



HAL
open science

Développement d'algorithmes de détection et d'identification gamma : application à la spectrométrie gamma embarquée

Emilien Wilhelm

► **To cite this version:**

Emilien Wilhelm. Développement d'algorithmes de détection et d'identification gamma : application à la spectrométrie gamma embarquée. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Université de Strasbourg, 2016. Français. NNT : 2016STRAE026 . tel-01484638

HAL Id: tel-01484638

<https://theses.hal.science/tel-01484638v1>

Submitted on 7 Mar 2017

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.



ÉCOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE ET CHIMIE PHYSIQUE

THÈSE

Présentée par :

Émilien WILHELM

pour obtenir le grade de :

Docteur de l'Université de Strasbourg

Discipline : Physique

Développement d'algorithmes de détection et d'identification gamma : application à la spectrométrie gamma embarquée

Soutenue le **24 novembre 2016**

Membres du jury :

Directeur de thèse	M. Abdel-Mjid NOURREDDINE	Université de Strasbourg
Encadrant	M. Sébastien GUTIERREZ	CEA/DAM/DIF
Rapporteur Rapporteur	M. Jean-Emmanuel GROETZ M. Olivier STEZOWSKI	Université de Franche Comté IPN Lyon
Examineur Examineur	Mme Sandrine COURTIN M. Nicolas ARBOR	Université de Strasbourg Université de Strasbourg

Table des matières

Table des figures	8
Liste des tableaux	13
Introduction	14
1 La spectrométrie gamma aéroportée.....	14
2 Principe technique.....	15
3 Le système HELINUC.....	16
4 Objectif de la thèse.....	17
I. Le photon : de l'émission à la détection	20
1 Lumière sur le photon	20
2 Interactions des photons avec la matière	21
a. Effet photoélectrique	22
b. Diffusion Compton	23
c. Création de paires	25
d. Conclusion	26
3 Estimation de l'activité étendue et application au cas surfacique	27
a. Principe de l'estimation d'une activité étendue.....	28
b. Rendement de détection.....	28
c. Application au cas d'une activité surfacique d'extension infinie.....	29
4 Notion de spectres et de résolution en énergie	30
a. Spectre en énergie.....	30
b. Résolution en énergie	31
5 Détection du rayonnement gamma	32
a. Les scintillateurs minéraux	33
b. Caractéristiques du cristal NaI(Tl)	34
c. Collecte des photons et transformation en signal électrique	35
d. Electronique d'acquisition	36

e.	Aparté sur les semi-conducteurs	38
6	Analyse spectrale	38
a.	Analyse théorique	38
b.	Mesures au sol	40
c.	Mesures par voie aéroportée	41
d.	Analyse quantitative des spectres	43
e.	Seuil de décision, limite de détection et activité minimale détectable	44
7	Simulation Monte Carlo d'interaction rayonnements matière	47
	Conclusion	49
II. Système HELINUC : mesures et modélisations Monte Carlo.....		51
1	Caractéristiques du système HELINUC	51
2	Protocole de mesures	53
3	Fonction de réponse du système de détection.....	54
4	Modélisation Monte Carlo des interactions rayonnements matière	57
5	Sites radiologiques	61
a.	Site 1	61
b.	Site 2	62
6	Contamination surfacique à basse énergie.....	64
a.	Interpolation des isocourbes	64
b.	Création des profils spectraux	66
	Conclusion	73
III. Etude des méthodes d'analyse de spectres existantes.....		74
1	Méthode basée sur la détection des pics d'absorption totale.....	74
a.	Présentation	74
b.	Avantages / inconvénients de la méthode DETEC.....	78
2	Méthode des fenêtres	78
a.	Présentation	78
b.	Avantages / inconvénients de la méthode des fenêtres.....	80

3	Méthode d'extraction d'une signature gamma à basse énergie (Méthodes 2 fenêtrés et 3 fenêtrés).....	80
a.	Présentation	80
b.	Avantages / inconvénients des méthodes 2W/3W.....	81
4	Méthode d'ajustement de spectres à partir de spectres élémentaires (algorithme GISCE).....	82
a.	Présentation	82
b.	Avantages/inconvénients de la méthode GISCE	83
5	Méthode d'analyse en composantes principales du spectre total	85
a.	Présentation	85
b.	Avantages/inconvénients	89
6	Méthode d'ajustement de spectres à partir de l'analyse en composantes principales.....	89
a.	Présentation	89
b.	Avantages/inconvénients de cette méthode d'ajustement	93
	Conclusion	93
	IV. Etude de techniques de filtrage des fluctuations statistiques	95
1	Présentation des techniques de filtrage.....	95
a.	Moyenne locale et filtrage quartique	95
b.	Filtrage par transformée de Fourier	96
c.	Filtre de Canny Deriche.....	96
d.	Méthode NASVD	97
2	Méthodologie de comparaison.....	97
3	Etude des performances	98
a.	Comparaison générale	98
b.	Comparaison des méthodes NASVD et de filtrage quartique : étude de cas	99
c.	Estimation des activités	105
d.	Taux de détection des radionucléides	108
e.	Source ponctuelle de ⁶⁰ Co	109

4	Discussion des résultats	113
	Conclusion	115
V. Développement d'une nouvelle méthode de détermination des activités surfaciques du ²⁴¹Am.....		117
1	Introduction.....	117
	a. Contexte.....	117
	b. Objectif et méthodologie	117
2	Matériels et méthodes	117
	a. Suppression des fluctuations statistiques.....	118
	b. Suppression du bruit de fond radiologique.....	122
3	Résultats	126
	a. Données simulées	126
	b. Site réellement contaminé	133
	Conclusion	139
VI. Détection d'anomalies.....		140
1	Matériels et méthodes	140
	a. Création de la bibliothèque des radionucléides naturels.....	141
	b. Anomalie radiologique	142
2	Résultats	142
	a. Site 1 (site simulé)	142
	b. Site 2 (site réel).....	146
3	Discussion des résultats	150
	Conclusion	152
Conclusion et perspectives.....		153
Bibliographie.....		158
Résumé		163
Abstract		163

Table des figures

Figure 0-1. Principales missions du CEA avec le système HELINUC.	17
Figure 0-2. Découpage énergétique d'un spectre enregistré.	18
Figure I-1. Schéma de désintégration du ^{60}Co (Source : LNHB/Helmer-2014).	21
Figure I-2. Courbe d'atténuation massique des photons dans l'air (ICRU, 1994).	22
Figure I-3. Schéma de l'effet photoélectrique.	23
Figure I-4. Schéma de l'effet Compton.	24
Figure I-5. Distribution de probabilité de l'angle de diffusion θ pour des énergies comprises entre 10 keV et 10 MeV (Bourgeois, 2012).	25
Figure I-6. Schéma de l'effet de création de paires.	26
Figure I-7. Domaine de prédominance des différentes interactions des photons avec la matière en fonction de l'énergie du photon incident et du Z du milieu (Bourgeois, 1998).	27
Figure I-8. Angle solide de détection couvert par le système.	27
Figure I-9. Représentation différentielle et intégrale de la hauteur d'impulsions pour une source de ^{137}Cs	31
Figure I-10. Mécanisme de scintillation dans les cristaux inorganiques.	33
Figure I-11. Schéma de fonctionnement d'un photomultiplicateur (Lyoussi, 2010).	36
Figure I-12. Schéma de la chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma.	36
Figure I-13. Filtre à base de réseau CR-RC-CR.	37
Figure I-14. Schéma des interactions de photons dans le détecteur.	39
Figure I-15. Spectre théorique différentiel illustrant les signatures des différents processus d'interaction des gamma avec le détecteur et son environnement.	40
Figure I-16. Spectre de ^{137}Cs enregistré durant 300 secondes à partir d'un détecteur NaI(Tl) de 16 litres. La source est centrée sur le détecteur et la distance source détecteur est de 1 m.	41
Figure I-17. Comparaison de spectres environnementaux obtenus avec des détecteurs NaI(Tl) et GeHP.	42
Figure I-18. Représentation de la construction du seuil de décision (SD).	45
Figure I-19. Représentation de la LD par rapport à la SD.	46
Figure I-20. Logigramme du principe de calcul de la méthode Monte Carlo appliquée au transport des particules.	47
Figure I-21. Représentation de la distribution cumulée des probabilités d'interaction.	48
Figure II-1. Schéma d'un détecteur RSX 4.	52
Figure II-2. Baie d'acquisition (en laboratoire).	53
Figure II-3 : Schéma d'un plan de vol.	54
Figure II-4. Exemples d'appareils ayant déjà été utilisés lors de mesures aéroportées avec le système HELINUC (A - Eurocopter Alouette III, B - Eurocopter AS 350, C - Eurocopter AS 555, D - Zeppelin).	54
Figure II-5. Linéarité en énergie du détecteur.	55
Figure II-6. Ajustement d'une fonction gaussienne sur le pic d'absorption du ^{137}Cs à 662 keV.	56
Figure II-7. Détermination des paramètres a, b et c à partir d'une régression non linéaire des largeurs à mi-hauteur mesurées (± 1 écart-type en pointillés cyans).	57

Figure II-8. Schéma du RSX-4 issu des plans (RSI, 2006) (à gauche), Modélisation MCNPX du détecteur RSX-4 (à droite). Les différentes parties du boîtier du détecteur sont représentées en transparence sur la modélisation MCNPX.	58
Figure II-9. Spectres MCNPX à 40 m des radionucléides naturels (^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th) et artificiels (^{137}Cs). La distribution des radionucléides dans le sol est précisée. Les zones encadrées en rouge représentent les pics d'absorption utilisés pour l'estimation des activités des radionucléides par la méthode des fenêtres.....	60
Figure II-10. Comparaison entre un spectre mesuré et un spectre simulé. Le spectre simulé a été obtenu en pondérant les activités estimées à partir de la méthode des fenêtres appliquée au spectre mesuré. Les radionucléides à l'origine des pics d'absorption utilisés par la méthode des fenêtres sont annotés.....	61
Figure II-11. Lignes de vol (gauche) et taux de comptage estimés dans la plage d'énergie 500 keV à 3 000 keV pour la mesure (au centre) et pour la simulation (à droite).	62
Figure II-12. Cartographie des taux de comptage obtenus dans la gamme d'énergie 40 keV-2800 keV. Deux spectres sont également présentés afin d'illustrer les différences de taux de comptage.	63
Figure II-13. Schéma du modèle d'interpolation spatiale de l'activité.....	65
Figure II-14. Distribution des activités à implémenter sur les spectres mesurés. La contamination maximale est implémentée au spectre numéro 50.....	66
Figure II-15. Comparaison des spectres obtenus par mesure et modélisation à 1 mètre, dans les conditions « laboratoire ».	67
Figure II-16. Comparaison des spectres obtenus par mesure et modélisation à 1 mètre, dans les conditions « laboratoire » après prise en compte des raies X.	68
Figure II-17. Évolution des spectres en fonction de la taille de la source surfacique.....	69
Figure II-18. Évolution des écarts des spectres obtenus avec des sources de différentes dimensions par rapport au spectre obtenu avec parois réfléchissantes.	70
Figure II-19. Évolution des spectres de ^{241}Am normalisés à leur maximum.....	71
Figure II-20. Comparaison entre ancien et nouveau profil pour une altitude de 11.5 m.	72
Figure III-1. Comparaison d'un spectre brut et d'un spectre filtré (filtrage quartique) (Guillot, 1996).....	76
Figure III-2. Exemple de fenêtres énergétiques d'intérêt utilisées dans la méthode des fenêtres.	79
Figure III-3. Configuration des fenêtres énergétiques pour les méthodes 2W et 3W autour du pic de 59 keV de ^{241}Am (Martin-Burtart, et al., 2012b).	81
Figure III-4. Détection d'une contamination en ^{137}Cs avec la méthode des fenêtres, la méthode 3W et Detec.....	82
Figure III-5. Comparaison des différentes méthodes de résolution.....	84
Figure III-6. Présentation des 8 premières composantes principales provenant d'un jeu de données issu d'une mesure spectrométrique aéroportée au Nevada (Hovgaard, et al., 1998) (Note : les amplitudes des différents spectres sont arbitraires).....	88
Figure III-7. Variation de la concentration du ^{222}Rn provenant du sol pour différents taux d'humidité du sol (Minty, et al., 1998).	92
Figure IV-1. Méthodologie de d'obtention des données d'entrée et comparaison des spectres.....	98
Figure IV-2. Erreur relative obtenue avec différentes techniques de filtrage suivant les 13 lignes de vol du site 1. Chaque ligne de vol regroupe environ 200 spectres.....	99
Figure IV-3. Composantes spectrales 1 à 4 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales.....	100
Figure IV-4. Composantes spectrales 5 à 8 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales.....	101
Figure IV-5. Filtrage des spectres 674 (à gauche) et 2391 (à droite) avec la méthode NASVD: a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence entre les spectres vrais et les spectres filtrés.	102

Figure IV-6. Filtrage quartique des spectres 674 (à gauche) et 2391 (à droite) : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence entre les spectres vrais et les spectres filtrés.	103
Figure IV-7. Analyse des erreurs induites par l'utilisation de filtres quartiques et NASVD sur le spectre 674. Cette analyse est présentée pour les erreurs relatives obtenues par la différence entre spectre vrai et spectre filtré normalisée par le nombre de coups dans chaque canal du spectre vrai.....	104
Figure IV-8. Analyse des erreurs induites par l'utilisation de filtres quartiques et NASVD sur le spectre 2391. Cette analyse est présentée pour les erreurs relatives obtenues par la différence entre spectre vrai et spectre filtré normalisée par le nombre de coups dans chaque canal du spectre vrai.....	104
Figure IV-9. Comparaison des activités massiques de ²³² Th déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.	105
Figure IV-10. Comparaison des activités massiques de ²³⁸ U déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.	106
Figure IV-11. Comparaison des activités massiques de ⁴⁰ K déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.	106
Figure IV-12. Comparaison des activités surfaciques de ¹³⁷ Cs déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.	107
Figure IV-13. Distribution de la source de ⁶⁰ Co implémentée sur les 21 premiers spectres.	109
Figure IV-14. Composantes spectrales 1 à 6 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales contenant des spectres « contaminés » en ⁶⁰ Co.	110
Figure IV-15. 4 ^{ème} composante spectrale (à gauche) et sa concentration associée (sans unité) (à droite).....	111
Figure IV-16. 5 ^{ème} composante spectrale (à gauche) et sa concentration associée (sans unité) (à droite).....	111
Figure IV-17. Filtrage avec la méthode NASVD des spectres 10 (à gauche) et 11 (à droite) présentant une contamination en ⁶⁰ Co : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence absolue entre les spectres vrais et les spectres filtrés.	112
Figure IV-18. Filtrage quartique des spectres 10 (à gauche) et 11 (à droite) présentant une contamination en ⁶⁰ Co : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence absolue entre les spectres vrais et les spectres filtrés.....	113
Figure V-1. Composantes et concentrations associées, obtenues par une décomposition en valeurs singulières sur un site contenant du ²⁴¹ Am.....	119
Figure V-2. Coefficients d'autocorrélation des 25 composantes spectrales décalées d'un canal.....	121
Figure V-3. Impact du filtrage des fluctuations sur un spectre sans ²⁴¹ Am (à gauche) un spectre avec ²⁴¹ Am (à droite).....	121
Figure V-4. Moyenne des 50 premiers spectres.	123
Figure V-5. Illustration des 2 termes de la fonction double exponentielle.....	124
Figure V-6. Évolution du rapport du nombre de coups dans les canaux 13 et 7 en fonction de l'altitude.....	125
Figure V-7. Ajustement du fond de diffusion par une fonction double exponentielle. Pour cet ajustement, seuls les canaux 7,13, 14 et 15 sont utilisés (zone hachurée, violette).....	125
Figure V-8. Ajustement du fond de diffusion sur un spectre sans ²⁴¹ Am (à gauche) et avec ²⁴¹ Am (à droite). ..	126
Figure V-9. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les 400 premiers spectres du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)	127
Figure V-10. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les spectres 1600 à 2000 du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)	128

Figure V-11. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les spectres 2400 à 2800 du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)	128
Figure V-12. Cartographie de l'activité de ²⁴¹ Am déterminée avec la méthode AJAM T1 (amplitude maximale).	129
Figure V-13. Cartographies des activités de ²⁴¹ Am obtenues avec les méthodes AJAM T1 (gauche) et 3W (droite). La même échelle de couleur est considérée pour les deux cartographies.....	130
Figure V-14. Distribution de fausses détections obtenues avec la méthode AJAM T1. La distribution est ajustée par une fonction gaussienne.	131
Figure V-15. Détermination des activités de ²⁴¹ Am avec la méthode 3W et la méthode AJAM T1 SANS suppression au préalable des fluctuations statistiques. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)	132
Figure V-16. Détermination des activités de ²⁴¹ Am avec la méthode 3W et la méthode AJAM T1 AVEC suppression au préalable des fluctuations statistiques. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)	132
Figure V-17. Comparaison des activités déterminées sur les 400 premiers spectres du site NTS, avec les méthodes AJAM T1 et 3W.	133
Figure V-18. Comparaison des activités de ²⁴¹ Am déterminées sur les spectres 4800 à 5200 du site NTS, avec la méthode AJAM T1 et 3W.....	134
Figure V-19. Comparaison des activités de ²⁴¹ Am déterminées sur les spectres 7 600 à 8 000 du site NTS, avec les méthodes AJAM T1 et 3W.....	134
Figure V-20. Comparaison de spectres mesurés 7610 et 7620. Recherche d'une signature de ²⁴¹ Am.....	135
Figure V-21. Ajustement du fond de diffusion sur d'un spectre sans ²⁴¹ Am (à gauche) et avec ²⁴¹ Am (à droite).	135
Figure V-22. Comparaison de la moyenne des spectres présentant une détection en ²⁴¹ Am (spectres 7 917 à 7 927) à la moyenne des spectres n'en présentant pas (7 934 à 7 940), permettant la recherche d'une signature de ²⁴¹ Am.....	136
Figure V-23. Cartographies des activités de ²⁴¹ Am obtenues pour la méthode 3W tenant compte des corrections d'altitude (1) et avec la méthode AJAM T1 (2). Les points représentent des mesures ponctuelles effectuées au niveau du sol.	137
Figure V-24. Comparaison des spectres moyens contenus dans une région spatiale présentant des détections de ²⁴¹ Am et dans une région spatiale n'en présentant pas. Les régions considérées sont encadré en blanc sur la Figure V-23. Dix spectres par région sont considérés pour obtenir chacun des spectres moyens. Ces spectres moyens ont été obtenus à même altitude.....	138
Figure VI-1. Spectre de ¹³¹ I obtenu par simulations Monte Carlo du système HELINUC. L'allure du spectre est représentative d'une altitude de 40 mètres.	142
Figure VI-2. Spectres reconstruits par combinaison linéaire des quatre premières composantes issus de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales. Ces spectres sont comparés aux spectres vrais obtenus par simulation Monte Carlo du site 1.....	143
Figure VI-3. Spectres reconstruits par combinaison linéaire des quatre premières composantes issus de la décomposition en valeurs singulières avec application d'un filtrage quartique. Ces spectres sont comparés aux spectres vrais obtenus par simulation Monte Carlo du site 1.	144
Figure VI-4. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre. Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].....	145
Figure VI-5. Distribution de la somme des résidus issus de l'ajustement des spectres simulés à partir des signatures spectrales déterminées. Les canaux considérés pour cette somme sont [15 : 100]. Cette distribution est modélisée par une gaussienne de paramètre (μ , σ).....	145
Figure VI-6. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre avec injection d'un spectre de ¹³¹ I au niveau du spectre 131 (indiqué par une flèche). Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].	146

Figure VI-7. Signatures spectrales du ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th obtenues par simulation Monte Carlo du site 1 et par décomposition en valeurs singulières des spectres mesurés au site 2.	147
Figure VI-8. Comparaison de spectres reconstruits et mesurés. Pour cette comparaison, les spectres reconstruits sont ajustés aux spectres mesurés à partir des pics d'absorption se trouvant à haute énergie (utilisation des canaux supérieurs à 100 correspondant à 600 keV).	148
Figure VI-9. Analyse des résidus de l'ajustement à partir des signatures spectrales. Comparaison de la somme de ces résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre du site mesuré. Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].	148
Figure VI-10. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre, en présence d'une anomalie gamma (^{131}I) au spectre 317 (indiquée par une flèche). Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].	149
Figure VI-11. Distribution de la somme des résidus issus de l'ajustement des spectres mesurés à partir des signatures spectrales déterminées. Les canaux considérés pour cette somme sont [15 : 100]. Cette distribution est modélisée par une gaussienne de paramètre μ et σ	150

Liste des tableaux

Tableau 0-1. Paramètres standards de vol et d'acquisition utilisés avec le système HELINUC.	17
Tableau I-1. Principales caractéristiques du cristal NaI(Tl) (données Saint-Gobain).	34
Tableau II-1. Radionucléides utilisés pour l'analyse de la linéarité en énergie.	55
Tableau II-2. Paramètres de vol du site 1.	61
Tableau II-3. Paramètres de vol du site 2.	63
Tableau II-4. Raies X du ^{237}Np	68
Tableau II-5. Evolution du nombre de coups dans le centroïde du pic de ^{241}Am en fonction de la surface de la source prise en compte.	70
Tableau II-6. Nombre de coups dans le centroïde en fonction de l'altitude.	72
Tableau III-1. Filtre retenu en fonction du nombre de canaux d'échantillonnage et de la dérivée utilisée pour la recherche de pics (Guillot, 1996).	76
Tableau IV-1. Erreurs relatives sur les activités déterminées à partir de la méthode des fenêtres sans traitement au préalable (Spectres bruts), avec un filtrage quartique (Spectres quartiques) et avec un filtrage NASVD (Spectres NASVD).	108
Tableau IV-2. Taux de détection des différents radionucléides dans les spectres vrais, spectres bruts, spectres quartiques et spectres NASVD. Le nombre de spectres correspondants au pourcentage de détection est donné entre parenthèses.	108
Tableau V-1. Seuils de détection des méthodes AJAM T1 et 3W.	131

Introduction

1 La spectrométrie gamma aéroportée

La présence naturelle de radionucléides émetteurs gamma dans le sol et le parcours moyen important des rayonnements gamma dans l'air ont permis d'envisager depuis longtemps la détection et la quantification des radionucléides par voie aéroportée. L'intérêt principal des mesures par cette voie est d'obtenir rapidement une information sur la présence de radionucléides et leurs distributions au niveau d'un site et ce, pour une zone géographique étendue.

Les premières applications liées aux mesures aéroportées concernaient essentiellement la prospection minière. C'est à partir de 1944 que les premières propositions d'utilisation des moyens aéroportés pour la recherche d'uranium furent émises, mais il aura fallu attendre 30 ans pour disposer d'une technologie suffisante à la réalisation de ce type de mesure. Les premiers essais eurent lieu au Canada en 1949 (Pringle, 1950) avec un détecteur à iodure de sodium (NaI) de 30 cm³. En 1958, le Commissariat à l'Énergie Atomique¹ (CEA) obtint les premiers résultats convaincants en utilisant ce même type de détecteur dopé au thallium (NaI(Tl)) d'un volume de 3 800 cm³ (Berbezier, 1958). Le dispositif permettait de détecter les variations majeures de la radioactivité naturelle à une altitude allant jusqu'à 80 m. La prise en compte des problèmes spécifiques à la mesure aéroportée ainsi que les progrès de l'instrumentation, ont permis de définir les fenêtres énergétiques pour les principaux radionucléides d'origine naturelle (⁴⁰K, ²³⁸U, ²³²Th) (Darnley, 1969).

La crise énergétique de 1973 et la multiplication des centrales nucléaires déclenchèrent de nombreuses campagnes de recherche d'uranium contribuant ainsi à l'essor de la spectrométrie gamma aéroportée. L'avancée de l'industrie nucléaire et la dispersion épisodique dans l'environnement de radionucléides d'origine anthropiques, provenant des essais d'armes nucléaires (notamment Américains, Russes et Français dans les années 1960) ou d'accidents de centrales (Tchernobyl en 1986 et Fukushima en 2011), ont entraîné l'adaptation de la spectrométrie gamma aéroportée à la mesure des radionucléides anthropiques et notamment du ¹³⁷Cs.

Suite à l'accident de Tchernobyl, de nombreux pays, européens pour la plupart, se sont dotés de systèmes de spectrométrie aéroportée pouvant être déployés rapidement en cas de situation d'urgence (de douze à trente-six heures après l'incident). L'inhomogénéité des retombées de cet accident a été évaluée (Lindahl, 1987; Mallander, 1989). Un vol à travers le nuage de contamination a été réalisé mais a rapidement contaminé le système de détection. Cette contamination, en plus d'être préjudiciable pour le matériel, rend compliquée la définition du nuage radioactif (R. L. Grasty, 1997).

Différents exercices d'inter-comparaison de systèmes aéroportés auxquels le CEA a participé, ont eu lieu, permettant de démontrer la capacité de différents pays européens à travailler ensemble en cas d'accident et à améliorer les résultats obtenus avec ce type de système (ECOMAGS (Sanderson, 2004)).

