



HAL
open science

Quantification de radionucléides par approche stochastique globale

Aloïs Clément

► **To cite this version:**

Aloïs Clément. Quantification de radionucléides par approche stochastique globale. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Clermont Auvergne [2017-2020], 2017. Français. NNT : 2017CLFAC049 . tel-01734649

HAL Id: tel-01734649

<https://theses.hal.science/tel-01734649>

Submitted on 14 Mar 2018

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.

Université Clermont Auvergne

École doctorale ED178

Quantification de radionucléides par approche stochastique globale

Présentée pour l'obtention du grade de DOCTEUR

DE L'UNIVERSITÉ CLERMONT AUVERGNE

par

Aloïs CLÉMENT

Thèse de doctorat de Physique Nucléaire

Dirigée par **Nicolas SAUREL** et **Gérard MONTAROU**

Présentée et soutenue publiquement le mardi 19 décembre 2017

Devant un jury composé de :

Président du jury	Prof. Franck Martin	(LPC, CNRS, Clermont-Ferrand)
Rapporteur	Prof. Johann Collot	(LPSC, CNRS, Grenoble)
Rapporteur	Dr. Cédric Carasco	(CEA, DEN, Cadarache)
Examineur	Prof. Olivier Roustant	(École des Mines de Saint-Étienne)
Examinatrice	Dr. Virginie Silvert	(CEA, DAM, Valduc)
Examineur	Dr. Emmanuel Busato	(LPC, CNRS, Clermont-Ferrand)
Directeur de thèse	Dr. Nicolas Saurel	(CEA, DAM, Valduc)
Co-directeur de thèse	Prof. Gérard Montarou	(LPC, CNRS, Clermont-Ferrand)



Thèse effectuée au sein du **Laboratoire de Mesure Nucléaire et Expertise**
du **CEA, DAM, Valduc**
F-21120 Is-sur-Tille, France

Résumé

Parmi les techniques de mesure nucléaire non destructives utilisées par les instrumentistes du noyau atomique, la spectrométrie gamma est aujourd'hui une méthode d'identification et de quantification de radionucléides largement employée dans le cadre de la gestion d'objets nucléaires complexes tels que des déchets radioactifs, des fûts de déchets ou des boîtes à gants. Les caractéristiques physico-nucléaires non-reproductibles et variées de ces objets, telles que leurs compositions, la répartition des matériaux, leurs densités et formes géométriques, ou le nombre et la forme de leurs termes sources émetteurs, induisent une inaptitude des méthodes d'étalonnage traditionnel à permettre l'obtention de l'activité d'un matériau nucléaire donné. Cette thèse propose une méthode de quantification de radionucléides multi-émetteurs, limitant, voire supprimant, l'utilisation d'informations dites *a priori* issues de l'avis d'expert ou du retour d'expériences. Cette méthode utilise entre autres la métamodélisation pour construire une efficacité de détection gamma équivalente de la scène de mesure, le formalisme de résolution de problème inverse par Chaines de Markov Monte-Carlo (MCMC), le tout placé dans un cadre de travail probabiliste bayésien afin d'estimer les densités de probabilités des variables d'intérêt telle qu'une masse de radionucléide. Un protocole de validation expérimentale permet de vérifier la robustesse de la méthode à estimer une masse de ^{239}Pu au sein d'objets similaires à ceux traités en routine par le laboratoire. Les perspectives de la méthode concernent la réduction des temps de calcul, des coûts financiers et humains par limitation de l'approche type expert, et la réduction des incertitudes associées.

Mots-clé :

Mesure nucléaire, Spectrométrie gamma, Métamodélisation, MCMC, Cadre Bayésien

Abstract

Gamma spectrometry is a commonly passive nondestructive assay used to identify and quantify radionuclides present in more or less complex objects such as waste packages, waste drums or glove boxes. Basic methods using empirical calibration with a standard in order to quantify the activity of nuclear materials by determining the absolute calibration efficiency are useless on non-reproducible, complex and single nuclear objects such as waste packages. Package specifications as composition or geometry change from one package to another and involve a high variability of objects. Current quantification process uses numerical modeling of the measured scene with few available data such as geometry or composition. These data are density, material, screen, geometrical shape, matrix composition and source distribution. Some of them are strongly dependent on package data knowledge. The method developed in this thesis suggests combining a global stochastic approach which uses, among others, surrogate models available to simulate the gamma attenuation behaviour, a Bayesian approach which considers conditional probability density functions of problem inputs, and Markov Chains Monte Carlo algorithms (MCMC) which solve inverse problems, with gamma ray emission radionuclide spectrum and outside dimensions of interest objects. The methodology is testing to standard in terms of actinide masses, locations and distributions. Activity uncertainties are taken into account by this adjustment methodology. An experimental protocol is built to validate the quantification method in terms of robustness with the quantification of ^{239}Pu . The perspectives of the method are to save time by improving the nuclear measurement process, to cut back on costs by avoiding as far as possible expert approaches, and to reduce the actinide mass uncertainties by increasing the precision of quantification process.

Keywords :

Nuclear measurement, Gamma spectrometry, Surrogate models, MCMC, Bayesian framework

Remerciements

Je souhaite dans un premier lieu remercier les membres du jury pour avoir accepté d'évaluer l'ensemble des travaux qui ont été menés durant mon projet doctoral. Merci au Prof. Franck Martin d'avoir accepté de présider mon jury. Merci au Prof. Johann Collot et au Dr. Cédric Carasco d'avoir accepté d'être les rapporteurs de mes travaux. Je remercie le Prof. Olivier Roustant, les Dr. Virginie Silvert et Emmanuel Busato pour leurs rôles d'examineur au sein du jury. Je souhaite remercier plus spécialement mon co-directeur de thèse, le Prof. Gérard Montarou pour son temps et son aide précieuse. Enfin, de plus amples remerciements se dirigent vers mon directeur de thèse et encadrant CEA, le Dr. Nicolas Saurel. Ton expertise, ta patience et ton tempérament auront eu raison des difficultés rencontrées tout au long de cette thèse. Un grand merci à toi.

Je souhaite remercier et adresser ma gratitude à la direction scientifique du CEA pour m'avoir permis de réaliser cette thèse au sein de la Direction des Applications Militaires (DAM), et plus précisément au sein du centre d'étude de Valduc, et pour en avoir assuré le financement. Je remercie plus particulièrement ma hiérarchie pour son écoute et son encouragement. Je souhaite remercier tout spécialement l'équipe du CEA DAM DIF pour leurs soutiens logistique et moral, qui m'ont permis de mener ce projet dans les meilleures conditions possibles. Merci à Claire, Guillaume et Jean pour leurs temps, leurs savoirs et leur ténacité.

Je remercie l'ensemble du personnel du service pour leur accueil, leurs sympathies et les délicates attentions qu'ils ont toutes et tous montrées pour le mariage de mon épouse Sophie et de moi-même, ainsi que pour la naissance de notre premier garçon Charles. Merci à Hervé et Patrick pour leur confiance et leur entrain au quotidien. L'humour en milieu professionnel est une valeur rare qui lie les cœurs et crée du lien. Tu en es, Patrick, un acteur et un promoteur extraordinaire comme il est agréable d'en connaître. Un grand merci à Pascal pour son aide régulière. Les codes de simulations, la neutronique des réacteurs, la littérature scientifique, les commandes informatiques et les bons vins de Bourgogne n'ont désormais, grâce à toi, plus aucun secret pour moi.

Je souhaite chaleureusement remercier les membres du laboratoire de mesures nucléaires pour leur convivialité, leur esprit d'équipe et l'engouement avec lequel ils remplissent les

missions qui leurs sont dédiées. Merci à Sébastien, Sonia et Tania pour leur formidable esprit de cohésion, leur gentillesse et leur amour du travail bien fait. Merci à Gilles pour son soutien technique, son expérience de la mesure, et son humour grinçant. Merci à Guillaume pour ses coups de main spontanés, sa bonne humeur au quotidien et son sens de l'humour gras et cocasse. Un grand merci plus spécial à Adrien et Nathanaël pour avoir su être de bons perdants au Shangai et au 501 Double Out à maintes et maintes reprises, pour avoir fini leurs verres dans les temps, pour m'avoir laissé le dernier morceau de Comté, et surtout, pour être devenus au fil des mois, de vrais amis. Enfin, mille mercis à Hervé, Adeline, Martine, Fred, Gaëlle, et Blanche pour leur accueil amical, leur sympathie, leur aide et leur soutien au quotidien.

Je tiens, pour finir, à remercier ma merveilleuse femme pour son amour, sa patience, le calme et l'indulgence dont elle a fait preuve durant ces très nombreuses soirées passées à rédiger. Merci enfin à Charles, mon fils, pour ses sourires, ses câlins et ses balbutiements qui m'ont permis de jongler sans difficulté entre mes devoirs parentaux et mes travaux doctoraux. Quel bonheur d'être papa.

Table des matières

Introduction	1
Bibliographie	5
La métrologie nucléaire pour la gestion des déchets	5
Mathématiques appliquées à la quantification nucléaire	12
Approche bayésienne pour la résolution de problèmes inverses	21
I Les grandes lignes de la Méthode de quantification de radionucléides	27
I - 1 Mise en équation du problème de quantification	27
I - 2 Approche stochastique : définition du cadre bayésien de travail	29
I - 3 Métamodélisation de l'efficacité équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$	30
I - 4 Bilan de la méthode de quantification	30
II Détermination du rendement de détection équivalent d'une scène de mesure par spectrométrie gamma	33
II - 1 Modélisation équivalente de la scène de mesure en termes d'atténuation photonique	34
II - 1.1 Hypothèses physiques pour la modélisation	34
II - 1.2 Conclusion	37
II - 2 Planification d'expériences par utilisation du code de calcul MCNP	37
II - 2.1 Construction du plan d'expériences	38
II - 2.2 Calcul des points du plan d'expériences <i>via</i> MCNP	42
II - 3 Métamodélisation du rendement de détection équivalent	43
II - 3.1 Découplage des efficacités du détecteur et de la scène de mesure	44
II - 3.1.1 Hypothèses de travail et modélisation	45

II - 3.1.2	Création du plan d'expériences, simulations MCNP et métamodélisation	46
II - 3.2	Emulation de l'efficacité de détection du modèle cylindre-objet et comparaison des algorithmes ACOSSO et DiceKriging	47
II - 3.3	Conclusions intermédiaires	48
III	Développement d'une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique globale	51
III - 1	Détermination de la densité de probabilité conditionnelle <i>a posteriori</i> de la masse de radionucléide et des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} . . .	52
III - 1.1	Mise en place des hypothèses relatives à l'utilisation d'un cadre bayésien de travail	52
III - 1.2	Densités de probabilités <i>a priori</i> de m et \mathbf{X}	55
III - 1.3	Densité de probabilité conditionnelle <i>a posteriori</i> de m et \mathbf{X} . . .	56
III - 2	Estimation des PDF <i>a posteriori</i> par utilisation du formalisme MCMC .	57
III - 2.1	Mise en œuvre du formalisme MCMC	57
III - 2.2	Présentation de l'algorithme d'inversion	57
III - 2.3	Test de convergence et d'ergodicité de l'algorithme d'inversion MCMC	59
III - 3	Analyse du comportement algorithmique de la méthode d'inversion . . .	60
IV	Validation expérimentale de la méthode pour le ^{239}Pu	65
IV - 1	Présentation des cas tests expérimentaux de validation : caractéristiques et résultats	66
IV - 1.1	Caractéristiques physiques et hypothèses de mesure des cas tests .	66
IV - 1.2	Mise en place des hypothèses de quantification par la méthode stochastique	70
IV - 1.3	Application de la méthode de quantification et résultats de quantification avec et sans <i>a priori</i>	71
IV - 2	Influence de la localisation de la source sur la robustesse de la méthode de quantification	76
IV - 3	Application à des cas tests réels et inter-comparaison avec la méthode « classique »	84

Conclusions	91
Perspectives	95
Annexes	99
Références	103

Table des figures

1	Exemple de spectre d'acquisition par voie de mesure par spectrométrie gamma	6
2	Schéma d'un détecteur Germanium Hyper-Pur (GeHP) [24]	7
3	Extraction d'une surface issue d'un spectre d'acquisition par spectrométrie gamma à l'énergie 129.3 keV du ^{239}Pu	9
4	Exemple de décomposition des différents facteurs constituant le rendement de détection d'une scène de mesure appliquée aux déchets nucléaires de types fûts pétroliers (droite), accompagné d'une radiographie X d'un fût de type pétrolier (gauche).	10
5	Plan d'expériences LHS à deux entrées pour différents nombres de points d'échantillonnage, respectivement de gauche à droite et de haut en bas : 4, 16, 64, 256.	15
6	Illustration du burn-in d'une chaîne de Markov (gauche) et de la technique du multi-start relative à l'ergodicité (droite).	25
II Détermination du rendement de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma		33
II .1	Schéma du modèle physique équivalent, nommé modèle "cylindre-objet"	35
II .2	Coefficient d'atténuation photonique linéique massique du ^{94}Pu pour des énergies d'émission de 50 à 500 keV. Les deux séries de points sont issues du comportement atténuateur avant et après le raie K du $_{94}\text{Pu}$ à 121.8 keV. [33]	36
II .3	Représentations graphiques du sous-espace des paramètres de proportion massique.	39
II .4	Exemple d'utilisation de la méthode de k-means clustering dans un espace 2D avant (a) et après (b). Les partitions sont en couleurs et au nombre de 5. Les centres de chaque partitions sont repérés par (*). . .	40

II .5	Schémas d'utilisation de la méthode de k-means clustering dans l'espace du vecteur \mathbf{X}' avant (a-c) et après (b-d). (a) et (b) représentent un cas à 100 points et 3 partitions. (c) et (d) représentent le cas étudié à 10^4 points et 10^3 partitions.	41
II .6	Représentation du modèle physique cylindre-objet <i>via</i> le code de simulation MCNP pour un vecteur d'entrées \mathbf{X} donné : (a) en jaune : la zone de détection, en bleu : le cylindre-objet.	42
II .7	Schéma du modèle associé du découplage du détecteur GeHP	45
II .8	Représentation des indices de Sobol relatifs à l'étude du coefficient de découplage ϵ_{det}	47
III Développement d'une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique globale		51
III .1	Schéma du plan d'expériences dans l'espace des proportions (u,v) relatif à l'étude partielle de robustesse de l'algorithme d'inversion. Les 11 cas jouets apparaissent en rouge.	61
III .2	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas jouets N°1 et N°2 aux valeurs de densités $\rho = (0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8)$. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes empiriques apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	63
IV Validation expérimentale de la méthode pour le ^{239}Pu		65
IV .1	Représentation schématique du cas test de validation E ₁ . En rouge le pilulier confinant la masse de ^{239}Pu à quantifier. En jaune la matrice d'atténuation de type vinylique.	68
IV .2	Représentation schématique du cas test de validation E ₂ . En rouge le pilulier confinant la masse de ^{239}Pu à quantifier. En jaune et gris la matrice d'atténuation composé d'un mélange de vinyle et de métal. . .	68
IV .3	Représentation schématique du cas test de validation CO. En gris et blanc les piluliers confinant la masse de ^{239}Pu à quantifier. En jaune les couches de vinyle rassemblant les 20 piluliers.	69

IV .4	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas E_1 et E_2 . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	72
IV .5	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas E_3 et CO. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	73
IV .6	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les quatre cas de validation avec utilisation d'informations <i>a priori</i> limités sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	75
IV .7	Schéma représentant les six localisations spatiales de la source de ^{239}Pu au sein du fût de déchets	76
IV .8	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.16 g.cm^{-3} . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	79
IV .9	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.45 g.cm^{-3} . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	80
IV .10	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.16 g.cm^{-3} avec utilisation d'informations <i>a priori</i> limitées sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	81
IV .11	PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.45 g.cm^{-3} avec utilisation d'informations <i>a priori</i> limitées sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.	82

IV .12	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des mesures réelles N°1 à 3 présentées au sein du tableau IV .15. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiances à 95% (croix) en vert.	87
IV .13	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des mesures réelles N°4 à 5 présentées au sein du tableau IV .15. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiances à 95% (croix) en vert.	88
IV .14	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cinq mesures réelles présentées au sein du tableau IV .15 avec utilisation d'informations <i>a priori</i> sur la densité équivalente ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiances à 95% (croix) en vert.	90
IV .15	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°3 à N°5. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.	99
IV .16	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°5 à N°6. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.	100
IV .17	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°7 à N°9. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.	101
IV .18	PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°10 à N°11. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.	102

Liste des tableaux

II	Détermination du rendement de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma	33
II .1	Coefficients d'approximation et de prédiction des deux algorithmes testés	48
III	Développement d'une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique globale	51
III .1	Plan d'expériences relatif aux proportions massiques (Vin, Fe, Pu) . . .	61
IV	Validation expérimentale de la méthode pour le ^{239}Pu	65
IV .1	Caractéristiques physiques des cas tests de validation	67
IV .2	Densités de probabilités <i>a priori</i> des composantes du vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (r, h, \rho, L, Vin, Fe, Pu)$ de l'efficacité équivalente de détection $\epsilon(\mathbf{X})$ associées au quatre cas test de validation expérimentale.	70
IV .3	Paramètres (A, β, \mathbf{k}) de l'algorithme d'inversion MH associés à chacun des quatre cas test de validation expérimentale.	71
IV .4	Résultats de quantification relatifs aux cas de validation E_1, E_2, E_3 et CO.	74
IV .5	Résultats de quantification relatifs aux cas de validation E_1, E_2, E_3 et CO, avec utilisation d'informations <i>a priori</i> limitées sur la variable de densité équivalente ρ	74
IV .6	Coordonnées cylindriques des localisations des six mesures par série au sein du fût. L'origine est placée sur l'axe du fût et sur son fond (Z_3). . .	77
IV .7	Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R_1 à R_4 associés à la série N°1 (0.16 g.cm^{-3}).	78

IV .8	Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°1 (0.16 g.cm^{-3}).	78
IV .9	Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R_1 à R_4 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}).	78
IV .10	Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}).	79
IV .11	Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R_1 à R_4 associés à la série N°1 (0.16 g.cm^{-3}) avec <i>a priori</i> limité sur la variable de densité équivalente ρ	81
IV .12	Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°1 (0.16 g.cm^{-3}) avec <i>a priori</i> limité sur la variable de densité équivalente ρ	82
IV .13	Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R_1 à R_4 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}) avec utilisation d'informations <i>a priori</i> limitées sur la variable de densité équivalente ρ	82
IV .14	Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}) avec <i>a priori</i> limité sur la variable de densité équivalente ρ	83
IV .15	Données relatives aux cinq mesures réelles utilisées par le laboratoire pour la quantification des matériaux nucléaires. Les masse de ^{239}Pu , rendues par le laboratoire, sont indiquées avec leurs intervalles de confiance à 95%.	85
IV .16	Résultats de quantification relatifs aux cinq cas de mesure réels traités par le laboratoire.	86
IV .17	Résultats de quantification relatifs aux cinq cas de mesure réels avec utilisation d'information <i>a priori</i> sur la variable de densité apparente ρ	89

À Charles et Sophie,

Introduction

Dans le domaine de la gestion et du traitement des déchets radioactifs, la métrologie nucléaire joue un rôle prépondérant. Que ce soit à des fins civiles de production électrique, ou dans un contexte de défense, la manipulation et l'emploi de matériaux radioactifs comme les actinides génèrent des objets contaminés, ainsi que des déchets, dont la quantification de l'activité se révèle être un axe de recherche et de développement de l'industrie nucléaire française, et plus particulièrement du centre de recherche et de production du CEA Valduc. Ce dernier organise, *via* son laboratoire de mesure nucléaire et expertise, ses missions réglementaires liées à la gestion de ses matériaux nucléaires. Une partie de ces missions est définie autour de la quantification des matériaux radioactifs relatifs aux déchets mesurés avant envoi vers les exutoires appropriés, de l'inventaire des matières nucléaires présentes sur le centre de Valduc et de la garantie des règles de sûreté et de criticité par évaluation des matières nucléaires. Les objets traités par le laboratoire dans le cadre de ses missions sont issus de différents procédés de production et possèdent *de facto* des caractéristiques physiques, chimiques et nucléaires propres et singulières. Cette non-reproductibilité des objets traités grève toute tentative d'automatisation du processus de mesure, contraint à mettre en place des hypothèses *a priori* sur les conditions de production de ces objets, et augmente les temps et coûts de traitement avant envoi vers les exutoires finaux.

Les techniques de quantification associées à la mesure nucléaire sont nombreuses. La spectrométrie gamma, expliquée par exemples par Lyoussi dans son ouvrage [20] [12], permet de déterminer l'activité d'un objet radioactif par exploitation du spectre d'énergie gamma issu dudit objet par étalonnage de la scène de mesure. Ce dernier passe par l'utilisation d'une source radioactive dans le but d'estimer la capacité de l'objet à atténuer les photons gamma qu'il émet. Cette approche ne permet pas d'obtenir précisément le rendement de détection de la scène de mesure, et n'en donne qu'une valeur moyenne approchée, utile dans le cas d'objets homogènes de formes d'atténuations photoniques simples. En revanche, cette approche se révèle beaucoup moins efficace dans le cas d'objets complexes de compositions hétérogènes et multivariées comme ceux considérés au sein de ce projet doctoral.

Une des méthodes actuelles de quantification par spectrométrie gamma déployée au sein du laboratoire de mesure nucléaire propose de modéliser la scène de mesure par utilisation du code de simulation de transport de particules 3D MCNP [23] ou de logiciels d'exploitation et de traitement de spectre [15] [17] et de modélisation. Les caractéristiques physiques, chimiques et nucléaires, connues ou supposées, des objets mesurés, telles que des taux de remplissage, des compositions matricielles ou des informations relatives à la présence de matériaux atténuateurs spécifiques sont issues du retour d'expériences et d'avis d'experts. Ces informations sont intégrées à la simulation et assurent la bonne démarche de la mesure. Cette démarche suppose un traitement au cas par cas des objets nucléaires, et grève *de facto* l'automatisation du processus de mesure du fait de la non-reproductibilité de ces objets.

La métamodélisation du rendement de détection de la scène de mesure proposée au travers du travail doctoral de Guillot [13] est novatrice dans son domaine. Son intérêt réside dans la construction d'un modèle mathématique, encore appelé émulateur, permettant de prédire l'efficacité de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma pour une série de paramètres physiques donnée et associée à un espace de définition fixé. Un tel raisonnement possède l'avantage de diminuer significativement le temps de calcul du rendement de détection. Ses limitations résident dans l'absence de technique robuste et précise de quantification de radionucléides d'objets de caractéristiques physiques et nucléaires trop différentes, et dans le couplage de l'efficacité intrinsèque du détecteur avec celui du reste de la scène de mesure.

En résumé, la spectrométrie gamma utilisant un étalonnage empirique de la scène de mesure permet d'estimer une masse de radionucléide dans le cas d'objets reproductibles de formes d'atténuation simples. Cette technique, associée à l'utilisation d'un code de transport de particules pour la modélisation de la scène de mesure, est déployée par le laboratoire dans le cadre de ses missions de métrologie nucléaire et d'expertise. Ces dernières concernent notamment la caractérisation d'objets de paramètres physico-nucléaires différents et amènent le laboratoire à utiliser des hypothèses *a priori* issues du retour d'expériences et de l'avis d'expert. Une première piste développée consiste à émuler le rendement de détection de la scène de mesure pour en accélérer l'estimation, tant sur le plan financier que humain. De la sorte, l'ensemble de cette démarche ne permet pas d'automatiser le procédé de mesure de ces objets. L'utilisation de caractéristiques physico-nucléaires *a priori*, jumelée à la non-reproductibilité des objets traités, rend le processus de mesure chronophage et coûteux.

Cette thèse consiste à développer une méthode de quantification de radionucléides multi-émetteurs gamma par approche stochastique globale sans utilisation d'hypothèses *a priori* relatives au retour d'expériences de production des objets traités, et de l'avis d'expert des opérateurs de mesure. Cette méthode a pour caractéristiques d'être rapide et simple d'exécution.

La démarche a consisté dans un premier temps à définir les paramètres physico-nucléaires influant sur le rendement de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma, puis à construire un équivalent numérique de ce dernier en termes d'atténuation photonique. De manière analogue à Guillot [13], différents algorithmes et méthodes de régression ont été testés afin de construire un émulateur du rendement de détection. Le deuxième temps a concerné le développement de la méthode de quantification de radionucléides. Pour cela, la mise en place du cadre bayésien de calcul, ainsi que du formalisme MCMC, expliqués entre autre par Dunn et Shultis [9] dans leur ouvrage, a été nécessaire. Cette dernière a été effectuée en collaboration avec des équipes du CEA DAM DIF. Les processus de prise de décision et de contrôle de la méthode établie ont également été définis. Enfin, la dernière étape de l'étude a consisté à valider expérimentalement la méthode pour le cas particulier de l'isotope 239 de l'atome de plutonium par la définition d'un protocole expérimental de mesure par spectrométrie gamma, la mise en œuvre de la méthode de quantification développée, et enfin par une étape d'analyse et de contrôle des résultats de quantification obtenus.

Bibliographie / État de l'art

La métrologie nucléaire pour la gestion des déchets

L'industrie nucléaire et ses déchets

Les propriétés du phénomène physique de la radioactivité, qu'elle soit naturelle ou artificielle, sont utilisées depuis le siècle dernier dans bon nombre de domaines industriels. Ces activités, qu'elles soient de production et/ou de recherche, telles que les centrales nucléaires de production électrique, les centres de traitement des combustibles usés ainsi que d'autres installations nucléaires civiles et militaires, génèrent des déchets nucléaires issus de leurs procédés. Parmi ces producteurs, on dénombre trois principaux acteurs que sont AREVA, EDF et le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA) ainsi que des centaines d'autres petits producteurs comme les hôpitaux et les laboratoires de recherche. Ces déchets radioactifs, de natures et de caractéristiques variées, sont par conséquent gérés différemment.

L'organisme en charge du stockage de ces déchets est l'Agence Nationale des Déchets RadioActifs (ANDRA). En France, la classification des déchets radioactifs [1] repose sur deux paramètres que sont le niveau de radioactivité et la période radioactive. Le niveau de radioactivité représente la quantité de rayonnements émis par les radionucléides contenus dans les déchets. L'ensemble des déchets gérés par l'ANDRA est catégorisé en quatre niveaux d'intensité : haute activité (HA), moyenne activité (MA), faible activité (FA) et très faible activité (TFA). La période radioactive, aussi appelée demi-vie, correspond à la durée nécessaire pour que l'intensité de rayonnement initiale d'un radionucléide soit divisée par deux. Cette classification des déchets sur quatre niveaux s'effectue au travers de l'estimation de leurs niveaux de radioactivités respectifs. Ces derniers sont déterminés par mesure nucléaire.

Mesure nucléaire par spectrométrie gamma

La mesure nucléaire a pour objectifs l'identification et la quantification de radionucléides. Ces derniers représentent, par définition, des isotopes instables des éléments du tableau périodique de Mendeleïev. Cette instabilité donne lieu à une désintégration radioactive. Durant ce processus, le radionucléide stabilise son énergie, et plus précisément celle de son noyau, en libérant une ou plusieurs particules, dont des photons gamma. Dans ce cadre, un photon est nommé gamma si il est issu de la désexcitation spontanée ou provoquée du noyau d'un isotope, et X s'il fait suite à la désexcitation de l'atome ou au réarrangement de son cortège électronique. L'énergie d'un photon gamma est généralement de l'ordre du MeV, et celle du photon X autour du keV [20] [12]. L'énergie du ou des photons gamma ainsi émis présente l'avantage d'être caractéristique de l'isotope qui lui a donné naissance. L'ensemble des photons gamma et X émis par un isotope se nomme le spectre gamma. En exemple, le Césium 137 est un radio-isotope émettant un photon à 661.7 keV.

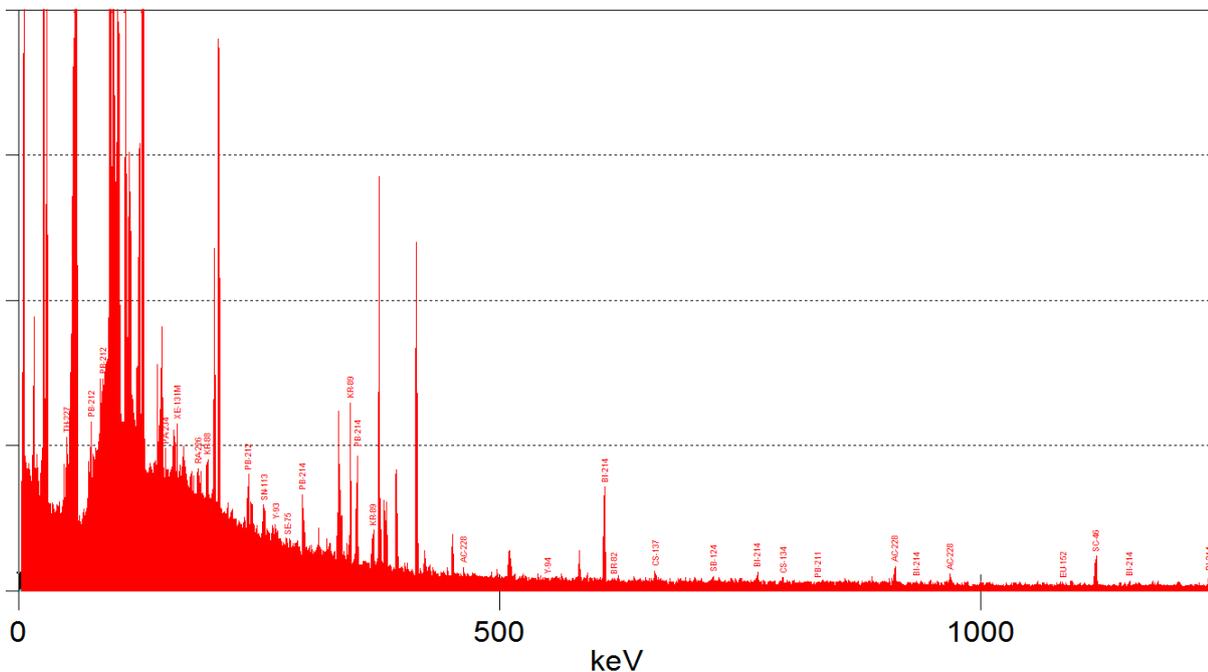


FIGURE 1: Exemple de spectre d'acquisition par voie de mesure par spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique de mesure nucléaire non-destructive utilisée pour identifier et quantifier des radio-isotopes par la mesure de l'énergie, et l'évaluation de la fréquence d'émission, des rayonnements émis par une source à caractériser. Étant donnée la nature intrinsèque des énergies émises par un radionucléide, l'identification de ce dernier n'est pas habituellement le point bloquant de la spectrométrie gamma. En outre, sa quantification, *i.e.* le processus qui en estime la quantité massique, nécessite d'estimer précisément le nombre de photons issus de ce dernier, reçus par un système

de détection nucléaire, pendant une durée de mesure donnée. Parmi l'ensemble des systèmes de détection à disposition des instrumentistes, le détecteur Germanium Hyper-Pur (GeHP) de type semi-conducteur est un système de métrologie nucléaire fréquemment utilisé pour la quantification de radio-isotopes au sein du laboratoire. L'avantage de ce dernier, par rapport à ses concurrents comme les détecteurs de type NaI(Tl) et LaBr, est d'avoir une résolution en énergie inférieure au keV. Un exemple de spectre d'acquisition obtenu à l'aide d'un détecteur GeHP est fourni en figure 1. Un détecteur NaI(Tl) possède en moyenne une résolution relative de 6% à 660 keV, là où un GeHP avoisine les 0.2%. Cette caractéristique lui permet de différencier deux pics d'énergies très proches, issus de deux photons d'énergies proches et potentiellement de radionucléides différents. Le principal inconvénient des détecteurs de type GeHP est de devoir être refroidi à l'azote liquide à une température de 77 K afin de limiter les fluctuations du courant d'obscurité et ainsi permettre le bon fonctionnement de l'appareil. L'utilisation d'un GeHP s'accompagne d'un dispositif de refroidissement (Cryostat) dont la maintenance est essentielle à la bonne démarche de la mesure. Le schéma d'un détecteur GeHP, indiquant les différentes parties le constituant, et de l'électronique associée, est donné en figure 2.

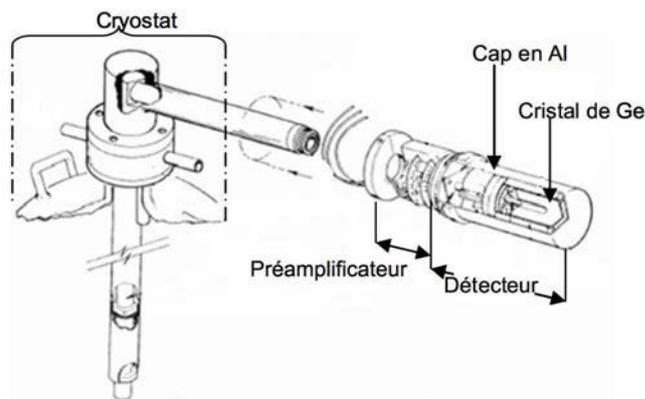


FIGURE 2: Schéma d'un détecteur Germanium Hyper-Pur (GeHP) [24]

La quantification d'un radionucléide passe par la mesure du nombre de photons qu'il émet pendant une certaine durée, par l'utilisation d'un système de détection tel qu'un détecteur GeHP : cette intensité d'émission photonique se nomme l'activité. Par définition, l'activité d'une source radioactive correspond au nombre de désintégrations par seconde produites en son sein. Ce paramètre s'estime en Becquerel (Bq). L'activité déduite d'une mesure se calcule selon l'équation suivante :

$$A = \frac{S(E)}{\epsilon(E, env)tI_{\gamma}(E)} \quad (1)$$

— A : activité du radionucléide mesurée à l'énergie E (Bq). L'activité d'une source

radioactive ne dépend théoriquement pas de l'énergie d'émission à laquelle elle est calculée.

- $\epsilon(E, env)$: rendement (efficacité) de détection de la scène de mesure : ce coefficient correspond au *ratio* du nombre de désintégrations produites par la source radioactive à quantifier par le nombre d'impulsions créées et effectivement détectées par l'instrument de mesure comme le GeHP. Ce paramètre, analogue à une fonction de transfert, peut être découplé en plusieurs parties dont une efficacité intrinsèque du détecteur, et une autre relative à l'objet mesuré. La variable *env* rassemble l'ensemble des paramètres physiques influant sur l'efficacité de détection. Parmi ces derniers, on retrouve notamment la composition matricielle, la répartition des matériaux le composant, la forme du terme source et la géométrie de la scène de mesure.
- $S(E)$: surface extraite du spectre à l'énergie E (coups) : il s'agit du nombre de coups reçus par le détecteur pendant une durée t , à l'énergie E . Cette valeur est tirée du spectre à l'aide de logiciels d'extraction commerciaux [15][17].
- $I_\gamma(E)$: intensité de l'énergie d'émission considérée (%) : ce paramètre représente la probabilité relative avec laquelle un photon d'énergie E est émis. Cette probabilité peut être très différente suivant le radio-isotope et l'énergie considérés.
- t : durée d'acquisition du spectre (s)

Une fois l'activité d'une source radioactive calculée, la détermination de sa masse est possible à l'aide de l'équation suivante, dans laquelle A_m représente l'activité massique en Bq/g du radionucléide d'intérêt :

$$m = \frac{A}{A_m} \quad (2)$$

La surface extraite du spectre $S(E)$ représente le nombre d'impulsions, aussi appelées coups, créées au sein du détecteur GeHP et effectivement détectées par ce dernier à l'énergie E . Un certain nombre de logiciels commerciaux proposent des méthodes numériques d'extraction de ces données essentielles à la quantification [15] [17]. Parmi ces techniques, une méthode consiste à utiliser la forme gaussienne des distributions de coups à extraire en ajustant ces dernières à l'aide d'une loi normale. Une fois la moyenne et l'écart type calculés à l'aide de méthodes d'analyse statistique, comme celles du maximum de vraisemblance ou des moindres carrés, le nombre de coups sous chaque pic d'énergie est approché par l'intégrale sous la distribution gaussienne utilisée pour l'ajustement.

