améliorée, ainsi que l'efficacité de détection dans une moindre mesure.

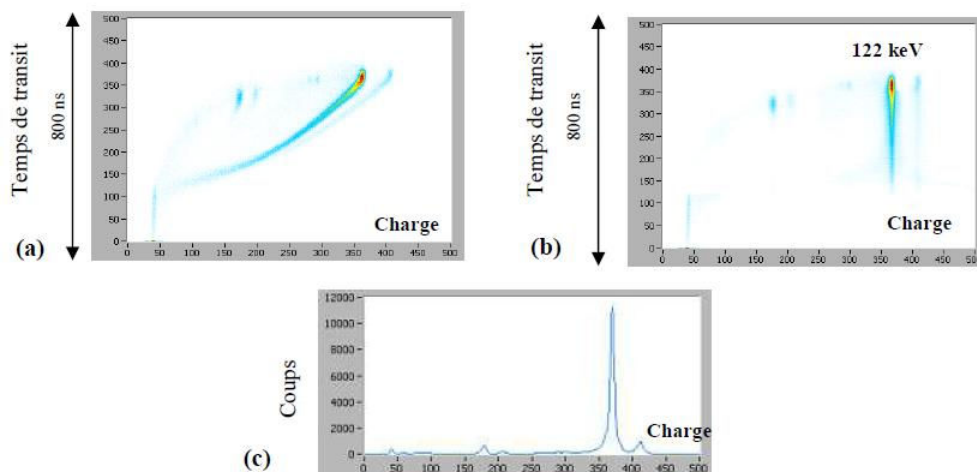


FIGURE I.20 – Illustration de la correction bi-paramétrique avec la méthode de sur-pixelisation sur un spectre de  $^{57}\text{Co}$  pour un détecteur CdZnTe planaire. Spectres bi-paramétriques (a) brut et (b) corrigé. (c) Spectre en énergie corrigé.



## I.4 Conclusion

Ce premier chapitre nous a permis de mettre en évidence les raisons justifiant la réalisation de mesures de spectres de diffraction pour l'identification des matériaux.

Les matériaux cristallins présentent un certain ordre moléculaire : les atomes sont arrangés de manière périodique avec un motif particulier. La loi de Bragg permet de déterminer avec précision la position des pics de diffraction correspondant aux interférences constructives. La position des pics en fonction du transfert de quantité de mouvement constitue ainsi une signature caractéristique du matériau.

Les matériaux amorphes, eux, ne présentent pas de structure aussi ordonnée. Malgré tout, un ordre local, à courtes distances, peut exister et être révélé sur les spectres diffractés sous formes de larges "bosses" tout aussi caractéristiques (facteur de forme moléculaire  $F_{MOL}$ ).

Comme nous allons voir dans le chapitre suivant, il existe deux techniques expérimentales qui permettent d'effectuer des mesures en diffraction, soit en travaillant à angle constant et énergie variable (Energy dispersive X-ray diffraction EDXRD), soit en travaillant à énergie constante et angle variable (Angular dispersive X-ray diffraction ADXRD). La technique étudiée dans cette thèse est la diffraction des rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD). Cette technique nécessitant l'utilisation de détecteurs spectrométriques et d'un faisceau polychromatique, nous avons choisi de travailler avec des détecteurs à semi-conducteur. Pour cela, le principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteurs CdTe et CdZnTe, a été décrit à la fin de ce chapitre. L'avantage des détecteurs à base de semi-conducteur de type cadmium et tellure (CdTe et CdZnTe) est qu'ils présentent une résolution en énergie nettement supérieure à celle d'un scintillateur NaI et sont opérationnels à température ambiante contrairement aux détecteurs de type Germanium.

Un état de l'art des principales techniques de détection des explosifs et spécifiquement celles utilisant des diffractomètres est présenté dans le chapitre suivant.

# La diffraction : technique innovante pour la détection des explosifs

---

## Sommaire

<b>II.1 Etat de l'art des principales techniques de détection des explosifs par rayons X</b>	<b>32</b>
II.1.1 Par transmission classique	32
II.1.2 Par transmission bi-énergie	33
II.1.3 Par rayonnement rétro-diffusé Compton	34
II.1.4 Par tomographie	34
II.1.5 En utilisant la méthode multi-énergies	35
<b>II.2 Techniques de détection des explosifs par diffraction de rayons X</b>	<b>36</b>
II.2.1 Principe général	36
II.2.2 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'angle (ADXRD)	36
II.2.3 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD)	37
<b>II.3 Etat de l'art des diffractomètres pour la détection d'explosifs</b>	<b>38</b>
II.3.1 Systèmes ADXRD existants	38
II.3.2 Systèmes EDXRD existants	39
II.3.3 Méthodes de traitement de spectres avec un système de type EDXRD pour l'identification de matériaux	51
<b>II.4 Caractéristiques des matériaux explosifs</b>	<b>53</b>
<b>II.5 Conclusion</b>	<b>60</b>

---

Après le 11 septembre 2001, la sécurité est devenue un enjeu majeur. Les consignes de sécurité dans les aéroports se sont renforcées avec l'inspection systématique des bagages enregistrés ou abandonnés par des systèmes de détection de matières explosives.

Les systèmes à rayons X sont les plus répandus. Une technique couramment utilisée est la radiographie conventionnelle qui exploite l'absorption du rayonnement transmis à travers l'objet examiné. Cependant, les performances sont limitées car l'image ne montre que le degré d'absorption des rayons X, ce qui n'est pas spécifique aux explosifs. La forme des objets peut par contre révéler des engins d'explosifs avec par exemple la présence de détonateurs, câbles etc.

Des techniques alternatives ont été développées telles que la radiographie bi-énergie, la rétrodiffusion Compton et plus récemment la diffraction.

Dans ce chapitre, nous dressons dans un premier temps un état de l'art des principales techniques actuelles de détection des explosifs par rayons X. La méthode par diffraction

des rayons X en dispersion d'énergie est ensuite présentée en détail. D'autre part, les principales méthodes de traitement de spectre avec un système EDXRD pour l'identification de matériaux sont brièvement décrites. Les paramètres de la structure cristalline des explosifs en poudre connus pour pouvoir être dissimulés dans des bagages par les terroristes lors d'attentats dans les aéroports sont également présentés.

## II.1 Etat de l'art des principales techniques de détection des explosifs par rayons X

### II.1.1 Par transmission classique

La technique par rayons X la plus simple pour contrôler les bagages reste l'imagerie X par transmission. L'imagerie par transmission [Zentai 2008] peut être réalisée soit avec un détecteur 2D placé derrière l'objet éclairé entièrement, soit en utilisant un détecteur 1D et en éclairant continuellement l'objet qui se déplace sur un tapis roulant (Fig. II.1). La radiographie permet d'avoir une information sur la forme des objets et sur l'atténuation des matériaux (Fig. II.2).

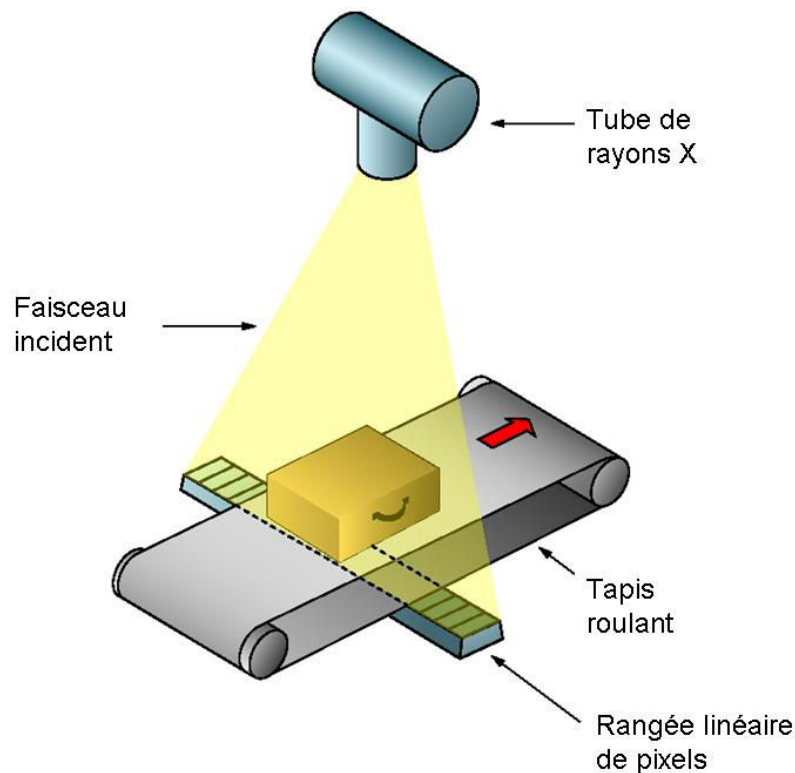


FIGURE II.1 – Imagerie par transmission sur un tapis de contrôle de bagages [Zentai 2008].

Cependant, sur une seule radiographie, plusieurs objets peuvent se superposer, ce qui rend difficile la détection d'explosifs par la forme, surtout s'ils sont cachés par d'autres matériaux très absorbants. D'autre part, l'information d'atténuation intégrée sur un rayon

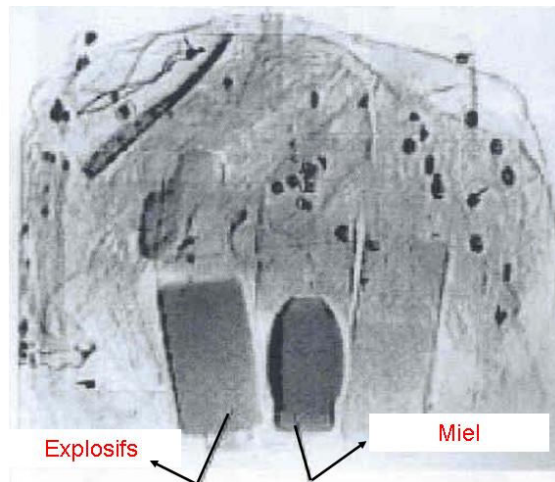


FIGURE II.2 – Image par transmission : la discrimination explosifs / matériaux communs est très difficile [Zentai 2008].

est clairement insuffisante pour distinguer les matériaux explosifs de matériaux communs comme le miel, le fromage, des fruits. . . [Zentai 2008].

### II.1.2 Par transmission bi-énergie

On sait que l'atténuation dépend de l'énergie des photons, de la densité  $\rho$  et du numéro atomique  $Z$  du matériau traversé. Par conséquent, en utilisant la transmission des rayons X avec deux énergies différentes, il est possible de classer des matériaux dans une base spécifique. Cette technique permet de réaliser une image radiographique de l'objet (Fig. II.3) et de mettre en fausses couleurs les éléments recherchés, selon typiquement trois catégories ([Eilbert 1992]) : les éléments légers ( $Z < 10$ ), les éléments intermédiaire ( $10 < Z < 20$ ) et les éléments lourds ( $20 < Z$ ).

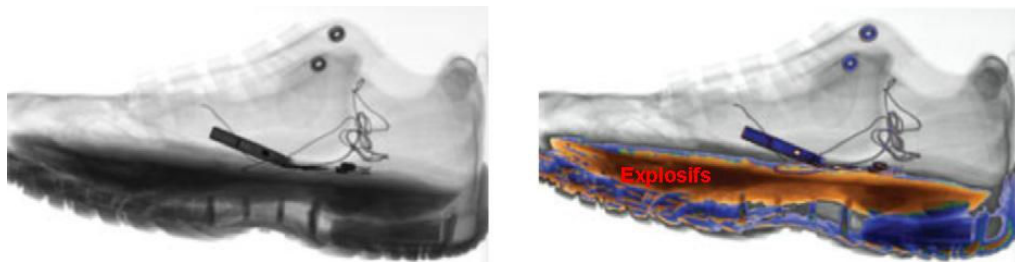


FIGURE II.3 – Image par transmission classique (gauche) et image par transmission bi-énergie (droite) [Vogel 2007].

Cette méthode peut être réalisée à l'aide de détecteurs double-couches (appelé détecteurs " sandwich ") constitués de deux couches de matériaux [Carmi 2005]. Une première couche permet d'absorber les photons de basse énergie, puis, après un filtre séparateur, une seconde couche permet d'absorber les photons de haute énergie de manière simultanée.

La plupart des EDS (explosives detection systems) utilisent la technique d'imagerie X

bi-énergie avec un détecteur double-couches. Mais cette technique ne permet pas d'accéder à la composition chimique des objets et il reste toujours des ambiguïtés de détections avec les matériaux organique d'usage courant ayant des  $Z$  similaires à ceux des explosifs. Le taux de fausses alarmes reste par conséquent élevé avec cette technique.

### II.1.3 Par rayonnement rétro-diffusé Compton

Cette technique utilisant le rayonnement rétrodiffusé exploite plus précisément le rayonnement diffusé Compton qui permet de mieux révéler les matériaux à  $Z$  faibles et à faibles densités.

Cette technique peut être utilisée pour l'inspection des bagages en complément de la technique par transmission, pour laquelle elle est très complémentaire car moins mise à défaut par la superposition de métaux (Fig. II.4). Comme elle a l'avantage d'avoir le système de mesure placé du même côté de l'objet que la source, la technique par rétrodiffusé peut être également utilisée dans des conditions d'acquisition contraignantes, comme le scan humain à faible dose pour détecter les armes dissimulés sous les habits [Vogel 2007], ou pour le contrôle de bagages abandonnés contre un mur [Lalleman 2011].

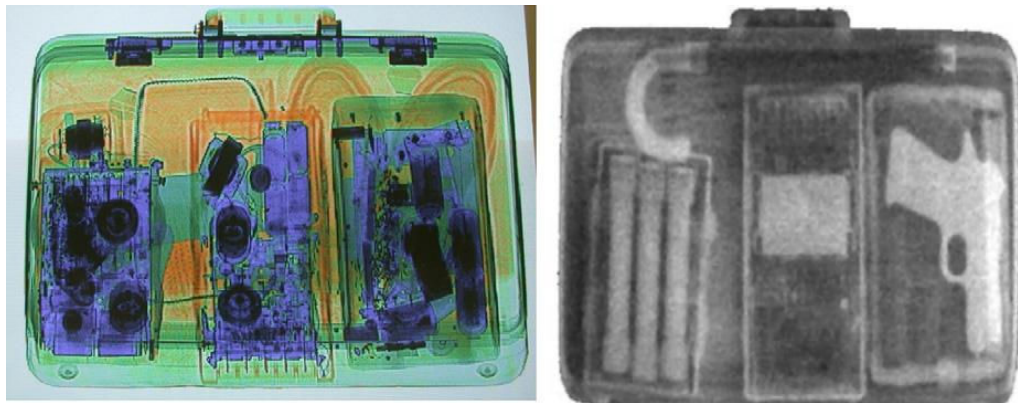


FIGURE II.4 – imagerie bi-énergie (à gauche) et imagerie par rétrodiffusion (à droite) [Vogel 2007].

D'une manière générale, le signal diffusé est relativement faible. Pour effectuer une mesure correcte, c'est-à-dire avec un bon rapport signal sur bruit, le temps d'exposition devra être suffisamment long ce qui est une contrainte non négligeable pour notre application.

### II.1.4 Par tomographie

La méthode permet de reconstruire le volume d'un objet à partir d'une série de mesures par rotation de l'objet à analyser sur 360 degrés (Fig. II.5). La transmission des rayons X est mesurée dans le plan défini par la source et une rangée de pixels du détecteur. Chaque pixel du détecteur mesure une valeur représentant le pouvoir d'atténuation  $\mu$  intégré le long de la ligne de matière traversée. Ces mesures sont obtenues sous des incidences différentes et sont ensuite utilisées pour reconstruire mathématiquement l'objet inspecté. Précisément le volume reconstruit donne pour chaque voxel un paramètre correspondant au coefficient

d'atténuation local. On peut préciser que ce coefficient d'atténuation est un coefficient moyenné sur le spectre polychromatique utilisé.

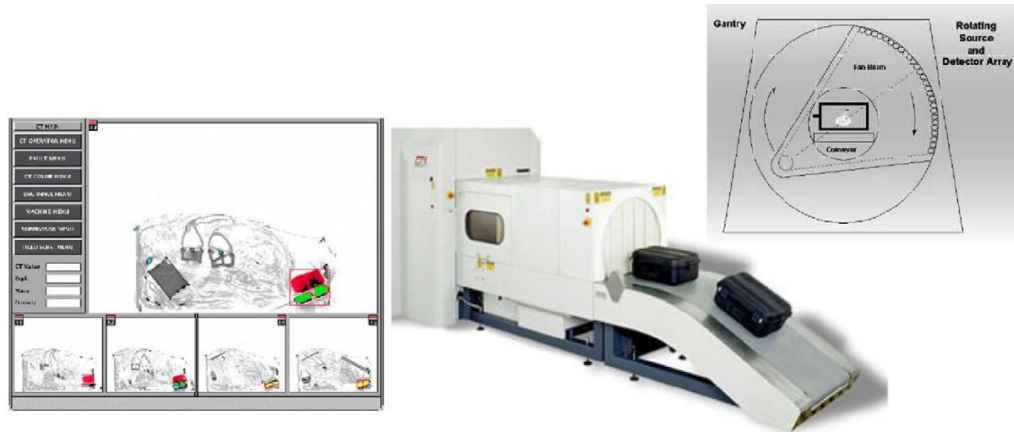


FIGURE II.5 – Appareil de tomographie : les objets sont visualisés sans superposition [Vogel 2007].

Cette méthode permet de régler le problème de superposition de matériaux. Cependant, elle reste limitée pour distinguer les explosifs des matériaux communs qui ont des pouvoirs d'atténuation similaires (ex : fromage, fruits) [Zentai 2008]. D'autre part, cette technique est peu utilisée pour la détection d'explosifs, car elle est à la fois la plus coûteuse du marché, et la moins rapide.

### II.1.5 En utilisant la méthode multi-énergies

Le développement récent de détecteurs spectrométriques en CdTe/CdZnTe permet à présent de mesurer des spectres en énergie. Cela permet ainsi de remonter non plus à des valeurs de l'atténuation pour deux mais pour une multitude d'énergies.

La méthode multi-énergies par transmission a été développée initialement pour le contrôle de bagages sur des systèmes à plusieurs tirs [Maitrejean 1998a, Maitrejean 1998b]. Cette méthode consiste en une estimation de la fonction de transmission d'un objet monomatériau inconnu à partir de sa mesure spectrométrique suivie d'une analyse de cette fonction [Beldjoudi 2012]. Elle est basée sur des mesures de calibration permettant d'apprendre les réponses du capteur spectrométrique en fonction de l'énergie des photons incidents. Des algorithmes de traitement du signal spectrométrique sont appliqués pour extraire deux coefficients qui caractérisent, à travers sa fonction de transmission, le matériau et l'épaisseur d'un objet.

Par cette méthode, le taux de fausses alarmes est amélioré. Cependant, on n'exploite encore que la courbe  $\mu(E)$ , qui reste très voisine entre les matériaux explosifs et les autres matériaux organiques communs. La discrimination explosifs / non explosifs reste donc délicate.

Pour cela, l'information mesurée sur le rayonnement diffracté semble beaucoup plus riche pour différencier les matériaux. En effet, les pics de Bragg pour les matériaux cristallins ou la fonction d'interférence moléculaire pour les matériaux amorphes sont des signatures bien plus discriminantes que la simple fonction d'atténuation  $\mu(E)$ .

## II.2 Techniques de détection des explosifs par diffraction de rayons X

### II.2.1 Principe général

La méthode de diffraction de poudres est traditionnellement utilisée pour l'identification de phases cristallines, la détermination de paramètres de maille et l'analyse des imperfections structurales. Elle est également depuis peu utilisée pour l'identification de matériaux pour des applications médicales et de sécurité, notamment pour la détection de matériaux illicites dans les bagages. Des bases de données des propriétés de diffraction de différents matériaux comme celle de l'ICDD-JCPDS [Kabekkodu 2002] peuvent être facilement consultées, permettant ainsi la confrontation de données expérimentales à ces bases de données et par suite l'identification des matériaux.

Pour les matériaux cristallins, la loi de Bragg vue précédemment dans le paragraphe I.2.2 permet de connaître avec précision la position des pics de diffraction correspondant aux interférences constructives. Un spectre de diffraction permet de déterminer la position de ces pics en fonction du transfert de quantité de mouvement, ce qui constitue une signature spécifique des matériaux. De même, pour certains matériaux amorphes, un spectre de diffraction peut révéler des signatures particulières de matériaux (liées à la fonction d'interférence moléculaire  $s(x)$ ).

Pour obtenir des spectres de diffraction, deux méthodes sont possibles.

### II.2.2 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'angle (ADXRD)

La méthode la plus répandue pour faire une analyse en diffraction d'un échantillon est la méthode ADXRD ("Angular Dispersive X-Ray diffraction"). Elle consiste à envoyer des photons X à une énergie donnée sur un échantillon et à mesurer l'intensité du signal diffracté soit sur un détecteur en rotation autour de l'échantillon, soit sur un ensemble de détecteurs disposés à différents  $\theta$ , soit sur un détecteur imageur. Il s'agit donc de balayer les différents  $d_{hkl}$  de l'équation de Bragg en travaillant à énergie constante mais en faisant varier l'angle  $\theta$ . La source est préférentiellement monochromatique et le détecteur peut ne délivrer que l'énergie intégrée des photons (pas besoin d'information spectrale). Le diagramme de diffraction obtenu se présente avec l'axe des angles de diffraction en abscisse (Fig. II.6).

Cette méthode fonctionne mais est contraignante en terme d'encombrement spatial. En effet, une ligne de détecteurs est nécessaire pour obtenir un spectre de diffraction, ce qui rend difficile la parallélisation d'un tel système pour de l'imagerie 3D. De plus, il est difficile d'obtenir une source d'énergie monochromatique avec un flux de photons suffisant pour satisfaire les contraintes de rapidité imposées par le contrôle de bagages.

## II.2. Techniques de détection des explosifs par diffraction de rayons X 37

### II.2.3 Méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD)

La deuxième méthode émergente qui tend à se développer notamment dans le domaine du contrôle de bagage est la méthode EDXRD ("Energy Dispersive X-Ray diffraction"). Il s'agit cette fois de fixer un angle  $\theta$ , de travailler avec une source polychromatique et de mesurer le spectre diffracté à l'aide d'un détecteur spectrométrique (Fig. II.7).

Le spectre mesuré en énergie correspond alors directement au diagramme de diffraction.

Comme il est montré dans la figure I.10, la diffusion cohérente qui est à l'origine du phénomène d'interférence est plus intense pour des faibles valeurs de  $x$ . Par conséquent, il est intéressant de travailler à des faibles valeurs d'angle de diffraction ( $\theta$  classiquement entre  $2^\circ$  et  $8^\circ$ ).

Cette présente les avantages de permettre d'utiliser des tubes X plus puissants et de paralléliser le système plus facilement avec des matrices de détecteurs permettant ainsi de faire l'imagerie. En revanche, la résolution des spectres de diffraction dépend en partie de la résolution des détecteurs spectrométriques utilisés dans le chapitre I. Des détecteurs en Germanium offrent une bonne résolution en énergie mais ont l'inconvénient de devoir être refroidis. Les détecteurs à base de CdTe ou CdZnTe offrent des performances raisonnables à température ambiante (donc plus compacte), ce qui permet d'envisager leur parallélisation pour une diffraction 2D (voire 3D en translatant l'objet contrôlé). D'autre part, une autre difficulté pour les systèmes EDXRD est la déformation du diffractogramme (intensité des pics) par la non uniformité des faisceaux polychromatiques utilisés. Des méthodes de correction, notamment à l'aide de détecteurs en transmission, peuvent être mises en oeuvre pour corriger ce problème.

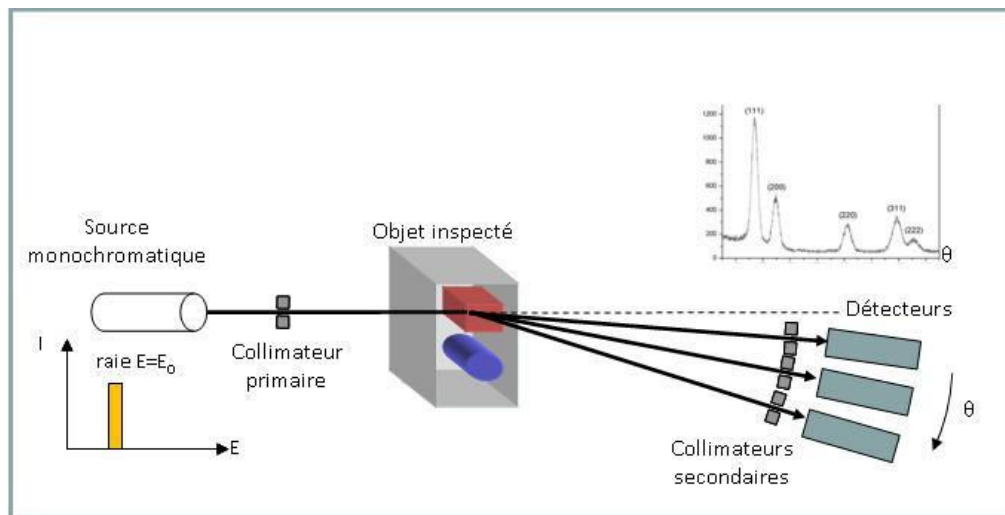


FIGURE II.6 – Schéma de principe de la méthode ADXRD (Angular Dispersive X-ray Diffraction) : Balayer  $\theta$  avec E constante.

Les deux méthodes EDXRD et ADXRD nécessitent une double collimation au niveau de la source (collimateur primaire) et du détecteur (collimateur secondaire) permettant de fixer l'angle de diffraction des photons et le volume inspecté.



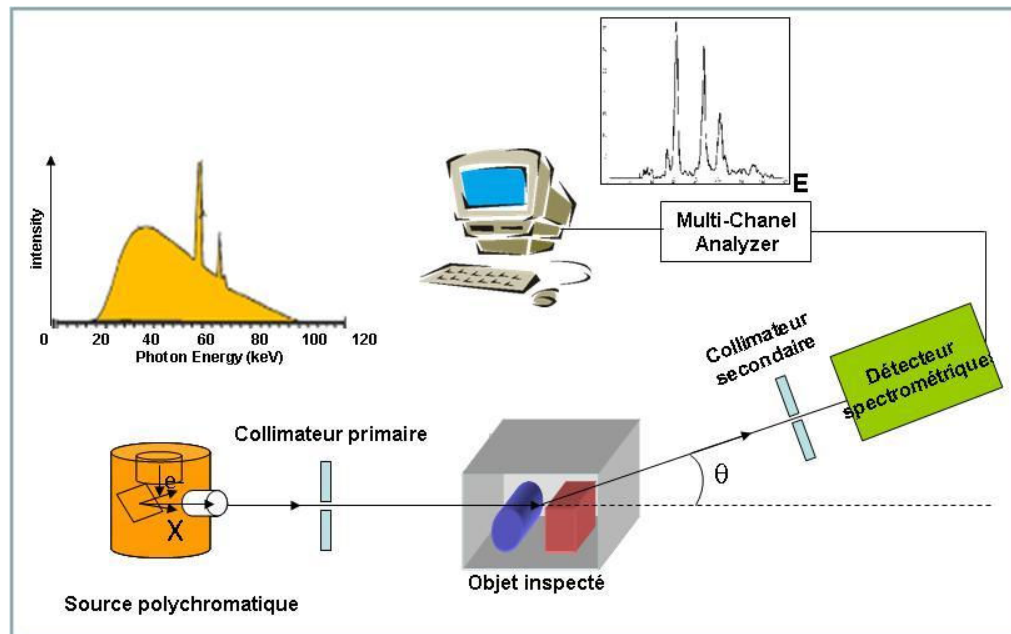


FIGURE II.7 – Schéma de principe de la méthode EDXRD (Energy Dispersive X-ray Diffraction) : Balayer E avec  $\theta$  constant.

Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons à la méthode EDXRD. Toutefois, deux exemples de systèmes ADXRD sont présentés dans le paragraphe suivant, avant de lister les systèmes EDXRD et des méthodes de traitement de spectres existants essentiellement dans le cadre de la détection d'explosifs.

## II.3 Etat de l'art des diffractomètres pour la détection d'explosifs

### II.3.1 Systèmes ADXRD existants

Pour mettre en œuvre cette méthode, une source monochromatique et un détecteur en comptage ou d'intégration de photons sont nécessaires. En pratique, les sources de rayons X sont polychromatiques, un monochromateur est utilisé pour obtenir un faisceau quasiment monochromatique. L'avantage de cette méthode (ADXRD) est l'obtention de raies de diffraction très fines et d'intensité importante.

Cette méthode est utilisée depuis des dizaines d'années pour obtenir des informations sur la structure cristalline d'échantillons. Plus récemment, cette méthode a fait l'objet de recherche et de développement pour être utilisée dans le domaine de la sécurité. En 1995, Beevor [Beevor 1995] présente un système pour détecter les matériaux explosifs par la méthode ADXRD. Le montage correspondant est présenté à la figure II.8. Le système de diffractomètre comporte deux collimateurs primaires (côté source) séparés par un monochromateur. La bande passante en énergie est comprise entre 57.49 et 59.38 keV. Au

niveau du collimateur secondaire (côté détecteur), des lamelles sont espacées radialement de 0.5 degrés et chaque lamelle est alignée sur le point focal situé au centre du volume de mesure. De ce fait, seul le rayonnement diffusé atteint le détecteur.

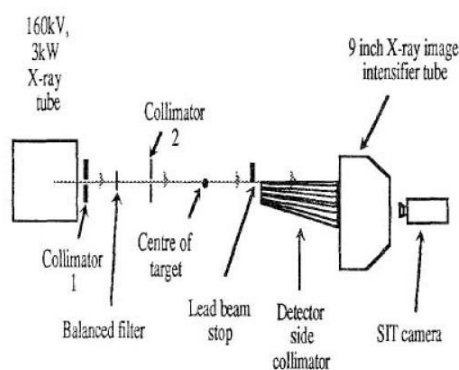


FIGURE II.8 – Schéma du montage ADXRD [Beevor 1995]

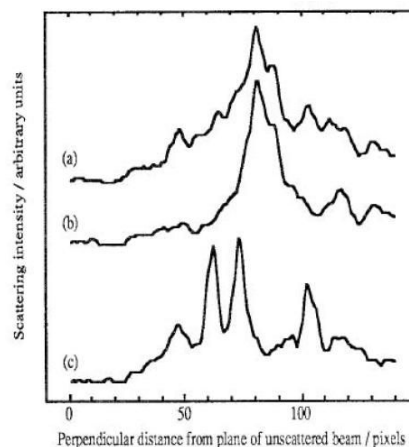


FIGURE II.9 – Résultats obtenus pour une énergie d'environ 60 keV : Semtex (a), PETN (b), RDX (c)

Chaque pixel du détecteur (caméra associée à un tube intensificateur) mesure l'intensité à l'angle fixé par la lamelle correspondante. Un profil de niveau de gris le long d'une ligne permet donc d'obtenir un spectre en fonction de l'indice de la lamelle, et donc indirectement en fonction de l'angle. La figure II.9 présente différents spectres d'explosifs bien distincts : Semtex, PETN et RDX. Etant donné le temps d'acquisition élevé nécessaire à cette méthode pour obtenir un rapport signal sur bruit acceptable, ce système ne peut intervenir qu'en complément d'une autre technique d'inspection de type scanners (en deuxième niveau de contrôle pour les bagages).

Dicken [Dicken 2010] a également montré l'efficacité d'une telle méthode dans la détection des explosifs. La configuration géométrique est présentée sur la figure II.10. Elle comprend : un générateur X de 40 keV avec une anode en Molybdène, un détecteur à scintillateur situé sur un bras mobile et qui se déplace autour de l'échantillon avec un rayon constant. L'axe de symétrie du bras mobile (qui porte le détecteur) effectue un déplacement le long du faisceau incident, ce qui permet d'identifier à la fois les matériaux et leurs épaisseurs dans l'objet inspecté.

Cette méthode souffre de la difficulté d'obtenir une énergie monochromatique avec un flux assez important de photons pour satisfaire la contrainte de rapidité imposée par le contrôle de bagage. Un autre problème est l'encombrement spatial, surtout si on imagine l'inspection d'un objet plus gros avec plusieurs diffractomètres en parallèle.

### II.3.2 Systèmes EDXRD existants

Plusieurs équipes travaillent sur des systèmes de type EDXRD pour des applications en sécurité (détecteurs de matériaux illicites, drogues ou explosifs), ou médicales. L'étude

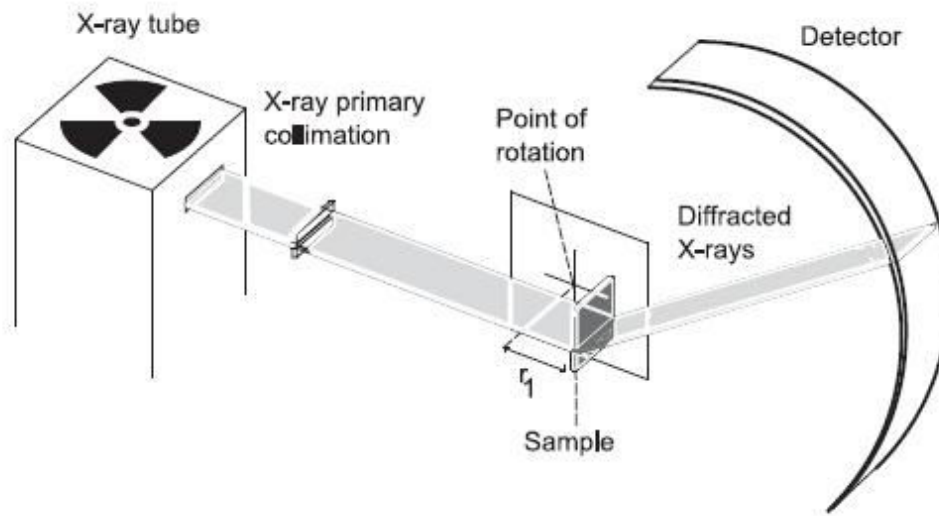


FIGURE II.10 – Schéma d'un diffractomètre ADXRD [Dicken 2010].

bibliographique présentée dans la suite liste les principales équipes travaillant sur le sujet.

### II.3.2.1 University College London (UCL) ( R. Speller, R. Luggar, S. Pani... ) :

Depuis 1993, cette équipe travaille sur les applications de la méthode EDXRD pour la détection d'explosifs, de drogues et pour des applications médicales. R.D. Luggar a publié plusieurs travaux entre 1996 et 1998 [Luggar 1996, Luggar 1997, Luggar 1998] sur des systèmes en EDXRD pour la détection des explosifs. Il a notamment optimisé une configuration géométrique [Luggar 1997] pour la détection des explosifs par la diffusion des rayons X à petit angle. Les spectres obtenus dans la figure II.11 montrent que les explosifs possèdent des pics à basse énergie distincts de ceux des matériaux communément trouvés dans les valises. Il a montré que la distinction est meilleure pour des angles de diffusion compris entre 4-5 degrés où on observe une série de pics bien résolus. Les énergies des pics observés sont alors supérieures à 30 keV, où l'effet d'atténuation sur les intensités des pics est moins important. Le détecteur spectrométrique utilisé est en Germanium.

Dans les références [Luggar 1996, Luggar 1998], R.D. Luggar a abordé l'aspect traitement des spectres de diffraction pour identifier les matériaux. Cet aspect sera développé ultérieurement dans ce chapitre.

Dans la référence [Malden 2000], les auteurs ont mis en oeuvre une méthode EDXRD en multi-angles (Fig. II.12), ce qui peut être interprété comme une combinaison des méthodes EDXRD/ADXRD. L'image obtenue par cette technique montre des spectres EDXRD mesurés à des différents angles de diffraction. Comme il est montré dans la figure II.13, les signatures spécifiques d'explosifs sont extraites par soustraction de deux images : l'image mesurée avec les explosifs et les matériaux communs et l'image mesurée seulement avec les matériaux communs. On désigne par l'expression " matériaux communs " les matériaux non explosifs que l'on peut communément trouver dans les valises.

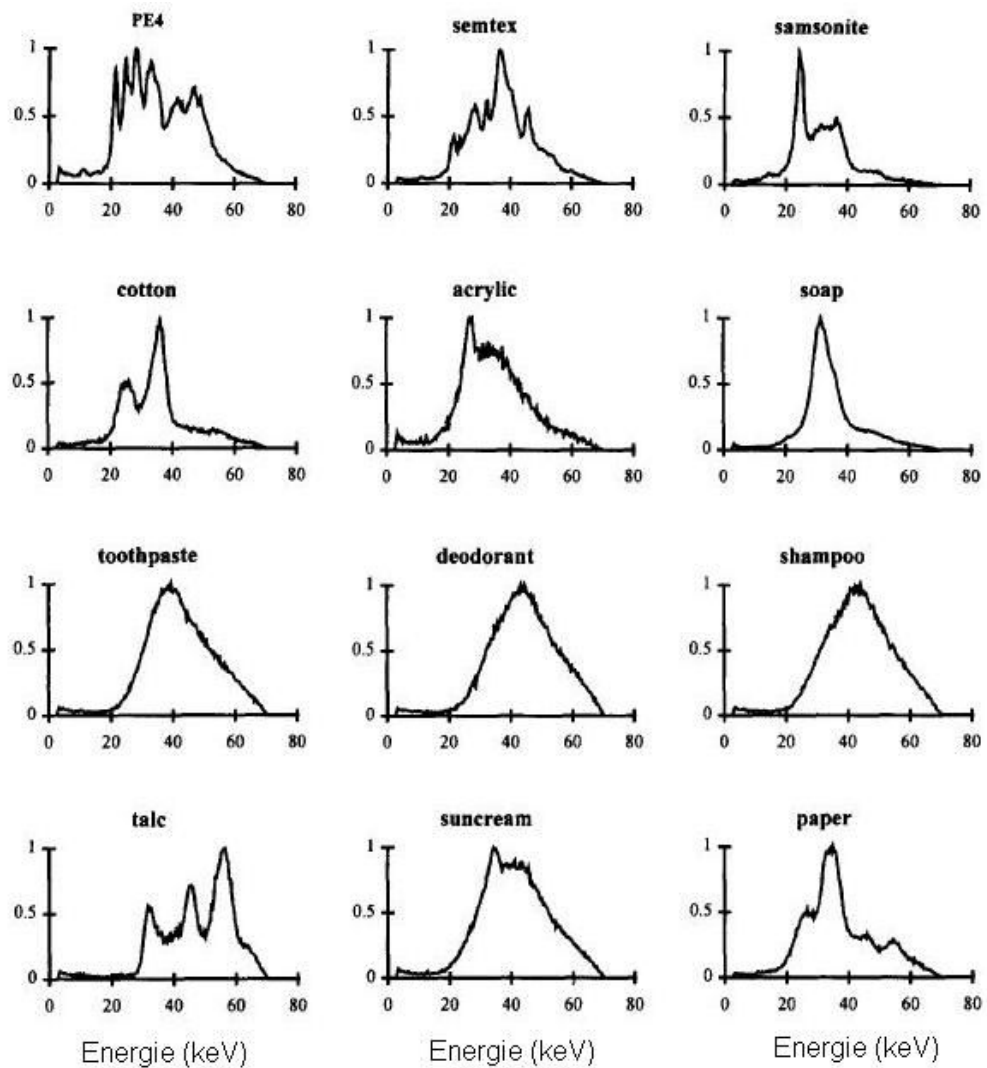


FIGURE II.11 – Profils de diffraction des différents matériaux et de deux types d'explosifs (PE4 et Semtex) mesurés par Luggar [Luggar 1997].

Dans la même équipe de recherche, Pani [Pani 2009] a développé un simulateur modélisant la réponse d'un système de diffraction en dispersion d'énergie. Ce programme se base sur un calcul analytique qui prend en compte :

- la forme du spectre incident
- la diffraction par le matériau du volume inspecté
- l'atténuation dans l'échantillon lui-même
- la réponse du système de collimation (résolution angulaire)
- la réponse du détecteur

Ce simulateur a permis d'étudier l'influence de différents paramètres sur le spectre de diffraction et notamment l'influence de la résolution en énergie du détecteur. Une des conclusions est que pour leur géométrie, l'effet de l'ouverture angulaire de la collimation est

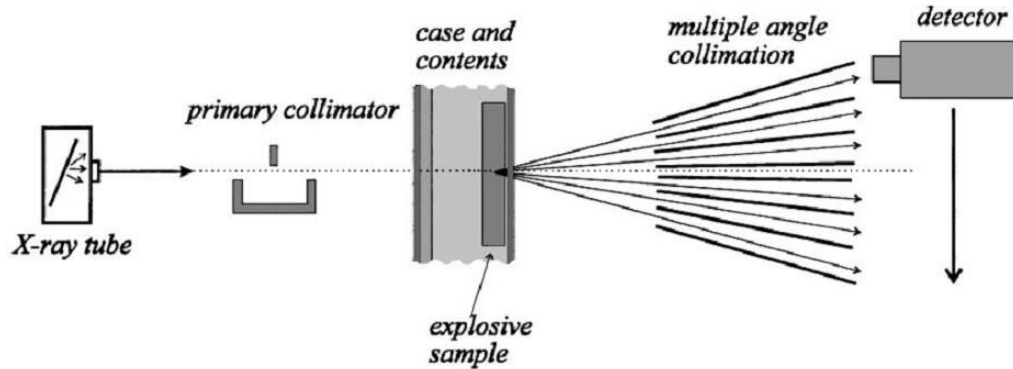


FIGURE II.12 – Combinaison EDXRD et ADXRD [Malden 2000].

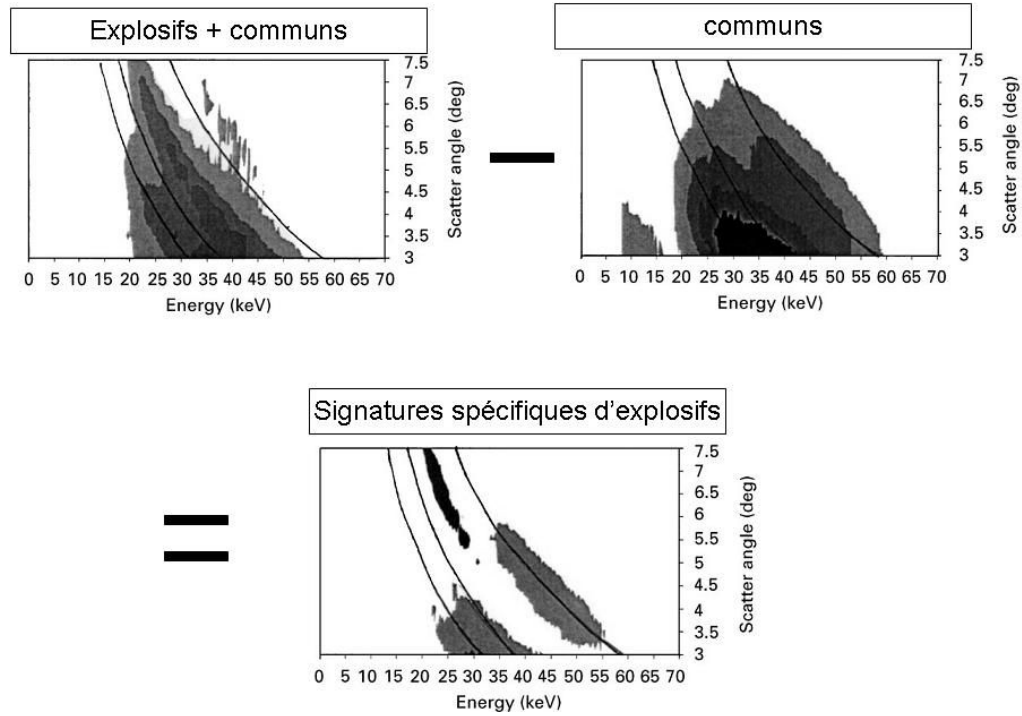


FIGURE II.13 – Un exemple de soustraction de deux images afin de trouver les signatures spécifiques d'explosifs [Malden 2000].

prédominant, limitant ainsi l'influence de la résolution en énergie du détecteur (Fig. II.14). De manière générale, on sait que la résolution finale d'un pic de diffraction est donnée par l'équation :

$$\Delta E_{tot} = \sqrt{(\Delta E_{ang})^2 + (\Delta E_{det})^2} \quad (II.1)$$

$\Delta E_{ang}$  est liée à la résolution angulaire du diffractomètre.  $\Delta E_{det}$  est la résolution intrinsèque du détecteur. A priori, il apparait donc que la résolution du détecteur peut affecter de façon significative le spectre de diffraction, autant que la résolution angulaire. La conclusion de ce papier est donc spécifique à la géométrie utilisée et ne peut pas être généralisée à n'importe quelle configuration. Ce point constitue un point essentiel de cette

thèse et sera donc l'objet d'étude dans les chapitres suivants.

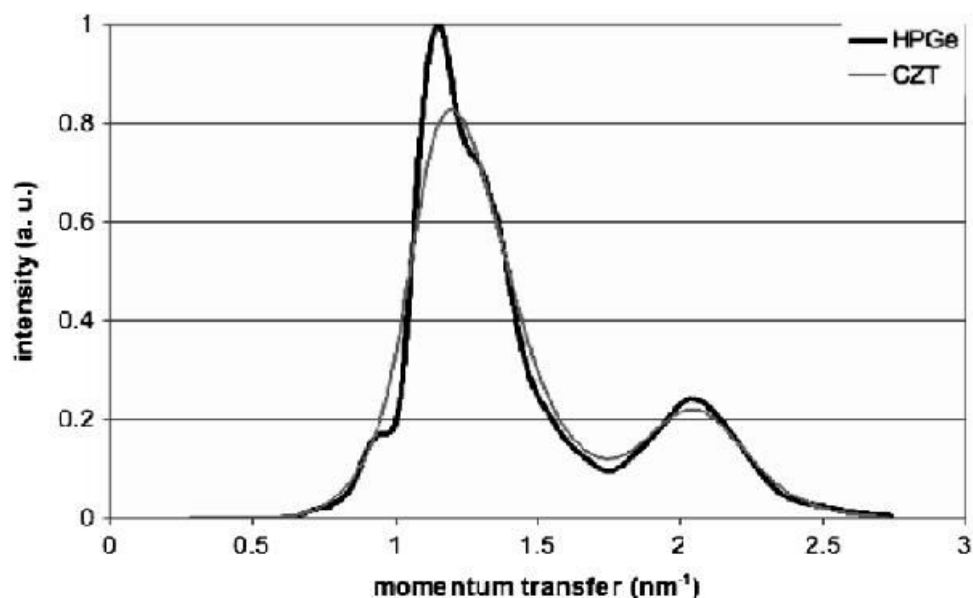


FIGURE II.14 – Etude par simulation de l'influence de la résolution en énergie du détecteur sur un spectre de diffraction pour un échantillon de 10 mm d'épaisseur de Zirtek (HPGe FWHM=0.7 keV @ 60 keV, CZT FWHM=4 keV @ 60 keV) et pour un diffractomètre donné [Pani 2009].

J. Cook et al. ont utilisé ce programme dans le cadre de la détection de drogues [Cook 2009b] : d'une part dans l'optimisation du système (Fig. II.15) et d'autre part pour générer des données nécessaires pour construire des modèles d'analyse multivariée utilisés dans le traitement de données pour la détection de drogues.