La recherche de sources ponctuelles sur des zones de plusieurs milliers de km² en avion peut être réalisée en un temps raisonnable et constitue donc un des domaines d'utilisation de la spectrométrie gamma aéroportée. Différents accidents aériens entraînant la dispersion de matière radioactive, engendrèrent l'utilisation de moyens

¹ Le Commissariat à l'énergie atomique a changé de nom en 2010 en élargissant son champ aux énergies alternatives. Il est ainsi devenu le Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives.

aéroportées pour la recherche de cette contamination sur une zone de plusieurs kilomètres carrés (Bristow, 1978; Grasty, 1980). L'utilisation de systèmes de spectrométrie gamma aéroportés a également permis la localisation de sources ponctuelles comme dans le cadre de la recherche de sources de ^{57}Co provenant de l'impact au sol d'un missile américain contenant ces sources à Mexico (Deal, 1972).

Dans un autre domaine d'application, la spectrométrie gamma aéroportée peut profiter à la surveillance des sols à travers l'étude de la concentration en potassium dans ces derniers. L'amélioration continue des méthodes d'analyse des mesures permet aujourd'hui de distinguer les champs ayant été fertilisés par des engrais potassés (CEA, 2013). La spectrométrie gamma aéroportée est également utilisée pour l'analyse géologique des sols (Laroche, 2013).

La spectrométrie gamma aéroportée peut être utilisée pour d'autres applications géologiques comme l'estimation de l'épaisseur du manteau neigeux recouvrant les forêts en Russie (Vershina, 1971) ou aux Etats-Unis (Peck, 1971) afin de permettre une régulation optimale des réserves en eau. La détermination de l'épaisseur du manteau neigeux est obtenue à partir d'une mesure aéroportée de référence lors de l'absence de neige couplée à une mesure gravimétrique de l'humidité du sol juste avant les premières chutes de neige. La prise en compte de la biomasse présente et de la variabilité de l'épaisseur du manteau neigeux permet d'améliorer la précision des résultats (J.E. Glynn, 1988).

Au travers de ces différentes applications, c'est finalement la capacité de contrôler l'état radiologique d'un site de taille importante, parfois difficilement accessible par des moyens terrestres et en un minimum de temps, qui rend l'utilisation de systèmes aéroportés intéressante. L'analyse des données recueillies par ces systèmes permet de mettre en évidence une éventuelle pollution ou évolution qu'elles soient d'origines nucléaires, industrielles, agricoles ou simplement dues à des caractéristiques géologiques particulières.

2 Principe technique

Le principe de la spectrométrie gamma aéroportée est d'estimer les activités des différents radionucléides présents au niveau du sol à partir du signal récupéré par le détecteur et mis sous forme de spectres (chapitre I).

En pratique, la mesure aéroportée consiste à survoler un site en suivant des lignes de vol parallèles entre elles. La distance entre 2 lignes de vol, appelée déport, est généralement comprise entre 80 et 200 mètres en fonction des applications considérées. La prise de mesures régulières sur une ligne de vol et l'absence de mesures entre ces lignes est typique de la spectrométrie gamma aéroportée.

La mesure est réalisée à une altitude la plus stable possible. Une altitude de référence est définie avant chaque vol. Celle-ci est fixée à 40 m lors des mesures au CEA mais peut être comprise entre 20 et 100 m. La déviation de cette altitude de référence au cours d'un vol dépend de la topographie du site survolé et des obstacles rencontrés (lignes électriques, grues, bâtiments). Des lignes de vol complémentaires peuvent être effectuées, perpendiculairement aux premières, permettant ainsi un quadrillage de la zone géographique en contrepartie d'un temps de vol allongé.

La vitesse de vol dépend du type de porteur utilisé (avion, hélicoptère ou drone). Pour un hélicoptère celle-ci est généralement fixée à 70 km/h. La définition des paramètres de vol et du temps d'acquisition des mesures est basée sur un compromis entre l'autonomie du porteur, le coût d'un tel survol et la résolution spatiale des résultats. La hauteur de vol est généralement reliée au déport mais celle-ci est limitée pour des raisons de sécurité du personnel et de l'éventuelle remise en suspension des radionucléides dans l'air (cas d'une contamination surfacique).

Les détecteurs utilisés lors de mesures aéroportées sont généralement des détecteurs NaI(Tl) permettant d'avoir un bon rendement de détection des photons. Le temps d'acquisition généralement considéré avec ce type de détecteurs est d'une seconde. L'utilisation d'autres types de détecteur, notamment constitués de germanium (GeHP), peut entraîner des temps d'acquisition plus importants lors de mesures environnementales. Lors d'accidents nucléaires, le faible rendement de détection d'un détecteur à semi-conducteur par rapport à un détecteur à scintillation n'est plus une contrainte et la meilleure résolution en énergie des détecteurs à semi-conducteurs peut être mise à profit permettant une identification et une quantification plus précise des différents radionucléides présents (Gutierrez, 2002).

Ce temps d'acquisition très faible, couplé à une altitude importante, engendre d'importantes fluctuations statistiques sur les données enregistrées en vol. C'est une des principales sources d'incertitudes lors de l'estimation des radionucléides émetteurs gamma.

3 Le système HELINUC

HELINUCTM (HELICOptère NUCléaire) est un système opérationnel de cartographie gamma aéroportée, développé et mis en œuvre depuis 1983 par le CEA/DAM au profit des exploitants nucléaires civils (GIE INTRA²), du ministère de la défense, du DCI-IT³ et des autorités publiques nationales et internationales (AIEA...). HELINUC peut être déployé en France métropolitaine en quelques heures en cas de crise radiologique. Les principales missions de HELINUC sont :

- La réalisation de blancs radiologiques de sites de la défense, de sites civils et des grandes agglomérations ou de site à sécuriser ;
- L'intervention en situation d'urgence en cas d'accident sur un site civil ou militaire ;
- La recherche de sources ponctuelles ;
- L'assistance internationale.

Les 3 grands axes d'applications de la spectrométrie gamma aéroportée au CEA sont présentés sur la Figure 0-1.

² Groupement d'Intérêt Économique regroupant EDF, le CEA et AREVA

³ Détachement Central Interministériel d'Intervention Technique (sous l'autorité du Ministre de l'Intérieur)

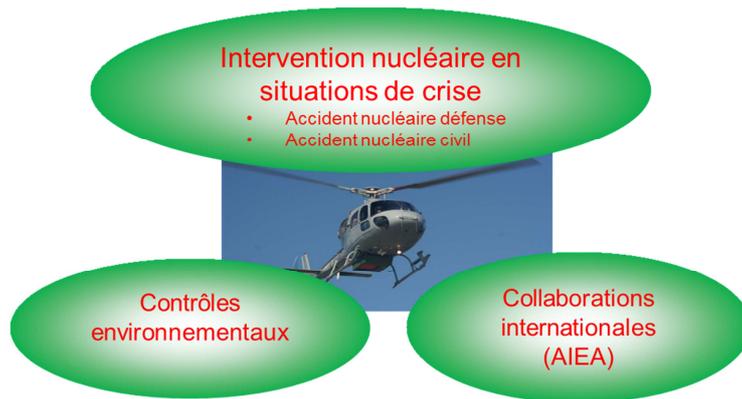


Figure 0-1. Principales missions du CEA avec le système HELINUC.

Dans sa configuration standard, sur hélicoptère léger de type Ecureuil mono ou biturbine, le système HELINUC est composé de 4 détecteurs NaI(Tl) parallélépipédiques pour un volume de détection totale de 16 litres. Les spectres enregistrés sont codés sur 512 canaux représentant une gamme d'énergie de 0 à 3 MeV. Les paramètres de vol et d'acquisition lors d'une mesure aéroportée avec le système HELINUC sont présentés au tableau suivant :

Paramètres de vol et d'acquisition	
Déport	80 m
Altitude	40 m
Vitesse	70 km/h
Détecteur utilisé	NaI(Tl)
Temps d'acquisition	1 s

Tableau 0-1. Paramètres standards de vol et d'acquisition utilisés avec le système HELINUC.

Le système HELINUC est présenté en détail au chapitre II.

4 Objectif de la thèse

Cette thèse s'inscrit dans une démarche d'amélioration continue des méthodes d'analyse des mesures aéroportées dans les différents axes présentés à la Figure 0-1. Dans le cadre du développement de méthodes d'analyse, deux démarches différentes peuvent être adoptées. La première démarche consiste à développer une méthode complète permettant de répondre à l'ensemble des applications envisageables. La seconde démarche est de développer plusieurs méthodes, chacune adaptée à une application bien précise. Les applications qui découlent de ces axes (situations de crise, recherche de sources ponctuelles ou mesures environnementales) ne couvrent pas toutes les mêmes régions énergétiques des spectres enregistrés. La démarche adoptée dans cette thèse est donc basée sur la séparation du spectre en plusieurs régions énergétiques. Cette discrétisation engendre le développement de méthodes dédiées aux applications concernées à partir des régions énergétiques définies. Ce découpage est présenté à la Figure 0-2.

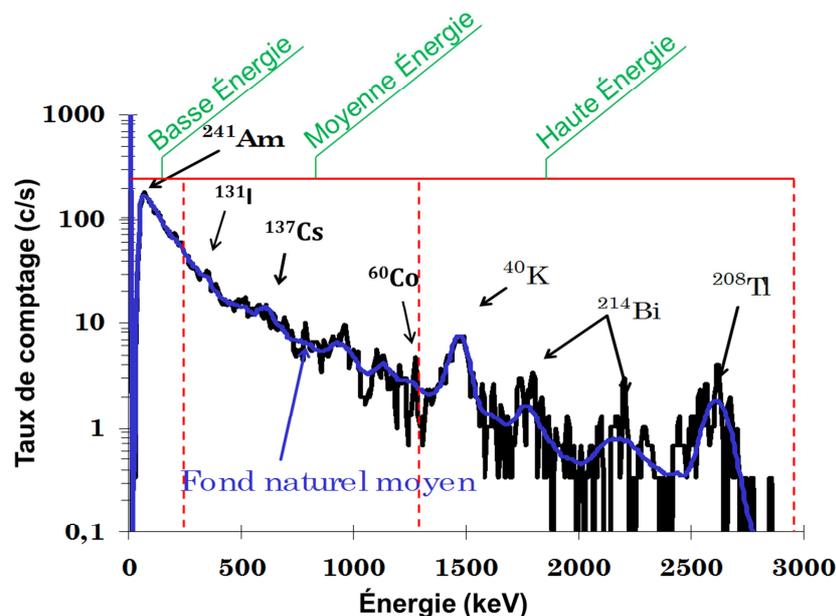


Figure 0-2. Découpage énergétique d'un spectre enregistré.

En plus de prendre en compte les différences spectrales en fonction de l'énergie (fond de diffusion plus ou moins important, statistiques de comptages modifiées, résolution en énergie,...), ce découpage permet de considérer les caractéristiques spatiales de répartition des sources (volumique, surfacique ou ponctuelle) et les conditions d'utilisation liées à l'application. Les méthodes peuvent ainsi prendre en compte les différentes caractéristiques des applications en les utilisant à leur avantage.

Le développement d'une méthode dédiée à une application conduit à une réflexion sur l'amélioration de celle-ci ou à son optimisation en fonction des caractéristiques d'une autre application. Le fil rouge de cette thèse est le développement de méthodes basées sur l'analyse statistique multivariée des spectres enregistrés en vol. L'utilisation de telles méthodes constituent une nouvelle approche de l'analyse spectrale des mesures enregistrées avec le système HELINUC (Guillot, 1996; Martin-Burtart, 2012). Cette analyse statistique revient à considérer l'ensemble des mesures d'un même site comme un tout et non plus comme des mesures indépendantes les unes des autres.

L'étude bibliographique étayée et présentée au chapitre III a permis de définir l'orientation de cette thèse. Les méthodes présentées aux chapitres IV, V et VI sont chacune dédiées à une application particulière.

Les contrôles environnementaux se basent sur l'estimation des radionucléides à haute énergie. La méthode des fenêtres recommandée par l'AIEA et présentée dans la suite de ce document (chapitre III) est actuellement utilisée pour la quantification des radionucléides suivants : ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th . L'estimation de l'activité du ^{137}Cs dans les pays contaminés par ce radionucléide, suite à des accidents ou des essais nucléaires, est également possible si aucune contamination radiologique anthropique aux énergies supérieures à celle du ^{137}Cs n'est présente. Bien qu'elle soit considérée comme la méthode de référence, les activités déterminées avec la méthode des fenêtres sont cependant entachées d'incertitudes importantes dues principalement aux fluctuations statistiques des faibles taux de comptage. Le traitement de ces fluctuations à partir de techniques de filtrage

appliquées aux spectres avant l'utilisation de la méthode des fenêtres est étudié au chapitre IV pour réduire ces incertitudes.

En cas d'incident ou d'accident intéressant la Défense, une quantité de matière radioactive émettant à basse énergie peut être rejetée. Ainsi, une méthode avec des limites de détection basses a été spécifiquement développée pour les applications liées à la Défense. Celle-ci est basée sur l'analyse statistique multivariée des spectres et sur la déconvolution du signal dû à ^{241}Am à partir d'une bibliothèque de référence (chapitre V).

Les méthodes précédentes, nécessitant un temps de calcul important et étant inappropriées à une analyse en temps réel ont conduit au développement d'une méthode d'analyse rapide dédiée aux moyennes énergies. Cette méthode utilise comme base de données les nombreux vols déjà effectués tant en France qu'à l'étranger par le système HELINUC. Ainsi, la détection d'une anomalie gamma (présence d'un radionucléide différent des radionucléides d'origine naturelle) avec cette méthode repose sur la connaissance préalable des radionucléides présents sur site et de leurs signatures spectrales respectives. Cette méthode est présentée au chapitre VI.

Cette thèse présente ainsi différentes méthodes d'analyse de spectres répondant à un objectif commun de détection et d'identification de radionucléides, optimisées par une séparation en gamme d'énergie des spectres analysés.

I. Le photon : de l'émission à la détection

La radioactivité existe partout autour de nous, à l'état naturel ou induite par les activités humaines. Elle correspond à la propriété qu'ont les noyaux instables de perdre spontanément de leurs masses en émettant différents types de particules. En 1895, le physicien allemand Wilhelm Röntgen a découvert les rayons X en étudiant le rayonnement cathodique des tubes de Crookes. En 1896, Henri Becquerel, travaillant sur les rayons X, découvrit la radioactivité via l'émission spontanée de rayonnement par l'uranium. Marie Curie travaillant sur la radioactivité du thorium, découvrit en 1898 deux nouveaux radioéléments⁴ : le polonium et le radium.

Les différents mécanismes d'émission de particules se produisent temporellement de manière aléatoire. Ces mécanismes peuvent conduire à la modification de la structure interne du noyau (désintégration alpha, beta ou fission) ou au passage d'un état d'énergie à un autre (émission gamma ou conversion interne). Les particules émises sont détectées afin d'identifier les noyaux émetteurs (les radionucléides) et de les quantifier. Cette thèse s'intéresse à la détection, l'identification et la quantification des radionucléides à partir de leurs émissions gamma.

1 Lumière sur le photon

La transition d'un noyau d'un état excité vers un état dont l'énergie d'excitation est plus faible ou vers l'état fondamental peut s'effectuer par émission gamma. Cette émission est décrite selon un aspect ondulatoire ou corpusculaire (comme pour toute la matière) suivant la dualité onde-corpuscule mise en évidence par Louis de Broglie en 1924. Ainsi le rayonnement gamma est une onde électromagnétique caractérisée par sa longueur d'onde λ (ou sa fréquence ν). Le photon gamma est aussi une particule de masse et de charge nulles se déplaçant dans le vide à la vitesse $c = 299\,792\,458 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$. Ces deux représentations du rayonnement ne s'excluent pas, elles sont en fait complémentaires et sont reliées par l'équation suivante :

$$\lambda = \frac{h}{p} \quad (I-1)$$

Avec h la constante de Planck valant approximativement $h = 6.6260 \cdot 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$ et p la quantité de mouvement de la particule.

L'aspect ondulatoire est utilisé pour étudier les phénomènes de diffraction, d'interférence ou de polarisation de la lumière. Compte tenu des phénomènes physiques mis en jeu dans l'interaction des photons gamma avec la matière dans le cadre de la spectrométrie γ (effet photoélectrique, diffusion Compton,...), la détection de photons se fera au travers de leurs interactions en tant que particules avec la matière (i.e. aspect corpusculaire).

Le caractère unique des émissions gamma suite aux transitions entre différents états excités d'un noyau est à la base de la spectrométrie gamma. Ces émissions gamma et leurs rapports d'embranchement représentent la carte d'identité du radionucléide et permettent de les différencier. Chaque radionucléide sera donc caractérisé par une série de raies d'émission gamma qui lui est propre. Par exemple, lors de la désintégration du ^{60}Co en ^{60}Ni , les

⁴ Radionucléide et radioélément : un radionucléide est un isotope radioactif d'un élément (exemple ^{137}Cs) alors qu'un radioélément est un élément dont tous les isotopes sont radioactifs (exemple l'uranium).

émissions gamma ayant les rapports d'embranchements les plus importants sont ceux de 1173,240 keV et de 1332,508 keV (Figure I-1). Ce sont ces photons qui seront utilisés en spectrométrie gamma aéroportée pour la détection du ^{60}Co .

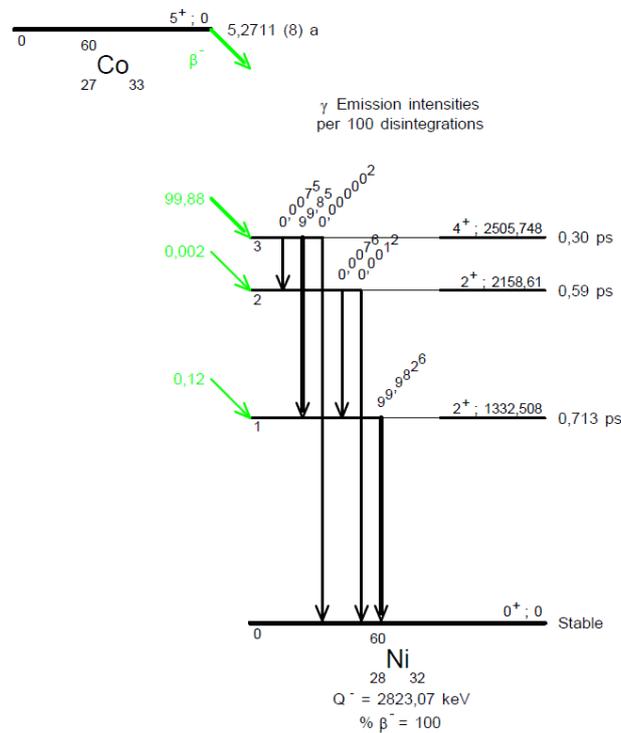


Figure I-1. Schéma de désintégration du ^{60}Co (Source : LNHB/Helmer-2014).

La détection du rayonnement nécessite de prendre en compte les différentes interactions des photons dans l'air et dans le détecteur, ainsi que l'angle solide de détection. La suite de ce chapitre présente le processus de détection des photons depuis leur émission jusqu'à leur mise en forme en signal exploitable.

2 Interactions des photons avec la matière

Plusieurs mécanismes d'interaction des photons avec la matière sont possibles et dépendent de l'énergie et du matériau. Les interactions par effet photoélectrique, diffusion Compton et créations de paires sont les principales interactions des photons avec la matière dans la gamme d'énergie considérée en spectrométrie gamma aéroportée (énergie comprise entre 10 keV et 3 MeV). D'autres interactions entre les photons et la matière entrent également en jeu mais ne seront pas détaillées dans ce chapitre. On peut citer les diffusions de Thomson et de Rayleigh qui sont des diffusions élastiques des photons avec respectivement un électron libre et un électron lié. Lors de ces diffusions, l'énergie du photon n'est pas modifiée, seule sa direction de propagation l'est. La diffusion de Rayleigh est notamment à l'origine du changement de la couleur du ciel entre la journée (couleur bleue) et l'aube ou le crépuscule (couleur rouge).

La probabilité d'occurrence d'un processus est reliée à la section efficace σ et dépend principalement de l'énergie du photon et du numéro atomique Z du matériau. Le coefficient d'atténuation linéique μ représente la probabilité d'interaction par unité de longueur d'un photon dans le milieu. Il prend en compte la densité atomique n du milieu et la section efficace par la relation :

$$\mu = n \times \sigma \quad (I-2)$$

Le coefficient d'atténuation linéique total prenant en compte les principaux processus d'interaction des photons avec la matière s'exprime :

$$\mu_{total} = \mu_{photo\acute{e}lectrique} + \mu_{Compton} + \mu_{cr\acute{e}ation\ paires} \quad (I-3)$$

Le coefficient d'atténuation des photons peut également prendre en compte la masse volumique ρ du matériau traversé : celui-ci est alors appelé coefficient d'atténuation massique et noté μ/ρ . Les courbes d'évolution des coefficients d'atténuation massiques μ/ρ pour les différentes interactions des photons dans l'air sont présentées à la Figure I-2.

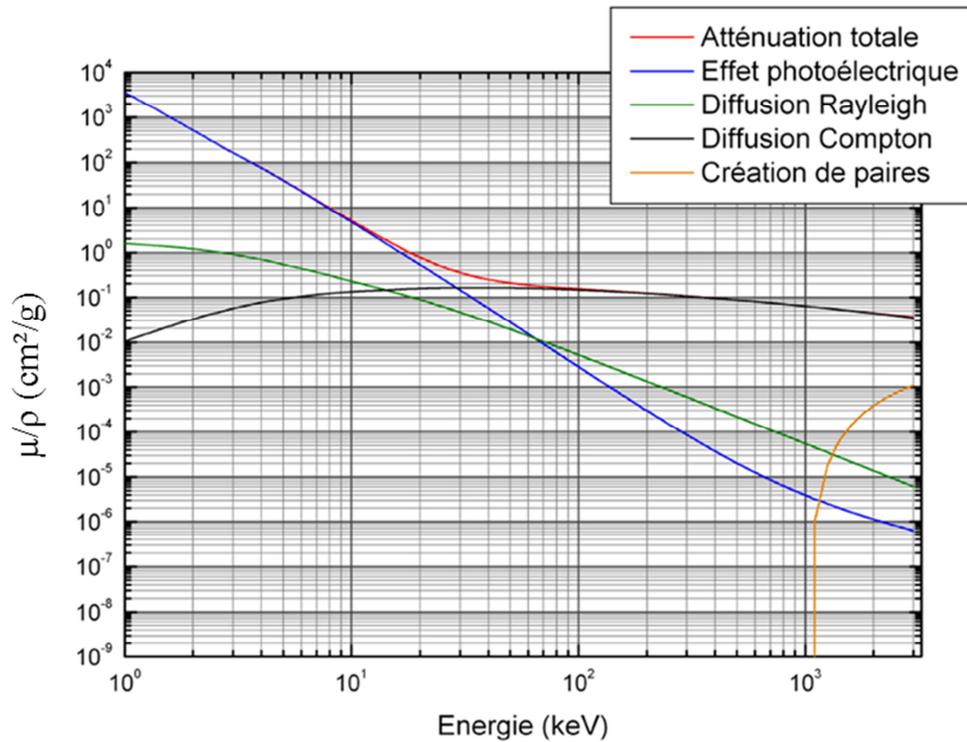


Figure I-2. Courbe d'atténuation massique des photons dans l'air (ICRU, 1994).

Dans l'air, l'interaction par effet photoélectrique prédominera pour des photons dont l'énergie est inférieure à 30 keV. La diffusion Compton prédominera pour des photons d'énergie 30 keV à 3 MeV.

a. Effet photoélectrique

Un photon transmet toute son énergie à un électron lié d'un atome ce qui entraîne l'éjection de cet électron du cortège électronique (Figure I-3).

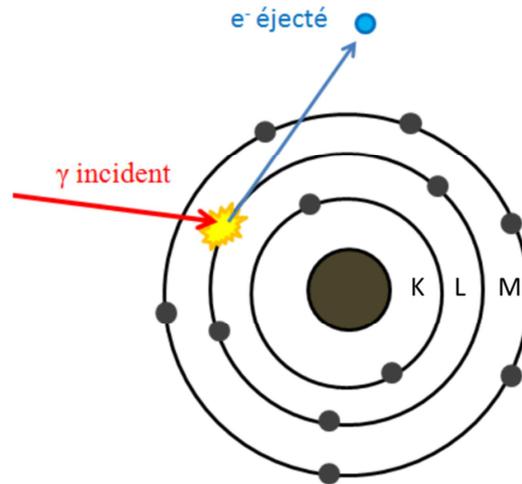


Figure I-3. Schéma de l'effet photoélectrique.