La figure 3 donne un exemple d'extraction d'une surface dans le cas de la mesure d'un échantillon de plutonium. Cet élément métallique, et plus précisément son isotope 239,

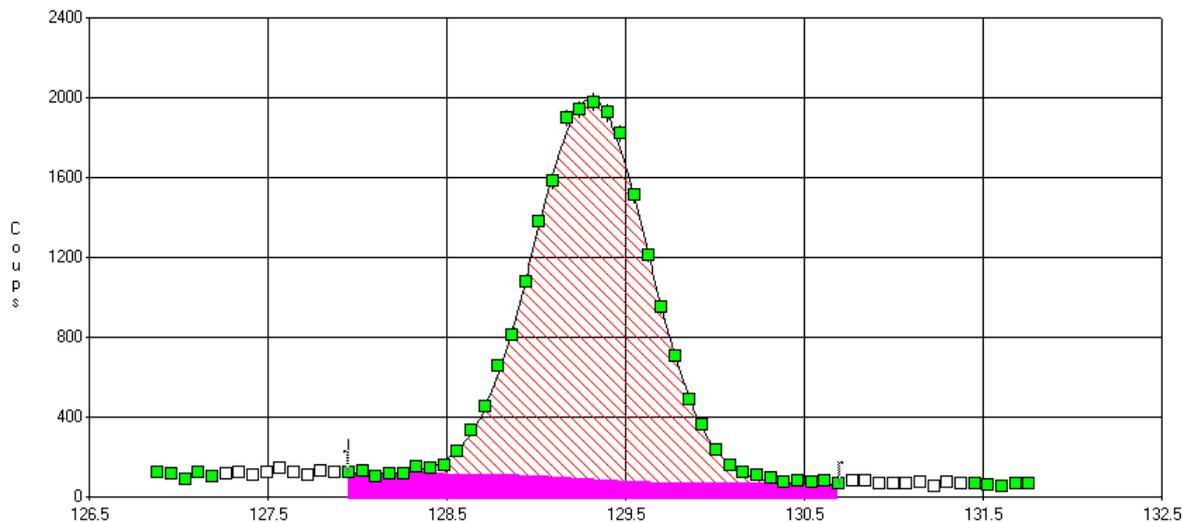


FIGURE 3: Extraction d'une surface issue d'un spectre d'acquisition par spectrométrie gamma à l'énergie 129.3 keV du ^{239}Pu .

possède, entre autres, dans son spectre énergétique d'émission, une raie gamma à l'énergie 129.3 keV. Les carrés verts et blancs de la figure 3 donnent le nombre de coups effectivement comptés par le détecteur GeHP à une énergie donnée. La partie violette représente le fond Compton estimé par la méthode numérique qui est déduit de l'estimation de la surface extraite $S(E)$. Ce fond, assimilable à un bruit, est issu de l'Effet Compton subi par les photons d'énergies supérieures à 129.3 keV. Enfin, la zone hachurée rouge désigne l'intégrale sous la gaussienne utilisée pour approcher la surface extraite recherchée. C'est cette donnée $S(E)$ qui est utilisée dans l'équation 1 pour calculer l'activité recherchée, laquelle mène à la masse de radionucléide par l'équation 2.

Détermination du rendement de détection de la scène de mesure

L'autre paramètre nécessaire au calcul de l'activité à estimer est l'efficacité de détection de la scène de mesure gamma $\epsilon(E)$, également nommée rendement de détection de la scène de mesure. Ce dernier, analogue à une fonction de transfert, est égal au *ratio* du nombre de photons émis par une source gamma à mesurer sur le nombre de photons effectivement reçus par le détecteur, sur une durée de mesure finie. Outre l'énergie d'émission des photons gamma, les facteurs influant sur ce coefficient peuvent être décomposés en différentes sous-parties issues des multiples acteurs du processus de mesure : le détecteur GeHP, d'éventuels écrans radiologiques, l'angle solide d'attaque, l'atténuation de l'objet mesuré, et l'auto-absorption de la source. En réalité, cette fonction de transfert dépend d'un grand nombre de paramètres comme la composition de l'objet mesuré, la répartition

des sources radioactives qui le compose, l'agencement et la capacité d'atténuation des matériaux inclus en son sein, ou encore la localisation de la ou des sources (homogène, hétérogène) (figure 4).

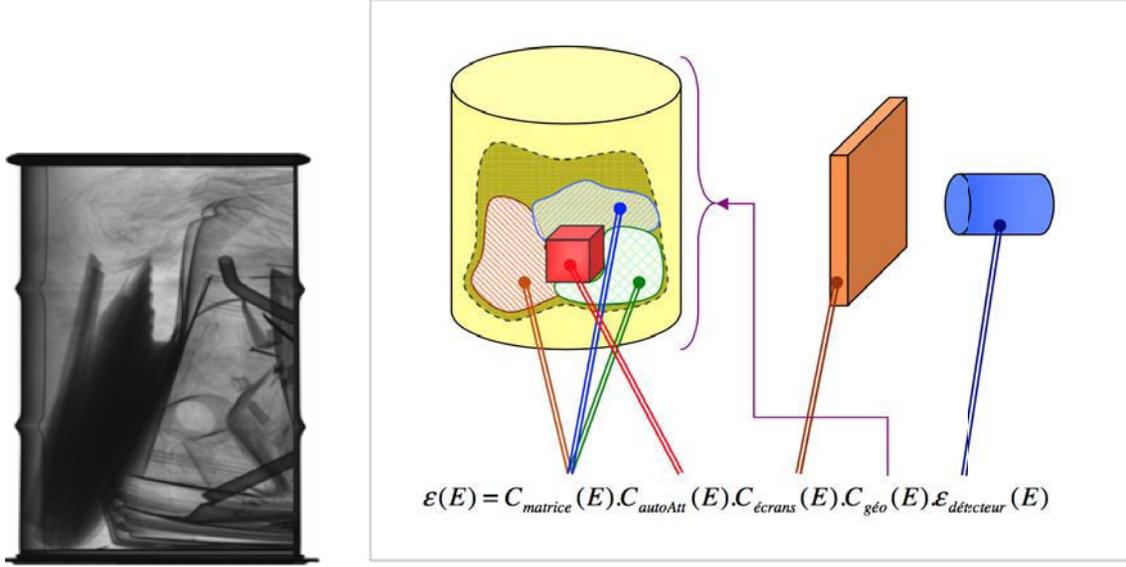


FIGURE 4: Exemple de décomposition des différents facteurs constituant le rendement de détection d'une scène de mesure appliquée aux déchets nucléaires de types fûts pétroliers (droite), accompagné d'une radiographie X d'un fût de type pétrolier (gauche).

Au vu de toutes ces caractéristiques, le rendement de détection de la scène de mesure peut être schématiquement décomposé de la façon suivante :

$$\epsilon(E) = \epsilon_{détecteur}(E) C_{matrice}(E) C_{géo}(E) C_{écrans}(E) C_{autoAtt}(E) \quad (3)$$

où :

- $\epsilon_{détecteur}(E)$ représente le rendement de détection intrinsèque du détecteur,
- $C_{matrice}(E)$ représente la capacité des éléments non radioactifs constituant l'objet mesuré à atténuer le signal gamma émis,
- $C_{géo}(E)$ représente l'effet de la géométrie de l'objet et de l'angle solide d'attaque sur l'efficacité de détection,
- $C_{écrans}(E)$ représente l'atténuation d'éventuels écrans placés entre l'objet et le détecteur,
- $C_{autoAtt}(E)$ représente la capacité de la source radioactive à atténuer son propre signal gamma : c'est l'auto-atténuation.

Le rendement intrinsèque du détecteur $\epsilon_{det}(E)$ est défini comme le *ratio* du nombre de

photons effectivement détectés sur le nombre de photons l'ayant atteint, à l'énergie E donnée. Ce dernier est principalement déterminé par deux méthodes : l'étalonnage expérimental, par utilisation d'une source étalon ou d'objet étalon, et l'étalonnage numérique, par modélisation du détecteur. La première méthode d'étalonnage propose de mesurer une source étalon d'activité connue, d'en extraire les surfaces du spectre en énergie, pour estimer l'efficacité intrinsèque du détecteur par ajustement des points ainsi calculés par une loi empirique du type $\log(\epsilon(E)) = \sum a_i E^{-i}$. Outre sa facilité d'exécution, cette technique d'étalonnage a pour caractéristique de dépendre des surfaces extraites du spectre de mesure, et *a fortiori*, de la qualité de leurs estimations par ajustement gaussien. De plus, cette dernière ne permet pas d'estimer les caractéristiques physico-géométriques internes du détecteur.

Concernant l'efficacité photonique de l'objet, représentée en figure 4 par les capacités d'atténuation $C_{\text{mat}}(E)$ et $C_{\text{géo}}(E)$, une méthode d'étalonnage dite numérique utilise des codes de calcul de transport de particules 3D de type Monte Carlo tels que MCNP [23], TRIPOLI [36] ou Geant4 [10]. Cette technique possède l'avantage de pouvoir obtenir en finalité le rendement de détection d'une scène de mesure gamma pour n'importe quelle énergie d'intérêt, et ce, avec une précision de calcul maîtrisée. En effet, la variance obtenue sur l'efficacité de détection décroît proportionnellement avec le carré du nombre de particules tirées par le code Monte Carlo, et dépend donc uniquement du temps et de la puissance de calcul. Néanmoins, l'utilisation de tels codes de calcul suppose de connaître explicitement les caractéristiques physico-chimiques des objets traités, telles que leurs compositions et la répartition des différents éléments le composant. Les objets mesurés dans le cadre de la gestion des déchets nucléaires, tels que des fûts de type pétrolier par exemple, possèdent, suite à leur production, des capacités d'atténuation gamma uniques et non reproductibles rendant difficile l'utilisation directe de tels codes. De fait, ces derniers grèvent toute automatisation du procédé de mesure.

La prochaine section de cette partie bibliographique met en place un ensemble d'outils de mathématiques appliquées utilisés dans le cadre de la thèse.

Mathématiques appliquées à la quantification nucléaire

Introduction

L'évaluation d'une donnée physique n'est pas toujours chose aisée dans le monde scientifique, et ce, quelque qu'en soit le domaine d'étude. Des siècles durant, les chercheurs ont utilisé des méthodes expérimentales dans le but d'estimer des observables d'intérêt. Il s'agissait alors avant tout d'observer les phénomènes naturels, puis, après une analyse critique de ces derniers, d'en inférer des équations comportementales, pour en comprendre l'essence dans le but de les reproduire. Néanmoins, après des siècles et à l'avènement de l'Âge des ordinateurs, une nouvelle méthode de recherche se développa : le calcul numérique [8]. De nombreuses techniques de calcul, dites de simulation numérique, virent le jour durant la seconde moitié du XX^{ème} siècle. Elles permirent, sous condition de posséder des ordinateurs de calcul, de simuler des phénomènes physiques et d'en analyser les comportements. Peu utilisées à l'époque du fait de leurs coûts monumentaux, ses méthodes, désormais accessibles à tous, sont d'aujourd'hui devenues des outils incontournables et des éléments vitaux de la vie scientifique.

L'utilisation de la simulation numérique dans le cadre d'un système physique et d'un contexte précis peut se résumer en seul mot : modélisation. Modéliser, c'est transposer le monde physique, réel, en son analogue numérique, virtuel. Modéliser, c'est imiter un comportement physique difficilement accessible expérimentalement en utilisant conséquemment les équations le régissant. Dans le domaine de la métrologie nucléaire, de nombreux simulateurs tels que Geant4 [10], TRIPOLI [36], ou MCNP [23], dénommés codes de calcul, sont massivement utilisés pour l'évaluation de données, comme des rendements de détection d'objets complexes tels que des fûts de déchets ou des combustibles nucléaires consommés dans les centrales électriques de production. Depuis quelques années, un nouvel outil intégré dans le processus de simulation a fait son apparition, il s'agit de la métamodélisation. Cette dernière intervient pour pallier le caractère chronophage des codes de calcul, dû notamment à la précision attendue sur l'évaluation des données d'intérêt.

L'objectif principal de la métamodélisation [35] [34], nommée également émulation, est d'évaluer quasi instantanément une donnée d'intérêt, sans utilisation d'un code de simulation de temps de calcul coûteux, tout en maintenant un niveau de précision sur la valeur estimée équivalent. Il s'agit d'avoir les avantages d'un code de simulation, sans en subir le caractère potentiellement chronophage. Le principe de construction d'un métamodèle réside dans l'élaboration d'une fonction mathématique par un algorithme d'apprentissage.

C'est en somme une méthode de régression classique dont les points utilisés sont issus du code de simulation, et dont le nombre de variables d'entrée, et potentiellement de sortie, peut être très grand.

Une telle technique de construction nécessite des points issus du code de calcul. L'ensemble de ces derniers est rassemblé dans ce qui est appelé un plan d'expériences. Dans un contexte expérimental classique, un plan d'expériences est défini comme étant l'ensemble des expériences à réaliser dans le but de démontrer une relation de cause à effet entre une ou plusieurs variables d'entrées, et une ou plusieurs variables de sorties. Le pendule simple en est un exemple classique avec pour variables d'entrées la longueur du fil et l'angle d'inclinaison, et pour sortie, la période d'oscillation du pendule par exemple. Les points du plan d'expériences nécessaires à la construction d'un métamodèle ne sont pas issus d'un protocole expérimental à proprement parler, mais directement du code de calcul utilisé.

Les plans d'expériences

L'étude de ces plans est développée au travers de la théorie des plans d'expériences [6]. Il existe une multitude de plans adaptés au nombre de facteurs d'entrée et de sortie identifiés, à leurs caractéristiques, et au nombre de points souhaité. Le plan d'expériences factoriel complet en est un exemple dans le cas de facteurs d'entrée discrets, *i.e.* prenant en compte des valeurs catégorielles. Il consiste à déterminer l'ensemble des combinaisons d'entrées possibles vis-à-vis de tous les facteurs. Dans le cas d'un plan à 6 facteurs d'entrée comprenant chacun 4 niveaux, le nombre de points du plan factoriel complet correspondant est donc de 4^6 points, soit 4096 points. La réalisation d'un tel plan permet d'obtenir une vision complète et précise du comportement du système.

Le désavantage d'un plan complet réside dans le nombre de points potentiellement gargantuesque qu'il peut générer. En effet, chaque point étant par la suite simulé par le code de calcul, un caractère chronophage important peut alors apparaître. Ce dernier dépend, dans le cas de codes de simulation de transports de particules par exemple, de la précision souhaitée sur la ou les variables de sortie. Le plan factoriel fractionnaire est alors un bon compromis. Afin de réduire le nombre de points à simuler, et *de facto* le temps de calcul, certains points du plan factoriel peuvent être fusionnés. Le nouveau plan ainsi formé doit néanmoins être orthogonal, et par définition posséder une matrice diagonale [29] afin de garantir une bonne répartition des observations ou des simulations. La mise en place de

plan fractionnaire permet entre autre d'identifier les facteurs influant majoritairement sur la sortie, mais ne permet néanmoins pas d'apprécier l'influence des interactions des facteurs d'entrée au-dessus d'un certain ordre, dont on considère qu'elles sont nulles : on parle alors de résolution R . Cette dernière s'obtient *via* l'équation $R = 1 + f$, où f est la force du plan d'expériences [29]. Dans l'exemple précédent, un plan fractionnaire de résolution $R = 5$ permet d'estimer l'ensemble des effets principaux, ainsi que les interactions entre deux facteurs, sous l'hypothèse que les interactions de trois facteurs et plus sont nulles. Un plan de résolution $R = 3$ permet d'estimer tous les effets principaux, en supposant que toutes les interactions soient nulles. En reprenant l'exemple précédent du plan à 6 facteurs de 4 niveaux chacun, une résolution $R = 5$ permet de réduire le nombre de points de 4^6 points, soit 4096, à 4^{6-1} , soit 1024. Pour $R = 3$, le nombre de points du plan passe même à 4^{6-3} , soit 64.

Une voie d'échantillonnage, et par conséquent de construction de plans d'expériences, est regroupée dans les méthodes dites LHS [27][22][perrin] pour *Latin Hypercube Sampling*. Cette dernière consiste à remplir uniformément l'espace des variables d'entrée et de la manière la plus étendue possible selon un certain critère de concordance, ou *discrepancy* en anglais : on parle alors de *Space Filling*, de remplissage de l'espace. Contrairement à une méthode dite de Monte Carlo, consistant à tirer aléatoirement les points du plan d'expériences, les techniques d'échantillonnage LHS garantissent une couverture optimale de l'espace des variables d'entrée. Cela a pour intérêt principal de n'omettre aucun sous-espace d'entrée, et ainsi d'obtenir le comportement de la sortie d'intérêt sur l'ensemble de son domaine de définition. Afin de permettre une telle uniformité, différents critères d'évaluation sont utilisés. Le critère « maximin » est l'un de ces critères. Un plan dit « maximin » maximise la distance minimale entre deux points du plan, et minimise le nombre de paires de points exactement séparés par la distance minimale. En d'autres termes, il s'agit d'un critère qui favorise le remplissage de l'ensemble de l'espace des entrées. Le plan d'expériences LHS est présenté au travers de la figure 5.

Algorithmes de métamodélisation

La métamodélisation est un outil de mathématique appliquée permettant, *via* la théorie des plans d'expériences, et notamment les méthodes LHS, d'estimer rapidement et précisément une variable d'intérêt, et ne nécessitant pas d'appels répétitifs chronophages au code de calcul utilisé. Sa construction nécessite d'estimer une première fois les points du plan d'expériences ainsi formé par utilisation du code de simulation utilisé, puis de procéder à une régression, par les entrées du plan, des sorties du code obtenues. Pour ce

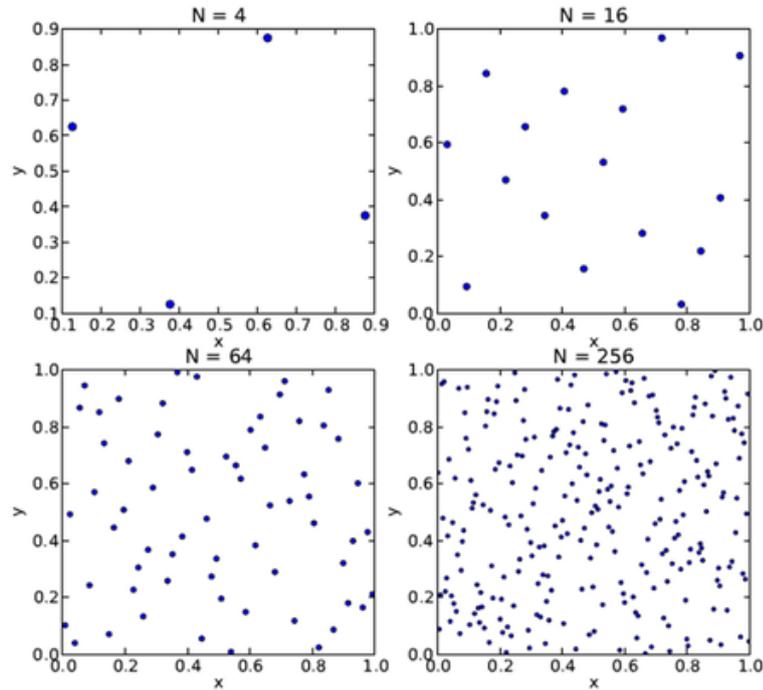


FIGURE 5: Plan d'expériences LHS à deux entrées pour différents nombres de points d'échantillonnage, respectivement de gauche à droite et de haut en bas : 4, 16, 64, 256.

faire, de multiples algorithmes, tels que les forêts aléatoires (Random Forest), les processus gaussiens par arbres bayésiens (BTGP) [4], les splines (ACOSSO) [32][3] ou encore les réseaux de neurones [14], construits à partir de différents cadres mathématiques, sont utilisés. Parmi ces derniers, deux algorithmes ont particulièrement attiré notre attention dans ce projet : les méthodes ACOSSO et celles dites de krigeage.

ACOSSO

La méthode de régression ACOSSO [32], pour *Adaptative Component Selection Srinkage Operator*, fait partie de la catégorie des méthodes SS-ANOVA d'analyse de la variance par courbe de lissage. Il s'agit d'une méthode non paramétrique apte à considérer des entrées continues et/ou catégorielles. Son intérêt réside dans la décomposition de la fonction de sortie recherchée en une somme d'éléments de type spline de dimension croissante. En supposant un vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (X_1, \dots, X_d)$ et une sortie Y , le modèle f rendu par l'algorithme de régression ACOSSO peut s'écrire comme suit :

$$f(\mathbf{X}) = b + \sum_{j=1}^p f_j(X_j) + \sum_{j < k}^p f_{jk}(X_j, X_k) \quad (4)$$

La fonction f ainsi définie est obtenue par une méthode de minimisation, analogue à celle des moindres carrés, utilisant une composante adaptative paramétrée à l'aide du vecteur des poids adaptatifs $0 < w_j < +\infty$, et d'un paramètre de réglage de type *tuning* λ . Ces poids permettent de jouer sur la qualité d'ajustement de l'algorithme aux données, et ainsi d'obtenir la meilleure fonction estimatrice. La fonction f est donc choisie de manière à minimiser :

$$\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - f(x_i))^2 + \lambda \sum_{j=1}^q w_j \|P^j f\|_{\Phi} \quad (5)$$

où $\|P^j f\|_{\Phi}$ représente la projection orthogonale de f sur un espace défini.[2].

Pour plus de précision sur l'algorithme de régression ACOSSO, sur sa construction théorique et/ou son utilisation pratique, le lecteur est renvoyé vers [32].

Méthodes de Krigeage – DiceKriging

Un autre type d'algorithme de régression utile dans la construction de métamodèles est proposé par les méthodes de krigeage [4] [19] [30]. Leur principal intérêt réside dans la construction d'une fonction $Y : \mathbf{X} \rightarrow Y(\mathbf{X})$, considérant un vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (X_1, \dots, X_d)$, comme la somme d'une partie déterministe $\mu(\mathbf{X})$, et d'une partie stochastique $Z(\mathbf{X})$ comme suit :

$$Y(\mathbf{X}) = \mu(\mathbf{X}) + Z(\mathbf{X}) \quad (6)$$

Le rôle de la fonction $\mu : \mathbf{X} \rightarrow \mu(\mathbf{X})$ est d'apporter la tendance moyenne de la fonction de sortie Y de manière analogue à une régression standard. La méthode de krigeage suppose connue une structure paramétrique de cette fonction, et lui associe notamment une base d'écriture. En supposant que cette dernière soit polynomiale, il est possible de considérer des coefficients réels β_i , et des fonctions de base f_i tels que :

$$\mu(\mathbf{X}) = \sum_i (\beta_i \cdot f_i(\mathbf{X})) \quad (7)$$

Quant à elle, la fonction $Z : \mathbf{X} \rightarrow Z(\mathbf{X})$ est définie comme étant un processus centré de carré intégrable, de noyau de covariance C , auquel on associe également une structure paramétrique. Ce dernier peut être défini via différentes méthodes de construction comme celles des noyaux de covariance Gaussiens, Exponentiels, ou Matérn 3/2 et 5/2. Le choix du noyau de covariance du processus stochastique est déterminant dans la construction d'un métamodèle de type krigeage. Pour de plus amples informations sur le sujet, le lecteur est renvoyé vers Rasmussen et al. [4] pour la partie théorique, et vers Roustant et al. [30] pour l'implémentation pratique de la méthode sur \mathbb{R} , avec notamment les bibliothèques DiceKriging et DiceOptim qui sont utilisées dans toute l'étude.

Validation R^2 et Q^2

Les méthodes de régression en général, avec entre autre ACOSSO et le Krigeage, permettent de construire un prédicteur de $Y(\mathbf{X})$ en des valeurs de \mathbf{X} non observées. Néanmoins, ces techniques ne permettent pas à elles seules de conclure de la qualité des prédictions obtenues, et il est nécessaire de vérifier leurs capacités, à premièrement approximer les données du plan d'expériences, et deuxièmement à en prédire de nouvelles. Dans ce but, deux coefficients inhérents aux données du plan d'expériences et aux prédictions du modèle construit sont calculés.

Le premier, le coefficient d'approximation R^2 reflète la capacité du modèle établi à prédire les valeurs de sortie relatives aux différentes entrées du plan d'expériences. Ce dernier s'exprime comme suit :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=0}^N (\hat{y}_i - y_i)^2}{\sum_{i=0}^N (\bar{y} - y_i)^2} \quad (8)$$

Avec :

- \hat{y}_i les valeurs de sortie approximées par le modèle caractérisé
- y_i les sorties du plan d'expériences utilisées pour l'approximation : cet ensemble est aussi appelé base d'apprentissage, et peut concerner tout ou partie des sorties du plan d'expériences
- \bar{y} la moyenne empirique des y_i

Le second coefficient, nommé Q^2 , représente quant à lui le coefficient de prédiction. Il a pour objectif de rendre compte des capacités du modèle à prédire, c'est-à-dire à obtenir des valeurs de sorties issues de nouvelles valeurs d'entrées non utilisées pour la construction du modèle. Sa forme est analogue à celle de R^2 à la différence qu'elle n'utilise non plus une base d'apprentissage, mais une base de test. Cette dernière concerne des points non-utilisés pour la métamodélisation. En cas d'absence d'une telle base de test, du fait d'un faible nombre de points disponibles, une méthode de validation croisée de type *Leave-One-Out* (LOO) est alors utilisée.

L'analyse des deux valeurs R^2 et Q^2 est établie par comparaison à la valeur 1. Plus ces dernières sont proches de l'unité, plus le modèle est respectivement capable d'approximer et de prédire. Les modèles rendant un coefficient de prédiction inférieur à 0.6 sont rejetés.

Applications à la détection et quantification de matières nucléaires

La métamodélisation, ainsi que deux techniques de construction utilisées dans le cadre de cette thèse (ACOSSO, krigeage), ayant été présentées, il s'agit désormais d'appliquer ces méthodes issues du domaine des mathématiques appliquées aux applications de la métrologie nucléaire. Les travaux doctoraux présentés chronologiquement par Vigineix [37] et Guillot [13] ont amené ce dernier à utiliser des techniques de mathématiques appliquées afin, dans un premier temps, de développer une méthode de caractérisation numérique d'un détecteur GeHP utilisé en spectrométrie gamma, puis surtout dans un second temps, de construire une technique d'étalonnage numérique du rendement de détection d'une scène de mesure par modélisation équivalente.

Comme rappelé précédemment, les systèmes de détection gamma Germanium Hyper-Pur (GeHP) sont des détecteurs utilisés dans le cadre de la mesure d'objets radioactifs, notamment du fait de leur bonne résolution relative en énergie. Il a également été dit que de tels outils de mesure possèdent leurs propres efficacités de détection. En effet, sur l'ensemble des photons N_p d'énergie E qui atteindront le détecteur GeHP lors de la mesure d'un objet radioactif d'intérêt, un certain nombre N sera effectivement comptabilisé, le rapport des deux N_p/N donnant ladite efficacité. Ce rendement de détection du détecteur en tant que tel, nommé aussi rendement intrinsèque du détecteur, dépend des paramètres physico-géométriques des différents éléments qui le constituent. Parmi ces derniers figure une liste réduite d'éléments les plus influents [13], comme par exemple le diamètre et la longueur du cristal de germanium, ou encore les dimensions des zones mortes et actives

de ce dernier, dont les valeurs sont susceptibles d'évoluer avec le temps. En effet, l'énergie déposée par les photons traversant le détecteur peuvent, après plusieurs années d'utilisation, modifier le cristal de germanium, et *de facto*, l'efficacité intrinsèque du détecteur. Ces aspects sont considérés au sein de la méthode de caractérisation de détecteur développée durant les travaux de thèse de Guillot [13].

Outre la détermination de l'efficacité intrinsèque d'un détecteur, cette méthode de caractérisation permet en soi de faire un état des lieux d'un GeHP au temps t , et théoriquement de tout autre système de détection. L'idée de la méthode est de combiner l'utilisation du code de simulation de transport de particules 3D MCNP avec l'information tirée de mesures expérimentales de sources radioactives de spectres d'émission en énergie et d'activités connus, et d'obtenir, *via* un algorithme d'optimisation, l'ensemble des paramètres physico-géométriques internes du détecteur minimisant l'écart relatif entre le code de simulation utilisé, *i.e.* MCNP, et les points expérimentaux. Tout l'intérêt de la méthode réside dans l'utilisation d'un nombre réduit de trois points expérimentaux relatifs à la mesure de deux sources calibrées multi-émettrices gamma couvrant la gamme d'énergie d'intérêt, par exemple de 53 à environ 1100 keV. Cette technique de caractérisation par construction de la réponse numérique du détecteur, ayant d'ailleurs fait l'objet d'un brevet [31], est utilisée au sein de cette thèse, notamment dans le cadre du découplage de l'efficacité intrinsèque du détecteur de celle de la scène de mesure.

Etalonnage numérique de la scène de mesure

L'ensemble du travail doctoral de Guillot [13] se place dans le contexte de la mesure nucléaire d'objets issus de différents procédés de production du CEA-DAM. Les objets d'intérêts à traiter proviennent de modes de production divers et variés, tels que du traitement de fûts de déchets, de la gestion de matière en rétention ou encore relatif à l'inventaire des matières nucléaires. Ces derniers génèrent des éléments à traiter aux caractéristiques physico-chimiques distinctes et uniques. L'utilisation de méthodes standards d'étalonnage empirique de la scène de mesure pour l'analyse métrologique des-dits objets se trouve être difficile à mettre en place des points de vue matériel, financier, et humain. Afin de pallier cette non-reproductibilité des objets gérés, l'idée des études menées durant la thèse de Guillot est de construire une fonction mathématique, ou métamodèle, capable de reproduire l'ensemble des *scenarii* de mesure envisageables relatifs à un certain panel d'objets d'intérêts. Pour cela, un nombre limité de paramètres influant sur le rendement de détection est défini. Ces derniers concernent notamment la forme de l'objet en question, ses caractéristiques extérieures (hauteur, rayon, épaisseurs), les matériaux qui le composent,

leurs densités, la distance de mesure séparant l'objet du détecteur, *etc.*

Ces paramètres sont définis de manière à s'assurer qu'ils définissent entièrement, à eux seuls, le rendement de détection de la scène de mesure, hors influence de l'efficacité intrinsèque du détecteur. On suppose ainsi qu'ils forment une base d'estimation du dit rendement. Ce groupe de paramètres est ici rassemblé sous le vecteur \mathbf{X} . La mise en place d'un plan d'expériences construit sur les composantes de \mathbf{X} permet, *via* l'utilisation du code de calcul et de simulation de transport de particules 3D MCNP [23], d'obtenir pour chacun des points qui le compose une estimation robuste du rendement de détection de la scène de mesure. Puis, par l'utilisation d'algorithmes de régression, comme ACOSSO ou une méthode de Krigeage par exemple, un métamodèle M , prenant en entrée le vecteur \mathbf{X} , et rendant en sortie le rendement de détection $\epsilon(\mathbf{X})$, est construit. Plus rapide que le code de simulation MCNP, un tel modèle est capable d'estimer quasi-instantanément le rendement de détection d'une scène de mesure donnée, pour un certain vecteur d'entrée \mathbf{X} .

Si certains paramètres d'entrée comme les dimensions extérieures, ou la masse de l'objet, sont disponibles directement avec une très grande précision, d'autres en revanche le sont beaucoup moins. Par exemple, dans le cas de la mesure d'un fût radioactif de type pétrolier, il n'est pas toujours facile de connaître la répartition des différents matériaux le composant, ainsi que leurs différentes densités associées. Afin de contourner ce problème, et donc parvenir à quantifier une masse de radionucléide, le vecteur d'entrées \mathbf{X} est tiré aléatoirement sur son domaine de définition un grand nombre de fois. Chaque point d'entrée généré est fourni au métamodèle pour en obtenir un rendement de détection associé. De là, des critères physiques et statistiques sont appliqués à ces prédictions et permettent l'obtention d'une masse : il s'agit d'une méthode dite de *scoring*. Ces critères concernent par exemple une comparaison de la masse ou du volume de l'objet par rapport à certains seuils préalablement définis. L'étude de validation de la méthode proposée est encourageante du point de vue de la qualité de la quantification du radionucléide utilisé pour cette dernière, à savoir le ^{239}Pu .

Approche bayésienne pour la résolution de problèmes inverses

Introduction

Parvenir à quantifier une masse de radionucléide incluse dans un objet revient à obtenir, par une méthode robuste et fiable, une estimation de cette masse ainsi que son incertitude associée. Une telle technique de quantification a pour objectif d'identifier la valeur de masse la plus probable parmi toutes celles envisageables. La branche des mathématiques utilisée dans ce but est celle des statistiques, et plus précisément celle des probabilités. Des décennies de recherche théorique [18] dans le domaine des probabilités permettent aujourd'hui d'identifier deux principaux mouvements idéologiques, formant une dualité interne au problème de la mathématisation du probable : les approches fréquentistes et bayésiennes.

Les approches fréquentistes sont dites objectives au sens où elles donnent « la mesure de la possibilité des choses » selon Derosières [7], et se cantonnent donc aux données factuelles : on parle d'information *a posteriori*. Un lancer de dé non pipé à six faces permet de donner une probabilité d'occurrence de $1/6^{\text{ème}}$ à chacune des faces. Trois lancers successifs donnent une probabilité de $1/6^3=1/216$ à chacune des faces d'apparaître à chacun des trois lancers. Quant à elles, les approches bayésiennes sont dites subjectives, et raisonnent, non plus en termes de « possibilités de », mais de « chance de ». Elles utilisent des données issues de la connaissance ou de l'ignorance d'un système d'étude, en leurs donnant différents poids d'importance. En revenant sur le lancer de dé, sachant que le dé est pipé ou partiellement pipé, il est possible d'augmenter, ou de diminuer, la chance d'occurrence d'une face par rapport à une autre, on parle alors d'information *a priori* ou de degré de connaissances subjectives, ce que ne permet pas l'approche fréquentiste.