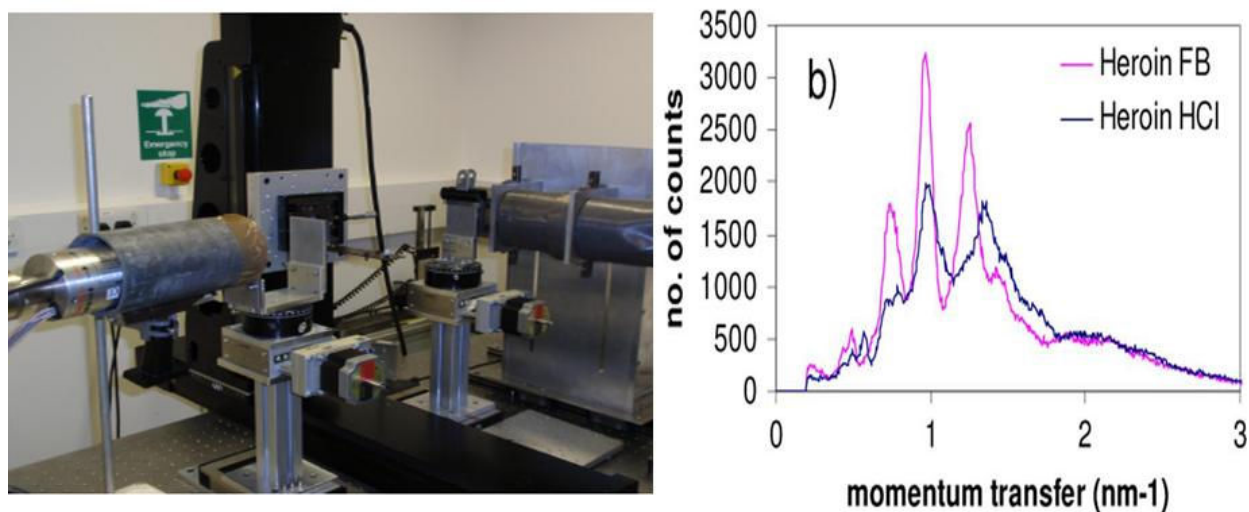


FIGURE II.15 – Système de diffractomètre en EDXRD utilisé à l'UCL (University College London) et deux exemples de spectres de diffraction mesurés pour des drogues.

L'UCL travaille également maintenant pour des applications médicales [Pani 2010], où la technique EDXRD permet par exemple de caractériser les tissus en mammographie (Fig. II.16). En médical, les matériaux recherchés sont de type amorphes, avec donc une signature de diffraction lisse, semblable à celle des liquides.

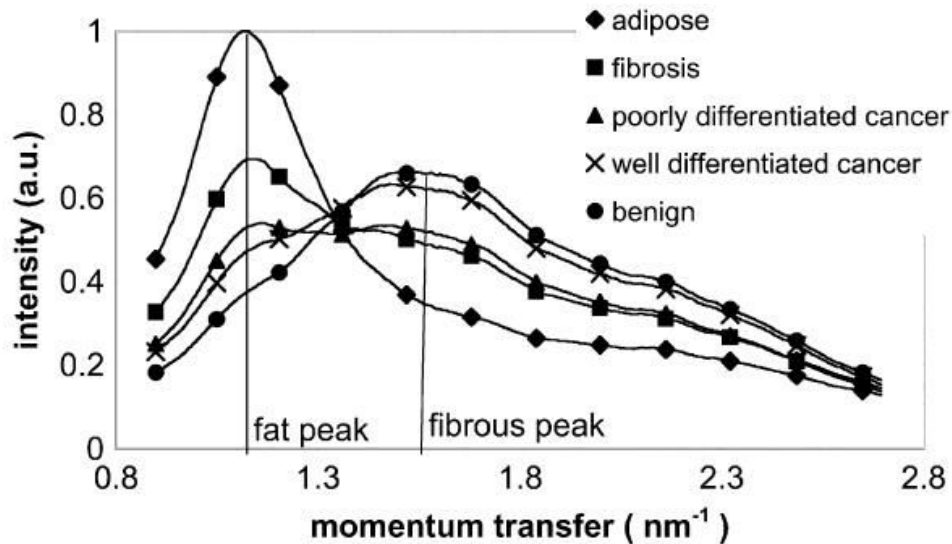


FIGURE II.16 – Comparaison de spectres EDXRD sur différents types de tissus en médical.

### II.3.2.2 Le laboratoire LVA/CNDRI de l'INSA de Lyon (Ph. Duvauchelle & al.)

Dès les années 80, le laboratoire LVA-CNDRI (laboratoire vibration acoustique et contrôle non destructif par rayonnements ionisants) de l'INSA de Lyon s'est beaucoup impliqué dans le domaine de la cristallographie des métaux et alliages par analyse ADXRD. Plus tard, l'EDXRD a été mis en œuvre avec un détecteur HPGe pour suivre la polymérisation des résines.

Plus récemment, les chercheurs de cette équipe ont développé des outils autour de la technique de l'EDXRD dans le domaine de la sécurité, notamment pour la recherche d'explosifs. Ainsi, ils disposent d'un diffractomètre de laboratoire spécifiquement développé pour mettre en œuvre des techniques de diffusion ou diffraction (Fig. II.17). Le tube X de 225 kV est associé à différents types de détecteurs spectrométriques (Ortec HPGe, Amptek Silicium et CdTe).

Au niveau système, [Bonnin 2009] a montré expérimentalement l'influence de la résolution en énergie du détecteur. La figure II.18 montre qu'en passant d'un détecteur en Germanium (FWHM=0.7 keV @ 60 keV) à un détecteur en CdTe (FWHM=4 keV @ 60 keV), la résolution des pics de diffraction est fortement dégradée. Dans ce cas, la résolution intrinsèque du détecteur a un effet important sur le spectre de diffraction et donc l'identification qui en découle.



FIGURE II.17 – photographie du diffractomètre du laboratoire LVA/CNDRI de l'INSA de Lyon.

D'autres travaux concernent le développement d'un outil de simulation [Peterzol 2011, Soulez 2011] (Fig. II.19), ainsi que la mise en œuvre de méthodes de traitement des spectres [Crespy 2010b] pour la reconnaissance de matériaux.

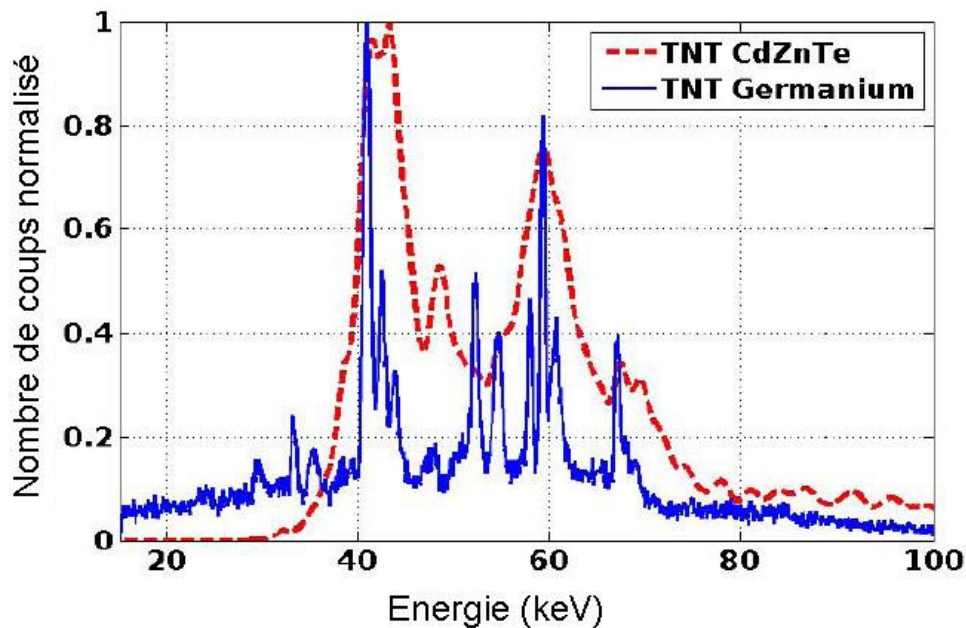


FIGURE II.18 – Spectres de TNT acquis avec un détecteur CZT et un détecteur HPGe [Bonnin 2009].

### II.3.2.3 L-3 Communications Security and Detection Systems (Madden & al) :

La société L-3 Communications Security and Detection Systems a développé un système EDXRD [Madden 2008] pour la détection des explosifs dans les bagages d'aéroport. Les performances du système ont été démontrées lors d'essais avec des explosifs dissimu-



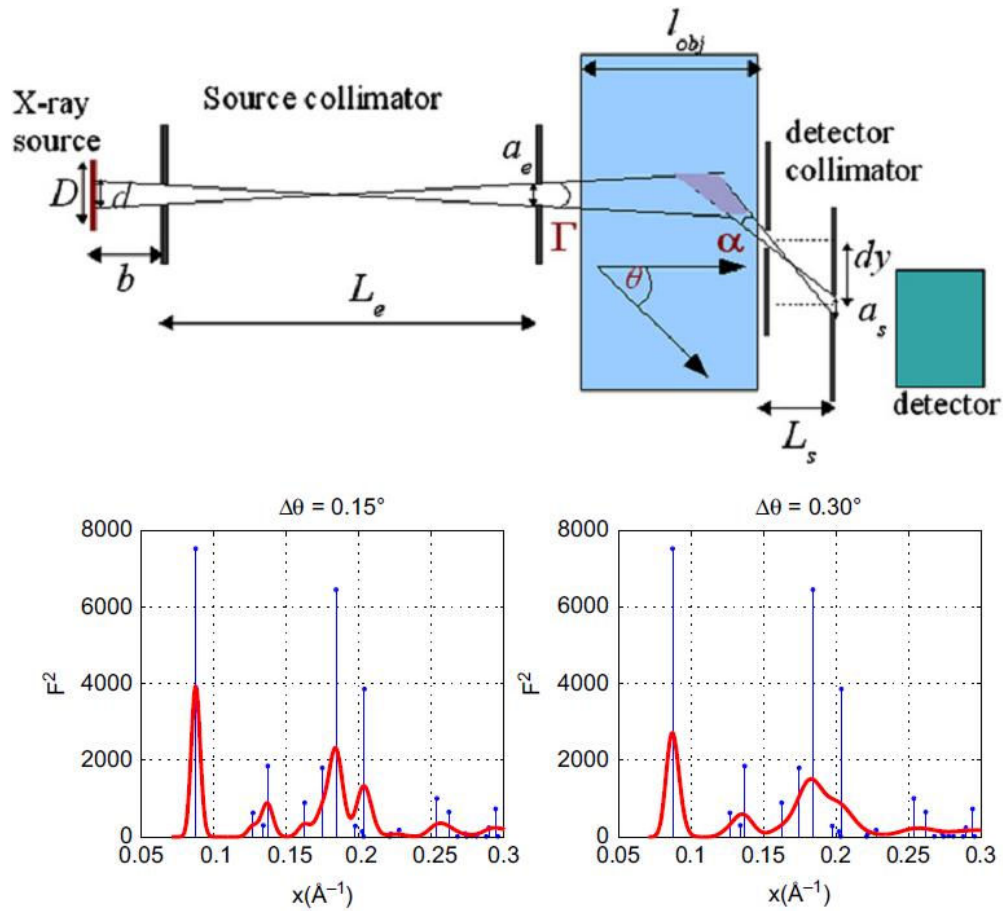


FIGURE II.19 – En haut, schéma d'un système EDXRD avec les notations utilisées dans le modèle développé par le laboratoire LVA/CNDRI de l'INSA-CNDRI. En bas, deux spectres de diffraction simulés à  $\theta = 3^\circ$  pour le nitrate d'ammonium (gauche) et le Trétyl (droite), résultant d'une convolution gaussienne effectuée autour des pics théoriques (bleu) [Peterzol 2011].

lés dans des bagages à l'aéroport international d'Orlando. Ce système est utilisé comme technique supplémentaire pour réduire significativement le taux de fausses alarmes, évitant ainsi l'ouverture des sacs de voyageur pour une inspection manuelle. La source de rayons X se déplace dans le plan horizontal au dessous du tunnel à l'aide d'une table de translation. Au dessus du tunnel, un détecteur HPGe est monté sur un système de déplacement à deux dimensions. Un système de collimation permet au détecteur de ne voir que les informations venant d'un volume de mesure (appelé volume inspecté) qui fait environ 50 mm de hauteur (suivant l'axe Z) sur 25 mm de longueur (suivant l'axe Y) sur 1.5 mm de largeur (suivant l'axe X) (Fig. II.20). Une spécificité de ce système réside dans le léger mouvement de la source et du détecteur durant une mesure pour s'affranchir du problème de l'orientation des cristallites trop peu nombreux dans le volume d'inspection. Ce problème d'orientation des grains constitue le sujet du chapitre VI de cette thèse.

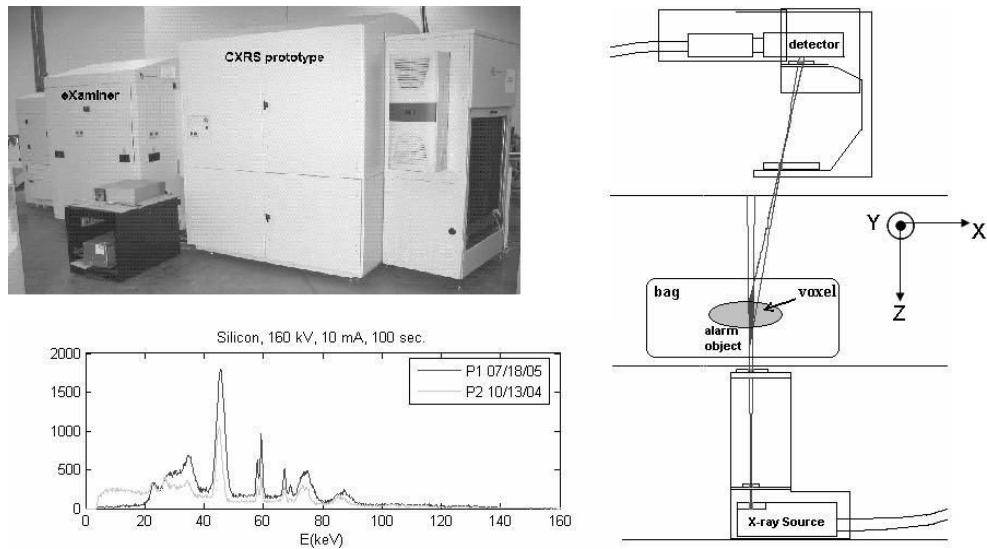


FIGURE II.20 – Système de diffraction des rayons X pour le contrôle des bagages par L-3 Communications Security and Detection Systems.

### II.3.2.4 Morpho Detection (Harding et al.) :

Morpho Detection apparaît aujourd'hui comme l'industriel le plus impliqué dans l'utilisation de la technique de diffraction pour les contrôles de bagages. Les différents travaux visent à optimiser un système permettant de contrôler un bagage par diffraction en un temps d'acquisition minimum [Harding 2010a, Cozzini 2010, Harding 2009, Harding 2008]. Un système utilisant la méthode EDXRD est développé depuis plusieurs années et a connu quatre générations différentes [Harding 2008] :

#### Première Génération

La première génération d'appareil a été développée pour gagner en temps de mesure par rapport aux techniques existantes en dispersion d'angle. La figure II.21 présente le principe : une source polychromatique est collimatée de manière à former un faisceau fin (" pencil beam ") qui va irradier une zone de l'objet. Un détecteur résolu en énergie (de type Germanium) est installé à un angle  $\theta$  du faisceau incident. Un collimateur secondaire est associé au détecteur. Une correction d'atténuation est réalisée grâce à un détecteur placé dans la direction du faisceau incident en transmission. En effectuant un balayage en déplaçant l'objet, on obtient alors une image de l'objet. Cette première génération permet d'obtenir la mesure d'un point en environ 1s. Ce système compact permet d'obtenir une réponse rapide sur un petit échantillon, mais cette technique est trop longue pour être mise en place pour un contrôle de bagages à plus grande échelle.

#### Seconde Génération

La seconde génération d'appareil est simplement une amélioration du premier modèle, toujours avec pour objectif de diminuer le temps d'acquisition. Ainsi, l'acquisition ne se

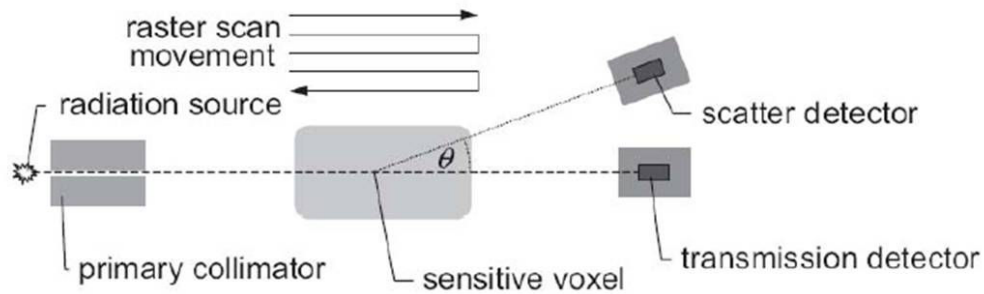


FIGURE II.21 – Illustration de la première génération [Harding 2008].

fait plus avec un simple détecteur mais avec un détecteur pixélisé de telle sorte que les profils de diffraction sont acquis sur toute la longueur de l'objet, comme on peut le voir sur la figure II.22. Dans ce cas, une simple translation suffit pour réaliser une image de l'objet. La vitesse du contrôle passe ainsi de 1 voxel analysé par seconde à 100 voxels par seconde.

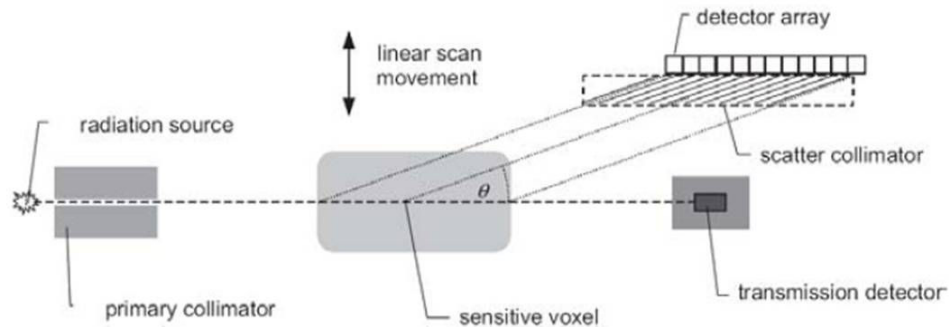


FIGURE II.22 – Illustration de la deuxième génération [Harding 2008].

### Troisième génération

La troisième génération permet d'analyser simultanément les profils de diffraction par un détecteur 2D pixélisé sans mouvement mécanique (Fif. II.23).

Un fin pinceau X illumine une tranche de l'objet (" slice "), et le pinceau transmis atteint la ligne centrale d'un détecteur 2D. La zone de détection de l'appareil est indexée par une variable  $\Phi$  pour les colonnes du détecteur et une variable  $h$  pour les lignes. Le détecteur est complété par un collimateur : une colonne du détecteur " voit " à travers cette grille un segment de l'objet (équivalent à la deuxième génération). Il convient de noter que tous les pixels voient le même angle de diffraction  $\theta$ . On obtient ainsi une information 2D  $I(h, \Phi)$ , et potentiellement 3D par empilement de mesures à chaque instant.

### Quatrième génération

Les développements effectués dans la troisième génération peuvent être combinés entre

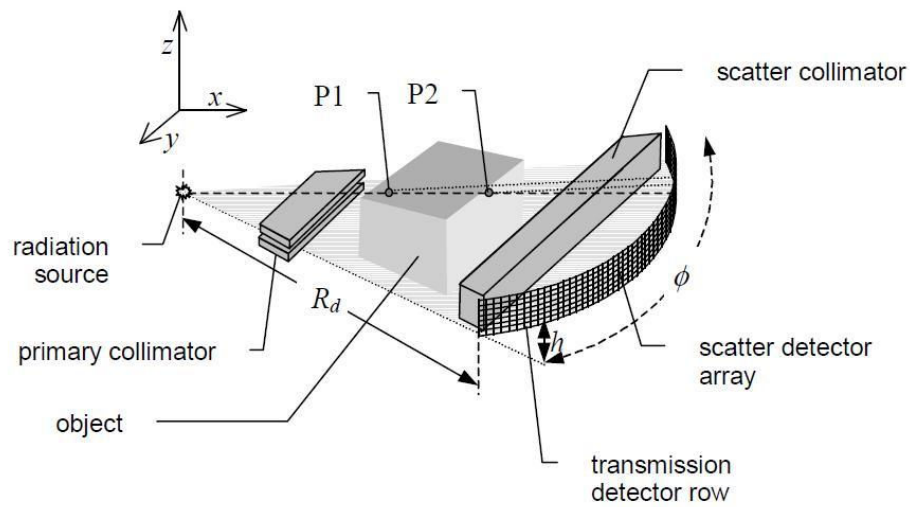


FIGURE II.23 – Illustration de la troisième génération [Harding 2008].

eux pour obtenir la quatrième génération en utilisant l'approche appelée "parallel multi-direct fan beam" comme il est montré dans la figure II.24. Pour une seule source des rayons X, le résultat des rayons divergents forme un "multi-direct fan beam". Des sources linéairement segmentées et placées le long de l'axe Z permettent d'obtenir le "parallel multi-direct fan beam". L'objectif est de réduire les mouvements de translations nécessaires pour obtenir une couverture complète en trois dimensions.

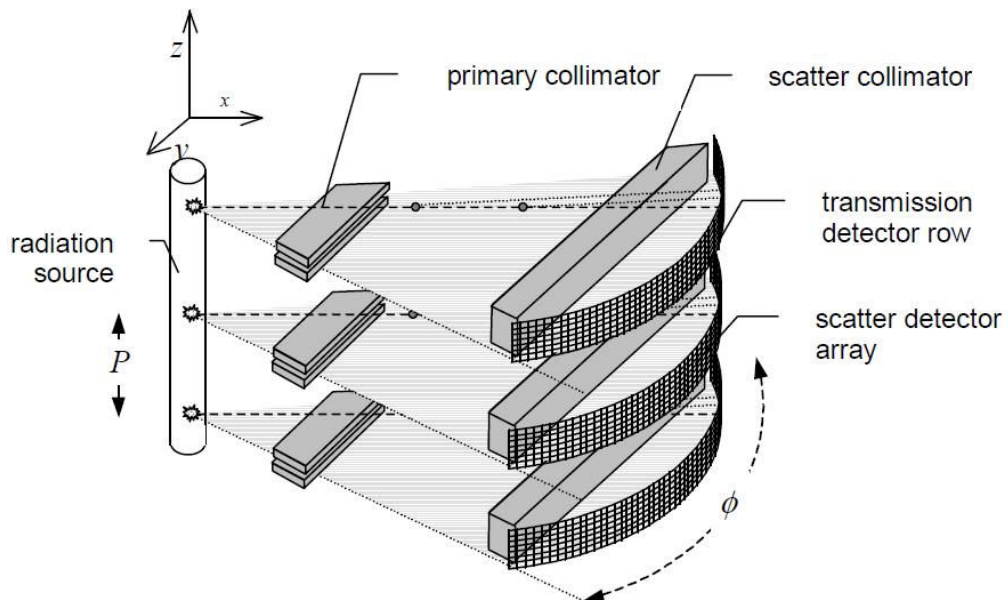


FIGURE II.24 – Illustration de la quatrième génération [Harding 2008].

Etude en simulation de Cozzini [Cozzini 2010] :

Les détecteurs à base de germanium sont utilisés actuellement par tous les systèmes proposés par Morpho. Afin d'évaluer la pertinence des détecteurs semi-conducteurs pour les générations futures de systèmes XRD, il est nécessaire d'évaluer les exigences minimales requises en terme de résolution en énergie du système car l'identification précise d'un matériau dépend essentiellement de la capacité du système à détecter et séparer les pics présents dans le profil de diffraction.

Dans la référence [Cozzini 2010], les auteurs présentent une étude à base de simulations pour évaluer à la fois l'influence du système (essentiellement lié à la collimation) et du détecteur sur la résolution finale en énergie du détecteur.

La figure II.25 montre une influence prépondérante de la résolution en énergie du système de collimation pour les hautes énergies et de la résolution en énergie du détecteur pour les basses énergies.

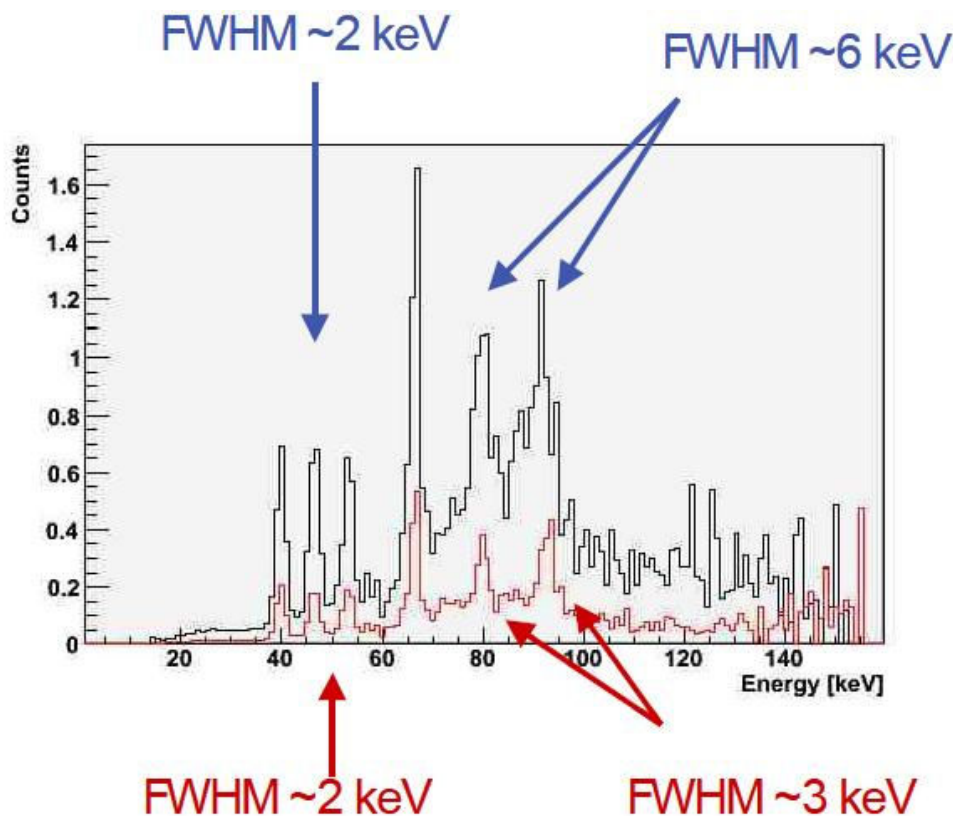


FIGURE II.25 – Le spectre en rouge est la réponse d'un système plus collimaté que celui du spectre noir : l'effet de collimation sur la résolution des pics apparaît au delà de 70 keV sachant qu'à basse énergie, elle reste quasiment constante [Cozzini 2010].

### **II.3.3 Méthodes de traitement de spectres avec un système de type EDXRD pour l'identification de matériaux**

Le traitement des spectres mesurés avec les systèmes EDXRD est nécessaire pour permettre d'extraire l'information pertinente en vue de l'identification des matériaux.

Ce traitement se fait généralement en deux étapes. Une première étape de prétraitement permet le débruitage et la correction de l'atténuation. Une deuxième étape correspond à l'analyse des spectres pour extraire des paramètres caractéristiques nécessaires à l'identification.

Voici un résumé des méthodes les plus utilisées pour l'identification de matériaux :

#### **II.3.3.1 Méthode d'analyse multivariée**

Cook et Luggar ([Cook 2009b, Luggar 1998]) ont utilisé des outils d'analyse multivariée (MVA = Multivariate Analysis) pour prédire ou non la présence de drogue (Cook) et d'explosifs (Luggar). Dans les deux cas, l'algorithme PLS (Partial Least Square) est proposé. Cet algorithme se fait en deux étapes. Une première étape permet de construire le modèle reliant la matrice des spectres de diffraction aux concentrations des différents constituants (connues à l'étape de prédiction). La deuxième étape permet de prédire la concentration des différents constituants pour un spectre de diffraction d'un composé inconnu.

Cook a utilisé cette méthode avec succès pour prédire tout d'abord la présence de drogue dans un échantillon et dans un deuxième temps pour en estimer la concentration. Deux types de détecteurs ont été testés [Cook 2007, Cook 2009a, Pani 2009] : un détecteur HPGe (0.7 keV de résolution en énergie à 59.5 keV) et un détecteur CZT (4keV à toutes les énergies). En raison de l'élargissement des pics engendrés par la résolution angulaire du système, Cook a montré qu'en utilisant le détecteur CZT, les résultats étaient comparables à ceux obtenus avec le détecteur HPGe.

La limite de cette étude réside dans le faible nombre de substances utilisées pour calibrer le modèle, ce qui conduit à un taux élevé de fausses alarmes.

L'analyse multivariée par la technique de décomposition matricielle appelée SVD (Singular Value Decomposition) a été proposée par l'équipe Chinese Academy of Sciences [Zhang 2011, Zhang 2010] pour identifier des précurseurs chimiques de différents liquides. Il est démontré que les deux plus grandes valeurs singulières associées aux vecteurs singuliers gauche et droit issus de la décomposition matricielle permettent de reconstruire la matrice des spectres avec une erreur raisonnable. Ceci prouve que la majeure partie de l'information pertinente est contenue dans les deux premières sections singulières. Ainsi, il est possible d'associer à chaque spectre la valeur des deux plus grandes valeurs singulières, ce qui donne un point caractéristique (" features "). Dans ce plan 2D, il est alors possible de classer les spectres dans différents clusters.

#### **II.3.3.2 Calcul du coefficient de corrélation ou de la fonction de cohérence**

La technique consiste simplement à calculer le coefficient de corrélation entre le spectre de diffraction de l'échantillon testé et chacun des spectres des explosifs de la bibliothèque.

Le coefficient de corrélation est compris entre 0 et 1. Une valeur de 1 signifie que les spectres sont identiques. Les spectres sont considérés comme concordants quand le coefficient de corrélation est supérieur à un seuil de détection (aux alentours de 0,97) [Crespy 2010a].

L'équipe de "Chinese Academy of Sciences" [Yu 2010, Qu 2010] a présentés dans plusieurs de ses articles la notion de fonction de cohérence. Cette fonction de cohérence permet d'étudier les similarités entre 2 signaux dans le domaine fréquentiel. Elle est définie comme le rapport entre le module carré de la densité spectrale de puissance mutuelle et le produit des densités spectrales de chaque signal. L'identification de matériaux se fait en calculant cette fonction de cohérence entre la densité spectrale du matériau inconnu et celle des matériaux d'une base de données et en appliquant un seuillage. Cette méthode d'identification s'avère efficace pour identifier la présence d'objets suspects cachés dans un fond complexe. Avant calcul de la fonction de cohérence, les spectres sont pré-traités. Ils subissent une première étape de troncation puis de débruitage en utilisant la transformée en ondelettes.

### II.3.3.3 Analyses de la position des pics

Une autre méthode mise en œuvre pour l'identification des substances est inspirée de la technique de Hanawalt [Langford 1996]. Elle consiste à déterminer la position des pics dans l'échantillon testé et de les comparer à celle des pics de la bibliothèque [Crespy 2010b]. Dans cette méthode la bibliothèque est constituée seulement des spectres d'explosifs. S'il y a cohérence entre la position d'au moins un pic de l'échantillon avec un spectre de la bibliothèque l'amplitude des pics est utilisée pour déterminer la teneur maximale en explosif dans l'échantillon.

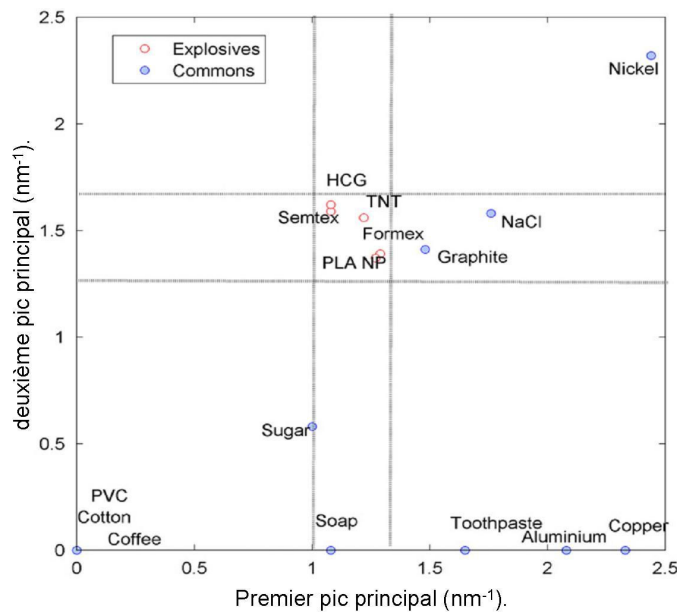


FIGURE II.26 – position des deux principaux pics des spectres acquis avec le Ge [Crespy 2010b].

Dans [Crespy 2010b], les auteurs ont montré que les spectres des substances explo-

sives ont un premier pic situé entre 1 et  $1,4 \text{ nm}^{-1}$  (respectivement 30 et 50 keV lorsque  $\theta = 4,28^\circ$ ) (Fig. II.26). Le sucre et le graphite vérifient également cette caractéristique contrairement aux autres matériaux communs.

L'utilisation de deux pics principaux permet de réduire le taux de fausses alarmes (premier pic 1 et  $1,4 \text{ nm}^{-1}$  et deuxième pic principal entre 1,2 et  $1,6 \text{ nm}^{-1}$ ) (Fig. II.26).

#### II.3.3.4 Technique de classification : cas des liquides

Dans les références [Harding 2010b, Harding 2006, Harding 2007] : Harding propose d'extraire un certain nombre de caractéristiques des spectres pour ensuite procéder à la classification. Le premier niveau est un ensemble de caractéristiques extraites du spectre de diffraction total (par exemple nombre de photons). Ensuite, un deuxième niveau est obtenu à partir de la fonction d'interférence moléculaire (MIF). Cette fonction est dérivée du spectre grâce à l'estimation du numéro atomique effectif (méthode HETRA High Energy Tip Region Analysis). Une technique permettant d'estimer la fonction MIF à partir du spectre XRD a été décrite dans la publication [Harding 2010b]. Enfin, un troisième jeu de paramètres est extrait de la fonction "résidu" issue de la différence entre la fonction MIF estimée du matériau et la fonction MIF de l'eau.

L'ensemble de ces caractéristiques (" features ") sont utilisées comme données d'entrée d'un algorithme de classification de type MDC (Minimum distance classifier).

## II.4 Caractéristiques des matériaux explosifs

Ce paragraphe présente quelques caractéristiques des explosifs polycristallins connus pour pouvoir être dissimulés dans des bagages par les terroristes lors d'attentats dans les aéroports. Ce sont en effet des matériaux facilement transportables, comme toute matière plastique. Les paramètres de la structure cristalline d'un matériau (comme les distances inter-réticulaires) constituent leurs empreintes digitales et permettent donc de les identifier.

Le spectre final de diffraction dépend de plusieurs paramètres que l'on peut classer en deux catégories : les paramètres "identifiants" qui sont les paramètres spécifiques du matériau inspecté, dont l'extraction permet l'identification et les paramètres dégradants qui sont indépendants du matériau inspecté et dépendants du système (collimation, résolution intrinsèque en énergie du détecteur. . . ) qui dégradent les paramètres identifiants.

Les paramètres identifiants comprennent notamment :

- $V_m$  : le volume d'une maille.
- $d_{hkl}$  : les distances interplanaires pour lesquelles apparaissent des pics dans les spectres EDXRD selon la loi de Bragg :

$$E = \frac{hc}{2d_{hkl}\sin(\theta/2)} \quad (\text{II.2})$$

- $F_{hkl}$  : les facteurs de forme qui affectent directement les intensités des pics dans les spectres EDXRD.



Les paramètres présentés dans ce paragraphe sont extraits des bases des données "ICDD-JCPDS" [Kabekkodu 2002] :

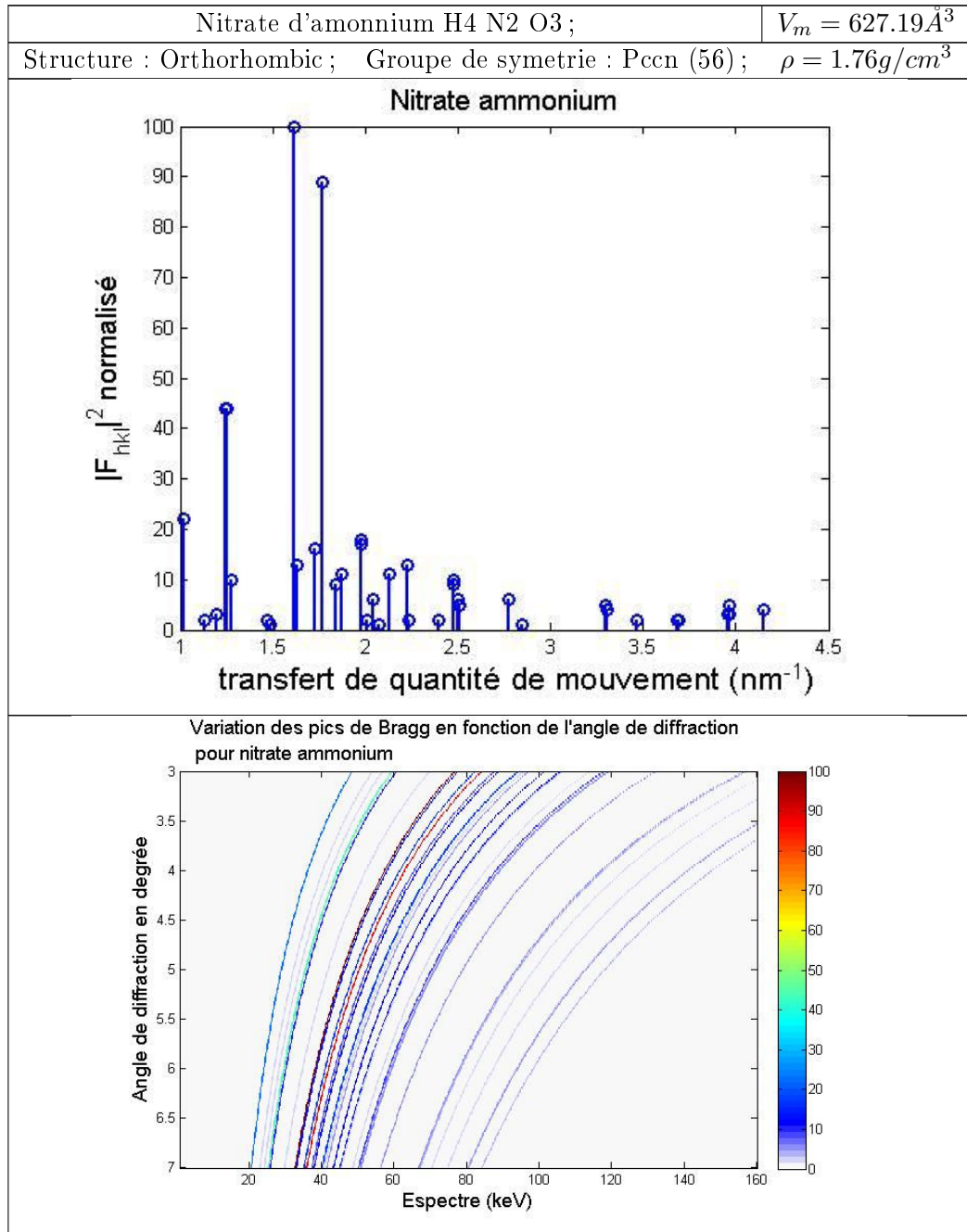


TABLE II.1: Paramètre théoriques de nitrate ammonium.

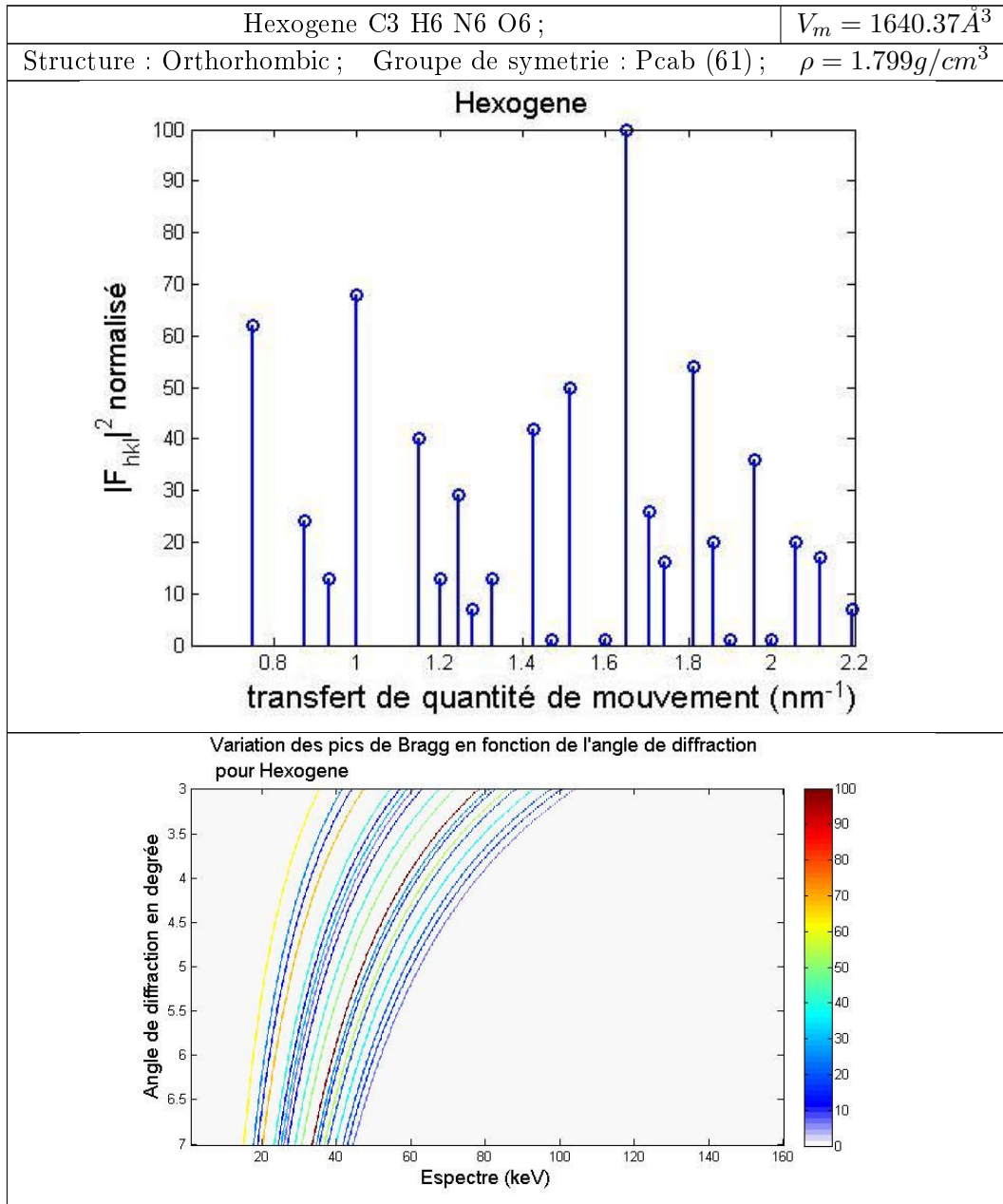


TABLE II.2: Paramètre théoriques de l'hexogène

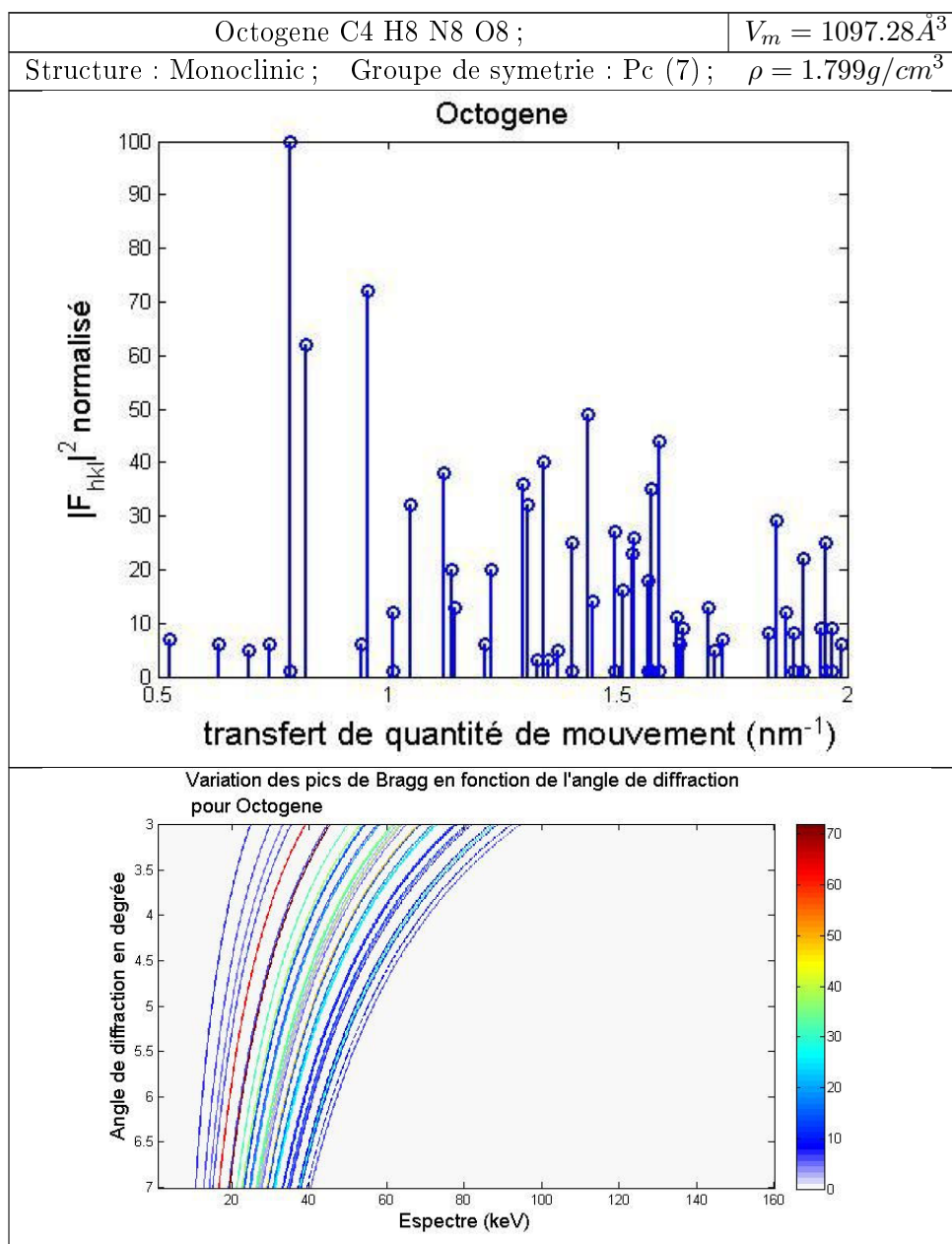


TABLE II.3: Paramètre théoriques de l'octogène

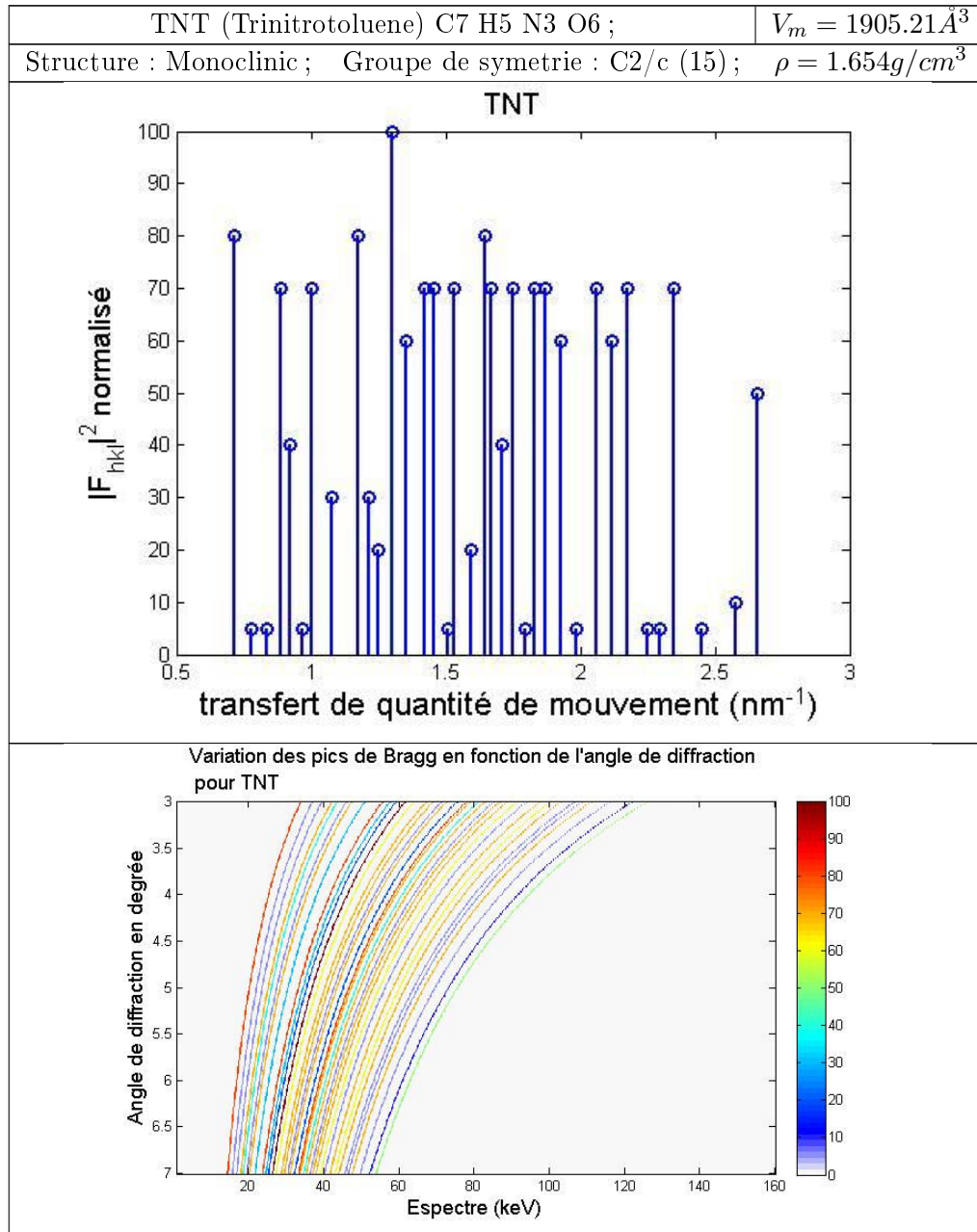


TABLE II.4: Paramètre théoriques de TNT

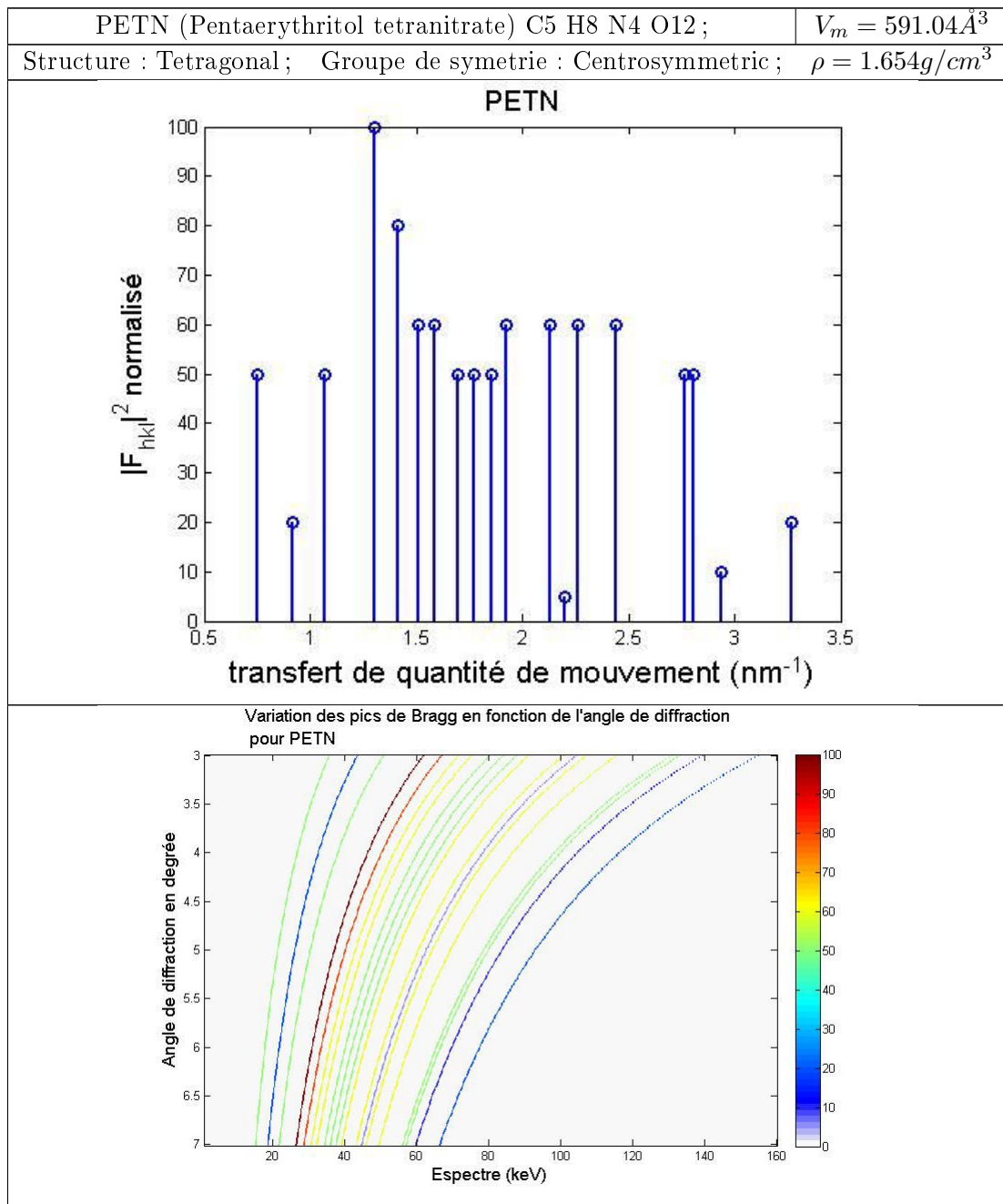


TABLE II.5: Paramètre théoriques de PETN pentrite

Généralement, les explosifs possèdent une grande maille ce qui induit des grandes valeurs de  $d_{hkl}$  (pour les pics principaux  $d_{hkl} > 3 \text{ \AA}$  ou  $x < 3.3 \text{ nm}^{-1}$ ). Par conséquent, les images qui affichent les spectres EDXRD à différentes angles de diffraction montrent que les pics principaux des explosifs se trouvent à basse énergie dans le spectre ( $E_{hkl}$  est inversement proportionnel à  $d_{hkl}$ ).