Cet effet se produit dès que le photon possède une énergie supérieure à l'énergie de liaison d'un des électrons du cortège électronique. Le coefficient d'atténuation photoélectrique évoluera donc de façon discontinue suivant que l'énergie du photon lui permet d'arracher un électron des couches K, L, M... L'énergie cinétique du photoélectron T_e correspond à l'énergie du photon incident E_γ moins l'énergie de liaison de l'électron B_e .

$$T_e = E_\gamma - B_e \quad (I-4)$$

À partir de quelques dizaines de keV, l'effet photoélectrique se produit essentiellement avec la couche K. La section efficace d'interaction par effet photoélectrique σ_{PE} , quelle que soit la couche considérée, s'exprime par la relation empirique :

$$\sigma_{PE} \propto \frac{Z^5}{E_\gamma^n} \quad (I-5)$$

Avec $n \sim 3$ pour $E_\gamma < 0,5$ MeV et $n \sim 1$ pour $E_\gamma \sim 2$ MeV.

À énergie égale, la probabilité d'interaction par effet photoélectrique d'un photon gamma sera plus probable avec un matériau de numéro atomique élevé (par exemple le plomb) qu'avec un matériau de numéro atomique faible (exemple l'eau). Une des propriétés d'un détecteur de rayonnement gamma devra donc être de posséder un numéro atomique élevé, ce qui est le cas pour les scintillateurs minéraux (par exemple le NaI(Tl)).

L'orbite laissée vacante par l'électron éjecté se verra comblée par un électron d'une couche supérieure. Ce réarrangement du cortège électronique entrainera soit l'émission de rayons X soit l'émission d'un électron périphérique de l'atome (émission Auger). On parle alors de relaxation atomique.

b. Diffusion Compton

Cette diffusion doit son nom à Arthur Holly Compton qui, en 1923, observa la diffusion d'un photon sur un électron. La diffusion Compton est le transfert d'énergie d'un photon avec un électron libre ou très faiblement lié à l'atome lorsqu'il entre en collision avec celui-ci. Le photon subit alors une perte d'énergie et une déviation de sa trajectoire d'un angle θ (Figure I-4). Le photon diffusé d'énergie E_γ' pourra donner lieu à d'autres diffusions Compton (diffusions multiples).

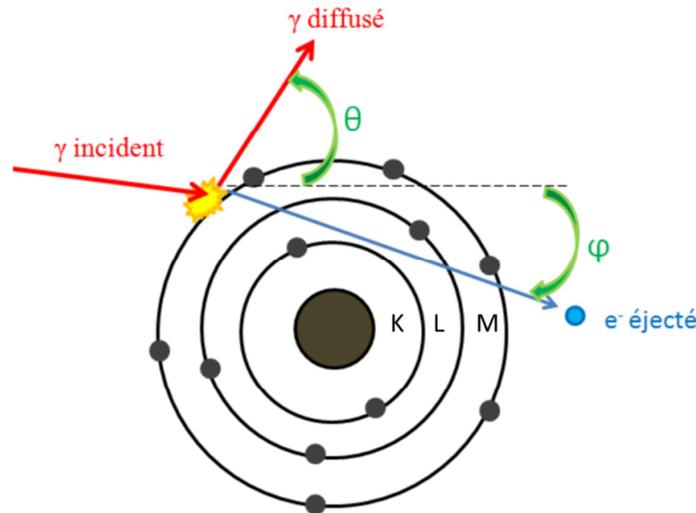


Figure I-4. Schéma de l'effet Compton.

À partir des équations de conservation de l'énergie et de conservation de la quantité de mouvement, il est possible d'exprimer l'énergie du photon diffusé en fonction de l'énergie incidente et de l'angle de diffusion θ :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)} \quad (1-6)$$

Avec $m_0 c^2$, énergie de l'électron au repos qui vaut 0,511 MeV.

L'énergie du photon diffusé sera :

- maximale lorsque θ tend vers 0° ($\theta = 0^\circ$ correspond à l'absence d'interaction) ;
- minimale lorsque θ tend vers 180° (rétrodiffusion du photon).

L'énergie du photon rétrodiffusé sera inférieure à 255 keV quelle que soit l'énergie du photon incident.

L'énergie transférée à l'électron Compton est donnée par la relation :

$$T_e = E_\gamma - E'_\gamma = \frac{E_\gamma^2 (1 - \cos\theta)}{m_0 c^2 + E_\gamma (1 - \cos\theta)} \quad (1-7)$$

Si l'interaction Compton a lieu dans le détecteur, c'est l'énergie de l'électron qui sera récupérée. Or cette énergie dépend de l'angle de diffusion du photon. Il est ainsi intéressant d'étudier la probabilité de diffusion en fonction de l'angle de diffusion. La section efficace par angle solide traduit la probabilité qu'un photon soit diffusé dans l'angle solide compris entre Ω et $\Omega + d\Omega$ présentant un angle polaire compris entre θ et $\theta + d\theta$. Celle-ci renseigne sur la tendance de diffusion des photons et des électrons en fonction de l'énergie E_γ et s'exprime à partir de l'équation de Klein et Nishina (Klein O., 1929) :

$$\left(\frac{d\sigma_c}{d\Omega}\right) = \frac{r_0^2}{2} \left(\frac{E_\gamma'}{E_\gamma}\right)^2 \left[\left(\frac{E_\gamma}{E_\gamma'}\right) + \left(\frac{E_\gamma'}{E_\gamma}\right) - \sin^2\theta \right] \quad (1-8)$$

Avec r_0 le rayon classique de l'électron ($\sim 2,8$ fm).

La Figure I-5 représente les distributions de probabilité que le photon soit diffusé dans une direction d'angle polaire θ par rapport à la direction du photon incident pour différentes énergies du photon incident E_γ .

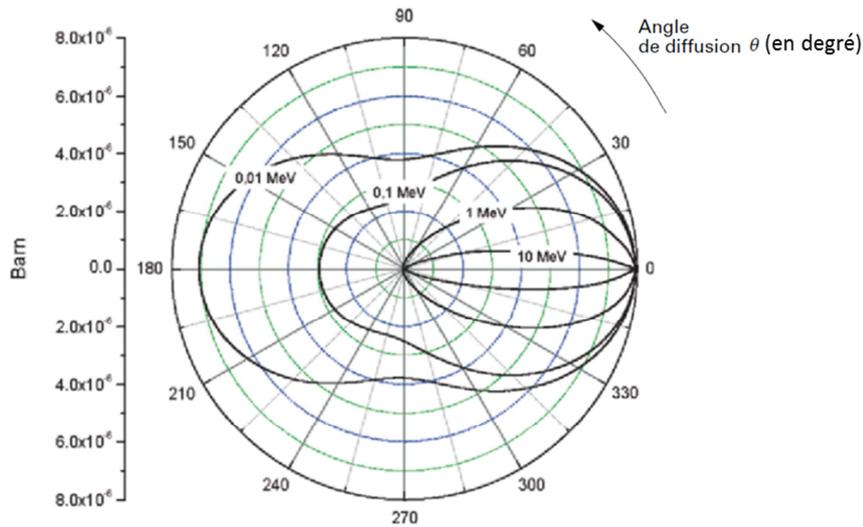


Figure I-5. Distribution de probabilité de l'angle de diffusion θ pour des énergies comprises entre 10 keV et 10 MeV (Bourgois, 2012).

Lorsque l'énergie croît, le cône d'émission de ces photons diminue : les photons ont tendance à être davantage diffusés dans le sens du photon incident. L'allure des sections efficaces différentielles permet de comprendre l'allure du fond Compton observé sur les spectres gamma.

L'équation précédente donne la section efficace différentielle pour la diffusion gamma sur un électron. La probabilité pour qu'un photon interagisse avec un matériau est proportionnelle au nombre d'électrons de ce matériau. Ainsi, la section efficace Compton σ_c est obtenue en intégrant la section efficace différentielle sur tout l'espace et en pondérant par le numéro atomique du matériau :

$$\sigma_c = Z \int_{\Omega} \left(\frac{d\sigma_c}{d\Omega} \right) d\Omega \quad (I-9)$$

En première approximation, la section efficace différentielle est inversement proportionnelle à l'énergie du photon incident. La section efficace Compton peut donc s'exprimer par :

$$\sigma_c \propto \frac{Z}{E_\gamma} \quad (I-10)$$

c. Création de paires

Ce processus physique consiste en la création d'une paire électron-positron dans le champ coulombien du noyau. L'énergie seuil de l'interaction est alors égale à la somme des énergies de ces deux particules au repos soit 2×0.511 MeV. L'énergie transmise au champ coulombien est négligeable. S'il est créé en mouvement, le positron ralentit très rapidement et s'annihile avec un électron du milieu pour créer deux photons d'énergie 0,511 MeV émis à environ 180° l'un par rapport à l'autre. Le léger décalage de l'angle d'émission des photons est lié au fait que le positron n'est pas exactement au repos lors de l'annihilation de ce dernier avec un électron. Cet effet de création de paires peut également avoir lieu dans le champ coulombien d'un électron et l'énergie seuil est alors de 2,044 MeV.

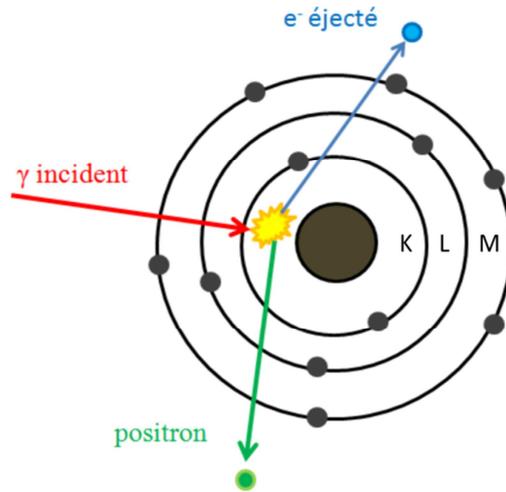


Figure I-6. Schéma de l'effet de création de paires.

La section efficace de production de paires σ_{pp} est donnée par :

$$\sigma_{pp} = \begin{cases} \alpha r_o^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln \left(\frac{2E_\gamma}{m_o c^2} \right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_o < E_\gamma < \frac{E_o}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \\ \alpha r_o^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \ln \left(183 \cdot Z^{-\frac{1}{3}} \right) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E_\gamma > \frac{E_o}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \end{cases} \quad (I-11)$$

Avec la constante de structure fine, $\alpha = 1/137$.

Aux énergies considérées en spectrométrie gamma aéroportée (< 3 MeV), la probabilité de création de paires est très faible, celle-ci est proportionnelle au logarithme de l'énergie du photon incident et au carré du numéro atomique du milieu traversé :

$$\sigma_{pp} \propto Z^2 \ln(E_\gamma) \quad (I-12)$$

d. Conclusion

Les sections efficaces des différentes interactions dépendent du numéro atomique du milieu et de l'énergie du photon incident. Le diagramme de prédominance des trois principaux effets en fonction du milieu (Figure I-7) indique que les effets prédominants entre 40 keV et 3 000 keV sont l'effet photoélectrique et la diffusion Compton.

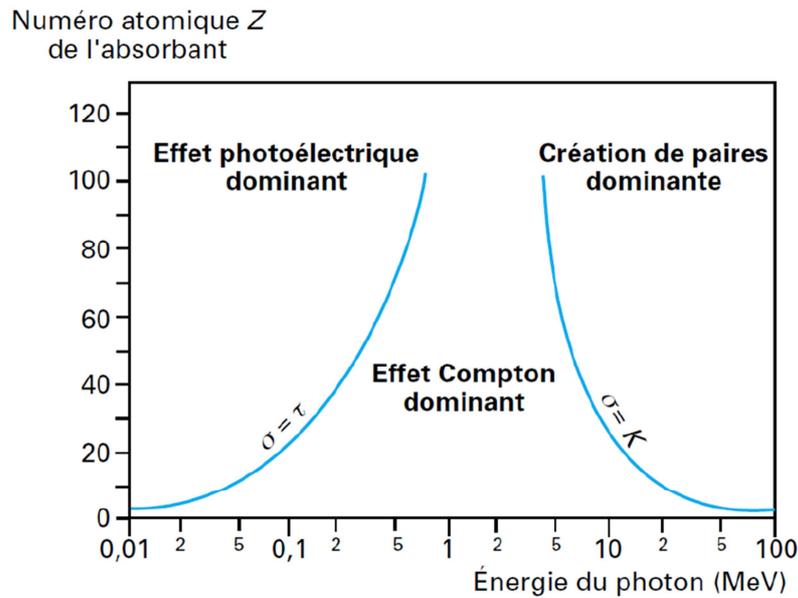


Figure I-7. Domaine de prédominance des différentes interactions des photons avec la matière en fonction de l'énergie du photon incident et du Z du milieu (Bourgeois, 1998).

De nombreuses interactions ont lieu dans l'air avant que les gamma n'atteignent le détecteur. Le nombre de gamma interagissant avec le détecteur dépendra à la fois de l'angle d'émission de la source et de la distance entre la source et le détecteur. La partie suivante présente l'angle solide de détection et plusieurs types de répartition de sources typiques de la spectrométrie gamma aéroportée

3 Estimation de l'activité étendue et application au cas surfacique

Une des particularités de la spectrométrie gamma aéroportée est de présenter une distance source-détecteur importante. L'altitude de vol des systèmes aéroportés peut aller de quelques dizaines de mètres à plus d'une centaine de mètres. De plus, le système est en déplacement au-dessus de la source ce qui entraîne des variations de l'angle solide de détection couvert par le système (Figure I-8).

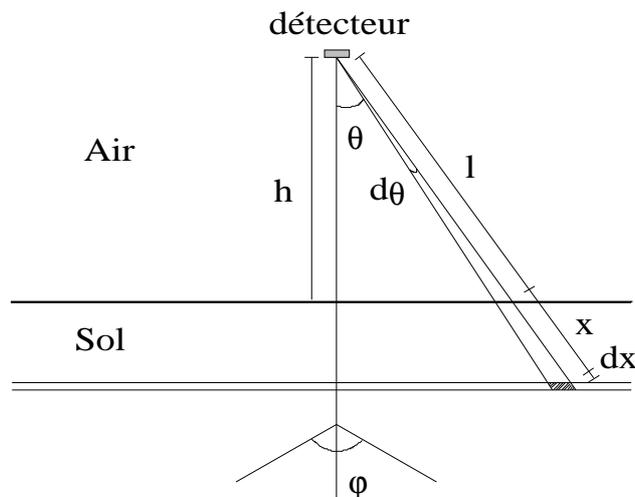


Figure I-8. Angle solide de détection couvert par le système.

Dans cette partie, le taux de comptage est exprimé en fonction de la répartition de la source. Plusieurs types de répartition de sources sont considérés : la répartition surfacique, volumique ou exponentielle. Le cas de la source ponctuelle n'est pas abordé.

a. Principe de l'estimation d'une activité étendue

Si l'on considère un détecteur à une altitude h au-dessus d'une source d'activité volumique uniformément répartie dans le sol (Figure I-8), le taux de comptage non diffusé atteignant le détecteur est exprimé par :

$$C = \frac{1}{4\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \int_{x=0}^{\infty} \int_{\varphi=0}^{2\pi} n(E, x, \theta) \varepsilon(E, \theta, \varphi) e^{-(\mu_{air,E} \cdot l + \mu_{sol,E} \cdot x)} \sin\theta d\theta d\varphi \quad (I-13)$$

- C : comptage détecté en coups/seconde,
- $n(E, x, \theta)$: nombre de photons gamma d'énergie E émis par seconde et par unité de volume à une profondeur ($x \cos\theta$),
- $\varepsilon(E, \theta, \varphi)$: rendement de détection des photons d'énergie E suivant la direction d'incidence (θ, φ)
- $\mu_{air,E}$: coefficient d'atténuation linéaire de l'air à l'énergie E
- $\mu_{sol,E}$: coefficient d'atténuation linéaire du sol à l'énergie E

Pour les radionucléides naturels, l'hypothèse d'une répartition volumique uniforme est généralement considérée sur la surface couverte pendant la mesure, ce qui permet de s'affranchir de la dépendance en φ de l'efficacité de détection. Les radionucléides d'origine artificielle déposés en surface migrent cependant dans le sol. Cette migration dépend de l'âge du dépôt, du radionucléide considéré et de la nature du sol. On introduit alors la masse de relaxation surfacique β (en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-2}$) qui est représentative de la distribution d'activité dans le sol.

b. Rendement de détection

Le paramètre le plus complexe à estimer est le rendement de détection ε des photons. Celui-ci est défini comme étant le nombre de photons enregistré par le détecteur, divisé par le nombre de photons émis par la source. La norme NF M 60-810 aujourd'hui remplacée par la norme NF ISO 18589-7 (AFNOR, 2013), recommande d'utiliser l'équation suivante afin de déterminer le rendement ε du détecteur :

$$\varepsilon = \eta_{E,0} \cdot G_{E,V} \cdot W_{E,V} \quad (I-14)$$

$$\varepsilon = \left(4\pi \cdot d^2 \cdot \frac{R_{n,E}}{A_K \cdot p_E} \right) \cdot \left(\frac{\Phi_{E,V}}{A_K \cdot p_E} \right) \cdot \left(\sum_{m=1}^M (k_{E,\theta})_m \cdot \left(\frac{\Delta\Phi_m}{\Phi} \right)_{E,V} \right) \quad (I-15)$$

Rendement intrinsèque du détecteur	Facteur géométrique	Facteur correctif angulaire
------------------------------------	---------------------	-----------------------------

La courbe de rendement intrinsèque $\eta_{E,0}$ du détecteur est déterminée sur la plage d'énergie considérée à partir de sources d'étalonnage placées à une distance définie du détecteur.

Le facteur géométrique $G_{E,V}$ permet de prendre en compte la répartition des radionucléides dans ou sur le sol, la hauteur du détecteur, le coefficient d'atténuation de l'air et le coefficient d'atténuation massique du sol.

La réponse des détecteurs NaI(Tl) de grands volumes varie en fonction de l'angle θ d'arrivée des photons au niveau du détecteur (Allyson, 1994). Le facteur correctif angulaire $W_{E,V}$ permet de prendre en compte cette variation de réponse.

Les différents termes de l'équation (I-15) sont explicités ci-dessous :

- $R_{n,E}$: taux de comptage net de la raie d'absorption totale à l'énergie E ;
- A_K : activité du radionucléide K au moment de la mesure (Bq) ;
- p_E : rapport d'embranchement de l'émission gamma à l'énergie E ;
- d : distance entre la source et le cristal (m) ;
- $\Phi_{E,V}$: flux de photons non dispersés à l'emplacement du détecteur pour la répartition V du radionucléide considéré ;
- $(k_{E,\theta})_m$: rapport entre le rendement du détecteur à l'énergie E et à l'angle polaire θ et le rendement du détecteur à l'énergie E et à l'angle polaire $\theta = 0^\circ$.
- $\left(\frac{\Delta\Phi_m}{\Phi}\right)_{E,V}$: rapport des flux de photons non dispersés à l'angle polaire considéré et le flux de photons non dispersés à l'angle polaire $\theta = 0^\circ$, à l'énergie E et pour la répartition V du radionucléide considéré ;
- M : nombre d'angles polaires considérés.

Le facteur géométrique $G_{E,V}$ et le rapport $\left(\frac{\Delta\Phi_m}{\Phi}\right)_{E,V}$ sont généralement déterminés à partir des formules présentées à la section suivante, pour un modèle de répartition surfacique d'extension infinie des radionucléides considérés.

c. Application au cas d'une activité surfacique d'extension infinie

Dans le cas d'un dépôt surfacique d'extension infinie d'un radionucléide, les différents termes permettant d'estimer au mieux le rendement de détection deviennent :

- Fonction géométrique $G_{E,V}$:

$$G_{E,V} = \frac{1}{2} \cdot E_1[\mu_{air} \cdot D] \quad (I-16)$$

- Ratio de la densité de flux de photons non diffusés d'énergie E pour l'intervalle d'angle polaire correspondant :

$$\left(\frac{\Delta\Phi_m}{\Phi}\right)_{E,V} = \frac{E_1(\mu_{air} \cdot D / \cos\vartheta_{int}) - E_1(\mu_{air} \cdot D / \cos\vartheta_{ext})}{E_1(\mu_{air} \cdot D)} \quad (I-17)$$

- μ_{air} coefficient d'atténuation de l'air (m^{-1}) ;
- D distance entre le centre géométrique du cristal et la surface du sol ;

- ϑ_{int} angle polaire à l'intérieur de l'intervalle d'angle considéré ϑ_G (degré) ;
 - ϑ_{ext} angle polaire à l'extérieur de l'intervalle d'angle considéré ϑ_G (degré) ;
 - $\vartheta_G = \arctan\left(\frac{R}{D}\right)$, angle polaire limite relatif au modèle de répartition (degré)
- E_1 : Fonction exponentielle intégrale de 1^{er} ordre (tabulée dans la littérature) :

$$E_1(\mu) = \int_1^{\infty} \frac{e^{-\mu x}}{x} dx \quad (\text{I-18})$$

Bien qu'utilisées en pratique, les formules analytiques entraînent nécessairement la prise en compte d'approximations. Une autre manière de déterminer les rendements du détecteur est de se baser sur des simulations Monte Carlo des interactions des rayonnements avec la matière. Ce type de méthode demande néanmoins une validation préalable de la modélisation du système de détection reposant sur des mesures empiriques. L'avantage d'utiliser une méthode numérique de type Monte Carlo est d'avoir accès non seulement au pic d'absorption totale mais également au fond de diffusion dû notamment au détecteur et aux conditions de mesure. Au final, la modélisation permettra de mieux comprendre et donc de mieux analyser les signatures provenant d'un radionucléide (I.7).

4 Notion de spectres et de résolution en énergie

a. Spectre en énergie

Les charges déposées par les électrons dans le détecteur sont proportionnelles à l'énergie déposée par les photons gamma lors des différentes interactions de ces derniers avec la matière (I.2). La collection de ces charges aux bornes du détecteur génère des impulsions électriques. Le spectre d'une source radioactive représente la distribution (intégrale ou différentielle) de ces impulsions en fonction de leur hauteur. Le mode de représentation des spectres le plus courant est la représentation différentielle du nombre d'impulsions en fonction de leur hauteur. Ce mode de représentation permet de mettre l'accent sur les variations de formes spectrales et ainsi de permettre une identification plus aisée des interactions à l'origine de la forme du spectre. Un autre mode de représentation est la représentation intégrale du nombre d'impulsions en fonction de l'énergie. Dans ce mode de représentation, le nombre d'impulsions dont la hauteur est supérieure à une hauteur H est reporté sur le spectre. Les deux modes de représentations (différentielle et intégrale) sont présentés à la Figure I-9. Chaque intervalle de hauteur d'impulsions est appelé canal.

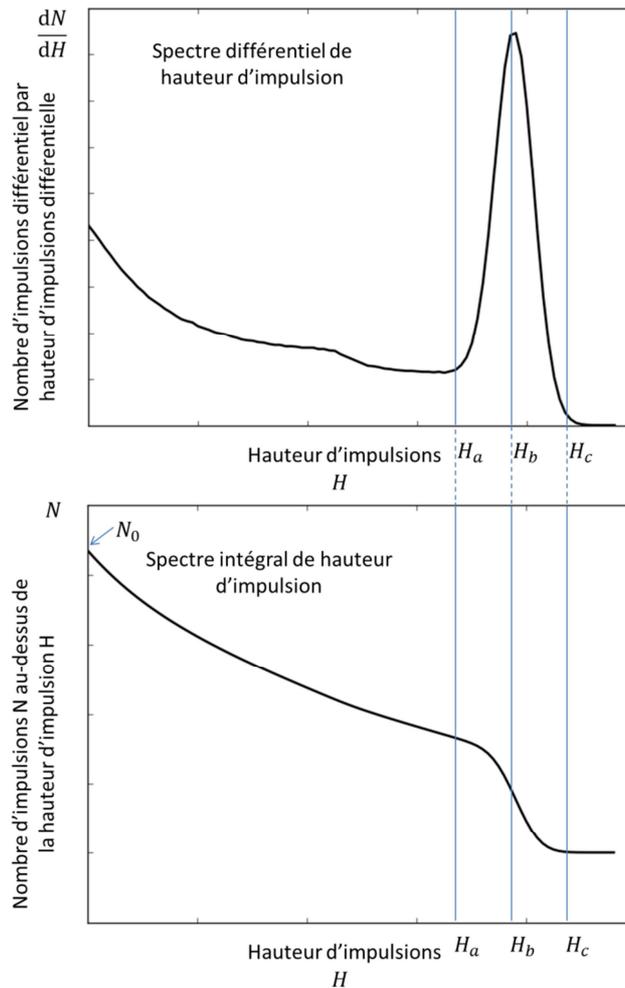


Figure I-9. Représentation différentielle et intégrale de la hauteur d'impulsions pour une source de ^{137}Cs .

Alors que les variations peuvent être positives ou négatives dans le cas d'une représentation différentielle, la représentation intégrale est celle d'une fonction monotone décroissante en fonction de la hauteur d'impulsions. Ainsi dans cette dernière représentation, le nombre d'impulsions pour $H = 0$ est le nombre total d'impulsions récupérées (noté N_0).