Mise en équations : théorème de Bayes

Introduite presque simultanément par Bayes et Laplace au XVIII^e siècle, la théorie des approches bayésiennes est utilisée en inférence statistique pour estimer un paramètre à partir de la connaissance disponible à son sujet, et des observations d'autres paramètres qui lui sont associés. L'ensemble de la logique est explicité par le théorème de Bayes. Dans sa version discrète, il considère deux événements A et B , pour lesquels il est possible d'obtenir la probabilité de l'évènement A sachant l'évènement B en fonction des probabilités

respectives d' A et B , et de celle de B sachant A . Dans le cas où A et B sont des variables discrètes, ce théorème s'écrit :

$$P(A|B) = \frac{P(A)P(B|A)}{P(B)} \quad (9)$$

Au-delà du cas discret, le théorème de Bayes possède une version mettant en scène des variables continues non plus relatives à des probabilités conditionnelles, mais à des densités de probabilités conditionnelles. En considérant les variables aléatoires X et Y , la densité de probabilité de X conditionnée par Y s'explique de manière analogue à l'équation précédente :

$$\pi(X|Y) = \frac{\pi(Y|X)\pi(X)}{\pi_Y(Y)} \quad (10)$$

$$\pi_Y(Y) = \int_X \pi(Y|X)\pi(X)dX \quad (11)$$

Le dénominateur de l'équation (10) se nomme la marginale de la variable Y . Elle s'écrit sous la forme d'une intégrale sur X (Eq. (11)). On peut donc écrire le théorème de Bayes sous forme d'une égalité proportionnelle :

$$\pi(X|Y) \propto \pi(Y|X)\pi(X) \quad (12)$$

La partie à gauche de l'équation (12), $\pi(X|Y)$, représente la densité de probabilité *a posteriori* de la variable X sachant Y , et est proportionnelle au produit de la densité de probabilité de Y sachant X , $\pi(Y|X)$, nommée aussi fonction de vraisemblance de Y conditionnée par la connaissance de X , et de la densité de probabilité *a priori* de X , $\pi(X)$. Cette dernière représente l'information subjective disponible sur la variable X , et permet donc d'affiner la construction de la loi de probabilité *a posteriori* de X . Dans le cas d'une variable X donnée et caractérisée, une loi de probabilité normale de variance faible peut ainsi être prise pour $\pi(X)$. En revanche, si les caractéristiques de X sont peu ou pas connues, une loi de probabilité uniforme sur l'ensemble du domaine de définition de X peut être appliquée : on parle alors de densité de probabilité *a priori* non-informative.

Cas à N variables aléatoires

Dans un cas complexifié mettant en scène non plus 2 variables aléatoires X et Y , mais un nombre $N > 2$, il est possible d'exprimer la densité de probabilité *a posteriori* d'une de ces variables sachant les autres par le théorème de Bayes, de manière analogue à l'équation

(12). En considérant $(X_1, X_2, \dots, X_{N-1}, \mathbf{Y})$ un ensemble de N variables aléatoires, on a dans ce cas pour la densité de probabilité conditionnelle *a posteriori* du vecteur \mathbf{Y} :

$$\pi(X_1, X_2, \dots, X_{N-1} | \mathbf{Y}) \propto \pi(\mathbf{Y} | X_1, X_2, \dots, X_{N-1}) \pi(X_1, X_2, \dots, X_{N-1}) \quad (13)$$

La situation dans laquelle les composantes du vecteur $\mathbf{Y} = (Y_1, \dots, Y_P)$ sont indépendantes et identiquement distribuées (*iid*) donne la vraisemblance de \mathbf{Y} sous la forme d'un produit des vraisemblances des Y_i . L'écriture est même simplifiée lorsque les variables $Y_i | \mathbf{X}$ sont distribuées selon une loi Normale de moyenne $\mu_i(\mathbf{X})$ et d'écart-type $\sigma_i(\mathbf{X})$:

$$\pi(\mathbf{Y} | \mathbf{X}) = \prod_{i=1}^P \pi(Y_i | \mathbf{X}) = \prod_{i=1}^P \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma_i^2(\mathbf{X})}} e^{-\frac{(Y_i - \mu_i(\mathbf{X}))^2}{2\sigma_i^2(\mathbf{X})}} \quad (14)$$

Dans un cadre bayésien, estimer une ou plusieurs variables aléatoires tel que le vecteur \mathbf{X} , comme par exemple une masse de radionucléide contenue dans un objet nucléaire d'intérêt, revient à obtenir sa ou leurs densités de probabilité conditionnelle *a posteriori* $\pi(\mathbf{X} | \mathbf{Y})$. Plusieurs voies de calcul sont envisageables. Dans le cas où l'intégrale de l'équation (11) peut être obtenue numériquement ou analytiquement, la densité de probabilité conditionnelle recherchée peut être estimée sans difficulté. En revanche, lorsque cette dernière n'est pas approchable, la relation de proportionnalité de l'équation (12) peut être utilisée pour estimer la densité recherchée *via* l'utilisation du formalisme MCMC.

Méthodes de Monte Carlo par chaîne de Markov (MCMC)

Afin d'estimer une loi *a posteriori* difficilement approchable numériquement, plusieurs méthodes dites de Monte Carlo par chaînes de Markov (MCMC) sont utilisées. De manières analogues aux méthodes de Monte Carlo classiques, ces dernières ont pour caractéristiques de tirer aléatoirement un grand nombre de fois les variables d'intérêt, pour au final en échantillonner les densités de probabilité *a posteriori*. L'avantage de telles techniques est d'utiliser des chaînes de Markov. Par définition, et de manière synthétique, une chaîne de Markov représente une suite de variables aléatoires $X_0, X_1, X_2, \dots, X_n$, dont chaque terme ne dépend que de celui le précédant directement, les termes d'ordres inférieurs étant supposés connus. Le passage d'un terme à l'autre se fait *via* l'utilisation d'un noyau de transition, encore appelé noyau markovien. Un célèbre exemple de chaîne de Markov est la marche aléatoire. Cette dernière satisfait, dans l'exemple d'un noyau normal centré en 0 et d'écart-type h , l'équation (15) :

$$\forall n \in \mathbb{N}, \quad X_{n+1} \leftarrow X_n + \delta, \quad \delta \sim \mathcal{N}(0, h) \quad (15)$$

L'utilisation de chaînes de Markov pour l'échantillonnage de lois *a posteriori* se fait au travers d'algorithmes de construction tels que celui de Metropolis-Hastings (MH), ou encore de l'échantillonneur de Gibbs [9]. Concernant ce premier, son utilisation passe par l'évaluation de la loi *a posteriori* en deux termes consécutifs d'une chaîne de Markov impliquant les variables aléatoires d'intérêt, puis en l'application d'un critère de rejet sur leur *ratio*. Plus simplement, en considérant le terme d'ordre n de la suite de Markov, il est possible d'estimer la loi de probabilité *a posteriori* en ce point, par exemple *via* l'utilisation de code de calcul, ou code de simulation. Puis, suite au tirage de terme suivant d'ordre $n + 1$ de la chaîne, une nouvelle estimation est possible. Enfin le *ratio* des deux estimations de la loi *a posteriori* est calculé. Si ce dernier dépasse 1, le terme d'ordre $n + 1$, plus probable donc que le terme n au sens de la loi *a posteriori*, est ajouté à la chaîne de Markov, et l'étape est réitérée à l'ordre $n + 2$. Si ce n'est pas le cas, le terme d'ordre $n + 1$ est comparé à un tirage aléatoire sur la loi $\mathcal{U}(0, 1)$, conservé s'il en est supérieur et supprimé sinon. Un nouveau terme alors est généré par évaluation du noyau de transition à partir du terme n .

L'algorithme MH utilisé se présente, à l'itération n , pour l'échantillonnage des PDF d'intérêts et avec q la densité de probabilité conditionnelle associée au noyau de transition, comme suit :

Données : $x(n)$

1. Générer $Y_n \sim q(y|x)$ où q est une loi de proposition
2. Choisir : $x(n + 1) = Y_n$ avec la probabilité $\rho(x(n), Y_n)$ et $x(n)$ avec la probabilité $1 - \rho(x(n), Y_n)$,

$$\text{où } \rho(x, y) = \min\left(\frac{\pi(y)q(x|y)}{\pi(x)q(y|x)}, 1\right)$$

Cet algorithme va, au fur et à mesure des tirages Monte Carlo sur la distribution cible, construire une chaîne de Markov et ainsi échantillonner la dite distribution. L'étape d'échantillonnage de l'algorithme est réitérée plusieurs milliers de fois pour au final construire un estimateur de la loi *a posteriori* recherchée. Cependant, deux éléments de construction essentiels à la bonne démarche de la méthode d'échantillonnage sont à considérer avec prudence : le burn-in, et l'ergodicité de la chaîne de Markov. Ces deux aspects sont illustrés sur la figure 6.

L'obtention du terme d'ordre $n + 1$ d'une chaîne de Markov est due au noyau de transition de cette dernière, elle-même dépendante du terme d'ordre n . En revanche, le premier terme de la chaîne étant supposé inconnu, il est tiré au sort sur une certaine loi de dis-

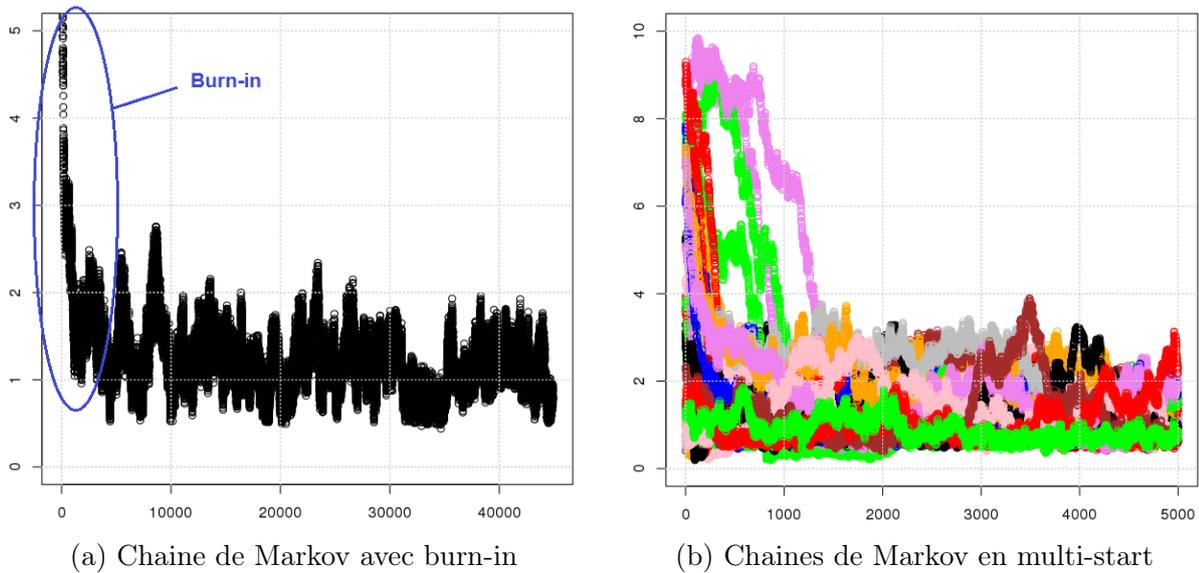


FIGURE 6: Illustration du burn-in d'une chaîne de Markov (gauche) et de la technique du multi-start relative à l'ergodicité (droite).

tribution *a priori*. De fait, les termes successifs de la chaîne étant générés à partir du premier, la forme que prend la chaîne de Markov sur ses premiers termes peut être très différente selon que son premier terme eut été proche ou non de la distribution cible. Les premiers termes de la chaîne nécessaires à sa convergence se nomment le burn-in (fig. 6a) et ne doivent pas être pris en compte dans l'estimation finale de la loi *a posteriori* cible. Le nombre de termes du burn-in peut être très différent selon la valeur du premier terme.

Le second élément à observer lors de la génération d'une chaîne de Markov par un algorithme MCMC se nomme l'ergodicité. Il s'agit ici de vérifier la convergence et la stationnarité de la chaîne, et ce quelle que soit la valeur de son premier terme. En effet, les méthodes d'échantillonnage, tel que l'algorithme de Metropolis-Hastings, ne prévoient pas de critère d'arrêt de la construction de la loi *a posteriori* recherchée. Par conséquent, le nombre d'itérations, et donc de termes de la chaîne, est *a priori* arbitraire et il n'est pas possible en l'état de s'assurer que l'ensemble de la loi *a posteriori* désirée soit entièrement visitée. Cependant, un certain nombre de tests de convergence et de diagnostics, détaillés par Robert et Casella [5], existent et donnent accès à plusieurs indicateurs de stationnarité et de convergence de la chaîne. Enfin, pour pallier à l'effet du terme initial, et à condition d'avoir accès une puissance de calcul suffisante, des chaînes multiples considérant des premiers termes différents peuvent être générées. Il s'agit d'une méthode dite du multi-start (fig. 6b). L'assurance de couvrir *a minima*, par cette technique, la loi *a priori* d'échantillonnage du premier terme, permet de contrôler l'ergodicité du résultat final.

Chapitre I

Les grandes lignes de la Méthode de quantification de radionucléides

I - 1 Mise en équation du problème de quantification

Ce chapitre a pour objectif de développer en quelques pages l'intégralité de la méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique présentée dans cette thèse. Les différents développements théoriques et expérimentaux nécessaires à la mise en place de la méthode sont davantage développés dans les chapitres II , III et IV .

Comme expliqué dans l'introduction, la finalité de ce travail doctoral concerne l'obtention d'une masse m d'un radionucléide d'intérêt présent dans des objets radioactifs. Ces derniers sont issus de différents procédés de fabrication pour lesquels aucune méthode automatique et robuste de traitement existe du fait de leur non reproductibilité de production. Dans le cadre de cette thèse, cette quantification nucléaire passe par l'emploi d'une méthode de mesure par spectrométrie gamma permettant d'obtenir, *via* un logiciel d'extraction, des surfaces $S(E)$ issues du spectre gamma. L'obtention d'une masse de radionucléide d'activité massique A_m passe par l'utilisation de l'équation de l'activité rappelée ci-après :

$$A = \frac{S(E)}{\epsilon(E, env)tI_\gamma(E)} \quad m = \frac{A}{A_m} \quad (\text{I .1})$$

Une première hypothèse fondatrice de la méthode revient à utiliser l'équation de l'activité précédente pour plusieurs énergies d'un même radionucléide, supposant donc de considérer un radio-isotope mutli-émetteur. En effet, dans ce cas, l'équation de l'activité reste théoriquement valable pour chacune des énergies en question. Ainsi, en po-

sant le vecteur des surfaces extraites $\mathbf{S} = (S_1, \dots, S_N)$ de taille N relatif au vecteur des énergies d'émission $\mathbf{E} = (E_1, \dots, E_N)$, le vecteur des rendements de détection associé $\epsilon(\mathbf{E}, env) = (\epsilon(E_1, env), \dots, \epsilon(E_N, env))$, et celui des intensités relatives d'émission $\mathbf{I}_\gamma(\mathbf{E}) = (I_\gamma(E_1), \dots, I_\gamma(E_N))$, il vient l'équation (I .2). L'ensemble env représente l'environnement de la scène de mesure, et rassemble plus précisément les différents paramètres influant sur l'efficacité de détection, connus ou non, tels que la composition interne des objets à mesurer, la répartition des matériaux les composant, ou encore la forme du terme source.

$$A = \frac{\mathbf{S}(\mathbf{E})}{\epsilon(\mathbf{E}, env)t\mathbf{I}_\gamma(\mathbf{E})} \quad m = \frac{A}{A_m} \quad (\text{I .2})$$

En combinant les deux sous-équations de (I .2), il est possible de poser le vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} , permettant ainsi d'obtenir (I .3). La définition de ce dernier permet de simplifier le problème en rassemblant le vecteur \mathbf{S} avec les différentes constantes en jeu. On peut alors écrire l'équation vectorielle suivante :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}} = \frac{\mathbf{S}(\mathbf{E})}{\mathbf{I}_\gamma(\mathbf{E})tA_m} = m\epsilon(\mathbf{E}, env) \quad (\text{I .3})$$

L'ensemble env étant partiellement inconnu, du fait de la non-reproductibilité des objets traités, comme par exemple ceux de type fûts de déchets, une efficacité équivalente en termes d'atténuation photonique est utilisé. Cette dernière prend son origine dans l'établissement d'une base d'estimation de l'efficacité de détection par le code de simulation de transport de particules 3D MCNP [23].

En considérant un vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (X_1, \dots, X_D)$ de taille D comme base d'estimation de l'efficacité de détection de la scène de mesure gamma d'un objet d'intérêt de type fût de déchets, il est possible d'obtenir un vecteur d'efficacité $\epsilon(\mathbf{E}, \mathbf{X})$ par modélisation MCNP, noté par la suite $\epsilon(\mathbf{X})$, de telle manière à avoir :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}} = m\epsilon(\mathbf{X}) \quad (\text{I .4})$$

La construction d'une telle base fait l'objet du chapitre II . Ayant désormais obtenu une base d'estimation de l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$, il convient désormais de déterminer, pour un objet mesuré donné, le vecteur d'entrée \mathbf{X} qui lui est associé. Au regard de l'équation (I .4), le problème de quantification visant à estimer une masse m de radionucléide multi-émetteur, revient en réalité à considérer une résolution de problème inverse plaçant m et \mathbf{X} comme paramètres d'entrée et le vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} comme vecteur de sortie.

Cette résolution de problème inverse est envisagée dans le cadre de cette thèse au travers d'une approche stochastique définie au sein d'un cadre de travail bayésien.

I - 2 Approche stochastique : définition du cadre bayésien de travail

Comme expliquée brièvement précédemment, l'obtention d'une masse m de radio-isotope passe par la résolution d'un problème inverse. L'approche développée consiste à considérer l'ensemble des paramètres en jeu comme étant des variables aléatoires munies de densités de probabilité (PDF) (p.21). Ce faisant, l'équation (I .4) devient :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}} = m\epsilon(\mathbf{X}) + \xi^{\text{obs}} \quad (\text{I .5})$$

$$\xi^{\text{obs}} \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \Sigma^{\text{obs}}), \quad \Sigma^{\text{obs}} = \begin{bmatrix} \sigma_{obs,1} & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & \sigma_{obs,N} \end{bmatrix}. \quad (\text{I .6})$$

Étant donné une masse m et un vecteur d'entrée \mathbf{X} , la variable aléatoire \mathbf{Y}^{obs} suit une loi normale centrée en $m\epsilon(\mathbf{X})$ de matrice de covariance Σ^{obs} . L'équation (I .5) se réécrit :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X} \sim \mathcal{N}(m\epsilon(\mathbf{X}), \Sigma^{\text{obs}}) \quad (\text{I .7})$$

Au vu du caractère aléatoire des variables considérées, il devient possible de placer le problème inverse dans un cadre bayésien. Par application du théorème de Bayes à la relation (I .7), et en posant Ξ_D comme l'espace de définition du vecteur \mathbf{X} de taille D , la densité de probabilité conditionnelle *a posteriori* de la masse m s'exprime proportionnellement comme suit [Eq. (13)] :

$$\pi(m|\mathbf{Y}^{\text{obs}}) \propto \int_{\Xi_D} \pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X})\pi(m|\mathbf{X})\pi(\mathbf{X})d\mathbf{X}. \quad (\text{I .8})$$

Les PDF des composantes du vecteur \mathbf{X} s'expriment de manière analogue à celle de la masse m . La PDF $\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X})$ représente la vraisemblance des observations sachant la masse m et le vecteur \mathbf{X} . Les deux suivantes, $\pi(m|\mathbf{X})$ et $\pi(\mathbf{X})$, sont les densités de

probabilités *a priori* de m et \mathbf{X} .

Le problème de quantification revient à obtenir une estimation robuste des densités de probabilité conditionnelles *a posteriori* de la masse de radionucléide m et des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} , *i.e.* $\pi(m, \mathbf{X} | \mathbf{Y}^{\text{obs}})$. Ces dernières sont obtenues par utilisation du formalisme d'inversion MCMC (p. 23). Néanmoins, ce type de technique nécessite un grand nombre d'estimation de l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$. L'appel au code de simulation de transport de particules 3D MCNP étant chronophage, un métamodèle de l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$ est construit.

I - 3 Métamodélisation de l'efficacité équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$

Afin d'utiliser le formalisme d'inversion MCMC pour l'échantillonnage robuste des densités de probabilité des paramètres d'entrée, à savoir la masse m d'un radionucléide d'intérêt et les composantes du vecteur de base de l'efficacité de détection équivalente \mathbf{X} , l'estimation de l'efficacité de détection doit être quasi-instantanée. Pour ce faire, un métamodèle de cette dernière est construit *via* une méthode de régression. Plusieurs de ces dernières sont testées, notamment ACOSSO et une technique de régression par processus gaussiens.

Tout d'abord, un plan d'expériences défini sur le vecteur \mathbf{X} et sur l'énergie E est généré de telle manière à couvrir le domaine d'équivalence en termes d'atténuation photonique de $\epsilon(\mathbf{X})$. De là, une efficacité de détection est obtenue pour chaque point du plan d'expériences à l'aide du code de simulation MCNP.

Enfin, un algorithme d'apprentissage permet d'obtenir un métamodèle M de l'efficacité de détection de sorte que :

$$\epsilon(\mathbf{X}) = M(\mathbf{X}) \tag{I .9}$$

Par la suite, et afin de simplifier la compréhension globale de la méthode, la notation de l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$ est conservée.

I - 4 Bilan de la méthode de quantification

L'ensemble des éléments introduits dans ce chapitre présente dans sa globalité la méthode de quantification de radionucléide proposée dans le cadre de ces travaux doctoraux. La

détermination classique d'une masse m et de son incertitude à 2σ est remplacée par celle des densités de probabilité conditionnelles des paramètres d'entrée déterminées par la résolution d'un problème inverse au sens bayésien du terme. Les différents chapitres qui suivent mettent en lumière les hypothèses physiques, ainsi que l'ensemble des conditions théoriques nécessaires à la cohérence de la méthode de quantification proposée.

Les hypothèses et les conditions physiques relatives à la génération d'une efficacité de détection équivalente en termes d'atténuation photonique, ainsi que la démarche de construction du métamodèle associé, sont exposées et justifiées dans le chapitre II . L'introduction du cadre bayésien, du formalisme d'inversion MCMC, et la mise en place d'une étude relative au comportement algorithmique de la méthode d'échantillonnage sont quant à elles développées au sein du chapitre III . Enfin, le chapitre IV et dernier chapitre propose une étude de validation expérimentale de l'ensemble de la méthode mettant en œuvre la caractérisation d'objets usuels d'intérêt traités par le laboratoire de mesures nucléaires dans le cadre de ses missions.

Chapitre II

Détermination du rendement de détection équivalent d'une scène de mesure par spectrométrie gamma

Comme explicité dans le précédent chapitre, dont le but a été de résumer brièvement l'intégralité de la méthode de quantification présentée dans le cadre de la thèse, l'efficacité de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma, encore appelée rendement de détection, est difficile à estimer pour les objets d'intérêt de cette étude. En effet, ces derniers représentent pour la plupart des fûts de déchets radioactifs dont la production les rend non-reproductibles par leurs compositions et répartitions internes des matériaux, ou encore par le nombre et la forme géométrique de leurs termes sources émetteurs.

Ce chapitre a pour objectifs de mettre en place et de justifier les hypothèses physiques de modélisation nécessaires à la construction de l'efficacité de détection équivalente d'une scène de mesure par spectrométrie gamma, explicitée dans le premier chapitre, et notée $\epsilon(\mathbf{X})$. Ce chapitre est également consacré à l'obtention de ladite efficacité par processus de métamodélisation.

Une première section propose de générer un modèle équivalent en termes d'atténuation photonique de l'efficacité de détection des objets d'intérêt et d'en justifier les hypothèses de construction, en insistant davantage sur la nécessité de prendre en compte l'atténuation photonique à faible énergie, *i.e.* inférieure à 100 keV. Les deuxième et troisième sections portent quant à elles sur l'établissement d'un plan d'expériences adapté aux différents paramètres d'entrée formant une base d'estimation de l'efficacité équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$, puis sur son application directe, à savoir la métamodélisation du rendement de détection équivalent

de la scène de mesure par décomposition fonctionnelle.

II - 1 Modélisation équivalente de la scène de mesure en termes d'atténuation photonique

Le but de cette section est d'établir et de justifier les hypothèses nécessaires à la modélisation du rendement de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma. Cette modélisation revient à obtenir, pour chaque efficacité de détection $\epsilon(E, env)$ issue de la mesure d'un objet d'intérêt à une énergie d'émission E , une efficacité $\epsilon(\mathbf{X})$ qui lui soit équivalente en termes d'atténuation photonique. Bien qu'une partie des paramètres physiques influant sur la forme de l'efficacité $\epsilon(E, env)$ selon l'énergie E soit inconnue, l'objectif est de montrer qu'il existe une base de paramètres, regroupés dans le vecteur \mathbf{X} , permettant à elle seule d'imiter le comportement atténuateur en question, de telle manière à obtenir la relation (II .1) :

$$\epsilon(E, env) \approx \epsilon(\mathbf{X}) \quad (\text{II .1})$$

Afin de clarifier les différents développements à venir, il est rappelé au lecteur que cette section a pour objectif de justifier l'existence d'une base génératrice du comportement photonique regroupée au travers du vecteur d'entrée \mathbf{X} , et non pas de quantifier ce dernier pour une mesure gamma d'objet donné. Ce dernier travail est un des objectifs du chapitre III .

II - 1.1 Hypothèses physiques pour la modélisation

La construction d'une efficacité équivalente en termes d'atténuation photonique à l'efficacité de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma passe par la mise en place d'un modèle physique préalable. Ce dernier a pour objectif de rassembler l'ensemble des phénomènes physiques, influant sur le rendement de détection, et associés à la mesure d'un objet d'intérêt donné. Cette analyse est liée aux caractéristiques physico-chimiques des objets à mesurer. Ces objets représentent pour la plupart des fûts de déchets radioactifs issus de plusieurs procédés de production, ainsi que des conteneurs en acier de petites tailles. Le modèle physique déployé dans cette étude est nécessairement construit de manière à considérer ces fûts et conteneurs, et à en permettre la caractérisation souhaitée, à savoir la quantification de radionucléides d'intérêt.

Dans la suite, le modèle représente la scène de mesure gamma à une énergie d'émission E

d'un cylindre, reproduisant l'objet à caractériser, et nommé cylindre-objet, de rayon r et de hauteur h . A mi-hauteur de ce dernier et à une distance L se trouve un autre cylindre, nommé cylindre-détecteur, incliné de 90° par rapport au premier, dont les dimensions extérieures sont celles d'un détecteur germanium hyper-pur (GeHP) standard utilisé en routine au laboratoire. Le cylindre-objet est composé d'un mélange homogène de trois matériaux, à savoir du vinyle, du fer ($_{26}\text{Fe}$) et du plutonium ($_{94}\text{Pu}$), et possède une densité ρ . Les trois matériaux le composant sont relativement et respectivement proportionnés à hauteur de Vin , Fe et Pu , de telle manière à respecter l'équation $Vin + Fe + Pu = 1$. Considérant la forme de la source d'émission photonique, cette dernière est prise homogène et étendue à l'ensemble du volume du cylindre-objet. Le modèle est représenté graphiquement sur la figure II .1.

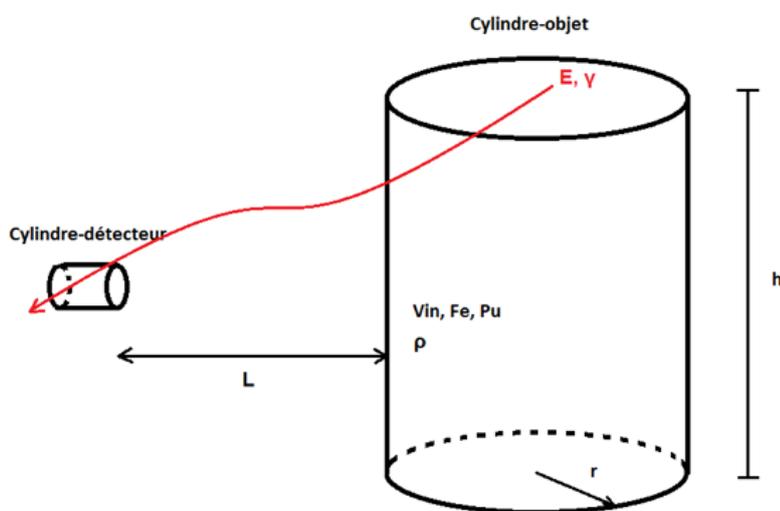


FIGURE II .1: Schéma du modèle physique équivalent, nommé modèle "cylindre-objet"

En ce qui concerne le modèle, il est à noter que le cylindre-détecteur est constitué d'air à pression atmosphérique. La prise en compte de l'influence du détecteur GeHP sur le rendement de détection est proposée en fin de chapitre en section II - 3 .

Le choix d'un cylindre comme forme géométrique se justifie par deux arguments. Premièrement, la plupart des objets d'intérêt étant des cylindres (fûts pétroliers, containers cylindriques), le choix est direct. En effet dans le cas d'une mesure d'objet possédant une source émettrice ponctuelle, la forme géométrique de l'objet n'influe pas ou peu sur le rendement de détection (atténuation en ligne droite). Dans le cas d'une source étendue, la forme géométrique du modèle est identique à celle de l'objet. Secondement, si l'objet n'est pas de forme cylindrique, ce dernier étant mis en rotation lors de sa mesure, l'évaluation spectrale est analogue à un celle d'objet cylindrique.

Les paramètres du modèle sont rassemblés au sein du vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (E, r, h, \rho, L, Vin, Fer, Pu)$. Un domaine de définition est associé à chacun de ces derniers :

- L'énergie E : [90, 500] (keV)
- Le rayon r du cylindre : [5, 32] (cm)
- La hauteur h du cylindre : [10, 100] (cm)
- La densité ρ : [0, 1]
- La distance de mesure au contact L : [80, 140] (cm)
- Les proportions relatives de matériaux Vin , Fe et Pu : [0, 1]

Les bornes de ces domaines sont choisies de façon à couvrir le domaine d'existence du rendement de détection relatif aux objets d'intérêt traités. Les dimensions géométriques du cylindre-objet sont représentatives de celles rencontrées sur les objets à caractériser. Concernant l'énergie d'émission E , ses bornes permettent de couvrir le domaine énergétique des radio-isotopes prépondérant de l'étude, et plus particulièrement celui du $^{239}_{94}\text{Pu}$.

Le mélange homogène de vinyle, de fer, et de plutonium permet d'obtenir une combinaison de trois formes d'atténuation distinctes. Les deux premiers matériaux permettent d'imiter, par la variation de leurs proportions respectives, le comportement atténuateur des éléments dont le numéro atomique varie de $Z = 1$ à 26. En revanche, le plutonium possède une singularité d'atténuation à basse énergie (raie K) très différente de celle de ses voisins, au point qu'elle ne puisse être imitée par une combinaison d'autres caractéristiques issues de divers éléments chimiques (Fig. II .2).

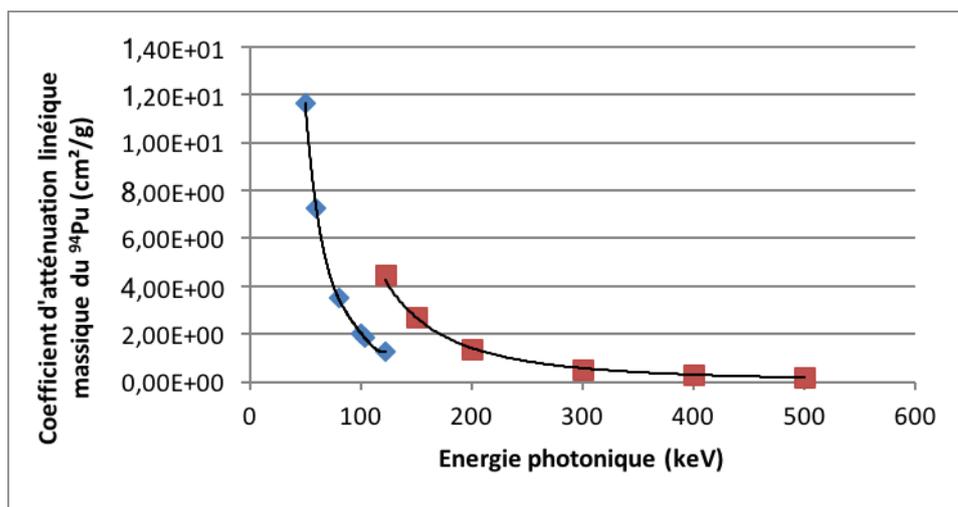


FIGURE II .2: Coefficient d'atténuation photonique linéique massique du ^{94}Pu pour des énergies d'émission de 50 à 500 keV. Les deux séries de points sont issues du comportement atténuateur avant et après le raie K du $_{94}\text{Pu}$ à 121.8 keV. [33]

Le paramètre proportion de plutonium a pour objectif de reproduire l'effet d'auto-atténuation de l'actinide lors de sa présence en quantité suffisante.

La densité ρ joue le rôle de paramètre de réglage du modèle. Bien que son domaine de définition n'ait rien à voir avec ceux des matériaux employés ($_{26}\text{Fe}$, $_{94}\text{Pu}$), ce dernier permet d'ajuster la capacité d'atténuation du cylindre-objet, pendant que les proportions relatives de matériaux en gèrent le comportement énergétique d'atténuation photonique. La combinaison des proportions relatives, de la densité, et des dimensions géométriques du cylindre-objet génère une base d'estimation de sa propre atténuation photonique sur le domaine de définition de l'énergie E . Enfin, la distance de mesure au contact L prend des valeurs supérieures à 80 cm afin de simplifier l'obtention du rendement de détection intrinsèque du détecteur par découplage de ce dernier du rendement de détection total. L'étude relative à ce découplage est décrite en section II - 3 de ce chapitre.

II - 1.2 Conclusion

Le modèle physique présenté est construit de façon à imiter une scène de mesure par spectrométrie gamma en termes d'atténuation photonique. Le vecteur \mathbf{X} , nommé vecteur d'entrée, rassemble les paramètres physiques recouvrant l'ensemble des cas de mesures possibles, relativement aux objets d'intérêt et à leurs rendements de détection respectifs. Bien que les caractéristiques physiques internes des objets en question, comme leur composition, soient supposées inconnues, on considère à ce stade de l'étude que le vecteur d'entrée \mathbf{X} est une base d'évaluation de l'efficacité de détection.

De là, l'objectif est désormais de construire une fonction mathématique, appelée méta-modèle, qui soit équivalente à l'efficacité de détection issue du modèle physique en termes d'atténuation photonique. Cela passe dans un premier temps par l'emploi d'outils mathématiques issus de la théorie des plans d'expériences, jumelé à l'utilisation intensive du code de simulation de transport de particules 3D MCNP.

II - 2 Planification d'expériences par utilisation du code de calcul MCNP

La première section du chapitre II met en évidence le vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (E, r, h, \rho, L, Vin, Fer, Pu)$ comme étant une base d'estimation de l'efficacité de détection issue du modèle physique présenté. A ce stade, pour chaque objet d'intérêt susceptible d'être caractérisé, il existe

un vecteur \mathbf{X} rassemblant l'ensemble des paramètres physiques influant sur l'efficacité de détection issue de sa mesure. L'estimation, pour un objet donné, des composantes de ce vecteur d'entrée, intervient au chapitre III . Au vu de ces éléments, il s'agit désormais de générer, pour un vecteur \mathbf{X} donné, une efficacité équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$, sans oublier de prendre en compte l'influence du détecteur GeHP sur le rendement de détection total.