Il convient de noter que beaucoup des explosifs artisanaux peuvent se trouver mélangés avec des liants (souvent de types amorphes) qui altèrent le spectre de diffraction de l'explosif recherché.

## II.5 Conclusion

Dans le contexte de notre étude, nous nous sommes intéressés à la méthode de diffraction des rayons X en dispersion d'énergie afin d'identifier les matériaux. Plusieurs équipes travaillent sur des systèmes EDXRD, parfois pour des applications de sécurité (détecteurs de matériaux illicites, drogues ou explosifs), parfois pour des applications médicales. L'état de l'art présenté dans ce chapitre confirme que l'analyse des spectres de diffraction permet bien l'identification de matériaux. Cette analyse est classiquement faite par comparaison des spectres mesurés avec une base de données de spectres calibrés ou par extraction de certains paramètres des spectres permettant de remonter à des paramètres physiques.

Par ailleurs, plusieurs phénomènes ont tendance à dégrader la qualité des spectres mesurés en venant se superposer au phénomène d'intérêt. On peut citer parmi eux l'effet de lissage dû à la résolution angulaire du système d'acquisition. Cette résolution angulaire est due à l'ouverture de la collimation et est le résultat d'un compromis nécessaire entre sensibilité (nombre de photons reçus) et résolution des pics. D'autres phénomènes d'interaction (de type diffusion Compton ou diffusés multiples) viennent ajouter un fond continu aux spectres de diffraction. Enfin, la résolution finie en énergie du détecteur engendre également un étalement des pics.

Nous allons observer l'influence de ces phénomènes dégradants dans un système EDXRD au chapitre suivant.

# Caractérisation d'un banc de diffraction EDXRD

---

## Sommaire

<b>III.1 Présentation du banc expérimental</b> . . . . .	<b>61</b>
III.1.1 Schéma du banc expérimental . . . . .	62
III.1.2 La sonde Minigami . . . . .	63
III.1.3 Calibrage du système . . . . .	64
<b>III.2 Spectres expérimentaux</b> . . . . .	<b>67</b>
III.2.1 Sur des matériaux cristallins simples . . . . .	67
III.2.2 Sur des matériaux polycristallins similaires aux explosifs . . . . .	70
III.2.3 Sur des matériaux amorphes . . . . .	72
<b>III.3 Conclusion</b> . . . . .	<b>77</b>

---

Ce chapitre présente la prise en main et la caractérisation d'un système EDXRD utilisant un détecteur CdZnTe pour l'identification d'explosifs. Pour cela, différentes expériences ont été réalisées sur différents types de matériaux et pour différentes configurations. Pour des raisons de sécurité, nous n'avons pas pu tester des explosifs réels.

Nous commençons par présenter l'ensemble du dispositif expérimental mis à disposition avec ses différents éléments, ainsi que le protocole de calibrage nécessaire. Plusieurs mesures de diffraction avec ce banc expérimental sont ensuite présentées et commentées afin d'estimer les performances du banc et identifier les faiblesses du système.

## III.1 Présentation du banc expérimental

Le banc expérimental a été conçu dans le laboratoire lors du projet ANR SPIDERS (Système Portable d'Inspection par RX pour la Détection et l'identification des Explosifs et Risques chimiques pour la Sécurité). Une photographie est représentée sur la figure III.1. Il est composé de :

- un générateur de rayons X de type YXLON (anode en tungstène, tension de fonctionnement : 160 kV, courant de tube : 11.25 mA, taille de la tache focale : 1 mm).
- une table de positionnement pour l'objet inspecté.
- un collimateur primaire composé de deux fentes, positionné en sortie du faisceau de la source.
- un collimateur secondaire composé de deux fentes, positionné sur le faisceau diffracté devant le détecteur



- un détecteur CdZnTe spectrométrique avec l'électronique associée (4x4 pixels = sonde " Minigami " présentée au paragraphe III.1.2).

L'ensemble constitué par le collimateur secondaire et le détecteur est positionné sur une platine qu'on peut faire tourner par rapport à un axe fixe. Une translation de cette platine permet ensuite de corriger l'alignement du système de détection avec l'objet inspecté. Ce réglage permet d'obtenir l'angle de diffraction  $\theta$  voulu. Le réglage de l'angle n'est pas évident et il nécessite l'utilisation d'un matériau de référence.

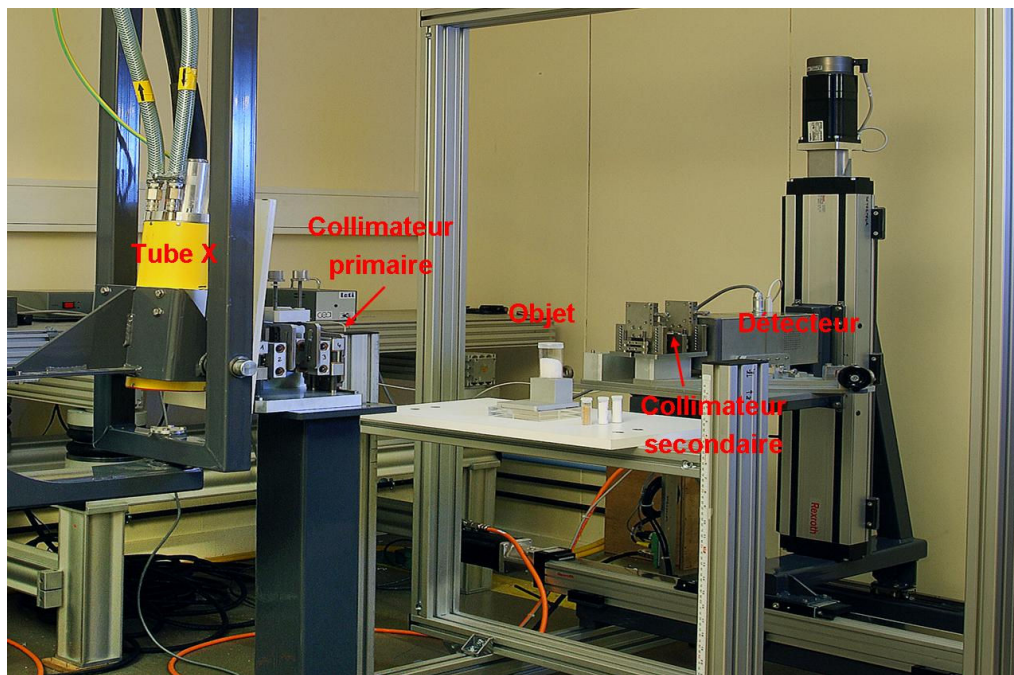


FIGURE III.1 – Photographie du banc de diffraction réalisé au laboratoire LDET (issu du projet SPIDERS [Crespy 2010a]).

### III.1.1 Schéma du banc expérimental

La source génère un faisceau de photons X polychromatique finement collimaté grâce à un collimateur primaire. Ces photons interagissent avec l'échantillon et sont alors diffusés dans tout l'espace.

L'ensemble collimateur secondaire-détecteur, placé à un angle  $\theta$  par rapport au faisceau incident, reçoit les photons diffusés par le volume d'analyse.

Le schéma de la figure III.2 donne les dimensions du dispositif. Les deux collimateurs en tungstène utilisés ont les caractéristiques suivantes :

- Un collimateur primaire qui est constitué de deux ensembles de double mâchoires de 3 mm d'épaisseur situées à 100 mm l'un de l'autre. Chaque ensemble permet de régler une ouverture rectangulaire (fente) de hauteur fixe de 10 mm et de largeur pouvant varier de 0 à 10 mm. Les faces des couples de mâchoires doivent être parfaitement parallèles pour permettre de réaliser des fentes régulières de 0,1 mm de largeur. La précision de positionnement est de 10  $\mu m$ .

- Un collimateur secondaire qui est constitué de 2 plaques de 3,5 mm d'épaisseur dont les faces externes sont distantes de 100 mm. Chaque plaque est percée de 4 fentes parallèles, les fentes de chaque plaque devant être parfaitement parallèles et alignées les unes par rapport aux autres. Chaque fente peut être réglée de 0 à 10 mm en hauteur et de 0 à 1 mm en largeur. La précision de positionnement est de  $10\ \mu\text{m}$ .

Avec cette géométrie, un rayon passant par une fente de la face d'entrée peut ressortir par une autre fente de la face de sortie. Pour éviter ce risque de diaphonie, une plaque intermédiaire doit être interposée au milieu du collimateur. Le volume de mesure est défini par l'intersection des faisceaux incident et diffusé. Le volume ainsi défini est représenté sur la figure III.2.

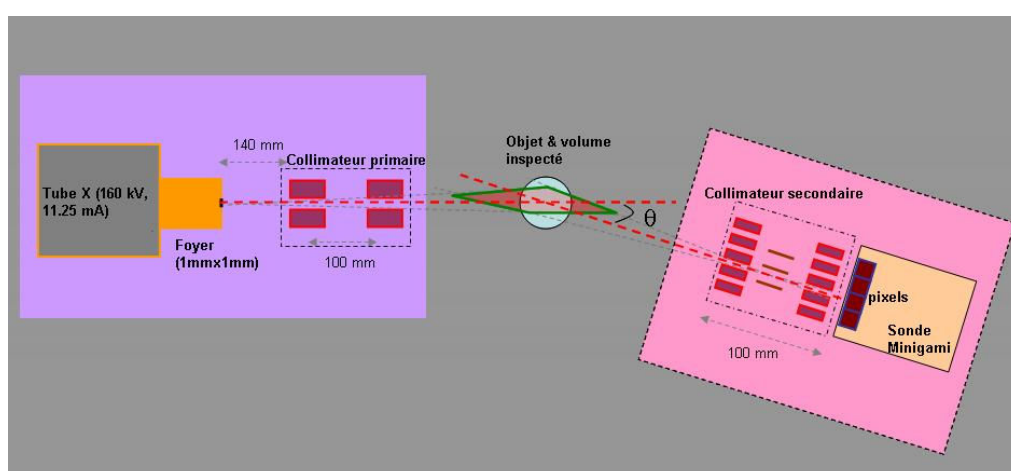


FIGURE III.2 – Vue de dessus du banc de diffraction correspondant au montage de la photographie III.1.

### III.1.2 La sonde Minigami

La sonde **MINIGAMI** (MINI GAMma Imageur) est un prototype de détecteur spectrométrique matriciel CdZnTe à haute résolution en énergie et fonctionnant à température ambiante [Verger 2007]. Cette sonde est intégrée à la maquette de test présentée précédemment.

Comme présenté au paragraphe I.3, l'avantage des détecteurs à base de semi-conducteurs de type cadmium et tellure (CdTe et CdZnTe) est qu'ils présentent une résolution en énergie nettement supérieure à celle accessible par un scintillateur NaI et sont opérationnels à température ambiante. Par ailleurs, ce type de capteur peut être mis en œuvre sous forme matricielle à travers des pixels sous lesquels une électronique ASIC (Application-Specific Integrated Circuit) et une carte FPGA (Field-Programmable Gate Array) dédiées sont intégrées (Fig. III.3).

Le processus de détection se décrit de la façon suivante : après ionisation du cristal par un photon, les électrons créés migrent vers les anodes (pixels) sous l'effet d'une tension accélératrice. Les courants induits sur tous les pixels par ce déplacement de charge sont amplifiés indépendamment par les 16 voies des cartes analogiques d'amplification.

Ces 16 mesures sont ensuite numérisées et traitées par un FPGA, au niveau des 4 cartes numériques. Les valeurs d'intérêt  $y$  sont extraites ou calculées, puis envoyées au PC d'acquisition, via la carte de dialogue USB.

La sonde MINIGAMI CdZnTe est composée de  $4 \times 4$  pixels et a une taille globale de  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  en surface et de 5 mm en épaisseur. Le pas inter-pixel est de 2.5 mm. La technique de croissance utilisée pour le cristal CdZnTe est la technique HPBM (High Pressure Bridgman Method). Ces pixels sont connectés à un circuit ASIC 16 voies. Des logiciels spécifiques de traitement des données basés sur une correction bi-paramétrique (voir paragraphe I.3.2.4) ont été développés afin d'optimiser la résolution spectrale.

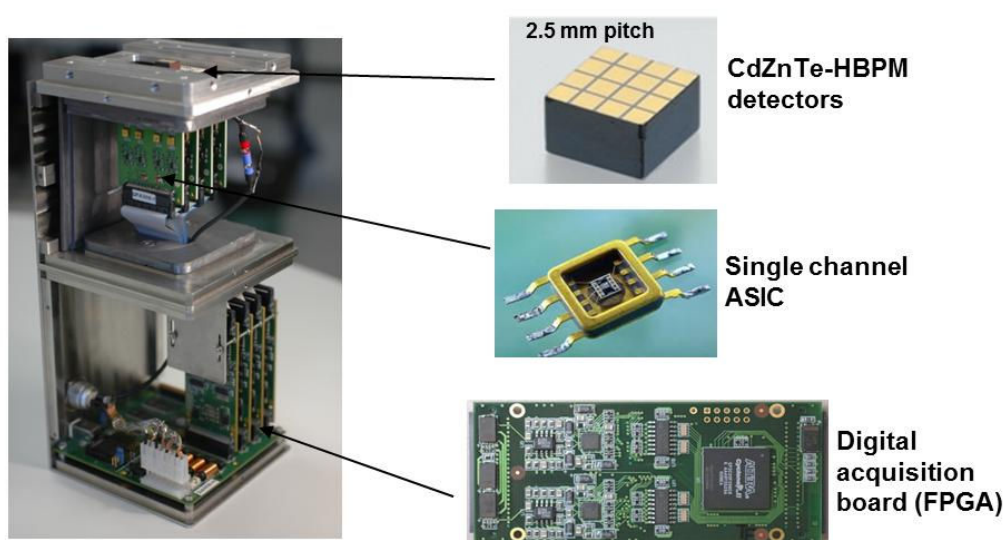


FIGURE III.3 – Les 16 pixels sont connectés à un circuit ASIC 16 voies et à une carte d'acquisition FPGA dédiée.

Les performances de résolution en énergie de cette sonde sont compatibles avec la technique de diffraction. En effet, la résolution en énergie est de 4.7% à 122 keV avant correction bi-paramétrique et de 3.1% à 122 keV après correction (Fig. III.4).

### III.1.3 Calibrage du système

Le système a besoin d'un double calibrage : un calibrage en énergie et un calibrage angulaire. La connaissance des dimensions précises des collimateurs permet en outre de réaliser un premier chiffrage de la résolution attendue des pics.

#### III.1.3.1 Calibrage en énergie

Le calibrage en énergie est réalisé avec une source  $\gamma$  dont on connaît parfaitement les raies d'émission. Le but de ce calibrage en énergie est d'établir la relation entre le numéro de canal du détecteur et l'énergie du rayonnement reçue par le détecteur. Nous avons utilisé le Cobalt ( $^{57}\text{Co}$ ) dont la raie principale se situe à 122 keV (Fig. III.4).

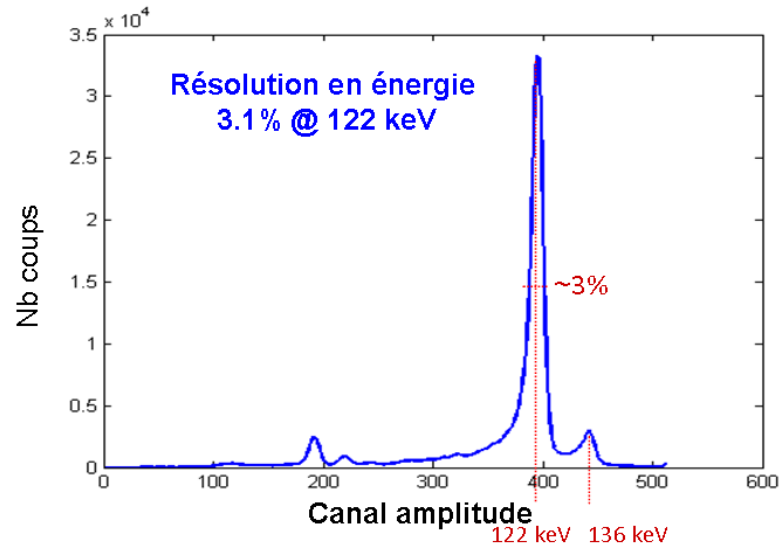


FIGURE III.4 – La résolution en énergie est de 3.1% à 122 keV pour la sonde MINIGAMI utilisée, après correction bi-paramétrique.

### III.1.3.2 Calibrage de l'angle de diffraction

Une fois le détecteur calibré en énergie, il faut régler la maquette pour déterminer l'angle  $\theta$  avec précision. Ce réglage se fait selon les étapes suivantes :

- Alignement du collimateur primaire par rapport au foyer du tube X en utilisant un détecteur numérique 2D type écran plat.
- Alignement du collimateur secondaire par rapport à la colonne de pixels détectant. Pour cela, des mouvements de translation du détecteur sont réalisés dans le plan horizontal, jusqu'à obtenir le maximum de signal.
- Réglage de l'angle de diffraction, à l'aide d'un matériau de référence. Connaissant les distances  $d_{hkl}$  correspondant aux pics de diffraction pour le matériau de référence, on peut déterminer l'angle  $\theta$  avec précision grâce à la relation de Bragg :

$$2d_{hkl}\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) = \lambda \text{ d'où } \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{\lambda}{2d_{hkl}} \text{ avec } \lambda = \frac{hc}{E} \text{ donc } \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) = \frac{hc}{2d_{hkl}E} \quad (\text{III.1})$$

Les spectres obtenus avec l'aluminium, le cuivre ou le sel (NaCl) peuvent être utilisés pour ce calibrage car ce sont des matériaux polycristallins parfaits (sans aucune phase non cristalline) avec des pics théoriques (Fig. III.5) bien séparés. Le premier pic à basse énergie du cuivre est particulièrement adapté pour calibrer l'angle de diffraction car il est intense et ne se chevauche pas avec les autres pics (Fig III.5).

### III.1.3.3 Estimation théorique de la résolution angulaire des collimateurs

Il est important ici de considérer l'effet de la résolution angulaire du système de collimation sur la résolution totale en énergie, c'est à dire sur la capacité à identifier les pics

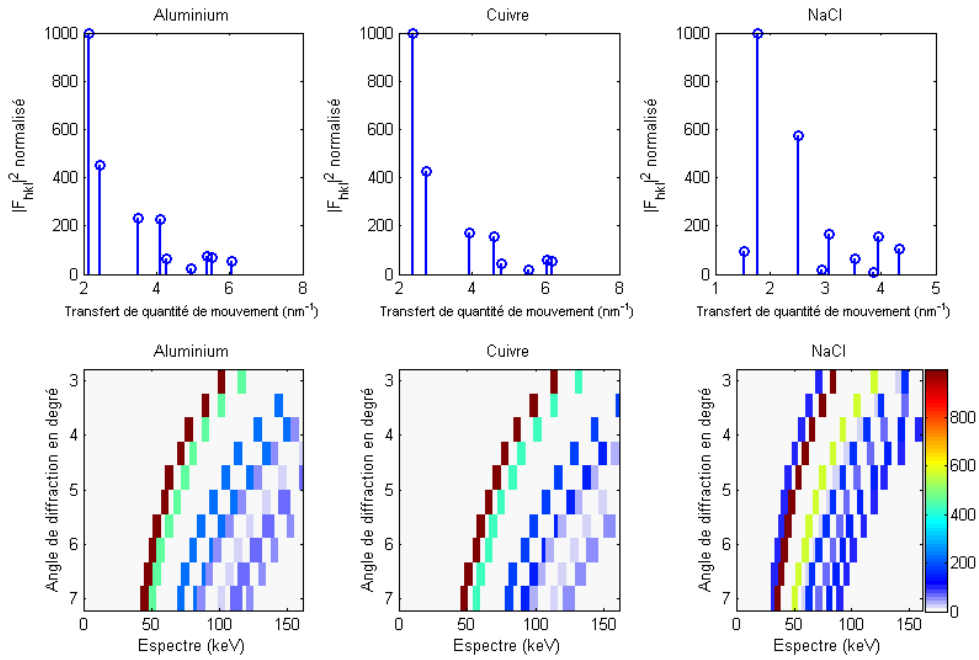


FIGURE III.5 – Dans cette figure, on voit les différents pics théoriques de l’aluminium, du cuivre et du sel (NaCl). Les courbes du bas montrent la variation de la position des pics en énergie en fonction de l’angle de diffraction.

de diffraction. Nous rappelons que cette résolution dépend de 2 paramètres selon :

$$\Delta E_{tot} = \sqrt{(\Delta E_{ang})^2 + (\Delta E_{det})^2} \quad (\text{III.2})$$

avec  $\Delta E_{ang}$  la résolution angulaire, due à la géométrie du système et précisément à l’ouverture des collimateurs et  $\Delta E_{det}$  la résolution intrinsèque du détecteur CdTe. La dérivée de la relation de Bragg permet d’exprimer la résolution en énergie associée à la résolution angulaire :

$$\Delta E_{ang} = \frac{E}{2} \cot\left(\frac{\theta}{2}\right) \Delta\theta \quad (\text{III.3})$$

D’autre part, connaissant l’ouverture des fentes  $e$  de notre collimateur et la distance  $l$  entre les deux fentes (Fig. III.6), nous pouvons estimer cette résolution angulaire, elle vaut approximativement :

$$\Delta\theta = 2 \cdot \arctan(e/l) = 0.3438^\circ \text{ si } e = 0.3 \text{ mm et } l = 100 \text{ mm} \quad (\text{III.4})$$

Cette résolution angulaire vaut si l’objet inspecté remplit tout le volume d’inspection. Dans le cas contraire, c’est la largeur  $\Delta Z$  du matériau inspecté et la distance objet-collimateur  $d$  qui dictent la résolution angulaire (Fig. III.6) :

$$\Delta\theta = 2 \cdot \arctan(\Delta Z \sin(\theta)/d) \quad (\text{III.5})$$

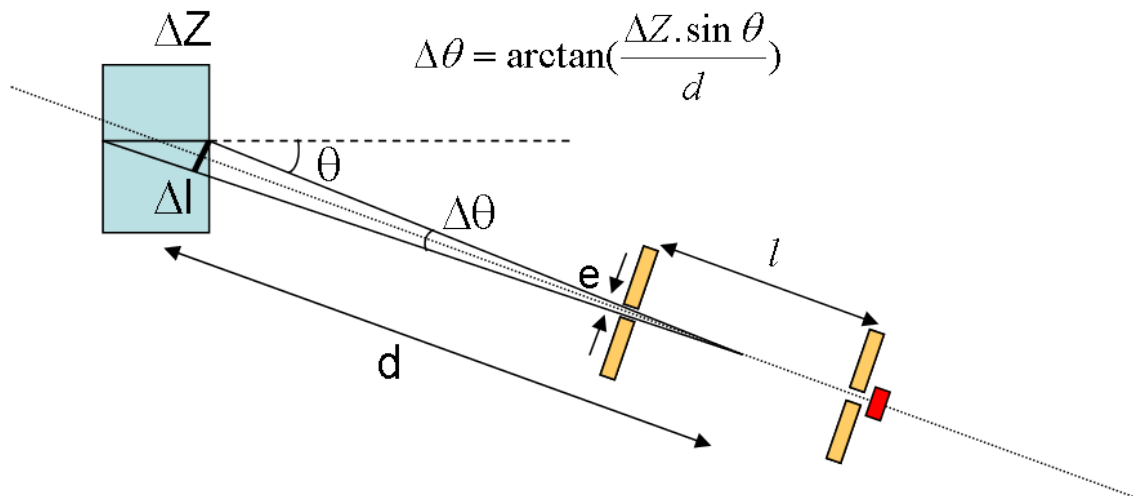


FIGURE III.6 – Estimation théorique de la résolution angulaire des collimateurs.

## III.2 Spectres expérimentaux

Dans cette partie, nous allons présenter différents spectres acquis avec notre système. L'objectif est d'estimer les performances du banc et d'identifier les faiblesses du système. Dans ces premières expériences, on souhaite estimer la capacité du système à détecter et séparer les pics présents dans un profil de diffraction. Pour cela, le paramètre important à mesurer est la résolution en énergie des pics de diffraction.

### III.2.1 Sur des matériaux cristallins simples

Nous entendons par matériaux polycristallins simples des matériaux cristallins purs présentant un faible nombre de pics de diffraction très intenses. Il en découle des spectres de diffractions très marqués sans continuum. Ces matériaux sont souvent utilisés comme matériaux de référence pour calibrer et caractériser des systèmes de diffraction. Toutes les expériences ont été réalisées avec une tension de 160 kV et une intensité de 11.25 mA pour le tube X. La géométrie du banc pour cette campagne des mesures est présentée dans la figure III.7.

Un rapide calcul permet d'avoir une estimation de la largeur du volume d'inspection pour cette géométrie de collimation secondaire. On trouve que le volume inspecté fait 33.2 mm de longueur suivant l'axe Z pour  $\theta = 3^\circ$  et 20 mm pour  $\theta = 5^\circ$ .

#### Résultats sur l'aluminium (plaque de 10mm) :

Le premier objet passé est une plaque de 10 mm d'aluminium d'épaisseur. Plusieurs mesures sont réalisées pour des angles de diffraction variant de  $2.9^\circ$  à  $5.83^\circ$  et un temps d'acquisition de 300 s.

En utilisant les équations du paragraphe III.1.3.3, nous pouvons estimer la résolution en énergie associée à la résolution angulaire pour cette mesure. L'épaisseur du matériau est ici inférieure à la largeur du volume inspecté ( $= 20$  mm pour  $5^\circ$ ) : c'est donc l'épaisseur

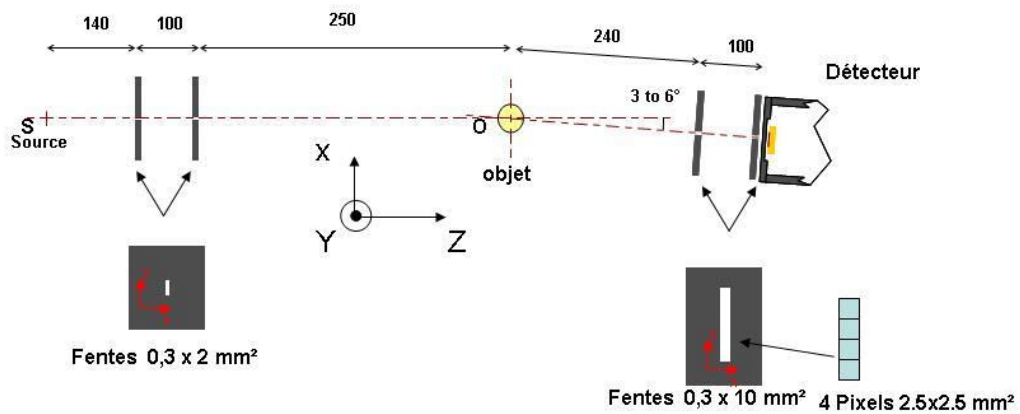


FIGURE III.7 – Schéma du banc de diffraction (côtes en mm).

de l'aluminium qui dicte la résolution angulaire de la mesure (Eq. III.5), et la résolution en énergie associée :

$$\begin{aligned}\theta = 5^\circ &\Rightarrow \Delta\theta = 0.172^\circ \\ \theta = 3^\circ &\Rightarrow \Delta\theta = 0.103^\circ\end{aligned}$$

Par exemple, à 100 keV, la résolution en énergie  $\Delta E_{ang}$  due à l'ouverture angulaire est théoriquement égale à 1.71 keV pour  $\theta = 5^\circ$  (Eq. III.3).

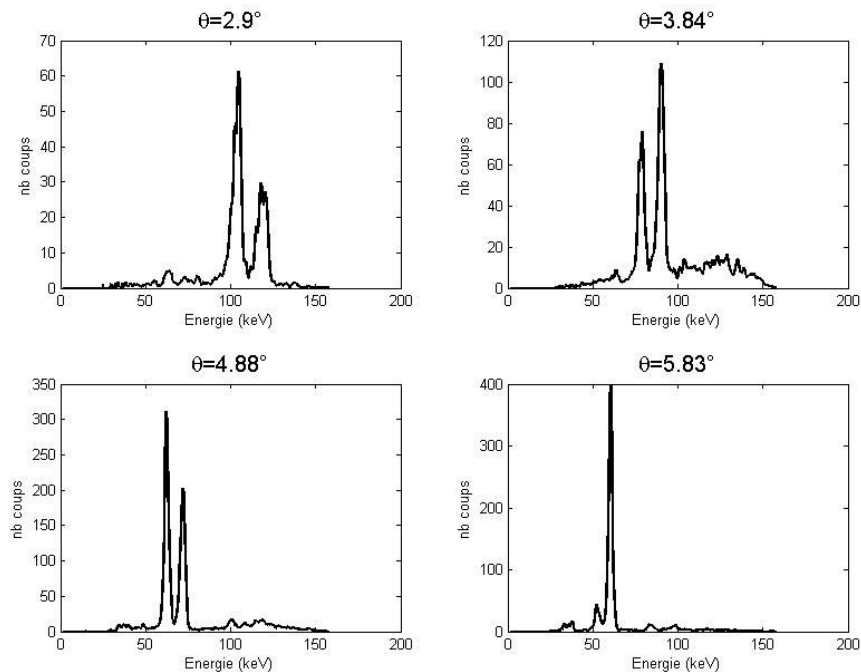


FIGURE III.8 – Spectres de diffraction pour l'aluminium pour 4 angles différents.

Au niveau expérimental, on vérifie que les raies de diffraction qui se décalent en E

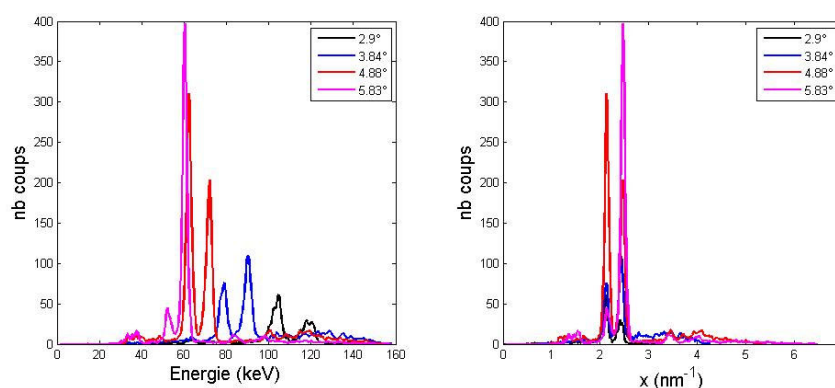


FIGURE III.9 – 4 spectres d’aluminium obtenus pour différents angles de diffraction, avec comme axe des abscisses l’énergie (à gauche), et transfert de quantité de mouvement (conversion selon la loi de Bragg) (à droite).

lorsqu’on fait varier l’angle de diffraction, correspondent bien aux mêmes plans de diffractions (Fig. III.8). L’aluminium présente 2 pics de diffraction intenses et assez rapprochés à  $x \approx 2.15 \text{ nm}^{-1}$  et  $2.5 \text{ nm}^{-1}$  (Fig. III.9). Selon l’angle de diffraction, les 2 pics vont être plus ou moins amplifiés selon l’intensité du spectre incident à l’énergie correspondante. On voit bien ainsi l’effet de la raie du tungstène du spectre incident (à environ 60 keV) qui amplifie la première raie de l’aluminium à  $4.88^\circ$  puis la deuxième à  $5.83^\circ$ . La résolution du pic le plus intense des spectres est mesurée :

Angle ( $^\circ$ )	2.9	3.84	4.88	5.83
Pic (keV)	104.7	90.0	62.2	60.4
FWHM (keV)	4.55	3.71	2.41	2.14
Résolution (%)	4.35	4.12	3.87	3.55

La résolution totale  $\Delta E_{tot}$  des pics varie donc expérimentalement de 2.14 keV à 60 keV jusqu’à 4.55 keV à 105 keV. Elle permet de dissocier aisément les 2 pics de l’aluminium. Elle croit logiquement avec l’énergie du pic.

On peut noter que cette résolution totale est plus importante que la résolution angulaire  $\Delta E_{ang}$  estimée théoriquement. Ceci est cohérent puisque la résolution totale inclut aussi la résolution en énergie  $\Delta E_{tot}$  du détecteur CdZnTe (mesurée à 3.78 keV à 122 keV) (Eq. II.1).

#### Résultats sur plusieurs matériaux au même angle :

Plusieurs matériaux cristallins purs sont passés au diffractomètre dans les mêmes conditions :

- angle =  $5.94^\circ$ .
- temps d’acquisition = 120 s.
- un tube de graphite ( $d = 8 \text{ mm}$ ), un flacon rempli de billes d’acier ( $d = 35 \text{ mm}$ ), une plaque de cuivre de 1mm d’épaisseur, un flacon de NaCl (sel) ( $d = 12 \text{ mm}$ ) et une plaque d’aluminium de 1mm d’épaisseur.

On superpose les différents spectres mesurés sur le même graphe (Fig. III.10).



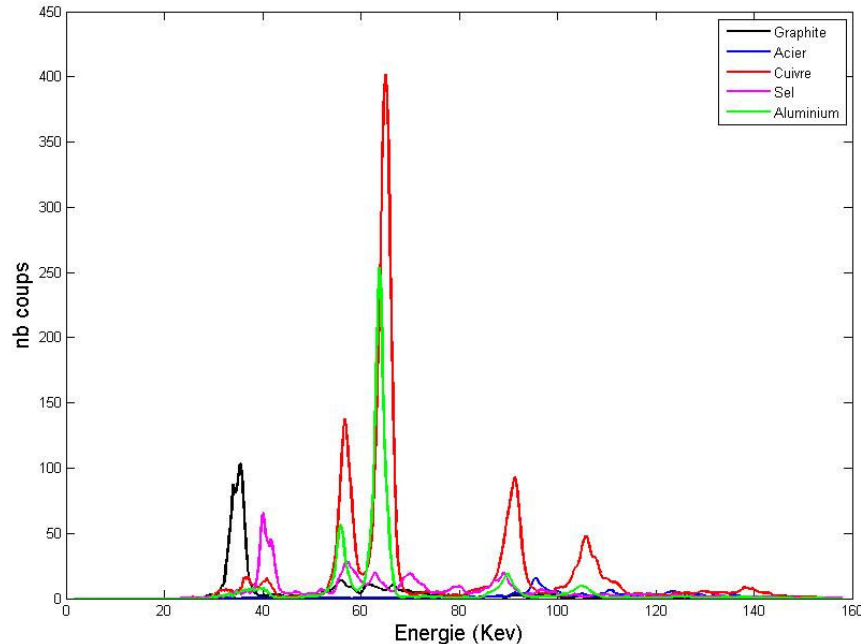


FIGURE III.10 – Différents spectres de diffraction mesurés à un angle  $\theta = 5.94^\circ$ .

Les débits pour 1 pixel sont compris entre 6 ph/s pour l'acier à 71 ph/s pour le cuivre. Dans la figure III.10 il est clair que tous ces matériaux se distinguent parfaitement par leurs pics de diffraction différents, tant au niveau de leur position que de leur intensité.

### III.2.2 Sur des matériaux polycristallins similaires aux explosifs

D'autres mesures ont été réalisées sur des matériaux polycristallins possédant un grand nombre de pics de diffraction, à l'instar des explosifs comme le RDX, l'hexogène ou le nitrate d'ammonium. Parmi ces matériaux nous avons testé : le sucre, la protéine NAC, le sel et l'acier. La géométrie du banc pour ces expériences est présentée dans la figure III.12.

Les spectres présentés sont très différents suivant les matériaux et montrent dans le cas du NAC une multitude de raies de diffraction. Pour le sucre, les raies principales sont un peu moins importantes, au nombre de 4 environ. Pour ces deux matériaux, la présence des nombreuses raies théoriques convoluées par la résolution angulaire et la résolution en énergie, tend à créer un fond continu. Il convient de réduire ce fond continu pour voir un maximum de raies de diffraction pour permettre la reconnaissance des matériaux. Pour le sel et l'acier, les raies sont moins nombreuses et moins resserrées, ce qui limite le fond continu.

Le passage du sucre a suscité plusieurs interrogations puisque les spectres mesurés sur les 4 pixels irradiés étaient différents, laissant apparaître des pics d'amplitudes variables, voire absents. Ceci est en fait une illustration du problème d'orientation de grains

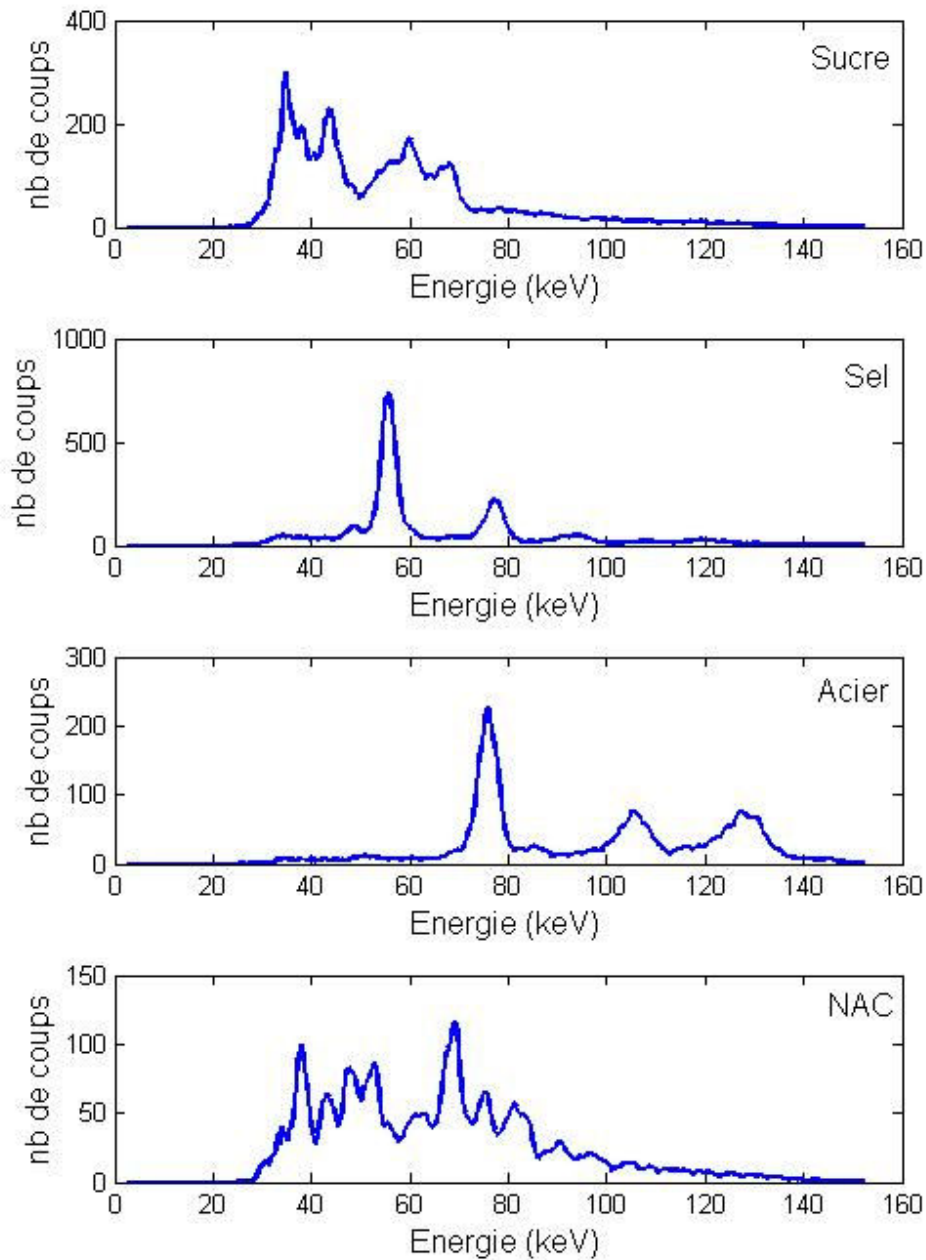


FIGURE III.11 – Différents spectres de diffraction mesurés à un angle  $\theta = 4.5^\circ$ , et  $t_{acqui} = 4$  min pour le sucre, le sel, l'acier et le NAC.

(Fig. III.13).

En effet, un pic de diffraction ne peut apparaître que s'il y a suffisamment de grains bien orientés selon la condition de Laue pour le plan de diffraction associé au pic de diffraction.

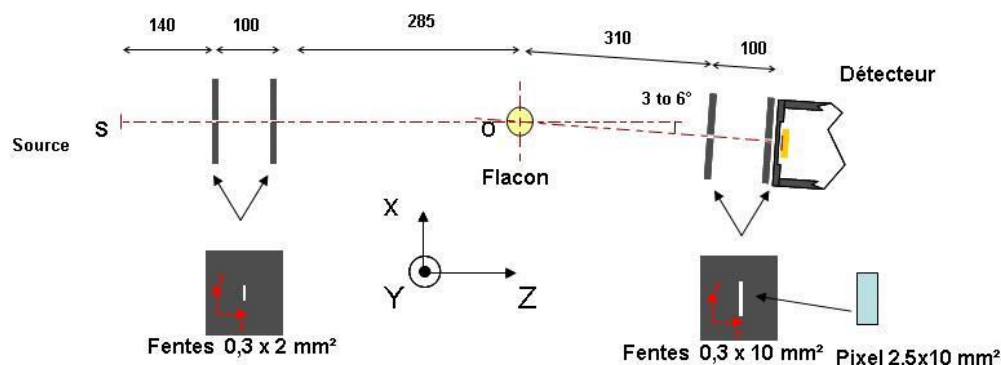


FIGURE III.12 – Schéma du banc de diffraction (côtes en mm).