Bien que ces deux modes de représentation contiennent la même information, la représentation différentielle est la forme de représentation la plus utilisée car elle permet de mieux apprécier les différences entre deux spectres. Il est néanmoins possible de passer de l'une à l'autre par intégration ou dérivation. Dans la suite de cette thèse, c'est la représentation différentielle qui sera privilégiée. Pour simplifier les notations, la notation différentielle par rapport à l'amplitude de l'impulsion ou de l'énergie sera abandonnée sur l'axe des ordonnées et l'axe des abscisses sera représenté sous la forme de canaux (ou énergie).

b. Résolution en énergie

La réponse d'un détecteur à une source monoénergétique permet de déterminer entre autre, la résolution en énergie de ce détecteur. La résolution en énergie détermine la capacité d'un détecteur à séparer les raies. Elle est définie par :

$$R(\%) = \frac{\Delta E}{E} \times 100 \quad (I-19)$$

Où ΔE représente la largeur à mi-hauteur LMH (ou Full Width at Half Maximum, FWHM en anglais) de la distribution du signal correspondant à l'absorption de l'énergie E dans le détecteur. Dans le cas idéal, la forme du pic d'absorption est gaussienne, la relation qui lie la largeur à mi-hauteur à l'écart type σ de la distribution est donc :

$$FWHM = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma \approx 2.355\sigma \quad (I-20)$$

Expérimentalement, une augmentation du signal dans la partie inférieure du pic (originellement gaussien) peut être observée. Celle-ci se traduit par une trainée plus importante de la queue de distribution du pic d'absorption, liée à une atténuation des vecteurs du signal dans le détecteur (électrons dans les semi-conducteurs, photons lumineux dans les scintillateurs).

5 Détection du rayonnement gamma

Une fois arrivés au niveau du détecteur, les photons vont interagir avec celui-ci ce qui permettra leur détection. Comme cela a été détaillé dans la section I.2, différentes interactions peuvent avoir lieu. Plusieurs types de détecteur sont alors considérés pour la détection de ces photons. Les détecteurs utilisés dans le cadre de cette thèse, appelés scintillateurs, ont la propriété d'émettre des photons lumineux suite à l'absorption de rayonnements ionisants (fluorescence). La récupération de ces photons lumineux et leur transformation en signal électrique rend ainsi possible la détection et le comptage des photons gamma arrivant au détecteur.

Le choix du scintillateur à utiliser dépend de l'application considérée et repose sur un compromis entre ces différentes caractéristiques :

- Convertir l'énergie cinétique du rayonnement ionisant en photons détectables (photons lumineux) avec un rendement de scintillation élevé.
- Cette conversion doit être la plus linéaire possible sur la gamme d'énergie considérée pour que le nombre de photons lumineux soit proportionnel à l'énergie déposée.
- Le scintillateur doit être transparent à sa propre lumière de scintillation pour éviter les pertes.
- Le temps de décroissance de la scintillation doit être le plus court possible.
- Le scintillateur doit pouvoir être créé avec des dimensions suffisantes en fonction de l'application voulue.
- Son indice de réfraction doit être proche de celui de verre (≈ 1.5) pour éviter les phénomènes de réflexion à l'interface entre le scintillateur et le milieu extérieur et ainsi permettre une bonne récupération des photons au niveau du photomultiplicateur.

On retrouve deux familles de scintillateurs : les scintillateurs organiques et minéraux.

Les scintillateurs organiques (cristal, liquide plastique, gaz) sont composés principalement d'hydrogène, de carbone et d'oxygène. Leur fluorescence est d'origine moléculaire. Ces scintillateurs possèdent une réponse

rapide mais leur faible Z les rend peu adaptés à la spectrométrie gamma. Ils sont en revanche très utilisés pour la détection des rayonnements bêta et des neutrons rapides (haute teneur en hydrogène).

Les scintillateurs minéraux (cristal, verre, gaz) présentent une fluorescence d'origine cristalline. Ces scintillateurs possèdent une réponse moins rapide que leurs homologues organiques mais leurs densités et leurs Z élevés les rendent particulièrement adaptés à la spectrométrie gamma. C'est ce type de scintillateurs qui compose le système HELINUC. Son principe de fonctionnement est détaillé dans la section suivante.

a. Les scintillateurs minéraux

La structure cristalline des scintillateurs minéraux entraîne la distribution des niveaux d'énergies des états électroniques en bandes permises et interdites. Lorsque le cristal est au repos, la dernière bande d'énergie permise est la bande de valence. La propriété isolante des scintillateurs leur confère une bande interdite de l'ordre de quelques eV (6 eV pour la NaI pur). L'apport d'énergie d'une particule aux électrons de cette bande de valence leur permet d'atteindre la bande de conduction, normalement vide. Ces électrons laissent alors des trous dans la bande de valence qui peuvent se déplacer. La désexcitation d'un cristal NaI pur entraîne alors l'émission d'un photon de 6 eV correspondant à une longueur d'onde de 207 nm se situant en dehors du spectre visible (entre 400 et 700 nm). L'ajout d'impuretés dans le cristal crée de nouveaux sites dans la bande interdite donnant la possibilité aux électrons de se désexciter en passant par ces états. La création de ces sites réduit la bande interdite et permet l'émission de photons dans le domaine du visible lors de la désexcitation du cristal. Ainsi les cristaux NaI dopés au Thallium émettent des photons dont la longueur d'onde moyenne se trouve dans le visible (415 nm). Cette longueur d'onde dans le visible permet un couplage efficace avec un photomultiplicateur. Le temps de réalisation d'une telle scintillation est de l'ordre de la centaine de nanosecondes. Le schéma de ce mécanisme de scintillation est présenté à la Figure I-10.

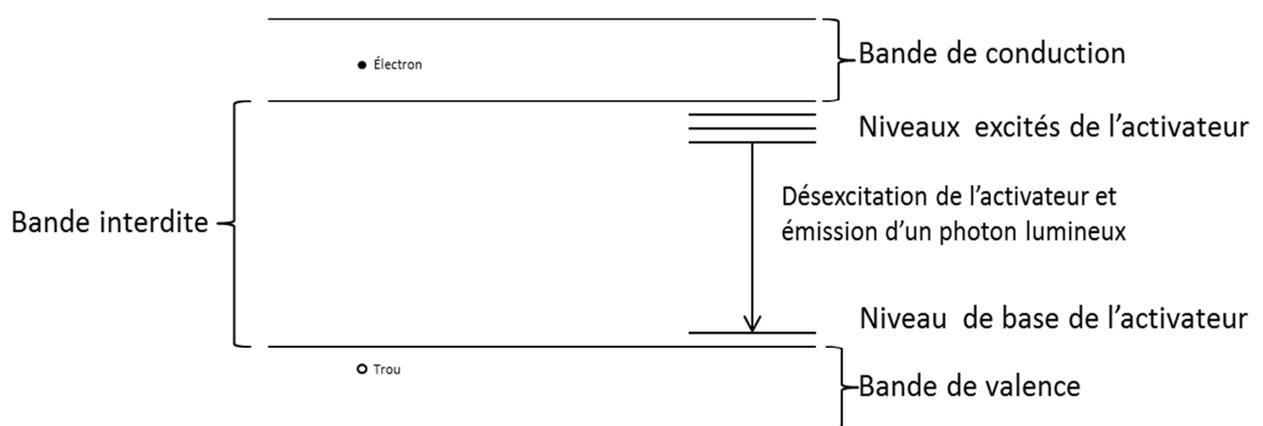


Figure I-10. Mécanisme de scintillation dans les cristaux inorganiques.

D'autres processus sont en compétition avec cette désexcitation. Il peut arriver que l'état énergétique du niveau excité n'admette pas de transition vers l'état fondamental. De tels états énergétiques nécessitent une énergie supplémentaire leur permettant de passer à un état pour lequel une désexcitation vers le niveau fondamental est possible. Ce phénomène entraîne souvent un bruit de fond significatif dans les scintillateurs.

Un autre processus est la transition entre niveaux énergétiques sans émission de rayonnement. Ce phénomène appelé « quenching » entraîne une perte de conversion de l'énergie de la particule incidente en photons de scintillation.

b. Caractéristiques du cristal NaI(Tl)

En 1948, Robert Hofstadter (Hofstadter, 1948) démontra qu'un cristal d'iodure de sodium dopé au Thallium (NaI(Tl)) produisait beaucoup plus de photons de scintillation que les scintillateurs organiques utilisés jusque-là. Cette découverte annonça une nouvelle ère de la spectrométrie gamma. En effet ce cristal est toujours celui dominant le marché des scintillateurs à l'heure actuelle. Bien que d'autres scintillateurs minéraux permettent d'obtenir une meilleure résolution en énergie et un temps de réponse plus rapide comme le cristal LaBr3(Ce), la capacité de production de cristaux de NaI(Tl) de grands volumes à faibles coûts en fait l'un des cristaux scintillateurs les plus répandus. Les cristaux de NaI(Tl) étant hygroscopique, ils doivent en permanence être maintenus dans des containers hermétiques, à l'abri de l'humidité ce qui entraîne des précautions de stockage et de manipulation de ces derniers.

Le cristal de NaI(Tl) produit environ 38 000 photons lumineux de 3 eV par MeV d'énergie déposée. Un tel cristal a un rendement de scintillation de 11,3 %. C'est ce rendement de scintillation qui définira la résolution en énergie pouvant être atteinte par le cristal. Sa réponse aux électrons et aux rayonnements gamma peut être considérée linéaire sur une plage énergétique comprise entre 10 keV et 2 MeV. C'est un cristal ayant une bonne sensibilité de détection des gamma, grâce à son numéro atomique élevé. L'émission des photons de scintillation dus à la décroissance des états excités se fait durant une période de temps évoluant suivant une loi exponentielle :

$$N(t) = N_0 e^{-t/\tau} \quad (I-21)$$

Avec :

- $N(t)$ le nombre de photons émis à l'instant t ;
- τ la constante de décroissance (230 ns pour le NaI(Tl)).

Les propriétés du cristal NaI(Tl) sont résumées dans le Tableau I-1.

Densité	3,67
Longueur d'onde maximale d'émission (nm)	415
Indice de réfraction	1,85
Constante de décroissance (ns)	230
Flux lumineux (photons/MeV absorbé)	38 000
Efficacité de scintillation absolue (%)	11,3
Evolution du rendement avec la température	-0,1 à -0,15 % par °C

Tableau I-1. Principales caractéristiques du cristal NaI(Tl) (données Saint-Gobain).

c. Collecte des photons et transformation en signal électrique

Lorsqu'un rayonnement traverse le cristal, on cherche à collecter au moyen de tubes photomultiplicateurs le maximum de l'intensité lumineuse de scintillation émise de façon isotrope. Deux phénomènes réduisent le rendement :

- l'autoabsorption du rayonnement de scintillation par le cristal ;
- les conditions de réflexion à l'interface entre le cristal et le conteneur.

L'autoabsorption du rayonnement de scintillation par le cristal peut s'avérer non négligeable pour des volumes importants, typiques en spectrométrie aérienne.

Les conditions de réflexion à l'interface entre le cristal et le conteneur conditionnent le rendement de collection. Le rayonnement de scintillation est émis de façon isotrope dans le cristal ; aussi seule une fraction parvient à la photocathode des tubes photomultiplicateurs sans subir de réflexions sur les parois du cristal. Le reste des photons peut néanmoins être collecté après une ou plusieurs réflexions. On définit θ_c comme l'angle critique pour lequel tout photon parvenant à la surface du scintillateur avec un angle supérieur par rapport à la normale sera réfléchi :

$$\sin(\theta_c) = \frac{n_1}{n_0} \quad (I-22)$$

Pour réfléchir le maximum de lumière, le détecteur doit être entouré d'un milieu d'indice n_1 très inférieur à celui du scintillateur n_0 . On utilise pour cela des réflecteurs tels que des surfaces métalliques polies ou des réflecteurs diffus tels que l'oxyde de magnésium ou l'oxyde d'aluminium.

Le taux de collection des photons lumineux sera d'autant plus faible que le processus de scintillation aura lieu loin de la photocathode.

Les photons sont ensuite convertis en un signal électrique suffisamment élevé pour être exploité par une électronique associée. C'est le rôle du photomultiplicateur. Ce dernier est constitué d'une couche photosensible appelée photocathode qui assure la conversion des photons en électrons. Ces électrons sont émis suite à l'interaction par effet photoélectrique des photons lumineux sur la photocathode et sont appelés photoélectrons. Le rendement de conversion des photons en photoélectrons varie de 10 à 30% selon l'épaisseur et le matériau qui constitue la photocathode. Un multiplicateur d'électron constitué d'un étage de focalisation, d'une série de dynodes et d'une anode permet l'amplification du signal électrique à un niveau exploitable par une chaîne électronique.

L'étape de focalisation permet d'assurer que plus de 80% des photoélectrons générés par la photocathode atteignent la 1^{ère} dynode. Chaque photoélectron interagissant avec la dynode génère un certain nombre d'électrons secondaires. Ce coefficient de multiplication δ varie de 3 à 6 pour chaque dynode. Ce processus de multiplication est répété par l'utilisation de N dynodes portées à des tensions croissantes. Le facteur de multiplication global est ainsi de δ^N . Le signal électrique amplifié est alors récupéré par l'anode et sera transmis à l'électronique d'acquisition. Le schéma de fonctionnement d'un photomultiplicateur est présenté à la Figure I-11.

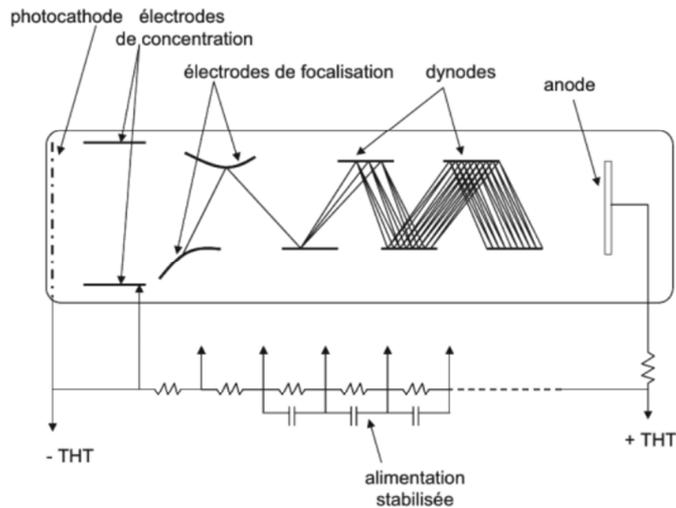


Figure I-11. Schéma de fonctionnement d'un photomultiplicateur (Lyoussi, 2010).

d. Electronique d'acquisition

L'électronique d'acquisition, sous sa forme la plus simple, est composée d'un préamplificateur, d'un amplificateur, d'un analyseur multicanaux et d'un PC permettant d'analyser les données spectrométriques. Le schéma de l'ensemble de la chaîne d'acquisition est présenté à la Figure I-12.



Figure I-12. Schéma de la chaîne d'acquisition en spectrométrie gamma.

Le préamplificateur

Le préamplificateur collecte les charges créées à l'anode du photomultiplicateur. Le principal but du préamplificateur est d'assurer un couplage optimal entre le détecteur et la partie relative à la mise en forme du signal. Le préamplificateur doit également minimiser les sources de bruit pouvant dégrader la résolution en énergie du système, lors de la transmission du signal à l'amplificateur. Cette minimisation est particulièrement importante pour les détecteurs possédant une très bonne résolution en énergie ce qui n'est pas le cas des détecteurs NaI(Tl). Dans le cadre de l'utilisation d'un détecteur NaI(Tl), le rôle du préamplificateur est de permettre un couplage optimal entre le détecteur et le reste de l'électronique d'acquisition (notamment à travers une adaptation d'impédance).

L'amplificateur

Le premier rôle de l'amplificateur est, comme son nom l'indique, d'amplifier le signal. Cette amplification comprise entre 1 et 10 V est nécessaire pour rendre le signal robuste aux éventuels bruits provenant du reste de la chaîne d'acquisition. L'amplificateur réalise également une mise en forme du signal. Cette mise en forme doit permettre d'obtenir un bon rapport signal/bruit par un filtrage des fluctuations et de limiter les recouvrements de signaux arrivant en des temps rapprochés. La partie filtre composée de trois étages est représentée à la Figure I-13.

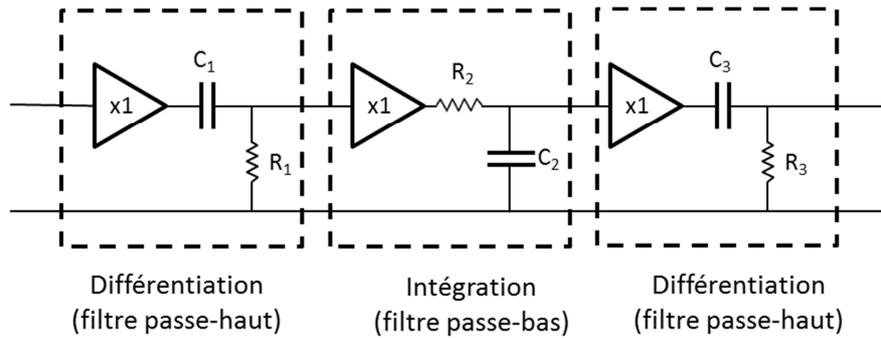


Figure I-13. Filtre à base de réseau CR-RC-CR.

Le premier filtre sert à mettre en forme d'un point de vue temporel le signal. Le signal en entrée du premier filtre passe-haut possède un court temps de montée suivi d'un temps de descente relativement long. La différenciation diminue ce temps de descente tout en conservant le front de montée.

Le filtre passe-bas suivant permet de supprimer les fluctuations provenant du bruit électronique en bloquant les hautes fréquences.

Enfin la troisième partie du réseau CR-RC-CR est utilisée afin d'obtenir un signal bipolaire permettant de revenir plus rapidement à la ligne de base. Ce retour rapide à la ligne de base est surtout intéressant à fort taux de comptage, pour éviter les phénomènes d'empilement.

Les constantes de temps de différenciation ou d'intégration sont représentées par le produit :

$$\tau_i = R_i \times C_i \quad (I-23)$$

Généralement, des constantes de temps égales entre les différents étages sont choisies. Le choix de la constante de temps reposera donc sur un compromis entre un retour rapide du signal à la ligne de base et une conservation de l'information sur l'amplitude du signal.

L'amplificateur est un élément important de la chaîne d'acquisition qui permet de garantir une bonne résolution en énergie du système de détection.

L'analyseur multicanaux

Un analyseur multicanaux (Multi Channel Analyser, MCA en anglais) est utilisé afin de classer les signaux, en fonction de leur amplitude, dans des canaux. Pour cela, le signal en sortie de l'amplificateur est converti en signal numérique grâce à un CAN (Convertisseur Analogique Numérique). Les principales caractéristiques de ce type de codeur sont sa pente de conversion, qui représente le nombre de canaux par volts, ainsi que sa linéarité intégrale et différentielle. La linéarité intégrale représente la linéarité entre l'amplitude du signal et le numéro du canal. La linéarité différentielle représente la variation de la largeur des canaux. Ce signal numérique est ensuite placé dans une mémoire. À chaque arrivée d'un signal dans le canal N, le contenu de ce canal est incrémenté d'une unité. On obtient alors un histogramme représentant le nombre de coups dans chaque canal.

Le choix du nombre de canaux à utiliser dépend essentiellement de la résolution nécessaire et du nombre de coups attendus. Un codage sur un nombre de canaux trop faible entrainera une perte de résolution en énergie tandis qu'un nombre de canaux trop important entrainera des fluctuations de comptage. Ce nombre de canaux est

donc à dimensionner en fonction des conditions expérimentales (type de détecteurs, nombre de coups attendus,...).

La résolution en énergie (I.4.b) de l'ensemble de la chaîne d'acquisition sera ainsi due :

- Aux fluctuations statistiques du nombre de photons lumineux créés dans le cristal ;
- Aux fluctuations statistiques du nombre de charges à la sortie du photomultiplicateur ;
- À la qualité de la mise en forme du signal par l'électronique d'acquisition.

e. Aparté sur les semi-conducteurs

Certains matériaux, appelés semi-conducteurs, sont également utilisés pour la détection des photons. Ils présentent des bandes de valence, de conduction et une bande interdite. Dans ces matériaux, la largeur en énergie de la bande interdite (E_{gap}) est suffisamment faible pour qu'un électron de la bande de valence puisse passer dans la bande de conduction via un faible apport d'énergie (E_{gap} des détecteurs HPGe de 0.67 eV à température ambiante). Pour être utilisés en spectrométrie gamma, ces détecteurs nécessitent d'être refroidis à l'azote liquide (77 K), afin de réduire le courant de fuite dû à l'agitation thermique. Le principal avantage de ce type de détecteur sur les scintillateurs est leur excellente résolution en énergie obtenue grâce à un nombre de charges récupérées très important lors du dépôt d'énergie d'un photon, rendant ainsi faibles les fluctuations statistiques sur ce nombre de charges.

6 Analyse spectrale

a. Analyse théorique

Un spectre en énergie présente plusieurs caractéristiques qui dépendent de la matrice dans laquelle est contenue la source, du schéma de désintégration d'un radionucléide et des caractéristiques du détecteur (notamment ses dimensions). La représentation spectrale se fera sous la forme d'un spectre différentiel (I.4.a). Les différents phénomènes à l'origine des signatures pouvant être présentes sur un spectre gamma sont explicités ci-dessous.

La détection du photoélectron, créé lors de l'interaction par effet photoélectrique du photon avec un électron du cortège électronique (I.2.a), donne lieu au pic de pleine d'absorption dont l'énergie est égale à l'énergie totale du photon initial (l'énergie de liaison de l'électron avec le noyau étant négligeable).

La diffusion Compton des photons avec les électrons du cortège électronique (I.2.b) donne lieu à un continuum terminé par un front Compton. Ce front Compton correspond à l'énergie maximale cédée à un électron lors de cette diffusion. Pour les détecteurs de taille importante, le photon diffusé peut subir plusieurs diffusions Compton entraînant alors l'apparition d'évènements aux énergies comprises entre celle du front Compton et celle du pic de pleine absorption. Ce phénomène est appelé la diffusion Compton multiple.

La matérialisation du photon sous la forme d'un positron et d'un électron est possible si le photon initial a une énergie supérieure au seuil de 1022 keV (I.2.c). La différence entre l'énergie du photon incident et cette énergie seuil est transférée sous la forme d'énergie cinétique à la paire positron électron qui va perdre son énergie dans le détecteur. Lorsque le positron a perdu pratiquement toute son énergie cinétique, celui-ci va s'annihiler avec un électron du milieu et donne lieu à l'émission de deux photons de 511 keV. Si l'un de ces photons interagit avec

le détecteur, alors on observe l'apparition d'un pic nommé pic de simple échappement dont l'énergie est égale à l'énergie du gamma initial moins 511 keV. Si aucun des deux photons n'interagit avec le détecteur, on observe un pic appelé pic de double échappement dont l'énergie est égale à l'énergie du gamma initial moins 1022 keV. Ces différents effets sont schématisés à la Figure I-14.

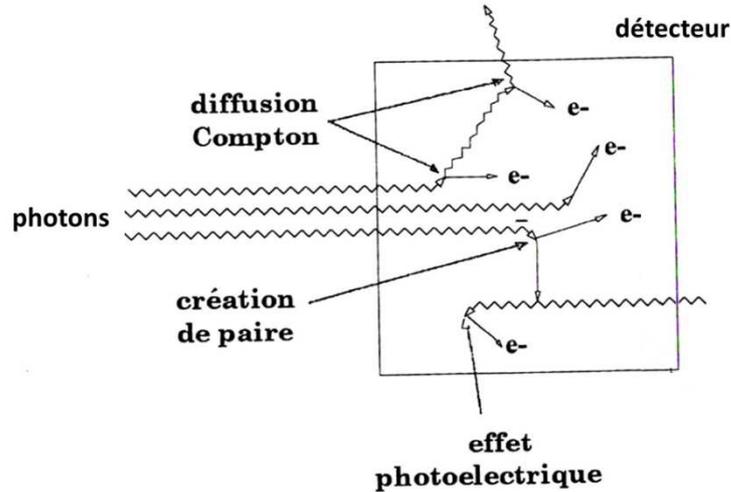


Figure I-14. Schéma des interactions de photons dans le détecteur.

Les effets observés à basse énergie seront davantage dus à l'environnement du détecteur et de la source.

L'interaction par effet photoélectrique des gamma émis par la source avec les matériaux constituant l'environnement proche du détecteur entraîne la génération d'un rayonnement X. Si le numéro atomique de ce matériau est élevé, alors le rayonnement X généré peut être suffisamment énergétique pour atteindre le détecteur. On observera alors la présence d'une raie X à basse énergie. La diffusion Compton des gamma avec les matériaux environnants peut entraîner un pic de rétrodiffusion (I.2.b) dont l'énergie maximale est de 250 keV. La création de paires dans ces matériaux environnants, entraînant l'émission d'un rayonnement d'annihilation, peut donner lieu à un pic d'annihilation à 511 keV.

Afin de mieux appréhender les formes spectrales pouvant être présentes sur un spectre en énergie, un spectre théorique regroupant les signatures des différents processus d'interaction précédemment décrits est présenté à la Figure I-15.