La première étape de construction est de déterminer un plan d'expériences prenant en paramètres d'entrée les composantes physiques du vecteur \mathbf{X} , et en sortie l'efficacité de détection issue de la simulation du modèle physique par le code de transport de particules 3D MCNP, notée $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X})$.

Pour ce faire, une première partie se consacre à la création d'un plan d'expériences présentant certaines qualités de remplissage de l'espace des paramètres d'entrée favorables à l'évaluation de l'efficacité de détection recherchée. Une deuxième partie se concentre quant à elle sur lesdites évaluations par utilisation du code MCNP sur les points du plan d'expériences obtenu. Enfin, la troisième et dernière partie introduit et justifie le découplage du détecteur GeHP de la scène de mesure, propose de métamodéliser l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$ par l'utilisation de deux algorithmes d'apprentissage, puis enfin d'en valider et d'en comparer les résultats de prédictions.

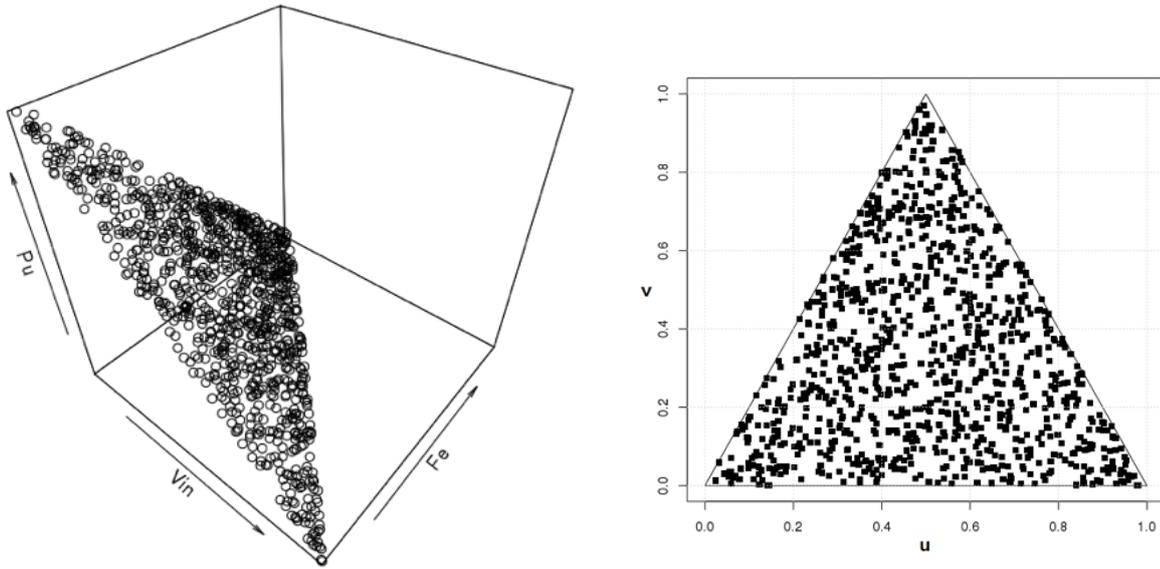
II - 2.1 Construction du plan d'expériences

Un plan d'expériences est créé dans le but de construire un métamodèle de l'efficacité équivalente. Ce plan est constitué à partir des composantes du vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (E, r, h, \rho, L, Vin, Fer, Pu)$, de leurs domaines de définition respectifs, et possède un ensemble de mille points. La difficulté d'obtention d'un tel plan est de pouvoir, pour chaque point qu'il contient, respecter les proportions de matériaux avec la relation (II .2), tout en conservant un bon remplissage de l'espace d'entrée :

$$Vin + Fe + Pu = 1 \quad (\text{II .2})$$

Pour visualiser le problème, une version graphique de la relation (II .2) est donnée en figure II .3. Cette dernière représente le sous-espace des proportions de matériaux dans lequel l'ensemble des points du plan d'expériences doivent se trouver.

Afin de simplifier le problème, un changement de variable est effectué. En effet, le sous-espace des proportions de matériaux est de dimension 2. On définit les variables u et v :



(a) Vue du sous-espace en 3D via (Vin, Fe, Pu) (b) Vue du sous-espace en 2D via (u, v)

FIGURE II .3: Représentations graphiques du sous-espace des paramètres de proportion massique.

$$\begin{cases} u = Vin + \frac{Fe}{2} \\ v = Fe \end{cases} \quad (\text{II .3})$$

Réaliser un plan d'expériences sur les composantes du vecteur

$$\mathbf{X} = (E, r, h, \rho, L, Vin, Fer, Pu)$$

revient donc à l'effectuer sur le vecteur

$$\mathbf{X}' = (E, r, h, \rho, L, u, v)$$

De là, un plan d'expériences adapté est un plan qui propose un remplissage de l'espace satisfaisant selon un certain critère. Un critère efficace pour ce faire est de maximiser la distance minimum entre chaque point, de manière analogue au critère maximin d'un plan de type LHS [l_{hs}], afin de remplir l'ensemble de l'espace des entrées. Pour ce faire, la méthode de k-means clustering relatif à l'algorithme de Hartigan-Wong [16] est utilisée. Dix-mille points sont tirés au sort parmi l'espace des entrées du vecteur \mathbf{X}' puis partitionnés en $k = 1000$ groupes définis de sorte à minimiser la somme des carrés des distances

qui les séparent de leurs centres respectifs. La figure II .4 donne un exemple simple de partitionnement d'un espace 2D pour 100 points et 5 partitions.

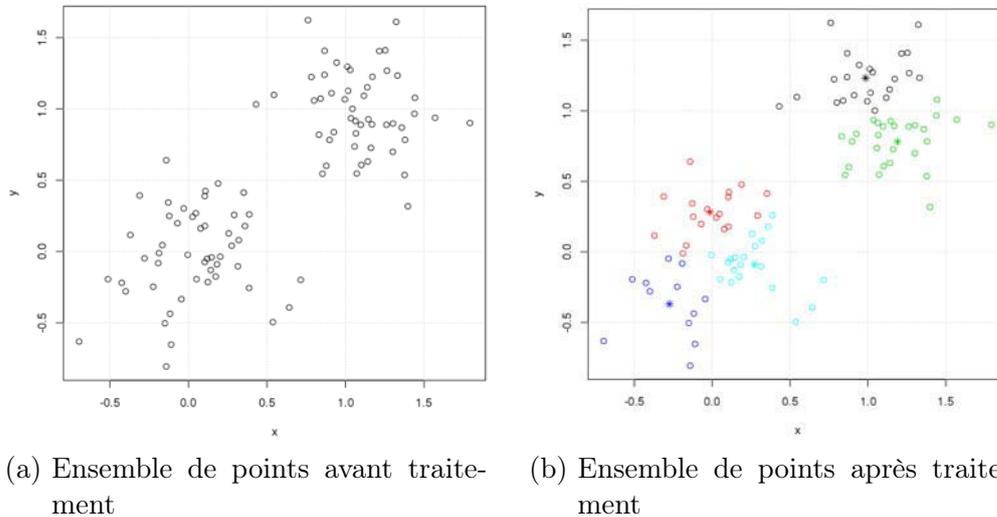
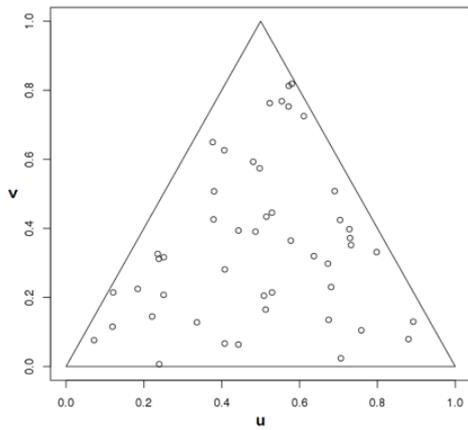


FIGURE II .4: Exemple d'utilisation de la méthode de k-means clustering dans un espace 2D avant (a) et après (b). Les partitions sont en couleurs et au nombre de 5. Les centres de chaque partitions sont repérés par (*).

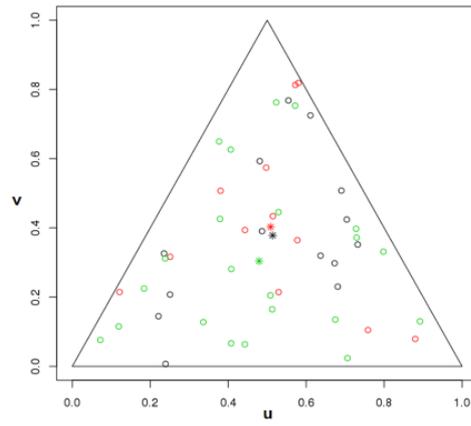
Dans le cas de l'espace de dimension 7 du vecteur \mathbf{X}' , la représentation graphique est impossible. Deux représentations analogues à l'exemple précédent sont placées dans le sous-espace de dimension 2 des paramètres (u, v). La première, illustrée en figures II .5a et II .5b, donne un résultat de partitionnement à 100 points et 3 partitions. La seconde, celle utilisé dans l'étude, et illustrée en figures II .5c et II .5d, prend dix-mille points et mille partitions.

Une fois cette discrétisation de l'espace effectuée à l'aide des partitions générées par l'algorithme de k-means clustering, un point est tiré au sort dans chacune de ces partitions. De là, une routine permet de calculer les distances minimales séparant chacun de ces derniers les uns des autres, et d'en tirer une moyenne.

Le plan d'expériences conservé est construit en répétant 100 fois le tirage de nouveaux points issus des partitions afin de maximiser la moyenne des distances inter-points précédemment calculée. En d'autres termes, le plan d'expériences optimal est celui qui maximise la distance des points tirés au sort dans chaque partition.



(a) 100 points tirés au sort avant traitement



(b) 100 points et 3 partitions après traitement

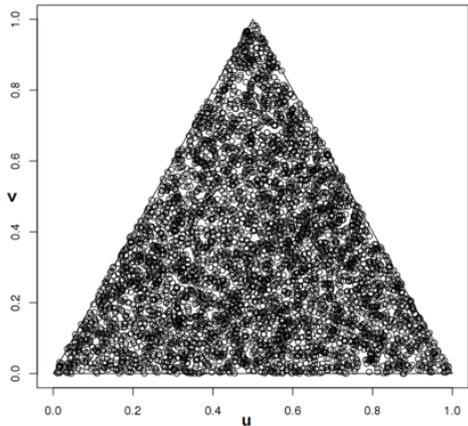
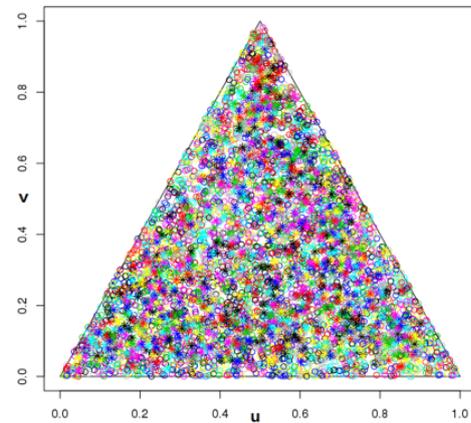

 (c) 10^4 points tirés au sort avant traitement

 (d) 10^4 points et 10^3 partitions après traitement

FIGURE II .5: Schémas d'utilisation de la méthode de k-means clustering dans l'espace du vecteur \mathbf{X}' avant (a-c) et après (b-d). (a) et (b) représentent un cas à 100 points et 3 partitions. (c) et (d) représentent le cas étudié à 10^4 points et 10^3 partitions.

Conclusion

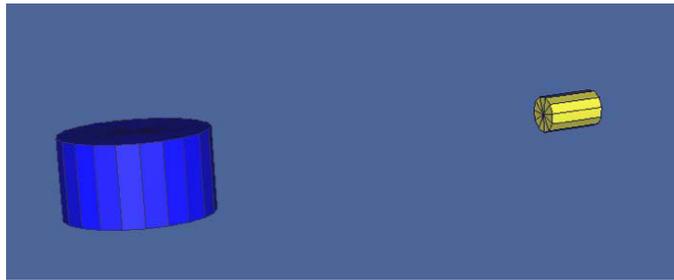
Un plan d'expériences relatif au modèle physique cylindre-objet est défini. Ce dernier est construit afin de répondre à deux exigences majeures : conserver la relation de contrainte (II .2) imposée par le mélange des trois matériaux au sein du cylindre-objet, et offrir des caractéristiques de remplissage de l'espace des entrées satisfaisantes.

Il s'agit désormais d'associer, à chacun des points d'entrée du plan ainsi créé, une sortie, qui soit l'efficacité de détection de la scène de mesure équivalente, afin d'en obtenir un métamodèle. En d'autres termes, pour un vecteur d'entrée \mathbf{X} donné, l'étape suivante est de déterminer le rendement de détection $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X})$ qui lui est associé par utilisation du

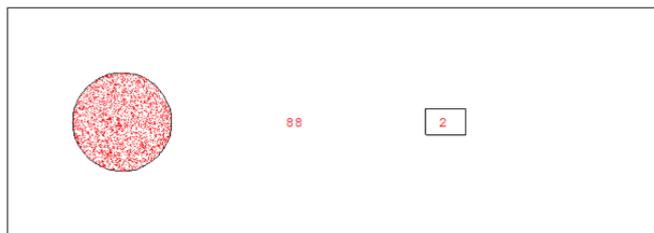
code de simulation de transport de particules 3D MCNP.

II - 2.2 Calcul des points du plan d'expériences *via* MCNP

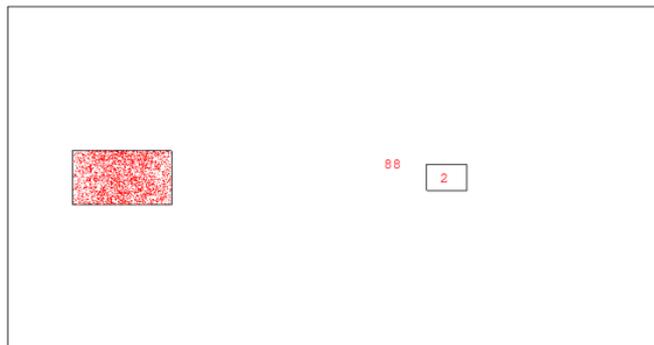
Le plan d'expérience construit à partir du vecteur \mathbf{X} et des domaines de définition de ces composantes possède 1000 points. Pour chacun d'entre eux, une efficacité de détection relative au modèle physique est obtenue par utilisation du code de simulation de transport de particules 3D MCNP [23] (Fig. II .6).



(a) Schéma 3D du modèle cylindre-objet sous code de simulation MCNP



(b) Vu de haut du modèle cylindre-objet



(c) Vu de face du modèle cylindre-objet

FIGURE II .6: Représentation du modèle physique cylindre-objet *via* le code de simulation MCNP pour un vecteur d'entrées \mathbf{X} donné : (a) en jaune : la zone de détection, en bleu : le cylindre-objet.

La zone de détection est schématisée à l'aide d'un cylindre rempli d'air à pression atmosphérique et de dimensions identiques à celles des détecteurs GeHP utilisés en laboratoire. La scène de mesure équivalente est placée dans une boîte d'air, repérée en (88) sur la Fi-

gure II .6, à pression atmosphérique et de taille suffisamment grande de telle manière à intégrer la géométrie de l'ensemble des points du plan d'expériences. Un tally de type F4 (fluence en $\gamma/\text{cm}^{-2}/\text{particule}$), en (2), est utilisé pour cette zone de comptage photonique. La prise en compte de l'efficacité intrinsèque du détecteur est l'objet de la prochaine partie dédiée à la métamodélisation. La zone pixélisée de couleur rouge représente la source d'émission photonique. Cette dernière recouvre l'ensemble du cylindre-objet et émet des photons mono-énergétique d'énergie E incluse au sein du vecteur \mathbf{X} , et de manière isotrope. L'extérieur de la boîte est vide et d'importance photonique nulle.

L'efficacité de détection issue du modèle physique cylindre-objet est obtenue pour chacun des mille points du plan. Pour ce faire, une routine codée en Python propose, pour chaque point du plan d'expériences, de :

1. Récupérer les données d'entrée du vecteur \mathbf{X} issus du point en cours de traitement
2. Intégrer ces données au sein d'un input (fichier d'entrée) MCNP préalablement créé
3. Lancer la simulation MCNP
4. Chercher l'efficacité de détection $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X})$ de l'output (fichier de sortie) MCNP associé à l'énergie E
5. Placer le vecteur d'entrée \mathbf{X} , l'efficacité $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X})$, ainsi que sa variance relative, au sein d'un fichier texte.

Le fichier texte ainsi obtenu permet d'associer à chaque point \mathbf{X}^i du plan, une efficacité $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X}^i)$, ainsi que sa variance relative. Cette dernière est rendue par le code MCNP et dépend du nombre de particules tirées pour chaque point simulé. Ce nombre est choisi de manière à s'assurer que l'ensemble des variances relatives obtenues soient inférieures à 5%.

À chaque point du plan d'expériences est associé une efficacité de détection issue du code de simulation MCNP. La prochaine étape est d'utiliser ces données dans la construction d'un métamodèle de l'efficacité de détection associé au modèle cylindre-objet, qui, jumelé à l'efficacité intrinsèque du détecteur GeHP, permet d'obtenir le rendement de détection équivalent $\epsilon(\mathbf{X})$ recherché.

II - 3 Métamodélisation du rendement de détection équivalent

À ce stade de l'étude, le plan d'expériences issu du modèle cylindre-objet, ainsi que les efficacités émanant du code de simulation de transport de particules 3D MCNP sont

disponibles pour initier la métamodélisation du rendement de détection équivalent de la scène de mesure introduit au premier chapitre. Cependant, un élément essentiel à son estimation reste indéterminé, à savoir l'efficacité intrinsèque du détecteur GeHP. Pour rappel, cette dernière est définie comme le *ratio* du nombre de photons d'énergie E ayant effectivement été détectés par le détecteur GeHP sur le nombre de photons de la même énergie l'ayant atteint. Cette efficacité intrinsèque dépend du détecteur utilisé dont les caractéristiques internes d'atténuation photonique peuvent varier au cours du temps.

Cette partie se décompose en deux étapes. La première se concentre sur le découplage de l'efficacité intrinsèque du détecteur GeHP du rendement de détection équivalent. La seconde porte quant à elle sur la métamodélisation du rendement de détection équivalent $\epsilon(\mathbf{X})$ par deux algorithmes d'apprentissage (ACOSSO, méthode de krigeage), et en compare les résultats d'approximation et de prédiction respectifs, avec les coefficients R^2 et Q^2 (p. 17).

II - 3.1 Découplage des efficacités du détecteur et de la scène de mesure

Les mesures nucléaires de cette étude doctorale sont effectuées à l'aide de détecteurs GeHP. Ces derniers possèdent des caractéristiques physiques de détection et d'atténuation photonique susceptibles d'évoluer avec le temps, la fréquence d'utilisation et l'intensité de rayonnement des objets mesurés. Afin de considérer ces changements comportementaux, Guillot [13], dans son travail de thèse, a étudié une méthode de construction de réponse numérique d'un détecteur GeHP, permettant d'obtenir, au temps t , les caractéristiques internes de détection d'un détecteur GeHP donné (p. 19). L'intérêt de cette caractérisation numérique est d'être applicable à plusieurs détecteurs GeHP, voire à d'autres types de détecteurs.

L'idée est d'utiliser cette méthode de caractérisation numérique de détecteur GeHP afin de coupler l'efficacité de détection du modèle cylindre-objet avec celle d'un détecteur GeHP, et de pouvoir, si besoin, la remplacer par celle d'un autre détecteur : on parle de découplage.

Le découplage est effectué selon un schéma identique à la construction de l'efficacité de détection issue du modèle cylindre-objet, à savoir :

1. Définition du modèle de découplage
2. Génération d'un plan d'expériences

3. Simulation MCNP des points du plan créé
4. Métamodélisation d'une fonction de découplage du détecteur GeHP

II - 3.1.1 Hypothèses de travail et modélisation

Le découplage du détecteur GeHP de la scène de mesure passe par une modélisation analogue à celle dite du cylindre-objet [II - 1]. Cette modélisation met en scène un objet de forme cubique de paramètre de maille a , disposé à une distance L et une hauteur à l'axe h d'un cylindre. Ce dernier possède des dimensions extérieures analogues à celles d'un détecteur GeHP donné, dont la caractérisation numérique est fournie par la méthode proposée par Guillot. Le schéma associé à ce modèle est donné en figure II .7.

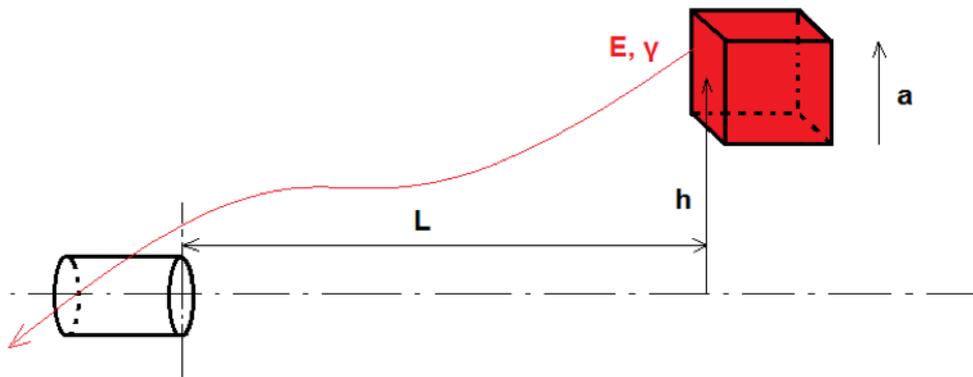


FIGURE II .7: Schéma du modèle associé du découplage du détecteur GeHP

Les domaines de définition des paramètres du modèle de découplage sont les suivant :

- L'énergie E : [90, 600] (keV)
- La distance détecteur-cube L : [50,200] (cm)
- La hauteur à l'axe h : [0,60] (cm)
- Le côté du cube a : [10,31] (cm)

Les plages de définition des paramètres E et L sont analogues à celles du modèle cylindre-objet. La hauteur à l'axe h a pour objectif d'observer les effets dus à l'angle solide d'attaque. Le modèle est généré pour des applications de mesure de face. Les effets de rotation azimutaux ne sont pas considérés. Le domaine de définition associé au paramètre de maille a est défini de telle manière à couvrir les volumes possibles des objets d'intérêts. Le choix du cube permet d'obtenir un volume par la définition d'un seul paramètre.

II - 3.1.2 Création du plan d'expériences, simulations MCNP et métamodélisation

Un plan d'expériences de type LHS comportant 500 points est formé sur les quatre variables d'entrée $\mathbf{X}_{\text{det}} = (E, L, h, a)$. L'idée de cette méthode de découplage est d'utiliser le code de simulation MCNP sur chacun des points de ce plan deux fois, avec et sans caractérisation du détecteur GeHP, puis de métamodéliser le *ratio* des deux efficacités obtenues.

Pour ce faire, une première série de 500 simulations MCNP est lancée en considérant la caractérisation numérique du détecteur au sein du cylindre du modèle (Fig. II .7) et en appliquant un tally de type F8 (dépôt d'énergie) sur la zone active du germanium définie par la caractérisation numérique. La même série de 500 points d'entrée est ensuite utilisée avec un cylindre rempli d'air à pression atmosphérique, tout en considérant pour lui un tally de type F4 (fluence en $\gamma/\text{cm}^2/\text{particule}$) au sein du fichier d'entrée MCNP.

Pour un même plan d'expériences, deux efficacités de détection sont obtenues. La métamodélisation du rapport des deux, nommé dans la suite coefficient de découplage et noté ϵ_{det} , permet de séparer le détecteur GeHP de la scène de mesure. Cette dernière est effectuée par la méthode ACOSSO (p. 15) à l'ordre 2 et muni d'un paramètre de puissance (*wt.pow*) de 0.8, avec pour variables d'entrée les composantes du vecteur $\mathbf{X}_{\text{det}} = (E, L, h, a)$. Les coefficients d'approximation et de prédiction sont calculés, ce dernier étant obtenu par méthode dite de Leave-One-Out (LOO) :

$$R^2 = 0.994 \quad Q^2 = 0.993$$

Ces bons résultats s'expliquent entre autres par l'utilisation du rapport des deux efficacités issues des tallies de type F8 et F4. En effet, cette approche sous forme de *ratio* permet d'annuler les effets géométriques dus au positionnement du cube dans l'espace et au volume de ce dernier, laissant l'énergie d'émission très majoritaire dans la variation du coefficient de découplage ϵ_{det} . Afin de s'en assurer, une analyse de sensibilité par calcul des coefficients de Sobol [21] est mise en place. Ces coefficients rendent compte de l'influence de chaque paramètre d'entrée sur la variance de la sortie. Les résultats de cette analyse sont placés en Figure. II .8.

Une fois cette étape de découplage réalisée, un métamodèle du rendement de détection issu du modèle cylindre-objet peut désormais être finalisée par métamodélisation. Cette dernière étape permet de former, *via* le coefficient ϵ_{det} , le rendement de détection équivalent de la scène de mesure $\epsilon(\mathbf{X})$ explicitée au premier chapitre.

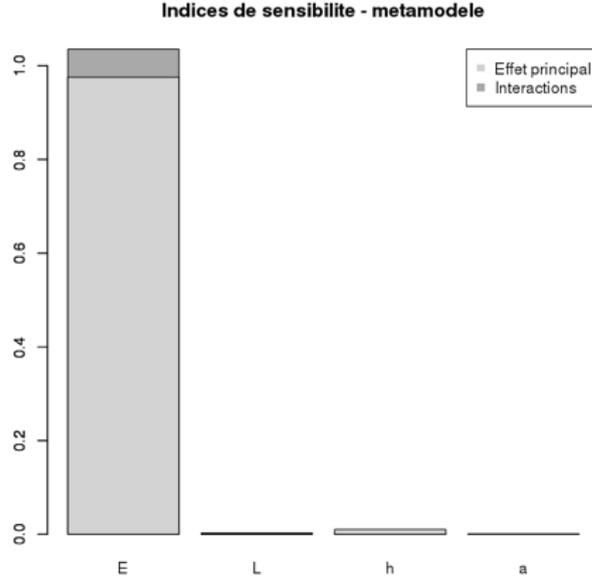


FIGURE II .8: Représentation des indices de Sobol relatifs à l'étude du coefficient de découplage ϵ_{det}

II - 3.2 Emulation de l'efficacité de détection du modèle cylindre-objet et comparaison des algorithmes ACOSSO et Dice-Kriging

La métamodélisation de l'efficacité de détection du modèle cylindre-objet est proposée au travers de l'utilisation de deux algorithmes d'apprentissage, à savoir ACOSSO et une méthode de krigeage codée sous langage R au sein de la librairie DiceKriging [30]. Les données nécessaires à l'émulation sont issues du plan d'expériences et des simulations MCNP explicités dans la partie précédente. Pour rappel, le vecteur d'entrée est $\mathbf{X} = (E, r, h, \rho, L, Vin, Fe, Pu)$, et l'efficacité de détection $\epsilon_{MCNP}(\mathbf{X})$ issu du code de simulation MCNP représente la sortie.

Les métamodèles issus de ces données et rendus par les deux algorithmes d'apprentissage considérés sont respectivement notés $\epsilon_{cyl}^{ACO}(\mathbf{X})$ pour ACOSSO et $\epsilon_{cyl}^{KRI}(\mathbf{X})$ pour la méthode de Krigage. La méthode ACOSSO est utilisé à l'ordre 2 et muni d'un paramètre de puissance (wt.pow) de 0.4. Ce dernier est choisi afin de donner la meilleure prédiction, *i.e.* la valeur de Q^2 la plus élevée. La méthode de krigeage est de type universel (UK). Elle est munie d'un noyau de type Matérn 5/2. Pour rappel, le plan d'expériences possède 1000 points. Les régressions sont faites sur une base d'approximation de 500 points tirés au sort parmi l'ensemble des 1000 points, et la validation prédictive sur une base de test

composée des 500 autres points.

Les coefficients R^2 et Q^2 issus de deux algorithmes d'apprentissage sont rassemblés dans le Tableau II .1.

	R^2	Q^2
ACOSSO	0.987	0.954
Krigeage (UK)	0.997	0.984

TABLEAU II .1: Coefficients d'approximation et de prédiction des deux algorithmes testés

Bien que les deux méthodes rendent des résultats satisfaisants en termes de capacités d'approximation et de prédiction, la méthode de krigeage est conservée pour la suite pour sa rapidité prédictive (quasi-instantanée) et sa précision ($Q^2=0.984$), ainsi que pour sa capacité à rendre, pour chaque vecteur d'entrée \mathbf{X} , une prédiction gaussienne (moyenne, écart-type). Cette caractéristique du krigeage est essentielle dans la propagation des incertitudes du problème de quantification et dans la résolution de ce dernier par méthode MCMC explicitée au chapitre suivant.

II - 3.3 Conclusions intermédiaires

L'étude du modèle physique équivalent cylindre-objet, la génération d'un plan d'expériences à partir du vecteur des paramètres d'entrée et la construction d'un métamodèle de l'efficacité de détection $\epsilon_{cyl}^{KRI}(\mathbf{X})$ associée, permettent, avec l'étude de découplage du détecteur GeHP et l'obtention du coefficient $\epsilon_{det}(E)$, d'obtenir l'efficacité de détection équivalente de la scène de mesure gamma $\epsilon(\mathbf{X})$ par la relation suivante :

$$\epsilon(\mathbf{X}) = \epsilon_{cyl}^{KRI}(\mathbf{X}) \epsilon_{det}(E) \quad (\text{II .4})$$

Étant donné le caractère équivalent en termes d'atténuation photonique de l'efficacité de détection $\epsilon(\mathbf{X})$, les paramètres physiques influant sur le rendement de détection réel d'une scène de mesure gamma, comme la composition ou la forme du terme source, sont retranscrits dans l'écriture d'un vecteur d'entrée \mathbf{X} donné. Autrement dit, le vecteur d'entrée \mathbf{X} agit comme une base d'estimation du rendement de détection réel.

Considérant les rendements de détection réel $\epsilon_{réel}(\mathbf{E})$ associés à la mesure d'un objet donné aux énergies \mathbf{E} , on peut mettre en évidence à ce stade un vecteur d'entrée \mathbf{X} tel que :

$$\epsilon_{réel}(\mathbf{E}) = \epsilon(\mathbf{E}, env) \approx \epsilon(\mathbf{E}, \mathbf{X}) \quad (\text{II .5})$$

Pour le reste de l'étude, le vecteur d'énergie \mathbf{E} est intégré au vecteur d'entrée \mathbf{X} de manière à avoir :

$$\epsilon(\mathbf{E}, \mathbf{X}) = \epsilon(\mathbf{X}) \quad (\text{II .6})$$

Cependant, l'étude proposée dans ce chapitre présente uniquement l'existence d'un tel vecteur et ne permet pas d'en estimer les composantes associées et relatives à un objet mesuré donné, ni d'en quantifier une masse de radionucléide d'intérêt. Ce travail est dédié au chapitre III qui présente le développement d'une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique globale.

Chapitre III

Développement d'une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique globale

À ce stade de l'étude, un modèle équivalent à une scène de mesure gamma, en termes d'atténuation photonique, est défini. Ce dernier est construit de telle manière à représenter fidèlement l'ensemble des mesures potentielles d'objets radioactifs d'intérêt, comme par exemples des fûts de déchets ou des conteneurs de transport de matière de petites tailles. Cette émulation du rendement de détection de la scène de mesure gamma s'effectue au travers de la construction d'un métamodèle de type krigeage, basé sur la théorie des processus gaussiens. Sa réalisation permet d'obtenir quasi instantanément, pour un jeu donné de paramètres d'entrée, une estimation de la moyenne et de la variance de l'efficacité de détection liée à l'objet mesuré. Cette dernière, conjuguée avec l'efficacité intrinsèque numérique du détecteur, permet l'obtention d'un rendement de détection globale de la scène de mesure.

Étant donné le caractère équivalent du modèle utilisé en termes d'atténuation photonique (équation. II .5), la détermination d'un jeu de paramètres d'entrée, ainsi que celle de la masse m de radionucléide d'intérêt, relatifs à la caractérisation d'un objet déterminé, n'est pas directe. En effet, les variables physiques influençant l'évaluation d'un rendement de détection réel sont diverses et nombreuses. Elles concernent notamment la répartition des matériaux internes à l'objet, leurs densités respectives, la forme spatiale du terme source ou encore la position relative du détecteur par rapport à l'objet.

Ce chapitre se place dans cette problématique d'obtention des paramètres d'entrée du

modèle équivalent d'un objet réel d'intérêt. L'idée générale de cette partie est d'utiliser une méthode d'échantillonnage MCMC pour résoudre un problème inverse, et de placer, parmi les paramètres d'entrée à estimer par la méthode, la masse de radionucléide à quantifier. Une résolution de problème inverse de ce type, associée à l'équation de calcul de l'activité, s'applique très bien à la quantification de radionucléides.

Une première partie de ce chapitre porte sur la mise en place du cadre bayésien de travail et de toutes les hypothèses sous-jacentes associées, jusqu'à l'obtention de la densité de probabilité (PDF) conditionnelle *a posteriori* de la masse de radionucléides à quantifier, ainsi que celles des différents paramètres physiques d'entrée, rassemblés au sein du vecteur d'entrée équivalent \mathbf{X} . Une deuxième section s'articule autour du problème d'inversion par échantillonnage des PDF précédemment calculées avec MCMC. Enfin, une seconde et dernière section propose d'analyser partiellement le comportement de l'algorithme d'inversion proposé, sa robustesse et sa capacité à estimer une masse m de radionucléide et une densité équivalente données au travers de cas tests jouets.

III - 1 Détermination de la densité de probabilité conditionnelle *a posteriori* de la masse de radionucléide et des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X}

III - 1.1 Mise en place des hypothèses relatives à l'utilisation d'un cadre bayésien de travail

Quantifier une masse de radionucléide revient à calculer son activité. Ces deux quantités sont égales à un facteur près, nommé activité massique A_m , qui ne dépend que du radionucléide considéré. Comme explicitées dans la partie bibliographique consacrée à la présentation de la mesure nucléaire par spectrométrie gamma, les équations de l'activité et de la masse en fonction, notamment, du rendement de détection de la scène de mesure $\epsilon(E, env)$ et de la surface extraite $S(E)$ du spectre d'acquisition à une énergie E donnée, s'écrivent comme suit (voir équation 1) :

$$A = \frac{S(E)}{\epsilon(E, env)tI_\gamma(E)} \quad m = \frac{A}{A_m} \quad (\text{III .1})$$

En supposant que le radionucléide à quantifier soit un multi-émetteur gamma, l'équation

III .1 de l'activité reste définie pour chacune des raies d'émission de ce dernier. Il est par conséquent possible d'écrire une version vectorielle de cette relation en considérant chacune des équations d'activité pour chacune des énergies d'émission du radionucléide à quantifier.