Or, étant donné notre volume d'inspection de l'ordre de  $240 \text{ mm}^3$  et de la taille des grains du sucre (entre  $0.15 \text{ mm}$  et  $0.7 \text{ mm}$ ), il se trouve que d'un pixel à un autre, les orientations de grains ne sont pas équi-réparties, ce qui induit cet effet de "super pics". Ce problème d'instabilité n'est pas à négliger, d'autant que la taille des grains du sucre en poudre est sensiblement du même ordre que ceux que l'on peut trouver dans les explosifs (entre  $300 \mu\text{m}$  et  $700 \mu\text{m}$ ). Une étude détaillée a été réalisée sur cette problématique et a fait l'objet du chapitre VI dans le rapport.

Les mêmes mesures réalisées avec du sucre glace, qui possède des cristaux plus petits, présentent des spectres homogènes sans effet d'orientation de grains (Fig. III.14).

### III.2.3 Sur des matériaux amorphes

La diffraction est une technique qui peut être également efficace pour la détection d'explosifs liquides dans les bagages [Harding 2010b]. Pour cela, nous avons réalisé une campagne d'expériences sur des liquides, pour démontrer la différence de signatures de certains liquides en EDXRD, notamment les liquides dangereux.

#### Description de la campagne sur liquides :

L'objectif ici est de démontrer l'existence de signature intrinsèque des liquides. Pour cela, les expériences ont toutes été réalisées dans des "conditions favorables" qui éliminent les problèmes de spectre incident et d'atténuation :

- Temps d'acquisition long (3000 s).
- Liquide en quantité identique dans un contenant identique (flacon cylindrique de diamètre  $4.6 \text{ cm}$ ).
- Pas d'atténuation supplémentaire.
- Géométrie de diffraction identique.

La géométrie du banc expérimental est présentée dans la figure III.15.

Les dimensions du volume d'inspection sont :  $dz \approx 56 \text{ mm}$ ,  $dx \approx 4.5 \text{ mm}$ ,  $dy \approx 1.6 \text{ mm}$ . Par conséquent,  $dz$  étant supérieure au diamètre du flacon, le spectre mesuré inclut le rayonnement diffusé par le verre du flacon.

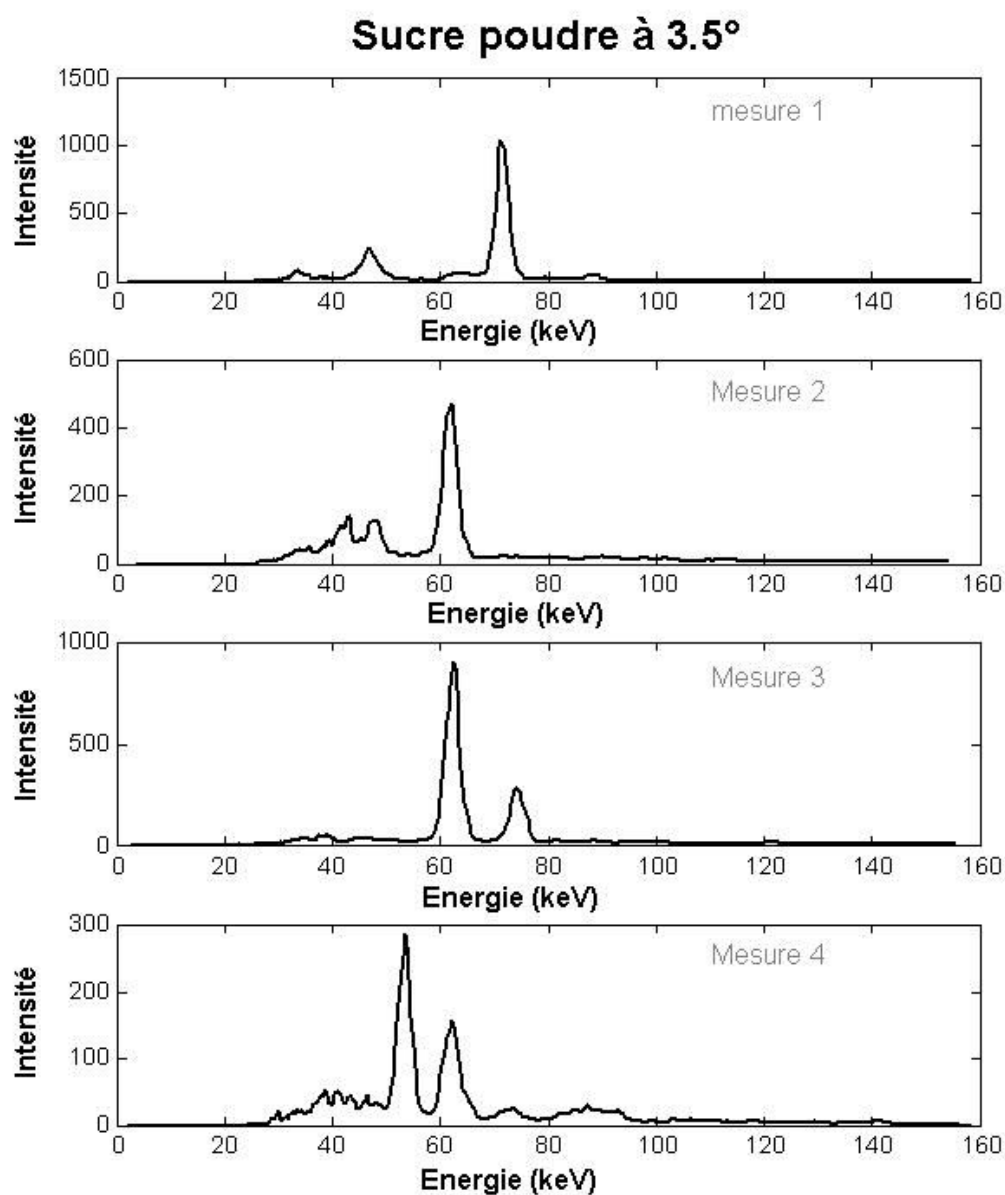


FIGURE III.13 – Spectres de diffraction pour du sucre en poudre à 3.5° pour quatre mesures différentes. Une instabilité au niveau du nombre et de l'intensité des pics est observée. Le problème vient du fait que les orientations de grains ne sont pas équi-réparties.

Le tube fonctionne à 160 kV et 11.25 mA. 17 liquides ont été choisis parmi des liquides communs, et d'autres classés dangereux :

- **Communs** : eau, lait, bière, café, soda (label coca), shampoing, huile, vin, vin apéritif (appelé alcool), alcool fort (appelé gnole), sirop, miel.
- **Dangereux** : nitrométhane, acétone, whitespirit, eau oxygénée à 30%, essence.

Parmi les spectres mesurés pour tous les liquides dans la figure III.16, nous observons bien que les signatures diffèrent pour une majorité des liquides. Pour une meilleure

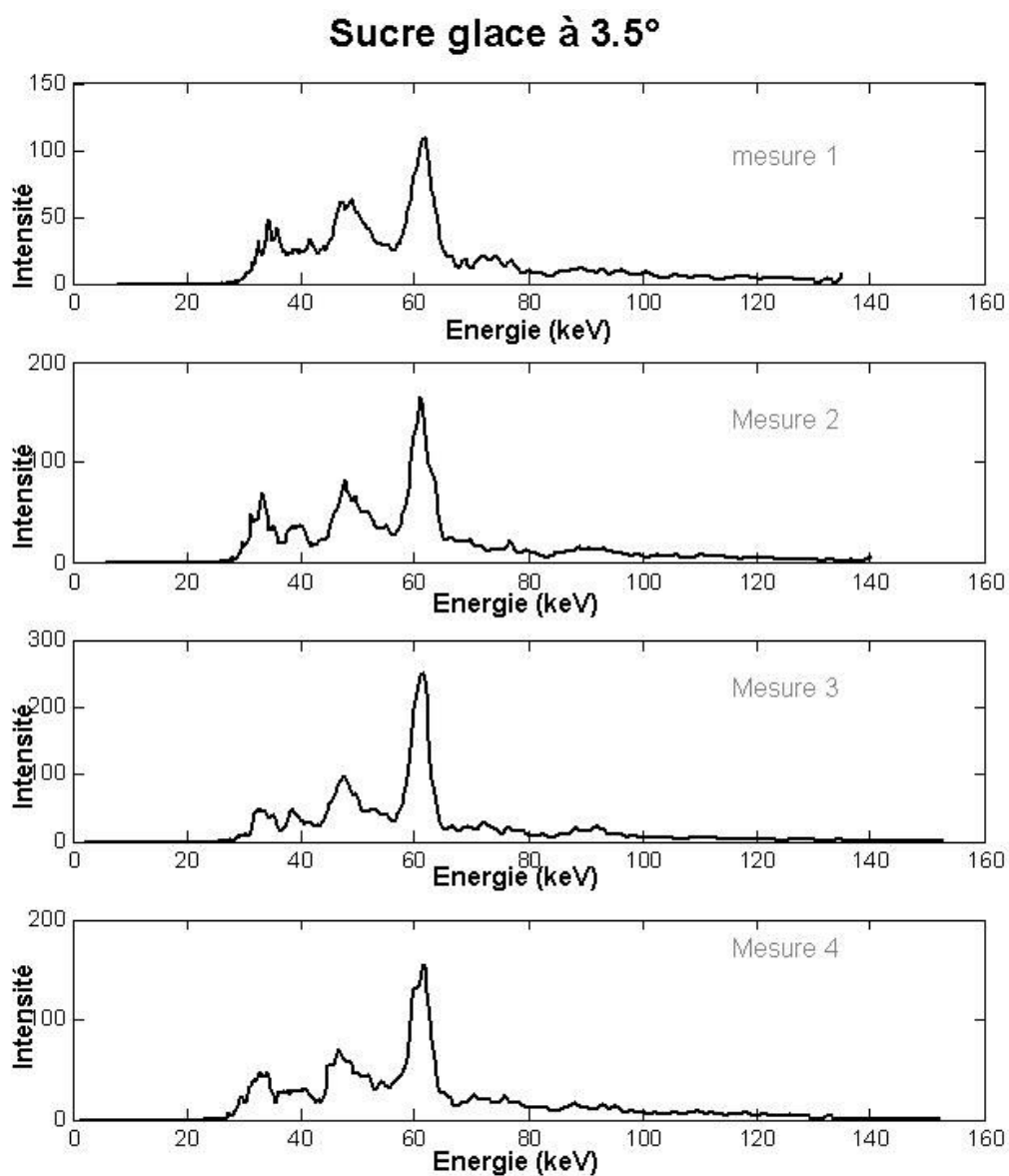


FIGURE III.14 – Différentes mesures de spectres de diffraction sur du sucre glace à 3.5°.

visualisation, nous les avons séparés en 3 catégories :

#### **Les liquides fortement aqueux(Fig III.17) :**

Ces liquides ont une proportion d'eau trop importante pour avoir une signature spectrale dissociable visuellement de l'eau. C'est également le cas de l'eau oxygénée à 30% dont la fonction d'interférence moléculaire théorique issue de mesures de Harding ([Harding 2010b]) est très proche de celle de l'eau.

#### **Les liquides communs à signatures caractéristiques (Fig III.18) :**

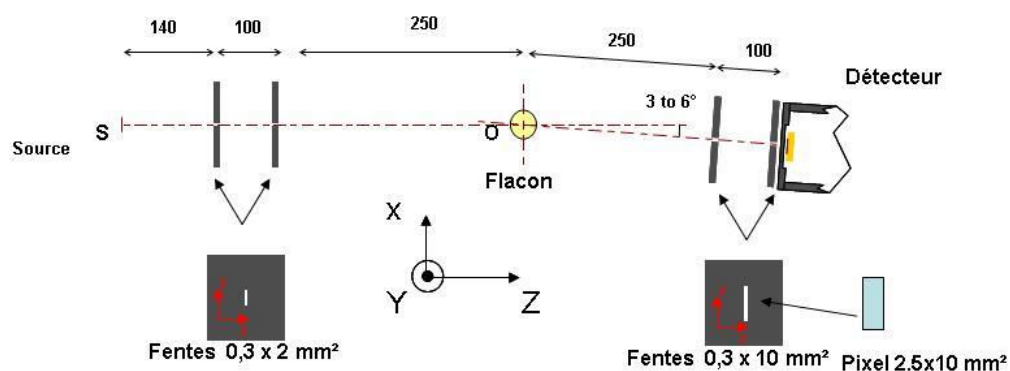
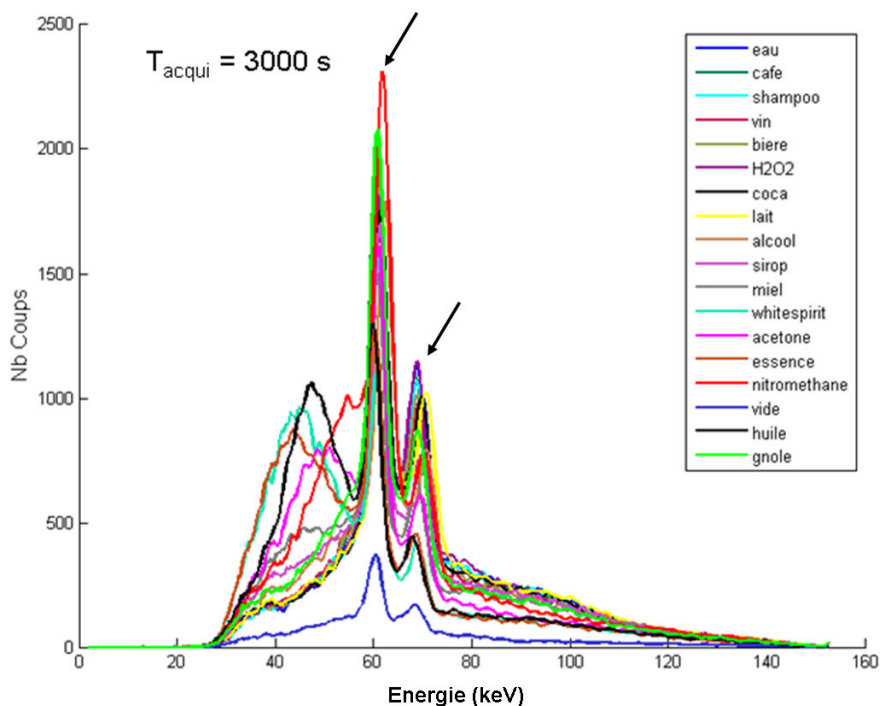


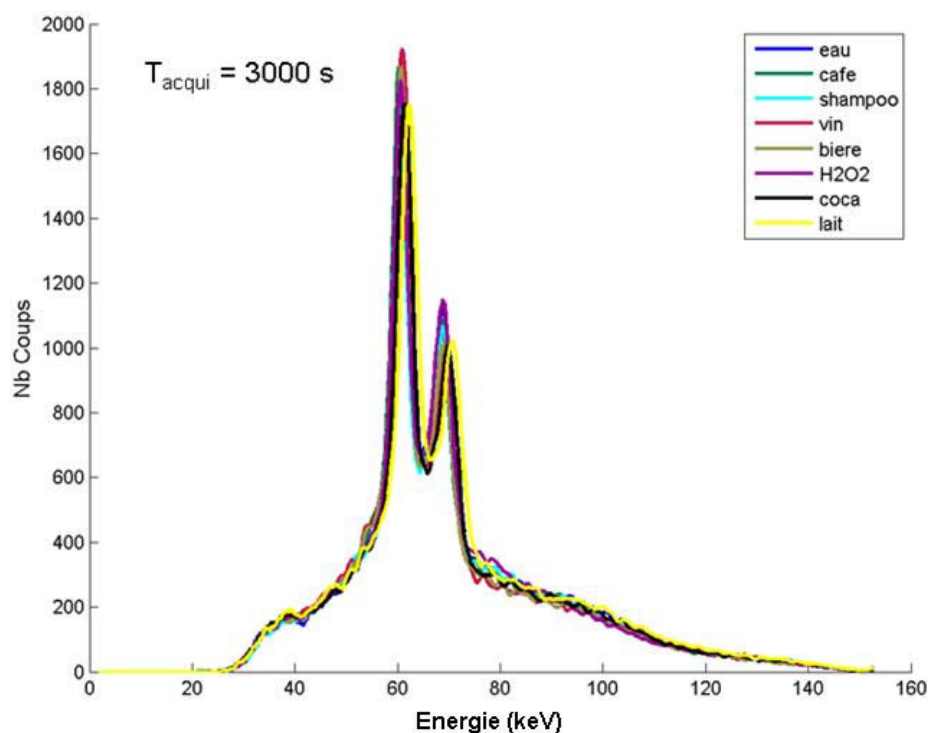
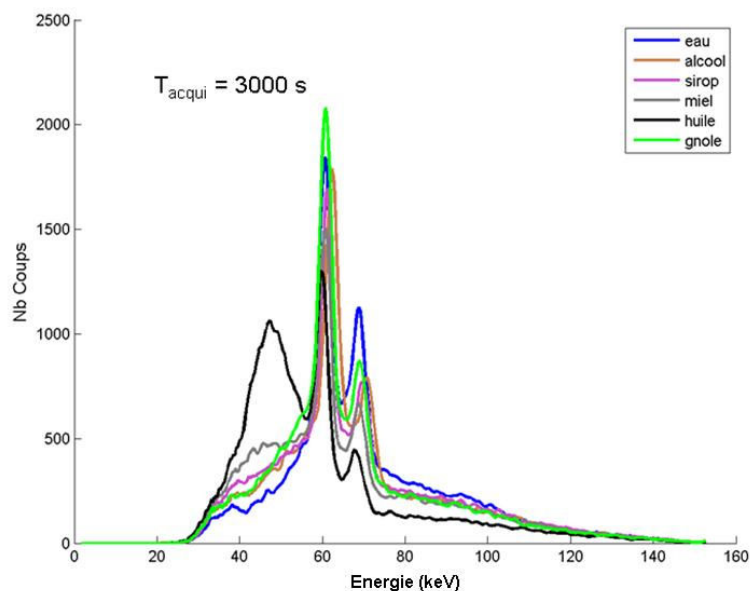
FIGURE III.15 – Schéma du banc de diffraction (côtes en mm).

FIGURE III.16 – Spectres des amorphes observés à  $3.36^\circ$ . Les pics indiqués par les flèches correspondent aux raies de tungstène du spectre incident.

Ces liquides présentent clairement des spectres de diffraction spécifiques, qui permettent de les différencier entre eux et par rapport à l'eau.

#### Les liquides dangereux (Fig III.19) :

Ces liquides dangereux présentent également des spectres de diffraction différents. Pour le white spirit, l'acétone et l'essence, on observe un rebond vers 40-50 keV, qui correspond

FIGURE III.17 – Catégorie 1 : spectres des liquides fortement aqueux observés à  $3.36^\circ$ .FIGURE III.18 – Catégorie 2 : spectres des liquides communs à signatures caractéristiques observés à  $3.36^\circ$ .

à  $\theta = 3.36^\circ$  à un transfert de quantité de mouvement autour de  $1 \text{ nm}^{-1}$ .

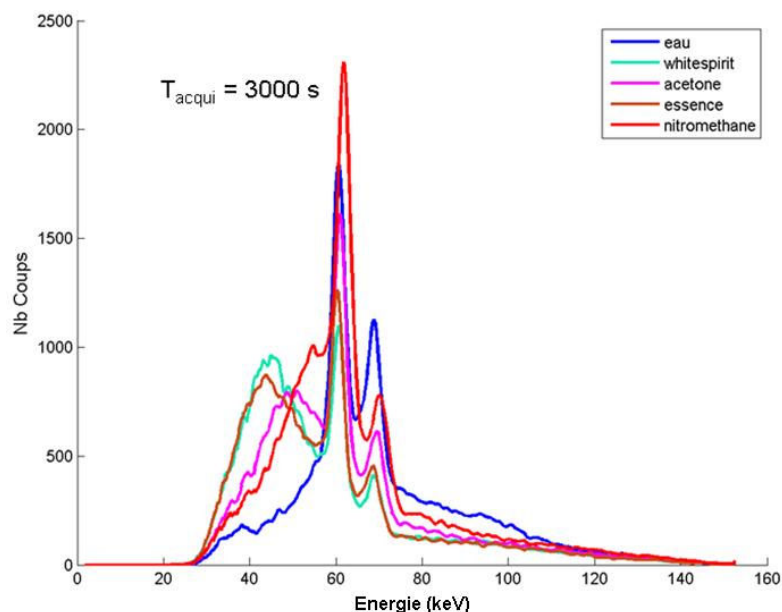


FIGURE III.19 – Catégorie 3 : spectres des liquides dangereux observés à  $3.36^\circ$ .

### III.3 Conclusion

Le but de ce chapitre a été la prise en main du banc expérimental dédié à la diffraction de rayons X en dispersion d'énergie. La sonde MINIGAMI (détecteur spectrométrique CdZnTe) a prouvé son potentiel dans ce domaine. Les spectres mesurés par cette sonde permettent de distinguer les matériaux selon leurs pics de diffraction pour les matériaux cristallins et selon leur "forme lisse" dans les spectres mesurés pour les matériaux amorphes.

On a vu que les spectres de diffraction dépendent de plusieurs paramètres. Parmi eux, l'angle de diffraction influe sur la position des pics de diffraction mais aussi sur la résolution en énergie de ces pics : si on augmente l'angle de diffraction, les pics se déplacent vers les basses énergies et la résolution totale du pic s'améliore. De plus, selon l'angle de diffraction, des pics apparaissent et disparaissent quand ils se trouvent en dehors de la gamme d'énergie fournie par la source. On a également constaté que le spectre incident (notamment la raie de tungstène) et l'atténuation des faisceaux par l'objet ont une influence sur l'intensité des spectres de diffraction. Pour exploiter quantitativement et avec fiabilité l'information d'intensité relative des pics (en plus de leurs positions), il faudra corriger ces deux effets.

D'autres paramètres ont aussi une influence sur les spectres mesurés, comme les dimensions de collimation au niveau du détecteur et de la source. Ainsi, il semble intéressant



de chercher à optimiser la configuration géométrique globale, tant au niveau du détecteur que des collimateurs afin d'obtenir un spectre de diffraction qui combine les performances suivantes :

- spectres intenses mesurés avec un temps d'acquisition faible (augmenter le nombre de photons détectés).
- bonne résolution des pics en énergie pour faciliter leur séparation.

Nous savons qu'il existe un compromis entre une bonne résolution et une intensité suffisante des pics. Notamment, la fermeture de la collimation améliore la résolution des pics mais s'accompagne d'une diminution de la sensibilité.

Le développement d'un outil de simulation du spectre diffusé est un élément essentiel pour le dimensionnement et la conception d'un système de mesure EDXRD. Il peut permettre de tester de nombreuses configurations sans recours systématiquement à l'expérimentation et ainsi proposer des géométries optimales pour améliorer le compromis résolution/sensibilité. Dans cette optique, un simulateur a été développé lors de ma thèse (Chap. IV) et une étude détaillée sur les performances de résolution et d'intensité a été réalisée dans le chapitre V.

Enfin, ces expérimentations ont également révélé le problème d'instabilité des pics de diffraction lorsqu'on a affaire à des matériaux polycristallins similaires aux explosifs. En effet, les spectres mesurés pour le sucre ont montré que l'effet d'orientation des grains affecte significativement la stabilité des mesures, rendant difficile l'identification du matériau. Le chapitre VI développe ce problème et propose des solutions pour en réduire l'effet.

# Modélisation et simulation d'un système de diffraction de rayons X

---

## Sommaire

<b>IV.1 Article NIMA "New software to model energy dispersive X-ray diffraction in polycrystalline materials" . . . . .</b>	<b>81</b>
<b>IV.2 Proceeding IEEE "A complete and multi purpose software tool for modeling energy dispersive X-ray diffraction" . . . . .</b>	<b>90</b>
<b>IV.3 Effet du système de collimation sur le spectre en EDXRD (étude par simulation) . . . . .</b>	<b>96</b>
IV.3.1 Effet de la distance (objet-détecteur) . . . . .	96
IV.3.2 Effet du dimensionnement des collimateurs . . . . .	99
IV.3.3 Collimateur à deux fentes Vs collimateur à une fente . . . . .	101
<b>IV.4 Conclusion . . . . .</b>	<b>102</b>

---

La méthode de diffraction de rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD) est rapide et ne nécessite aucun mouvement de l'ensemble source-détecteur. Néanmoins, elle présente certains inconvénients. Les informations portées par le spectre de diffraction en énergie peuvent être dégradées par plusieurs effets :

- l'influence du spectre incident qui n'est pas uniforme en intensité sur toutes les énergies des photons
- l'effet d'atténuation de l'objet inspecté qui dépend de l'énergie et des matériaux traversés
- la résolution angulaire imposée par le système de collimation qui engendre une forte dégradation de la résolution en énergie du spectre (élargissement des pics qui peuvent alors se confondre)
- la résolution en énergie du détecteur qui engendre les mêmes effets

Ainsi, le développement d'un outil de simulation du spectre diffusé est un élément essentiel pour le dimensionnement et la conception d'un système de mesure du rayonnement diffracté. Il permet en effet de comprendre et d'étudier en détail les aspects interaction rayonnement/matière et géométrie et ainsi proposer de nouvelles architectures de système, détecteur et/ou de collimation permettant d'accéder à des spectres porteurs d'un maximum d'information. Il permet aussi de tester de nombreuses configurations sans avoir systématiquement recours à l'expérimentation.

L'outil de simulation développé durant ma thèse est appelé SinFullscat. SinFullscat permet de calculer la diffusion cohérente pour les matériaux amorphes et polycristallins

ainsi que la diffusion Compton pour tous les matériaux. Ce logiciel permet la simulation complète de toute la chaîne de mesure expérimentale :

- source RX
- collimateur primaire et collimateur secondaire
- objet (géométrie 3D complexe)
- ensemble des interactions rayonnement matière (diffraction, diffusion cohérente amorphe, diffusion incohérente, atténuation)
- détecteurs spectrométriques

Il se caractérise par rapport aux autres logiciels qui existent [Pani 2009, Peterzol 2011, Cozzini 2010] par :

- une géométrie 3D complexe de l'objet
- un travail en multi-phases (amorphe et polycristallin)
- un travail en multi-matériaux
- un calcul spécifique de la réponse du système de collimation sans discrétisation du détecteur (ce qui réduit le temps de simulation).
- la possibilité de mise en œuvre de quatre systèmes de collimation (collimateur cylindrique, collimateur à deux fentes et collimateur pinhole rectangulaire et circulaire)

Ce chapitre présente donc une description complète du logiciel à travers deux papiers publiés pendant la thèse.

Le premier papier publié dans le journal NIMA se concentre sur le fonctionnement de SinFullscat sur la phase polycristalline des matériaux inspectés. Ce papier montre en détail la modélisation physique effectuée et l'algorithme général implémenté dans l'outil. Deux arrangements expérimentaux sont testés pour valider le calcul en utilisant des matériaux polycristallins purs. Un bon accord entre les simulations et les données expérimentales a été obtenu. Enfin, une étude paramétrique portant sur l'angle de diffraction et la réponse du détecteur est présentée.

La deuxième publication est un proceeding de la conférence IEEE-NSS 2011 à Valence. Il reprend la partie théorique de l'article précédent en ajoutant le modèle amélioré pour les matériaux amorphes (modèle MIF). Il présente également le fonctionnement de SinFullScat en mode multi-phases et en multi-matériaux. La validation expérimentale montrée dans ce papier est effectuée avec une configuration géométrique différente de celle du premier article.

SinFullscat nous permet de tester tous les paramètres affectant le spectre final afin de sélectionner les valeurs optimales pour obtenir un spectre portant le maximum d'information, c'est-à-dire combinant à la fois une résolution en énergie et une sensibilité optimales (acquisition d'un nombre de photons suffisant en un temps d'acquisition raisonnable). La dernière partie de ce chapitre s'intéresse précisément à ce compromis entre résolution et sensibilité. Elle complète l'étude paramétrique du premier article en se focalisant sur l'effet de la collimation sur le spectre de diffraction.

## IV.1 Article NIMA "New software to model energy dispersive X-ray diffraction in polycrystalline materials"

**Journal** : Nuclear Instrument and Methods in Physics Research, A

**Title** : New software to model energy dispersive X-ray diffraction in polycrystalline materials

**Article Type** : Research Paper

**Section/Category** : Non-proliferation and Security Applications

**Keywords** : EDXRD ; polycrystal ; interference ; modeling ; X-ray ; diffraction.

**Corresponding Author** : Mr Bahaa Ghammraoui,

Corresponding Author's Institution : CEA-Leti, MINATEC Campus

**First Author** : Bahaa Ghammraoui

**Order of Authors** : Bahaa Ghammraoui ; Joachim Tabary ; Stephanie Pouget ; Caroline Paulus ; Vincent Moulin ; Loick Verger ; Philippe Duvauchelle

**Abstract** : Detection of illicit materials, such as explosives or drugs, within mixed samples is a major issue, both for general security and as part of forensic analyses. In this article, we describe a new code simulating energy dispersive X-ray diffraction patterns in polycrystalline materials. This program, SinFullscat, models diffraction of any object in any diffractometer system taking all physical phenomena, including amorphous background, into account. Many system parameters can be tuned : geometry, collimators (slit and cylindrical), sample properties, X-ray source and detector energy resolution. Good agreement between simulations and experimental data was obtained. Simulations using explosive materials indicated that parameters such as the diffraction angle or the energy resolution of the detector have a significant impact on the diffraction signature of the material inspected. This software will be a convenient tool to test many diffractometer configurations, providing information on the one that best restores the spectral diffraction signature of the materials of interest.

## IV.2 Proceeding IEEE "A complete and multi purpose software tool for modeling energy dispersive X-ray diffraction"

### IEEE Valencia 2011 Conference :

**Title** : A Complete and Multi Purpose Software Tool for Modeling Energy Dispersive X-ray Diffraction

**Article Type** : Conference record

**Section/Category** : NSS

**Keywords** : EDXRD ; polycrystal ; interference ; modeling ; X-ray ; diffraction.

**Corresponding Author** : Mr Bahaa Ghammraoui,

Corresponding Author's Institution : CEA-Leti, MINATEC Campus

**First Author** : Bahaa Ghammraoui

**Order of Authors** : Bahaa Ghammraoui ; Joachim Tabary ; Stephanie Pouget ; Caroline Paulus ; Vincent Moulin ; Loick Verger ; Philippe Duvauchelle

**Abstract** : A new complete software tool for modeling EDXRD, called SinFullScat and based on the existing simulator Sindbad has been developed in order to simulate diffracted spectra for any configurations. It enables to study the effects of all diffractometer's parameters on the output spectra. Depending on the application, inspected materials may have different structures, either amorphous (e.g. explosive liquids or tissues in medical application), either crystalline (drugs and explosive powders) or a mixture of both. SinFullScat aims to address all these kinds of materials.

### IV.3 Effet du système de collimation sur le spectre en EDXRD (étude par simulation)

Le but du système de collimation est d'une part de former le faisceau incident (collimateur côté source) et aussi de sélectionner l'angle  $\theta$  auquel on recueille le rayonnement diffracté (collimateur côté détecteur). En pratique, un collimateur permet de sélectionner un angle avec une certaine incertitude due à son ouverture angulaire, qui peut être petite, mais jamais nulle. Du point de vue de la fabrication des collimateurs, on préfère avoir une ouverture large : les collimateurs sont ainsi plus faciles à usiner. De plus, la sensibilité et donc le rapport signal/bruit sont meilleurs avec un angle solide plus grand. D'un autre côté, si l'ouverture angulaire est trop importante, on risque de mesurer des spectres de diffraction avec des pics de diffraction se chevauchant, compromettant ainsi la bonne distinction des différents matériaux. Il s'agit du compromis habituel entre la résolution et la sensibilité d'un système de collimation.

L'objectif de ce paragraphe est de compléter l'étude paramétrique de l'article publié dans NIM A en analysant par simulation l'influence de la collimation sur le spectre de diffraction en termes de sensibilité (intensité mesurée) et de résolution des pics en énergie.

Toutes les simulations effectuées dans cette partie prennent en compte la résolution en énergie du détecteur supposée constante (FWHM=3 keV de 1 à 160 keV). Le bruit photonique n'est pas simulé mais l'intensité relative est observée pour les différentes configurations.

Plusieurs types de collimateurs peuvent être utilisés, comme le collimateur cylindrique, le collimateur "fentes Soller" qui correspond à un ensemble de lames métalliques fines et parallèles, le collimateur trou (Pinhole) et le collimateur à deux fentes.

Les collimateurs fentes (Fig. IV.1) peuvent être associés à une mécanique permettant d'ajuster facilement leur largeur et leur distance. Ils sont donc préférables aux autres car ils offrent une plus grande flexibilité de dimensionnement.

#### IV.3.1 Effet de la distance (objet-détecteur)

L'intensité mesurée par le détecteur est proportionnelle à l'angle solide sous lequel le volume inspecté voit le détecteur et la source. L'angle solide est inversement proportionnel à la distance au carré. Par conséquent, la réduction des distances source-objet et objet-détecteur, pour les mêmes surfaces émettrices et détectrices, augmente considérablement l'intensité mesurée. Mais ceci est compensé par le fait que la réduction de ces distances s'accompagne aussi d'une réduction du volume diffractant et par conséquent d'une réduction de l'intensité diffractée.

Les simulations présentées ont été réalisées sur des objets sous forme de plaque de NaCl (sel), d'épaisseur 4mm et 40mm. La configuration géométrique correspondante est celle présentée dans la figure IV.2. Pour chaque épaisseur d'objet, nous faisons varier la distance objet-détecteur pour observer son influence sur l'intensité et la résolution des pics. Le tableau IV.1 présente les dimensions du volume inspecté (intersection des faisceaux d'émission et de détection) pour les différentes distances objet-détecteur simulées.

La Figure IV.3 montre les spectres simulés avec la plaque d'épaisseur 4 mm. Dans cette

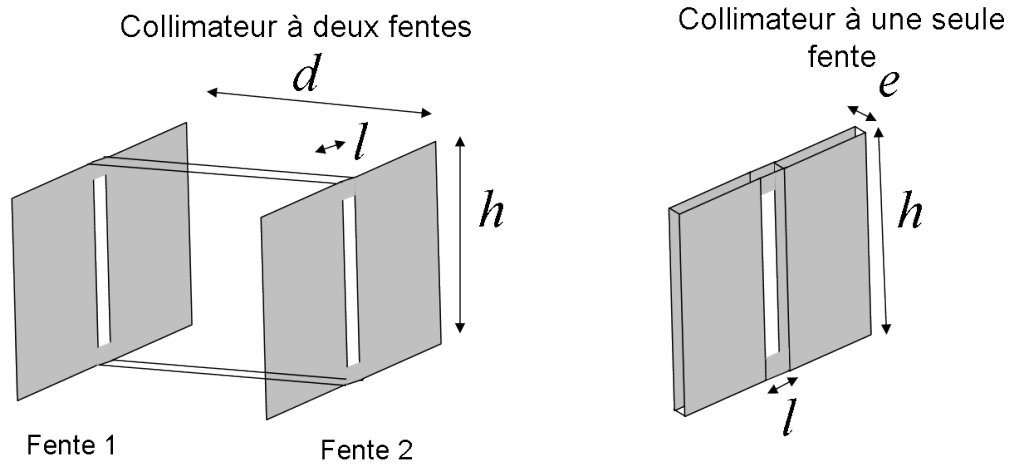


FIGURE IV.1 – Cette figure montre les paramètres ajustables pour les collimateurs à deux fente et à une fente. Le collimateur à deux fentes est constitué de deux fentes distantes de  $d$  et chaque fente a une hauteur  $h$  et une largeur  $l$ . Le collimateur à une fente est constitué d'une fente de largeur  $l$ , de hauteur  $h$  et d'épaisseur  $e$ .

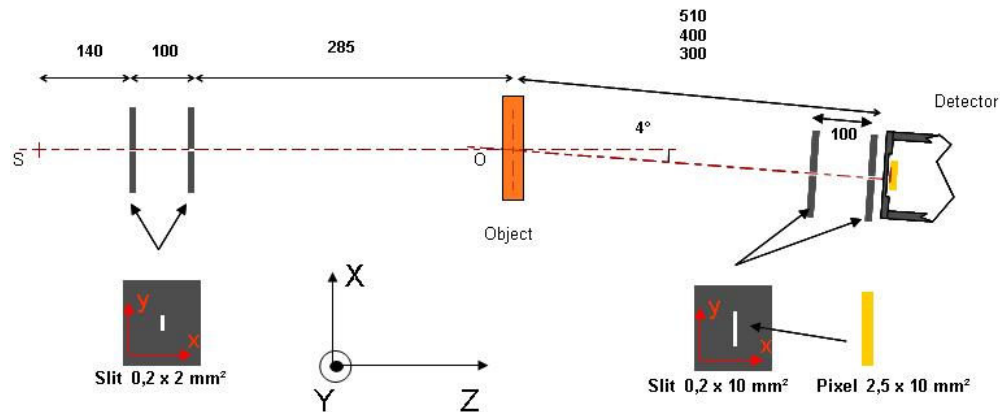


FIGURE IV.2 – Schéma du système simulé : tous les paramètres affichés sont en mm. La source S a un foyer de diamètre 1 mm. Le seul paramètre variable est la distance entre l'objet et le détecteur (300, 400, ou 510 mm).

configuration, on s'aperçoit que l'intersection du volume inspecté avec l'objet reste quasiment constante car l'objet a une épaisseur faible (plus petite que la longueur  $\Delta Z$  volume inspecté total) cf. Table IV.1. Le volume réel diffractant est mince, ce qui induit une résolution angulaire faible. Par conséquent, la sensibilité augmente lorsqu'on approche le détecteur sans perdre pour autant en résolution angulaire (qui reste à autour de  $0.16^\circ$  pour les 3 distances). Ainsi, la résolution des pics de diffraction reste constante ( $\approx 6.4\%$ ) (voir eq. III.3).

La Figure IV.4 montre les spectres simulés avec une plaque de NaCl d'épaisseur 40 mm pour les mêmes distances objet-détecteur. Dans cette configuration, le volume d'in-

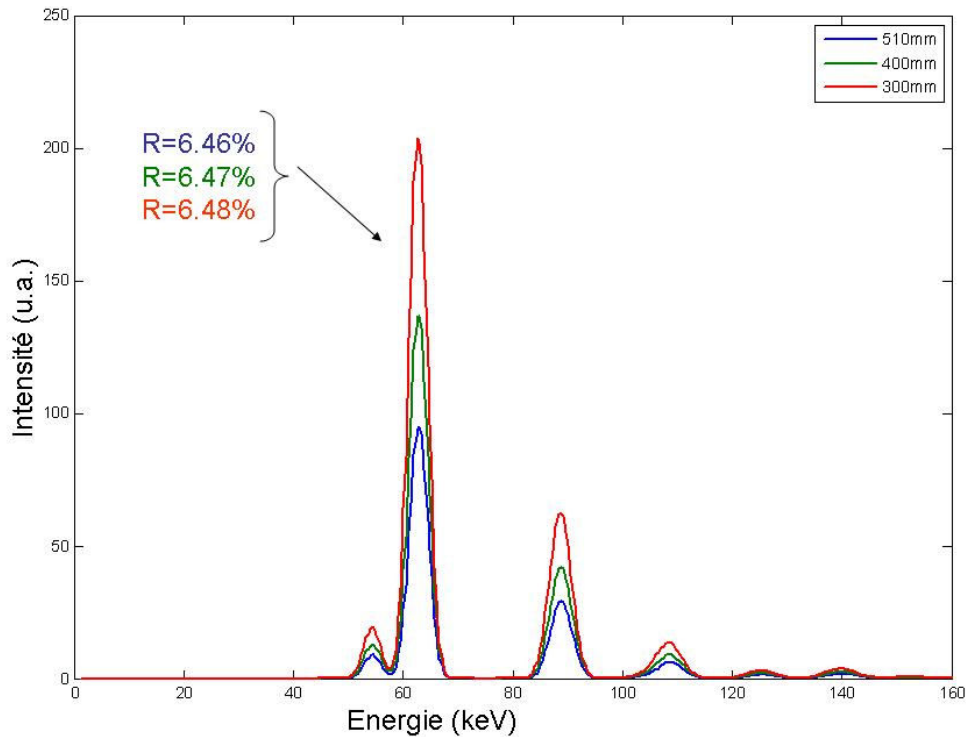


FIGURE IV.3 – Spectres simulés avec une plaque de 4 mm de NaCl pour des distances détecteur objet égales à 510, 400 et 300 mm. L'angle de diffraction est fixé ici à 4°.

Distance objet-détecteur (mm)	$\Delta X$ (mm)	$\Delta Y$ (mm)	$\Delta Z$ (mm)	Volume inspecté ( $mm^3$ )
510	1.3	5.5	43	188
400	1.3	5.5	37	142
300	1.3	5.5	31	101

TABLE IV.1 – Dimensionnement du volume inspecté défini par l'intersection des faisceaux incident et diffracté dans les 3 cas étudiés.

tersection entre les faisceaux et l'objet change considérablement d'une distance détecteur objet à une autre. Ce volume vaut  $188 \text{ mm}^3$ ,  $142 \text{ mm}^3$  et  $101 \text{ mm}^3$  respectivement pour les distance de 510 mm, 400 mm et 300 mm. Pour autant, la résolution angulaire reste quasiment constante pour les différentes distances, autour d'environ  $0.17^\circ$ .

Ici encore, on observe que la réduction de la distance entre les éléments des systèmes permet d'augmenter le flux des photons reçus par le détecteur et par conséquent, d'améliorer la sensibilité et le rapport signal sur bruit sans perdre au niveau de la résolution des pics. Cela confirme ainsi que l'augmentation de l'angle solide (évolution au carré) est plus importante que la réduction du volume diffractant (évolution sensiblement linéaire).

Pour l'inspection de bagages, il faut laisser une distance suffisante (40 cm minimum) entre les deux collimateurs (primaire et secondaire) et l'objet, pour laisser passer une grande valise à travers la zone d'inspection. Par conséquent, la distance optimale sera la



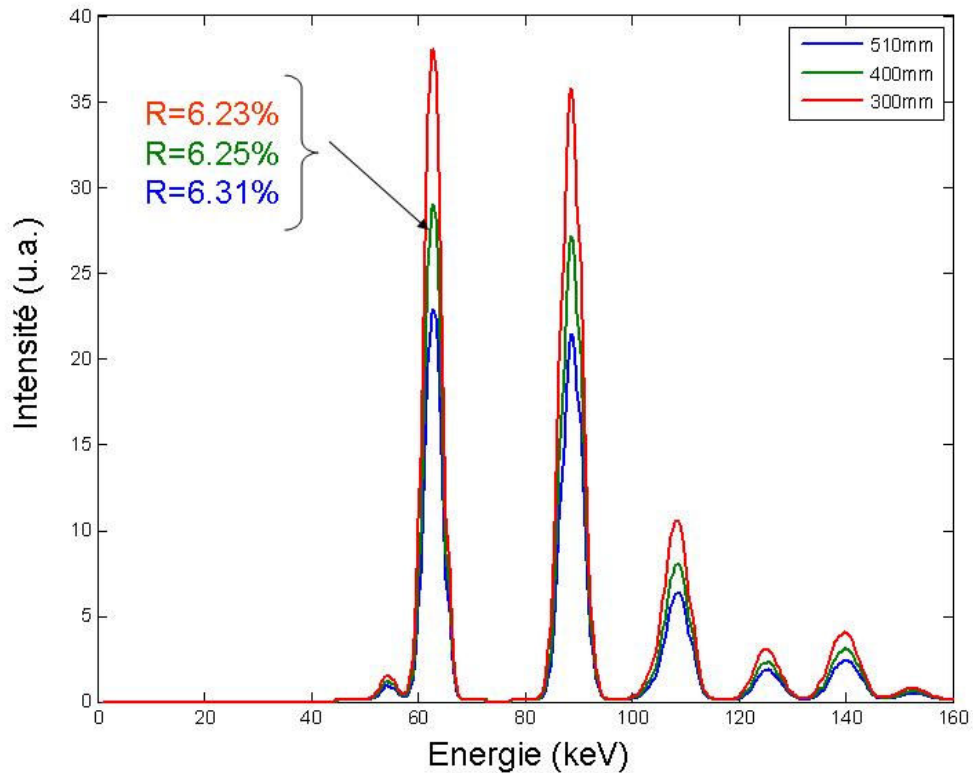


FIGURE IV.4 – Spectres simulés avec une plaque de 40 mm de NaCl pour des distances détecteur objet égales à 510, 400 et 300 mm. L'angle de diffraction est fixé ici à  $4^\circ$ .

plus petite distance satisfaisant les contraintes d'encombrement.

### IV.3.2 Effet du dimensionnement des collimateurs

Dans ce paragraphe, nous allons étudier l'effet d'ouverture des fentes du collimateur sur le spectre détecté. Un collimateur finement ouvert permet une meilleure résolution mais une faible sensibilité. Il sera intéressant d'ouvrir le plus possible le dimensionnement du collimateur pour assurer une bonne sensibilité. Cette ouverture devra être limitée par le compromis imposé entre la résolution et la sensibilité comme nous allons le voir. Pour illustrer cela, la configuration de la figure IV.5 est utilisée afin de simuler plusieurs cas de dimensionnement au niveau du collimateur secondaire :

- Cas 1 : Fente 1 0.1mm - Fente 2 0.1mm, soit un volume inspecté de  $133 \text{ mm}^3$
- Cas 2 : Fente 1 0.2mm - Fente 2 0.2mm, soit un volume inspecté de  $251 \text{ mm}^3$
- Cas 3 : Fente 1 0.3mm - Fente 2 0.3mm, soit un volume inspecté de  $336 \text{ mm}^3$
- Cas 4 : Fente 1 0.4mm - Fente 2 0.4mm, soit un volume inspecté de  $386 \text{ mm}^3$

La figure IV.6 montre les spectres de NaCl simulés à  $4^\circ$  (40 mm d'épaisseur).

D'un point de vue de la sensibilité, il est clair que l'intensité augmente fortement avec l'ouverture du collimateur secondaire. Par contre, la résolution des pics se dégrade lorsque la largeur des fentes augmente. Tant que la source est bien collimatée, cette résolution

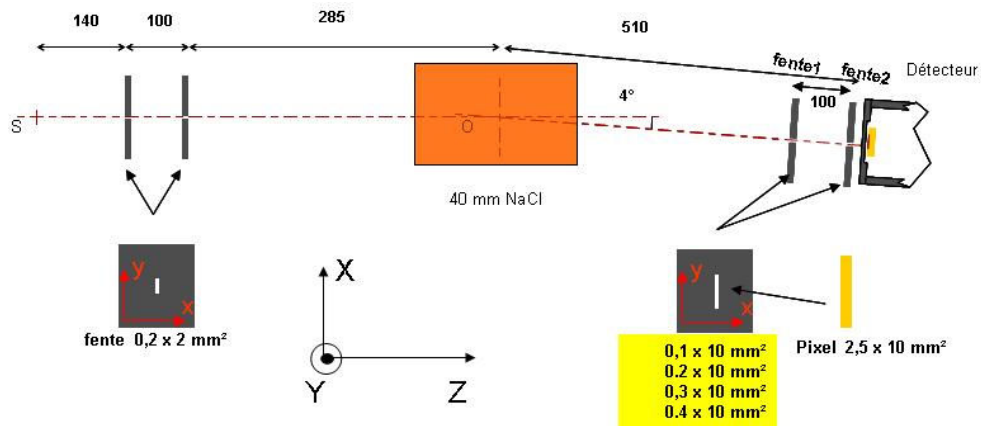


FIGURE IV.5 – Schéma du système simulé : Tous les paramètres sont en mm, les largeurs des deux fentes du collimateur secondaire dans la simulation varient entre 0.1 mm et 0.4 mm.