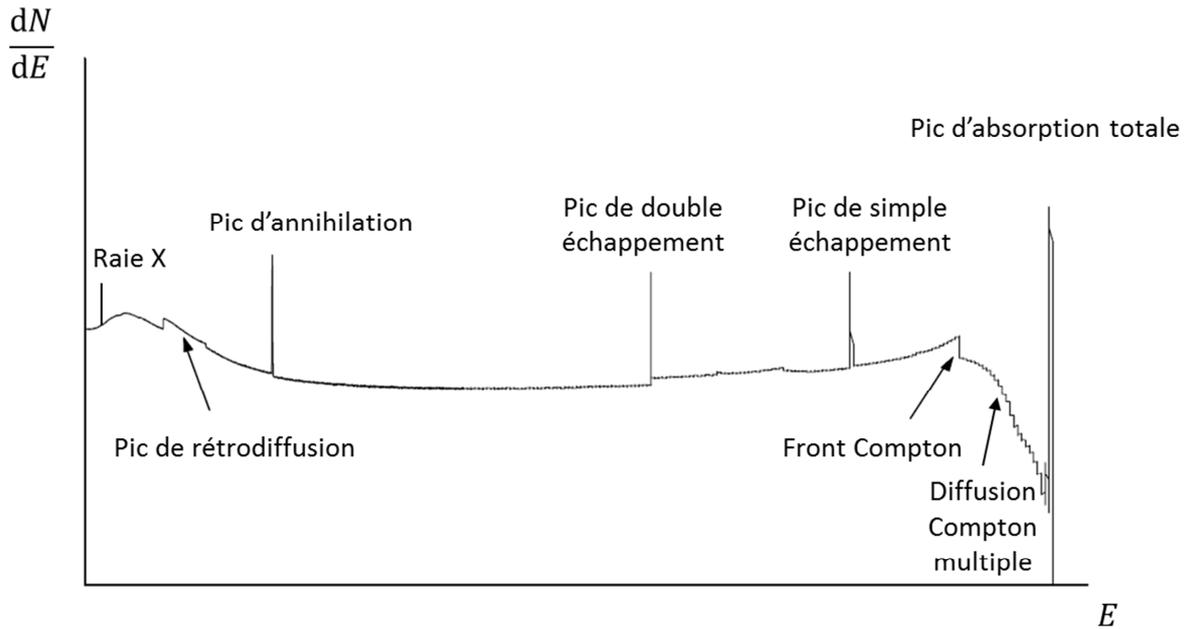


Figure I-15. Spectre théorique différentiel illustrant les signatures des différents processus d'interaction des gamma avec le détecteur et son environnement.

Il faut également noter que la détection en coïncidence de plusieurs photons peut avoir lieu, entraînant l'apparition d'un nouveau pic, appelé « pic somme », dont l'énergie est la somme des énergies des photons détectés. La principale raison de ce phénomène provient de l'émission de photons d'un même noyau en cascade et en un temps inférieur au temps de résolution du détecteur. L'empilement de signaux, quant à lui, se produit lorsque le traitement d'un signal commence alors que le traitement du signal précédent n'est pas terminé. Les deux signaux sont alors considérés comme un seul signal dont l'amplitude est différente des signaux initiaux. Des moyens de correction de cet effet existent mais ne sont pas détaillés dans cette thèse compte tenu de sa faible occurrence dans les conditions opératoires de la spectrométrie gamma aéroportée.

b. Mesures au sol

Analyse qualitative

Un spectre regroupe différentes informations d'un échantillon ou d'un site : la présence de pics d'absorption totale renseigne sur l'état radiologique, le fond de diffusion provient des conditions expérimentales et de la matrice de la source. C'est le traitement et l'analyse de ce spectre qui permettent d'en faire ressortir les informations importantes. Suivant les cas, il est possible de déterminer le comptage total du spectre (somme de l'ensemble des coups d'un spectre), la dose, et ce qui nous intéresse plus particulièrement dans cette thèse, la détection, l'identification et la quantification d'un radionucléide. La Figure I-16 présente un spectre typique annoté de ^{137}Cs , obtenu en conditions de laboratoire.

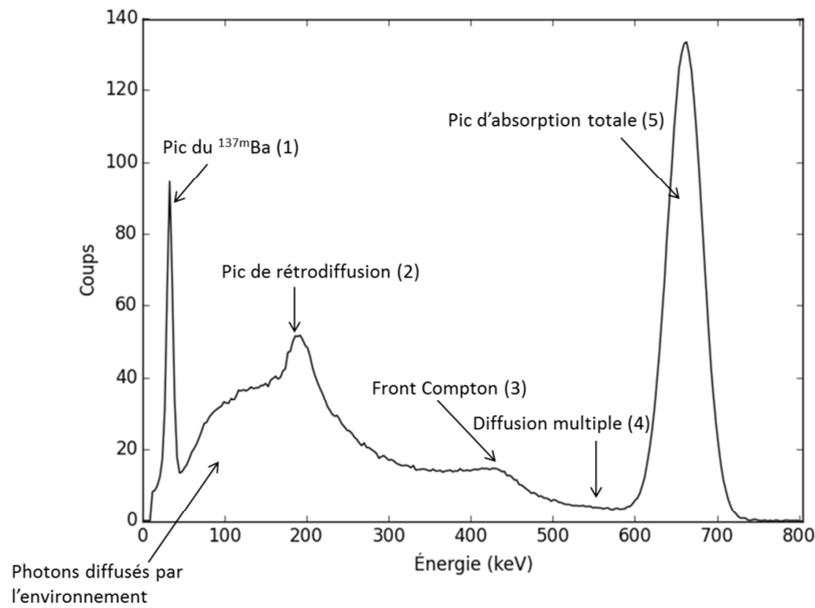


Figure I-16. Spectre de ^{137}Cs enregistré durant 300 secondes à partir d'un détecteur NaI(Tl) de 16 litres. La source est centrée sur le détecteur et la distance source détecteur est de 1 m.

Les différents phénomènes physiques à l'origine des formes spectrales présentes sur ce spectre sont :

1. Pic de l'émission X de la couche K du $^{137\text{m}}\text{Ba}$ ($E_{\text{moy}} = 33 \text{ keV}$ à 7%).
2. Pic de rétrodiffusion dû à l'environnement. L'énergie du pic de rétrodiffusion est donnée par la formule
$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_0 c^2} (1 - \cos\theta)}$$
 (I.2.b). Pour une énergie du photon initiale de 662 keV, un angle de diffusion θ égal à π ($\cos\theta = -1$) et $m_0 c^2 = 511 \text{ keV}$, l'énergie du photon diffusé est de $E'_\gamma = 184 \text{ keV}$.
3. Front Compton. L'énergie maximale transférée à un électron dans le cristal pour $\cos\theta = -1$ équivaut à $662 - 184 = 478 \text{ keV}$.
4. Diffusion multiple. Un photon de moyenne ou haute énergie peut subir plusieurs diffusions Compton dans le cristal puis s'échapper de celui-ci. Cet effet crée un dépôt d'énergie située entre le front Compton et le pic d'absorption totale.
5. Pic d'absorption totale du $^{137\text{m}}\text{Ba}$ (issu de la désintégration du ^{137}Cs).

Il est intéressant de noter que le rapport entre l'aire du pic d'absorption totale et le fond de diffusion diminue lorsque l'énergie des photons incidents augmente. En effet, plus l'énergie du photon incident est élevée, plus la probabilité d'interaction par effet Compton augmente (I.2.b).

c. Mesures par voie aéroportée

Les spectres gamma enregistrés par voie aéroportée représentent une somme de contributions spectrales caractéristiques des radionucléides présents sur ou dans le sol. Ces différentes contributions engendrent des spectres complexes. Les photons peuvent être diffusés par le sol, l'atmosphère et les équipements entourant le détecteur (hélicoptère,...). L'altitude de détection, généralement comprise entre 20 et 100 mètres, entraîne une diminution importante des pics d'absorption au profit du fond de diffusion. L'ensemble de ces effets génère un

fond de diffusion dont l'intensité peut être supérieure à celle du pic d'absorption, ce qui rend l'analyse avec les méthodes standards de la spectrométrie gamma en laboratoire particulièrement complexe.

Le faible taux de comptage, lié à un temps d'acquisition nécessairement court (généralement 1 seconde) pour obtenir une bonne résolution spatiale, entraîne des fluctuations importantes d'un canal à l'autre. Sur de tels temps de comptage, l'amplitude de ces fluctuations est très souvent supérieure à celle des pics d'absorption. La résolution en énergie moyenne des détecteurs utilisés (de l'ordre de 7% à 662 keV) contribue à réduire le rapport pic sur fond diffusé dans chaque canal et rend d'autant plus difficile la localisation et le calcul de l'aire des pics. Les mesures usuellement effectuées sont généralement représentatives des trois familles naturelles (^{40}K , $^{238}\text{U} + ^{235}\text{U}$ et ^{232}Th) et de leurs descendants, auxquels s'ajoute la présence éventuelle de radioéléments artificiels (^{137}Cs , ^{134}Cs , ^{131}I , ^{60}Co , ^{241}Am , ...).

Le système HELINUC, présenté en détail au chapitre II, peut accueillir des détecteurs GeHP (Gutierrez, 2002) présentant l'avantage d'avoir une très bonne résolution en énergie (1.5.e) au détriment de la sensibilité de détection bien plus faible que des détecteurs NaI(Tl). La Figure I-17 permet d'apprécier les différences entre un spectre NaI(Tl) et un spectre GeHP : le détecteur GeHP offre une résolution en énergie largement meilleure mais le spectre GeHP, pourtant enregistré sur une durée plus longue que le spectre NaI(Tl), présente moins de signal. Ces détecteurs GeHP sont par conséquent réservés à une utilisation en situation de crise lorsque la sensibilité de détection n'est plus un problème comme lors de fortes contaminations. Le traitement des spectres issus de détecteurs GeHP n'entre pas dans le cadre de cette thèse.

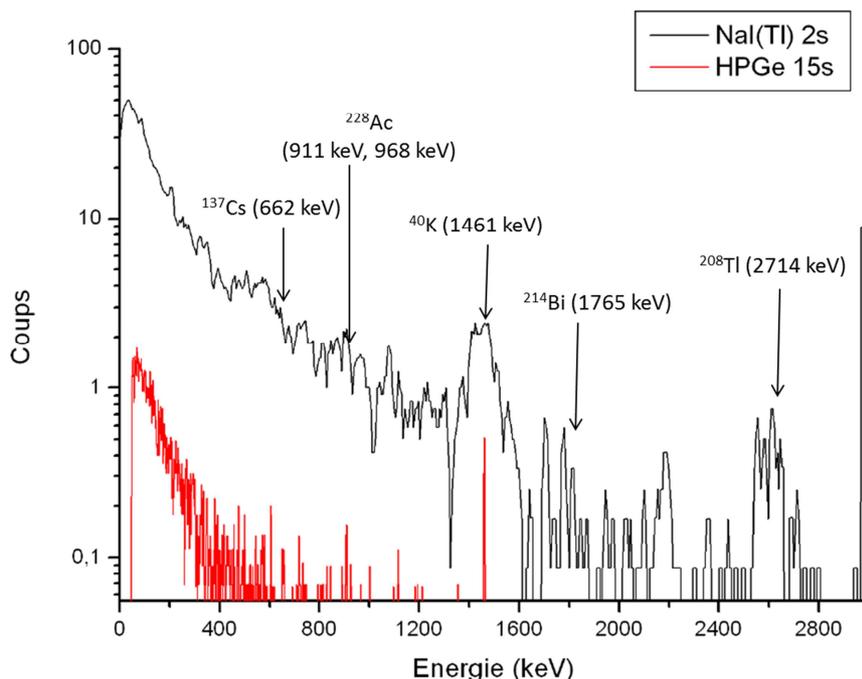


Figure I-17. Comparaison de spectres environnementaux obtenus avec des détecteurs NaI(Tl) et GeHP.

Il est possible d'utiliser des méthodes numériques pour étudier et comprendre les signatures spectrales à l'origine du spectre mesuré en vol. La méthode la plus souvent utilisée en spectrométrie gamma repose sur la simulation Monte Carlo des processus d'interaction des photons avec la matière (I.7).

d. Analyse quantitative des spectres

Différentes méthodes permettent l'analyse quantitative d'un spectre gamma. Un état de l'art des méthodes utilisées en spectrométrie gamma aéroportée permettant la détection et/ou la quantification est présenté au chapitre III. Une description de la méthode la plus usitée en spectrométrie gamma « classique » est présentée au paragraphe suivant et permet d'introduire les notions de seuil de décision et de limite de détection. Cette méthode repose sur l'estimation des activités à partir de l'aire des pics d'absorption totale et peut être séparée en deux parties : la recherche de pic et l'estimation de l'aire de celui-ci.

La recherche de pics d'absorption totale est effectuée à partir de l'étude des dérivées premières et/ou secondes. La recherche des pics d'absorption par l'utilisation des dérivées ne sera efficace que si le filtrage préliminaire permet de minimiser l'effet des fluctuations statistiques. Les pics détectés sont ensuite soumis à d'autres critères statistiques permettant de rejeter les fluctuations statistiques qui peuvent subsister après filtrage. Il est aussi possible de vérifier que les pics détectés peuvent être ajustés par une fonction gaussienne et que la largeur de la fonction gaussienne d'ajustement correspond à la résolution en énergie du détecteur. Si tel n'est pas le cas, cela peut traduire la présence d'un doublet provenant du chevauchement de deux ou plusieurs pics. Des méthodes itératives de séparation des pics doivent alors être mises en place. Cette méthode peut utiliser la probabilité de présence d'un pic (radionucléide courant), les autres raies caractéristiques d'un radionucléide ou encore les rapports d'embranchement des pics pouvant être présents.

Une fois les pics détectés, il est nécessaire d'estimer l'aire de ces derniers en prenant en compte le fond de diffusion dû aux radionucléides de plus haute énergie. Cette estimation peut se faire au travers de l'ajustement du fond de diffusion à partir de fonctions analytiques. Une autre méthode consiste à estimer le fond de diffusion au plus proche voisinage du pic et d'extrapoler ce fond sous le pic d'absorption. Une fois le comptage du fond de diffusion compris sous le pic estimé (C_{BDF}), le comptage net (C_N) est obtenu à partir du comptage total (C_T) :

$$C_N = C_T - C_{BDF} \quad (I-24)$$

L'activité A du radionucléide est calculée à partir de l'équation suivante :

$$A = \frac{C_N}{I \times t \times \varepsilon} \quad (I-25)$$

Avec :

- I , le rapport d'embranchement de la raie considérée ;
- ε , le rendement de détection ;
- t , la durée de la mesure.

Le bruit de fond compris sous le pic entraîne des difficultés dans l'estimation de l'activité. En effet, le signal provenant du radionucléide peut être noyé dans ce bruit de fond. Il est ainsi nécessaire de déterminer à partir de quelle activité il est possible d'affirmer, avec un degré de confiance suffisant, la présence d'une activité provenant d'un radionucléide spécifique.

La notion d'activité estimée rejoint celle d'activité minimale détectable et nécessite l'introduction des concepts de seuil de décision et de limite de détection.

e. Seuil de décision, limite de détection et activité minimale détectable

Affirmer qu'un échantillon contient ou ne contient pas d'activité d'un radionucléide donné entraîne l'introduction de deux types d'erreur :

- Erreur de première espèce : considérer que l'échantillon est contaminé par un radionucléide alors qu'il ne l'est pas (faux positif) ;
- Erreur de seconde espèce : considérer qu'un échantillon n'est pas contaminé par un radionucléide alors qu'il l'est (faux négatif).

La question est de savoir si ces résultats sont statistiquement significatifs et permettent d'affirmer ou d'infirmer la présence d'activité d'un radionucléide donné. Cette question est traitée en prenant en compte les variations statistiques de l'éventuelle activité présente et du bruit de fond. On utilise pour cela la distribution du comptage net déterminée à partir de l'équation (I-24). En considérant σ_{BDF} , l'écart type du comptage du bruit de fond, et σ_T , l'écart type du comptage total, on peut estimer l'écart type du comptage net σ_N (dans le cas gaussien) comme étant :

$$\sigma_N = \sqrt{(\sigma_T^2 + \sigma_{BDF}^2)} \quad (I-26)$$

Seuil de décision

Le seuil de décision est utilisé afin d'établir si le comptage net déterminé est représentatif d'une contamination de l'échantillon. La détermination du seuil de décision est réalisée en considérant l'absence de contamination dans l'échantillon. Si l'échantillon n'est pas contaminé alors le nombre de coups net est distribué suivant une gaussienne de moyenne égale à zéro avec un écart type $\sigma_0 = \sqrt{2}\sigma_{BDF}$ (car σ_T est égal à σ_{BDF}).

L'utilisation d'un coefficient de risque k_α permet de fixer le risque de déclarer un échantillon contaminé alors qu'il ne l'est pas. Le seuil de décision (SD) est alors défini comme étant :

$$SD = k_\alpha \sigma_0 = k_\alpha \sqrt{2} \sigma_{BDF} \quad (I-27)$$

Généralement, le risque d'erreur de première espèce α est fixé à 5%, ce qui donne $k_\alpha = 1.645$ (on ne considère que la partie positive de la distribution des coups). Le concept de seuil de décision est présenté à la Figure I-18.

σ_{BDF} est estimé à partir du fond continu sous le pic. Le pic d'absorption est modélisé par une gaussienne et un fond de diffusion :

$$S(x) = A \cdot \exp\left[-\frac{(x - \bar{x})^2}{2\sigma^2}\right] + B \quad (I-28)$$

Avec :

- A : l'amplitude de la gaussienne ;
- \bar{x} : la valeur moyenne de la gaussienne ;
- σ : l'écart type de la gaussienne ;
- B : la valeur moyenne du fond de diffusion.

Les surfaces du pic $P(a)$ et du fond de diffusion $F(a)$ sont prises dans un intervalle $[X-a : X+a]$ et sont exprimées par :

$$P(a) = \int_{x-a}^{x+a} A \cdot \exp\left[-\frac{(x - \bar{x})^2}{2\sigma^2}\right] dx \quad (I-29)$$

$$F(a) = 2aB \quad (I-30)$$

Le calcul de la surface minimale du pic peut se faire sur 5.92 sigma ce qui représente 99.7% de la surface de la gaussienne :

$$2a = 5.92\sigma \quad (I-31)$$

Or

$$FWHM = 2\sqrt{2\ln(2)}\sigma \quad (I-32)$$

Donc

$$a = 1.26 \cdot FWHM \quad (I-33)$$

En se plaçant dans le cas d'une distribution normale des coups, la surface nette du pic est :

$$P(a) = S(a) - F(a) \quad (I-34)$$

$$\sigma_{P(a)} = \sqrt{(\sigma_{S(a)}^2 + \sigma_{F(a)}^2)} \quad (I-35)$$

$$\sigma_{P(a)} = \sqrt{2F(a) + P(a)} \quad (I-36)$$

S'il n'y a pas de pic, on a $\sigma_{P(a)} = \sqrt{2F(a)} = \sqrt{2}\sigma_{BDF}$, P(a) suit alors une loi normale $(0, \sqrt{2F(a)})$.

En repartant de l'équation (I-27), il est possible d'écrire :

$$SD = 2.25 \cdot k_\alpha \cdot \sqrt{(FWHM \cdot B)} \quad (I-37)$$

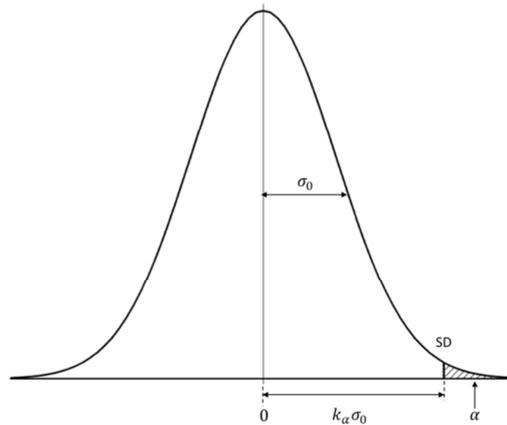


Figure I-18. Représentation de la construction du seuil de décision (SD).

Ainsi un nombre de coups nets supérieur au SD permettra d'affirmer que le comptage net est significatif et que l'échantillon présente une contamination, au risque α de se tromper. Un nombre de coups nets inférieur au SD ne permet pas d'affirmer de manière absolue que l'échantillon n'est pas contaminé mais uniquement que l'effet d'une contamination n'a pas été détecté. La présence d'une contamination peut en effet être masquée par les fluctuations statistiques du bruit de fond. Considérer que l'échantillon ne présente pas de contamination parce que l'effet n'est pas visible reviendrait à commettre une erreur de seconde espèce. La prise en compte de ce risque d'erreur génère le concept de limite de détection (LD).

Limite de détection

La limite de détection est utilisée afin de déterminer à partir de quel comptage le risque de faux négatif est « suffisamment » faible, le terme « suffisamment » étant caractérisé à partir du risque de seconde espèce β .

Dans le cas où l'activité présente dans l'échantillon vaut exactement SD, la détection ne serait certaine que dans 50 % des cas (distribution symétrique autour de SD). Pour obtenir une détection avec un risque de seconde espèce β de 5%, la prise en compte de la distribution σ_{LD} de l'activité lorsque celle-ci est égale à la LD est nécessaire et permet d'écrire la relation :

$$LD = SD + k_{\beta}\sigma_{LD} = k_{\alpha}\sigma_0 + k_{\beta}\sigma_{LD} \quad (I-38)$$

La représentation de la LD par rapport au SD est donnée à la Figure I-19.

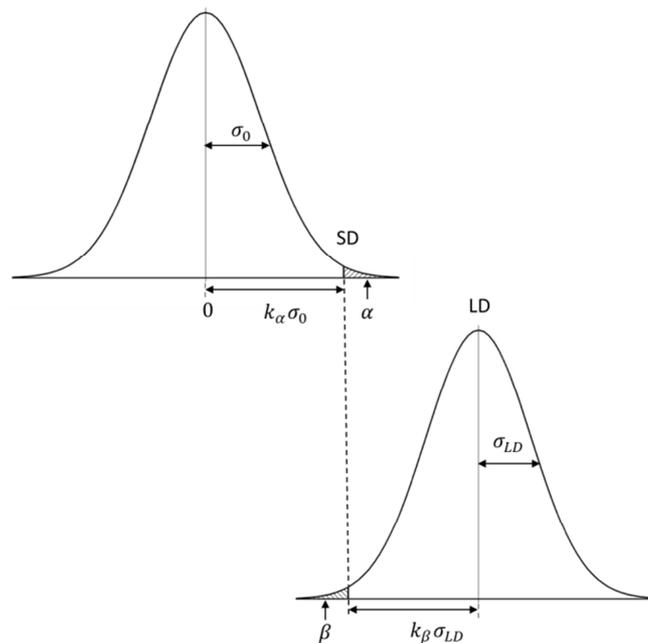


Figure I-19. Représentation de la LD par rapport à la SD.

Généralement, les risques α et β sont fixés à 5%, ce qui donne :

$$LD = k_{\alpha}(\sigma_0 + \sigma_{LD}) \quad (I-39)$$

Or

$$\sigma_{LD}^2 = \sigma_{LD}^2 + \sigma_{BDF}^2 \quad (I-40)$$

$$\sigma_{LD}^2 = (LD + BDF) + BDF \quad (I-41)$$

Ce qui permet d'écrire :

$$LD = k_{\alpha}(\sqrt{2 \cdot BDF} + \sqrt{LD + 2 \cdot BDF}) \quad (I-42)$$

En résolvant, on trouve :

$$LD = k_{\alpha}^2 + 2\sqrt{2 \cdot BDF} \cdot k_{\alpha} \quad (I-43)$$

Pour $k_{\alpha} = 1.645$:

$$LD = 2.71 + 4.65\sqrt{BDF} \quad (I-44)$$

La limite de détection, comme le seuil de décision, ne dépend que du bruit de fond radiologique et du coefficient de risque considéré.

L'activité minimale détectable correspond finalement à la conversion de la LD en activité à partir de l'équation (I-25). Le terme d'activité minimale détectable est confondu avec celui de limite de détection utilisé dans cette thèse.

7 Simulation Monte Carlo d'interaction rayonnements matière

Comme il a été vu dans la section I.2, les processus d'interaction des photons avec la matière sont en compétition les uns avec les autres. Le transport de ces derniers est trop complexe pour être obtenu par une méthode de résolution directe de l'équation de Boltzmann, décrivant le transport des rayonnements. La méthode Monte Carlo permet quant à elle de suivre l'évolution d'une particule, en l'occurrence un photon, de sa création jusqu'à sa disparition.