En posant le vecteur \mathbf{Y}^{obs} suivant, relatif au vecteur $\mathbf{S} = \mathbf{S}(E_1, \dots, E_N)$ rassemblant N surfaces extraites issues d'un spectre d'acquisition pour la mesure d'un noyau multi-émetteur gamma aux énergies (E_1, \dots, E_N) , il vient,

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}} = \frac{\mathbf{S}}{\mathbf{I}_\gamma t A_m} = m\epsilon(\mathbf{X}) + \xi^{\text{obs}} \quad (\text{III .2})$$

Où $\xi^{\text{obs}} = (\xi_1^{\text{obs}}, \xi_2^{\text{obs}}, \dots, \xi_N^{\text{obs}})$ représente le vecteur des incertitudes lié au vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} , et $\epsilon(\mathbf{X})$, le vecteur de taille N des rendements de détection de la scène de mesure aux énergies considérées $\mathbf{E} = (E_1, \dots, E_N)$. Pour rappel, dans la suite, l'écriture du vecteur des rendements de détection est simplifiée, en considérant l'efficacité de détection équivalente obtenue au chapitre précédent à l'équation II .5 :

$$\epsilon(\mathbf{E}, env) \approx \epsilon(\mathbf{X}, \mathbf{E}) = \epsilon(\mathbf{X}) \quad (\text{III .3})$$

Le vecteur des incertitudes ξ^{obs} prend sa source au niveau de la méthode d'extraction des surfaces spectrales du vecteur \mathbf{S} et du nombre de coups effectivement obtenu pour chacune des énergies d'émission. La durée de mesure t est supposée être une constante du problème, l'éventuel temps mort de la mesure ayant été pris en compte par la méthode de quantification proposée.

L'idée fondatrice de la méthode est de considérer l'ensemble des paramètres constituant le problème comme des variables aléatoires dont les densités de probabilités sont à estimer. Ce faisant, certaines hypothèses relatives à ces variables aléatoires sont à préciser et à justifier. La première d'entre-elles concerne le vecteur des incertitudes. Du fait du caractère indépendant des raies d'émission gamma les unes par rapport aux autres, de par la très bonne résolution énergétique du détecteur GeHP et l'absence de convolution intra-pics des spectres traités (cas test du radionucléide ^{239}Pu), les différentes composantes de ce vecteur sont également supposées indépendantes et identiquement distribuées (*iid*). Ces dernières suivent des lois normales centrées de matrice de covariance Σ^{obs} , de sorte que :

$$\xi^{\text{obs}} \sim \mathcal{N}(\mathbf{0}, \Sigma^{\text{obs}}), \quad \Sigma^{\text{obs}} = \begin{bmatrix} \sigma_{obs,1}^2 & 0 & \dots & 0 \\ 0 & \ddots & \ddots & \vdots \\ \vdots & \ddots & \ddots & 0 \\ 0 & \dots & 0 & \sigma_{obs,N}^2 \end{bmatrix} \quad (\text{III .4})$$

Où les $\sigma_{obs,i}^2$ représentent les variances des raies d'émission gamma considérées dans le vecteur \mathbf{S} . Considérer des lois normales pour les composantes de \mathbf{S} se justifie par la présence d'un nombre de coups significatif dans chaque canal d'énergie considéré, dont l'ordre de grandeur est supérieur à 10^3 coups sous chaque surface extraite du spectre, et par la nature même du détecteur GeHP. De là, l'équation (III .2) et les développements précédents permettent de déduire l'expression suivante :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X} \sim \mathcal{N}(m\epsilon(\mathbf{X}), \Sigma^{\text{obs}}). \quad (\text{III .5})$$

Suite à ce paramétrage du problème de quantification par l'emploi du vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} , il s'agit désormais d'utiliser ce nouvel aspect aléatoire prêté aux variables en jeu, à savoir les composantes du vecteur \mathbf{X} et la masse m d'un radionucléide multi-émetteur à quantifier, dans un contexte mathématique bayésien. Dans le cas de l'équation (III .2), le cadre bayésien permet d'obtenir la relation suivante :

$$\pi(m|\mathbf{Y}^{\text{obs}}) = \frac{\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m)\pi(m)}{\int_m \pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m)\pi(m)dm} \quad (\text{III .6})$$

Dans laquelle :

- $\pi(m|\mathbf{Y}^{\text{obs}})$ représente la PDF conditionnelle *a posteriori* de la masse m sachant \mathbf{Y}^{obs}
- $\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m)$ représente la vraisemblance des observations sachant la masse m
- $\pi(m)$ représente la PDF *a priori* de la masse m

L'intégrale placée au dénominateur de l'équation III .6, aussi appelée marginale du vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} , ne peut être rapidement évaluée. Cependant, l'équation 12 permet d'obtenir une version proportionnelle du théorème de Bayes, incluant le vecteur des paramètres d'entrée \mathbf{X} de taille D supposé appartenir à l'ensemble Ξ_D , de sorte que :

$$\pi(m|\mathbf{Y}^{\text{obs}}) \propto \pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X})\pi(m) = \int_{\Xi_D} \pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m)\pi(m|\mathbf{X})\pi(\mathbf{X})d\mathbf{X} \quad (\text{III .7})$$

L'objectif est donc d'estimer la PDF conditionnelle *a posteriori* de la masse m , qui passe par l'évaluation de la vraisemblance des observations sachant les paramètres d'entrée, et par celles des PDF *a priori* de la masse sachant \mathbf{X} et du vecteur d'entrée \mathbf{X} . La fonction de vraisemblance des observations est définie à l'aide de lois normales centrées de matrice de covariance Σ^{obs} définie à l'équation III .4. Il s'agit désormais de préciser les différentes densités *a priori* de masse et des composantes du vecteur \mathbf{X} en jeu.

III - 1.2 Densités de probabilités *a priori* de m et \mathbf{X}

L'intérêt d'utiliser le formalisme bayésien tient dans l'emploi des densités de probabilités *a priori* explicitées ci-dessus. Ces dernières permettent d'apporter ou non de l'information relative aux divers paramètres d'entrée de l'étude et offre par conséquent la possibilité de s'appuyer sur l'avis d'expert et/ou au retour d'expériences, ou à l'inverse, de s'en détacher partiellement, voire totalement. Dans l'exemple de la mesure d'un fût de déchets de type pétrolier d'un volume de 200 L, une loi normale centrée sur la valeur réelle du rayon du fût, et de variance faible, peut être proposée comme densité *a priori* du paramètre rayon du modèle type cylindre-objet (chapitre I). Cela permet de tenir compte de l'influence de la géométrie de l'objet sur l'évaluation du rendement de détection. *A contrario*, en cas d'absence d'information sur la composition interne de l'objet et sur la répartition des divers matériaux le composant, le choix d'une loi uniforme, dite non-informative, est plus adapté. Une telle distribution donne une même probabilité *a priori* à toutes les valeurs d'un domaine de définition donné (équiprobabilité).

Chaque composante du vecteur d'entrée \mathbf{X} possède sa propre densité de probabilité *a priori*, à choisir en fonction du rôle informatif qu'on souhaite lui donner. En supposant que la masse m ne dépende pas des composantes du vecteur \mathbf{X} , le produit des PDF *a priori* de l'équation (III .7) s'écrit :

$$\pi(m|\mathbf{X})\pi(\mathbf{X}) = \pi(m)\pi(\mathbf{X}) \quad (\text{III .8})$$

Cette conjecture est vérifiée au sens où l'on considère que la masse de radionucléide recherchée n'intervient pas sur le rendement de détection équivalent dont la base d'estimation est le vecteur \mathbf{X} . Dans le cas de la quantification de plutonium, l'effet d'auto-absorption de ce dernier, influant sur le rendement de détection, est pris en compte par la variable de proportion relative Pu qui lui est associée. Enfin, les composantes (X_1, \dots, X_D) de \mathbf{X} étant supposées indépendantes, l'équation (III .8) devient :

$$\pi(m)\pi(\mathbf{X}) = \pi(m) \prod_{i=1}^D \pi(X_i) \quad (\text{III .9})$$

Les PDF *a priori* de la masse et des composantes de \mathbf{X} étant précisées, la PDF *a posteriori* de la masse de radionucléide à quantifier peut désormais être déterminée en introduisant l'expression du rendement de détection construit dans le chapitre II .

III - 1.3 Densité de probabilité conditionnelle *a posteriori* de m et \mathbf{X}

Les études préliminaires [II - 1] [II - 3] proposées au chapitre II ont permis d'obtenir un métamodèle du rendement $\epsilon(\mathbf{X})$ de type Krigeage basé sur la théorie des processus gaussiens. Associé au caractère équivalent en termes d'atténuation photonique du modèle cylindre-objet à la mesure d'un objet réel, le rendement de détection de l'objet peut s'exprimer comme suit :

$$\epsilon_{r\acute{e}el} = \epsilon(E, env) \approx \epsilon(\mathbf{X}) \sim \mathcal{N}(\mu(\mathbf{X}), \Sigma(\mathbf{X})), \quad (\text{III .10})$$

avec $\mu(\mathbf{X})$ la moyenne conditionnelle de prédiction du Krigeage, et $\Sigma(\mathbf{X})$ la matrice de covariance conditionnelle associée, toutes deux estimées pour un vecteur d'entrée \mathbf{X} donné.

De là, il vient, d'après (III .5, III .10) :

$$\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X} \sim \mathcal{N}(m\boldsymbol{\mu}(\mathbf{X}), \boldsymbol{\Sigma}^{\text{obs}} + m\boldsymbol{\Sigma}(\mathbf{X})) \quad (\text{III .11})$$

Les PDF conditionnelles *a posteriori* de la masse de radionucléide et des composantes de \mathbf{X} , *i.e.* $\pi(m, \mathbf{X}|\mathbf{Y}^{\text{obs}})$, s'obtiennent alors par conjugaison de la fonction de vraisemblance du vecteur des observations $\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}}|m, \mathbf{X})$ aux PDF *a priori* obtenues à l'équation (éq 12) (Th. de Bayes). L'étape suivante consiste à échantillonner ces PDF *via* une méthode de résolution de problème inverse type MCMC.

III - 2 Estimation des PDF *a posteriori* par utilisation du formalisme MCMC

III - 2.1 Mise en œuvre du formalisme MCMC

Désormais en capacité d'identifier l'expression des PDF *a posteriori* de la masse m de radionucléide recherchée et des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} , le but est d'en présenter une technique d'échantillonnage par une méthode d'inversion de type MCMC.

Le premier intérêt d'une telle technique d'inversion tient au fait qu'elle ne nécessite pas l'utilisation de la version complète du théorème de Bayes, mais simplement de sa version proportionnelle (éq 12). Cette particularité d'utilisation permet de s'abstenir de l'estimation difficile de la marginale du vecteur des observations de l'équation (III .6). Le deuxième avantage de cette méthode tient dans sa rapidité d'exécution. En effet, une fois l'algorithme d'inversion correctement paramétré, et du fait de l'utilisation d'un métamodèle en suppléance du code de simulation MCNP pour l'estimation du rendement de détection équivalent $\epsilon(\mathbf{X})$, l'échantillonnage des PDF *a posteriori* s'effectue rapidement ($\approx 1h$) et de manière autonome. L'automatisation de l'ensemble du processus d'échantillonnage n'est pas produite dans cette étude mais reste tout à fait envisageable. Un dernier point positif de ces méthodes est sa facilité d'implémentation.

III - 2.2 Présentation de l'algorithme d'inversion

L'algorithme MCMC utilisé pour l'échantillonnage des PDF *a posteriori* est celui de Metropolis-Hastings (MH). Ce dernier est un algorithme général qui demande peu d'hypothèses d'utilisation. Un autre algorithme d'inversion disponible envisagé, l'échantillonneur de Gibbs est inutilisable pour l'échantillonnage souhaité des PDF du fait de la présence de la variable de masse m au sein de la variance de sa propre PDF conditionnelle *a posteriori* [5].

Dans notre application, l'algorithme MH utilisé se présente, comme suit :

Données : \mathbf{Y}^{obs}

Sorties : $\pi(m, \mathbf{X} | \mathbf{Y}^{\text{obs}})$

Commençant avec un vecteur d'entrée initial $\mathbf{X}^0 = (X_1^0, \dots, X_D^0)$ et une masse

initiale m^0 . (itération $n = 0$), l'algorithme se construit de manière itérative :

$$\forall j \in \llbracket 1, D \rrbracket, \quad \exists \{a, b\} \in \mathbb{R}^2, \quad X_j^0 \sim \mathcal{U}(X_{j,a}, X_{j,b}), \quad m^0 \sim \mathcal{U}(m_a, m_b)$$

Pour $n = 0, 1, \dots$

1. Générer m^{n+1} et X_j^{n+1} à partir des lois de proposition :

$$m^{n+1} \leftarrow m^n + A\delta, \quad \delta \sim \mathcal{N}(0, \beta)$$

$$\forall j \in \llbracket 1, D \rrbracket, \quad X_j^{n+1} \leftarrow X_j^n + A.\delta_j, \quad \delta_j \sim \mathcal{N}(0, k_j)$$

2. Évaluer le ratio R_n :

$$R_n = \frac{\pi(m^{n+1}, \mathbf{X}^{n+1} | \mathbf{Y}^{\text{obs}})}{\pi(m^n, \mathbf{X}^n | \mathbf{Y}^{\text{obs}})} = \frac{\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}} | m^{n+1}, \mathbf{X}^{n+1})\pi(m^{n+1})\pi(\mathbf{X}^{n+1})}{\pi(\mathbf{Y}^{\text{obs}} | m^n, \mathbf{X}^n)\pi(m^n)\pi(\mathbf{X}^n)}$$

3. Prendre $\alpha_n = \min(1, R_n)$ et tirer $\rho \sim \mathcal{U}(0, 1)$
4. Accepter m^{n+1} et \mathbf{X}^{n+1} comme nouveaux échantillons avec une probabilité α_n et le rejeter avec une probabilité $1 - \alpha_n$:

$$(m^{n+1}, \mathbf{X}^{n+1}) = \begin{cases} (m^{n+1}, \mathbf{X}^{n+1}) & \text{si } \rho \leq \alpha_n \\ (m^n, \mathbf{X}^n) & \text{si } \rho > \alpha_n \end{cases}$$

Les distributions utilisées pour le tirage des valeurs initiales de chaque chaîne de Markov, notées $\mathcal{U}(X_{j,a}, X_{j,b})$ pour les composantes du vecteur \mathbf{X} et $\mathcal{U}(m_a, m_b)$ pour la masse de radionucléide m , représentent respectivement les densités de probabilités *a priori* des paramètres à estimer. Cet algorithme est par conséquent présenté dans le cas de PDF *a priori* non-informatives. Il s'agit par conséquent d'un cas général susceptible d'évoluer en fonction de l'information objective ou non disponible sur chaque paramètre.

Les paramètres $(A, \beta, \mathbf{k} = (k_1, \dots, k_D))$ définissent les lois de proposition des variables (m, \mathbf{X}) de l'algorithme MH. Ces dernières sont des distributions gaussiennes d'amplitude A et d'écart-type β pour la masse m , et de vecteur d'écart-types \mathbf{k} pour les composantes de \mathbf{X} . Les paramètres proposés sont fixés de telle manière à augmenter la vitesse de convergence des chaînes de Markov générées vers des estimations robustes des PDF conditionnelles *a posteriori* recherchées. Ces paramètres possèdent également un rôle essentiel dans la capacité de l'algorithme à accepter ou non un échantillon, et influent en conséquence dans la valeur du coefficient d'acceptation. La bibliographie [5] nous donne un taux d'acceptation cible de l'ordre de 20 à 30%. En deçà de 20%, les chaînes de Markov convergent à une vitesse trop lente, engendrant *de facto* des processus de généra-

tion de PDF chronophages. Au delà de 30%, l'échantillonnage est considéré comme non convergent.

L'algorithme MH présenté permet d'échantillonner, pour un vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} donné, les PDF conditionnelles *a posteriori* de la masse m et des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} . Ces échantillonnages ne peuvent cependant pas tout à fait être considérés comme des estimations robustes des PDF recherchées. En effet, plusieurs étapes de traitement des données recueillies et d'analyse relatives au burn-in et à l'ergodicité (p. 25) sont encore nécessaires avant toute utilisation. Ces dernières sont introduites et expliquées dans la section suivante.

III - 2.3 Test de convergence et d'ergodicité de l'algorithme d'inversion MCMC

Le processus itératif des Chaines de Markov proposé au sein de l'algorithme MH permet de générer, pour une variable donnée parmi (m, X_1, \dots, X_D) , une série de points formée de telle manière à échantillonner la PDF conditionnelle *a posteriori* dudit paramètre. Avant de parvenir à représenter de manière robuste les PDF désirées, plusieurs étapes de traitement sont proposées.

La première concerne la détection et la suppression du burn-in (p. 25) par l'utilisation d'un test-diagnostique de stationnarité et de convergence, encore nommé test de Heidelberg & Welch [26]. Un second test, celui de Gelman & Rubin [11], permet d'apprécier la convergence de la chaîne. Ces deux tests sont codés sous R via la librairie coda [28]. Une fois cette étape de tests effectuée, et le burn-in de chaque chaîne écarté, une proportion de 1% de points est tirée aléatoirement sur chaque chaîne afin de se prémunir du caractère dépendant des éléments d'une chaîne de Markov. En effet, en théorie, deux éléments consécutifs d'une chaîne de Markov sont dépendants. Tirer au sort un faible pourcentage de cette dernière permet de réduire ce caractère de dépendance et forme ainsi un échantillon indépendant de la PDF recherchée.

Une caractéristique essentielle à la formation d'un estimateur robuste d'une PDF se nomme l'ergodicité. Introduite en page 25, l'ergodicité d'un estimateur de PDF représente la capacité de ce dernier à être indépendant du premier terme de la chaîne de Markov dont elle est issue. Pour rappel, cette itération initiale est prise au hasard sur le domaine de définition de la variable en question. Afin de respecter ce principe d'ergodicité, l'ensemble du processus de génération des estimateurs des PDF des variables d'intérêt par

l'algorithme MH, ainsi que les différents tests et diagnostics associés, est reproduit 35 fois en parallèle, avec pour chacun, des valeurs initiales de chaînes de Markov tirées au sort sur chacune des densités de probabilités *a priori* associées. Cette procédure, appelée multi-starts, permet de couvrir l'ensemble des domaines de définition des points initiaux, et ainsi de se prémunir de tout effet de dépendance de ces derniers.

La prochaine étape de construction de la méthode de quantification concerne l'étude du comportement algorithmique du processus d'inversion MCMC d'un point de vue de la robustesse des prédictions dans le cadre de cas tests jouets.

III - 3 Analyse du comportement algorithmique de la méthode d'inversion

Hypothèses d'étude

Cette partie du chapitre s'articule autour de l'étude et de l'analyse de la robustesse de l'algorithme d'inversion à échantillonner la PDF d'une masse de radionucléide. Une étude globale sur l'ensemble des variables en jeu associées à leurs domaines de définition respectifs n'est pas envisageable d'un point de vue de la complexité du problème (nombre de variables important), ainsi que du temps de calcul associé. De ce fait, seule l'influence des variables de densité (ρ) et de proportions de matériaux (Vin, Fe, Pu) sur les formes de PDF de masse et de densité estimées est étudiée. Il s'agit par conséquent d'une étude partielle au sens où l'influence des variables géométriques dites externes n'est pas prise en compte. Ces autres paramètres du problème sont choisis arbitrairement et supposés constants dans la suite. Ainsi, les variables (r, h, L) sont respectivement fixées aux valeurs (20 cm, 80 cm, 100 cm).

Un plan d'expériences composé de 55 essais est construit à partir des quatre variables d'intérêt, à savoir ($\rho, \text{Vin}, \text{Fe}, \text{Pu}$). Ce dernier représente un ensemble de 11 combinaisons de proportions massiques (Vin, Fe, Pu) pour lesquelles sont associées les 5 valeurs de densité $\rho = (0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8)$. Les 11 combinaisons de proportions massiques, illustrées en figure III .1, sont supposées recouvrir efficacement leurs domaines de définition respectifs. Ces dernières forment une série de 11 cas jouets $\mathbf{X}_{\text{test}}^i, i = 1, \dots, 11$ définis comme suit au sein du tableau III .1 :

Les 11 cas jouets sont schématiquement représentés au sein de la figure III .1 dans le sous-espace 2D des proportions massiques (u, v) [Eq. II .3].

Cas jouets	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Vin	0.1	0.1	0.3	0.3	0.6	0.6	0.8	0.1	0.1	0.4	0.3
Fe	0.3	0.6	0.1	0.6	0.1	0.3	0.1	0.8	0.1	0.2	0.4
Pu	0.6	0.3	0.6	0.1	0.3	0.1	0.1	0.1	0.8	0.4	0.3

TABLEAU III .1: Plan d'expériences relatif aux proportions massiques (Vin, Fe, Pu)

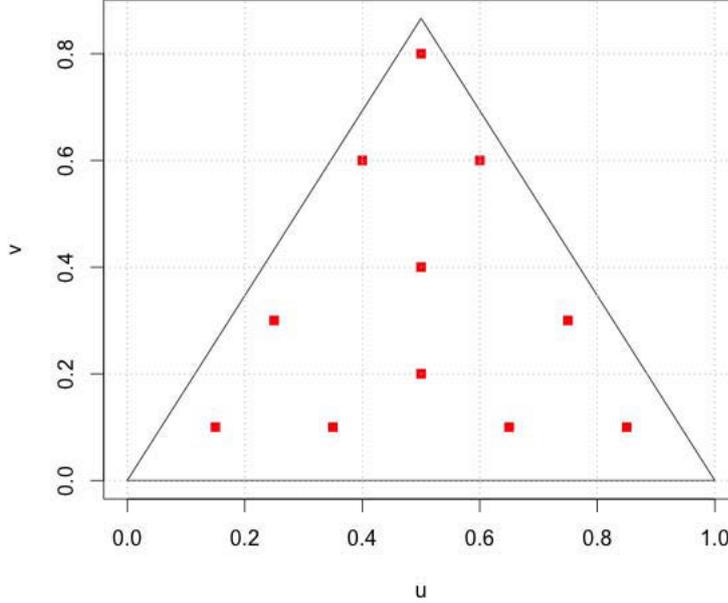


FIGURE III .1: Schéma du plan d'expériences dans l'espace des proportions (u,v) relatif à l'étude partielle de robustesse de l'algorithme d'inversion. Les 11 cas jouets apparaissent en rouge.

Chacun de ces cas jouets $\mathbf{X}_{\text{test}}^i, i = 1, \dots, 11$, associé à une densité donnée, octroie l'obtention d'une efficacité équivalente, permettant elle-même le calcul d'un vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} . Ce dernier, généré avec une masse de ^{239}Pu de 1 g *via* l'équation I .3, est ensuite fourni à la méthode de quantification. L'objectif de cette étude est d'analyser la forme des PDF de la masse et de la densité rendues par l'algorithme d'inversion au vu du vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} fourni.

Le vecteur \mathbf{Y}^{obs} formé pour chaque cas jouet du plan d'expériences est relatif aux six énergies usuelles du ^{239}Pu retenues, à savoir 94.6, 129.3, 203.5, 345, 375 et 413.7 keV. Concernant les densités de probabilités *a priori* des variables d'intérêt (ρ , Vin, Fe, Pu), ces dernières représentent des distributions uniformes non-informatives du type $\mathcal{U}(0, 1)$. De cette manière, aucune information relative au comportement d'atténuation photonique

interne du cylindre-objet n'est fournie à la méthode d'inversion. Enfin, la distribution de probabilité *a priori* de la masse m à estimer est également une loi uniforme, $\mathcal{U}(0, 10)$ (g).

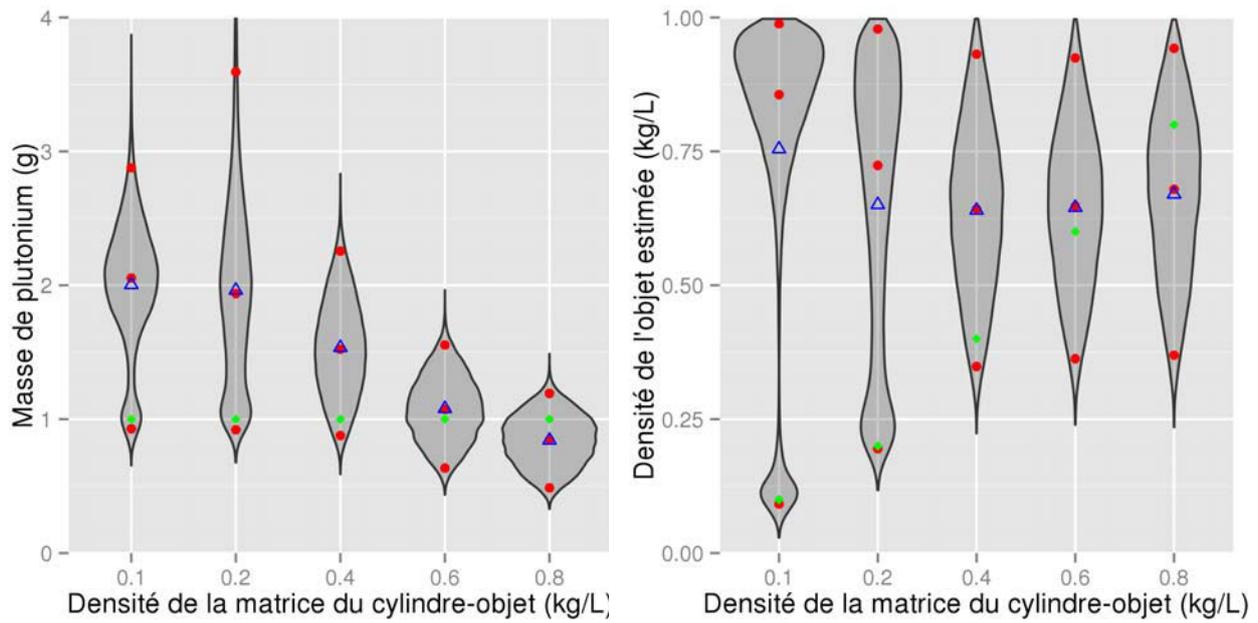
Résultats et discussions

Chacune des PDF de masse et de densité issue des cas jouets $\mathbf{X}_{\text{test}}^i, i = 1, \dots, 11$ du plan d'expériences est représentée sous la forme de diagrammes de type violon. Chaque figure présentée rassemble les cinq PDF, de masse de ^{239}Pu ou de densité équivalente, issues des 5 densités proposées. Les valeurs des quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, la moyenne empirique, ainsi que les valeurs attendues de masse et de densité équivalente, sont précisées sur l'ensemble des figures pour chaque distribution de probabilité estimée.

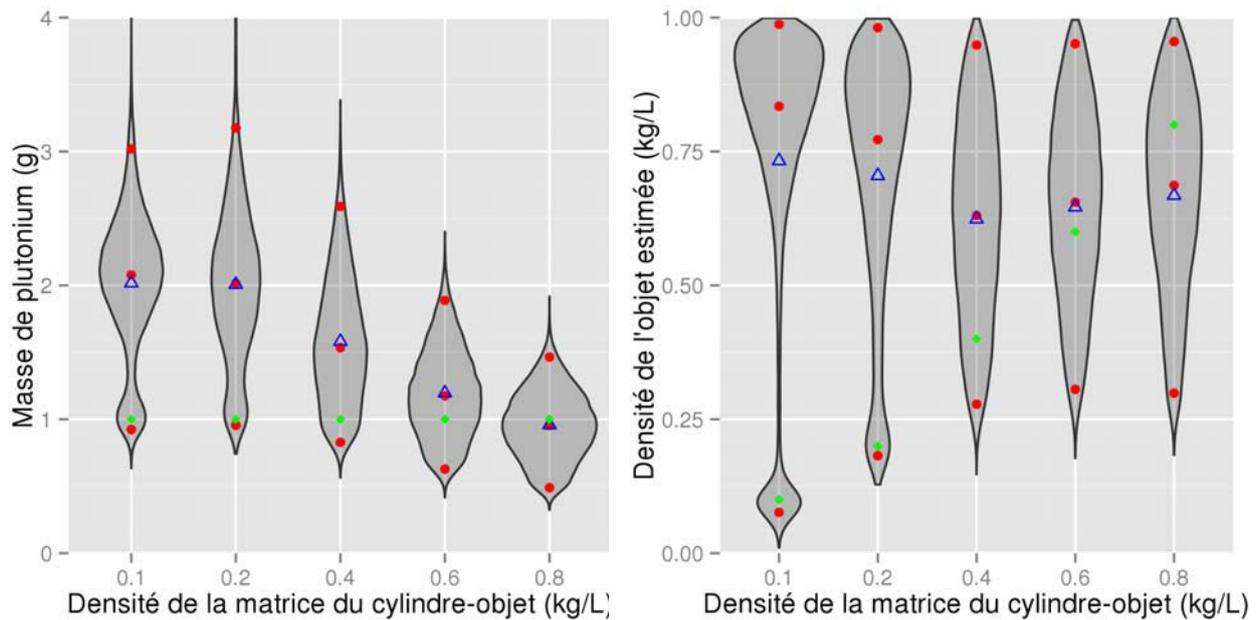
Les résultats relatifs aux cas jouets N°1 et N°2 sont donnés en figure III .2. Les résultats obtenus avec les autres cas tests jouets sont disponibles en Annexe.

Un premier résultat concerne l'approche des valeurs cibles de masse et de densité à estimer. Ces dernières sont mutuellement atteintes dans l'ensemble des distributions de probabilités estimées de masse et de densité équivalente, et ce, quels que soient le cas jouet et la densité équivalente d'évaluation utilisés. Par ailleurs, les densités de probabilités estimées sont en partie bimodales, surtout aux faibles densités d'étude, *i.e.* inférieures à 0.4 g.cm^{-3} . La présence d'un second mode de forte probabilité s'explique par l'existence d'un cas de masse plus élevée, relative à une densité plus élevée, *i.e.* supérieure à 0.6 g.cm^{-3} , et à des proportions massiques différentes, le tout associé à un même vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} . Cette seconde distribution rendue par l'algorithme d'inversion MCMC, apparaissant ainsi pour l'ensemble des cas jouets étudiés du plan d'expériences restreint, indique que la méthode d'inversion n'est pas bijective.

Pour rappel, les distributions de masse et de densité estimées sont obtenues sans *a priori* informatif sur les variables ($m, \rho, \text{Vin}, \text{Fe}, \text{Pu}$). La mise en place d'un *a priori* sur la variable de densité apparente ρ , comme par exemple une loi uniforme centré sur la valeur calculé de masse volumique apparente (masse/volume), permet d'obtenir une densité de probabilité de masse centrée sur la valeur attendue et de variance acceptable (<30%). Cette démarche permet de rejeter le second mode rendu par l'algorithme d'inversion, et ainsi obtenir la valeur attendue. Dans le cadre d'une mesure en conditions réelles, cela reviendrait à, soit orienter la PDF *a priori* de la variable densité autour de la densité apparente réelle de l'objet dans le cas où les deux modales ne seraient pas scindées, soit rejeter la ou les autres modales estimées par avis d'expert du fait d'une densité équivalente estimée aberrante par rapport à la densité apparente de l'objet (ex. modèle équivalent plus



(a) PDF estimées de la masse m du cas N°1. (b) PDF estimées de la densité ρ du cas N°1.



(c) PDF estimées de la masse m du cas N°2. (d) PDF estimées de la densité ρ du cas N°2.

FIGURE III .2: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas jouets N°1 et N°2 aux valeurs de densités $\rho = (0.1, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8)$. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes empiriques apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

lourd que l'objet mesuré à volumes égaux).

Conclusion

L'étude partielle présentée montre le caractère robuste de l'algorithme d'inversion à restituer les valeurs de masse et de densité imposées au travers du plan d'expériences proposé. Les résultats permettent de mettre en évidence le comportement non bijectif de la méthode avec l'estimation dans tous les cas étudiés de bimodales, convoluées ou non, pour les PDF de masse et de densité équivalente. L'ajout d'information sur le système d'étude *via* les lois *a priori* permet de cibler le mode d'intérêt, ou de rejeter le second.

Le prochain et dernier chapitre de ce mémoire porte sur la validation expérimentale de l'ensemble de la méthode de quantification explicitée.

Chapitre IV

Validation expérimentale de la méthode pour le ^{239}Pu

À ce stade du projet doctoral, une méthode de quantification par approche stochastique de radionucléides multi-émetteurs est construite. Cette dernière est élaborée afin de générer une estimation de la densité de probabilité conditionnelle d'une masse de radionucléide m d'intérêt, comme le ^{239}Pu , ainsi que celles des paramètres d'entrée \mathbf{X} utilisés pour l'estimation de l'efficacité de détection équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$. La méthode a pour caractéristique principale de maîtriser l'utilisation d'informations *a priori* émanant du retour d'expérience et/ou de l'avis d'expert, voire de s'en abstenir. Une étude partielle du comportement de l'algorithme d'inversion MCMC a été réalisée et permet, entre autres, de justifier de la capacité et de la robustesse de la méthode à restituer une masse donnée.

La prochaine étape de caractérisation de la méthode concerne la validation expérimentale du processus de quantification par la mise en place de protocoles d'essais et la comparaison des résultats théoriques et expérimentaux issus de ces derniers. Pour cela, un ensemble de quatre scènes de mesure considérant des objets de caractéristiques physiques, chimiques et nucléaires différentes sont mises en place. Ces cas tests sont utilisés afin de vérifier les capacités prédictives et la justesse de la méthode de quantification proposée.

Ce chapitre se décompose en trois parties. La première a pour objectif de présenter en détails les quatre cas tests de validation considérés, tant en explicitant leurs caractéristiques physiques propres, qu'en en comparant les différences et les complémentarités, puis d'en exposer les premiers résultats de quantification. Une deuxième section propose d'étudier l'influence de la localité d'une source ponctuelle sur la forme de la distribution de la densité de probabilité finale de la masse. Enfin, une troisième a pour objectif d'ouvrir le

champ d'application de la méthode à des cas réels d'objets issus d'un procédé de fabrication de fût de déchets et d'en confronter les résultats à ceux obtenus par la méthode de quantification actuelle déployée par le laboratoire dans son activité d'expertise.

IV - 1 Présentation des cas tests expérimentaux de validation : caractéristiques et résultats

Cette section a pour objectif de présenter les quatre cas tests expérimentaux choisis pour mener à bien l'ensemble de l'étude de validation et d'en fournir les premiers résultats. Ces cas forment des échantillons représentatifs des objets traités par le laboratoire, auxquels on souhaite, à l'avenir, appliquer la méthode de quantification par approche stochastique développée. Les caractéristiques physiques, chimiques et nucléaires des objets à caractériser par le laboratoire sont fidèlement représentées par les quatre cas tests présentés.

IV - 1.1 Caractéristiques physiques et hypothèses de mesure des cas tests

L'ensemble des mesures est effectué à l'aide d'un détecteur GeHP de marque Canberra[®], référencé B03035, et caractérisé à l'aide de la méthode de caractérisation développée dans le cadre des travaux de thèse de Guillot [13]. Le métamodèle lié au découplage du détecteur de la scène de mesure (II - 3.1) est généré *via* la méthode de krigeage universel explicitée au chapitre II et intégrée sous R au sein de la librairie DiceKriging [30]. Les surfaces extraites issues des différentes mesures de validation sont obtenues par le logiciel d'extraction Génie2000[®] après des temps de mesure suffisamment grands pour obtenir un nombre de coups sous chaque pic d'émission utilisé supérieur à 10^4 . Les variances associées à ces surfaces sont arbitrairement fixées à 5% des surfaces extraites.