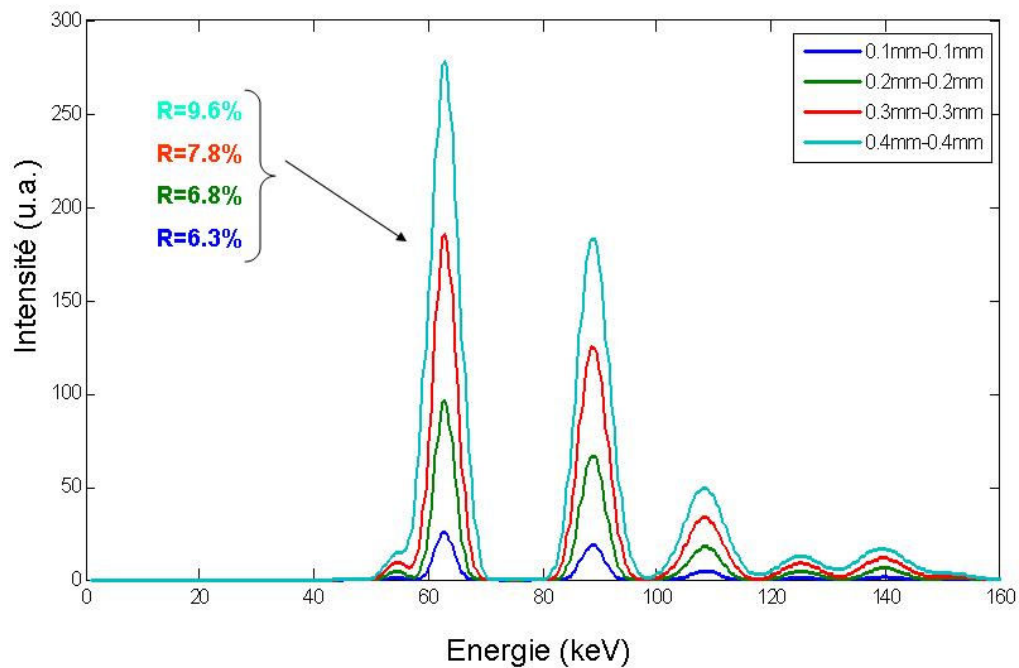


FIGURE IV.6 – Spectres de diffraction de 40 mm de NaCl pour différentes largeurs des fentes du collimateur secondaire. La résolution du premier pic du spectre est précisée.

reste raisonnable avec une séparation marquée des différents pics de diffraction dans le cas du NaCl. Toutefois, il est clair qu'on ne peut pas trop ouvrir ces fentes pour deux raisons :

- l'ouverture s'accompagne de l'agrandissement du volume inspecté qui doit être limité afin de ne pas perdre en précision spatiale et éviter le mélange de matériaux (plus le volume s'élargit, plus la probabilité d'avoir plusieurs matériaux dedans augmente).
- l'ouverture s'accompagne d'une perte en résolution angulaire non négligeable (Fig. IV.7), pouvant aboutir au chevauchement des pics d'intensité, surtout dans

le cas de matériaux possédant de nombreux pics resserrés (cas des explosifs).

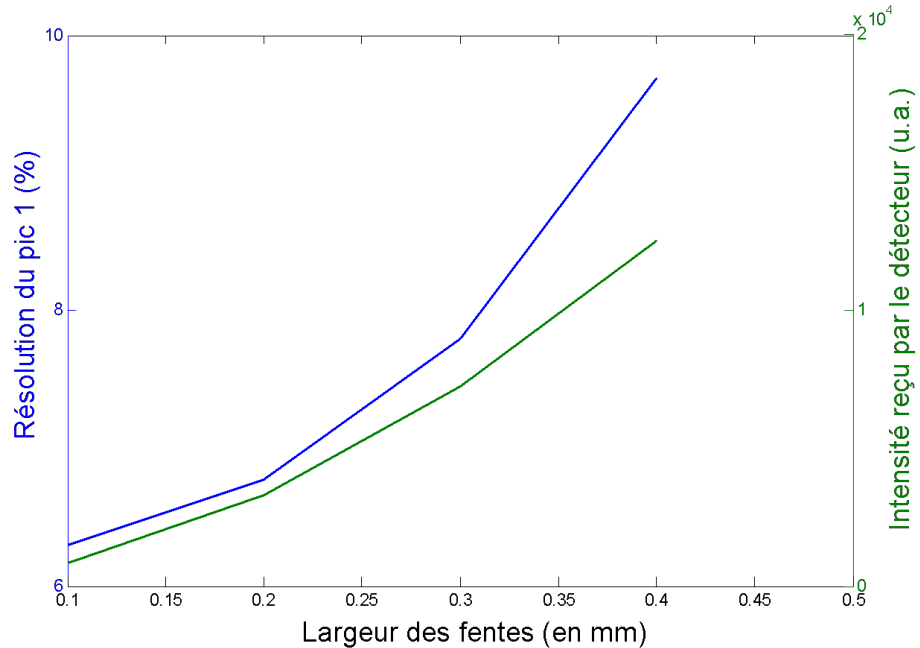


FIGURE IV.7 – Variation de l'intensité du spectre et de la résolution du premier pic dans le spectre montré dans la figure IV.6 en fonction de l'ouverture du collimateur secondaire : l'intensité augmente avec l'ouverture du collimateur secondaire mais s'accompagne d'une perte en résolution non négligeable.

D'un autre côté, si la diminution des largeurs des fentes permet de gagner en résolution des pics, il est clair que ce gain est vite caché par la résolution intrinsèque en énergie du détecteur qui dégrade elle aussi la résolution des pics. Il s'agira donc de trouver, pour une configuration de flux donné et de matériau inspecté, le bon compromis entre gain en sensibilité et perte en résolution angulaire.

### IV.3.3 Collimateur à deux fentes Vs collimateur à une fente

La comparaison entre ces deux types de collimateurs secondaires se limite aux contraintes imposées par nos applications. Pour cela, et pour une comparaison équitable, trois conditions sont imposées :

- Le volume inspecté de l'objet doit être similaire.
- La distance entre l'objet et le bord du collimateur secondaire doit être plus grande que 50 cm pour laisser passer le bagage.
- La taille du pixel détecteur reste la même : ici  $2,5 \times 2,5 \text{ mm}^2$ .

Pour le collimateur à deux fentes on utilise la configuration de la figure IV.5 avec une largeur de fente de 0,35 mm pour le collimateur secondaire.

Pour le collimateur à une fente, on simule la configuration décrite dans la figure IV.8. Dans cette configuration, la distance objet-collimateur secondaire est la distance minimale

qui donne le même volume inspecté que dans la configuration avec le collimateur à deux fentes (volume autour de  $400 \text{ mm}^3$ ).

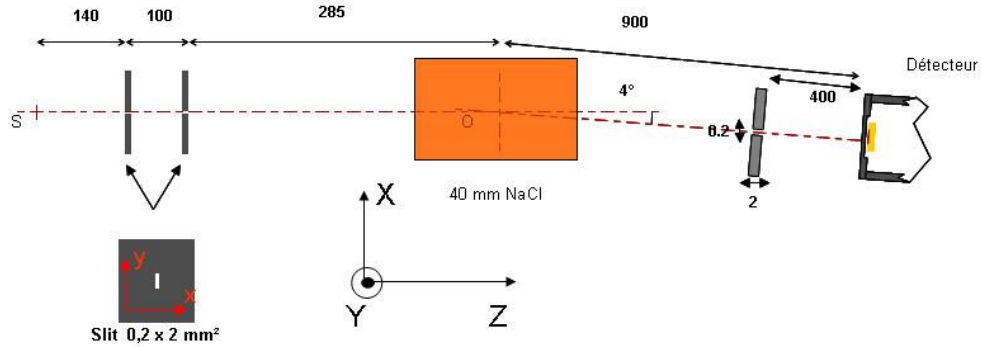


FIGURE IV.8 – Configuration correspond au collimateur à une fente.

La Figure IV.9 montre que l'utilisation du collimateur à deux fentes est plus efficace que celle du collimateur à une fente, car à la fois la sensibilité et la résolution sont meilleures.

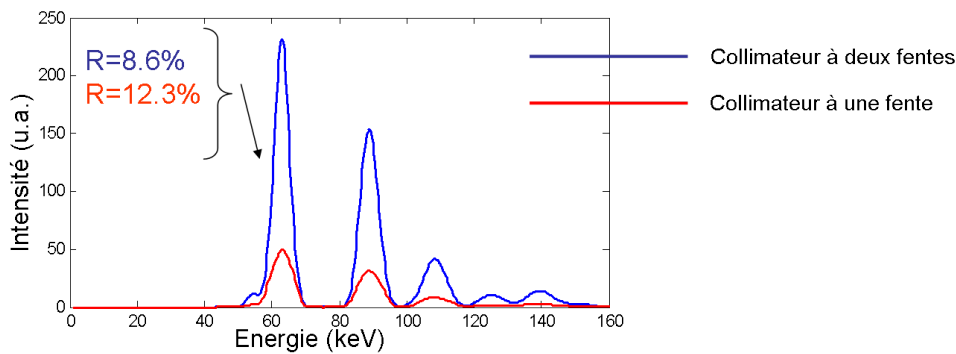


FIGURE IV.9 – Spectres de diffraction de 40 mm de NaCl à  $4^\circ$  simulé avec un collimateur à une fente et un collimateur à deux fentes.

Il y a plusieurs méthodes pour améliorer la sensibilité dans le cas du collimateur à une fente, comme par exemple le prolongement du détecteur dans le sens perpendiculaire au diffractomètre. D'autre part, l'utilisation d'un collimateur à une seule fente nous permet d'améliorer la résolution angulaire par la méthode de sur pixellisation qui constituera notre étude dans le chapitre V.

#### IV.4 Conclusion

Le programme de simulation SinFullscat présenté dans ce chapitre est un programme complet pour calculer la diffusion cohérente et incohérente dans les matériaux polycristallins et amorphes. Des comparaisons de spectres simulés avec des spectres mesurés sur notre banc expérimental ont permis de valider SinFullscat pour différents types de matériaux.

Ce simulateur est précieux car il permet de fournir des spectres réalistes et de tester toutes les méthodes d'analyse spectrale présentées dans le chapitre II afin d'identifier les matériaux. Il est ainsi possible de l'utiliser pour générer des grandes quantités de données nécessaires pour construire des modèles et des bases de données.

De même, SinFullscat permet d'étudier tous les paramètres affectant les spectres EDXRD. Une étude paramétrique par simulation a d'ailleurs été réalisée dans ce chapitre. Tout d'abord, l'angle de diffraction semble avoir une grande influence sur le spectre EDXRD. Chaque matériau peut avoir un angle spécifique qui permet de mesurer un spectre de diffraction contenant le maximum d'informations. Cet angle est appelé l'angle optimal. Par exemple, dans l'article NIMA, on a montré que l'angle  $4^\circ$  est l'angle optimal pour détecter le TNT, car le spectre mesuré à cet angle contient le maximum de pics bien résolus et intenses. Idéalement, selon les matériaux envisagés, il serait recommandé de travailler à l'angle optimal correspondant à ces matériaux. L'étude par simulation peut servir d'outil pour calculer les angles optimaux pour chacun des matériaux envisagés.

D'autre part, nous avons montré que l'effet de la résolution énergétique du détecteur est très important notamment pour les explosifs où les pics dans le spectre EDXRD sont très proches en énergie et peuvent rapidement se confondre (voir les figures 11 et 12 dans l'article NIMA). Par conséquent, la perte en résolution en énergie nous conduit à une dégradation rapide des informations portées par les faisceaux diffractés.

Enfin, le choix de collimation et leurs dimensions représentent un point important afin d'obtenir une résolution et un flux convenables. Une bonne résolution des pics s'accompagne généralement d'une perte en intensité. Jusqu'à maintenant, les collimateurs à deux fentes apparaissent comme les plus intéressants dans ce contexte. L'étude par simulation effectuée dans ce chapitre l'a confirmé. Cependant, l'inconvénient de ce type de collimateurs est qu'une partie de la surface de détecteur peut être caché par le collimateur. Une partie du détecteur n'a donc aucune utilité dans ce système.

Un objectif de ma thèse est d'étudier comment un système EDXRD peut être amélioré, en terme d'information contenue dans les spectres mesurés. En nous appuyant sur les observations réalisées expérimentalement au chapitre III ainsi que sur les études de simulation avec SinFullscat, nous proposons dans les deux chapitres suivants des améliorations visant d'une part à optimiser l'intensité et la résolution des pics de diffraction et d'autre part leur stabilité. Précisément, nous montrons dans le chapitre suivant comment nous pouvons utiliser un système de collimation plus efficace que les collimateurs à deux fentes. Ce nouveau système combiné à la méthode de sur-pixellisation proposée nous permet de profiter de toute la surface du détecteur. SinFullscat est le pilier central de toutes les méthodes d'optimisation proposées dans les chapitres suivants.



# Intérêt de la sur-pixellisation pour l'amélioration des performances d'un système EDXRD

## Sommaire

<b>V.1 Principe et intérêt de la sur-pixellisation</b>	<b>106</b>
V.1.1 Principe	106
V.1.2 Illustration du gain en résolution angulaire	109
<b>V.2 Sur-pixellisation par la méthode de localisation barycentrique</b>	<b>112</b>
V.2.1 Principe de la localisation barycentrique	114
V.2.2 Résultats du calibrage sur la sonde Minigami	118
V.2.3 Interprétation des résultats et améliorations possibles	121
<b>V.3 Application de la localisation barycentrique à un système EDXRD pour améliorer ses performances</b>	<b>123</b>
V.3.1 Amélioration de la résolution en énergie	123
V.3.2 Amélioration de la sensibilité	134
V.3.3 Séparabilité de matériaux	137
<b>V.4 Conclusion</b>	<b>142</b>

L'amélioration de la résolution en énergie et de la sensibilité du spectre de diffraction est un enjeu majeur pour permettre la séparation et l'identification des différents pics caractéristiques du matériau inspecté. Pour cela, le dimensionnement du système collimation-détecteur est très important.

Dans tous les diffractomètres existants, l'ensemble collimateur-détecteur est soumis à un compromis entre la résolution des pics de diffraction et leur intensité, principalement en jouant sur l'ouverture de la collimation. Comme observé dans l'étude paramétrique du chapitre IV, la figure de principe V.1(a) permet de comprendre l'idée de compromis : l'amélioration d'un des paramètres coïncide avec la dégradation de l'autre. En s'appuyant sur les études réalisées au cours de cette thèse, nous proposons dans ce chapitre une approche novatrice qui améliore ce compromis. Cette approche est basée sur la sur-pixellisation du détecteur ainsi que sur une adaptation de la géométrie du système collimation/détection. La première partie de ce chapitre vise à expliquer le principe de cette méthode à l'aide de schémas de principe concrets.

A l'aide de traitements électroniques utilisant les signaux des pixels voisins, nous pouvons estimer la position d'interaction des photons dans le pixel, conduisant à la sur-

pixellisation recherchée. Nous expliquons en détail dans le chapitre comment cette sur-pixellisation fictive, appelée sur-pixellisation par localisation barycentrique, peut être obtenue et avec quelle précision.

Le dernier paragraphe de ce chapitre présentera des résultats obtenus en appliquant cette méthode sur notre diffractomètre. Le passage d'un point de fonctionnement d'un système sans sur-pixellisation à un système avec sur-pixellisation peut se faire selon deux motivations que nous développerons (Fig. V.1(b)) :

- Amélioration de la résolution sans perte en sensibilité (sens 1).
- Amélioration de la sensibilité sans perte en résolution (sens 2)

Nous montrerons enfin que la sur-pixellisation a un troisième intérêt : celui de séparer les matériaux compris dans le volume d'analyse. Les résultats présentés dans ce chapitre s'appuieront sur des caractérisations par simulations et sur des validations expérimentales.

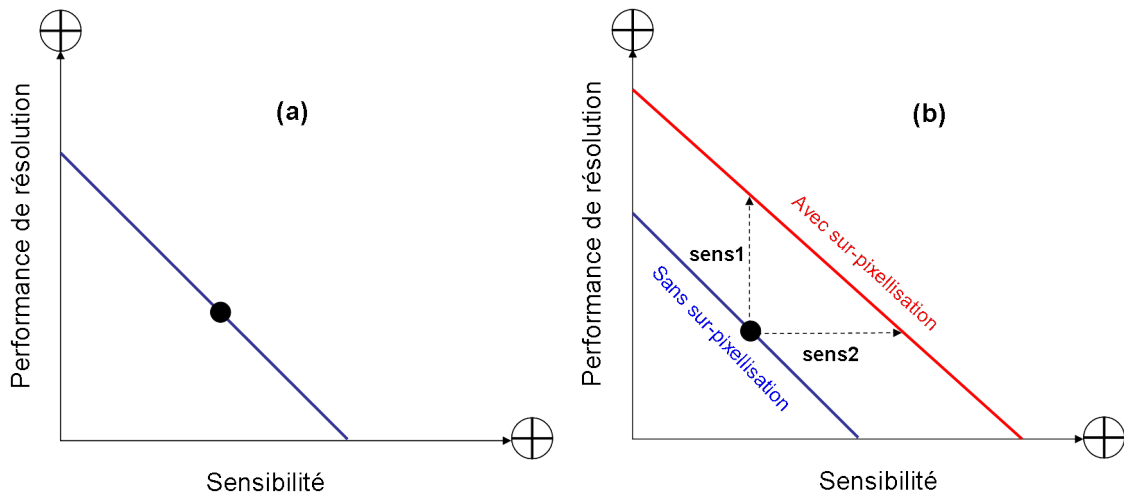


FIGURE V.1 – Schéma de principe représentant le compromis résolution/sensibilité. Le sens positif des ordonnées correspond à une amélioration de la performance de résolution, c'est-à-dire à une diminution de la valeur  $\Delta E_{tot}$ . (a) La droite représente la relation de compromis entre la résolution et la sensibilité. (b) La sur-pixellisation permet d'améliorer la résolution (sens 1) et la sensibilité (sens 2).

## V.1 Principe et intérêt de la sur-pixellisation

### V.1.1 Principe

Comme vu précédemment au chapitre IV, les pics de diffraction subissent plusieurs déformations due à (Fig. V.2) :

- la réponse due à la disposition géométrique (collimateur),
- la contribution du spectre continu qui dépend du spectre incident,
- la réponse du détecteur.



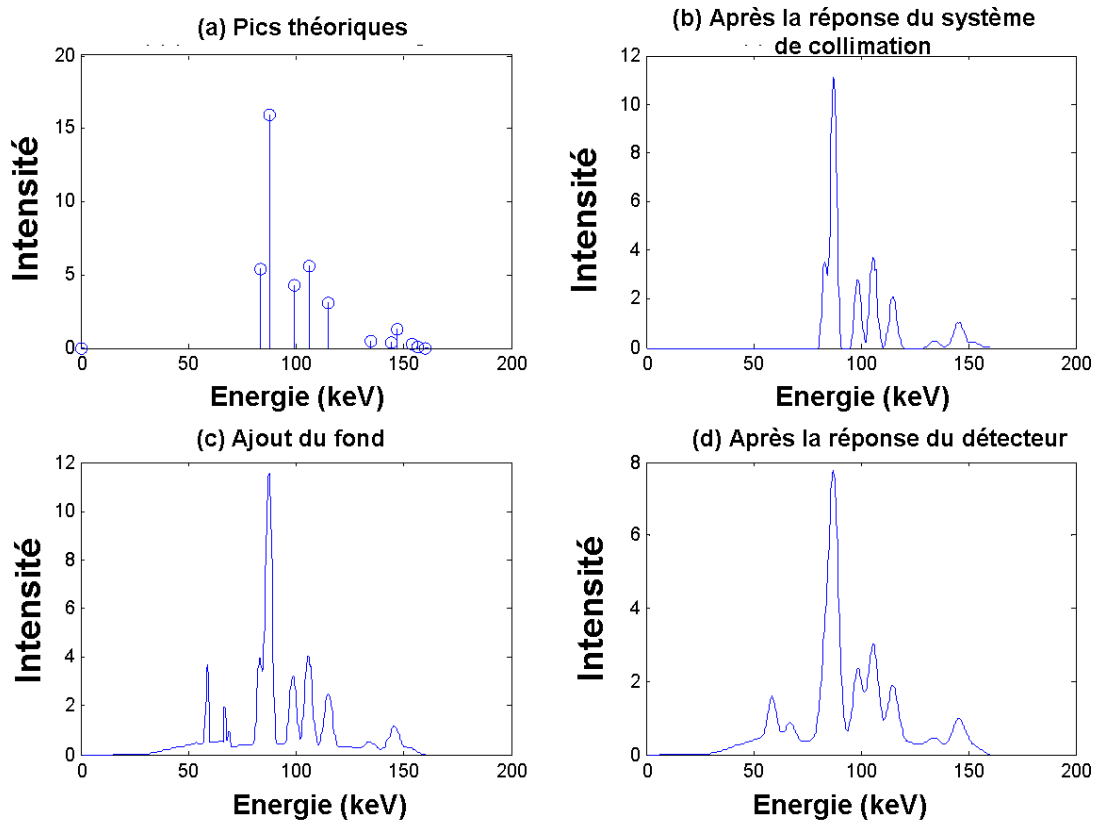


FIGURE V.2 – Les différentes étapes de dégradation d'un spectre de diffraction

Ainsi, la résolution en énergie des pics de diffraction dans un spectre de diffraction dépend de deux termes :

1. Le premier est dû à la résolution angulaire donnée par la géométrie de collimation. L'arrangement géométrique des collimateurs par rapport à la source et au détecteur détermine un volume d'investigation. La distribution des angles de diffraction dans ce volume génère directement sur le spectre une certaine résolution en énergie notée  $\Delta E_{ang}$ . Les pics de diffraction ne sont alors plus des pics de Dirac. Leur résolution en énergie (Fig. V.3) est donnée par l'équation dérivée de l'équation de Bragg :

$$\Delta E_{ang} = \frac{E}{2} \cot\left(\frac{\theta}{2}\right) \Delta\theta \quad (V.1)$$

2. Le deuxième provient directement de la résolution en énergie du détecteur, notée  $\Delta E_{det}$

Au final, l'expression de la résolution totale en énergie des pics de diffraction notée  $\Delta E_{tot}$  s'exprime par :

$$\Delta E_{tot} = \sqrt{\Delta E_{ang}^2 + \Delta E_{det}^2} \quad (V.2)$$

On cherche dans ce chapitre à optimiser la résolution angulaire  $\Delta E_{ang}$  pour améliorer la résolution en énergie totale  $\Delta E_{tot}$  du spectre de diffraction mesuré.

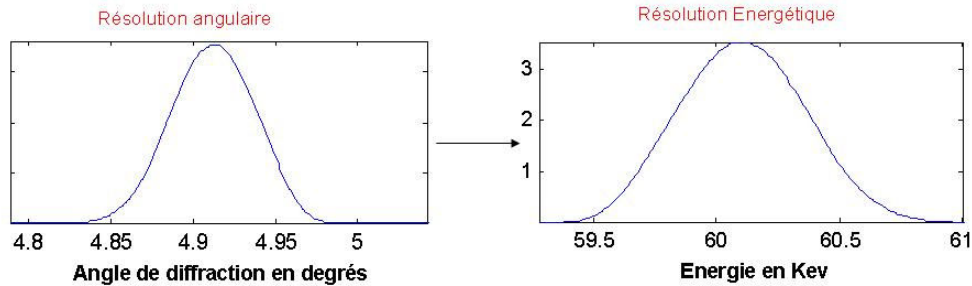


FIGURE V.3 – Illustration de l'effet de la résolution angulaire sur la résolution en énergie.

L'ensemble collimateur-détecteur (Fig. V.4), placé à un angle  $\theta$  par rapport au faisceau incident, reçoit les photons diffusés par le volume d'analyse. Au niveau de la collimation, l'affinement est surtout réalisé dans le plan (XZ) du diffractomètre, car l'angle de diffraction varie fortement dans ce plan, tandis que suivant la direction perpendiculaire au plan de diffractomètre (axe Y), l'angle de diffraction change très peu.

L'information de position latérale (selon X) d'interaction des photons sur le détecteur est primordiale car elle porte en elle l'information d'angle de diffraction. L'idée proposée consiste à exploiter cette information de position latérale des photons diffractés pour affiner la résolution angulaire  $\Delta E_{ang}$ . Pour cela, la sur-pixellisation du détecteur selon la direction X est pertinente mais doit être accompagnée d'une adaptation du système collimateur-détecteur pour tirer profit de l'information de position latérale.

Comme illustré dans la figure V.4, on peut utiliser un collimateur à une seule fente rectangulaire combiné à un détecteur pixélisé pour exploiter cette idée de sur-pixellisation du détecteur. Chaque sous-pixel observe alors une région du volume inspecté avec un angle de diffraction légèrement différent. Ces sous-volumes inspectés par chaque sous-pixel se chevauchent. Il est clair que pour chaque sous-pixel, la résolution angulaire associée est meilleure que celle observée par la totalité du pixel. Par conséquent, le spectre de diffraction mesuré par chaque sous-pixel a une résolution en énergie meilleure que celle mesurée par le détecteur complet.

La retranscription de cette résolution angulaire améliorée sur le spectre EDXRD final peut se faire simplement en exprimant les spectres de diffraction en fonction du transfert de quantité de mouvement défini par :

$$x = \frac{\sin(\theta/2)}{\lambda} \quad (V.3)$$

L'intérêt d'exprimer les profils de diffraction en fonction de  $x$  est dû au fait qu'un pic peut être représenté pour différents couples  $(E, \theta)$  mais pour une seule valeur de  $x$ .

Ainsi, un changement de variable ( $E \Rightarrow x$ ) et une sommation des spectres mesurés par chaque sous pixel permet de conserver cette amélioration de la résolution, tout en conservant l'intensité (et le rapport signal à bruit) détecté par le pixel complet. Par conséquent, ce système de collimateur-détecteur pixélisé semble pouvoir améliorer la résolution angulaire et par conséquent la résolution finale en énergie.

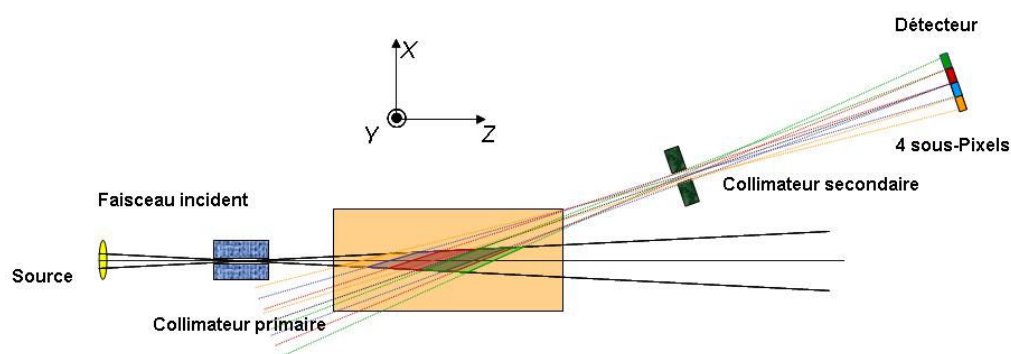


FIGURE V.4 – Diffractomètre utilisant une fente rectangulaire au niveau de la collimation secondaire et un détecteur sur-pixellisé. Le volume inspecté est partagé par les sous-pixels.

### V.1.2 Illustration du gain en résolution angulaire

Pour mieux comprendre, nous illustrons dans ce paragraphe l'intérêt de la sur-pixellisation sur la résolution angulaire avec un cas concret basé sur la simulation de notre détecteur Minigami (largeur de pixel = 2.5 mm). Les résultats présentés ici sont issus de simulations réalisées à l'aide de SinFullScat (cf. chapitre IV).

#### V.1.2.1 Exemple d'une configuration avec un détecteur sur-pixellisé

L'exemple présenté dans la figure V.5 nous permet d'observer pour un système de diffraction donné, le gain en résolution angulaire, donc en énergie, que l'on peut obtenir en réalisant une sur-pixellisation d'ordre 4 (1 pixel subdivisé en 4 sous-pixels).

Chaque sous-pixel de la figure V.5 reçoit les photons diffusés d'une région du volume inspecté avec un angle de diffraction spécifique. On voit que pour cette géométrie de diffractomètre, la longueur de volume inspecté observé par le pixel entier est de 34 mm suivant l'axe Z alors qu'elle est de 16 mm environ pour chaque sous pixel.

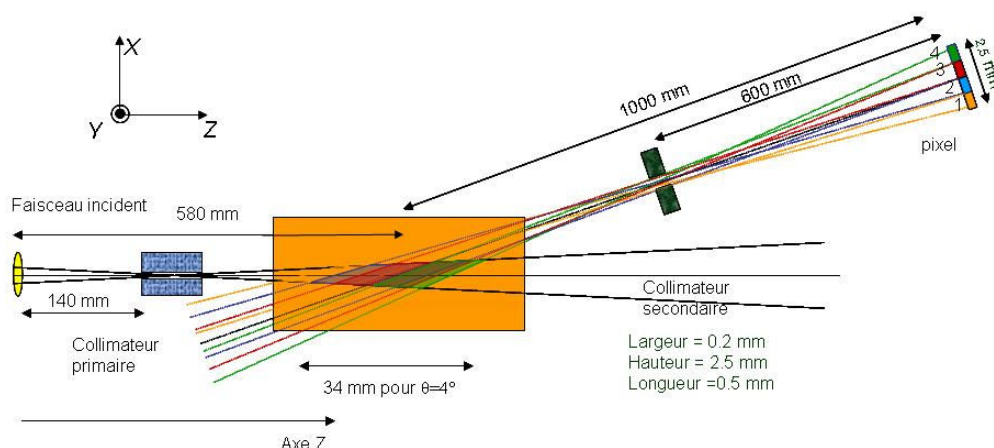


FIGURE V.5 – Schéma du diffractomètre illustrant les volumes inspectés par les 4 sous-pixels.

Pour cet exemple, la figure V.6 représente la résolution angulaire observée par chaque

sous-pixel. On observe une résolution angulaire de  $0.3^\circ$  pour le pixel complet et une résolution autour de  $0.1^\circ$  pour chaque sous-pixel (un facteur 3, si on regarde la FWHM). On rappelle que ce gain en résolution angulaire devrait se traduire directement en gain en résolution énergétique dans le spectre de diffraction (voir figure V.3 et figure V.7).

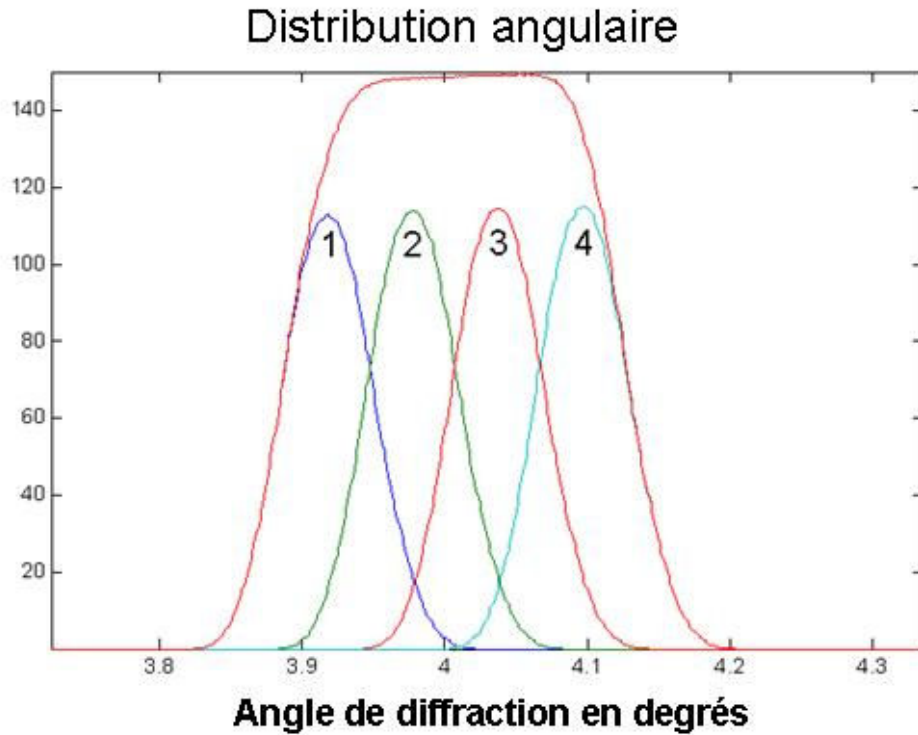


FIGURE V.6 – Résolution angulaire observée par chaque sous-pixel (1, 2, 3 et 4) et par le pixel entier (courbe rouge).

### V.1.2.2 Recombinaison des spectres des sous-pixels

La recombinaison se fait par un changement de variable appliqué aux spectres de diffraction mesurés par les sous-pixels suivi d'une sommation de tous ces spectres. Le changement de variable est réalisé par le passage de l'axe des abscisses en énergie (keV) en transfert de quantité de mouvement  $x$  ( $nm^{-1}$ ).

$$x(nm^{-1}) = 0.802 \cdot E(keV) \cdot \sin(\theta/2) \quad (V.4)$$

L'angle  $\theta$  utilisé pour ce changement de variable est l'angle moyen de la distribution angulaire vue par chaque sous pixel. Il est obtenu ici par calcul (simulation) mais peut être également par mesures de calibrage.

L'addition de ces " spectres élémentaires " en  $x$  permet au final d'obtenir un seul spectre de diffraction avec une meilleure résolution, et avec la même intensité, i.e. sans bruit supplémentaire que le bruit obtenu par le pixel entier.

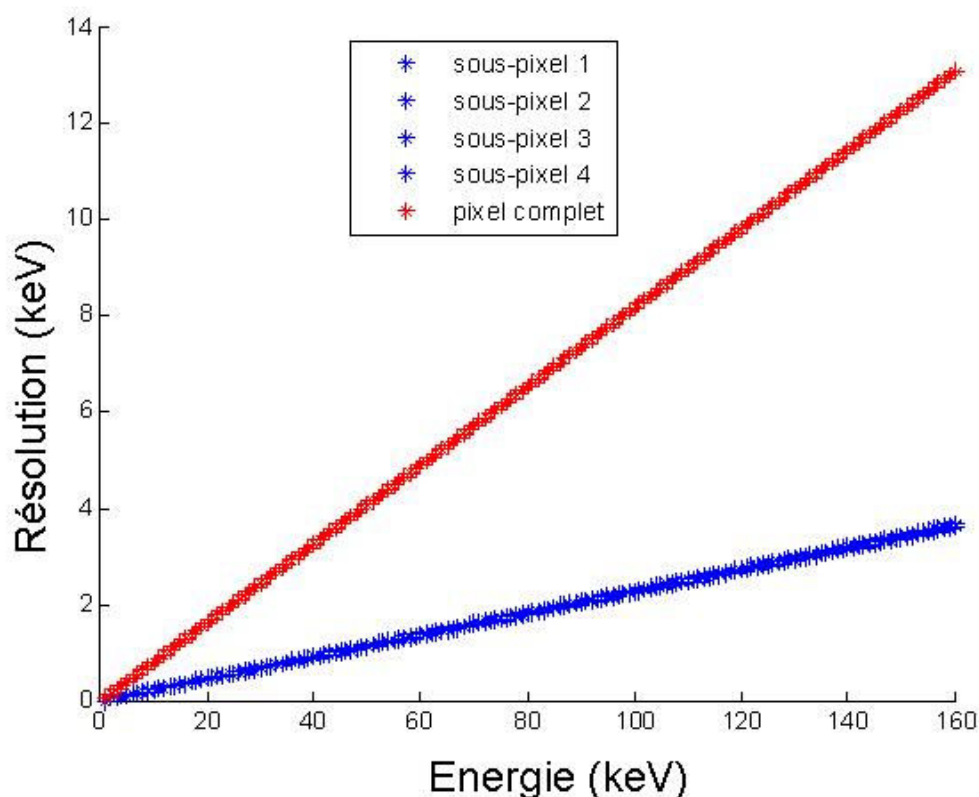


FIGURE V.7 – Résolution en énergie issue de la résolution angulaire en fonction de l'énergie

La méthode est testée par simulation avec SinFullscat pour l'arrangement géométrique présenté dans la figure V.5 qui respecte une taille raisonnable de volume analysé. Le matériau inspecté ici est du sucre. Les spectres de la figure V.8 sont les spectres simulés pour chacun des sous-pixels et le pixel entier, sous l'hypothèse d'une réponse de détecteur parfaite ( $\Delta E_{det} = FWHM_{det} = 0$  keV). On observe bien le décalage de chaque sous-spectre dû à la différence des angles de diffraction associés.

Dans les figures V.9 et V.10, on observe le spectre obtenu après les processus de recombinaison, respectivement pour un détecteur parfait et pour un détecteur de résolution  $FWHM_{det} = 2$  keV. Le bruit n'est pas simulé car nous ne nous intéressons ici qu'à l'effet sur la résolution des pics.

Les résultats montrent bien que cette méthode de sur-pixellisation permet de réaliser un gain important en résolution énergétique, et ainsi de détecter plus de pics sur le spectre final. Plus précisément, les spectres présentent un meilleur contraste, c'est à dire des pics plus intenses et des " vallées " plus profondes. L'identification des raies caractéristiques est alors facilitée. On note également que le changement de variable a tendance à limiter l'effet de raies de tungstène du spectre incident, ce qui constitue un autre avantage de la méthode. En effet, contrairement aux pics de Bragg qui s'additionnent après le changement de variable ( $E$  en  $x$ ), les raies de tungstène observées sur les spectres s'évalent sur un certain intervalle de  $x$ .

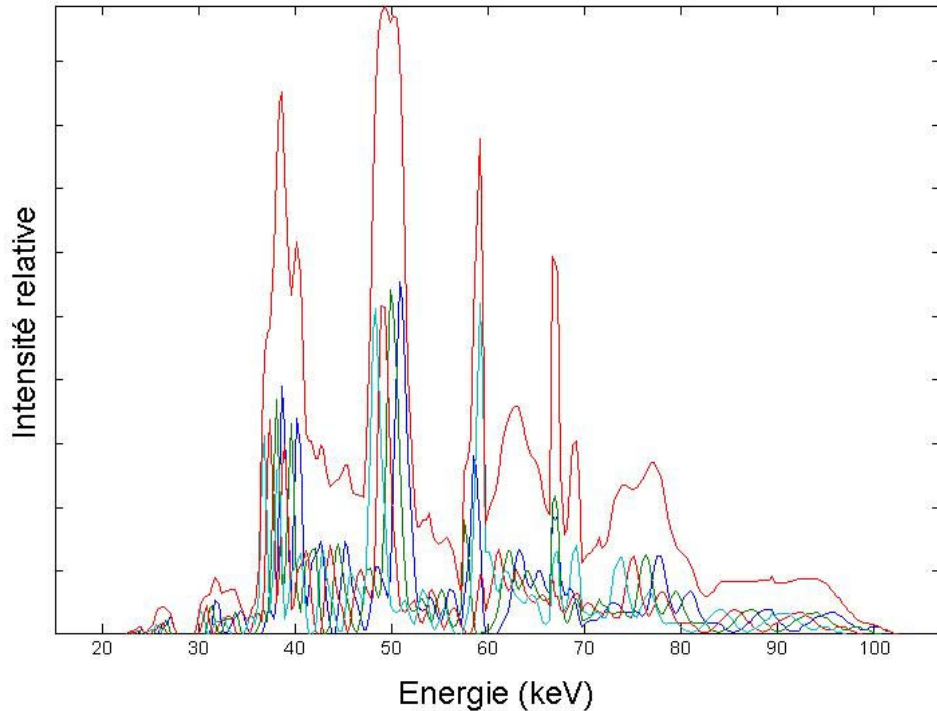


FIGURE V.8 – Spectres de diffraction du sucre à 4 deg : spectres simulés pour les sous-pixels (couleurs) et par le pixel complet (rouge) lorsque le détecteur est supposé parfait ( $FWHM_{det} = 0$  keV).

## V.2 Sur-pixellisation par la méthode de localisation barycentrique

La sur-pixellisation du détecteur peut être obtenue de 2 façons :

- mécaniquement, en concevant des pixels plus petits. Les méthodes mécaniques présentent de multiples inconvénients, comme l'encombrement dû à la multiplicité des voies électroniques et les problèmes de diaphonies entre les pixels voisins.
- virtuellement, en utilisant l'information de position d'interaction des photons incidents sur les détecteurs semi-conducteurs, type CdTe ou CdZnTe. La sur-pixellisation virtuelle consiste à pouvoir localiser une interaction sur un pixel avec une précision plus fine que la taille du pixel. Plusieurs méthodes de localisation barycentrique par traitement des signaux sur les pixels voisins existent et peuvent être utilisées.

C'est une de ces méthodes de localisation barycentrique que nous avons utilisée et qui est présentée dans ce paragraphe. Nous précisons que l'ensemble de ce paragraphe correspond à des travaux menés en collaboration avec une autre thèse : "Exploitation des signaux transitoires d'un détecteur semi-conducteur afin d'optimiser la résolution spatiale en imagerie gamma" (2009-2012) réalisée en parallèle par S. Lux [Lux 2011].

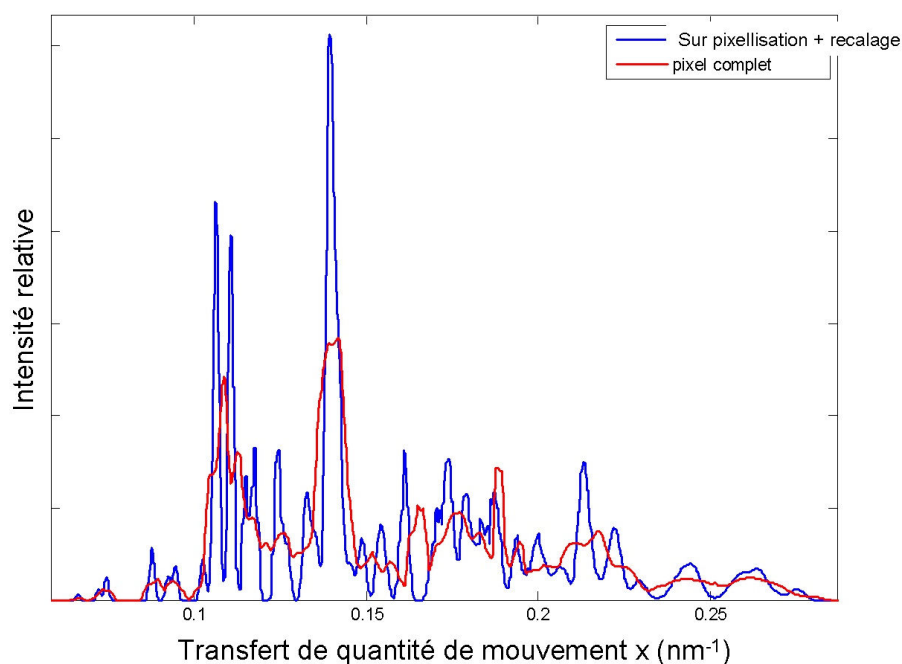


FIGURE V.9 – Spectres de diffraction du sucre à 4 deg avec  $FWHM_{det} = 0$  keV. En bleu : spectre des sous pixels recombines ; en rouge : spectre du pixel entier.

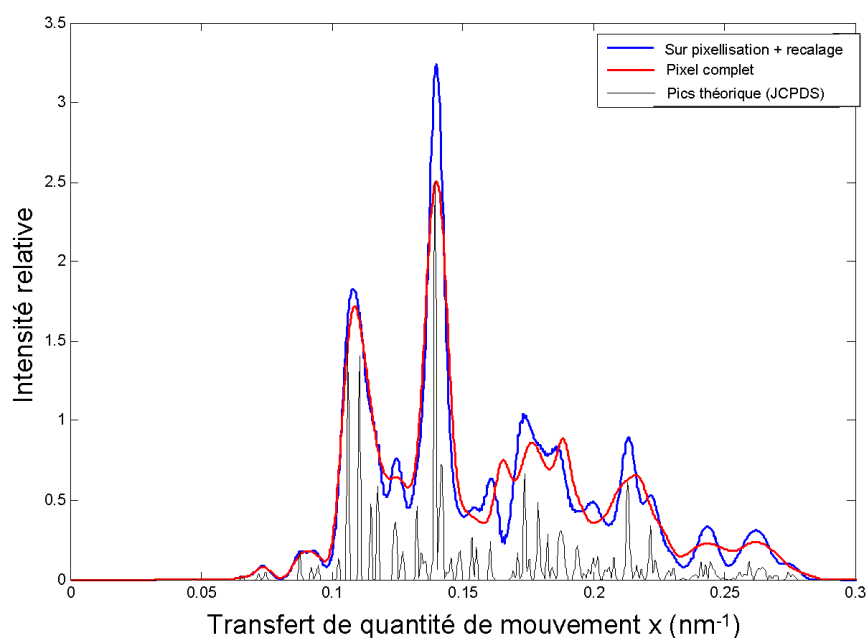


FIGURE V.10 – Spectres de diffraction du sucre à 4 deg avec  $FWHM_{det} = 2$  keV à toutes les énergies. En bleu : spectre des sous pixels recombines ; en rouge : spectre du pixel entier.

### V.2.1 Principe de la localisation barycentrique

La sur-pixellisation consiste à pouvoir localiser le lieu d'interaction du photon dans le pixel plus finement que le pixel. Ainsi, une sur-pixellisation 1D d'un facteur 4 sur un détecteur  $4 \times 4$  équivaut à un détecteur de  $16 \times 4$  (Fig. V.11). Dans notre cas, la sur-pixellisation n'est intéressante que dans un sens, celui dans le plan de diffractomètre où l'angle de diffraction varie fortement (axe X).

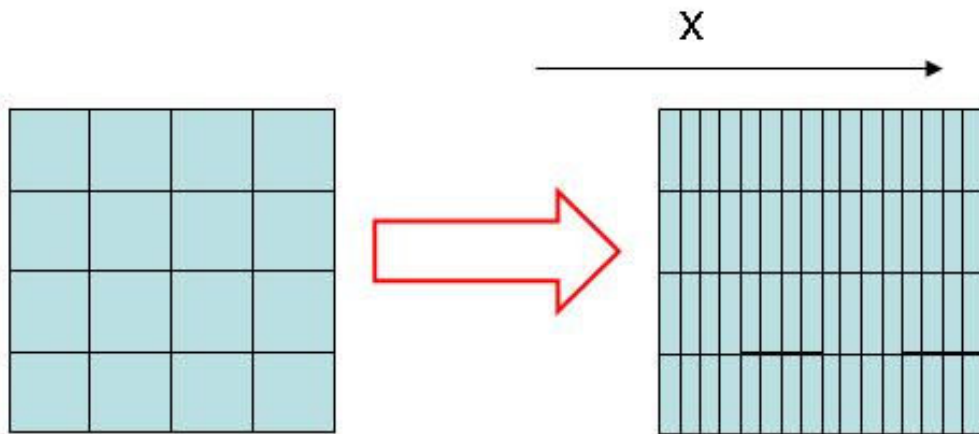


FIGURE V.11 – Sur-pixellisation d'un facteur 4 selon l'axe X.

Pour bien comprendre le principe de localisation barycentrique, il est important de revenir sur le processus de détection des rayons X dans les détecteurs CdTe pixellisés. Le nuage électronique, créé par l'ionisation du semi-conducteur par un photon (Fig. V.12), migre vers le pixel le plus proche du point de vue électrostatique, en suivant les lignes de champs liées au potentiel appliqué aux électrodes du détecteur. Le pixel ayant reçu la majorité des charges est appelé "pixel principal" dans la suite du chapitre.

L'échantillonnage temporel de la mesure de charge sur chacun des pixels au niveau ADC (Analog Digital Converter) permet d'avoir accès à l'évolution temporelle des charges des pixels pendant la migration des électrons vers l'anode (Fig. V.13).

#### Charges induites

La migration du nuage électronique vers le pixel principal induit un courant de charges sur l'ensemble des anodes, y compris celles ne récoltant pas le nuage de charges. Ainsi, dans un premier temps, pour un nuage d'électrons créé près de la cathode, le courant de charge induit augmente à mesure que le nuage se rapproche des anodes. Quand il est proche de son anode collectante, le nuage s'éloigne (du point de vue électrostatique) des anodes voisines, et leur courant induit diminue. A la fin du trajet, la charge du nuage électronique est intégralement transmise à l'anode collectante (Fig. V.12).