Les codes de simulation des interactions des rayonnements avec la matière les plus courants sont : FLUKA (Battistoni G., 2007), GEANT4 (Agostinelli, et al., 2003), MCNP (D. B Pelowitz, April 2011), PENELOPE (Salvat F., 2001) et PHITS (Koji Niita, 2010). Le code MCNP (Monte Carlo N-Particules) a été développé au Laboratoire national de Los Alamos. Ce code a été mis au point lors du projet Manhattan durant la Seconde Guerre mondiale. MCNP signifiait à l'origine « Monte Carlo Neutron Photon » puis sa signification a changé en « Monte Carlo N Particules » lorsque le transport des électrons y a été intégré (Mashnik S. G., 2012). Le code MCNP est l'un des codes de calcul d'interactions rayonnement-matière les plus utilisés de par le monde. Ce code a fait l'objet d'un développement continu depuis les années 70, soutenu par une politique d'assurance qualité. C'est ce code qui a été utilisé durant cette thèse.

Le principe des codes Monte Carlo est de réaliser un tirage de variables aléatoires des caractéristiques du photon : son libre parcours moyen, son processus d'interaction avec la matière, son énergie et sa direction après l'interaction.

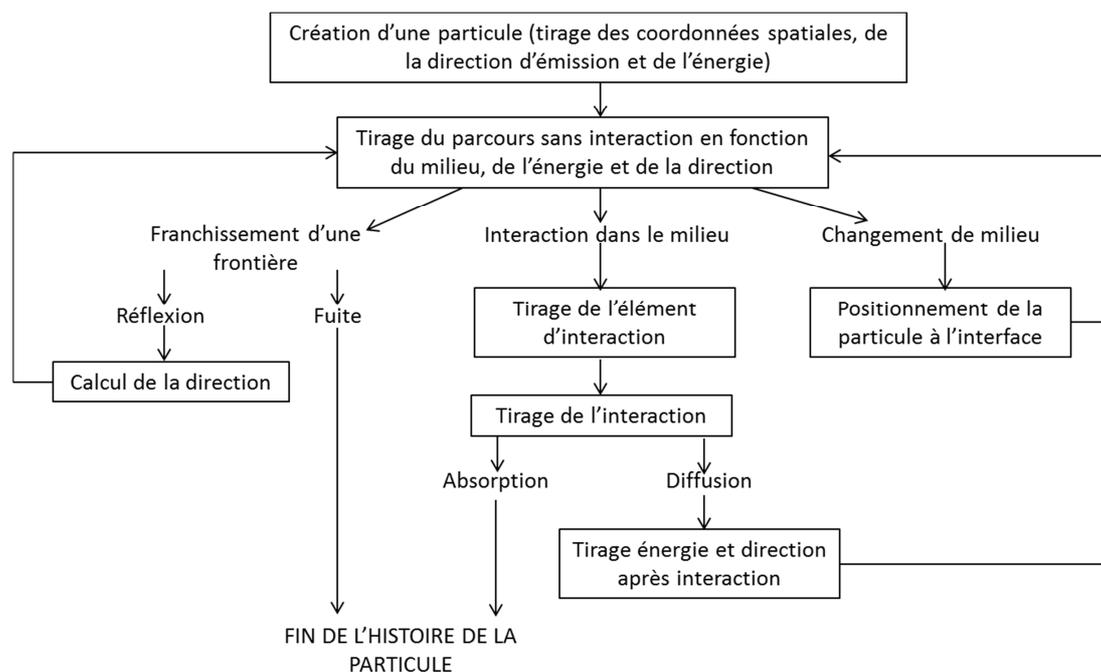


Figure I-20. Logigramme du principe de calcul de la méthode Monte Carlo appliquée au transport des particules.

Les différents tirages présentés à la Figure I-20 se font au travers de suites de nombres pseudo-aléatoires permettant d'effectuer les échantillonnages sur les différents paramètres physiques du transport d'une particule dans la matière.

La simulation par méthode Monte Carlo permet d'étudier des configurations parfois inaccessibles dans la réalité, de multiplier les expériences trop coûteuses et d'améliorer la compréhension des phénomènes. Cette méthode permet également d'établir des prédictions et d'aider à la conception de systèmes de détection. Les domaines d'application sont très vastes : la radioprotection, la dosimétrie, la criticité, l'instrumentation, les calculs de réacteurs, la recherche fondamentale, la mesure nucléaire.

Dans cette thèse, le code d'interaction rayonnement matière MCNPX (MCNP eXtended) version 2.7.0 a été utilisé pour le développement de nouvelles méthodes d'analyse spectrale et l'étude de leurs comportements.

Méthode Monte Carlo

La description générale de la méthode est présentée pour le cas d'un photon gamma d'énergie E subissant une interaction au point r .

La détermination du type de processus d'interaction (effet photoélectrique, diffusion Compton ou création de paire⁵) est réalisée à partir de l'échantillonnage de la distribution discrète des probabilités d'interaction. Ces probabilités sont obtenues à partir de leur section efficace d'interaction relative :

$$p_{\text{photoélectrique}} = \frac{\sigma_{\text{photoélectrique}}(r,E)}{\sigma_{\text{totale}}(r,E)} \quad p_{\text{Compton}} = \frac{\sigma_{\text{Compton}}(r,E)}{\sigma_{\text{totale}}(r,E)} \quad p_{\text{paire}} = \frac{\sigma_{\text{paire}}(r,E)}{\sigma_{\text{totale}}(r,E)}$$

Et

$$\sigma_{\text{totale}}(r,E) = \sigma_{\text{photoélectrique}}(r,E) + \sigma_{\text{Compton}}(r,E) + \sigma_{\text{paire}}(r,E) \quad (I-45)$$

Donc :

$$\sum_{i=1}^n p_i = 1 \quad (I-46)$$

La représentation de ces probabilités cumulées est donnée à la Figure I-21.

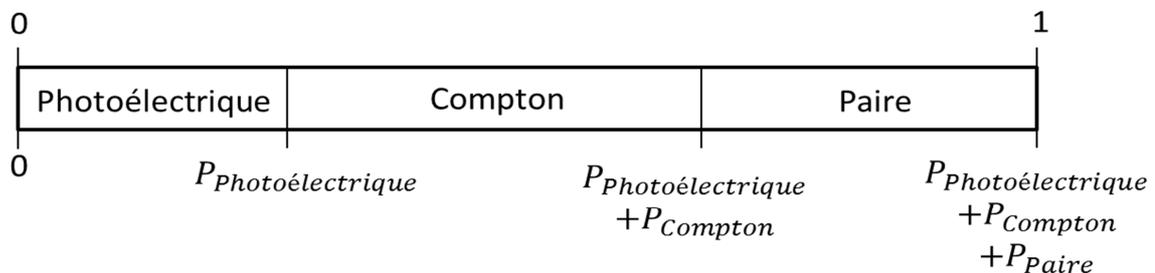


Figure I-21. Représentation de la distribution cumulée des probabilités d'interaction.

Le choix du processus d'interaction est réalisé en fonction de la valeur du nombre pseudo-aléatoire généré. Dans le cas d'une absorption du photon (interaction par effet photoélectrique ou création de paire), l'histoire de celui-

⁵ Pour simplifier la description de la méthode Monte Carlo, seuls les effets photoélectrique, diffusion Compton et création de paire sont considérés.

ci est terminée (Figure I-20). Si le photon est diffusé, un nouvel échantillonnage est réalisé pour déterminer la direction et l'énergie du photon diffusé.

L'utilisation d'expressions analytiques pour modéliser les distributions de probabilité de certains paramètres (énergie d'émission et direction de diffusion du photon) nécessitent de considérer une approche continue (ou multi-groupes) de l'échantillonnage. Le principe de la sélection de ces paramètres reste cependant le même en sélectionnant l'énergie ou la direction de diffusion en fonction du tirage de nombre pseudo-aléatoires.

Le lieu de l'interaction de ce photon diffusé est alors calculé à partir d'un nouvel échantillonnage prenant en compte la distribution de probabilité d'interaction du photon lors de son parcours.

La probabilité que le photon n'interagisse pas sur une distance d est donnée par :

$$P_{Non-interaction}(d) = \exp(-\mu \cdot d) \quad (I-47)$$

Avec $\mu = n \cdot \sigma_{totale}$

Où n représente le nombre d'atomes par unité de volume.

La probabilité que le photon interagisse sur une distance inférieure à d (probabilité cumulée de l'interaction à la distance d) est donc :

$$P_{Interaction}(d) = 1 - \exp(-\mu \cdot d) \quad (I-48)$$

Pour déterminer la distance d_i à laquelle est réalisée l'interaction, la probabilité d'interaction sur l'ensemble des distances est normalisée à 1 :

$$P(0) = 0 \text{ et } \lim_{d_i \rightarrow \infty} P(d_i) = 1 \quad (I-49)$$

Pour toute distance d_j , on peut associer une probabilité $P(d_j)$ appartenant à l'intervalle $[0,1]$, uniformément répartie sur cet intervalle. La distance à laquelle se produit l'interaction est calculée à partir de l'équation précédente et à partir du nombre pseudo-aléatoire ξ_i tiré dans l'intervalle $[0,1]$ et représentant $P(d_j)$:

$$d_i = \frac{1}{\mu} \ln (1 - P(d_i)) = \frac{1}{\mu} \ln (1 - \xi_i) \quad (I-50)$$

Les coordonnées du point d'interaction sont calculées en prenant en compte l'angle de diffusion du photon. Un test est réalisé pour savoir si le point d'intersection se situe dans la cellule où a eu lieu la diffusion. Si ce point se trouve à l'extérieur de cette cellule, les nouvelles coordonnées du point d'intersection seront celles du point d'intersection du photon avec la frontière de la nouvelle cellule.

L'utilisation d'un code Monte Carlo permet de suivre une particule lors de son transport dans la matière et d'étudier ses interactions et ses dépôts d'énergie dans celle-ci en prenant en compte les probabilités d'occurrence des différents effets physiques. Des géométries complexes peuvent être simulées, permettant de s'approcher de la réalité. Néanmoins, les résultats obtenus avec un code de simulation doivent être confrontés à la mesure expérimentale afin d'être validés.

Conclusion

Dans l'analyse de mesures en spectrométrie gamma aéroportée, les méthodes classiques de détermination d'activité présentées dans ce chapitre sont pénalisées par les fluctuations statistiques importantes conduisant à

des incertitudes de mesure pouvant aller jusqu'à 100 %. Cette thèse s'est par conséquent orientée vers l'analyse statistique multivariée des spectres que ce soit dans le but :

- de réduire les incertitudes lors de la détermination d'activité avec les méthodes classiques de la spectrométrie gamma aéroportée ;
- d'estimer l'activité avec le développement de nouvelles méthodes avancées ;
- de détecter d'éventuelles anomalies gamma avec le développement de méthodes utilisables en temps réel.

II. Système HELINUC : mesures et modélisations Monte Carlo

Depuis le début des années 80, le CEA développe et met en œuvre le système de cartographie gamma HÉLINUC™ au profit des exploitants nucléaires civils (GIE INTRA), du ministère de la défense et des autorités publiques nationales et internationales (AIEA,...). Plusieurs centaines de survol ont déjà été effectués en France (sites militaires et civils) ainsi qu'à l'étranger (notamment Ukraine et Géorgie).

Différents types d'opérations peuvent être effectuées à l'aide du système HELINUC, à savoir :

- La réalisation de blancs radiologiques de sites de la défense, de sites civils et de grandes agglomérations. Ces blancs radiologiques permettent de caractériser l'état radiologique d'un site à un instant T_0 ce qui permet d'avoir une référence en cas d'accident radiologique.
- La sécurisation de grands événements. HÉLINUC™ a par exemple été déployé pour le 70^{ème} anniversaire du débarquement en Normandie en 2014 ou lors de la venue de chefs d'Etat à Strasbourg pour le sommet de l'OTAN en 2009.
- L'intervention en situation d'urgence en cas d'incident/accident sur un site civil ou militaire.
- La recherche de sources ponctuelles (perte ou vol : recherche de sources dites orphelines) comme ce fût le cas en Géorgie en 2000.
- L'assistance internationale dans le cadre de la collaboration avec d'autres pays.

1 Caractéristiques du système HELINUC

Le système HELINUC™ est composé :

- D'un caisson de détection fixé sous l'hélicoptère contenant un détecteur NaI(Tl) et une radiosonde avec ses antennes,
- D'une baie d'acquisition installée dans la cabine,
- D'une antenne GPS dans la cabine,
- D'un écran d'aide à la navigation pour le pilote.

Le détecteur utilisé est un détecteur RSX (RSX4 ou RSX5) conçu par l'entreprise canadienne Radiation Solutions Inc. Un schéma de ce détecteur est présenté à la Figure II-1.

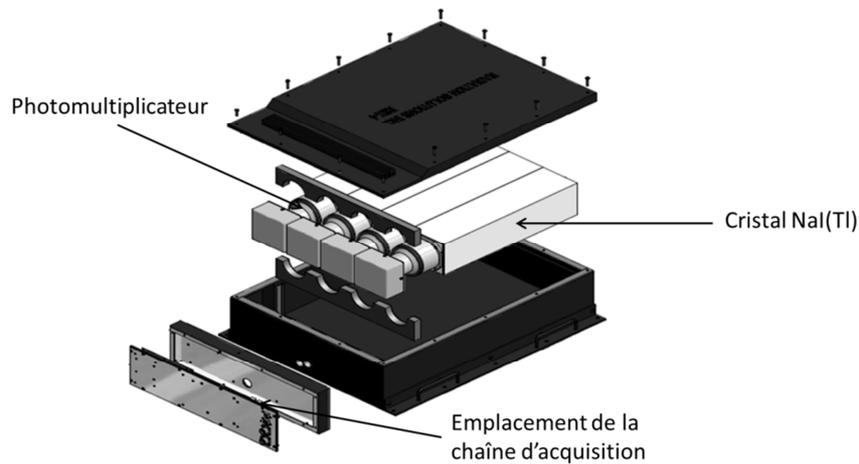


Figure II-1. Schéma d'un détecteur RSX 4.

Le détecteur est composé de quatre cristaux scintillateurs NaI(Tl) de forme parallélépipédique ($10,16 \times 10,16 \times 40,64$) cm^3 couplés à quatre photomultiplicateurs. Le volume de détection total de 16,7 litres procure un rendement de détection important, nécessaire aux mesures effectuées sur une durée d'une seconde. L'unité d'acquisition est intégrée au détecteur. Celle-ci diffère de l'unité d'acquisition « standard » (I.5.d) car elle traite un signal numérique. Un CAN (Convertisseur Analogique Numérique) permet la conversion du signal analogique, en sortie du préamplificateur, en signal numérique qui sera envoyé à un processeur de signal numérique (DSP en anglais pour Digital Signal Processing). Un DSP contient :

- une mémoire des programmes à utiliser pour traiter les données, en l'occurrence les amplitudes des tensions sous forme numérique ;
- une mémoire contenant les données à traiter ;
- l'unité informatique récupérant les données à traiter ainsi que les programmes à utiliser et réalisant les calculs ;
- les unités de connexion.

Le DSP est un processeur optimisé pour réaliser des calculs numériques très rapidement, ce qui est utile dans le cadre de l'arrivée d'un signal en temps réel. Il réalise le filtrage des fluctuations statistiques et la mise en forme du signal. L'avantage de réaliser le filtrage sur données numériques par rapport à un filtrage sur données analogiques (réseau de circuits RC (I.5.d)) est la répétabilité des résultats. En effet, le fonctionnement d'un programme informatique ne dépend pas des conditions environnementales (température par exemple) et n'évolue pas au cours du temps contrairement à des composants électroniques. La facilité de modification du filtre (modification informatique) représente également un atout dans l'utilisation d'un DSP. La rapidité de fonctionnement d'un DSP permet une mise en forme optimisée pour chaque signal de chaque détecteur avant leur sommation. Pour que le DSP soit efficace, le CAN situé en amont du DSP doit posséder une fréquence d'échantillonnage très rapide (fréquence d'échantillonnage de 60 MHz) et une résolution suffisante pour modéliser précisément la montée et la descente du signal. Les signaux sont ensuite mis sous la forme d'un spectre en énergie. Les caractéristiques du système d'acquisition permettent de traiter jusqu'à 250 000 coups par seconde et par cristal tout en conservant une stabilité de la résolution en énergie et de la fonction de conversion canal/keV obtenue lors de l'étalonnage en énergie.

L'alimentation du détecteur et la récupération des données spectrométriques, spatiales et temporelles sont réalisées par la baie de mesure. Cette baie intègre notamment le récepteur GPS et le convertisseur de données du radioaltimètre. Celle-ci renvoie ensuite les informations vers un PC d'acquisition. La baie de mesure avec ses différents branchements est présentée à la Figure II-2.

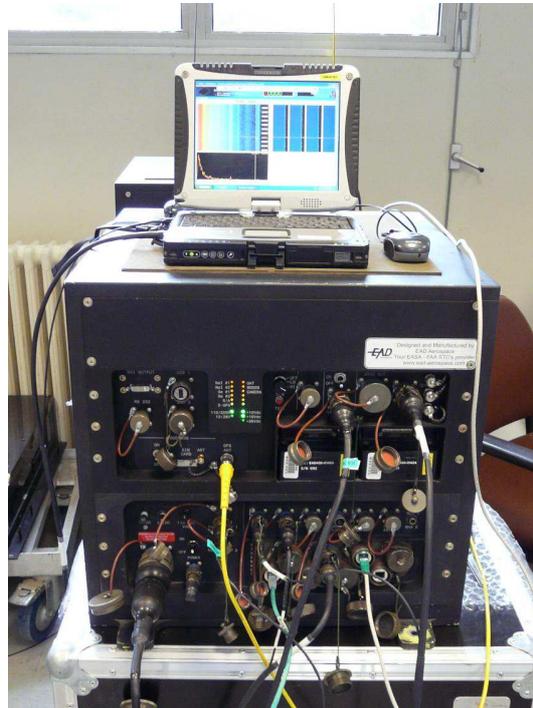


Figure II-2. Baie d'acquisition (en laboratoire).

Afin de permettre une analyse précise des spectres, il est nécessaire d'étudier la linéarité du détecteur ainsi que sa résolution en énergie. Ces deux paramètres sont présentés aux Figure II-5 et Figure II-7.

2 Protocole de mesures

Les paramètres de vol à suivre par le pilote sont définis par l'opérateur. Ainsi, avant le survol du site à cartographier, l'opérateur définit le plan de vol c'est à dire les lignes de vol représentant la trajectoire théorique que devra suivre le pilote (Figure II-3). L'écart entre deux lignes de vol, l'altitude et la vitesse seront définis en fonction de la limite de détection souhaitée, du temps de vol alloué à la mesure et de la topographie du site. Les données standards sont un déport de 80 m, une altitude de 40 m et une vitesse de 40 km/h.

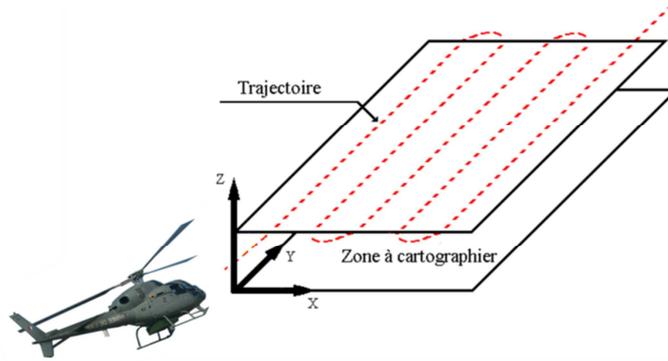


Figure II-3 : Schéma d'un plan de vol.

Différents types d'aéronefs civils ou militaires peuvent accueillir les détecteurs et la baie de mesure. Une illustration d'une partie des aéronefs ayant été utilisés lors de mesures aéroportées est présentée à la Figure II-4. L'opérateur, à l'intérieur de la cabine, suit l'évolution des mesures en temps réel. Le pilote s'appuie sur le plan de vol à partir d'un écran d'aide à la navigation.

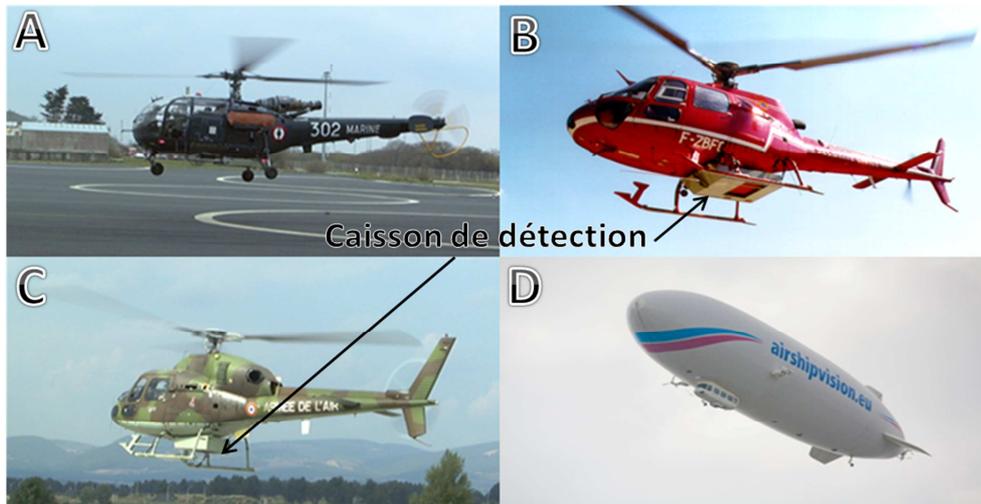


Figure II-4. Exemples d'appareils ayant déjà été utilisés lors de mesures aéroportées avec le système HELINUC (A - Eurocopter Alouette III, B - Eurocopter AS 350, C - Eurocopter AS 555, D - Zeppelin).

3 Fonction de réponse du système de détection

Afin d'analyser les spectres enregistrés lors des mesures, il est nécessaire de connaître les fonctions de réponse du détecteur. La linéarité en énergie du détecteur est présentée à la Figure II-5. Celle-ci a été déterminée à partir de l'analyse de la correspondance entre les canaux et l'énergie des pics d'absorption totale des émetteurs présentés au Tableau II-1. Ces mesures ont été réalisées en conditions de laboratoire pour une distance source détecteur d'un mètre.

Radionucléides	Canal	Énergie (MeV)
Américium 241 (^{241}Am)	10	5.90E-02
Césium 137 (^{137}Cs)	110	6.62E-01
Cobalt 60 (^{60}Co)	196	1.17E+00
	222	1.33E+00
Potassium 40 (^{40}K)	243	1.46E+00
Bismuth 214 (^{214}Bi)	293	1.76E+00
Thallium 208 (^{208}Tl)	436	2.62E+00

Tableau II-1. Radionucléides utilisés pour l'analyse de la linéarité en énergie.

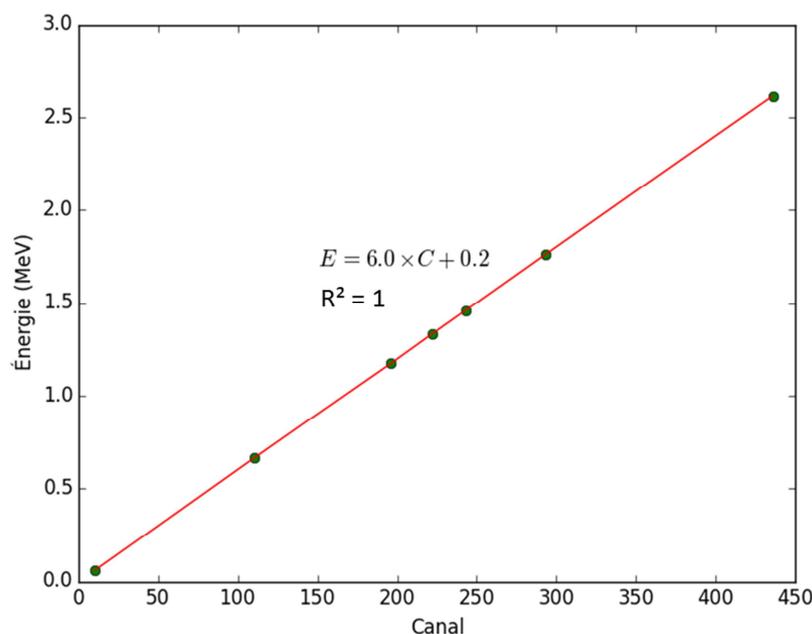


Figure II-5. Linéarité en énergie du détecteur.

Cette linéarité sera utilisée afin de déterminer les bornes des pics d'absorption des différents radionucléides. Elle servira également à étalonner le découpage énergétique de la réponse de la simulation du détecteur à la mesure.

La résolution en énergie quant à elle, est utilisée à la fois pour définir la largeur des fenêtres énergétiques lors de la recherche des pics d'absorption présents et pour le développement de nouvelles méthodes d'analyse.

La largeur du pic est d'autant plus faible que l'énergie du pic considéré est faible. À 60 keV, la largeur à mi-hauteur du pic est d'environ 11 keV. À 662 keV, cette largeur est de 48 keV. Il est important de noter qu'une erreur de 1 keV sur une largeur de 11 keV représente environ 10% d'erreur. Si cette largeur est estimée à 12 keV au lieu de 11 keV, le pic va être plus « étalé » et donc le nombre de coups au centroïde du pic diminuera. Afin de pouvoir déterminer précisément la largeur à mi-hauteur la plus représentative à basse énergie, il a été choisi de

travailler sur 1024 canaux. La modélisation Monte Carlo du détecteur impose de connaître la forme analytique de la fonction de réponse en énergie.