Les cas tests de validation sont par la suite dénommés E_1 , E_2 , E_3 et CO. Les mesures associées à chacun de ces cas tests sont effectuées à l'aide d'un plateau tournant. Les trois premiers cas concernent des fûts de type pétrolier d'un volume de 200 litres, identiques à ceux utilisés en routine par le laboratoire pour la gestion de déchets radioactifs. Le quatrième cas, nommé CO, concerne un container de transport cylindrique de petite taille d'un volume de 4.5 litres. Les caractéristiques physiques de ces cas tests sont rassemblées et synthétisées dans le tableau IV .1.

Avec :

Cas test	L(cm)	h(cm)	r(cm)	Matériaux	M(g)	ρ (g.cm ⁻³)
E ₁	117	80	30	Vinyle	0.37	0.16
E ₂	99	80	30	Vinyle/Métal	1.95	0.41
E ₃	98.5	80	30	Vinyle	0.28	0.17
CO	100	20	8	Plutonium/Métal	13	0.40

TABLEAU IV .1: Caractéristiques physiques des cas tests de validation

- L : Distance de mesure du capot du détecteur au contact de l'objet (cm)
- h : Hauteur de l'objet (cm)
- r : Rayon de l'objet (cm)
- Matériaux : type de matériau, ou mélange de matériaux, composant la matrice atténuante de l'objet
- M : Masse de plutonium (g)
- ρ : Densité apparente de l'objet (g.cm⁻³)

La densité apparente ρ représente le rapport entre la masse réelle totale de l'objet et son volume. Ces deux grandeurs étant déterminables avec une précision, la densité ρ n'est pas en soi un paramètre *a priori* : on parle dans la suite d'information *a priori* limitée. Ce dernier permet de se rapprocher d'une situation dans laquelle aucune caractéristique interne ne serait disponible. La distance de mesure dite L représente la distance la plus courte séparant le centre du capot du détecteur et l'objet. La masse M de plutonium est définie comme étant la masse de ²³⁹Pu. L'isotopie n'est pas fournie. Les quatre cas tests sont explicités plus en détails ci-après.

Cas E₁

L'objectif de ce cas test de validation (figure. IV .1) est de représenter les objets nucléaires d'intérêt de faible atténuation photonique pour lesquels les masses à rechercher sont faibles, *i.e.* inférieures au gramme. Pour ce faire, un fût de type pétrolier de 200 litres est considéré. Une masse de 371 mg de ²³⁹Pu est confinée dans un pilulier prévu à cet effet et placé au centre et à mi-hauteur du fût. Cette dernière est répartie de façon surfacique et homogène sur un disque également prévu à cet effet. Le détecteur GeHP est placé face au pilulier à une distance de mesure au contact de 117 cm. Bien que ce cas test puisse paraître simple d'un premier abord, il représente un bon candidat pour initier le protocole de validation du fait qu'il soit représentatif d'une part importante des objets mesurés en routine.

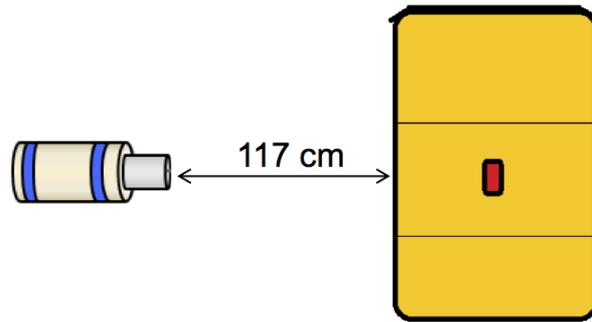


FIGURE IV .1: Représentation schématique du cas test de validation E_1 . En rouge le pilulier contenant la masse de ^{239}Pu à quantifier. En jaune la matrice d'atténuation de type vinylique.

Cas E_2

Ce deuxième cas de validation (figure. IV .2) a pour objectif d'observer l'influence d'une évolution de la matrice de l'objet vers un système d'atténuation photonique multiple et plus importante. Pour cela, un mélange de métal et de vinyle est considéré. La matrice se décompose en trois parties avec au plus haut une sous-matrice 100% vinylique, suivi du mélange métal-vinyle, et au plus bas une sous-matrice 100% métal. L'union de ces deux matériaux permet de générer un comportement photonique en termes d'atténuation spécifique et varié. Une masse de 1.95 g de ^{239}Pu sous forme de copeaux métalliques est confinée, de même que pour le cas E_1 , dans un pilulier prévu à cet effet et placé au centre et à mi-hauteur du fût. Le détecteur GeHP est placé face au pilulier à une distance de mesure au contact de 99 cm. Ce cas de validation permet également de générer, pour une masse moyenne de ^{239}Pu , l'effet d'auto-absorption de cette dernière sur son propre spectre d'émission photonique, et d'en observer ainsi le comportement sur la méthode de quantification.

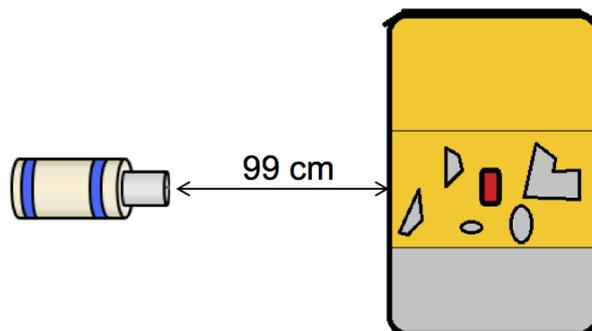


FIGURE IV .2: Représentation schématique du cas test de validation E_2 . En rouge le pilulier contenant la masse de ^{239}Pu à quantifier. En jaune et gris la matrice d'atténuation composée d'un mélange de vinyle et de métal.

Cas E₃

Le troisième cas test proposé est un cas de validation exploité par le laboratoire sur une de ses chaînes de mesure de fûts de déchets par spectrométrie gamma. Son intérêt réside dans le fait qu'il reproduit les capacités d'atténuation photonique de fûts d'intérêt issus d'une chaîne de production du centre de Valduc. Ce dernier est composé de matériaux de type vinylique, et sa source de plutonium de 0.28 g est équirépartie dans 16 piluliers dans l'ensemble du volume du fût afin d'obtenir une source globale homogène sur l'intégralité de ce dernier. De manière analogue au cas E₁, le plutonium inclus dans chaque pilulier est réparti de façon surfacique et homogène sur un disque prévu à cet effet. Le détecteur GeHP est placé face au fût de déchets et à mi-hauteur à une distance de mesure au contact de 98.5 cm. L'objectif de ce cas de validation est de modifier la forme du terme source par le passage d'un source ponctuelle comme définie dans les cas E₁ et E₂, vers une émission photonique homogène d'intensité faible répartie sur l'ensemble de l'objet.

Cas CO

Ce dernier cas de validation (figure. IV .3) considère un container de transport étanche d'un volume de 4.5 litres. Ce container contient, sous deux couches de vinyle, une masse de 13 g de plutonium métallique sous forme de copeaux équiréparties dans 20 piluliers. Au vu de la quantité de plutonium à quantifier dans ce cas, des effets d'auto-absorption propres à ce dernier doivent théoriquement apparaître. L'objet, constitué d'un réceptacle et de son couvercle étanche, est composé d'acier inoxydable. Le détecteur GeHP est placé face au pilulier à une distance de mesure au contact de 100 cm. Cette objet rassemble donc à lui-seul des effets d'auto-absorption ainsi qu'une masse de ²³⁹Pu importants, en plus d'une forme de terme source étendue.

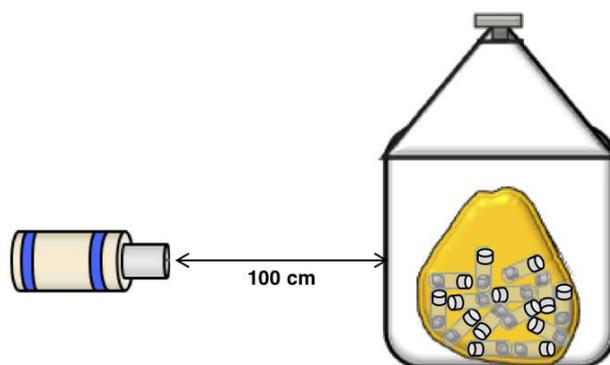


FIGURE IV .3: Représentation schématique du cas test de validation CO. En gris et blanc les piluliers confinant la masse de ²³⁹Pu à quantifier. En jaune les couches de vinyle rassemblant les 20 piluliers.

Une fois ces quatre cas tests de validation présentés, l'objectif est à présent d'en obtenir

une estimation robuste des masses de ^{239}Pu respectives *via* l'utilisation de la méthode de quantification par approche stochastique.

IV - 1.2 Mise en place des hypothèses de quantification par la méthode stochastique

Afin de pouvoir utiliser la méthode de quantification par approche stochastique sur les cas de validation présentés, les hypothèses relatives aux densités de probabilités *a priori* des composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} de l'efficacité équivalente $\epsilon(\mathbf{X})$ (III - 1.2), ainsi qu'aux paramètres (A, β, \mathbf{k}) utiles à la production des chaines de Markov par l'algorithme de Metropolis-Hastings (III - 2.2), doivent être précisées. Les densités *a priori* dépendent de l'information disponible sur l'objet d'intérêt à mesurer ou bien de l'information que l'on souhaite apporter. Les paramètres (A, β, \mathbf{k}) de l'algorithme MH dépendent de la densité de probabilité *a posteriori* recherchée et sont par conséquent déterminés pas à pas au cas par cas.

Les densités de probabilité *a priori*, ainsi que les paramètres (A, β, \mathbf{k}) , sont rassemblés, pour chacun des cas test de validation, au sein des tableaux IV .2 et IV .3.

Cas test	L (cm)	h (cm)	r (cm)	Vin, Fe, Pu	m (g)	ρ (g.cm ⁻³)
E ₁	$\mathcal{N}(117, 0.5)$	$\mathcal{N}(80, 0.5)$	$\mathcal{N}(30, 0.5)$	$\mathcal{U}(0, 1)$	$\mathcal{U}(0, 10)$	$\mathcal{U}(0, 1)$
E ₂	$\mathcal{N}(99, 0.5)$	$\mathcal{N}(80, 0.5)$	$\mathcal{N}(30, 0.5)$	$\mathcal{U}(0, 1)$	$\mathcal{U}(0, 10)$	$\mathcal{U}(0, 1)$
E ₃	$\mathcal{N}(98.5, 0.5)$	$\mathcal{N}(80, 0.5)$	$\mathcal{N}(30, 0.5)$	$\mathcal{U}(0, 1)$	$\mathcal{U}(0, 10)$	$\mathcal{U}(0, 1)$
CO	$\mathcal{N}(100, 0.5)$	$\mathcal{N}(20, 0.5)$	$\mathcal{N}(8, 0.5)$	$\mathcal{U}(0, 1)$	$\mathcal{U}(0, 30)$	$\mathcal{U}(0, 1)$

TABLEAU IV .2: Densités de probabilités *a priori* des composantes du vecteur d'entrée $\mathbf{X} = (r, h, \rho, L, Vin, Fe, Pu)$ de l'efficacité équivalente de détection $\epsilon(\mathbf{X})$ associées au quatre cas test de validation expérimentale.

Les densités de probabilités *a priori* sont choisies de sorte que la méthode de quantification ne dispose pas d'information relative à la capacité d'atténuation photonique de l'objet. Cette absence de donnée se traduit par l'utilisation de distributions équiprobables uniformes non-informatives du type $\mathcal{U}(a, b)$ pour la variable densité ρ , la masse de radio-nucléide m , ainsi que pour les variables de proportions de matériaux Vin, Fe et Pu. *A contrario*, les variables géométriques r, h et L étant expérimentalement déterminées avec une grande précision (mesures métriques), des distributions gaussiennes centrées sur les valeurs mesurées et de variances faibles du type $\mathcal{N}(a, b)$ sont prises en compte.

Cas test	A	β	$k_{r,h,L}$	$k_{Vin,Fe,Pu,\rho}$
E ₁	0.4	0.2	1	0.05
E ₂	0.35	0.2	1	0.05
E ₃	0.4	0.2	1	0.05
CO	0.2	1	1	0.05

TABLEAU IV .3: Paramètres (A, β, \mathbf{k}) de l’algorithme d’inversion MH associés à chacun des quatre cas test de validation expérimentale.

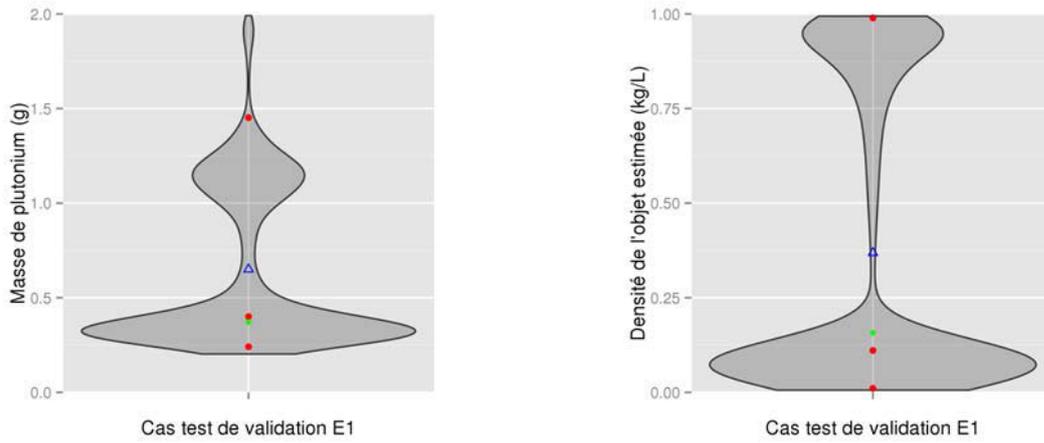
Concernant les paramètres (A, β, \mathbf{k}), ces derniers sont choisis de façon à faire converger rapidement les chaînes de Markov lors du processus de multi-start (p. 60), et ainsi d’obtenir, en se basant sur les tests et diagnostics de convergences et d’ergodicité (III - 2.3), des estimations des PDF conditionnelles *a posteriori* recherchées. Bien que ces paramètres soient pour ici déterminés empiriquement, une optimisation de la méthode d’inversion par la détermination de ces derniers de manière adaptative est réalisable, mais non implémenté dans cette démarche. Cette optimisation fait notamment intervenir un formalisme MCMC dit adaptatif, décrit entre autres par Robert et Casella [5]. Ce dernier permet de régler pas à pas, et de manière automatique, les paramètres (A, β, \mathbf{k}), afin de conserver un certain taux d’acceptation préalablement fixé.

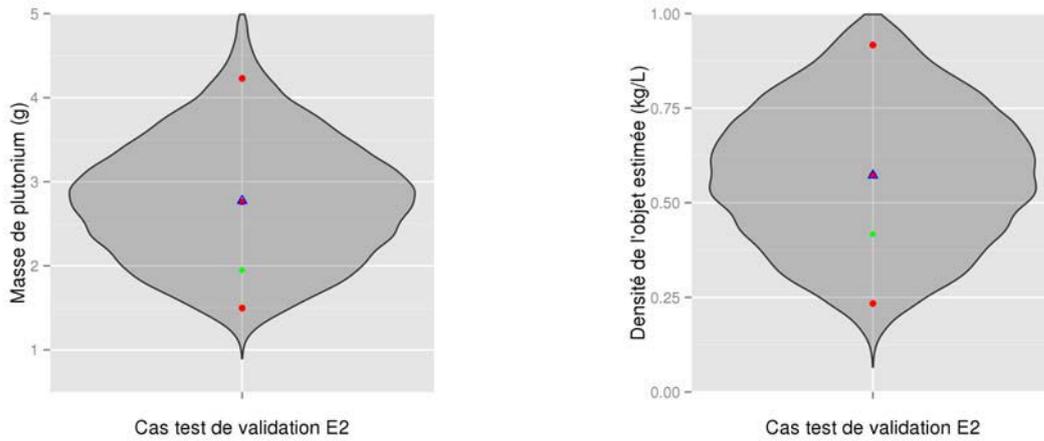
IV - 1.3 Application de la méthode de quantification et résultats de quantification avec et sans *a priori*

La méthode de quantification, munie des hypothèses présentées, est testée sur les quatre cas tests de validation introduits. Les distributions de probabilités conditionnelles associées des masses m , ainsi que des densités équivalentes ρ , sont données sous formes de diagrammes violon. Ces derniers rassemblent les moyennes empiriques, médianes et quantiles à 2.5% et 97.5% des distributions estimées.

Les résultats rendus par la méthode de quantification pour les cas E₁ et E₂ sont disponibles en figure IV .4. Ceux relatifs aux cas E₃ et CO sont indiqués en figure IV .5. L’ensemble des données relatives à ces résultats est rassemblé au sein du tableau IV .4. Les écarts relatifs (%) aux valeurs de masse attendue sont indiqués aux côtés des moyennes empiriques et médianes estimées. Les écarts relatifs indiqués aux côtés des quantiles à 2.5% et 97.5% sont quant à eux relatifs aux moyennes empiriques estimées.

Les quatre densités de probabilité de masse estimées relatives aux quatre cas de validation donnent aux valeurs attendues de masses de ²³⁹Pu et de densités de très fortes probabili-


 (a) PDF estimées de la masse m du cas E_1 .

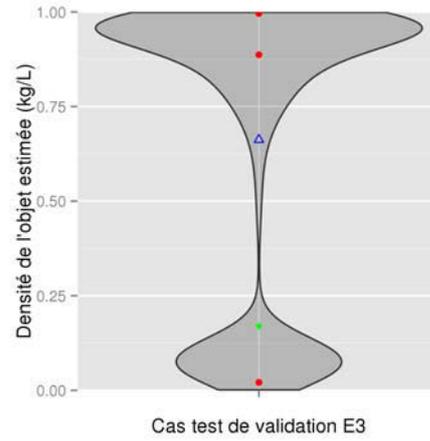
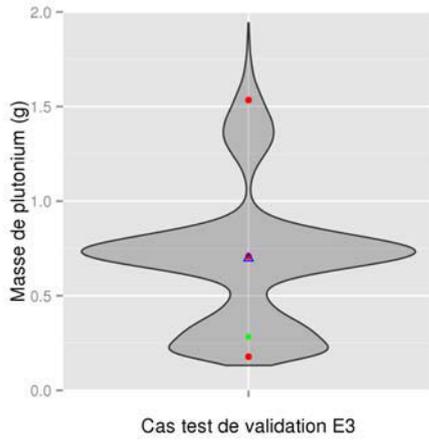
 (b) PDF estimées de la densité ρ du cas E_1 .

 (c) PDF estimées de la masse m du cas E_2 .

 (d) PDF estimées de la densité ρ du cas E_2 .

FIGURE IV .4: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas E_1 et E_2 . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

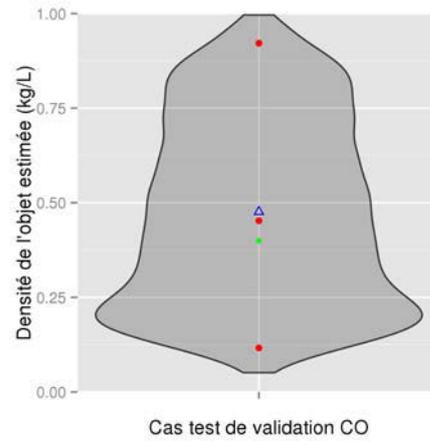
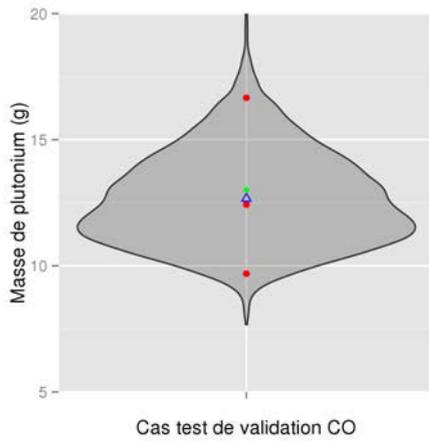
tés d'occurrence pour le cas E_1 , et des probabilités élevées pour les trois autres cas. Ces résultats sont mis en comparaison avec les conclusions de l'étude partielle de robustesse de l'algorithme d'inversion [III - 3]. Ces dernières ont mis en exergue des distributions de probabilité bimodales nettement scindées aux faibles densités équivalente ρ , et convoluées pour des densités plus importantes ($\rho > 0.4$).

Ces deux cas semblent se retrouver dans les cas de validation proposés. En effet, aux faibles densités apparentes, les cas de validation E_1 et E_3 rendent des PDF de masse multimodales, alors que les cas E_2 et CO, quant à eux, et pour des densités apparentes respectives de 0.41 et 0.40, sont relatifs à des distributions monomodales de variances élevées. Afin de pouvoir apprécier les distributions estimées des cas de validation avec plus de précision,



(a) PDF estimées de la masse m du cas E_3 .

(b) PDF estimées de la densité ρ du cas E_3 .



(c) PDF estimées de la masse m du cas CO.

(d) PDF estimées de la densité ρ du cas CO.

FIGURE IV .5: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les cas E_3 et CO. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

l'utilisation d'*a priori* informatifs sur la densité équivalente pour les cas de densités apparentes les plus élevées (E_2 , CO) comme expliquée précédemment [III - 3] est éprouvée. La PDF *a priori* de la densité ρ est alors prise uniforme sur $[\rho_{app} - 0.1, \rho_{app} + 0.1]$, avec ρ_{app} la masse volumique apparente de l'objet. Dans les cas E_1 et E_3 , le rejet de la seconde modale de la densité de probabilité estimée de la densité équivalente est effectué du fait d'une moyenne bien supérieure à la densité apparente des objets en question. En d'autres termes, à volume égal, la seconde modale de densité renvoie un cas de masse bien plus importante que celle de l'objet mesuré.

Les distributions de probabilité obtenues pour les quatre cas de validation *via* l'exploitation *a posteriori* des PDF estimées et l'utilisation d'informations *a priori* limitées relatives

Cas test	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
E ₁	0.371	0.24 (-62.9%)	0.65 (+75.2%)	0.40 (+7.90%)	1.45 (+123%)
E ₂	1.95	1.50 (-46.0%)	2.77 (+42.3%)	2.76 (+41.6%)	4.23 (+52.4%)
E ₃	0.283	0.18 (-74.5%)	0.70 (+147%)	0.71 (+150%)	1.53 (+153%)
CO	13	9.69 (-23.5%)	12.7 (-2.57%)	12.4 (-4.37%)	16.7 (+31.5%)

TABLEAU IV .4: Résultats de quantification relatifs aux cas de validation E₁, E₂, E₃ et CO.

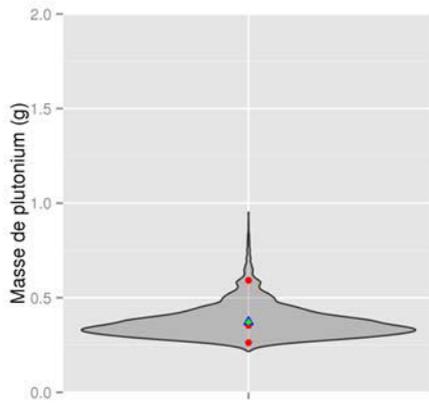
à la densité équivalente sont rassemblées au sein de la figure IV .6.

Les résultats de quantification issus de la figure IV .6 sont rassemblés dans le tableau IV .5. Ce dernier rassemble la moyenne empirique (\bar{M}), la médiane ($M_{50\%}$), les quantiles à 2.5% ($M_{2.5\%}$) et 97.5% ($M_{97.5\%}$), ainsi que les écarts relatifs associés à la valeur de masse attendue des distributions de masse estimées relatives aux quatre cas tests.

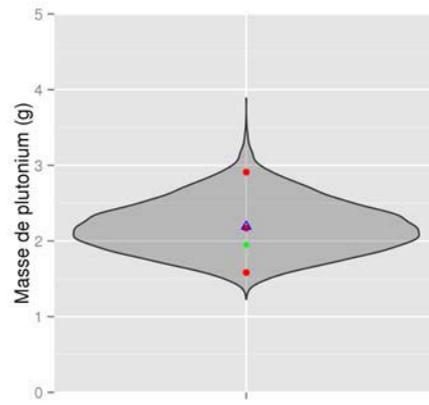
Cas test	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
E ₁	0.371	0.262 (-29.4%)	0.372 (< 0.04%)	0.354 (-4.6%)	0.592 (+59.6%)
E ₂	1.95	1.58 (-27.9%)	2.19 (+12.3%)	2.17 (+11.3%)	2.91 (+32.9%)
E ₃	0.283	0.157 (-46%)	0.291 (+2.8%)	0.276 (-2.8%)	0.520 (+78.7%)
CO	13	10.2 (-17.1%)	12.3 (-5.4%)	12.3 (-5.4%)	14.7 (+19.5%)

TABLEAU IV .5: Résultats de quantification relatifs aux cas de validation E₁, E₂, E₃ et CO, avec utilisation d'informations *a priori* limitées sur la variable de densité équivalente ρ .

Les quatre distributions de masse estimées sont mono-modales. L'utilisation d'une information *a priori* sur la densité équivalente rend la problème d'inversion bijectif dans tous les cas de mesure. Les cas de validation E₁, E₃ et CO présentent des écarts relatifs de la valeur attendue à la moyenne des distributions estimées satisfaisants inférieurs à 5.4% et de 12.3% pour le cas E₂. Les écarts relatifs à la médiane sont du même ordre de grandeur. Les valeurs de quantiles à 2.5% sont toutes inférieures à 44.5% des moyennes estimées. Les valeurs de quantiles à 97.5% sont environ deux fois plus importantes que celles à 2.5% pour les cas E₁, E₂ et E₃. Le cas CO présente des valeurs de quantiles à 2.5% et 97.5% relativement faibles à respectivement 21.5% et 13.5% de la moyenne estimée. Ces intervalles de confiance à 95% estimées sont satisfaisants au vu du peu d'informations relatives à la capacité d'atténuation photonique des objets fournies à la méthode.



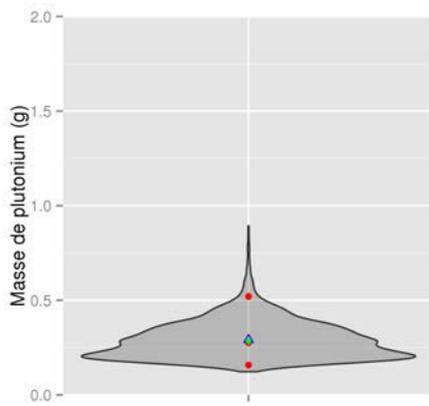
Cas test de validation E1



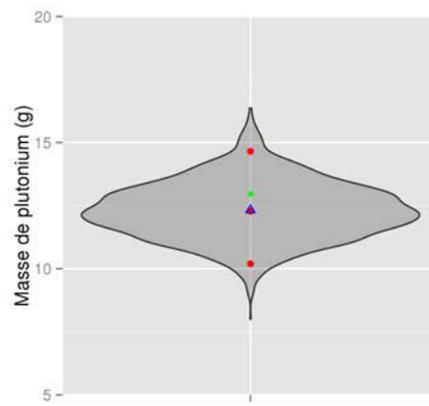
Cas test de validation E2

(a) PDF estimées de la masse m du cas E₁ avec *a priori* limité sur ρ .

(b) PDF estimées de la masse m du cas E₂ avec *a priori* limité sur ρ .



Cas test de validation E3



Cas test de validation CO

(c) PDF estimées de la masse m du cas E₃ avec *a priori* limité sur ρ .

(d) PDF estimées de la masse m du cas CO avec *a priori* limité sur ρ .

FIGURE IV .6: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les quatre cas de validation avec utilisation d'informations *a priori* limités sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

Conclusion

Les résultats de quantification relatifs aux quatre cas tests de validation sont satisfaisants du point de vue de leurs précisions, des écarts relatifs aux moyennes estimées obtenus, des intervalles de confiance à 95% estimés, ainsi que de la faible quantité de données relatives à l'atténuation photonique des objets fournies à la méthode. Bien qu'ils soient soumis à l'utilisation d'informations *a priori* sur la variable de densité équivalente ρ , ces derniers sont exploitables au sens où la densité équivalente est assimilable à la densité apparente de l'objet dans le cadre de la mesure d'objet homogène, ou *a minima* d'objet de répartition

à symétrie cylindrique.

IV - 2 Influence de la localisation de la source sur la robustesse de la méthode de quantification

Hypothèses d'étude

L'objectif de cette étude est d'analyser l'influence de la localisation d'une source d'émission radioactive ponctuelle incluse dans un objet de type fût de déchets sur la robustesse de la méthode de quantification proposée à prédire la masse de radionucléide attendue. Pour ce faire, un protocole expérimental considérant la mesure par spectrométrie gamma d'un fût de déchets radioactifs de 200 litres est défini. Deux séries de six mesures, effectuées avec l'utilisation d'un détecteur GeHP caractérisé [13], sont considérées pour deux masses volumiques apparentes de fût, *i.e.* 0.16 et 0.45 g.cm^{-3} . La matrice d'atténuation relative à la série de mesures à 0.16 g.cm^{-3} est la même que celle utilisée pour le cas test de validation E_1 , à savoir une mousse vinylique répartie de manière homogène dans l'ensemble du fût. Concernant la seconde série à 0.45 g.cm^{-3} , des tronçons de tubes en plastique PVC sont utilisés pour remplir de façon homogène le fût afin d'obtenir cette densité apparente. Les six mesures de chaque série sont associées à six positions différentes d'une source de ^{239}Pu de 0.371 g (0.16 g.cm^{-3}) et 1.95 g (0.45 g.cm^{-3}). Ces dernières sont schématisées au sein de la figure IV .7.



FIGURE IV .7: Schéma représentant les six localisations spatiales de la source de ^{239}Pu au sein du fût de déchets

Le fût est mis en rotation à l'aide d'un tourne-fût pour chacune des douze mesures. Les sources de plutonium à quantifier sont confinées dans des piluliers prévus à cet effet. Ces derniers sont positionnés à six emplacements au sein du fût correspondant aux six mesures par série, quatre disposés selon le rayon et à mi-hauteur du fût, et deux autres

selon la hauteur, comme indiqué en figure IV .7. Les quatre localisations radiales sont nommées R_1 , R_2 , R_3 et R_4 . Les deux autres positions longitudinales sont appelées Z_2 et Z_3 . La mesure sur R_1 est utilisée par la suite comme mesure longitudinale initiale Z_1 . Les coordonnées cylindriques des six positions utilisées sont synthétisées au sein du tableau IV .6. Pour rappel, le fût de déchets utilisé pour l'étude possède un volume de 200 litres, un diamètre de 60 cm, et une hauteur de 80 cm.

	R_1/Z_1	R_2	R_3	R_4	Z_2	Z_3
Rayon (cm)	0	5	15	27.5	0	0
Hauteur (cm)	40	40	40	40	20	0

TABLEAU IV .6: Coordonnées cylindriques des localisations des six mesures par série au sein du fût. L'origine est placée sur l'axe du fût et sur son fond (Z_3).

Les mesures de l'étude sont effectuées avec une durée d'acquisition de trois heures, permettant ainsi d'obtenir un nombre de coups sous les pics d'émission d'intérêt suffisant de l'ordre de 10^4 . La méthode de quantification par approche stochastique est éprouvée sur l'ensemble des douze mesures de l'étude. Le vecteur des observations utilisé \mathbf{Y}^{obs} est constitué des six surfaces extraites du spectre aux énergies d'émission retenues du ^{239}Pu . Les densités de probabilité *a priori* fixées pour les composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} du métamodèle de l'efficacité de détection de la scène de mesure sont les mêmes que celles du tableau IV .2. Pour rappel, la masse m , la densité équivalente ρ , ainsi que les proportions massiques Vin, Fe et Pu possèdent des PDF *a priori* uniformes peu informatives. Les PDF *a priori* des composantes géométriques r , h et L sont des lois normales centrées sur leurs valeurs et de variances faibles ($<1\text{cm}$). Ainsi, et de manière analogue à l'étude de validation précédente, la méthode de quantification ne dispose dans un premier temps d'aucune information relative à la capacité d'atténuation des objets. Ses seules observations sont issues du spectre d'acquisition et des paramètres géométriques de la scène de mesure.

Résultats de quantification

Les résultats rendus par la méthode de quantification pour les deux séries de six mesures sont présentés sous la forme de diagrammes violons. Quatre séries de ces diagrammes sont obtenues pour chacune des séries de mesures. Les premiers se concentrent sur l'influence radiale, les seconds sur l'aspect longitudinal, du positionnement de la source de ^{239}Pu . Pour chaque série de mesures, les diagrammes des PDF estimées de la masse m et de la densité équivalente ρ sont proposés. Ces derniers sont donnés en figures IV .8 et IV .9 relativement aux deux séries de mesures. De manière analogue aux résultats des études précédentes,

les moyennes empiriques, médianes et quantiles à 2.5% et 97.5% sont précisés sur chacun des diagrammes. L'ensemble des données est rassemblé au sein des tableaux IV .7, IV .8, IV .9 et IV .10. Les écarts relatifs (%) aux valeurs de masse attendue sont indiqués aux côtés des moyennes empiriques et médianes estimées. Les écarts relatifs indiqués aux côtés des quantiles à 2.5% et 97.5% sont quant à eux relatifs aux moyennes empiriques estimées.

Mesures	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
R ₁	0.37	0.23 (-46.1%)	0.43 (+15.4%)	0.34 (-8.90%)	1.20 (+180%)
R ₂	0.37	0.22 (-39.5%)	0.37 (<1%)	0.32 (-13.7%)	1.08 (+195%)
R ₃	0.37	0.24 (-47.5%)	0.46 (+23.0%)	0.35 (-5.2%)	1.28 (+182%)
R ₄	0.37	0.25 (-40.4%)	0.42 (+13.1%)	0.35 (-4.7%)	1.28 (+205%)

TABLEAU IV .7: Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R₁ à R₄ associés à la série N°1 (0.16 g.cm⁻³).

Cas test	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
Z ₁	0.37	0.23 (-46.1%)	0.43 (+15.4%)	0.34 (-8.90%)	1.20 (+180%)
Z ₂	0.37	0.22 (-45.2%)	0.35 (-4.3%)	0.31 (-16.2%)	1.05 (+195%)
Z ₃	0.37	0.21 (-48.3%)	0.40 (+9.0%)	0.31 (-17.1%)	1.14 (+183%)

TABLEAU IV .8: Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z₁ à Z₃ associés à la série N°1 (0.16 g.cm⁻³).