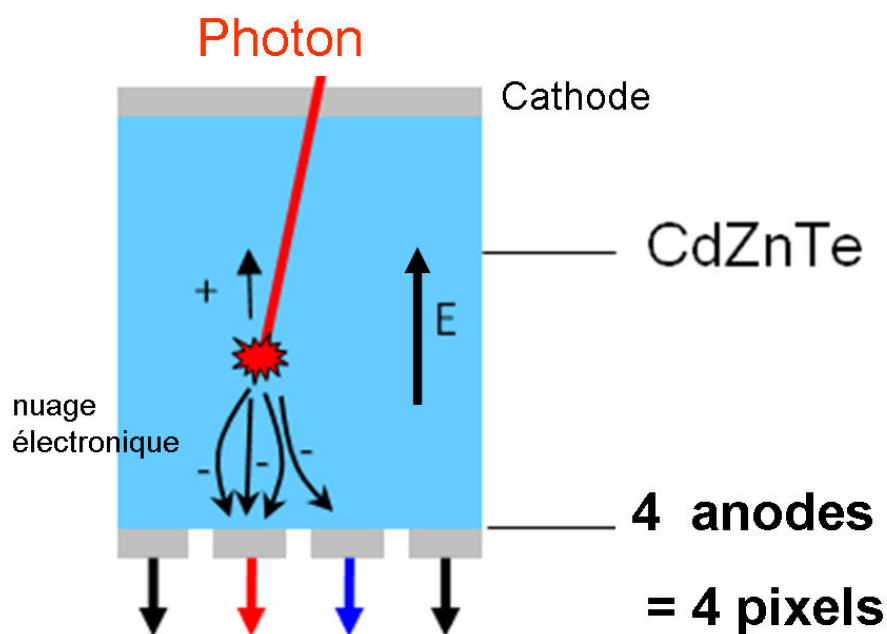


FIGURE V.12 – Les charges créées par l’interaction du photon dans le CdTe vers une anode suivent les lignes de champ.

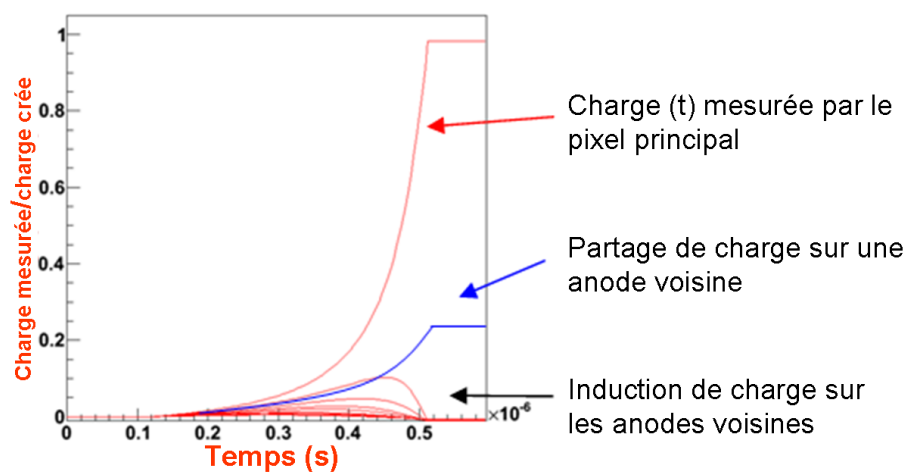


FIGURE V.13 – Evolution temporelle de la mesure de charge pour les 16 anodes (=16 pixels) du détecteur, après ionisation du cristal par un photon près de la cathode. [Simulation effectuée par S. Lux dans le cadre d’une thèse LDET (2009-2012)].

### Partage de charge

Il arrive, de façon non systématique, qu’on puisse mesurer un phénomène de partage de charge (courbe bleu, Fig. V.13). Le partage de charge correspond à un partage du nuage électronique entre plusieurs anodes, sous l’effet de la diffusion thermique et de la répulsion coulombienne.

On mesure alors une charge finale significative sur un ou plusieurs pixels voisins du pixel principal.

### Choix de la mesure

La localisation barycentrique consiste à affecter un poids à chaque pixel, calculé à partir des informations accessibles (charge(t)). Cette valeur doit dépendre de l'éloignement latéral de l'interaction et doit être indépendante des autres paramètres (profondeur d'interaction et énergie du photon).

Différents types de mesures (par exemple, les temps de montée des courants anode ou cathode) sont exploitables. On s'intéresse ici particulièrement à la différence entre le maximum et le minimum de charge au cours du régime transitoire, qu'on appelle excursion et qu'on note  $Q$  [Audran 2010].

La figure V.14 montre l'évolution de la charge induite sur un pixel voisin lors de la migration du nuage électronique vers le pixel principal, à différentes profondeurs d'interaction.

On constate que la valeur finale et le maximum de la charge induite sont dépendants de la profondeur d'interaction. Par contre, la différence  $Q$  entre la valeur maximale et la valeur minimale (flèches bleues) ne dépend pas de ce paramètre. On associe donc cette valeur  $Q_i$  à chaque pixel (Fig. V.15).

L'étape suivante consiste à multiplier ces valeurs par des coefficients de pondération, de manière à associer la valeur de chaque pixel à sa position par rapport au pixel principal. La coordonnée barycentrique  $B_x$  est calculée pour chaque photon selon la formule :

$$B_x = \frac{\sum_{i=1}^{16} Q_i C_{1,i} C_{2,i}}{\sum_{i=1}^{16} Q_i C_{2,i}} \quad (\text{V.5})$$

$C_{1,i}$  = masque de positionnement correspondant à l'indice des pixels selon l'axe x (Fig. V.16).

$C_{2,i}$  = poids appliqué à chaque pixel selon la quantité d'information qu'il contient par rapport à la position selon l'axe x (dépend du pixel touché).

On rappelle que la coordonnée barycentrique  $B_y$  pourrait également être calculée mais elle n'est pas pertinente dans notre cas.

Dans la figure V.16 la valeur de barycentre obtenue (2.0889) est fonction de la localisation de l'interaction sur la ligne. Les valeurs des coefficients sont calculées de sorte que le barycentre pour un pixel d'indice 2 soient mathématiquement bornés entre 1 pour une interaction à l'extrémité gauche d'un pixel, et 3 pour une interaction à son extrémité droite.

On remarque par ailleurs, que la localisation en x d'une interaction n'exploite pas seulement les pixels de la même ligne, mais utilise aussi les valeurs des pixels des lignes voisines.

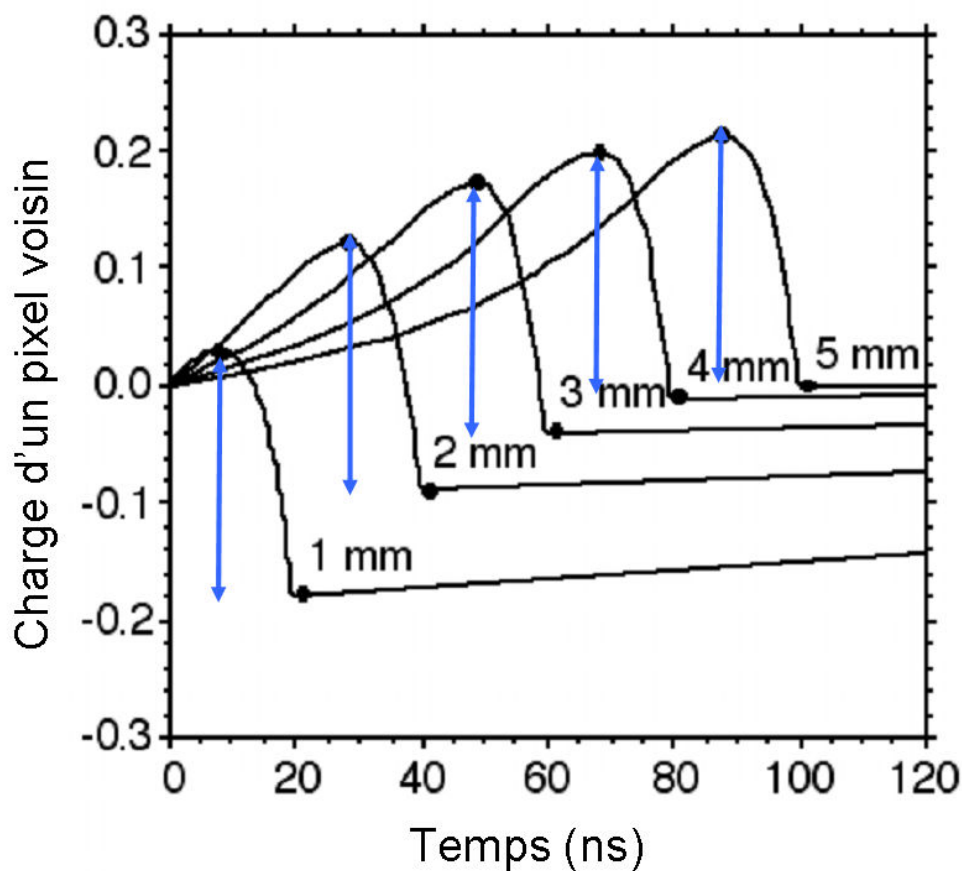


FIGURE V.14 – Evolution temporelle de la charge sur l'un des pixels voisins du pixel principal pour 5 interactions de photons, à la même position 2D, mais à des profondeurs différentes [Warburton 1997]. Les valeurs indiquées correspondent aux distances traversées par le nuage d'électron jusqu'à l'anode.

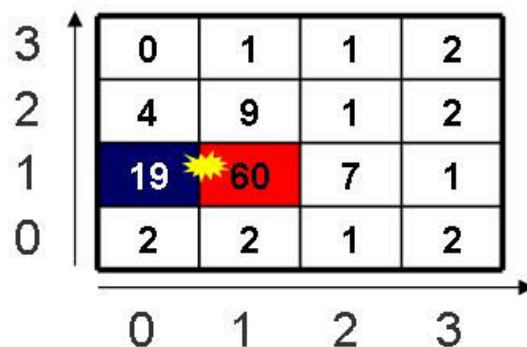


FIGURE V.15 – Exemple de valeurs  $Q=[\text{max}-\text{min}]$  mesurées après une interaction près du pixel [1;1].

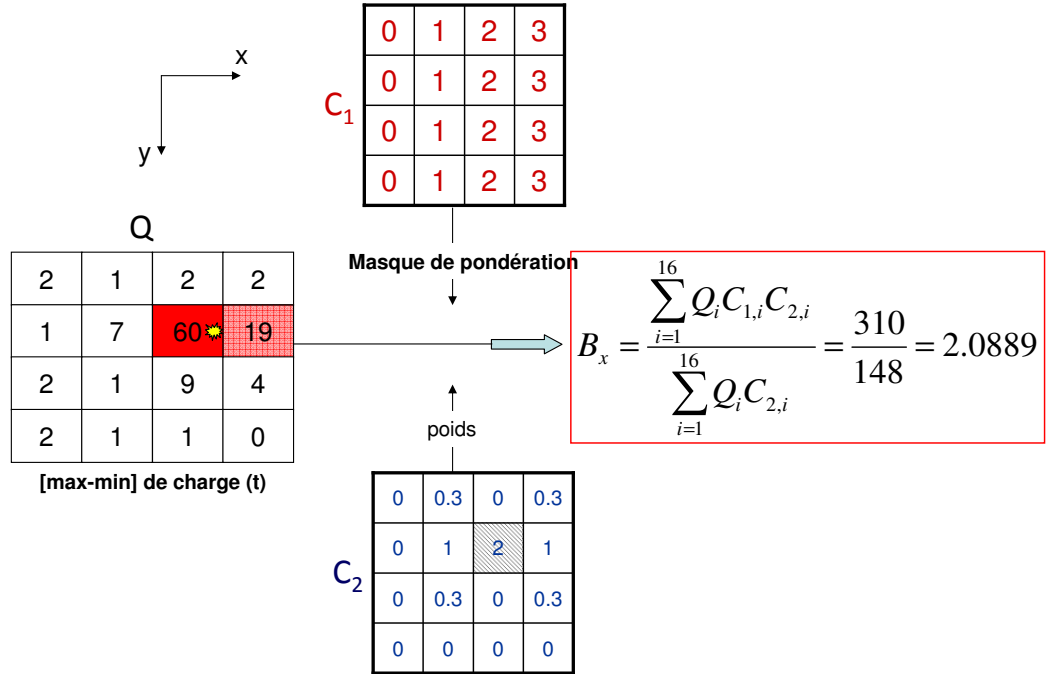


FIGURE V.16 – Exemple de calcul de barycentre  $B_x$  sur un détecteur  $4 \times 4$ .

### V.2.2 Résultats du calibrage sur la sonde Minigami

Cette méthode de localisation barycentrique est testée et quantifiée sur la sonde MINIGAMI par une manip de calibrage adaptée. Pour cela, nous réalisons une irradiation homogène balayant à pas très fins la surface du détecteur selon l'axe des X. Le but de l'acquisition est d'obtenir une répartition homogène des interactions dans le cristal, et de la comparer avec la répartition calculée par localisation barycentrique, de manière à estimer la pertinence de la méthode. Pour cela, l'ensemble source collimateur est mis en face du détecteur et se déplace le long de l'axe x par pas de  $100 \mu m$  (Fig. V.17). Le détecteur est immobile. La collimation fine devant le détecteur nous permet de connaître la vraie valeur de x à une erreur de  $100 \mu m$  près (=ouverture du collimateur).

Les mesures de  $[max - min]$  ( $Q_i$ ) du signal de charge sur chaque anode sont extraites et mises en forme pour chaque photon détecté. On calcule le barycentre  $B_x$  selon la méthode décrite par l'équation (V.5).

Les barycentres sont ensuite classés dans des histogrammes 2D. La finesse du maillage des histogrammes est adaptée à la statistique de comptage obtenue : à l'issue de l'acquisition, on dispose d'une série de barycentres  $B_x$  pour chaque position de l'ensemble source-collimateur sur la ligne. Ces données sont organisées dans un histogramme 2D (Fig. V.18). Cet histogramme sera par la suite utilisé comme une "courbe" d'étalonnage.

On remarque que les barycentres bruts calculés n'atteignent en pratique jamais les

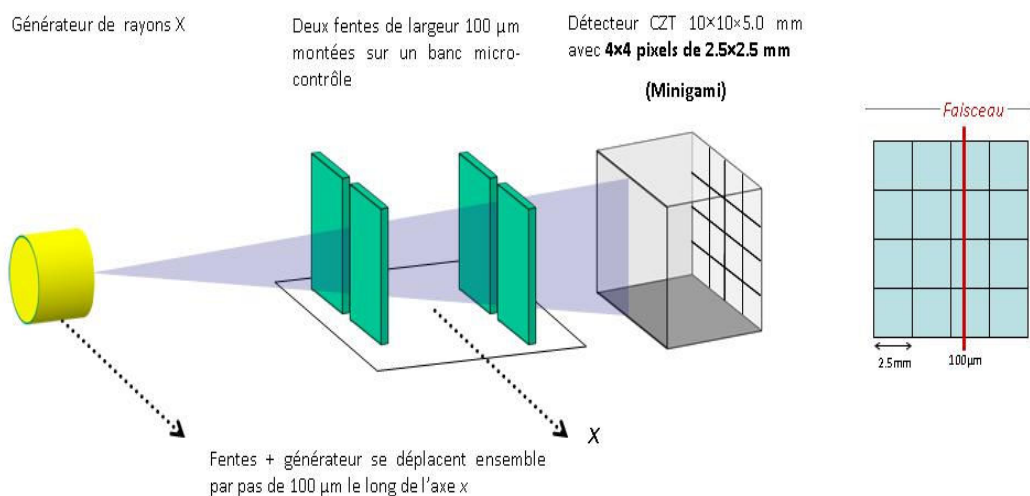


FIGURE V.17 – Irradiation homogène en balayant le détecteur selon l'axe des X : Fentes + générateur se déplacent ensemble par pas de  $100\ \mu\text{m}$  le long de l'axe x.

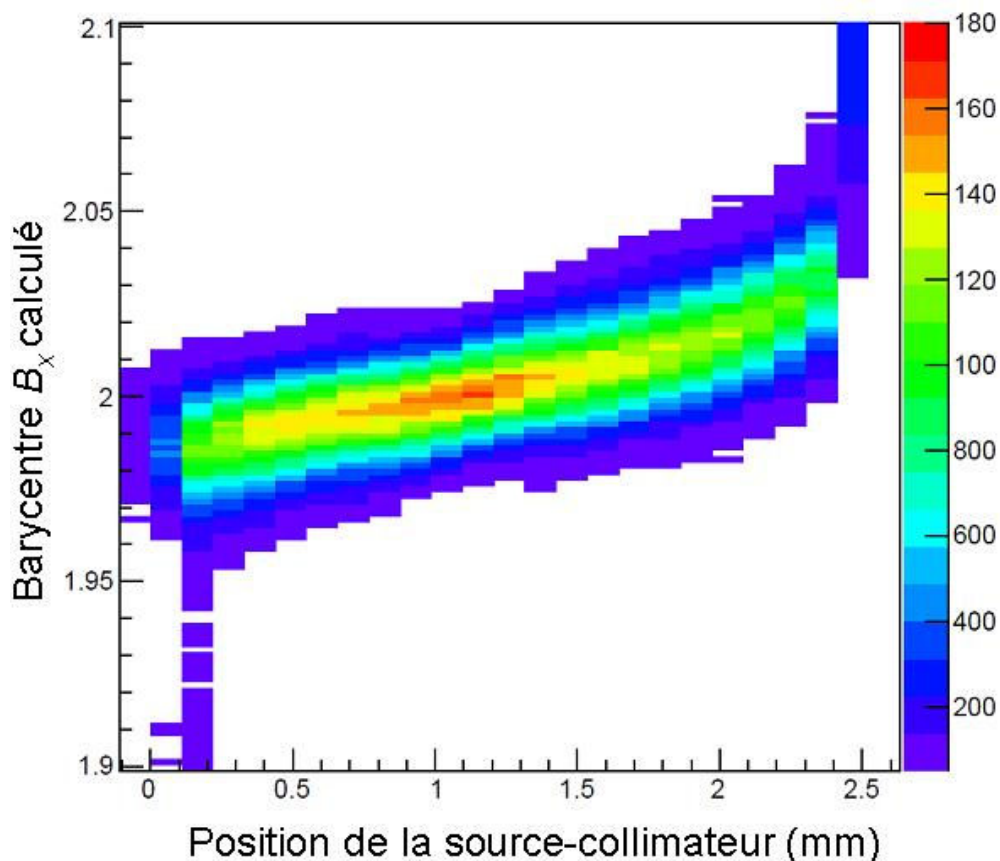


FIGURE V.18 – Relation entre la distribution des barycentres calculés et la position de l'ensemble source-collimateur pour le pixel [2;2] pour une énergie de 80 keV.

bords des pixels. Ceci s'explique par le fait que le calcul du barycentre donne 1 ou 3 dans le cas où autant de charges sont mesurées sur le pixel principal que sur son voisin. Or, la canalisation des charges par les lignes de champ réservent ce phénomène au cas peu probable où le nuage électronique serait créé exactement sur le plan médian de deux pixels. La courbe d'étalonnage associe donc l'équivalent d'une position de source avec une certaine précision à chaque barycentre. Cette précision est homogène à la probabilité de présence de la source à cette position. On choisit de définir ici la précision comme la largeur à mi-hauteur de la courbe de probabilité de présence de la source, pour le barycentre considéré (Fig. V.19).

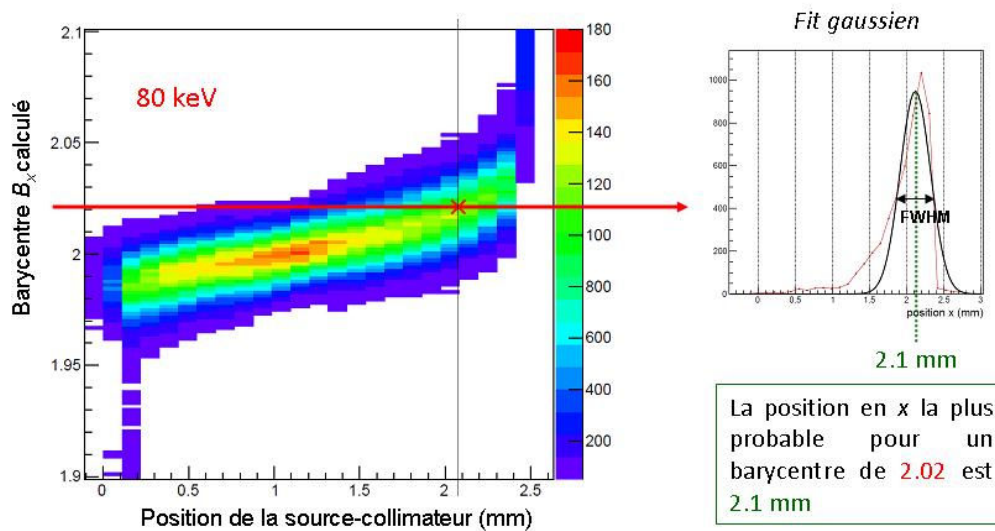


FIGURE V.19 – Les barycentres sont associés à une position latérale avec une certaine précision.

On désigne par la largeur à mi-hauteur (Fig. V.19), la résolution spatiale accessible par la méthode de localisation barycentrique.

Les résultats obtenus pour le pixel [2 ;2] à 80 keV sont une résolution de 0.4 mm sur le bord gauche, de 1.2 mm au centre du pixel, et de 0.2 mm sur le bord droit du pixel. Le phénomène d'induction de charge sur les pixels voisins, sur lequel est basé le calcul, est plus important si l'interaction a lieu au bord du pixel principal que si elle a lieu au centre (charges plus éloignées des autres pixels), ce qui explique la dégradation de la résolution au centre. La différence entre les deux bords gauche et droit du pixel peut être expliquée par l'effet du collage qui existe entre les colonnes 1 et 2 de notre détecteur. En effet, notre détecteur CdTe est en fait constitué de 2 blocs de CdTe collés côté à côté, ce qui limite le phénomène de partage de charge entre les deux blocs.

Ce calcul est appliqué pour les différentes gammes en énergie du spectre incident (voir Fig. V.20).

Les courbes présentées dans la partie A de la figure V.21 sont utilisées ultérieurement afin de calculer la position latérale d'un photon arrivant sur le détecteur. Les courbes présentées dans la partie B sont utilisées pour caractériser la méthode en simulation.

### V.2.3 Interprétation des résultats et améliorations possibles

On a vu qu'aux bords du pixel le phénomène d'induction de charge sur les pixels voisins sur lequel est basé le calcul est plus important et par conséquent la résolution spatiale

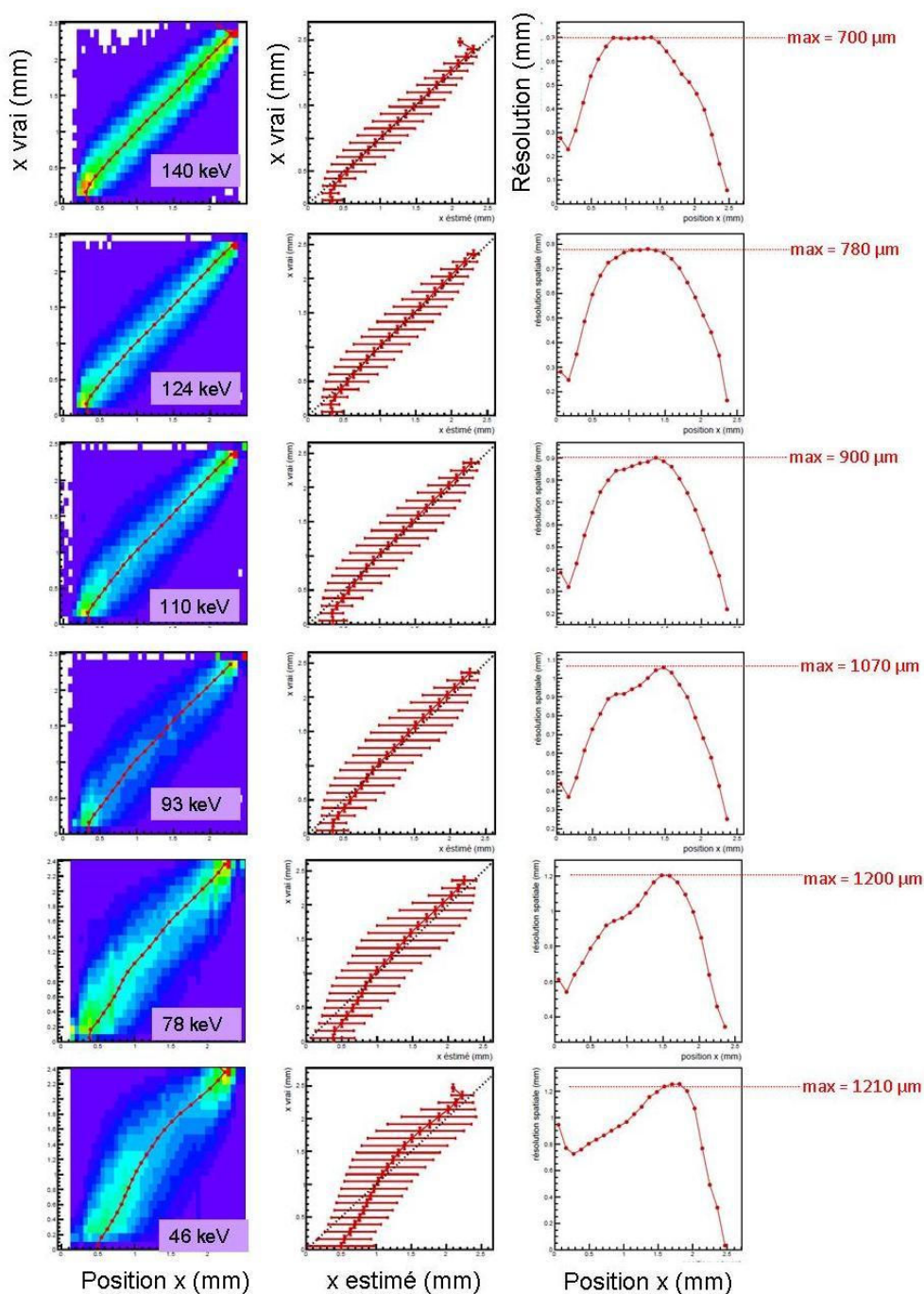


FIGURE V.20 – Résultats du calibrage sur la sonde Minigami pour le pixel [2 ;2] à différentes énergies.

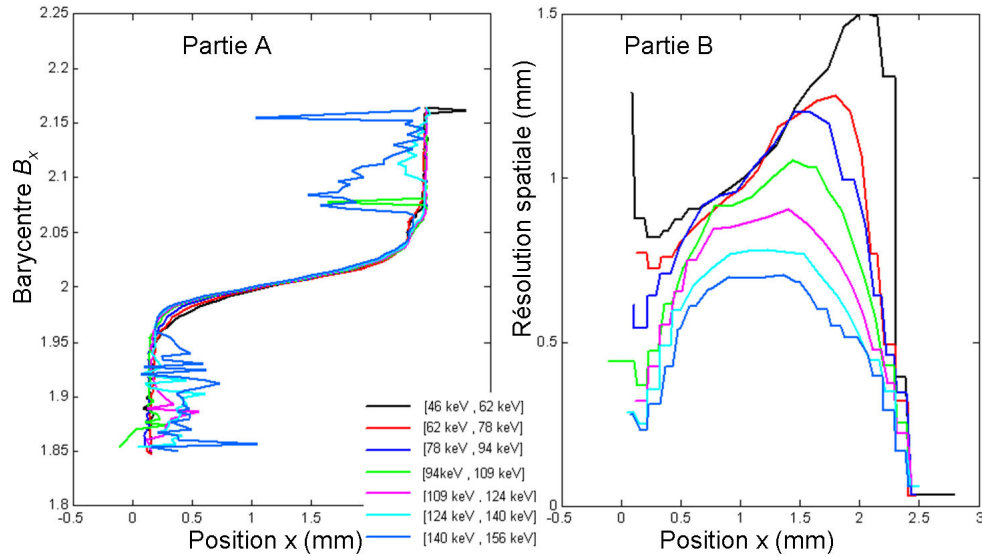


FIGURE V.21 – Résultats du calibrage sur la sonde Minigami pour le pixel [2 ;2] pour toutes les énergies (a) Valeur de  $B_x$  en fonction de  $x$ . (b) Résolution spatiale de la méthode en fonction de  $x$ .

est meilleure. La perte en résolution du côté droit est quant à elle expliquée par l'effet du collage (propre à notre sonde) entre les deux blocs de CdTe.

De plus, les résultats des figures V.20 et V.21 montrent qu'en passant de basse énergie à haute énergie, la résolution spatiale s'améliore car la charge mesurée pour chaque interaction est proportionnelle à l'énergie.

L'utilisation d'un faisceau non idéalement collimaté peut expliquer certains étalements observés.

Jusqu'à présent, le pire des cas est obtenu pour une énergie inférieure à 60 keV au centre du pixel la résolution spatiale est alors de 1.2 mm. On peut dans ce cas espérer une sur-pixellisation d'ordre 2 (taille de pixel 2.5 mm).

Dans notre laboratoire, le travail est en cours pour améliorer cette méthode de localisation barycentrique spatiale par Silvère Lux [Lux 2011] dans le cadre de sa thèse LDET (2009-2012). Les derniers résultats aboutissent à une résolution spatiale de l'ordre de 0.3 mm à 122 keV. Théoriquement et à basse énergie ( $< 160$  keV), la résolution spatiale obtenue par la méthode est inversement proportionnelle à l'énergie. Par conséquent, dans le pire des cas (au centre du pixel pour  $E < 60$  keV), on pourra espérer une résolution spatiale de l'ordre de 0.6 mm. On pourrait alors procéder à une sur-pixellisation au minimum d'ordre 4.



## V.3 Application de la localisation barycentrique à un système EDXRD pour améliorer ses performances

### V.3.1 Amélioration de la résolution en énergie

Le but de ce paragraphe est de montrer l'efficacité de la méthode de localisation barycentrique en terme de gain en résolution énergétique des pics dans le spectre EDXRD. Tout d'abord, on commence par la simulation afin de caractériser la méthode de la localisation barycentrique en diffraction en simulant une configuration simple (sans collimateur). On passe ensuite à des résultats expérimentaux pour tout d'abord valider la simulation de la configuration simple, puis pour tester la méthode en condition réelle.

#### V.3.1.1 Etude par simulation

L'étude par une étude en simulation permet de caractériser la méthode en tenant compte de l'incertitude mesurée par calibrage (voir figure V.21), mais également de tester différentes configurations avant de les réaliser expérimentalement.

##### Simulation des spectres mesurés sur chaque sous pixel

Pour prendre en compte l'incertitude mesurée par calibrage de notre sonde, la simulation suit ces étapes (Fig. V.22) :

1. On sur-pixelise le pixel en 25 sous-pixels dans SinFullScat.
2. On simule les spectres EDXRD mesurés par chaque sous pixel et on les représente dans un spectre 2D (ou bi-paramétrique ou bipar), avec comme axe des abscisses l'énergie et comme axe des ordonnées l'indice du sous pixel (ou position latérale).
3. On effectue une convolution suivant l'axe " position latérale " dans le spectre bipar correspondant à la résolution associée à la localisation barycentrique. Cette convolution n'est pas uniforme, elle dépend de la position et de l'énergie (Fig. V.23).

Ces étapes sont appliquées sur tous les sous-pixels. Le spectre bipar total correspond à la somme de tous les spectres 2D obtenus pour chaque sous-pixel.

La simulation a été réalisée avec une plaque d'aluminium d'épaisseur 12 mm. La configuration géométrique correspondante est celle présentée sur la figure V.24. L'absence de collimation secondaire est compensée par le fait que l'objet inspecté est fin.

Chaque sous-pixel dans le pixel voit une distribution d'angles de diffraction différente des autres (voir figure V.25). La figure V.26 montre les spectres bipars calculés par SinFullScat avant (à gauche) et après prise en compte de l'incertitude de la méthode de sur-pixelisation. Dans ces spectres bipars, l'ordonnée correspond à la position des sous pixel (en mm) et l'abscisse à l'énergie détectée (en keV).

##### Traitement du spectre bi-paramétrique simulé

Pour corriger le spectre bi-paramétrique (Fig. V.27) de l'effet de position latérale, on applique des homothéties de l'axe des énergies en se référant sur le pic principal (recherche

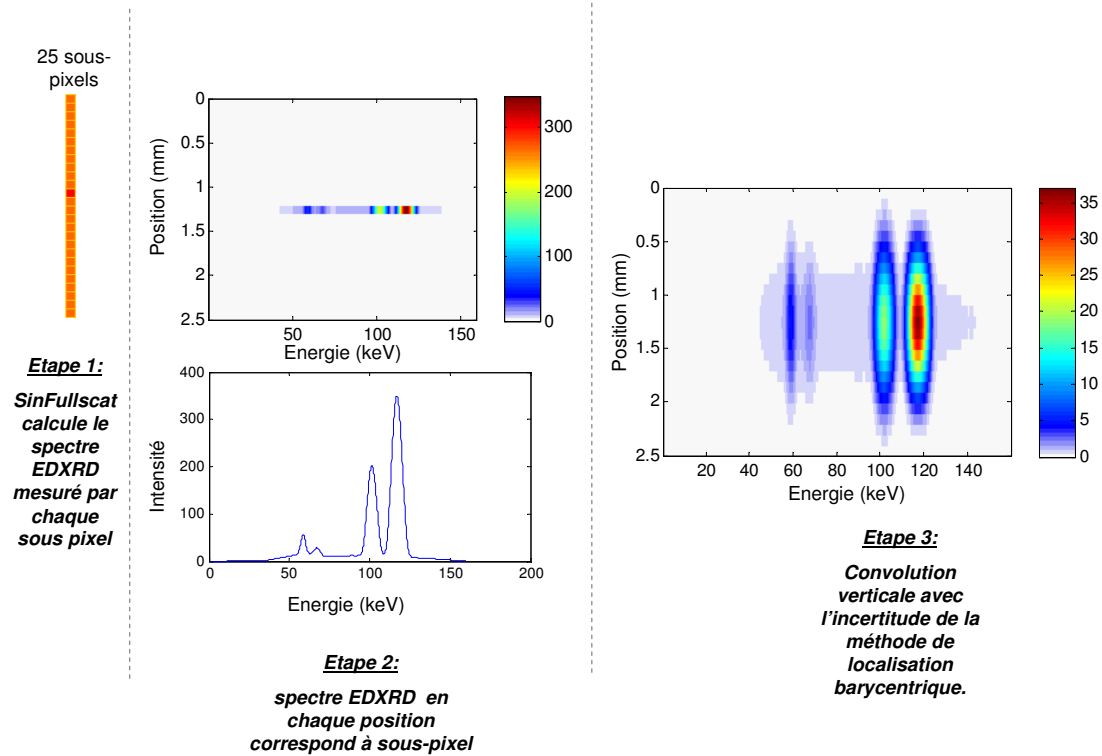


FIGURE V.22 – Caractérisation de la méthode par simulation en effectuant les étapes mentionnées ci-dessus pour chaque sous pixel. Le spectre 2D final sera la somme de tous les spectres 2D calculés pour chaque sous-pixel.

du maximum par fit gaussien) des spectres de chaque sous-pixel. Le recalage se fait ensuite par rapport au sous-pixel central (voir Figure V.27). Le changement de variable ( $E \Rightarrow x$ ) et la sommation des spectres permet aussi de corriger le spectre bi-paramétrique, ce changement de variable nécessite de connaître l'angle de diffraction correspondant à chaque position latérale du détecteur (ou chaque sous pixel). Cet angle peut être calculé par simulation ou par calibrage.

Les chiffres suivants illustrent l'amélioration de la résolution du pic principal des spectres EDXRD de l'aluminium grâce à la correction de l'effet de position latérale (Fig. V.28) :

- Dans le cas d'une sur-pixellisation parfaite (sans considération de l'incertitude de la localisation barycentrique), la correction de la position latérale permet de passer d'une résolution de 8.09% (sans correction) à 6.2% à 120 keV.
- En prenant en compte l'incertitude de la méthode de localisation barycentrique, on passe d'une résolution de 8.09% à 6.5% à 120 keV.

Cette première configuration simulée (Fig. V.27) a été choisie parce qu'elle est facile à mettre en œuvre expérimentalement. L'expérience correspondante a donc été réalisée ensuite pour confirmer les résultats obtenus par simulation.

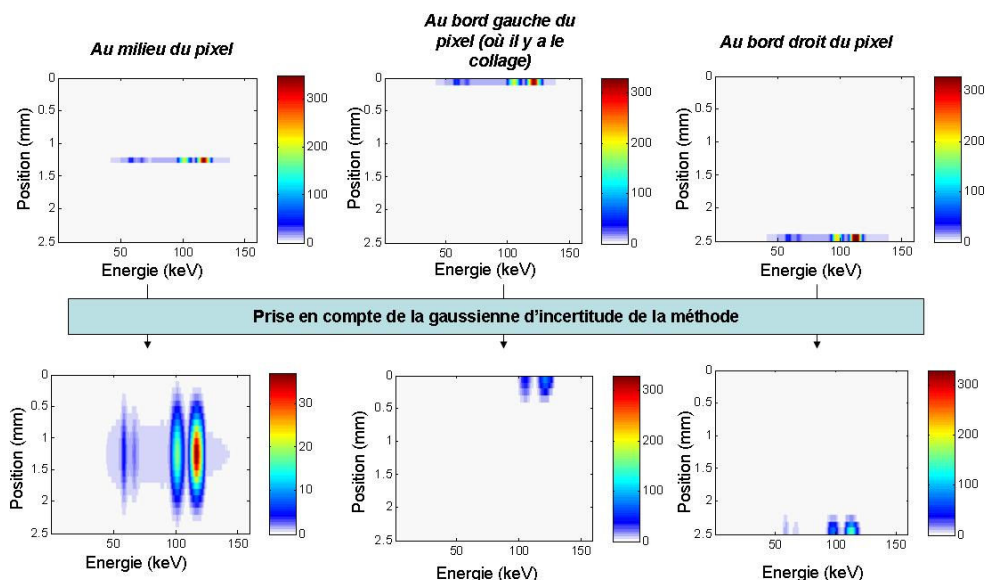


FIGURE V.23 – Prise en compte de l’incertitude de la méthode localisation barycentrique : l’incertitude est plus importante au milieu qu’aux bords du pixel.

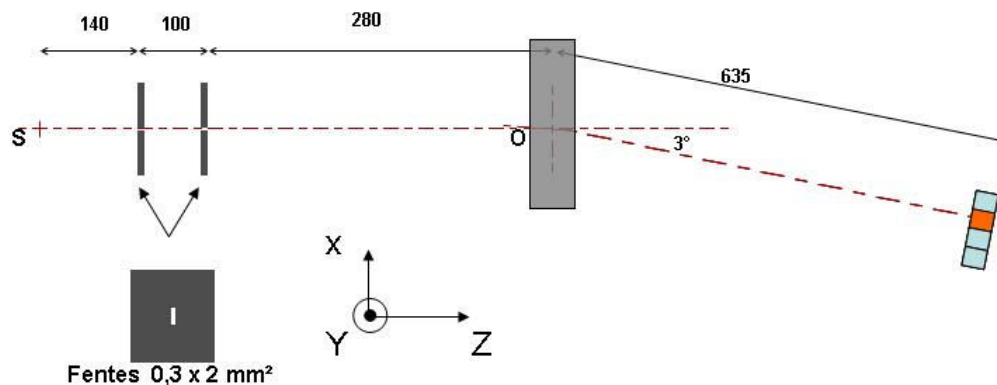


FIGURE V.24 – Tous les paramètres affichés sont en mm. La source S a un foyer de diamètre 1 mm et l’objet testé est une plaque de 12 mm d’aluminium.

### V.3.1.2 Etude expérimentale

Le protocole expérimental pour réaliser la localisation barycentrique se décrit de la façon suivante :

- on récupère un fichier de format binaire obtenu par un traitement proche détecteur. Ce fichier nous permet de récupérer les 16 excursions  $Q_i$  mesurées [max - min du signal de charge] par tous les pixels et pour chaque événement (interaction d’un photon dans le détecteur).
- on identifie le pixel principal ayant reçu la majorité des charges, ainsi que les coefficients  $C_2$  et la courbe de calibration correspondants. (Fig. V.29).
- on calcule le barycentre  $B_x$  via l’équation V.5 et l’énergie E en utilisant un spectre d’étalonnage qui relie la valeur Q (mesurée par le pixel principal) à l’énergie du photon

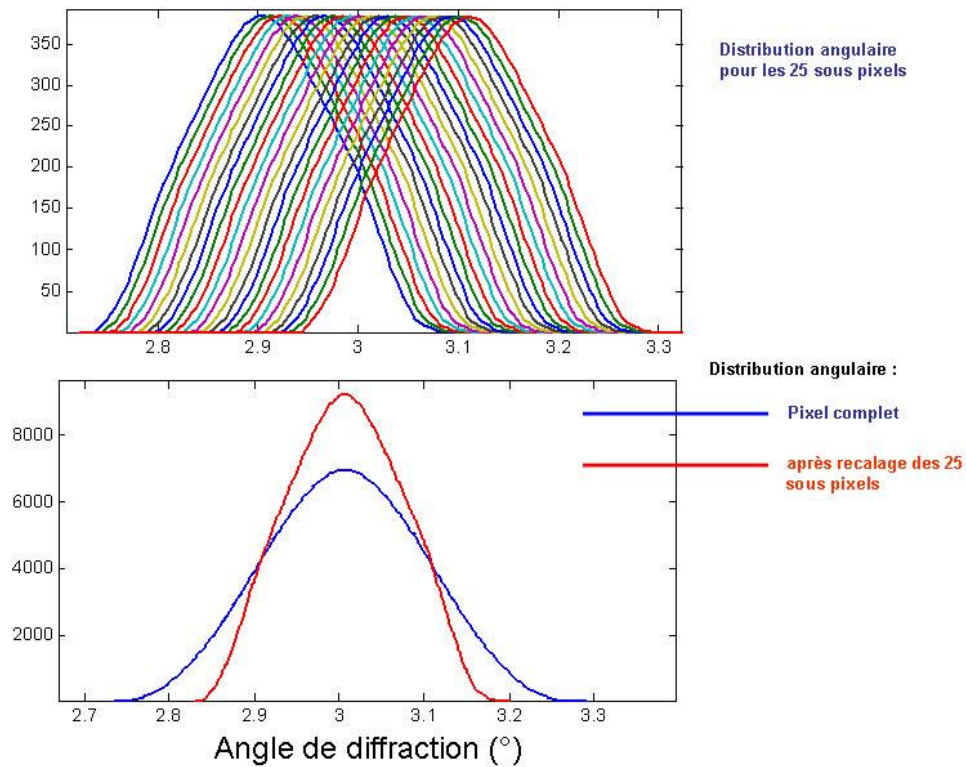


FIGURE V.25 – Distribution angulaire pour chacun des 25 sous-pixels et gain espéré grâce à la sur-pixellisation.

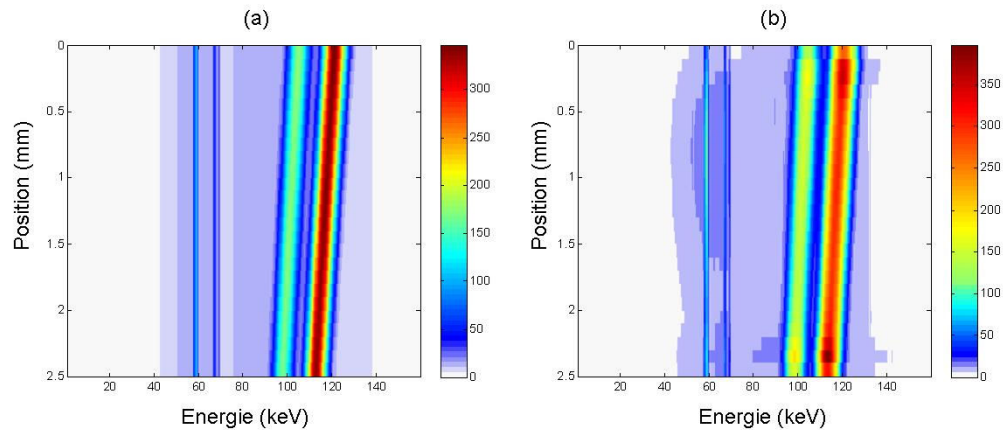


FIGURE V.26 – Spectres bi-paramétriques en position latérale du détecteur calculé par SinFullscat : avant (a) et après (b) la prise en compte de l'incertitude de la méthode de localisation barycentrique.

déteçté. Pour cela on utilise le spectre d'émission du  $^{57}\text{Co}$  (Fig. V.30).

- Une fois  $E$  et  $B_x$  obtenus, on calcule la position latérale d grâce à la courbe de calibration (Fig. V.31) correspondant à l'énergie calculée précédemment.

Pour valider la méthode, deux configurations ont été mises en œuvre.

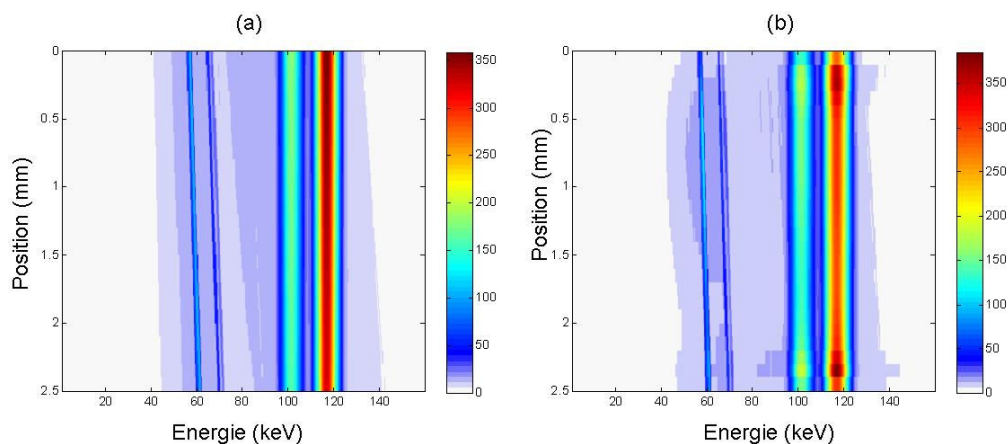


FIGURE V.27 – Illustration de la correction de l’effet de position latérale sur le spectre bi-paramétrique : sans (=sur-pixellisation parfaite) (a) et avec prise en compte de l’incertitude de la méthode de localisation barycentrique (b).

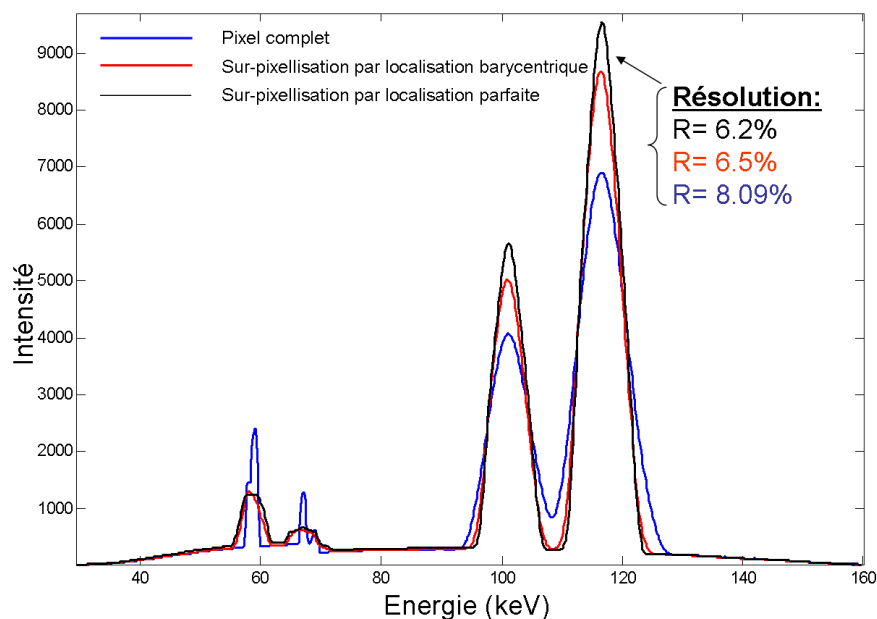


FIGURE V.28 – Spectres en énergie corrigés correspondant à la simulation du cas de la figure V.24.