Pour une fonction gaussienne, l'écart type σ est relié à la largeur à mi-hauteur FWHM par l'équation :

$$FWHM = 2 \cdot \sqrt{2 \cdot \ln 2} \cdot \sigma \quad (II-1)$$

Finalement, la largeur à mi-hauteur est reliée à l'énergie à partir de l'équation non linéaire suivante :

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (II-2)$$

Avec :

- FWHM en MeV ;
- E est l'énergie en MeV ;
- a, b et c sont les paramètres de l'équation (respectivement en MeV, $\text{MeV}^{\frac{1}{2}}$ et MeV^{-1}).

Les largeurs à mi-hauteur considérées pour la détermination des paramètres a, b et c ont été obtenues à partir d'un ajustement des pics d'absorption par une gaussienne, après soustraction du fond de diffusion. Une illustration est présentée à la Figure II-6.

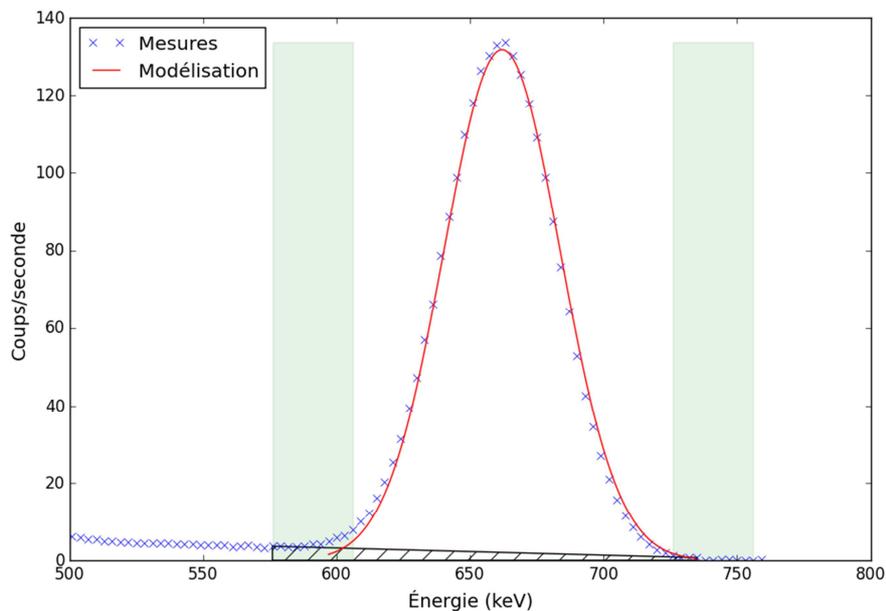


Figure II-6. Ajustement d'une fonction gaussienne sur le pic d'absorption du ^{137}Cs à 662 keV.

L'ajustement du pic d'absorption par une gaussienne permet de déterminer ses paramètres (centroïde, écart-type). Les zones représentées en vert clair sont utilisées afin d'estimer une incertitude sur la largeur à mi-hauteur. Cette incertitude est déterminée à partir du choix de différents points de départ et d'arrivée de la zone à ajuster dans les zones représentées en vert clair. Cette variation des points de départ et d'arrivée de la zone à ajuster traduit l'incertitude liée à la sélection de la région du pic utilisée pour l'ajustement.

Les largeurs à mi-hauteur déterminées sur l'ensemble de la gamme énergétique sont ensuite ajustées par la fonction définie par l'équation (II-2). L'ajustement est présenté à la Figure II-7. Cet ajustement, réalisé à partir d'une régression non-linéaire, permet d'obtenir les paramètres a, b et c. La régression non-linéaire est obtenue à partir de l'algorithme de Levenberg-Marquardt. L'enveloppe à ± 1 sigma est calculée à partir de la formule de propagation des incertitudes appliquée à l'équation reliant l'énergie à la FWHM (II-3).

$$u(FWHM) = \sqrt{\left(\frac{\partial(FWHM)}{\partial(a)}\right)^2 \times u^2(a) + \left(\frac{\partial(FWHM)}{\partial(b)}\right)^2 \times u^2(b) + \left(\frac{\partial(FWHM)}{\partial(c)}\right)^2 \times u^2(c)} \quad (II-3)$$

$$\frac{\partial(FWHM)}{\partial(a)} = 1$$

$$\frac{\partial(FWHM)}{\partial(b)} = \sqrt{E + cE^2}$$

$$\frac{\partial(FWHM)}{\partial(c)} = \frac{1}{2} b^2 E^2 \times (b^2 E + b^2 c E^2)^{-1/2}$$

Les incertitudes sur les paramètres a, b et c sont les écarts-types des paramètres qui ont été déterminés par la régression non linéaire.

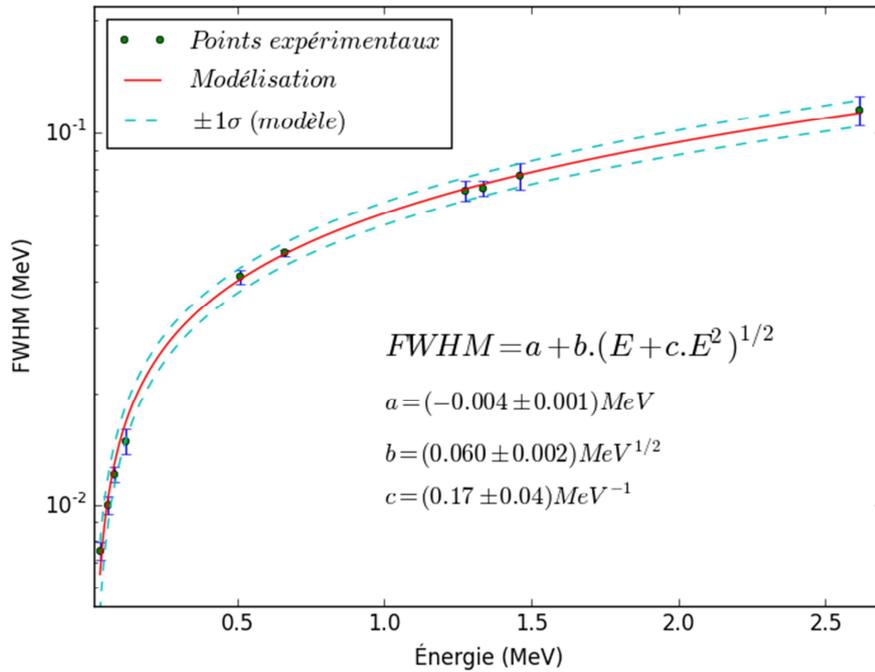


Figure II-7. Détermination des paramètres a, b et c à partir d'une régression non linéaire des largeurs à mi-hauteur mesurées (± 1 écart-type en pointillés cyans).

L'utilisation d'une fonction de la forme de celle présentée à l'équation (II-2) permet de modéliser de façon correcte l'évolution de la largeur à mi-hauteur avec l'énergie. Les coefficients déterminés à partir de cette régression seront utilisés afin de simuler la résolution en énergie du détecteur lors des simulations MCNPX du système HELINUC.

4 Modélisation Monte Carlo des interactions rayonnements matière

Le développement des méthodes durant cette thèse a été réalisé à partir de mesures sur sites et de simulations Monte Carlo. La première partie du travail a en particulier consisté à reproduire la signature radiologique d'un site survolé à partir de simulations Monte Carlo afin de tester et de comparer les performances de différentes

techniques de filtrage des fluctuations statistiques (chapitre IV). Les simulations Monte Carlo permettent également de modéliser une source étendue. Cela a été appliqué au développement et à la validation d'une méthode de détection et de quantification de radionucléides dans le cadre d'une contamination anthropique (chapitre VI).

Deux sites de mesure, représentatifs de conditions opératoires variées, ont été sélectionnés pour ce travail : un site situé en zone rurale présentant des variations d'activité naturelles relativement importantes et un site situé en milieu urbain présentant des variations d'activité moins importantes.

Dans le cadre du développement de nouvelles méthodes, l'ensemble des spectres expérimentaux a été utilisé pour développer un jeu de spectres simulés en utilisant le code de simulation MCNPX (I.7).

La modélisation du détecteur avec le code MCNPX (D. B Pelowitz, April 2011) est réalisée en prenant en compte les caractéristiques du détecteur, de l'environnement (dimensions, matériaux, positionnement,...) et de la source (énergie, rapport d'embranchement,...).

La précision de la définition de la géométrie a davantage d'impact sur les résultats à basse énergie qu'à haute énergie. En effet, lorsque l'énergie du rayonnement est faible, le coefficient d'atténuation linéaire augmente (I.2). Cette augmentation du coefficient d'atténuation entraîne une plus grande influence de l'épaisseur du matériau considéré. De plus, à basse énergie, la variation de ce coefficient d'atténuation en fonction de la composition du matériau est beaucoup plus importante qu'à haute énergie. Pour ces deux raisons, un soin tout particulier doit être apporté à la modélisation géométrique du détecteur. La modélisation du détecteur utilisé lors des mesures aéroportées est présentée à la Figure II-8.

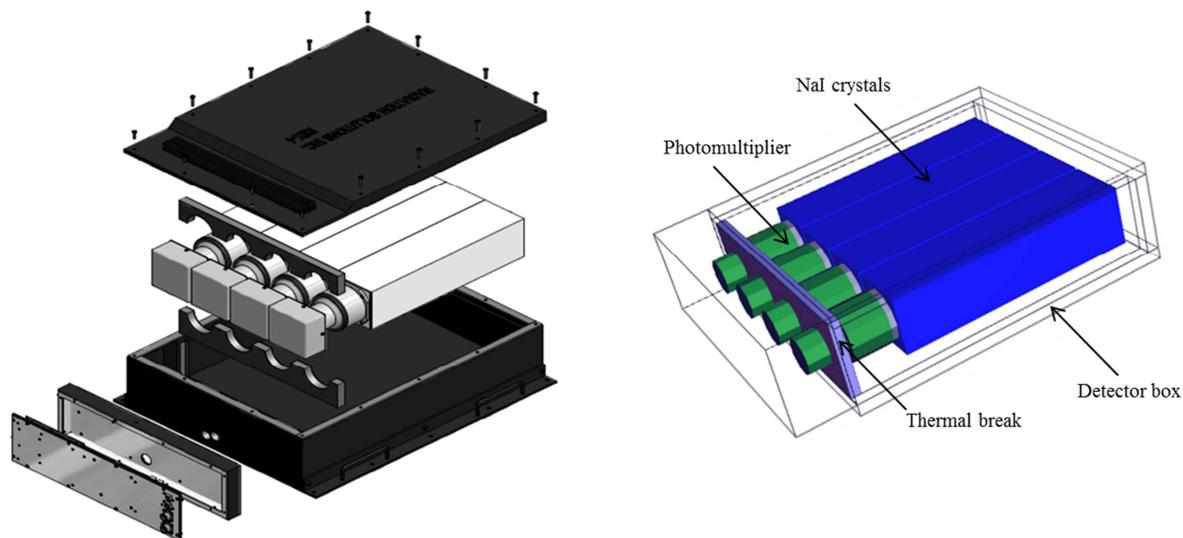


Figure II-8. Schéma du RSX-4 issu des plans (RSI, 2006) (à gauche), Modélisation MCNPX du détecteur RSX-4 (à droite). Les différentes parties du boîtier du détecteur sont représentées en transparente sur la modélisation MCNPX.

Dans les conditions de laboratoire, les sources utilisées sont connues et bien définies. Il s'agit de sources ponctuelles placées à 1 mètre du détecteur. L'environnement a été pris en compte en modélisant le mur se trouvant le plus proche du détecteur, le plafond, ainsi que le sol, par du béton sec. L'épaisseur du sol est de 50 cm. L'épaisseur des murs et du plafond est de 30 cm. Cette prise en compte de l'environnement contribue à une meilleure représentativité du fond de diffusion.

Dans les conditions d'une mesure in situ, plusieurs paramètres physiques sont pris en compte dans la simulation, notamment la distribution des radionucléides dans le sol, la composition du sol, l'altitude de vol et la densité de l'air. Les spectres obtenus par simulation se basent sur l'hypothèse d'une distribution volumique des radionucléides naturels (^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th) et une distribution exponentielle dans le sol pour le ^{137}Cs (ICRU, 1994). Les profondeurs considérées pour la modélisation de ces distributions sont de 35 cm pour les radionucléides naturels (Minty, 1990) et 10 cm pour le ^{137}Cs (OCDE, 2002). La distribution exponentielle de l'activité du ^{137}Cs , $p(z)$, en fonction de la profondeur z est exprimée par la relation:

$$p(z) = e^{\left(-\frac{z}{\mu}\right)} \quad (\text{II-4})$$

Avec μ le coefficient de relaxation fixé à 2 cm.

Une composition standard du sol appelée sol de Beck (Beck, 1972) a été prise en compte. La densité du sol a été considérée équivalente à celle d'un sol moyen et fixée à 1,5. La masse volumique de l'air a été fixée à $1,27 \text{ kg/m}^3$. La distance entre le détecteur et le sol est fixée à 40 mètres (altitude de référence).

Le code MCNPX permet de simuler la résolution en énergie à l'aide d'une carte⁶ appelée GEB (Gaussian Energy Broadening). Le principe de cette carte revient à répartir le nombre de coups mesuré dans chaque canal suivant une distribution gaussienne de la forme :

$$f(E) = A \cdot e^{-\left(\frac{E-E_0}{\sqrt{2}\cdot\sigma}\right)^2} \quad (\text{II-5})$$

Avec :

- E : énergie à laquelle la fonction gaussienne va être appliquée (MeV) ;
- E_0 : énergie considérée comme centroïde pour l'élargissement (MeV) ;
- A : constante de normalisation (coups) ;
- σ : écart type de la gaussienne (MeV).

Les paramètres de la carte GEB utilisés pour la prise en compte de la résolution en énergie expérimentale sont ceux présentés à la Figure II-7. Les spectres de ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th et ^{137}Cs , obtenus par la simulation Monte Carlo sont présentés à la Figure II-9.

⁶ Le terme carte représente une fonction. Le code MCNP a conservé ce terme qui fait référence au codage sur cartes perforées.

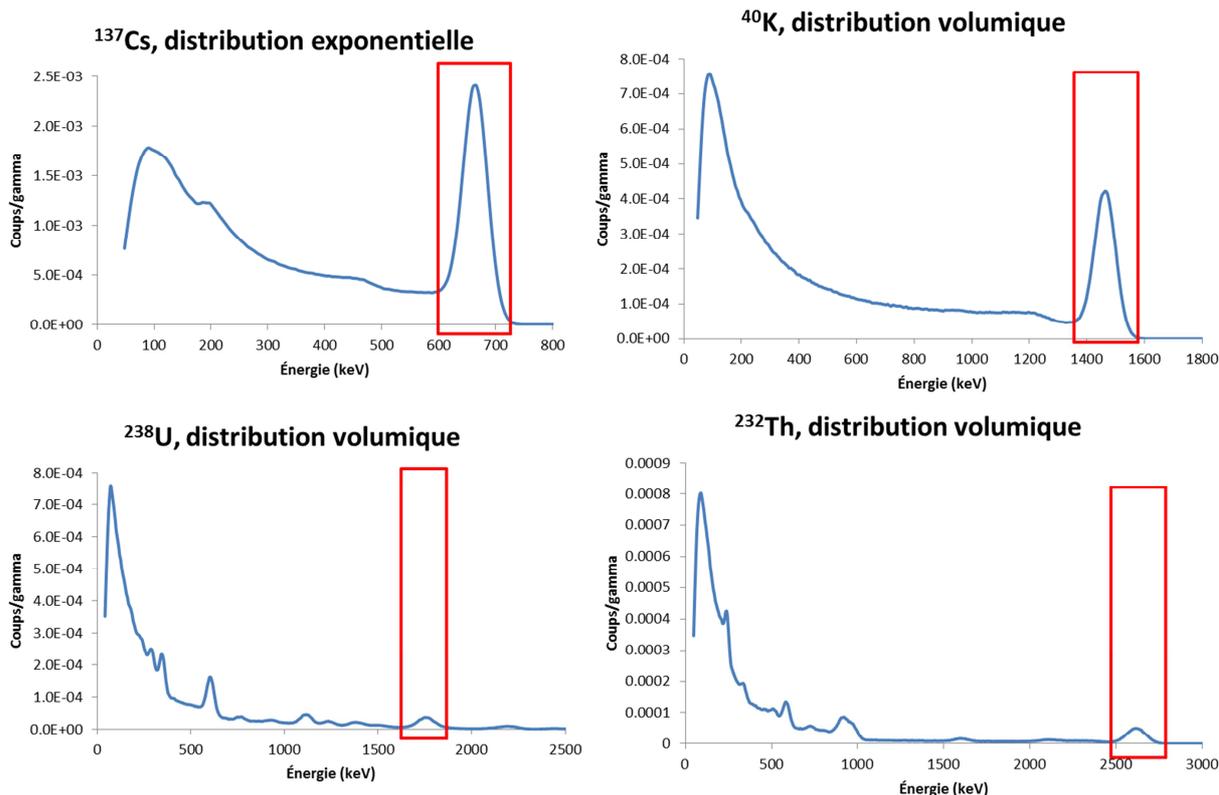


Figure II-9. Spectres MCNPX à 40 m des radionucléides naturels (^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th) et artificiels (^{137}Cs). La distribution des radionucléides dans le sol est précisée. Les zones encadrées en rouge représentent les pics d'absorption utilisés pour l'estimation des activités des radionucléides par la méthode des fenêtres.

Les spectres présentés à la Figure II-9 présentent peu de signal dans le pic d'absorption mais un fond de diffusion important. Ce dernier résulte des différentes diffusions du gamma dans l'air et le sol. Ce fond de diffusion est très sensible aux caractéristiques topographiques du sol. L'allure du fond de diffusion est donc propre à chaque spectre mesuré. Cette variation du fond de diffusion due à la répartition des radionucléides et au type de sol n'est pas prise en compte dans les spectres simulés. Cette variation est cependant limitée pour l'étude des différentes techniques de filtrage menée au chapitre III. En effet, cette étude se limite au domaine des hautes énergies ($E > 500$ keV), région où les variations du fond de diffusion sont moins importantes.

Les activités des différents radionucléides ont été déterminées à partir de la méthode des fenêtres recommandée par l'AIEA qui repose sur l'estimation de l'aire sous chacun des pics d'absorption totale des radionucléides considérés avec une prise en compte du fond de diffusion induit par les radionucléides de plus hautes énergies. Le principe de cette méthode est détaillé au chapitre IV.

Les spectres simulés sont ensuite pondérés par les activités déterminées par la méthode des fenêtres pour être représentatifs des spectres mesurés. Des fluctuations statistiques suivant une loi de Poisson sont ajoutées sur les taux de comptage de chacun des canaux. Ces fluctuations sont générées à partir d'un générateur de nombre pseudo-aléatoire suivant une distribution de Poisson ayant pour paramètre le taux de comptage de chacun des canaux. Cet ajout permet d'avoir un signal représentatif d'un spectre mesuré pouvant être utilisé pour tester les méthodes développées tout en connaissant très précisément le signal « vrai » masqué par ces fluctuations. Une comparaison des spectres mesuré et simulé est donnée à la Figure II-10.

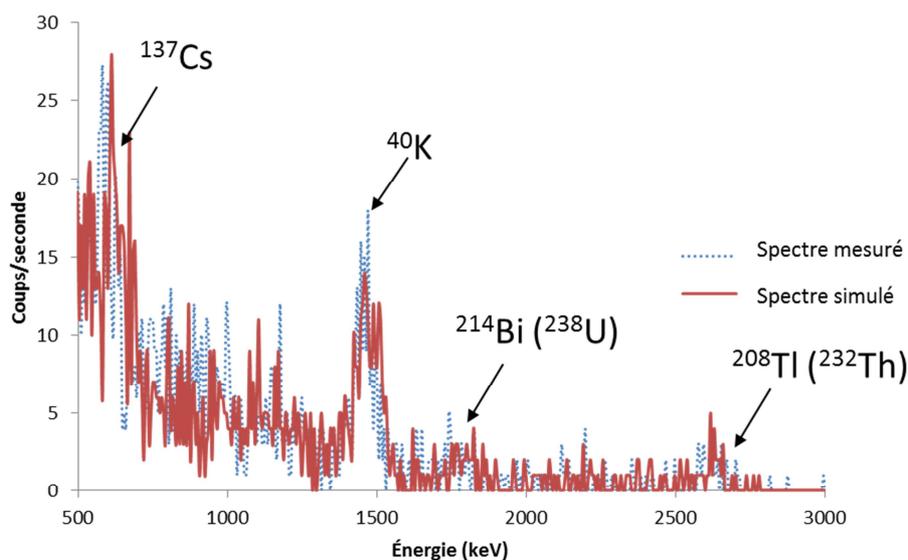


Figure II-10. Comparaison entre un spectre mesuré et un spectre simulé. Le spectre simulé a été obtenu en pondérant les activités estimées à partir de la méthode des fenêtres appliquée au spectre mesuré. Les radionucléides à l'origine des pics d'absorption utilisés par la méthode des fenêtres sont annotés.

L'allure générale des spectres est conservée. Le spectre simulé auquel on a ajouté les fluctuations statistiques est cohérent avec le spectre mesuré.

5 Sites radiologiques

a. Site 1

Ce site, utilisé pour la formation du personnel HELINUC, est basé à Albertville-Le Villard. Il a été caractérisé radiologiquement de manière précise suite à son survol à de nombreuses reprises. Les contrastes géologiques qu'il offre permettent de tester les méthodes d'analyse développées, dans des conditions réalistes. Le plan de vol est constitué de 13 lignes de vol survolées à une altitude de référence de 40 mètres. Le temps d'acquisition est de 1 seconde. Les informations concernant ce survol sont présentées dans le Tableau II-2.

Paramètres de vol	
Surface couverte	4 km ²
Temps de vol	45 min
Nombre de lignes de vol	13
Longueur moyenne des lignes de vol	3800 m
Ecart entre les lignes de vol (déport)	80 m
Altitude	40 m
Vitesse	70 km/h

Tableau II-2. Paramètres de vol du site 1.

La Figure II-11 présente les lignes de vol suivies par l'hélicoptère durant le survol du site (à gauche) et les taux de comptage totaux obtenus dans la gamme d'énergie 500-3000 keV lors de la mesure (au centre) et à partir du dispositif de simulation mis en place dans le cadre de cette thèse (à droite). Cette figure montre un bon accord entre la répartition des taux de comptage de la mesure et de la simulation. L'écart relatif moyen des taux de comptage entre les deux cartographies est relativement faible (environ 10%) et la répartition spatiale du taux de comptage est préservée.

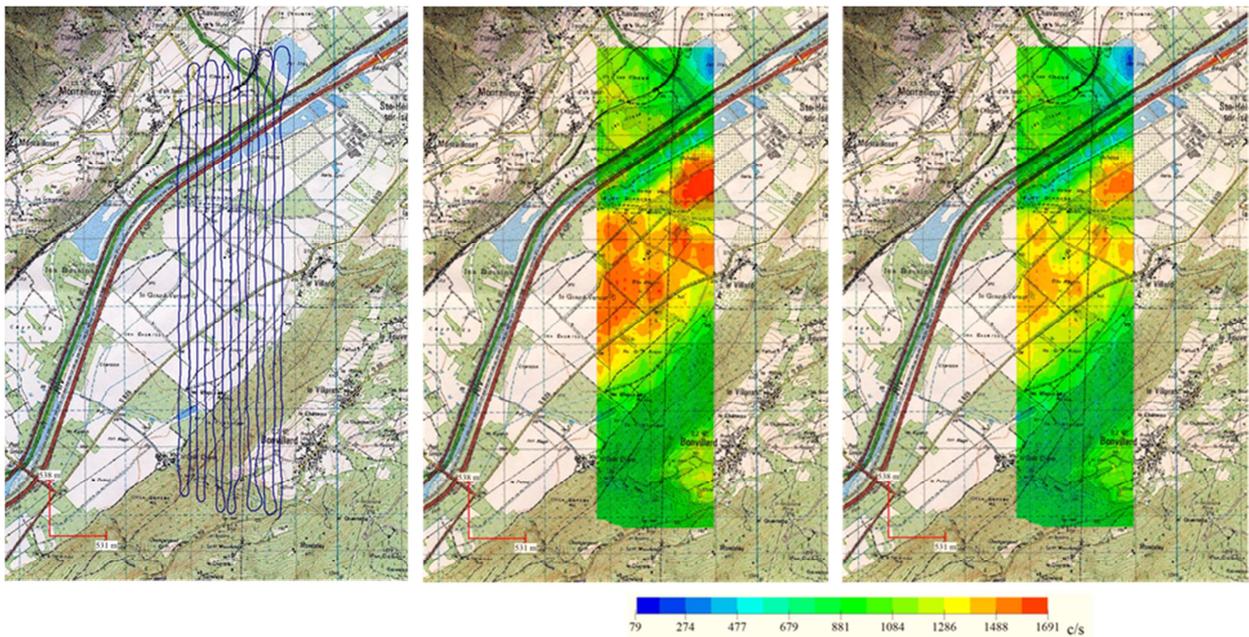


Figure II-11. Lignes de vol (gauche) et taux de comptage estimés dans la plage d'énergie 500 keV à 3 000 keV pour la mesure (au centre) et pour la simulation (à droite).