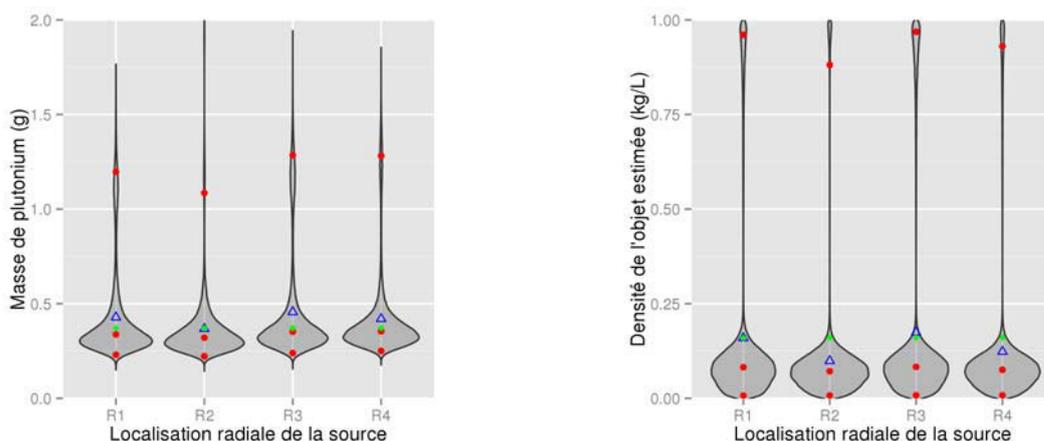
Mesures	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
R ₁	1.95	1.41 (-45.4%)	2.59 (+32.6%)	2.51 (+28.5%)	4.59 (+83.3%)
R ₂	1.95	1.29 (-50.3%)	2.63 (+34.8%)	2.60 (+33.4%)	4.24 (+63%)
R ₃	1.95	1.61 (-47.4%)	3.06 (+56.7%)	3.03 (+55.5%)	4.73 (+54.8%)
R ₄	1.95	1.70 (-47.1%)	3.21 (+64.9%)	3.20 (+63.9%)	4.98 (+54.9%)

TABLEAU IV .9: Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R₁ à R₄ associés à la série N°2 (0.45 g.cm⁻³).

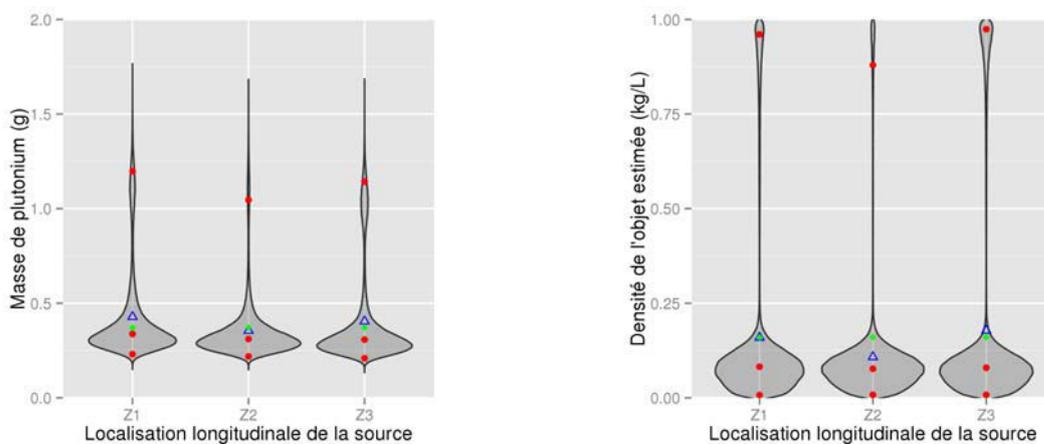
Les distributions estimées de masse m de ^{239}Pu , aussi bien relatives à une localisation radiale de la source, que longitudinale, incluent les valeurs attendues. L'approche globale de la méthode reste ainsi cohérente dans ce cas d'application. En ce qui concerne l'étude longitudinale, les trois distributions, correspondant aux trois localisations, sont structurellement identiques, autant en termes de moyennes empiriques, de médianes, que

Mesures	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
Z_1	1.95	1.41 (-45.4%)	2.59 (+32.6%)	2.51 (+28.5%)	4.59 (+83.3%)
Z_2	1.95	1.33 (-49.4%)	2.64 (+35.4%)	2.52 (+29.2%)	4.87 (+84.6%)
Z_3	1.95	1.32 (-46.9%)	2.47 (+26.9%)	2.43 (+24.5%)	4.00 (+61.7%)

TABLEAU IV .10: Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}).



(a) PDF estimées de la masse m pour les cas radiaux. (b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas radiaux.



(c) PDF estimées de la masse m pour les cas longitudinaux. (d) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas longitudinaux.

FIGURE IV .8: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.16 g.cm^{-3} . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

de variances, et ce pour les deux séries de densités apparentes. Les résultats relatifs à l'influence radiale sont différents. La distribution de probabilité de masse se déplace vers des

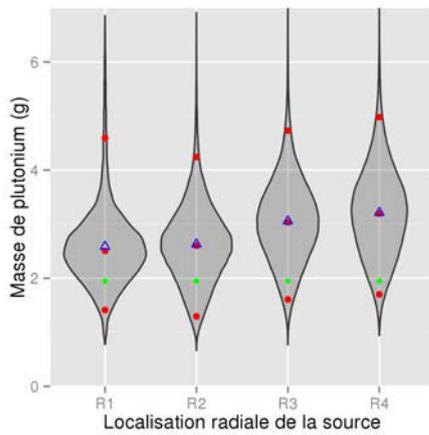
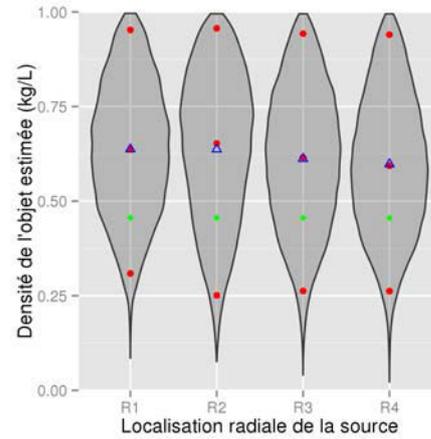
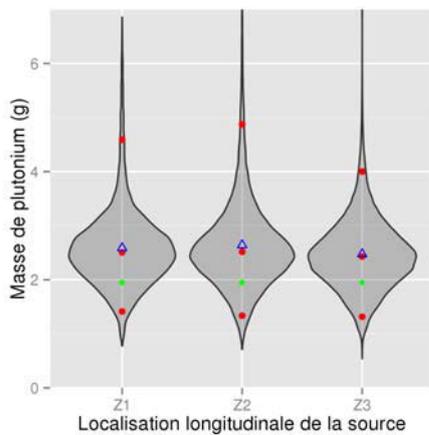
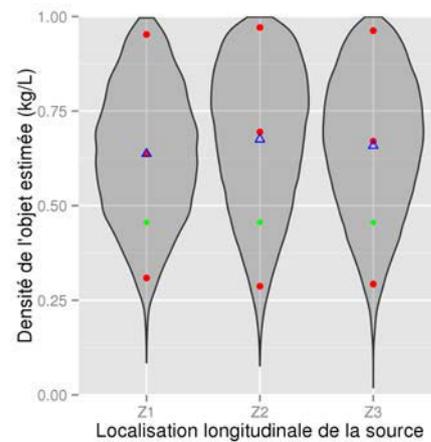

 (a) PDF estimées de la masse m pour les cas radiaux.

 (b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas radiaux.

 (c) PDF estimées de la masse m pour les cas longitudinaux.

 (d) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas longitudinaux.

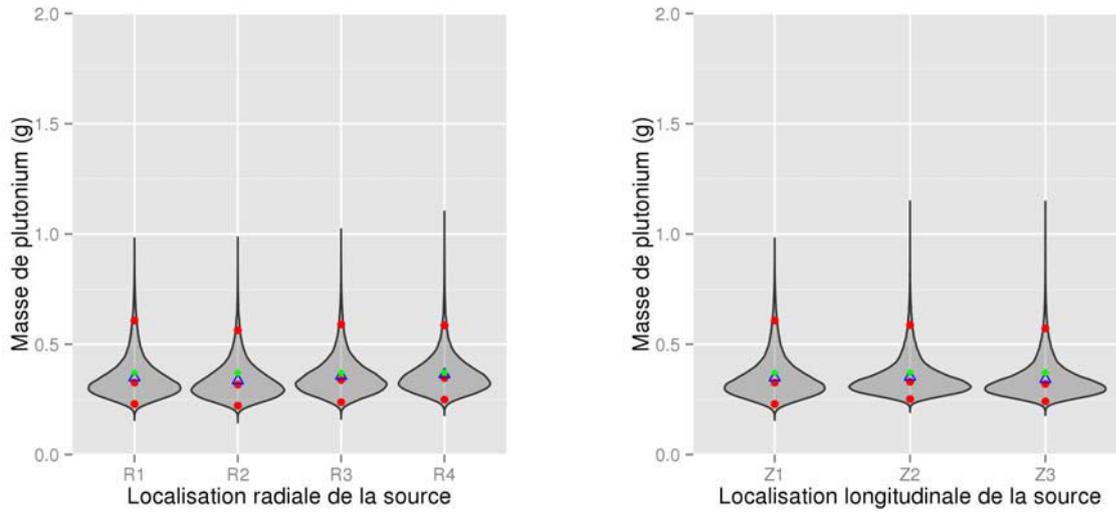
FIGURE IV .9: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente $0.45 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

distributions de masses moyennes plus importantes au fur et à mesure de l'excentration, tout en augmentant sa variance. En outre, les PDF de la densité équivalente ρ possèdent de très grande variance de sorte qu'elles s'étendent sur deux tiers du domaine de définition $[0,1]$.

La variabilité importante des densités de probabilité de la densité ρ montre la capacité de la méthode à obtenir un nombre de cas relativement important correspondant au vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} . Sans information sur la capacité d'atténuation photonique interne du fût, la méthode parvient néanmoins à proposer des distributions de masse satisfaisante, malgré des variances relativement importantes. Dans le but de diminuer cette variance,

et d'augmenter la précision de la méthode, la PDF *a priori* de la densité équivalente ρ est modifiée. Précédemment prise uniforme sur l'ensemble de son domaine de définition, à savoir $[0,1]$, cette dernière est maintenue uniforme mais sur le domaine $[\rho_{app} - 0.1, \rho_{app} + 0.1]$, ou, pour rappel, les masses volumiques apparentes ρ_{app} des deux séries sont respectivement 0.16 et 0.45 g.cm^{-3} .

La méthode est donc réitérée pour l'ensemble des mesures avec cette nouvelle hypothèse sur la PDF *a priori* de ρ . Les résultats correspondants sont placés en figures IV .10 et IV .11, ainsi qu'au sein des tableaux IV .12, IV .11, IV .13 et IV .14.

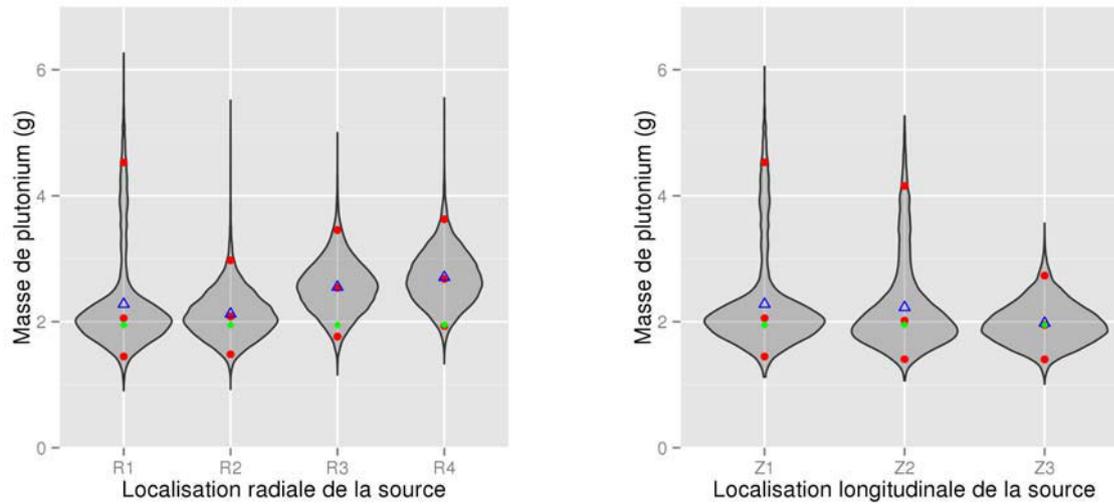


(a) PDF estimées de la masse m pour les cas radiaux. (b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas radiaux.

FIGURE IV .10: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.16 g.cm^{-3} avec utilisation d'informations *a priori* limitées sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

Cas test	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
R ₁	0.37	0.23 (-34.3%)	0.35 (-6.1%)	0.33 (-12.1%)	0.61 (+74.4%)
R ₂	0.37	0.22 (-33.8%)	0.34 (-9.7%)	0.32 (-14.5%)	0.56 (+68%)
R ₃	0.37	0.24 (-33.3%)	0.36 (-4.1%)	0.34 (-8.9%)	0.60 (+65.8%)
R ₄	0.37	0.25 (-31.4%)	0.36 (-2.1%)	0.35 (-6.5%)	0.59 (+61%)

TABLEAU IV .11: Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R₁ à R₄ associés à la série N^o1 (0.16 g.cm^{-3}) avec *a priori* limité sur la variable de densité équivalente ρ .



(a) PDF estimées de la masse m pour les cas radiaux. (b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour les cas radiaux.

FIGURE IV .11: PDF rendues par l'algorithme d'inversion pour les six mesures associés à la densité apparente 0.45 g.cm^{-3} avec utilisation d'informations *a priori* limitées sur ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues en vert.

Cas test	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
Z_1	0.37	0.23 (-34.3%)	0.35 (-6.1%)	0.33 (-12.1%)	0.61 (+74.4%)
Z_2	0.37	0.25 (-28.5%)	0.35 (-5.2%)	0.33 (-11.1%)	0.59 (+58.7%)
Z_3	0.37	0.24 (-29.3%)	0.34 (-8.1%)	0.32 (-13.7%)	0.57 (+67.7%)

TABLEAU IV .12: Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z_1 à Z_3 associés à la série N°1 (0.16 g.cm^{-3}) avec *a priori* limité sur la variable de densité équivalente ρ .

Mesures	M (g)	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)
R_1	1.95	1.45 (-36.4%)	2.28 (+16.9%)	2.06 (+5.6%)	4.53 (+98.7%)
R_2	1.95	1.48 (-30.2%)	2.12 (+8.7%)	2.08 (+6.7%)	2.97 (+40.1%)
R_3	1.95	1.77 (-30.6%)	2.55 (+30.3%)	2.54 (+30.3%)	3.46 (+35.7%)
R_4	1.95	1.93 (-28.5%)	2.70 (+38.5%)	2.68 (+37.4%)	3.63 (+34.4%)

TABLEAU IV .13: Résultats de quantification relatifs aux cas radiaux R_1 à R_4 associés à la série N°2 (0.45 g.cm^{-3}) avec utilisation d'informations *a priori* limitées sur la variable de densité équivalente ρ .

Mesures	M (g)	M _{2.5%} (g)	\bar{M} (g)	M _{50%} (g)	M _{97.5%} (g)
Z ₁	1.95	1.45 (-36.4%)	2.28 (+16.9%)	2.06 (+3.6%)	4.53 (+98.7%)
Z ₂	1.95	1.41 (-36.8%)	2.23 (+14.4%)	2.02 (+5.6%)	4.15 (+86.1%)
Z ₃	1.95	1.40 (-29.3%)	1.98 (+1.5%)	1.95 (<0.1%)	2.73 (+37.9%)

TABLEAU IV .14: Résultats de quantification relatifs aux cas longitudinaux Z₁ à Z₃ associés à la série N°2 (0.45 g.cm⁻³) avec *a priori* limité sur la variable de densité équivalente ρ .

Les PDF de masse issues de la mise en place d'un *a priori* limité sur la densité, et relatives à l'influence longitudinale, sont satisfaisantes du point de vue de leur stabilité et de leurs formes. Les valeurs attendues de masse se situent toutes à moins de 5.6% des médianes des distributions associées estimées et à moins de 16.9% des moyennes empiriques estimées. Cette différence s'explique par la présence de longues queues de distribution. Les valeurs de quantiles à 2.5% et 97.5% (CL95) de la mesure en fond de fût (Z₃) sont inférieures à 40% des moyennes estimées. Les points Z₁ et Z₂ rendent des quantiles à 97.5% élevées (>86%) de par la présence de longues queues de distribution. La variance globale est inchangée aux différentes positions de la source selon l'axe. La méthode de quantification est par conséquent insensible à une évolution longitudinale de la position de la source selon l'axe du fût. Concernant l'influence radiale, l'utilisation de l'information *a priori* limitée sur ρ permet de diminuer la variance des distributions de masse estimées de près d'un tiers. La masse attendue se situe dans l'intervalle de confiance à 95% estimée de chacune des positions radiales. Dans le cas extrême d'une source en bord de fût (R₄), la moyenne empirique et la médiane estimées se situent à respectivement +38.5% et +37.4% de la masse attendue (voir tableau IV .13). Outre la présence d'une queue de distribution pour la mesure R₁, la forme des distributions de masse estimées ne dépend pas de la position radiale de la source.

Conclusion

L'étude a permis d'observer l'influence de la localisation d'une source de ²³⁹Pu sur les résultats de quantification rendue par la méthode. Ces derniers ont montré une insensibilité de la méthode face à un mouvement de la source selon l'axe du fût, et ce avec et sans utilisation d'information *a priori* limitée sur la densité équivalente ρ . Une augmentation de la précision de prédiction de masse a également été observée lors de l'utilisation d'informations *a priori* sur la densité équivalente ρ . Les résultats relatifs à l'influence radiale de la source sont cohérents avec ceux attendus. L'utilisation d'*a priori* sur ρ a permis d'obtenir un écart relatif de masse inférieur à 40% et un intervalle de confiance à 95% acceptable

dans le cas d'une source en bord de fût et pour une densité apparente relativement élevée de 0.45 g.cm^{-3} .

Les deux études précédentes ont permis de valider la méthode pour des cas de mesure connus et déterminés, autant d'un point de vue des caractéristiques d'atténuation photonique, que de la masse de radionucléide à recouvrer. La dernière étude de ce chapitre propose désormais d'éprouver la méthode mis en place à des cas de mesure réels effectués par le laboratoire de mesure nucléaire et expertise, et ainsi d'en comparer les résultats obtenus et les moyens déployés pour y parvenir.

IV - 3 Application à des cas tests réels et inter-comparaison avec la méthode « classique »

Une partie des objets radioactifs gérés par le laboratoire de mesure fait l'objet d'études d'expertise relatives à la quantification des radionucléides d'intérêt qui les composent. Ces dernières, qu'elles s'appuient sur le retour d'expérience ou de l'avis d'expert, font notamment appel à des informations relatives aux modes de production des objets en question. Parmi elles se trouvent notamment des caractéristiques d'atténuation, des compositions matricielles, des estimations de quantités de matières nucléaires ou encore des taux de remplissage. L'utilisation de ces informations, dites *a priori*, permet aux techniciens et ingénieurs de mesure de présenter, pour un radionucléide d'intérêt, sa masse estimée, ainsi que son incertitude associée.

L'objectif de cette étude est d'appliquer la méthode de quantification à un panel d'objets radioactifs issus de procédés de fabrication du centre de Valduc et d'en comparer les résultats avec ceux rendus par le laboratoire de mesure nucléaire lors de leurs traitements par ce dernier. Cette démarche doit permettre de confirmer la capacité de la méthode stochastique à approcher le comportement atténuateur d'un objet sans utilisation d'information *a priori* le concernant, et à défaut, d'identifier les *a priori* à introduire *a minima* à la méthode.

Cette ultime étude se scinde en deux sections. La première pose l'ensemble des hypothèses sous-jacentes aux différents objets radioactifs considérés, ainsi que celles relatives à l'algorithme d'inversion et aux densités de probabilités *a priori* utilisées. La seconde quant à elle est dédiée aux résultats de quantification rendus par la méthode, à leur interprétation et à la conclusion de l'étude.

Hypothèses d'étude

Afin de mener à bien cette étude, un ensemble de cinq mesures d'objets radioactifs est considéré. Ces objets sont issus de différents procédés de fabrication du centre d'étude de Valduc et ont été traités par le laboratoire mesure nucléaire. Chacun d'entre eux dispose par conséquent d'une masse de ^{239}Pu estimée. Cette dernière a été obtenue par extraction des surfaces nettes issues du spectre d'émission *via* la logiciel Génie2000[®][15], jumelée à la modélisation de la scène de mesure par utilisation du logiciel ISOCS[®]. Cette modélisation tient notamment compte des informations relatives au comportement d'atténuation photonique de chaque objet, ainsi que de leurs différentes géométries extérieures, comme de la distance de mesure par exemple. Ces informations issues de l'avis d'expert, du retour d'expériences ou encore de la connaissance du ou des modes de production, sont rassemblées au sein du tableau IV .15.

N ^o	1	2	3	4	5
Type d'objet	Fût	Fût	Fût	Fût	Fût
Volume (L)	100	200	200	100	100
Taux de remplissage (%)	5	85	33	80	95
Masse de l'objet (kg)	10	53.4	25.5	24	22.7
Composition	PVC	PVC, graphite	Poussières	Papier acier, PVC	Plastiques, acier, gravat
Masse de ^{239}Pu (g)	8.88 ($\pm 20\%$)	0.34 ($\pm 49\%$)	71.4 ($\pm 34.4\%$)	3.54 ($\pm 22\%$)	3.49 ($\pm 37\%$)
Présence d'uranium	Non	Oui (forte)	Non	Oui (faible)	Non

TABLEAU IV .15: Données relatives aux cinq mesures réelles utilisées par la laboratoire pour la quantification des matériaux nucléaires. Les masse de ^{239}Pu , rendues par le laboratoire, sont indiquées avec leurs intervalles de confiance à 95%.

La méthode de quantification par approche stochastique est utilisée pour chacun des cinq objets proposés. Le vecteur des observations \mathbf{Y}^{obs} utilisé est issu de l'extraction des surfaces nettes des spectres d'acquisition aux énergies retenues du ^{239}Pu , à savoir 94.6, 129.3, 203.55, 345, 375.05, et 413.7 keV. Seule la mesure N^o2 a été traitée par la méthode sans utilisation du pic d'émission à 94.6 keV du fait d'une présence importante de ^{238}U . En effet, de ce dernier descend, par décroissances successives, le ^{234}Pa qui possède un pic d'émission photonique à 94.6 keV également. Ce dernier n'étant plus seulement émis par le ^{239}Pu , il ne peut pas être considéré pour cette mesure. Le détecteur GeHP utilisé est

commun aux cinq mesures et caractérisé par la méthode de Guillot [13]. Les densités de probabilités *a priori* utilisées pour la masse m et les composantes du vecteur d'entrée \mathbf{X} sont analogues à celles du tableau IV .2. Les variables géométriques possèdent des PDF *a priori* normales informatives du type $\mathcal{N}(a, b)$. La masse m , la densité équivalente ρ et les proportions massiques possèdent quant à eux des PDF *a priori* uniforme peu informative du type $\mathcal{U}(a, b)$. De la sorte, aucune information relative à la capacité d'atténuation interne des objets n'est fournie à la méthode.

Résultats

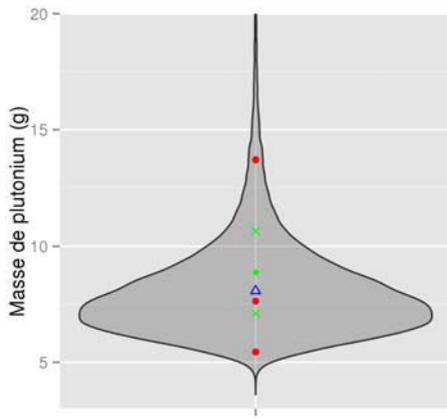
Les résultats rendus par la méthode de quantification pour les cinq mesures de cas réels sont présentés sous la forme de diagrammes violons. De manière analogue aux résultats des études précédentes, les moyennes empiriques, médianes et quantiles à 2.5% et 97.5% sont précisés sur chacun des diagrammes. De plus, aux valeurs attendues de masses de ^{239}Pu (M_{lab}) sont associées les bornes supérieures et inférieures des incertitudes définissant les intervalles de confiance à 95% rendus par le laboratoire. Les résultats sont rassemblés au sein des figures IV .12 et IV .13, ainsi qu'au sein du tableau IV .16.

N°	$M_{2.5\%}$ (g)	\bar{M} (g)	$M_{50\%}$ (g)	$M_{97.5\%}$ (g)	M_{lab} (g) (CL 95)
1	5.45 (-32.6%)	8.08 (-9.03%)	7.64 (-14.0%)	13.7 (+69.6%)	$8.88 \pm 20\%$
2	0.16 (-91.0%)	1.77 (+423%)	1.22 (+259%)	5.21 (+193%)	$0.34 \pm 49\%$
3	53.9 (-56.9%)	125 (+75.3%)	122 (+70.4%)	217 (+73.0%)	$71.4 \pm 34\%$
4	1.88 (-32.8%)	2.80 (-21.0%)	2.64 (-25.5%)	4.76 (+70.3%)	$3.54 \pm 22\%$
5	1.85 (-42.6%)	3.21 (-7.89%)	2.90 (-16.9%)	6.32 (+96.7%)	$3.49 \pm 37\%$

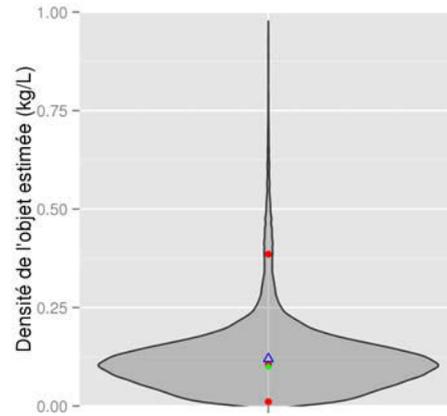
TABLEAU IV .16: Résultats de quantification relatifs aux cinq cas de mesure réels traités par le laboratoire.

Les résultats rendus par la méthode et associés aux mesures N°1, 3, 4 et 5 sont de type mono-modale. La mesure N°2 renvoie, par la méthode, une distribution de probabilité multimodale regroupant quatre maximums locaux de probabilités. Concernant la capacité de prédiction, les densités de probabilité de masse estimées encadrent les intervalles de confiance à 95% rendus par le laboratoire pour l'ensemble des cas de mesure, sans toutefois faire coïncider les moyennes rendues par le laboratoire avec celles estimées.

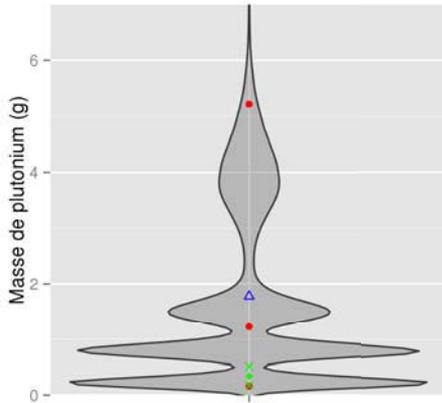
Ces résultats sont conformes à ceux présentés dans les études précédentes de la méthode proposée. Afin d'en augmenter la précision de quantification, et de manière analogue aux études précédentes, la densité de probabilité *a priori* de la densité équivalente ρ est modifiée. Cette dernière était prise uniforme sur l'ensemble du domaine de définition de



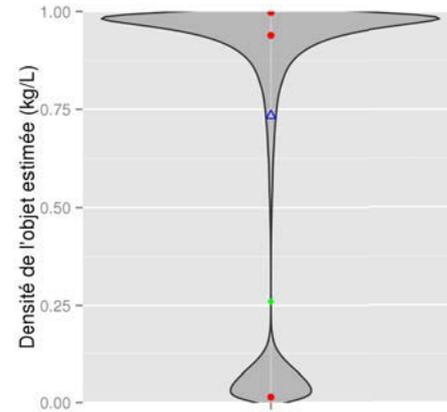
(a) PDF estimées de la masse m pour le cas N°1.



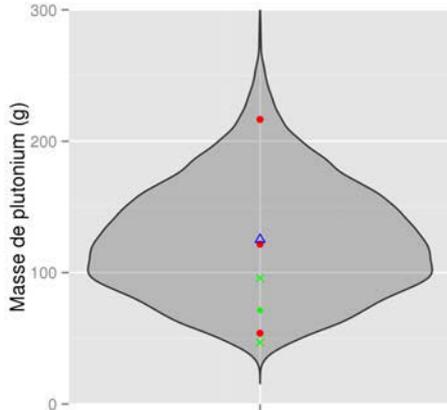
(b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour le cas N°1.



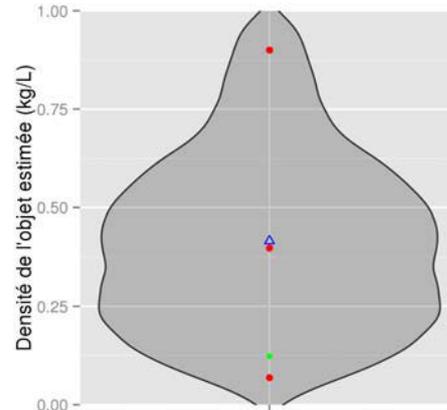
(c) PDF estimées de la masse m pour le cas N°2.



(d) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour le cas N°2.



(e) PDF estimées de la masse m pour le cas N°3.



(f) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour le cas N°3.

FIGURE IV .12: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des mesures réelles N°1 à 3 présentées au sein du tableau IV .15. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiances à 95% (croix) en vert.

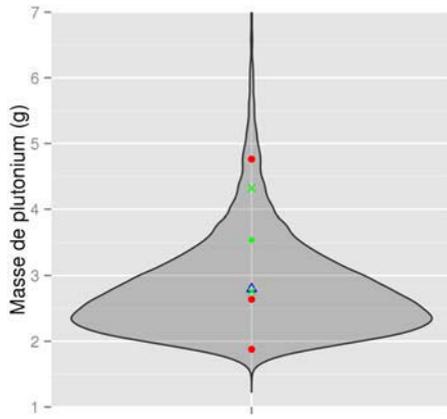
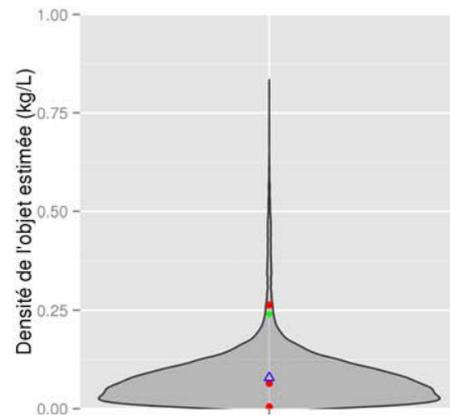
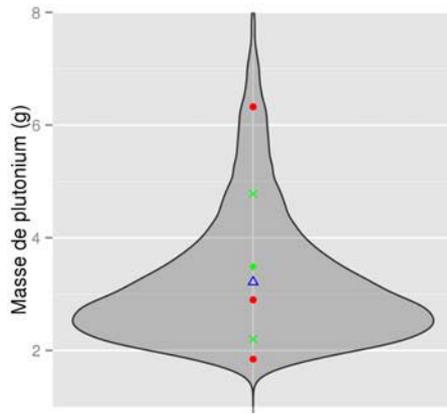
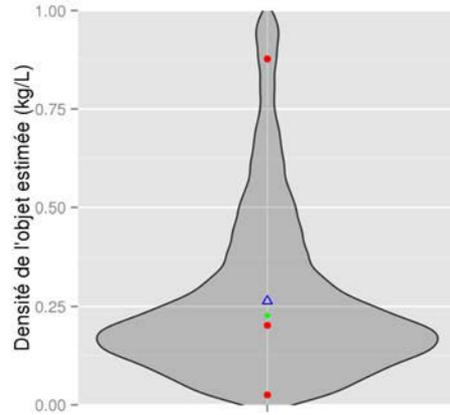

 (a) PDF estimées de la masse m pour le cas N°4.

 (b) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour le cas N°4.

 (c) PDF estimées de la masse m pour le cas N°5.

 (d) PDF estimées de la densité équivalente ρ pour le cas N°5.

FIGURE IV .13: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des mesures réelles N°4 à 5 présentées au sein du tableau IV .15. Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiance à 95% (croix) en vert.

ρ , à savoir $[0, 1]$. Désormais, cette PDF *a priori* est maintenue uniforme mais recentrée autour de la densité apparente de chaque cas, et se présente sous la forme $\mathcal{U}(\rho_{app} - 0.1, \rho_{app} + 0.1)$. Les résultats de quantification traduisant l'utilisation de cette nouvelle distribution *a priori* sur les cinq mesures sont rassemblés au sein du tableau IV .17 et de la figure IV .14.

Les résultats de quantification issus de changement de la PDF *a priori* de la densité apparente ρ sont conformes et cohérents avec ceux rendus par le laboratoire. La variance relative des distributions estimées de masse est globalement plus importante que celles du laboratoire. Les moyennes empiriques et médianes estimées sont incluses dans les intervalles à 95% des résultats de masse attendus et ce pour les cinq cas de mesure. Dans le cas N°2, dont l'utilisation du pic d'émission à 94.6 keV était impossible (présence importante

N ^o	M _{2.5%} (g)	\bar{M} (g)	M _{50%} (g)	M _{97.5%} (g)	M _{lab} (g) (CL 95)
1	5.41 (-28.9%)	7.61 (-14.3%)	7.44 (-16.2%)	10.8 (+41.7%)	8.88 ±20%
2	0.26 (-44.5%)	0.46 (+35.3%)	0.44 (+29.4%)	0.86 (+86.3%)	0.34 ±49%
3	45.3 (-46.2%)	78.2 (+9.5%)	84.2 (+17.9%)	144.4 (+71.5%)	71.4 ±34%
4	2.57 (-23%)	3.21 (-9.3%)	3.35 (-5.4%)	4.89 (+46%)	3.54 ±22%
5	2.08 (-27.9%)	2.82 (-19.2%)	2.89 (-17.2%)	4.12 (+42.6%)	3.49 ±37%

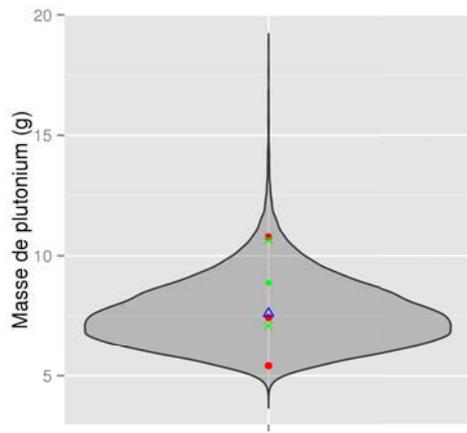
TABLEAU IV .17: Résultats de quantification relatifs aux cinq cas de mesure réels avec utilisation d'information *a priori* sur la variable de densité apparente ρ .

d'²³⁸U), la modification de la PDF *a priori* de ρ a permis de réduire le nombre de modale de quatre à une, et d'en obtenir une distribution de masse estimée cohérente et conforme aux résultats obtenus par le laboratoire.