#### Configuration 1 : sans collimation secondaire

La première configuration correspond à celle simulée au paragraphe précédent (Fig. V.24). L’objet inspecté est une plaque d’aluminium d’épaisseur 12 mm pour un temps d’acquisition de 10 min.

Expérimentalement, avant d’effectuer la correction de la position latérale, il est néces-

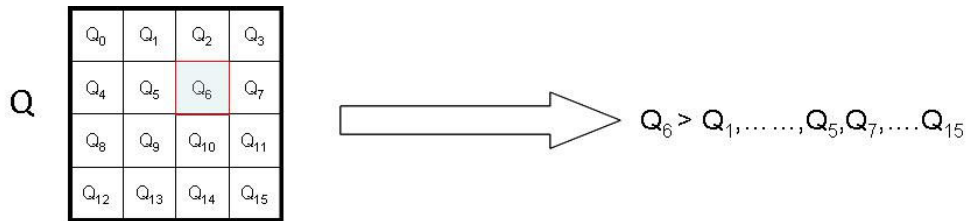


FIGURE V.29 – le pixel numéro 6 est le pixel principal.

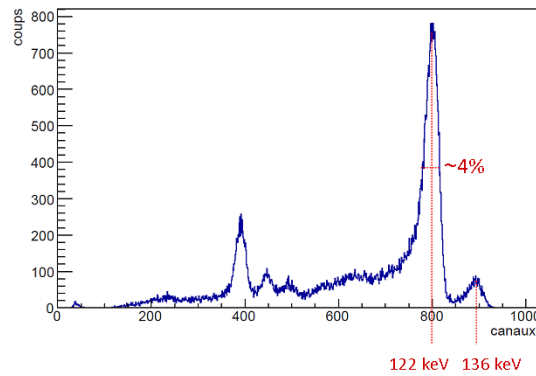


FIGURE V.30 – Spectre d'étalonnage d'une source  $^{57}\text{Co}$ .

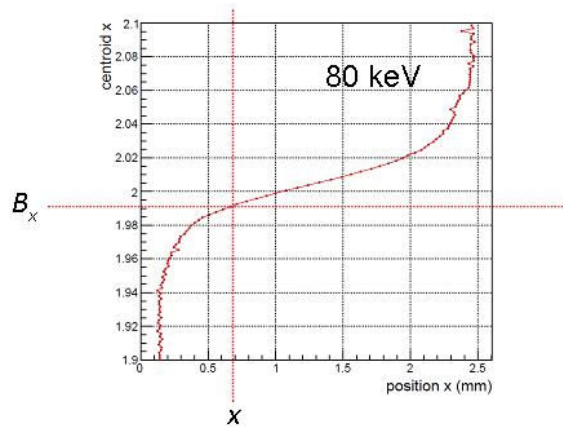


FIGURE V.31 – Calcul de la position d grâce à la courbe de calibration pour  $E = 80 \text{ keV}$ .

saire pour améliorer la résolution en énergie intrinsèque du détecteur de corriger sur chaque spectre mesuré pour un sous pixel l'effet de profondeur d'interaction (voir paragraphe I.3.2.4).

Les figures V.32 et V.33 présentent la correction bi-paramétrique respectivement pour l'effet de profondeur d'interaction et l'effet de position latérale. Le choix du nombre de sous-pixels virtuels dépend à la fois de la méthode de correction utilisée et de l'incertitude de la localisation barycentrique. Notre méthode de correction consiste à identifier par fit gaussien les pics principaux pour chaque sous-pixel et à les recaler. Pour cela, cette méthode nécessite de disposer d'un nombre suffisant de photons par sous spectre. Pour cette étude, la sur-pixellisation en 8 sous-pixels est apparue convenable.

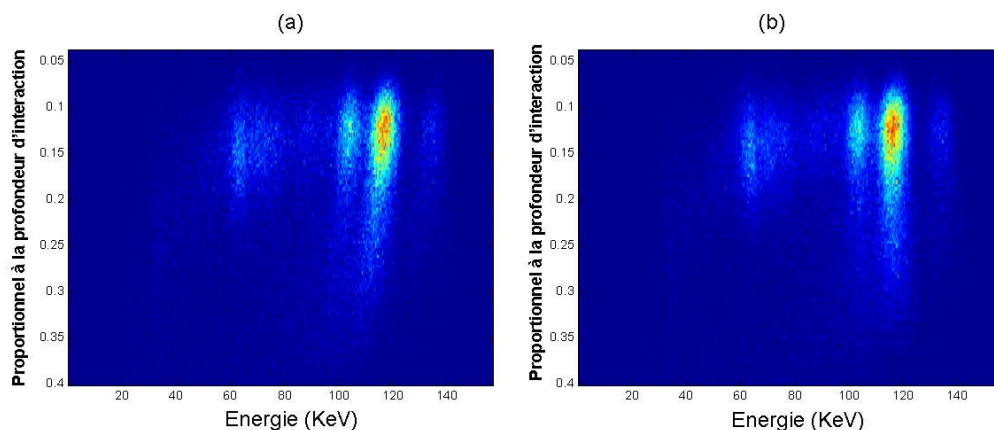


FIGURE V.32 – Illustration de la correction bi-paramétrique de la profondeur d’interaction sur un spectre de diffraction de l’aluminium à  $3^\circ$  : spectre bi-paramétrique brut (a) et corrigé (b).

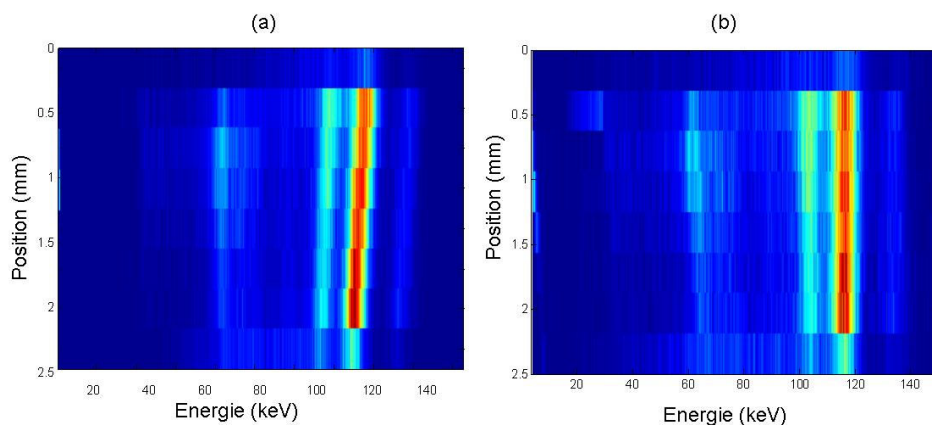


FIGURE V.33 – Illustration de la correction bi-paramétrique de la position latérale sur un spectre de diffraction de l’aluminium à  $3^\circ$  : spectre bi-paramétrique brut (a) et corrigé (b).

Au final, les spectres en énergie présentés dans la figure V.34 sont obtenus en sommant les spectres de tous les sous-pixels (projection des spectres bi-paramétriques sur l’axe des énergies) : le spectre bleu est le spectre en énergie du pixel entier (sans aucune correction), le spectre noir celui obtenu après correction de l’effet de profondeur d’interaction et le spectre rouge est celui obtenu après correction de la position latérale via la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique. En se référant au pic principal qui se trouve à 116 keV, la résolution en énergie passe de 8.33% sur le spectre brut à 6.2% grâce aux corrections. Ces chiffres sont cohérents avec ceux obtenus par simulation sur la même configuration.

La même expérience a été réalisée avec une plaque de 4 mm de cuivre. Encore une fois en se référant au pic principal qui se trouve à 113 keV (Fig. V.35), on passe d’une résolution en énergie de 7.4% sur le spectre brut à 5.9% après application des corrections.

Pour conclure, Cette première étude expérimentale confirme bien l’amélioration pos-

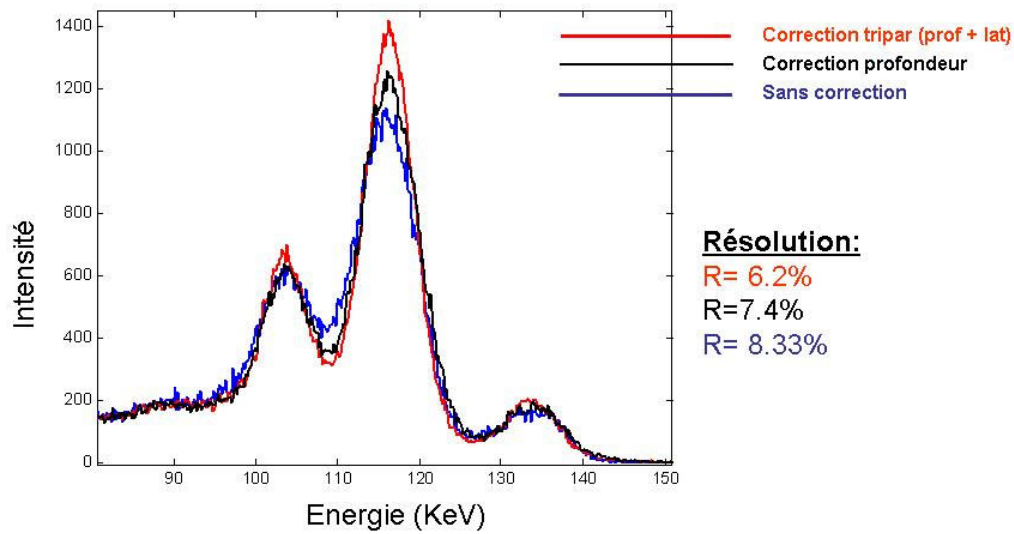


FIGURE V.34 – Spectres mesurées en énergie pour de l'aluminium à 3°.

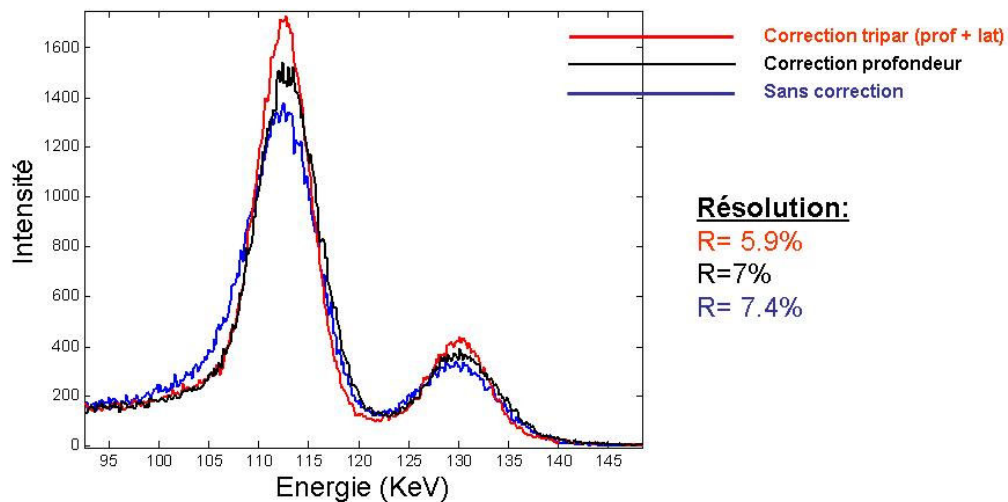


FIGURE V.35 – Spectres mesurées en énergie pour cuivre à 3°.

sible de la résolution angulaire et ainsi de la résolution en énergie des pics de diffraction grâce à la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique.

**Configuration 2 : avec collimation secondaire**

Pour être plus réaliste, une configuration avec collimation secondaire (Fig. V.36) est ensuite mise en œuvre. Celle-ci combine un collimateur à une fente (pinhole) de hauteur 10 mm, d'épaisseur 2 mm et de largeur 0.05 mm à un pixel de largeur 2.5 mm. La distance pixel principal-collimateur est de 360 mm. Les objets inspectés sont successivement une plaque de 20 mm de cuivre et un empilement de 30 mm de plaques d'aluminium espacées par Nylon avec un temps d'acquisition de 10 min (Fig. V.36).



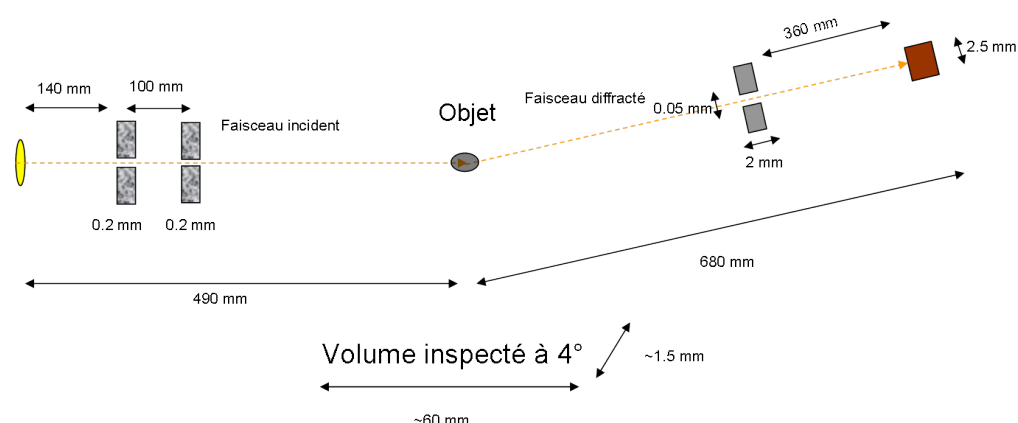


FIGURE V.36 – Tous les paramètres affichés sont en mm. La source S a un diamètre de 1 mm. Les objets testés sont une plaque de 20 mm en cuivre et un empilement de 30 mm de plaques d'aluminium espacées par Nylon.

Les distributions angulaires présentées dans les figures V.37 et V.38 permettent de constater le gain considérable en résolution angulaire (facteur supérieur à 2) que l'on peut espérer grâce à la méthode de sur-pixellisation mécanique (parfait) pour les objets testés dans cette étude expérimentale.

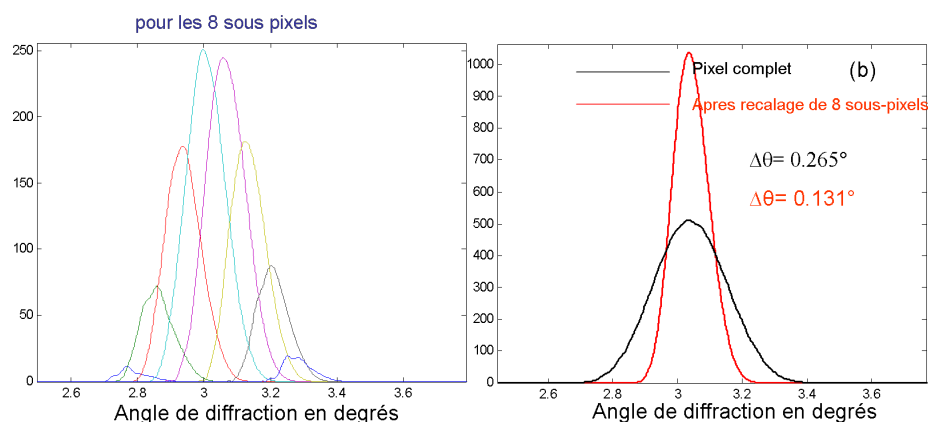


FIGURE V.37 – Distribution angulaire vue par les sous-pixels à travers le collimateur secondaire pour une plaque d'épaisseur 20 mm.

Les résultats finaux pour chacune des 2 configurations sont présentés sur les figures V.39 et V.40, avec les spectres bi-paramétriques avant (a) et après correction (b) ainsi que le spectre en énergie final obtenu après recombinaison des spectres des sous-pixels (c).

Dans le cas de la plaque de 20 mm de cuivre et en se référant au pic principal qui se trouve à 113 keV (Fig. V.39), la largeur à mi-hauteur passe de 8.5 keV sans correction à 6.67 keV grâce aux corrections à la fois de profondeur et de position latérale d'interaction. Autrement dit, on passe de 8.34% à 5.9% en résolution énergétique en utilisant la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique.

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe V.2.3, les résultats de calibrage de la mé-

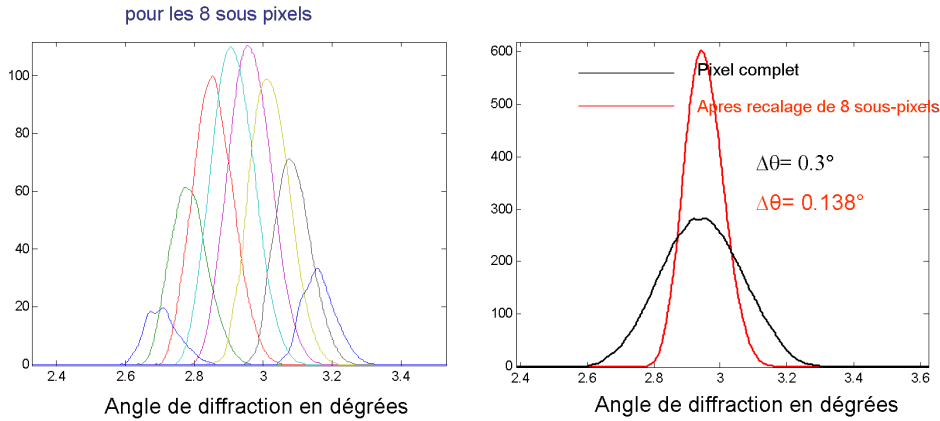


FIGURE V.38 – Distribution angulaire vue par les sous-pixels à travers le collimateur secondaire pour une plaque d'épaisseur 30 mm.

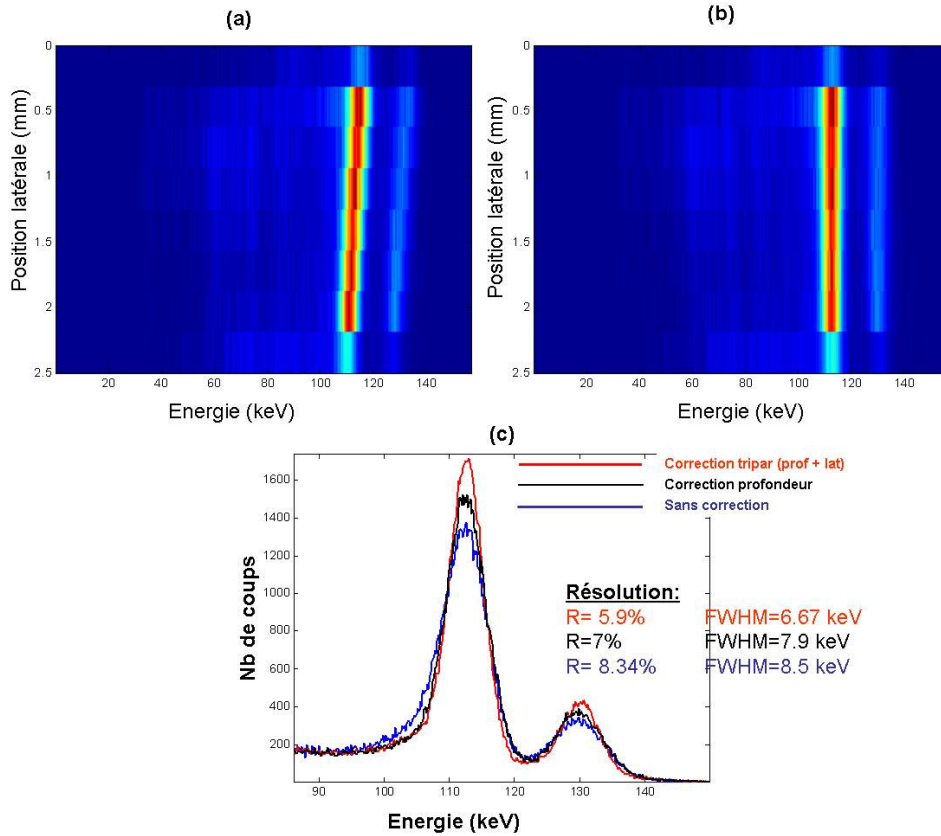


FIGURE V.39 – Illustration de la correction bi-paramétrique de la position latérale sur un spectre de diffraction d'une plaque de cuivre de 20 mm d'épaisseur à  $3^\circ$  : spectre bi-paramétrique brut (a), corrigé (b), et spectres en énergie après recombinaison (c)

thode de localisation barycentrique montraient une incertitude non négligeable. Malgré cela, le gain en résolution énergétique reste important, favorisant ainsi l'étape d'identification de matériaux.

Dans la figure V.37, une sur-pixellisation parfaite de notre pixel en 8 sous-pixels montre qu'on peut atteindre une résolution angulaire de  $\Delta\theta = 0.131^\circ$ , soit une largeur à mi-hauteur de notre pic (à 113 keV) de :

$$FWHM = \sqrt{(\Delta E_{ang})^2 + (\Delta E_{det})^2} \quad (V.6)$$

$$= \sqrt{\left(\frac{E}{2} \cot\left(\frac{\theta}{2}\right) \Delta\theta\right)^2 + (\Delta E_{det})^2} \quad (V.7)$$

$$= \sqrt{\left(\frac{113}{2} \cot\left(\frac{3}{2}\right) 0.131 \cdot \pi/180\right)^2 + (3.5)^2} = 6keV \quad (V.8)$$

La différence entre la valeur théorique et la valeur expérimentale reste limitée et est sensiblement due à l'incertitude de la méthode de localisation barycentrique.

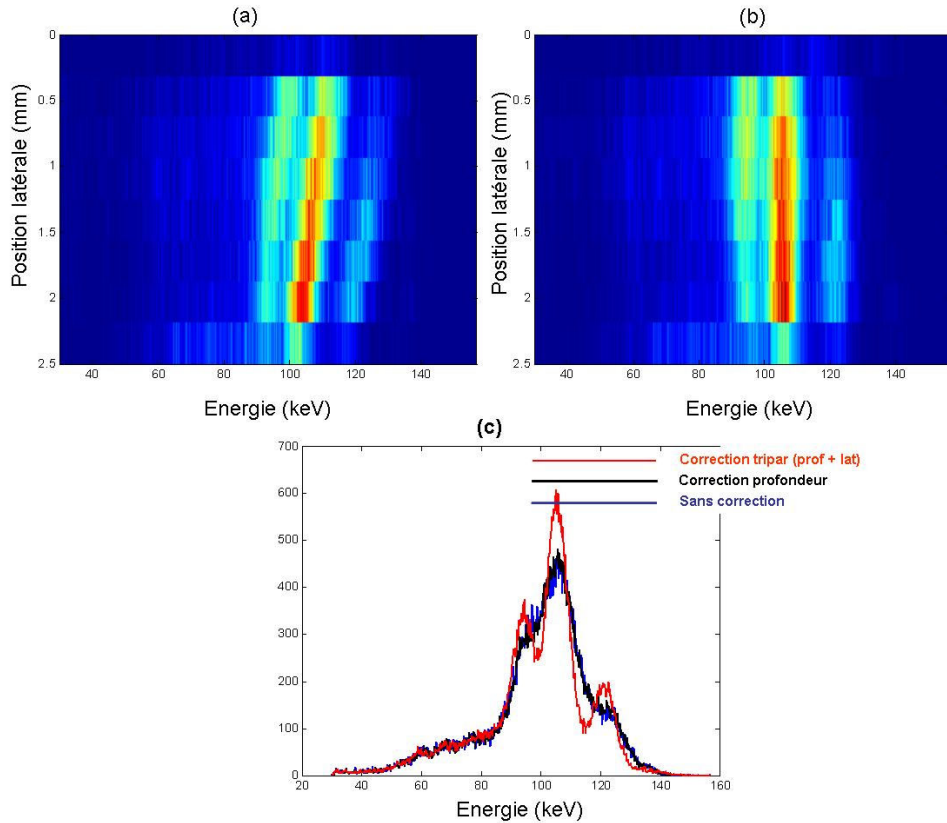


FIGURE V.40 – Illustration de la correction bi-paramétrique de la position latérale sur un spectre de diffraction d'un empilement de 30 mm de plaques d'aluminium et de nylon à  $2.9^\circ$  : spectre bi-paramétrique brut (a), corrigé (b), et spectres en énergie après recombinaison (c)

Dans le cas où l'objet examiné est constitué de l'empilement de 30 mm de plaques d'aluminium et de nylon (Fig. V.41), le gain obtenu en résolution en énergie du spectre

final est encore plus probant (Fig. V.40). En effet, la méthode de sur-pixellisation permet de révéler de nouveaux pics puisque on observe à présent 3 pics contre 1 seulement sur le spectre obtenu sans sur-pixellisation. Il convient de noter que le premier pic ( $\approx 90$  keV) ne correspond pas à la structure cristalline de l'aluminium. Comme on a vu dans l'article, ce pic peut s'expliquer par la présence d'impuretés dans les plaques d'aluminium. Il est ainsi clair que la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique peut générer de nouvelles informations nécessaires à l'identification de matériaux à partir de spectres EDXRD.

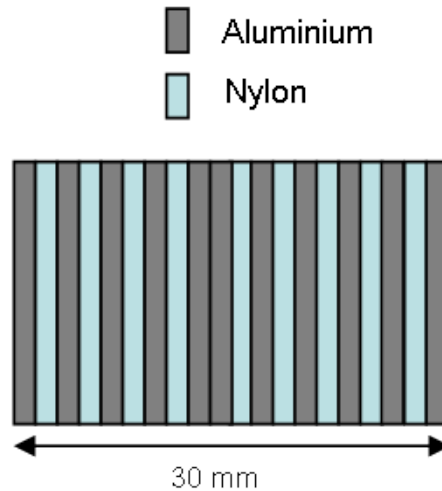


FIGURE V.41 – Cas d'un empilement de 30 mm de plaques d'aluminium et de nylon.

### V.3.2 Amélioration de la sensibilité

Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que la méthode de sur-pixellisation permet d'améliorer la résolution dans le spectre EDXRD. Pour cela, l'utilisation d'un collimateur mono fente décalé du détecteur est préférable. L'inconvénient de cette configuration a été soulevé dans le chapitre IV.3.3 : on observe alors une réduction significative de la sensibilité (nombre de photons détectés) qui nécessiterait aujourd'hui d'allonger le temps d'acquisition.

Afin d'augmenter la sensibilité, il est possible d'augmenter les ouvertures du collimateur secondaire (côté détecteur) ou primaire (côté source). Cependant, cette augmentation s'accompagne :

- d'une perte en résolution angulaire et par conséquent en résolution énergétique des pics.
- d'un agrandissement trop important du volume inspecté. Par conséquent, les spectres détectés pourraient contenir des pics de diffraction issus de plusieurs matériaux détectés dans le grand volume inspecté. Le mélange des spectres rend plus difficile la distinction des différents matériaux.

L'idée présentée dans ce paragraphe s'inscrit plutôt dans le sens 2 de la figure V.1 : à résolution égale, augmenter la sensibilité détectée pour réduire le rapport signal sur

bruit du spectre de diffraction mesuré. L'objectif final reste de mieux séparer les pics de diffraction. Précisément, il s'agit d'augmenter la sensibilité détectée et de compenser la perte en résolution grâce à la sur-pixellisation. La séparation des matériaux dans les spectres EDXRD est abordée dans le paragraphe suivant.

Nous revenons ici à une collimation classique, de type bifente et proposons d'élargir leur espacement pour accepter plus de photons et ainsi améliorer la sensibilité. Le but de ce paragraphe est donc de montrer l'efficacité de la méthode de sur-pixellisation (ici par localisation barycentrique) pour gagner en sensibilité sans perte en résolution énergétique des pics dans le spectre EDXRD. L'étude a été réalisée par simulation à l'aide de SinFullscat et selon l'algorithme déjà décrit au paragraphe précédent.

Afin de bien comprendre le gain obtenu par cette méthode, la méthode est testée par simulation sur deux systèmes de collimation secondaire, chacun constitué de deux fentes plus ou moins ouvertes (Fig. V.42). La configuration 1 (collimateur finement ouvert) correspond à une configuration de collimation habituelle utilisée dans les systèmes EDXRD existants. En ouvrant la fente 1 du côté détecteur (collimateur largement ouvert), le cône de réception vu par le détecteur s'élargit et le volume inspecté augmente, plus particulièrement suivant l'axe Z. La configuration géométrique est présentée dans la figure V.43.

Nous nous plaçons pour l'instant dans le cas où le volume inspecté ne contient qu'un seul matériau. Le cas multimatériau est traité dans le paragraphe suivant. Par conséquent, l'objet simulé ici est une plaque d'aluminium de 14 cm d'épaisseur.

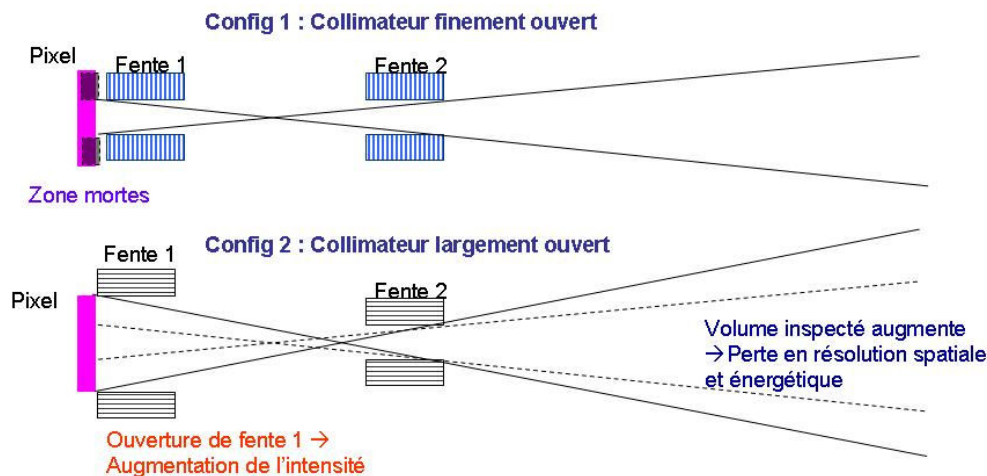


FIGURE V.42 – Un collimateur fin permet une meilleure résolution mais une faible sensibilité alors qu'un collimateur plus ouvert engendre une meilleure sensibilité mais une perte en résolution.

Pour cet exemple, la figure V.44 représente la résolution angulaire observée par le pixel entier selon les deux collimations. La perte en résolution angulaire n'est pas négligeable comme on peut le voir dans le tableau V.1.

La figure V.45 montre le spectre bi-paramétrique avec la position latérale sur un spectre de diffraction pour l'aluminium à  $\theta = 4^\circ$ . On constate bien que la position des pics de l'aluminium varie en fonction du sous-pixel du fait que chaque sous-pixel ne voit pas exac-

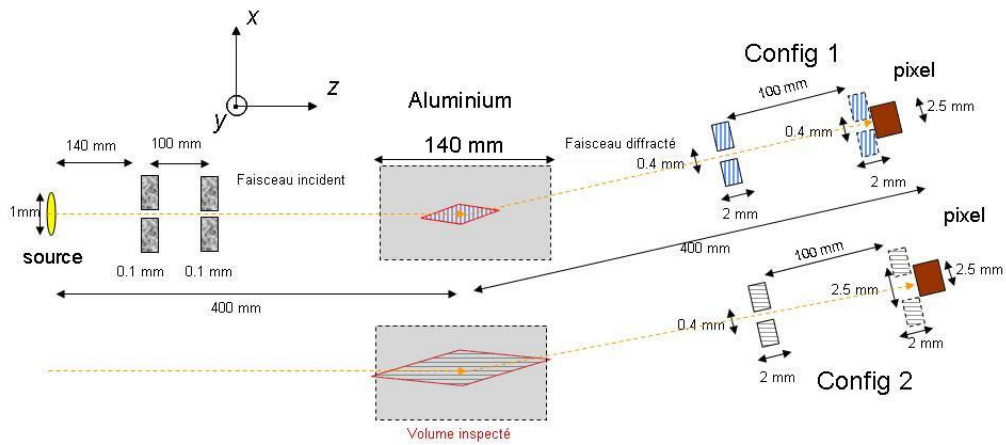


FIGURE V.43 – Schéma du banc de diffraction simulé. Deux collimateurs ont été testés.

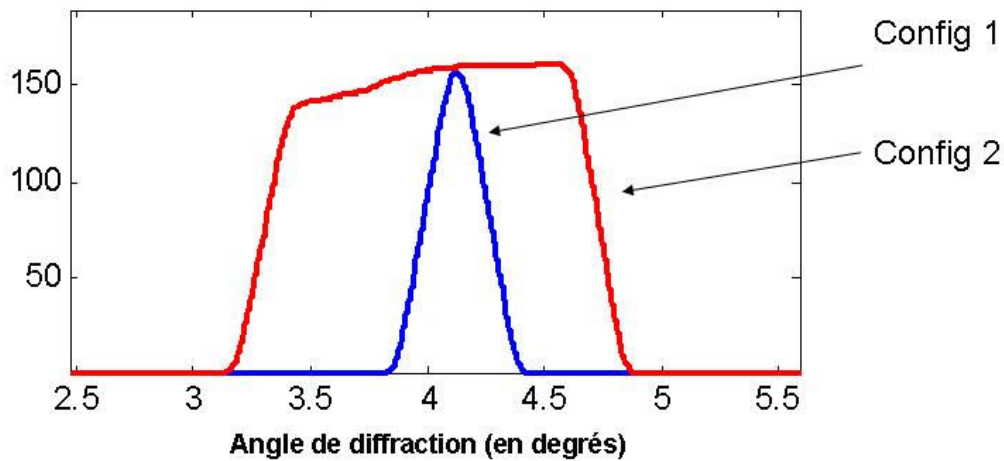


FIGURE V.44 – Résolution angulaire observée par les deux collimateurs.

tement le même  $\theta$ . Nous avons modélisé une sur-pixellisation en 25 sous-pixels obtenue par la méthode de localisation barycentrique, c'est à dire en tenant compte dans la modélisation de l'incertitude de la méthode. Le spectre (b) illustre le spectre bi-paramétrique corrigé, notre méthode de correction consiste à effectuer un recalage par homothétie en utilisant les angles de diffraction moyens correspondant aux différentes positions latérales du détecteur (Fig. V.46).

Au final, le spectre rouge en énergie de la figure V.47 est obtenu en sommant les spectres de tous les sous-pixels dans le spectre bi-paramétrique corrigé. Le spectre bleu est le spectre calculé avec un collimateur finement ouvert (config 1).

En se référant au pic principal qui se trouve à 75 keV dans ces 2 spectres, on observe une résolution en énergie autour de 9% dans les deux cas. En revanche, l'intensité totale a augmenté d'un facteur 8 grâce au collimateur secondaire ouvert combiné à la méthode de traitement par sur-pixellisation. Le gain en sensibilité sans perte importante en résolution est donc réel.

	$\Delta\theta$ (en degré)	Volume inspecté ( $mm^3$ )	Epaisseur du volume inspecté suivant Z (en mm)
Collimateur finement ouvert (config 1)	0.3	63.5	43
Collimateur largement ouvert (config 2)	1.6	210	139

TABLE V.1 –

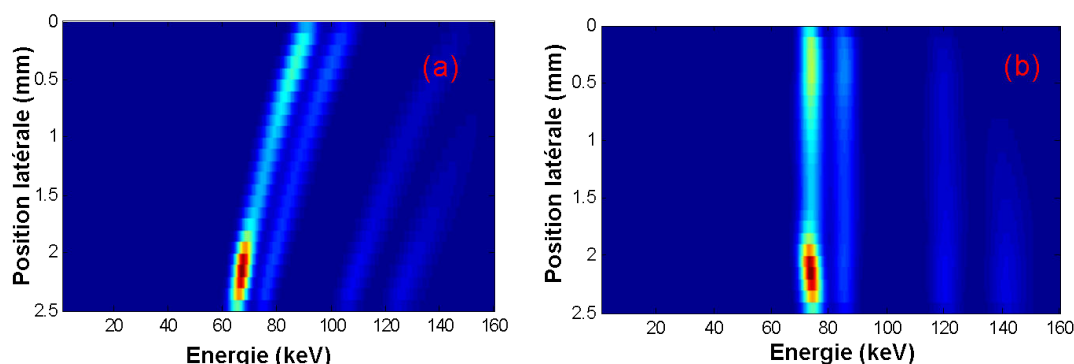


FIGURE V.45 – Spectres bi-paramétrique en position latérale pour l'aluminium à  $4^\circ$  : (a) calculé par sur-pixellisation (b) après correction

### V.3.3 Séparabilité de matériaux

Au vu de ce qui précède, nous avons vu que la méthode de sur-pixellisation permet d'envisager l'ouverture de la collimation et ainsi :

- d'améliorer la sensibilité dans le spectre EDXRD,
- de compenser la perte en résolution énergétique des pics de diffraction.

Ceci a été démontré dans le cas particulier où le volume inspecté ne comporte qu'un seul matériau. Cependant, l'ouverture du collimateur secondaire s'accompagne toujours d'un élargissement du volume inspecté, avec le risque accru d'avoir plusieurs matériaux dans le volume inspecté.

Dans cette partie, nous allons traiter le cas où le volume inspecté comporte plusieurs matériaux et voir comment la sur-pixellisation peut permettre de contourner le problème de confusion de matériaux.

Comme précédemment et pour observer l'efficacité de la méthode, il est nécessaire de comparer les résultats obtenus par notre système proposé (config 2) à ceux obtenus par le système standard (config 1). Nous allons présenter 2 cas de configurations multimatériaux.

#### Cas 1 multimatériau :

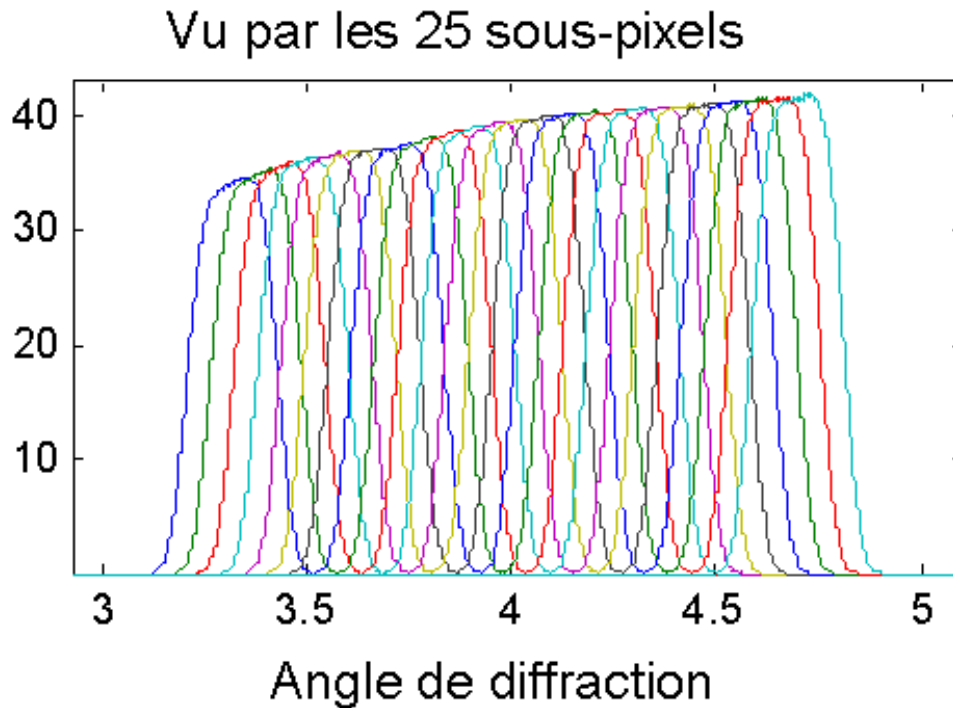


FIGURE V.46 – Distribution angulaire observée par chaque sous pixel ou en chaque position du détecteur.

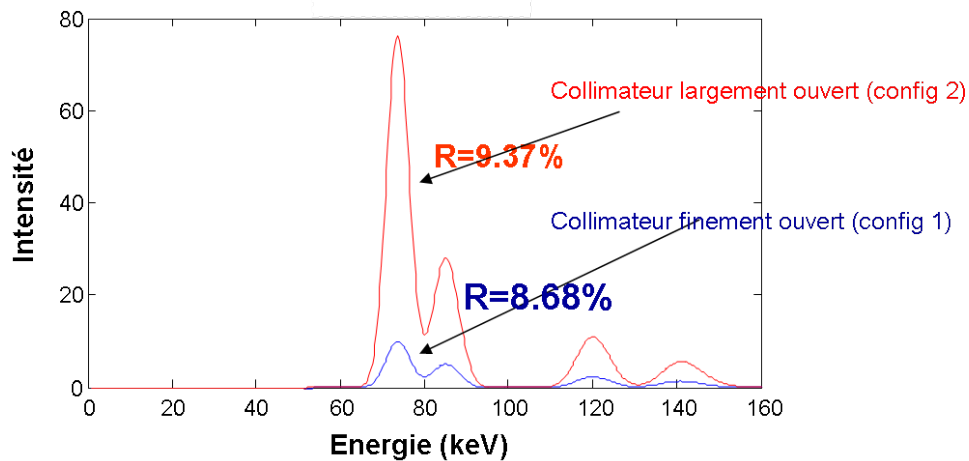


FIGURE V.47 – Spectres de diffraction simulés pour l'aluminium. Cette figure illustre le gain en sensibilité sans grande perte en résolution énergétique en passant d'un collimateur finement ouvert à un collimateur largement ouvert grâce à la méthode de sur-pixellisation.

Dans ce cas, le volume inspecté avec la config 1 ne contient qu'un matériau (sel) alors que le volume inspecté avec la config 2 en contient plusieurs (sucre/sel/sucre). La configuration géométrique correspondante est la même que celle présentée dans la figure V.43. La différence est l'objet examiné (Fig. V.48).



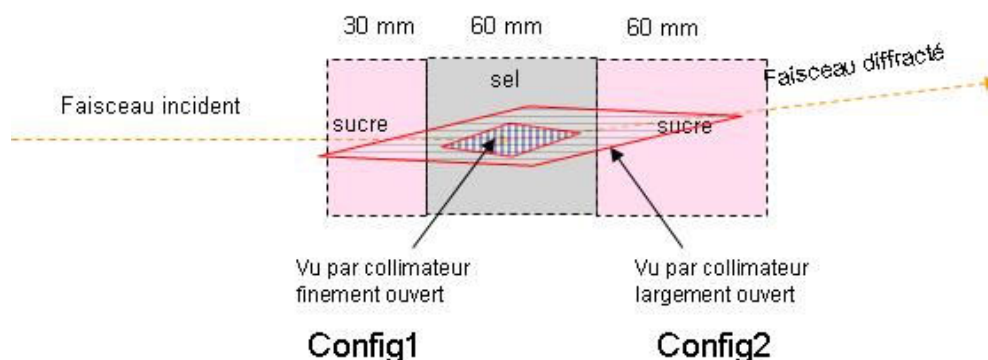


FIGURE V.48 – Cas 1 multimatériau.

La figure V.49 montre le spectre bi-paramétrique avec la position latérale sur un spectre de diffraction pour ce premier objet multimatériaux à  $\theta = 4^\circ$ . Le spectre (b) illustre le spectre bi-paramétrique corrigé.

Le spectre rouge en énergie de la figure V.50 est obtenu en sommant les spectres de tous les sous-pixels dans le spectre bi-paramétrique corrigé. Le spectre bleu est le spectre calculé avec un collimateur finement ouvert.

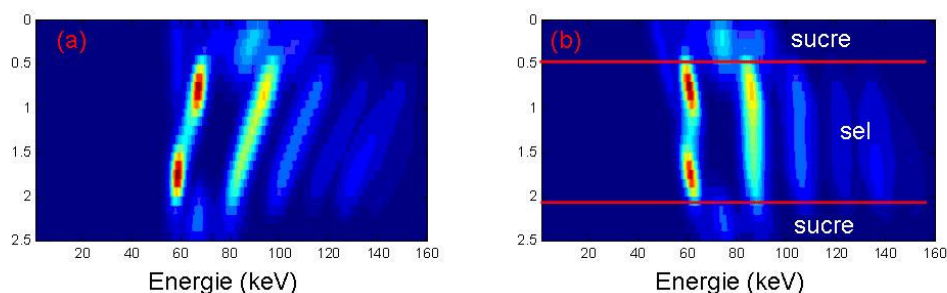


FIGURE V.49 – Spectres bi-paramétrique en position latérale pour l’objet de la figure V.48 à  $\theta = 4^\circ$  : avant (a) et après (b) correction.

Dans ce cas, on a toujours un gain en sensibilité sans perte en résolution pour les pics du matériau principal (sel) observé par les deux systèmes. Par contre, pour le collimateur largement ouvert, on observe l’apparition de pics correspondant à l’autre matériau (sucre). Comme indiqué précédemment, ce mélange des spectres empêche la distinction des différents matériaux. En regardant la figure V.49, on peut clairement distinguer les zones correspondant aux différents matériaux dans le volume inspecté.

Après application d’une méthode de segmentation adaptée sur le spectre bi-paramétrique corrigé, nous pouvons repérer les différents sous pixels correspondants aux différents matériaux : sous pixels entre [0 0.6 mm] ; sous pixels entre [0.6 mm 1.8 mm] et sous pixels entre [1.8 mm 2.5 mm]. Finalement, si on fait la somme des spectres de sous-pixels dans les trois zones mentionnées dans le spectre bi-paramétrique corrigé, on obtient les spectres présentés dans la figure V.51 et V.52.

Le spectre rouge dans la figure V.51 correspond au sel et la figure V.52 au sucre.

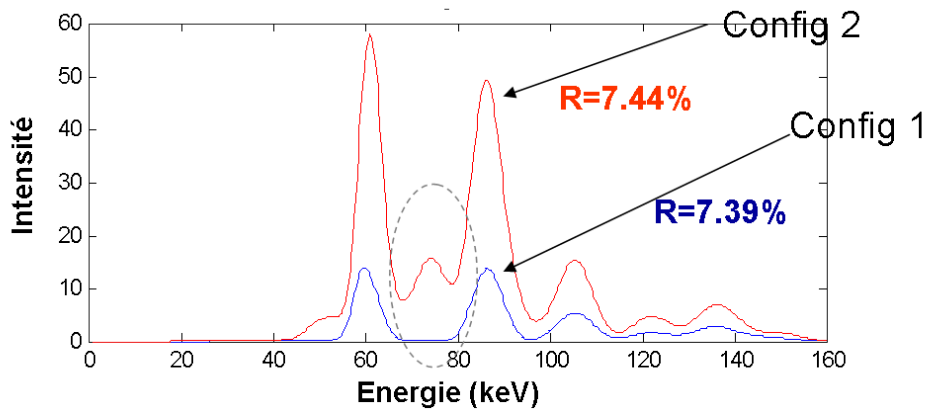


FIGURE V.50 – Spectres de diffraction pour l'objet du cas 1 multimatériel (Fig. V.48) qui illustre le gain en sensibilité sans perte en résolution énergétique avec une apparition d'un pic supplémentaire qui correspond à un matériau marginal en passant d'un collimateur finement ouvert à un collimateur largement ouvert grâce à la méthode de sur-pixellisation.

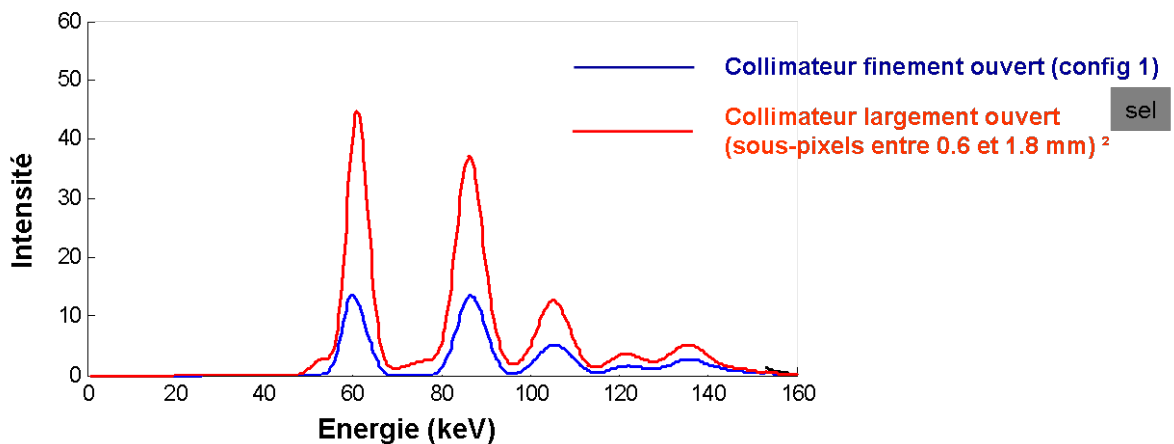


FIGURE V.51 – Séparation de matériaux par sur-pixellisation dans le spectre de diffraction à  $4^\circ$  pour l'objet sucre-sel-sucre.

### Cas 2 multimatériel :

Dans ce cas, le volume inspecté contient plusieurs matériaux (graphite/sel), aussi bien avec le collimateur largement ouvert qu'avec celui finement ouvert (config 1). La configuration géométrique est la même que celle présentée dans la figure V.43. L'objet examiné est présenté en figure V.53.

La figure V.54 présente le spectre bi-paramétrique avec la position latérale sur un spectre de diffraction pour l'objet présenté dans la figure V.53 à  $4^\circ$ . Le spectre (b) illustre le spectre bi-paramétrique corrigé. La figure V.55 confirme encore le gain obtenu en sensibilité sans perte en résolution énergétique.

Après segmentation sur le spectre bi-paramétrique corrigé, nous pouvons identifier 2 zones : sous pixels entre [0 0.9 mm] et sous pixels entre [1 mm 2.5 mm]. Si on fait la

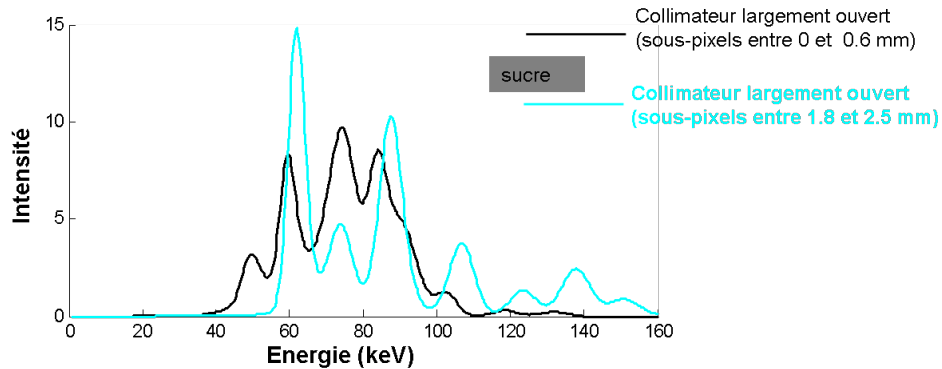


FIGURE V.52 – Séparabilité de matériaux par sur-pixellisation dans le spectre de diffraction à  $4^\circ$  pour l’objet sucre-sel-sucre.

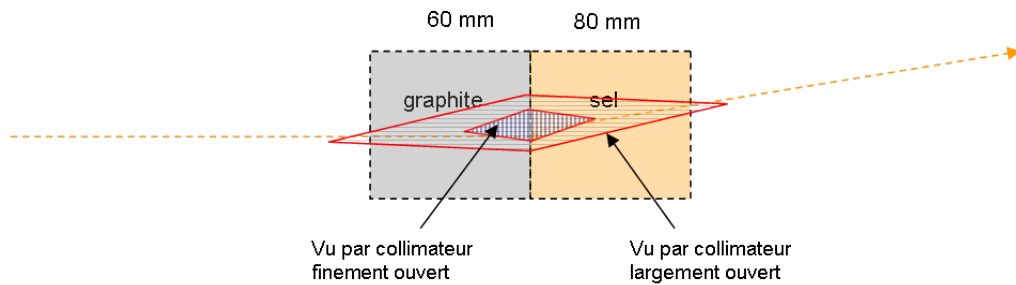


FIGURE V.53 – Cas 2 multimatériau.

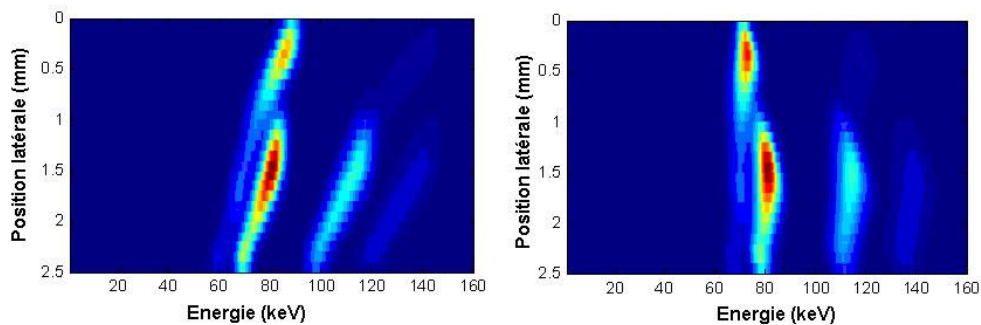


FIGURE V.54 – Spectres bi-paramétriques en position latérale pour l’objet de la figure 22 à  $4^\circ$  : avant (a) et après (b) correction.

somme des spectres de sous-pixels dans ces deux zones, on obtient alors les spectres de la figure V.56. Dans cette figure, le spectre noir correspond au graphite et le spectre bleu correspond au sel. Cela démontre bien que la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique permet de détecter la présence de plusieurs matériaux, ce qui est impossible avec les systèmes standards (collimateur finement ouvert) et sans sur-pixellisation.

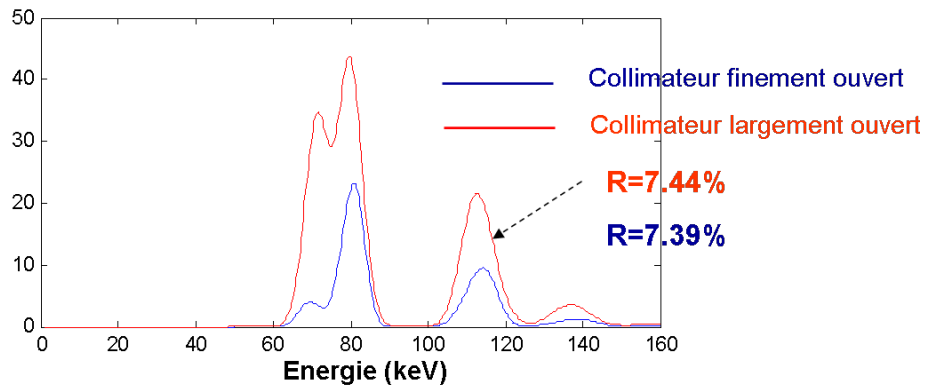


FIGURE V.55 – Spectre de diffraction pour l'objet du cas 2 multimatérial (Fig. V.53) qui illustre le gain en sensibilité sans perte en résolution. Les deux spectres sont constitués d'un mélange de spectres correspondant au sel et au graphite.

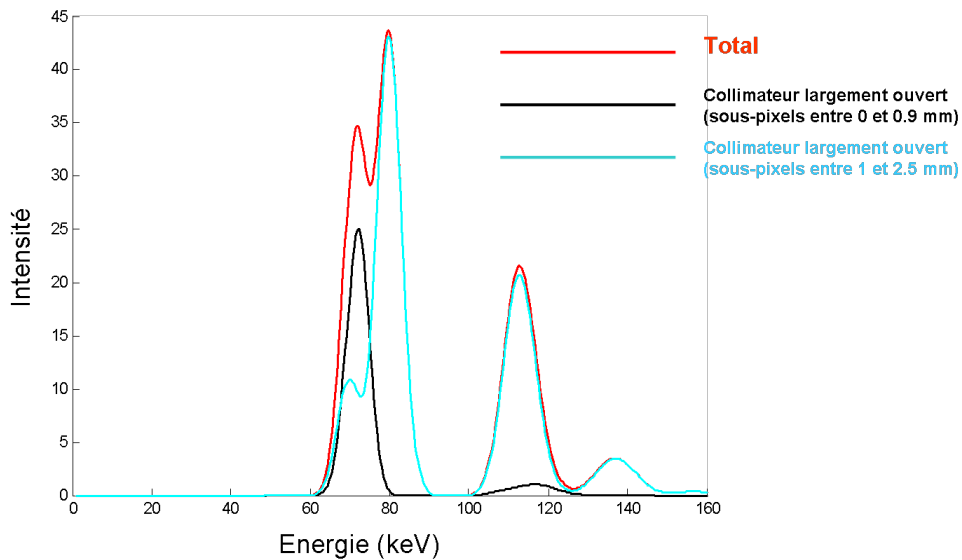


FIGURE V.56 – Séparation des matériaux dans le cas 2 multimatérial.

## V.4 Conclusion

La méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique est un atout important lorsqu'on travaille avec des détecteurs CdTe multi-pixels. Nous avons démontré que dans un diffractomètre, en combinant cette sur-pixellisation à une adaptation intelligente de la collimation, nous pouvons améliorer de manière considérable la résolution angulaire finale et par conséquent la résolution en énergie des pics de diffraction. La méthode a été testée par simulation et sur données expérimentales pour plusieurs arrangements géométriques, toujours en respectant une taille raisonnable de volume analysé. Pour différents matériaux, le gain en résolution a été confirmé, jusqu'à faire apparaître de nouveaux pics qui étaient confondus avant application de la sur-pixellisation.

Cependant, les systèmes EDXRD actuels, de par les contraintes de vitesse de défilement de bagages, souffrent surtout du manque de photons détectés. Il peut être alors intéressant de profiter de cette méthode de sur-pixellisation pour améliorer la sensibilité plutôt que la résolution en énergie finale. Pour cela, nous avons montré par simulation que l'élargissement de la collimation secondaire (qui introduit un élargissement du volume inspecté), associé à la méthode de sur-pixellisation, permet d'améliorer la sensibilité des spectres EDXRD sans perte en résolution. Cela permet ainsi de réduire le bruit pour mieux reconnaître les pics des différents matériaux. Lorsque nous avons affaire à un volume d'investigation comprenant plusieurs matériaux, nous avons également montré ce gain en sensibilité sans perte en résolution, avec de plus la possibilité de séparer les pics des différents matériaux contenus dans le grand volume d'inspection. Des manipulations expérimentales devront être réalisées pour valider ces deux dernières conclusions.

Après les performances de résolution en énergie et de sensibilité, nous nous sommes intéressés à un autre problème qui biaise les spectres EDXRD : le problème d'instabilité des pics de diffraction, due à l'effet d'orientation des grains des matériaux cristallins.



# Effet des orientations des grains sur le spectre de diffraction en dispersion d'énergie

---

## Sommaire

---

<b>VI.1 Article NIMA "The effect of grain size on the stability of X-ray diffraction patterns for threat detection" . . . . .</b>	<b>146</b>
<b>VI.2 Compléments à l'article . . . . .</b>	<b>154</b>
VI.2.1 Calcul de l'angle solide et du volume inspecté effectif . . . . .	154
VI.2.2 Calcul de l'angle solide du système tournant . . . . .	155
<b>VI.3 Conclusion . . . . .</b>	<b>155</b>

---

Dans ce chapitre, on traite le problème d'orientations des grains dans le volume inspecté pour les matériaux polycristallins. Ce phénomène a été observé lors du chapitre III sur des spectres du sucre. Plusieurs spectres mesurés avec un même échantillon étaient complètement différents, laissant apparaître des pics irrégulièrement très intenses ou complètement absents. Ceci est en fait une illustration du problème d'orientation de grains.

Pratiquement, un pic de diffraction ne peut apparaître que s'il y a suffisamment de grains bien orientés respectant la condition de Laue. Or, étant donné notre volume d'inspection de l'ordre de  $240 \text{ mm}^3$  et de la taille des grains du sucre (autour de  $400 \mu\text{m}$ ), il se trouve que d'un pixel à un autre, les orientations de grains ne sont pas équitablement réparties, ce qui induit cet effet de super pics. Cet effet n'est pas à négliger, d'autant que la taille des grains du sucre en poudre est sensiblement du même ordre que ceux que l'on peut trouver dans les explosifs (entre  $300$  et  $700 \mu\text{m}$ ). Une étude détaillée a été réalisée sur cette problématique et a fait l'objet d'un article à NIM A présenté dans ce chapitre.

La première partie de ce chapitre correspond à l'article. Elle doit permettre de bien comprendre physiquement l'effet d'orientations des grains sur les spectres EDXRD et quelles sont les méthodes expérimentales proposées pour éviter les fausses alarmes induites par ce problème.

La deuxième partie de ce chapitre a pour but de clarifier certains termes existant dans l'article présenté dans la première partie.

## VI.1 Article NIMA "The effect of grain size on the stability of X-ray diffraction patterns for threat detection"

**Journal** : Nuclear Instrument and Methods in Physics Research, A

**Title** : New software to model energy dispersive X-ray diffraction in polycrystalline materials

**Article Type** : Research Paper

**Section/Category** : Non-proliferation and Security Applications

**Keywords** : EDXRD ; Polycrystal ; Crystal orientation ; Peak intensity ; Coefficient of variation.

**Corresponding Author** : Mr Bahaa Ghammraoui,

Corresponding Author's Institution : CEA-Leti, MINATEC Campus

**First Author** : Bahaa Ghammraoui

**Order of Authors** : Bahaa Ghammraoui ; Joachim Tabary ; Stephanie Pouget ; Caroline Paulus ; Vincent Moulin ; Loick Verger ; Philippe Duvauchelle

**Abstract** : Energy Dispersive X-ray Diffraction (EDXRD) is a well suited tool for detection of narcotics and a wide range of explosives. The integrated intensity of a diffraction peak is proportional to the number of grains favorably oriented to satisfy the Bragg condition. Several parameters have a significant influence on this number. Among them, we can list the grain size, the fill rate of polycrystalline material and the inspected volume, that are all not linked to the nature of the materials. Consequently, the peaks intensity may significantly change from one measurement to another one, thus increasing the risk of losing peaks. This instability is one of the many causes of false alarms. For that purpose, we have developed a model to quantify the stability of the measured diffraction patterns. The extension of the detector in a direction perpendicular to the diffractometer plan and the slowly rotation of both source and detector are two possible methods to decrease the coefficient of variation and consequently obtain a higher stability on measured spectra.





# Conclusions et perspectives

Les travaux de recherche exposés dans ce mémoire ont eu pour objectif d'étudier un système de diffraction de rayons X par dispersion d'énergie (EDXRD) à base de détecteurs spectrométriques CdZnTe multi pixels. L'application première visée est celle de l'identification de matériaux dangereux lors du contrôle de bagages. Les travaux de recherche se sont structurés en trois grandes étapes que l'on retrouve dans le manuscrit : un état de l'art de l'existant sur la technique EDXRD (chapitres 1 et 2), le développement et la prise en main d'outils d'études (expérimental et théorique respectivement aux chapitres 3 et 4), et enfin l'étude et le développement de nouveaux concepts visant à améliorer les performances d'un système EDXRD, en terme d'intensité, de résolution et de stabilité des pics de diffraction mesurés (chapitres 5 et 6).

L'état de l'art nous a montré que le développement des technologies de détection en EDXRD est en plein essor depuis une quinzaine d'années, pour des applications aussi bien dans le domaine médicale que dans celui de la sécurité. La diffraction des rayons X est connue pour mesurer les distances inter-réticulaires des matériaux cristallins, et ainsi permettre leur identification. Les explosifs et les drogues étant majoritairement cristallins, la diffraction apparaît donc comme une modalité prometteuse pour l'inspection non invasive de colis. La méthode de diffraction X dispersive en énergie est préférée à la méthode dispersive en angle car elle est moins encombrante et permet l'utilisation de sources plus puissantes, ce qui est un gain considérable en termes de temps d'acquisition. Cette méthode EDXRD utilise des détecteurs spectrométriques qui fournissent des spectres en énergie (approximativement entre 15 et 160 keV) contenant les pics caractéristiques du matériau observé. De même, les matériaux amorphes peuvent être caractérisés par cette méthode en révélant sur les spectres diffractés non plus des pics de diffraction mais de " larges bosses ", correspondant à l'ordre local et plus précisément aux corrélations existantes entre un atome donné et ses voisins.

Dans le troisième chapitre, nous avons présenté le système expérimental EDXRD utilisé lors de nos travaux de recherche. Ce système utilise une sonde spectrométrique spécifique, constituée d'une matrice de CdZnTe de 4x4 pixels. Cette sonde appelée MINIGAMI a démontré des performances spectrométriques tout à fait satisfaisantes pour la technique EDXRD. Dans des conditions favorables (temps d'acquisition, petit échantillon...), les spectres mesurés par cette sonde permettent en effet de distinguer les matériaux selon leurs pics de diffraction pour les matériaux cristallins et selon les rebonds pour les matériaux amorphes.

Nous avons vu que les spectres de diffraction dépendent de plusieurs paramètres. L'angle

de diffraction influe sur la position des pics de diffraction mais aussi sur la résolution en énergie de ces pics : si on augmente l'angle de diffraction, les pics se déplacent vers les basses énergies et la résolution du pic s'améliore.

Les dimensions des collimateurs au niveau du détecteur et de la source ont aussi une influence importante sur la résolution et l'intensité des pics. La taille et l'orientation des grains des matériaux polycristallins affectent la stabilité des mesures.

Le programme de simulation SinFullScat développé pendant la thèse et présenté dans le chapitre 4 du mémoire est un programme complet pour calculer la diffusion cohérente et incohérente dans les matériaux polycristallins et amorphes. L'accord entre les spectres expérimentaux et les spectres simulés est très satisfaisant. Ce simulateur permet de tester de nombreuses configurations sans avoir systématiquement recours à l'expérimentation pour faciliter la caractérisation de tous les paramètres affectant les spectres EDXRD. De même, il permet de fournir des spectres réalistes et de tester toutes les méthodes d'analyse spectrale afin d'identifier les matériaux.

Par la suite, les travaux de recherche se sont concentrés sur l'optimisation des systèmes EDXRD, tant au niveau du détecteur que des collimateurs, pour obtenir des spectres de diffraction présentant les critères suivants :

- Spectres intenses mesurés en un temps d'acquisition faible (augmentation du flux de photons arrivant sur le détecteur).
- Spectres avec une bonne résolution des pics en énergie, afin de bien séparer les pics les uns des autres.
- Spectres stables, c'est-à-dire ne dépendant pas de l'orientation de l'échantillon pendant la mesure.

Nous savons qu'il existe un compromis classique entre une bonne résolution des pics et une bonne sensibilité. Notamment, la fermeture de la collimation améliore la résolution des pics mais s'accompagne d'une diminution de la sensibilité.

Dans le chapitre 5, nous expliquons comment des traitements électroniques utilisant les signaux des pixels voisins du pixel illuminé peuvent permettre d'estimer la position d'interaction du photon incident dans le pixel. Ceci conduit à une sur-pixellisation par localisation barycentrique. Cette sur-pixellisation virtuelle est sans coût et permet une amélioration significative du compromis sensibilité/résolution. Ce nouveau concept de sur-pixellisation a été validé par simulation et expérimentalement.

Une étude expérimentale a bien confirmé l'amélioration possible de la résolution angulaire et ainsi de la résolution en énergie des pics de diffraction grâce à la méthode de sur-pixellisation par localisation barycentrique. Une étude par simulation a montré qu'en combinant cette méthode à une collimation plus ouverte, nous pouvons améliorer significativement la sensibilité des spectres EDXRD en conservant une bonne résolution. La sur-pixellisation permet également de séparer les matériaux se retrouvant dans le même volume d'inspection.

Enfin, et toujours avec l'objectif de limiter les causes de dégradation des spectres

EDXRD, une étude détaillée a été réalisée sur l'effet d'orientation de grains sur la stabilité des pics de diffraction. L'intensité d'un pic de diffraction est proportionnelle au nombre de grains orientés convenablement pour satisfaire la condition de Bragg. Plusieurs paramètres ont une influence significative sur ce nombre de grains bien orientés, comme la taille du volume d'inspection ou la taille des grains du matériau inspecté. Il arrive ainsi que l'intensité des pics change de façon significative d'une mesure à une autre, au point de disparaître. Pour limiter cette instabilité, nous avons développé un modèle pour quantifier la stabilité des spectres de diffraction mesurés. L'extension du détecteur dans une direction perpendiculaire au plan de diffractomètre et la rotation lente de la source et du détecteur sont deux méthodes possibles pour diminuer le coefficient de variation et, par conséquent obtenir une plus grande stabilité dans les spectres mesurés.

Quant à la suite de ce travail, il serait intéressant de valider expérimentalement les résultats obtenus par modélisation sur l'amélioration de la sensibilité à résolution égale lorsque l'on combine sur-pixellisation par localisation barycentrique et ouverture de la collimation.

Une suite de ces travaux de recherche serait aussi de travailler sur l'analyse des spectres pour l'identification des matériaux. Pour cela, une réflexion sur une méthode de type problème inverse est à mener ainsi que sur sa mise en oeuvre. Cette méthode permettrait de restaurer la signature propre du matériau, indépendamment des facteurs instrumentaux, de manière à améliorer son identification. Notre connaissance précise du système d'acquisition permettrait d'injecter dans la méthode d'inversion un ensemble d'a priori pertinents pour mieux restaurer l'information des pics de diffraction dans le cas d'un matériau cristallin et de fonction d'interférence moléculaire dans le cas d'un matériau amorphe.



## Annexe 1

## A.1 Matériaux explosifs

Nitrate d'ammonium H4 N2 O3 ;		$V_m = 627.19\text{\AA}^3$
Structure : Orthorhombic ; Groupe de symetrie : Pccn (56) ;		$\rho = 1.76\text{g/cm}^3$
$d_{hkl}(\text{\AA})$	$\ F_{hkl}\ ^2$	h k l
4,90928	22	0 0 2
4,18129	3	1 0 2
4,00365	44	0 2 0
3,9943	44	2 0 0
3,35926	1	1 2 1
3,09821	100	2 0 2
2,88663	16	2 1 2
2,82512	89	2 2 0
2,71442	9	2 2 1
2,52857	17	1 3 0
2,52423	18	3 1 0
2,44854	6	2 2 2
2,41083	1	2 1 3
2,34255	11	0 3 2
2,24628	13	3 1 2
2,0871	2	2 0 4
2,02014	10	3 2 2
1,99914	6	3 1 3
1,99366	5	4 0 0
1,80054	6	4 1 2
1,75842	1	3 3 2
1,51826	5	5 0 2
1,51116	4	2 0 6
1,44231	2	4 2 4
1,35677	2	5 3 1
1,26335	3	5 3 3
1,2611	3	6 2 0

TABLE A.1: Nitrate ammonium.

Hexogene C3 H6 N6 O6 ;		$V_m = 1640.37\text{\AA}^3$
Structure : Orthorhombic ; Groupe de symetrie : Pcab (61) ;		$\rho = 1.799\text{g/cm}^3$
$d_{hkl}(\text{\AA})$	$\ F_{hkl}\ ^2$	h k l
6,69	62	1 1 1
5,71	24	1 2 0
5,37	13	0 0 2
5,01	68	1 2 1
4,35	40	2 2 0
4,16	13	0 2 2
4,02	29	2 2 1
3,91	7	1 2 2
3,77	13	2 1 2
3,51	42	3 1 1
3,4	1	0 3 2
3,3	50	0 4 0
3,13	1	1 4 0
3,03	100	1 2 3
2,93	26	2 3 2
2,87	16	2 4 0
2,76	54	2 2 3
2,69	20	1 3 3
2,63	1	0 1 4
2,55	36	4 0 2
2,5	1	1 5 1
2,43	20	1 2 4
2,36	17	4 3 1
2,28	7	2 2 4

TABLE A.2: Hexogene

Octogene C4 H8 N8 O8 ;		$V_m = 1097.28\text{\AA}^3$
Structure : Monoclinic ; Groupe de symetrie : Pc (7) ;		$\rho = 1.799\text{g/cm}^3$
$d_{hkl}(\text{\AA})$	$\ F_{hkl}\ ^2$	h k l
9,5386	7	1 0 0
7,9114	6	0 1 0
7,152	5	-1 0 2
6,7166	6	0 1 1
6,3509	100	0 0 2
6,3509	1	-1 1 1
6,0884	62	1 1 0
5,2956	6	-1 1 2
5,2224	72	-2 0 2
4,9448	12	0 1 2

4,9448	1	1 1 1
4,7547	32	2 0 0
4,4611	38	-2 1 1
4,3807	20	1 0 2
4,359	13	-2 1 2
4,1282	6	-1 1 3
4,079	20	2 1 0
3,8624	36	-2 1 3
3,8338	32	1 1 2
3,7728	3	0 2 1
3,7307	40	0 1 3
3,7069	3	-1 2 1
3,6503	5	1 2 0
3,5712	25	-1 0 4
3,5712	1	-2 0 4
3,4809	49	2 1 1
3,4591	14	-1 2 2
3,3483	27	1 2 1
3,3483	1	0 2 2
3,3045	16	-3 1 2
3,2635	23	-1 1 4
3,2516	26	-2 1 4
3,1937	18	-2 2 1
3,1937	1	-3 1 3
3,1767	35	0 0 4
3,1767	1	3 0 0
3,1439	44	-2 2 2
3,1439	1	2 0 2
3,0659	11	-1 2 3
3,0559	6	1 1 3
3,0425	9	2 2 0
2,9452	13	3 1 0
2,9219	5	-3 1 4
2,8926	7	0 2 3
2,7325	8	-2 1 5
2,7056	29	-4 0 2
2,6773	12	-3 2 2
2,6525	8	-1 2 4
2,6525	1	1 0 4
2,6224	22	3 1 1
2,6224	1	-3 2 3
2,5735	9	-4 1 3
2,5581	25	-4 1 2
2,5581	1	-1 3 1



2,5418	9	1 2 3
2,5418	1	1 3 0
2,5133	6	1 1 4

TABLE A.3: Octogène

TNT (Trinitrotoluène) C7 H5 N3 O6 ;		$V_m = 1905.21 \text{Å}^3$
Structure : Monoclinic ; Groupe de symétrie : C2/c (15) ;		$\rho = 1.654 \text{g/cm}^3$
$d_{hkl}(\text{Å})$	$\ F_{hkl}\ ^2$	h k l
6,99	80	-2 0 2
5,99	5	-4 0 2
5,62	70	3 1 0
5,43	40	3 1 1
5,15	5	6 0 2
4,99	70	-6 0 2
4,65	30	-5 1 1
4,26	80	8 0 2
4,11	30	-5 1 2
4 20	10	0 0
3,84	100	0 0 4
3,7	60	7 1 2
3,52	70	-5 1 3
3,43	70	12 0 0
3,32	5	6 0 4
3,26	70	7 1 3
3,14	20	-3 1 4
3,04	80	0 2 1
3 70	2	2 1
2,92	40	-11 1 2
2,86	70	0 2 2
2,78	5	13 1 0
2,73	70	-13 1 1
2,67	70	-3 1 5
2,59	60	5 1 5
2,52	5	2 0 6
2,43	70	10 2 1
2,36	60	15 1 2
2,3	70	-3 1 6
2,22	5	10 2 3
2,18	5	7 1 6
2,13	70	-17 1 2
2,04	5	3 3 0
1,94	10	-16 2 1

1,88	50	13 1 6
------	----	--------

TABLE A.4: TNT

PETN (Pentaerythritol tetranitrate) C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> N <sub>4</sub> O <sub>12</sub> ;		$V_m = 591.04 \text{Å}^3$
Structure : Tetragonal ; Groupe de symetrie : Centrosymmetric ;		$\rho = 1.654 \text{g/cm}^3$
$d_{hkl}(\text{Å})$	$\ F_{hkl}\ ^2$	h k l
6,64	50	1 1 0
5,44	20	1 0 1
4,67	50	2 0 0
3,83	100	2 0 1
3,54	80	2 1 1
3,31	60	2 2 0
3,15	60	1 0 2
2,95	50	3 1 0
2,82	50	3 0 1
2,7	50	3 1 1
2,6	60	3 2 0
2,35	60	4 0 0
2,27	5	4 1 0
2,21	60	3 3 0
2,05	60	3 2 2
1,81	50	5 0 1
1,78	50	3 1 3
1,7	10	3 2 3
1,53	20	4 2 3

TABLE A.5: PETN pentrite



# Bibliographie

- [Audran 2010] F. Audran. Validation expérimentale d'un nouveau mode d'acquisition en imagerie d'émission monophotonique. Stage réalisé au Laboratoire DETecteur du Département de Technologies pour la Biologie et la Santé du CEA de Grenoble, 2010. (Cité en page 116.)
- [Beevor 1995] S. Beevor, J. Sander et I. Raitt. *Non-invasive inspection of baggage using coherent X-ray scattering*. Defence Research Agency, UK, pages 301–305, 1995. (Cité en pages 38 et 39.)
- [Beldjoudi 2012] G. Beldjoudi, V. Rebuffel, L. Verger et V. Kaftandjian. *An optimised method for material identification using a photon counting detector*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, v.663, vol. 663, page 26(11), 2012. (Cité en page 35.)
- [Bonnin 2009] A. Bonnin. Etude d'un système portable d'inspection par rayonnement X utilisant les effets combinés d'absorption multi-énergies, de diffusion et diffraction X sur la matière. Thèse de l'INSA de Lyon, 2009. (Cité en pages 44 et 45.)
- [Buras 1982] B. Buras. *Relation between Integrated intensities in crystal diffraction methods for X-rays and neutrons*. Acta Cryst, vol. A31, pages 372–374, 1982. (Non cité.)
- [Carmi 2005] R. Carmi, G. Naveh, et A. Altman. *Material separation with dual-layer CT*. In IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2005. (Cité en page 33.)
- [Chan 1983] H. Chan et K. Doi. *Energy and angular dependence of X-ray absorption and its effect on radiographic response in screen-film systems*. Phys. Med. Biol., vol. 28, pages 565–79, 1983. (Non cité.)
- [Chaparian 2009] A. Chaparian, M. Oghabian et V. Changizi. *Acquiring molecular interference functions of X-ray coherent scattering for breast tissues by combination of simulation and experimental methods*. Iranian Journal of Radiation Research, vol. 7(2), pages 113–117, 2009. (Cité en page 23.)
- [Cheetham 998] N. Cheetham et L. Tao. Variation in crystalline type with amylose content in maize starch granules : an X-ray powder diffraction study, volume 36. Carbohydrate Polymers, 1998. (Non cité.)
- [Chen 1974] L. Chen. *On the convergence of Poisson binomial to Poisson distributions*. The Annals of Applied Probability, vol. 2, pages 178–180, 1974. (Non cité.)
- [Cook 2007] E. Cook, R. Fong et J. Horrock. *Energy dispersive X ray diffraction as a means to identify illicit materials A preliminary optimisation study*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 48, pages 215–224, 2007. (Cité en page 51.)
- [Cook 2009a] E. Cook, A. Griffiths et M. Koutaloni. *Illicit drug detection using energy dispersive X-ray diffraction*. In Proc. Of SPIE vol. 7310, 73100I, 2009. (Cité en page 51.)

- [Cook 2009b] J. Cook, S. Pani et L. George. *Multivariate Data Analysis for Drug Identification Using Energy-Dispersive X-ray Diffraction*. IEEE transaction on nuclear science, vol. 56, pages 1459–1464, 2009. (Cit  en pages 43 et 51.)
- [Cozzini 2010] C. Cozzini, G. Harding et P. Edic. *Energy dispersive X-ray diffraction spectral resolution considerations for security screening applications*. In IEEE in Nuclear Science Symposium Conference Record, Knoxville, 2010. (Cit  en pages 23, 47, 49, 50 et 80.)
- [Crespy 2010a] C. Crespy et al. D tection d'explosifs par diffraction de rayons X avec un syst me de type dispersif en  nergie (EDXRD). Rapport d'activit  Projet SPIDERS, 2010. (Cit  en pages 52 et 62.)
- [Crespy 2010b] C. Crespy, P. Duvauchelle et V. Kaftandjian. *Energy dispersive X-ray diffraction to identify explosive substances : spectra analysis procedure optimization*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, vol. 623, pages 1050–1060, 2010. (Cit  en pages 45 et 52.)
- [Cullity 1956] B. Cullity. Elements of X-ray diffraction. Addison-Wesley, 1956. (Cit  en pages 20 et 21.)
- [d'Aillon 2005] E. Gros d'Aillon. Etude des performances spectrom triques des d tecteurs gamma CdZnTe / CdTe monolithiques. Th se de l'universit  Joseph Fourier, 2005. (Non cit .)
- [Dicken 2010] A. Dicken, K. Rogers et P. Evans. *The seperation of X-ray diffraction patterns of threat detection*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 68, pages 439–443, 2010. (Cit  en pages 39 et 40.)
- [Dykstra 1987] P. Dykstra et M. Muus. *The BRL-CAD package : An overview*. 4th Computer Graphics Workshop–USENIX, Phoenix, Arizona, U.S., pages 73–80, 1987. (Non cit .)
- [Eilbert 1992] R. Eilbert et K. Krug. *Aspects of image recognition in Vivid Technologies' dual-energy X-ray system for explosives detection*. Proc. SPIE, vol. 1824, pages 127–143, 1992. (Cit  en page 33.)
- [Evans 1998] R. Evans. X-rays and  $\gamma$ -ray interaction, chap3. Academic press, London, 1998. (Cit  en page 14.)
- [Freud 2004] N. Freud et P. Duvauchelle. *Deterministic simulation of first-order scattering in virtual X-ray imaging*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, vol. 222, pages 285–300, 2004. (Non cit .)
- [Gerward 1976] L. Gerward, S. Lehn et G. Christiansen. *Quantitative determination of preferred orientation by energy dispersive X-ray diffraction*. Texture of Crystalline Solids, vol. 2, pages 95–111, 1976. (Non cit .)
- [Gu rin 2007] L. Gu rin. Etude d'une nouvelle architecture de gamma-cam ra   base de semi-conducteur CdZnTe/CdTe. Th se de l'universit  d'Angers, 2007. (Cit  en page 28.)
- [Harding 1999] G. Harding et B. Schreiber. *Coherent X-ray scatter imaging and its application in biomedical science and industry*. Radiation physics and chemistry, vol. 56, pages 229–245, 1999. (Non cit .)

- [Harding 2006] G. Harding. *Effective density and atomic number determined from diffraction profiles*. In Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering, vol. 6319, 2006. (Cit  en page 53.)
- [Harding 2007] G. Harding et J. Delfs. *Liquids identification with X-ray diffraction*. In dans Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering, vol. 6707, 2007. (Cit  en page 53.)
- [Harding 2008] G. Harding. *X-ray diffraction imaging-a multi-generational perspective*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 67(2), pages 287–295, 2008. (Cit  en pages 47, 48 et 49.)
- [Harding 2009] G. Harding, H. Strecker et D. Kosciesza. *Detector considerations relevant to X-ray diffraction imaging for security screening applications*. Optics and Photonics in Global Homeland Security V and Biometric Technology for Human Identification, vol. 7306, pages 19–21, 2009. (Cit  en page 47.)
- [Harding 2010a] G. Harding, H. Fleckenstein, S. Olesinski et G. Zienert. *Experimental comparison of next-generation XDi topologies*. In Proc. SPIE ; California, USA, 2010. (Cit  en page 47.)
- [Harding 2010b] G. Harding, H. Fleckenstein, S. Olesinski et G. Zienert. *Liquid detection trial with X-ray diffraction*. In Proc. SPIE ; California, USA, 2010. (Cit  en pages 21, 23, 53, 72 et 74.)
- [Hofmann 2005] H. Hofmann et K. Rudolf. *Insensitive explosive molding powder, paste process*. Patent US 2005/0081970 A1, 2005. (Non cit .)
- [Hubbell 1975] W. Hubbell et J. Veigele. *Atomic Form Factors, Incoherent Scattering Functions, and Photon Scattering Cross Sections*. J. Phys. Chem. Ref., vol. Data 4, pages 471–538, 1975. (Cit  en page 19.)
- [Inanc 1990] F. Inanc et J. Gray. *A CAD interfaced simulation tool for X-ray NDE studies*. Nondestructive Evaluation, vol. 9A, 1990. (Non cit .)
- [Kabekkodu 2002] S. Kabekkodu, J. Faber et T. Fawcett. *New powder diffraction file (PDF-4) in relational database format : Advantages and data-mining capabilities*. Acta Crystallographica, vol. 58, pages 333–337, 2002. (Cit  en pages 36 et 54.)
- [King 2002] B. King et P. Johns. *Measurement of coherent scattering form factors using an image plate*. Physics in Medicine and Biology, vol. 47, pages 163–175, 2002. (Cit  en page 23.)
- [Laine 1980] E. Laine et I. Lahteenmaki. *The energy dispersive X-ray diffraction method : annotated bibliography*. Materials science, vol. 28, pages 269–278, 1980. (Non cit .)
- [Lalleman 2011] A. Lalleman, G. Ferrand et B. Ross . *A Dual X-ray Backscatter System for Detecting Explosives : Image and Discrimination of a Suspicious Content*. In IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 2011. (Cit  en page 34.)
- [Langford 1996] I. Langford et D. Louer. *Powder diffraction*. Reports on Progress in Physics, vol. 59, pages 131–254, 1996. (Cit  en page 52.)
- [Lauriat 2003] Jean-Pierre Lauriat. *Cristallographie - Diffraction*. <http://jean-pierre.lauriat.pagesperso-orange.fr>, Mis en ligne en 2003. (Cit  en page 21.)

- [Luggar 1996] R. Luggar, J. Horrocks et R. Spellerb. *Determination of the geometric blurring of an energy X-ray diffraction (EDXRD) system and its use in the simulation of the experimentally derived diffraction profiles dispersive*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, vol. 383, pages 610–618, 1996. (Cit  en page 40.)
- [Luggar 1997] R. Luggar, A. Horrocks et D. Speller. *Low Angle X-ray Scatter for Explosives Detection : a Geometry Optimization*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 48, pages 215–224, 1997. (Cit  en pages 40 et 41.)
- [Luggar 1998] R. Luggar, M. Farquharson et J. Horrocks. *Multivariate Analysis of Statistically Poor EDXRD Spectra for the Detection of Concealed Explosives*. X-ray Spectrometry, vol. 27, pages 87–94, 1998. (Cit  en pages 40 et 51.)
- [Lux 2011] S. Lux, G. Mont mont et O. Rossetto. *Study of the physical factors influencing the spatial resolution of CZT Detectors*. In IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record - Valencia, poster, 2011. (Cit  en pages 112 et 122.)
- [Madden 2008] R. Madden, J. Mahdavi  et R. Smith. *An explosives detection system for airline security using coherent X-ray scattering technology*. Proc. of SPIE Vol. 7079 707915-1, 2008. (Cit  en page 45.)
- [Maitrejean 1998a] S. Maitrejean, D. Perion et D. Sundermann. *A new approach for measuring X-ray Transmission as Function of Energy with a Bremstrahlung Source*. In SPIE, Editor, 1998. (Cit  en page 35.)
- [Maitrejean 1998b] S. Maitrejean, D. Perion et D. Sundermann. *Non destructive identification using X-ray transmission function obtained with the multi-energy method*. In SPIE, Editor, 1998. (Cit  en page 35.)
- [Malden 2000] C. Malden et R. Speller. *A CdZnTe array for the detection of explosives in baggage by energy-dispersive X-ray diffraction signatures at multiple scatter angles*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, vol. 449, pages 408–415, 2000. (Cit  en pages 40 et 42.)
- [Mayo 2000] E. Mayo. *Analysis methods for energy dispersive X-ray diffraction patterns*. US006118850A, 2000. (Non cit .)
- [Montemont 008] G. Montemont, T. Bordy et V. Rebuffel. *Use of CZT Pixel Detectors for Improved SPECT Imaging*. In Conference record, IEEE-RTSD Dresden, 19-25 Octobre 2008. (Non cit .)
- [Pani 2009] S. Pani et E. Cook. *Modelling an energy dispersive X-ray diffraction*. IEEE transaction on nuclear science, vol. 56, pages 1238–1241, 2009. (Cit  en pages 41, 43, 51 et 80.)
- [Pani 2010] S. Pani, E. Cook et J. Horrocks. *Characterization of breast tissue using energy dispersive X-ray diffraction computed tomography*. Applied Radiation and Isotopes, vol. 68, pages 1980–1987, 2010. (Cit  en page 44.)
- [Peplow 1998] D. Peplow et K. Verghese. *Measured molecular coherent scattering form factors of animal tissues, plastics and human breast tissue*. Physics in Medicine and Biology, vol. 43, pages 2431–2456, 1998. (Cit  en pages 21, 22 et 23.)

- [Peterzol 2011] A. Peterzol, P. Duvauchelle et V. Kaftandjian. *Modeling based optimization study for an EDXRD system in a portable configuration*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, vol. 654, pages 450–463, 2011. (Cit  en pages 45, 46 et 80.)
- [Popescu 1996] M. Popescu. *Les rayons X et la structure des amorphes*. supplement au Journal de Physique III, vol. 6, pages 33–40, 1996. (Cit  en page 17.)
- [Qu 2010] D. Qu et al. *Identification of pure liquid precursor chemicals based on coherence function and fourier transform using energy dispersive X-ray diffraction scattering*. Procedia Engineering, vol. 7, pages 158–164, 2010. (Cit  en page 52.)
- [Rebuffel 007] V. Rebuffel, J. Tabary et J. Rheinlaender. *A software simulation tool dedicated to the design and evaluation of X-ray backscatter systems*. In ECNDT Conference, 2007. (Non cit .)
- [Rebuffel 2001] V. Rebuffel et al. *New Perspectives of X-ray Techniques for Explosive Detection Based on CdTe/CdZnTe Spectrometric Detectors*. In International Symposium on Digital Industrial Radiology and Computed Tomography - Berlin, Proceedings, 2001. (Non cit .)
- [Sempau 1997] J. Sempau et E. Acostat. *An algorithm for Monte Carlo simulation of the coupled electron-photon transport*. Nucl. Instr. and Meth. B, vol. 132, pages 377–390, 1997. (Non cit .)
- [Soulez 2011] F. Soulez, C. Crespy et V. Kaftandjian. *Diffraction peaks restoration and extraction in energy dispersive X-ray diffraction*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A, vol. 654, pages 441–449, 2011. (Cit  en page 45.)
- [Speller 2001] R. Speller. *Radiation based security*. Radiation physics and chemistry, vol. 61, pages 293–300, 2001. (Non cit .)
- [Tabary 007] J. Tabary, P. Hugonnard et F. Mathy. *SINDBAD : a realistic multi-purpose and scalable X-ray simulation tool for NDT applications*. In Int. Symp. on DIR and CT, Lyon, June 2007. (Non cit .)
- [Tartari 2002] A. Tartari, A. Taibi et C. Bonifazzi. *Updating of form factor tabulations for coherent scattering of photons in tissues*. Physics in Medicine and Biology, vol. 47, pages 163–175, 2002. (Cit  en page 23.)
- [Verger 2004] L. Verger, M. Gentet et L. Gerfault. *Performance and perspectives of a CdZnTe-based gamma camera for medical imaging*. IEEE Transactions on Nuclear Science, vol. 51, pages 3111–3117, 2004. (Cit  en page 27.)
- [Verger 2007] L. Verger. *New trends in  $\gamma$ -ray imaging using CdZnTe/CdTe at CEA-Leti*. Nucl. Instr. and Meth. A, vol. 571, pages 33–43, 2007. (Cit  en page 63.)
- [Vogel 2007] H. Vogel. *Search by X-rays applied technology*. European Journal of Radiology, vol. 63, pages 227–236, 2007. (Cit  en pages 33, 34 et 35.)
- [Warburton 1997] W. Warburton. *An approach to sub-pixel spatial resolution in room temperature X-ray detector arrays with good energy resolution*. In MRS Proceedings 487-531, 1997. (Cit  en page 117.)



- [Yu 2010] D. Yu et al. *Energy dispersive X-ray diffraction research using coherence function*. Procedia Engineering, vol. 7, pages 165–171, 2010. (Cit  en page 52.)
- [Zentai 2008] G. Zentai. *X-ray Imaging for Homeland Security*. In IEEE International Workshop on Imaging Systems and Techniques Chania, Greece, 2008. (Cit  en pages 32, 33 et 35.)
- [Zhang 2010] Y. Zhang et al. *Research and analysis of non-destructive detection of heroin hidden in human body*. Procedia Engineering, vol. 7, pages 151–157, 2010. (Cit  en page 51.)
- [Zhang 2011] Y. Zhang et al. *Application of singular value decomposition for identification of liquid precursor chemicals using energy-dispersive X-ray scattering*. Procedia Engineering, vol. 39, pages 20–33, 2011. (Cit  en page 51.)

---

**Résumé :** La diffraction des rayons X apparaît comme une modalité prometteuse pour l’inspection non invasive de bagages. Par comparaison aux techniques traditionnelles d’imagerie par transmission, cette technique permet de révéler davantage d’informations caractéristiques sur les matériaux, comme les distances inter-réticulaires pour les matériaux cristallins ou la fonction d’interférence moléculaire pour les matériaux amorphes. La méthode de diffraction par énergie dispersive (EDXRD), qui travaille à angle fixe avec un faisceau polychromatique et un détecteur résolu en énergie, est plus particulièrement adaptée à la problématique de contrôle de bagages, car elle permet d’envisager une architecture parallélisée pour imager un bagage complet en un temps raisonnable.

Les travaux proposés dans cette thèse ont donc pour but d’étudier un système EDXRD utilisant un détecteur spectrométrique CdZnTe multi pixels pour l’identification des matériaux illicites dans les bagages. Une première étape a consisté à prendre en main cette technique à la fois expérimentalement avec un banc de diffraction mis à disposition et théoriquement par le biais du développement d’un outil de simulation élaboré. La confrontation entre l’expérimentation et la simulation a permis de bien comprendre la physique d’un tel système et de mieux analyser ses faiblesses pour pouvoir les corriger. En nous appuyant sur ces deux outils, nous avons ensuite étudié et mis en oeuvre de nouveaux concepts pour améliorer les performances du système EDXRD, en termes de résolution, d’intensité et de stabilité des pics de diffraction.

Ainsi, une architecture novatrice, s’appuyant sur un traitement des signaux transitoires délivrés par les détecteurs CdZnTe, est proposée afin d’améliorer le compromis entre la résolution des pics de diffraction et leur intensité. Cette architecture est basée sur la sur-pixellisation du détecteur par la méthode de localisation barycentrique et sur une adaptation géométrique du système collimateur/détecteur. Enfin, le problème d’instabilité des pics de diffraction, due à l’effet d’orientation des grains des matériaux cristallins, est également traité.

**Mots clés :** Rayons X, Diffraction, polycristallins, poudre, amorphes, détection d’explosifs, collimateur, détecteur spectrométrique CdTe

---

---

**Abstract** : X-ray diffraction is becoming a prevailing technique for non invasive inspection of luggage. Compared to traditional techniques of transmission imaging, the diffraction technique can extract more characteristic information of materials, such as the Bragg peaks for crystalline materials or the molecular interference function for amorphous materials. The method of energy dispersive X Ray diffraction (EDXRD), which works at a fixed low scatter angle but with a polychromatic X-ray beam and a energy resolved detector, is particularly suited to the problem of luggage control as it allows parallelized architectures to inspect an entire object in a reasonable time.

The work proposed in this thesis is to study an EDXRD system using a multi-pixelated CdZnTe detector to identify illicit materials in baggage. A first step has been to take control of this technique both experimentally with a diffraction bench and theoretically through the development of an elaborate simulation tool. The comparison between experiment and simulation has allowed to understand the physics of such a system and to better analyze its weaknesses to correct them. Relying on these two tools, we studied and implemented new concepts to improve performances of EDXRD systems, in terms of resolution, intensity and stability of the diffraction peaks.

Thus, an innovative architecture, based on a dedicated treatment of transient signals delivered by the CdZnTe detectors, is proposed to significantly improve the compromise between the resolution of the diffraction peaks and their intensity. This architecture is based on an over-pixelation (1D) of the detector by an electronic positioning method and on a geometric adaptation of the system collimator/detector. The problem of instability of the diffraction peaks due to the effect of grain orientation in crystals is also handled.

**Keywords** : X-ray, diffraction, polycrystal, powder, amorphous, explosive detection, collimator, X-ray detector Spectrometer, CdTe

---