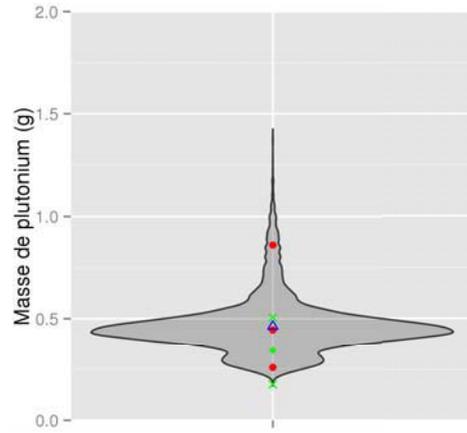
Les autres cas de mesure proposent désormais des intervalles de confiance à 95% plus étroits qu'en l'absence d'information *a priori* sur la densité ρ , traduisant ainsi une augmentation de la précision de l'estimation par l'ajout d'information relative au comportement atténuateur des objets. Les intervalles de confiance à 95% rendus par le laboratoire ont été obtenus par modélisation de la scène de mesure (ISOCS[®], MCNP). Cette dernière utilise des informations *a priori* issues du retour d'expériences, de l'avis d'expert et de la connaissance du mode de production de l'objet mesuré (fiche suiveuse). Une partie de ces données est présentée au sein du tableau IV .15. Ces intervalles sont inclus dans les intervalles de confiance à 95% estimés par la méthode, et en possèdent même, pour les cas N^o4 et 5, un ordre de grandeur similaire, et ce, bien qu'aucune information relative au comportement d'atténuation (variables Vin, Fer, Pu) des cas tests de mesure ne soit fournie à la méthode.

Conclusion

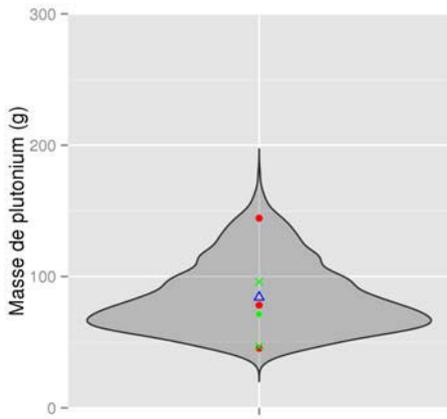
La méthode de quantification a été testée dans le cadre de cas de mesure réels. Ces derniers représentent des cas traités par le laboratoire possédant une masse de ²³⁹Pu et son intervalle de confiance à 95% associé estimés par ce dernier. Cette étude a permis de montrer la cohérence des résultats de quantification obtenus par la méthode stochastique et celle utilisée par le laboratoire. L'étude a également permis de confirmer davantage le rôle de la densité de probabilité *a priori* de la densité équivalente ρ dans la capacité de la méthode à estimer précisément et justement une masse de radionucléide d'intérêt, et cela, sans utilisation d'autre information relative à la capacité d'atténuation matricielle des objets considérés.



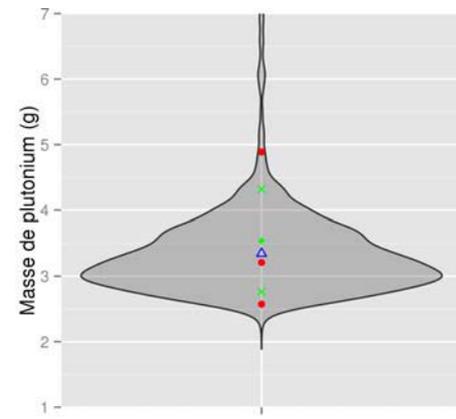
(a) PDF estimées de la masse m pour le cas N°1 avec *a priori* sur la densité équivalente ρ .



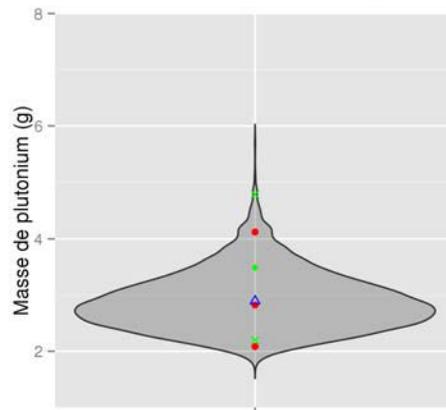
(b) PDF estimées de la masse m pour le cas N°2 avec *a priori* sur la densité équivalente ρ .



(c) PDF estimées de la masse m pour le cas N°3 avec *a priori* sur la densité équivalente ρ .



(d) PDF estimées de la masse m pour le cas N°4 avec *a priori* sur la densité équivalente ρ .



(e) PDF estimées de la masse m pour le cas N°5 avec *a priori* sur la densité équivalente ρ .

FIGURE IV .14: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cinq mesures réelles présentées au sein du tableau IV .15 avec utilisation d'informations *a priori* sur la densité équivalente ρ . Les points rouges représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en triangles bleus, et les valeurs attendues associées aux intervalles de confiances à 95% (croix) en vert.

Conclusions

Ce travail de thèse a permis de construire une méthode de quantification de radionucléides par approche stochastique. Cette dernière a été utilisée, et validée pour la mesure du ^{239}Pu , dans le cadre de la caractérisation d'objets radioactifs, tels que des fûts de déchets nucléaires, issus des procédés de production du centre de recherche du CEA Valduc. L'ensemble du projet doctoral s'est décomposé en trois parties.

La première partie du projet, relative à la métamodélisation du rendement de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma, a permis de construire un émulateur du rendement de détection par détermination d'une base équivalente d'estimation de ce dernier. Un modèle physique équivalent à une scène de mesure, nommé modèle cylindre-objet, a dans un premier temps été construit suite à la justification (chap. II) de l'existence d'une base d'estimation du rendement de détection. Cette dernière est formée de telle manière à inclure l'ensemble des phénomènes physiques liés à la forme de l'atténuation photonique des objets radioactifs traités par le laboratoire. De là, un plan d'expérience, construit autour de la base d'estimation \mathbf{X} , et du rendement de la scène de mesure, a été établi par utilisation du code de simulation de transport de particules MCNP. Ce plan prend notamment en compte un mélange de matériaux atténuateurs équivalents, et propose des caractéristiques de remplissages de l'espace des paramètres d'entrée satisfaisantes. Suite à cela, une métamodélisation du rendement de détection a été proposée. Cette dernière a été générée en utilisant un algorithme de régression de type Krigeage basé sur la théorie des processus gaussiens, choisi pour ses capacités prédictives, pour sa vitesse d'exécution, et son aptitude à propager les incertitudes associées aux différentes étapes de construction de la méthode.

La deuxième partie de la thèse s'est portée sur le développement de la méthode de quantification par approche stochastique en tant que telle. Plusieurs étapes de construction ont été détaillées. La première d'entre elles a permis de déterminer la densité de probabilité (PDF) conditionnelle *a posteriori* des paramètres du problème de quantification, à savoir la masse m de radionucléide à déterminer, ainsi que celles des composantes du

vecteur des entrées \mathbf{X} . Pour ce faire, les équations de la spectrométrie gamma ont été transposées dans un cadre de travail bayésien, et la notion de densité de probabilité *a priori* a été présentée pour les variables du problème. Enfin, les hypothèses de travail présentées, ainsi que l'émulateur du rendement de détection de type Krigeage construit en première partie, ont été jumelés afin de permettre la construction des PDF conditionnelles *a posteriori* souhaitées. La section suivante a permis quant à elle l'estimation des PDF *a posteriori* obtenues par utilisation du formalisme MCMC pour *Markov Chains Monte Carlo*. Après la justification et la mise en place de ce formalisme, l'algorithme d'inversion de Metropolis-Hastings, ainsi que les tests et diagnostics d'ergodicité et de convergence, ont été présentés dans le cadre de l'estimation des variables (m, \mathbf{X}) . Enfin, une étude partielle de la robustesse de l'algorithme réalisée dans le cadre de cas jouets a permis d'analyser le comportement algorithmique de la méthode d'inversion et de repérer le caractère potentiellement non-bijectif des résultats de quantification.

La dernière partie de ce travail de thèse a été consacrée à la validation expérimentale de la méthode de quantification de radionucléide développée. L'ensemble du processus de validation a été mené pour le cas particulier du ^{239}Pu . Trois études ont abouti à la validation de la méthode de quantification proposée. La première d'entre-elles a permis de valider la méthode pour un panel de quatre scènes de mesure, relatives à quatre objets radioactifs caractérisés représentatifs des objets traités par le laboratoire. Cette dernière a également permis de mettre en évidence l'utilisation d'information *a priori* limitée sur la densité équivalente ρ comme déterminante pour l'estimation de la masse m et son intervalle à 95% (CL 95) associé. La deuxième étude de cette section s'est intéressée à l'influence de la localité d'une source ponctuelle de ^{239}Pu sur la robustesse de la méthode. Cette étude a permis de mettre en évidence l'insensibilité de la méthode pour une source située sur l'axe des objets considérés, ainsi que l'augmentation, en moyenne, de la masse estimée lors d'un déplacement radial de la source. Enfin, une troisième et dernière étude a été menée afin de mettre en application la méthode sur un ensemble de cas réels traités par le laboratoire et d'en comparer les résultats avec ceux rendus par ce dernier. Ce travail a permis de confirmer les capacités prédictives de la méthodes à estimer une masse de ^{239}Pu , ainsi que la cohérence des résultats de quantification de la méthode avec ceux du laboratoire en termes d'intervalles de confiance à 95%.

Perspectives

La méthode de quantification par approche stochastique présentée a été validée pour la mesure d'une quantité de ^{239}Pu présent dans un panel d'objets d'intérêt traités par le laboratoire mesure nucléaire de Valduc. Plusieurs pistes d'amélioration et d'optimisation des différentes parties et sous-parties de la méthode sont proposées.

La première d'entre-elles concerne l'optimisation du métamodèle de l'efficacité de détection d'une scène de mesure par spectrométrie gamma. Ce dernier, construit à l'aide d'une méthode de régression de type Krigeage basée sur la théorie des processus gaussiens, peut voir son champ d'application significativement augmenté par l'ajout du comportement atténuateur des matériaux de numéro atomique supérieur à vingt-six ($Z > 26$). En effet, le modèle construit dans ce projet doctoral se limite à un mélange des matériaux vinyle, fer et plutonium, et ne considère par conséquent pas de matériaux lourds comme le plomb par exemple. Un modèle idéal permettrait de regrouper l'ensemble des éléments du tableau de Mendeleïev, et ainsi, l'ensemble des comportements atténuateurs possibles. L'axe de travail principal consisterait à utiliser les résultats de la chaire en mathématiques appliquées OQUAIDO [25], dont l'un des objectifs est d'étudier et de construire des algorithmes de régression permettant l'utilisation de variables d'entrée catégorielles, en regroupant, dans le cas présent, les éléments chimiques par groupes de comportements atténuateurs proches. L'ensemble des éléments chimiques du tableau périodique pourraient ainsi être regroupés en six à huit groupes, ou modalités, au lieu de trois actuellement pour une partie d'entre eux ($Z < 26$).

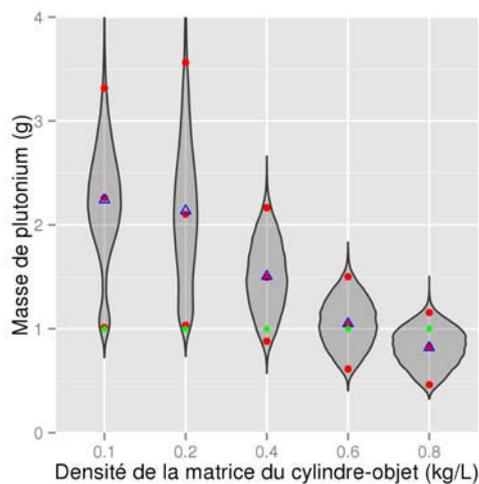
Un deuxième axe d'amélioration propose de complexifier davantage le modèle physique "cylindre-objet" afin de permettre la prise en compte de cas d'objets présentant de fortes hétérogénéités matricielles et/ou relatives au terme source. De tels objets possèdent des caractéristiques d'atténuation photonique très spécifiques qui ne sont théoriquement pas prises en compte dans le modèle physique présentement construit. Plusieurs catégories d'objets de ce type, traités régulièrement par le laboratoire, peuvent être considérées comme représentant les modalités d'une même variable d'entrée dont le rôle serait juste-

ment de choisir le modèle physique à utiliser. En d'autres termes, le modèle cylindre-objet représenterait une modalité parmi d'autres, et le choix d'une de ces modalités, ou d'une combinaison de ces dernières, pour un objet mesuré donné, serait établi par l'algorithme d'inversion MCMC. Cette variable catégorielle de modèles représenterait en soi une base optimale de l'ensemble des objets traités par le laboratoire de mesure dans le cadre de ses missions.

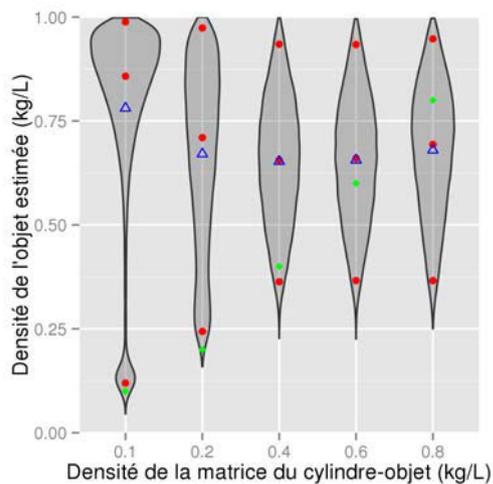
Ensuite, comme rappelé précédemment, la méthode est envisagée pour la mesure d'une quantité de ^{239}Pu issue de procédés du centre de Valduc. Ce radionucléide a comme caractéristique d'émettre un nombre important de photons gamma, le tout sur une large bande spectrale exploitable de 90 à 500 keV. Une perspective envisagée serait de tester la méthode pour la quantification d'autres radionucléides, comme le ^{241}Am ou le ^{235}U , voire de mélanges plus ou moins complexes de ces derniers, ayant un nombre de pics d'émission photonique plus faible, et des gammes spectrales d'émission moins étendues.

Enfin, le dernier aspect des perspectives envisagées pour cette méthode concerne son automatisation systématique et celle de son application finale, avec la possibilité de créer un processus de quantification en temps réel. Comme explicité plus en détails dans le chapitre III, l'estimation des densités de probabilités d'intérêt se fait au travers de générations parallélisées de chaînes de Markov. La méthode proposée dans ce projet permet d'estimer une PDF de masse de ^{239}Pu en aval de la mesure spectrale, *i.e.* une fois le spectre gamma d'émissions et les surfaces nettes extraites obtenus. La perspective d'évolution envisagée ici propose d'initialiser la méthode de quantification par approche stochastique en même temps que la mesure spectrale. L'ensemble des données de mesure, comme les surfaces extraites, ou la durée d'acquisition, sont alors mises à jour en temps réels au sein de la méthode. Cette démarche suppose de pouvoir extraire les surfaces nettes du spectre d'acquisition en temps réels, ou au minimum avec une certaine fréquence de mise à jour (environ cinq secondes), et donne la possibilité de pouvoir également modifier les densités de probabilité *a priori* des variables d'entrée du problème. L'ensemble de cette démarche, jumelée avec une visualisation graphique en temps réel, doit permettre d'obtenir des résultats de quantification exploitable, ou *a minima* l'ordre de grandeur de la ou des masses de radionucléides présents, et ce en quelques dizaines de minutes de mesure.

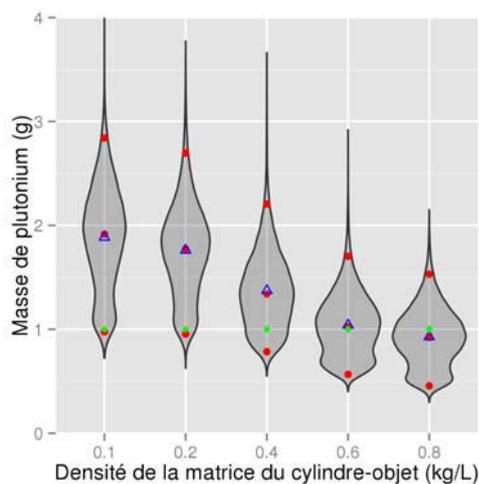
Annexes



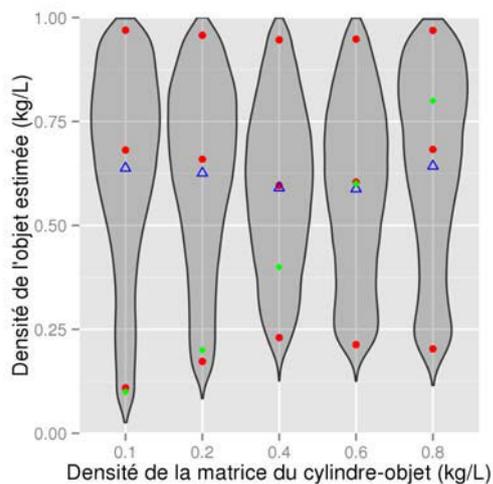
(a) PDF estimées de la masse m du cas N°3.



(b) PDF estimées de la densité ρ du cas N°3.



(c) PDF estimées de la masse m du cas N°4.



(d) PDF estimées de la densité ρ du cas N°4.

FIGURE IV .15: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°3 à N°5. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.

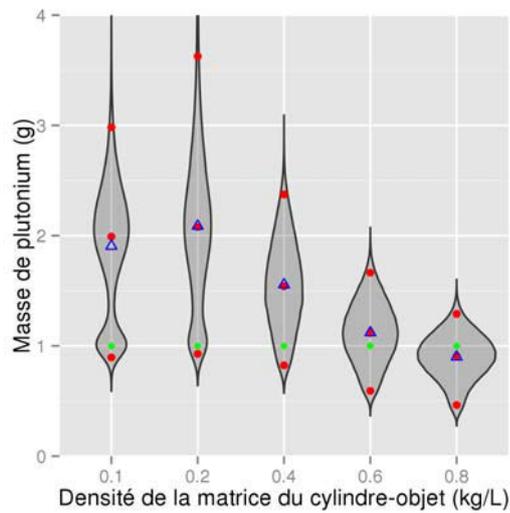
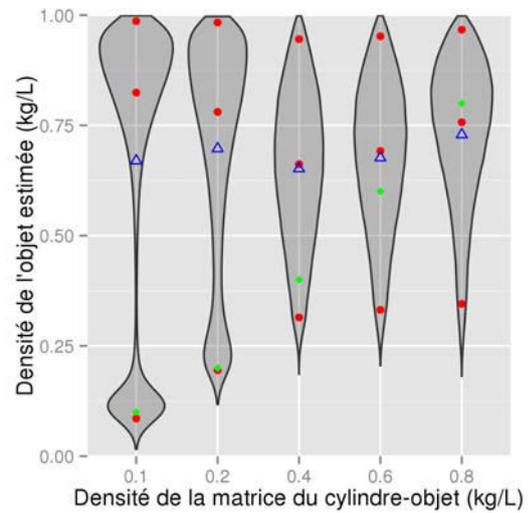
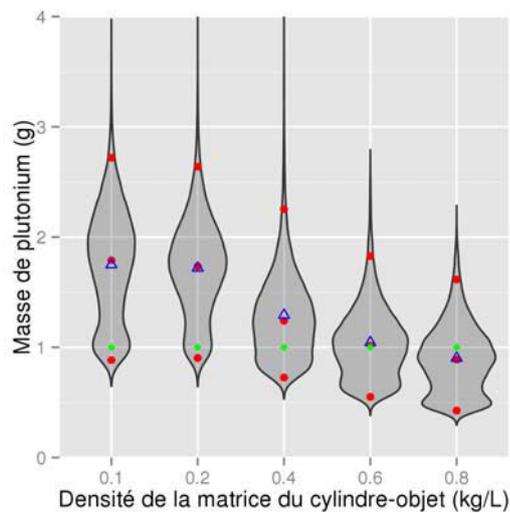
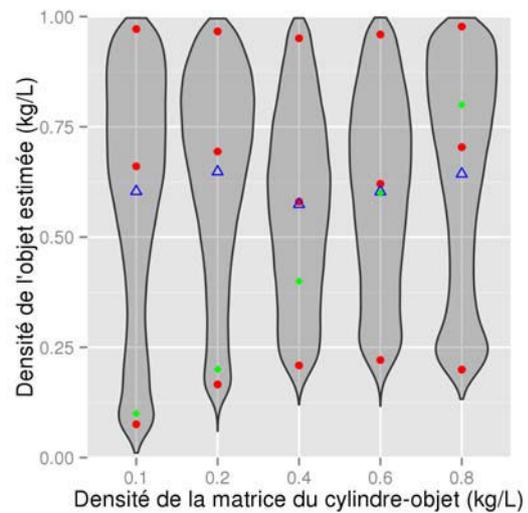
(a) PDF estimées de la masse m du cas N°5.(b) PDF estimées de la densité ρ du cas N°5.(c) PDF estimées de la masse m du cas N°6.(d) PDF estimées de la densité ρ du cas N°6.

FIGURE IV .16: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°5 à N°6. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.

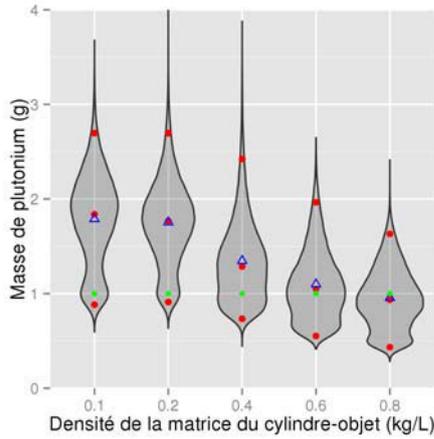
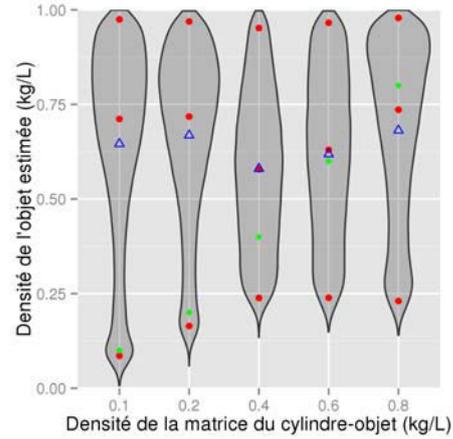
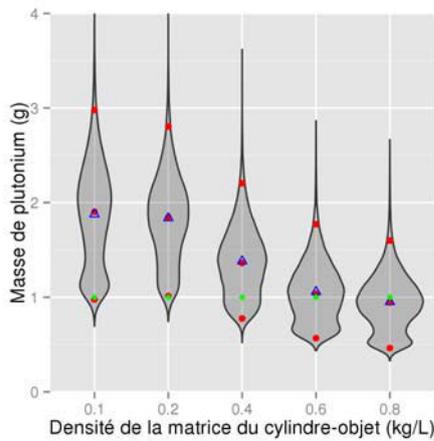
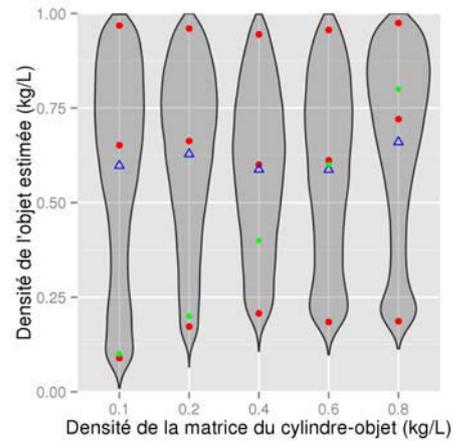
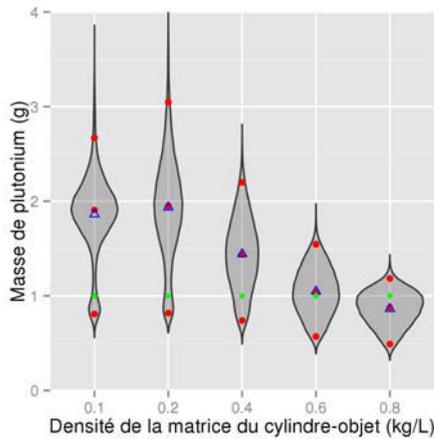
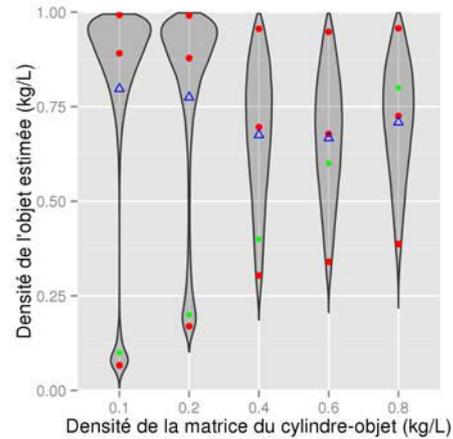
(a) PDF estimées de la masse m du cas N°7.(b) PDF estimées de la densité ρ du cas N°7.(c) PDF estimées de la masse m du cas N°8.(d) PDF estimées de la densité ρ du cas N°8.(e) PDF estimées de la masse m du cas N°9.(f) PDF estimées de la densité ρ du cas N°9.

FIGURE IV .17: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°7 à N°9. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.

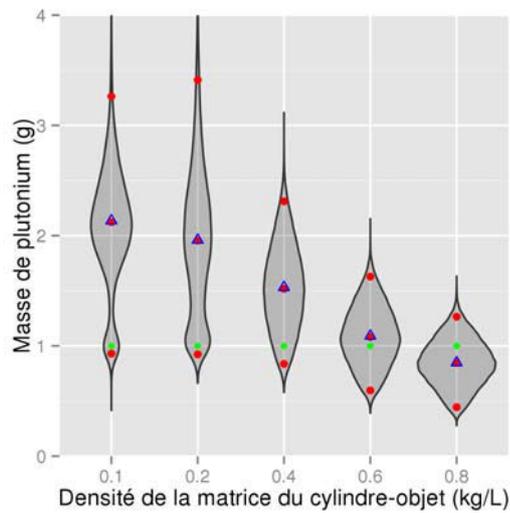
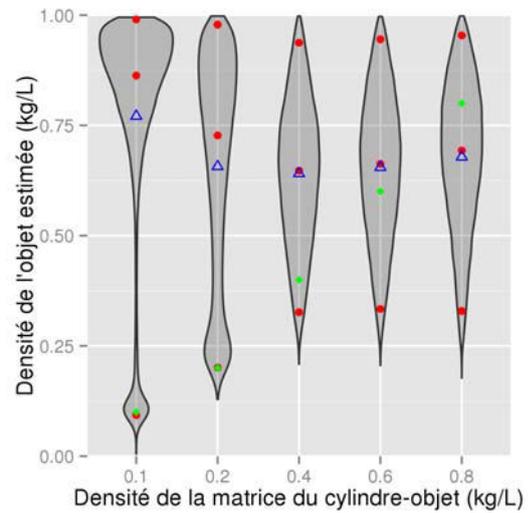
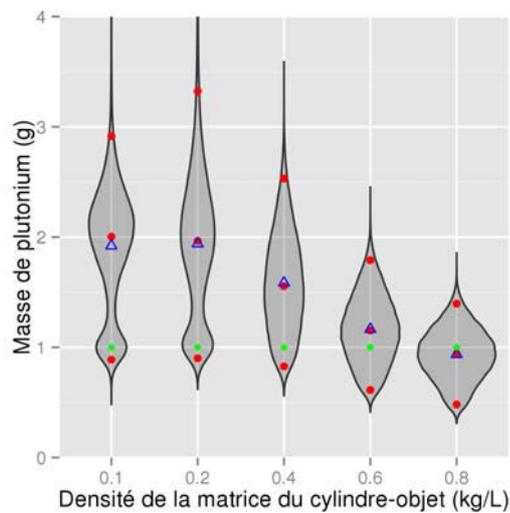
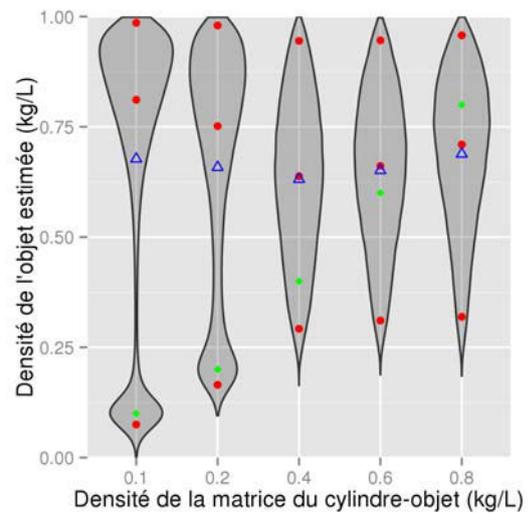
(a) PDF estimées de la masse m du cas N°10.(b) PDF estimées de la densité ρ du cas N°10.(c) PDF estimées de la masse m du cas N°11.(d) PDF estimées de la densité ρ du cas N°11.

FIGURE IV .18: PDF rendues par l'algorithme d'inversion des cas jouets N°10 à N°11. Les points rouge représentent les quantiles à 2.5%, 50% et 97.5%, respectivement de bas en haut, les moyennes apparaissent en bleu, et les valeurs attendues en vert.

Références

- [1] ANDRA. *Les déchets radioactifs*. 2015. URL : <https://www.andra.fr/pages/fr/menu1/les-dechets-radioactifs/comment-sont-classes-les-dechets-radioactifs-r-9.html> (visité le 18/06/2017).
- [2] A. BERLINET et C. THOMAS-AGNAN. “Reproducing Kernel Hilbert Spaces in Probability and Statistics”. In : *Kluwer Academic Publishers* (2004).
- [3] A. W. BOWMAN. “GU, C. Smoothing Spline ANOVA Models. Springer, New York, 2002”. In : *Biometrics* 59.1 (2003). ISSN : 1541-0420.
- [4] C. E. Rasmussen. C. K. I. WILLIAMS. “Gaussian processes for machine learning”. In : *MIT Press* (2006).
- [5] G. Casella C. P. ROBERT. *Méthodes de Monte-Carlo avec R*. Springer, 2011, p. 142–165.
- [6] William G. COCHRAN et Gertrude M. COX. *Experimental designs*. Wiley Classics Library. Wiley, 1992. ISBN : 9780471545675.
- [7] A. DESROSIÈRES. *Pour une sociologie historique de la quantification : L’Argument statistique I*. Paris : Presses des Mines, 2008. Chap. 13 : Les recherches de Ian Hacking sur l’histoire des usages des probabilités et des statistiques dans le raisonnement inductif.
- [8] Philippe A. DOISY. *À la racine des nombres: une histoire du calcul numérique des origines à nos jours*. Ellipses, 2010.
- [9] W.L. DUNN et J.K. SHULTIS. *Exploring Monte Carlo Methods*. Academic Press, 2012, p. 132–156.
- [10] *Geant4 User’s Guide for Application Developers*. Version 10.3. Geant4 Collaboration.
- [11] A GELMAN et DB RUBIN. “Inference from iterative simulation using multiple sequences”. In : *Statistical Science*, 7 (1992).
- [12] Gordon. GILMORE et John D. HEMINGWAY. “Practical gamma-ray spectrometry / Gordon Gilmore, John D. Hemingway.” In : (1995).

- [13] N. GUILLOT. “Quantification gamma de radionucléides par modélisation équivalente”. Thèse de doct. Université Blaise Pascal, 2015.
- [14] Kevin GURNEY. *An introduction to neural networks*. London : UCL Press, 1997.
- [15] *Génie2000, Customization tools manual*. Version 3.1. CANBERRA. 2006.
- [16] J. A. HARTIGAN et M. A. WONG. “A K-means clustering algorithm”. In : *Applied Statistics 28* (1979).
- [17] *INTERWINNER*. Version 7.0. ITECH Instruments.
- [18] J-C. Boudenot J-J. SAMUELI. *Histoire des probabilités*. Ellipses, 2009.
- [19] T. Mitchell J. SACKS W. Welch et H. WYNN. “Design and analysis of computer experiments”. In : *Statistical Science 4*:409-435 (1989).
- [20] A. LYOUSSI. *Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire*. EDP Sciences, 2010, p. 156–164.
- [21] I M. SOBOL. “Sensitivity Estimates for Nonlinear Mathematical Models”. In : 2 (jan. 1990).
- [22] Michael D. MCKAY, Richard J. BECKMAN et William J. CONOVER. “A Comparison of Three Methods for Selecting Values of Input Variables in the Analysis of Output From a Computer Code”. In : *Technometrics 42.1* (2000), p. 55–61. DOI : 10.1080/00401706.2000.10485979. URL : <https://doi.org/10.1080/00401706.2000.10485979>.
- [23] *MCNP6 Users manual*. English. Version 1.0. LANL.
- [24] A. NACHAB. “Etudes expérimentales et modélisations Monte Carlo de l’auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS”. Thèse de doct. Université Louis Pasteur, 2003.
- [25] “Optimisation et QUANTIFICATION d’Incertitude pour les Données Onéreuses”. In : (). URL : <http://chaire-mathematiques-appliquees.emse.fr/index.html>.
- [26] Heidelberger P et Welch PD. “Simulation run length control in the presence of an initial transient”. In : *Opns Res.*, 31 (1983).
- [27] Jeong-Soo PARK. “Optimal Latin-hypercube designs for computer experiments”. In : *Journal of Statistical Planning and Inference 39.1* (avr. 1994), p. 95–111.
- [28] Martyn PLUMMER et al. “CODA: Convergence Diagnosis and Output Analysis for MCMC”. In : *R News 6.1* (2006), p. 7–11. URL : <https://journal.r-project.org/archive/>.
- [29] B. Iooss et al R. FAIVRE. *Analyse de sensibilité et exploitation de modèles*. Editions Quæ, 2013, p. 68–69.

- [30] Olivier ROUSTANT, David GINSBOURGER et Yves DEVILLE. “DiceKriging, DiceOptim: Two R Packages for the Analysis of Computer Experiments by Kriging-Based Metamodeling and Optimization”. In : *Journal of Statistical Software* 51.1 (2012), p. 1–55. URL : <http://www.jstatsoft.org/v51/i01/>.
- [31] N. SAUREL et N. GUILLOT. *Procédé de quantification des dimensions intrinseques des capteurs de rayonnements, notamment des capteurs de rayonnements ionisants, et dispositif pour la mise en oeuvre du procédé*. WO Patent App. PCT/EP2016/053,319. 2016. URL : <https://encrypted.google.com/patents/WO2016131852A1?cl=da>.
- [32] Curtis B. et al STORLIE. “Surface Estimation, Variable Selection, and the Nonparametric Oracle Property”. In : *Statistica Sinica* (v21.2, 2011).
- [33] Lellery STORM et Harvey I. ISRAEL. “Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for elements Z=1 to Z=100”. In : *Atomic Data and Nuclear Data Tables* 7.6 (1970), p. 565 –681. ISSN : 0092-640X. DOI : [http://dx.doi.org/10.1016/S0092-640X\(70\)80017-1](http://dx.doi.org/10.1016/S0092-640X(70)80017-1). URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0092640X70800171>.
- [34] R. J. Tibshirami T. HASTIE et J. FREIDMAN. *The elements of statistical learning*. Springer, 2002.
- [35] B. J. Williams T. J. SANTNER et W. I. NOTZ. *The design and Analysis of Computer Experiments*. Springer Verlag, New-York, 2003.
- [36] *User manual of the Tripoli-4 Monte-Carlo method particle transport computer code*. English. Version 4.3. CEA. 2003.
- [37] T. VIGINEIX. “Exploitation de spectre gamma par méthode non paramétrique et indépendante d’a priori formulés par l’opérateur”. Thèse de doct. Université de Caen, 2011.