La cartographie du comptage total permet de distinguer les différentes zones géologiques. Les lacs et cours d'eau sont identifiables par une diminution du taux de comptage tandis que les forts taux de comptage proviennent de l'engrais potassique apporté par les agriculteurs lors de la culture des champs. Le site 1 sera utilisé pour tester les différentes méthodes de filtrage de fluctuations statistiques (chapitre IV) et pour le développement d'une méthode de détection d'anomalies (chapitre VI).

b. Site 2

Ce site est très étendu et présente peu de variations de sa topographie. La surface couverte est d'environ 20 km². Le temps d'acquisition est de 2 secondes. L'ensemble des informations concernant ce survol sont présentées au Tableau II-3.

Paramètres de vol

Surface couverte	20 km ²
Temps de vol	4 h
Nombre de lignes de vol	52
Longueur moyenne des lignes de vol	4500 m
Ecart entre les lignes de vol (déport)	80 m
Altitude	40 m
Vitesse	70 km/h

Tableau II-3. Paramètres de vol du site 2.

Les taux de comptage obtenus dans la gamme d'énergie 40 keV-2800 keV sous forme de cartographie sont présentés à la Figure II-12. Deux spectres issus de cette mesure sont également présentés à la Figure II-12 avec une comparaison au spectre moyen du site.

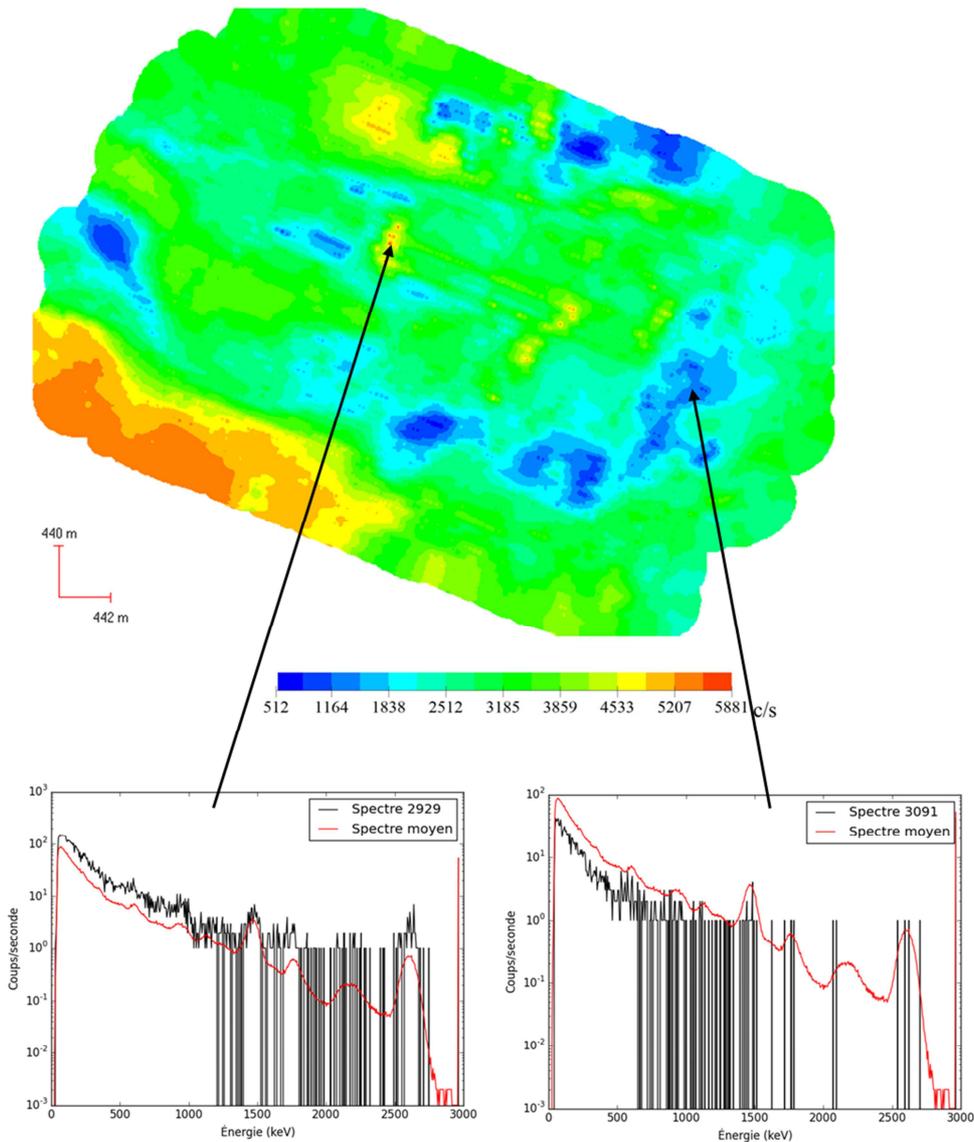


Figure II-12. Cartographie des taux de comptage obtenus dans la gamme d'énergie 40 keV-2800 keV. Deux spectres sont également présentés afin d'illustrer les différences de taux de comptage.

On remarque des zones présentant un taux de comptage important (zones orangées) et des zones avec un taux de comptage moins élevé (zones bleues). Le comptage élevé situé en bas à gauche de la cartographie provient de la présence des radionucléides d'origine naturelle dans les champs. Le comptage plus élevé au centre de la cartographie provient de l'activité d'origine naturelle présente dans les enrobés type goudron. Le taux de comptage y est certes plus important mais seuls des radionucléides d'origine naturelle y sont présents comme en témoigne le spectre 2929 présenté à la Figure II-12. Les zones moins actives traduisent des endroits plus humides à proximité de cours d'eau. Les radionucléides naturels y sont donc moins présents (spectre 3091 à la Figure II-12).

Le site 2 sera utilisé pour le développement d'une méthode de détection et de quantification du ^{241}Am (chapitre V) et pour le développement d'une méthode de détection d'anomalies (chapitre VI). Pour cela, une contamination artificielle a été implémentée sur le site en question à partir d'un code développé en C++.

6 Contamination surfacique à basse énergie

L'application Plume développée au CEA permet de simuler l'insertion d'une contamination radiologique (appelée plume) à des mesures de radioactivité. Cette application est composée d'un algorithme d'interpolation et d'une bibliothèque de spectres à insérer. Dans le cadre de cette thèse, l'utilisation de cette application s'est concentrée sur l'insertion d'une contamination en ^{241}Am .

Pour un radionucléide donné, l'algorithme d'interpolation calcule l'activité à implémenter sur chacun des spectres en fonction de l'activité maximale choisie par l'utilisateur. La bibliothèque de référence contient une série de spectres représentant une activité surfacique normalisée à 1 kBq/m² pour différentes altitudes.

Plusieurs erreurs provenant de l'application ont été identifiées et corrigées :

- Distributions des activités insérées à partir de l'interpolation non réalistes (Figure II-14).
- Spectres purs de ^{241}Am avec un profil non réaliste. Le centroïde du pic de 60 keV de ^{241}Am était centré sur 78 keV et les spectres de ^{241}Am ne prenaient en compte ni le fond de diffusion ni les raies X produites. Les spectres de ^{241}Am étaient seulement composés d'une gaussienne centrée sur 78 keV (Martin-Burtart, et al., 2012b).

Les corrections proposées s'articulent donc autour de la modification de l'algorithme d'interpolation et de la création de nouveaux spectres.

a. Interpolation des isocourbes

Les activités sont implémentées à partir d'ellipses représentant différentes activités. Ainsi les différents points d'une même ellipse possèdent la même activité et sont appelés isocourbes. Pour l'implémentation de l'activité, trois cas de figure sont à considérer :

- 1 L'isocourbe la plus interne ayant l'activité la plus importante correspond à la zone de contamination maximale. Les points contenus dans cette isocourbe conservent l'activité préalablement définis par l'utilisateur.

- 2 Les points à l'extérieur de l'isocourbe la plus externe possèdent une activité nulle afin de permettre une analyse des fausses détections de sources de ^{241}Am .
- 3 L'activité des points compris entre deux isocourbes est déterminée à partir d'une interpolation barycentrique.

La méthode d'interpolation repose sur l'utilisation des quatre points les plus proches spatialement du point sur lequel l'activité est à implémenter. Cette activité est obtenue en pondérant l'activité des points à proximité par des coefficients inversement proportionnels à la distance de ces points au point à traiter. La somme de ces coefficients est normalisée à l'unité. Le principe de cette interpolation est schématisé à la Figure II-13.

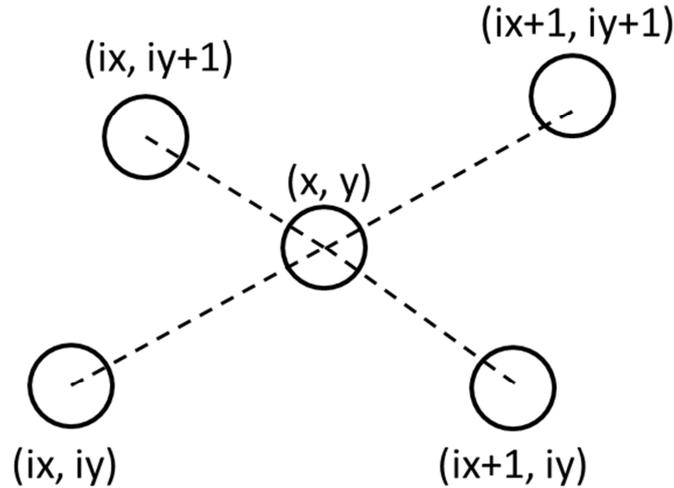


Figure II-13. Schéma du modèle d'interpolation spatiale de l'activité.

Le poids w_0 en fonction de l'inverse de la distance est calculé par la relation :

$$w_0(ix, iy) = \frac{1}{\sqrt{(x - ix)^2 + (y - iy)^2}} \quad (\text{II-6})$$

Puis normalisé pour que la somme des poids soit égale à 1 :

$$w(ix, iy) = \frac{w_0(ix, iy)}{\sum w_0} \quad (\text{II-7})$$

L'activité à implémenter obtenu par interpolation sur les 4 points les plus proches devient donc:

$$A(i) = \frac{w(ix, iy).A(ix, iy) + w(ix + 1, yi).A(ix + 1, yi) + w(ix, yi + 1).A(ix, yi + 1) + w(ix + 1, yi + 1).A(ix + 1, yi + 1)}{w(ix, iy) + w(ix + 1, yi) + w(ix, yi + 1) + w(ix + 1, yi + 1)} \quad (\text{II-8})$$

Le spectre $S_{R,A}(i)$, obtenu à partir du spectre du radionucléide R (S_R) pondéré par l'activité A (calculée précédemment), doit prendre en compte les fluctuations statistiques de comptage. Ce sera donc chaque canal de chaque spectre qui sera bruité. Pour cela, la valeur initiale du nombre de coups de chaque canal est remplacée par une variable aléatoire tirée suivant une distribution de Poisson ayant pour paramètre (i.e. pour moyenne) cette valeur initiale. Cette fonction de bruitage sera noté P(x). La relation mathématique suivante traduit cette réalisation :

$$S_{R,A}(i) = P(S_R \times A(i)) \quad (\text{II-9})$$

Le spectre « contaminé » ainsi calculé est la somme du spectre mesuré et de la signature pondérée $S_{R,A}(i)$:

$$Spectre_{contaminé}(i) = Spectre_{mesure}(i) + S_{R,A}(i) \quad (II-10)$$

La Figure II-14 présente les modifications sur les distributions d'activités.

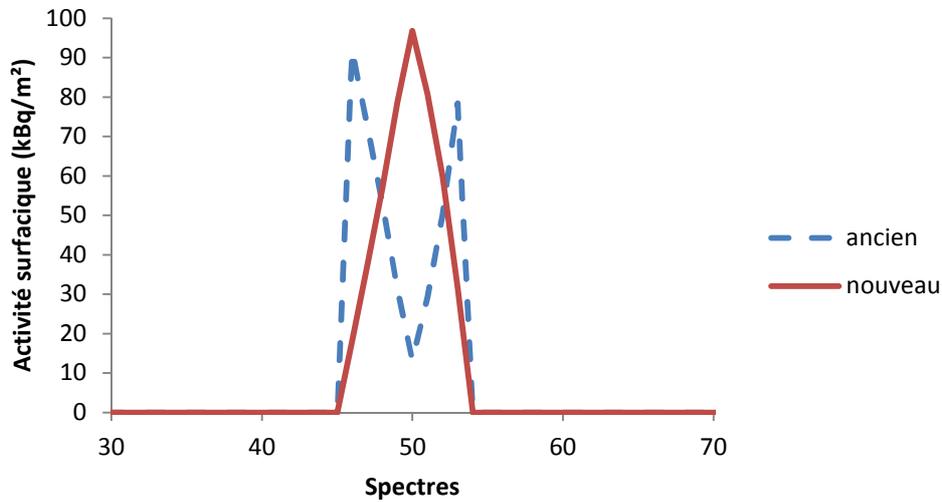


Figure II-14. Distribution des activités à implémenter sur les spectres mesurés. La contamination maximale est implémentée au spectre numéro 50.

La forme ancienne présentant un double pic n'est pas physiquement explicable. La correction de la fonction d'interpolation permet d'avoir une fonction qui présente un accroissement de l'activité lorsque l'on s'approche du centre de la contamination et une décroissance de celle-ci lorsque l'on s'en éloigne.

b. Création des profils spectraux

Des spectres de référence caractéristiques d'une source de ^{241}Am et représentatifs de spectres mesurés ont été produits par simulation Monte Carlo. Ceux-ci s'appuient sur une modélisation précise de la géométrie et de la composition du détecteur.

La simulation réalisée permet d'obtenir un spectre caractéristique de ^{241}Am que l'on compare au spectre obtenu lors d'une mesure en laboratoire. L'ensemble des énergies et des rapports d'embranchement proviennent de la bibliothèque Laraweb (Marie-Martine Bé, 2008). Dans un premier temps, seules les émissions gamma ont été prises en compte.

La mesure en laboratoire est réalisée sur une durée de 300 secondes avec une source de ^{241}Am de 442 kBq. Le spectre de bruit de fond est soustrait à ce spectre mesuré afin d'obtenir un spectre net. La comparaison entre ce spectre net et le spectre obtenu par simulation est présentée à la Figure II-15.

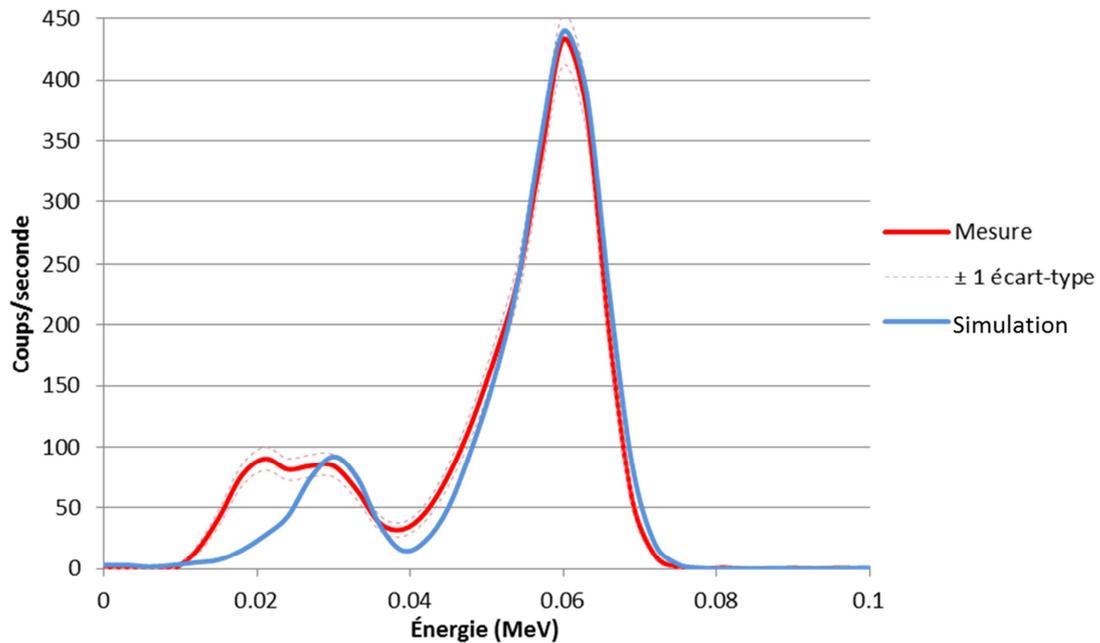


Figure II-15. Comparaison des spectres obtenus par mesure et modélisation à 1 mètre, dans les conditions « laboratoire ».

La comparaison des spectres à la Figure II-15 fait ressortir plusieurs points. L'allure et le maximum du pic d'absorption entre la simulation et la mesure sont très similaires, sauf à basse énergie. En effet, autour de 40 keV, la différence entre le spectre simulé et mesuré devient significative.

De plus, la double bosse présente à basse énergie lors de la mesure ne se retrouve pas sur les résultats de la simulation. La raison de cette différence est la non-prise en compte des raies X autour de 20 keV (MC LEPY, 2008). Le code MCNPX ne se base pas sur une bibliothèque de noyaux mais sur les énergies d'émissions définies par l'utilisateur. Ces émissions X n'avaient pas été entrées dans le fichier d'entrée MCNPX ce qui explique la différence spectrale entre simulation et expérience présentée à la Figure II-15. Les émissions X à prendre en compte sont données dans le Tableau II-4.

Énergie (MeV)	Probabilité d'émission
0.01187	0.84%
0.01376	1.40%
0.01395	11.60%
0.01684	2.45%
0.01706	1.74%
0.01775	11.83%
0.01799	1.31%
0.02078	2.94%
0.02149	0.57%

Tableau II-4. Raies X du ^{237}Np .

La Figure II-16 présente à nouveau une comparaison entre spectres simulé et mesuré avec la prise en compte de ces raies X. La résolution en énergie du détecteur entraîne un recouvrement de ces différentes raies. L'atténuation des X de faibles énergies étant très sensible en fonction des matériaux et des épaisseurs en jeu, le réflecteur se trouvant autour du cristal NaI(Tl) a été pris en compte. Celui-ci a été considéré comme étant de la poudre de MgO de masse volumique égale à 0.75 g.cm^3 . Cette masse volumique a été définie à partir de différentes simulations, la valeur retenue étant celle qui permettait au mieux de reproduire la région des X de faibles énergies. Le spectre obtenu est comparé au spectre mesuré à la Figure II-16.

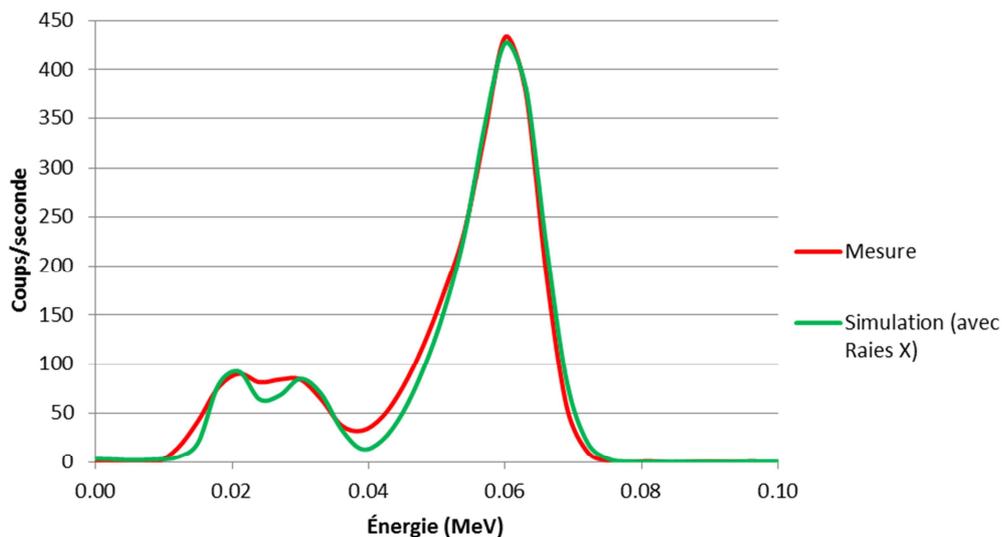


Figure II-16. Comparaison des spectres obtenus par mesure et modélisation à 1 mètre, dans les conditions « laboratoire » après prise en compte des raies X.

Le spectre présenté à la Figure II-16 montre un bon accord entre la simulation et la mesure au niveau du pic à 60 keV, même si le nombre de coups par seconde du spectre simulé est légèrement inférieur à celui du spectre mesuré. Cela est dû à l'ajout de la poudre de MgO. On remarque également qu'avec la prise en compte des raies X à basse énergie, le spectre simulé est en meilleur accord avec le spectre mesuré autour de 20 keV. La région en dessous du pic d'absorption est très sensible aux éventuels changements de matériaux ou de masse volumique.

De plus, l'amplitude en terme de coups par seconde dans cette région est plus faible que celle dans la région du pic d'absorption totale.

Cette première partie a permis de valider le modèle de simulation considéré. Il s'agit maintenant d'extrapoler ces résultats aux différentes altitudes pouvant être rencontrées lors d'un survol avec le système HELINUC.

Extrapolation aux différentes altitudes

L'altitude de référence est de 40 mètres. Les altitudes à considérer sont donc les altitudes aux alentours de cette altitude de référence. Pour rappel, l'étude se place dans le cadre d'une source surfacique infinie, représentative d'une contamination surfacique étendue (I.3).

Il n'est pas possible de représenter une source infinie par simulation. La stratégie adoptée est de considérer deux simulations. La première simulation, dite rapide, va permettre de simuler le caractère infini de la source. Cela est réalisé à partir de parois qui réfléchissent les photons gamma. Ainsi l'angle d'émission par rapport au détecteur des photons gamma émis par la source déterminera la distance que ces photons auront à parcourir (dans le cas où ils ne subissent aucune interaction sur leur parcours). Cela permet de simuler une source de dimensions infinies. Cette simulation est relativement rapide car la majorité des photons générés par la source arriveront au niveau du détecteur. La contrepartie de cette méthode est de ne pas avoir d'information sur l'efficacité géométrique du détecteur mais elle permet d'obtenir l'allure du spectre dans le cas de la simulation d'une source infinie.

La seconde simulation permettra de déterminer la dimension de la source à prendre en compte dans une simulation « classique », c'est-à-dire sans l'utilisation de parois réfléchissantes. Cette dimension sera déterminée par comparaison de l'allure du spectre avec le spectre obtenu par la simulation « rapide » (Figure II-17). Cela permet de cerner une bonne définition de la surface à considérer pour la source, ce qui limite le temps de calcul. Cette méthode permet donc de déterminer l'allure du spectre et l'efficacité du détecteur en fonction de l'altitude.

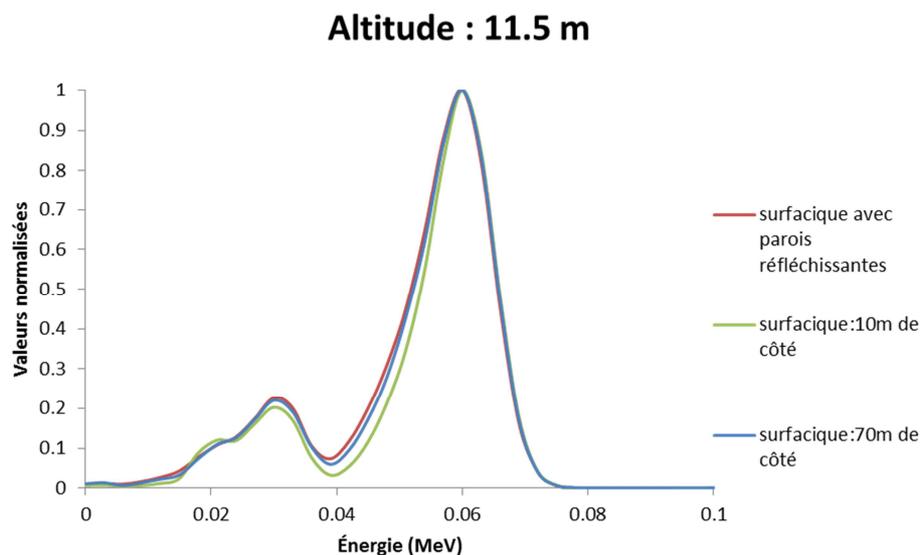


Figure II-17. Évolution des spectres en fonction de la taille de la source surfacique.

La Figure II-18 présente l'évolution de l'écart des spectres obtenus avec des sources surfaciques de différentes dimensions par rapport au spectre obtenu avec les parois réfléchissantes.

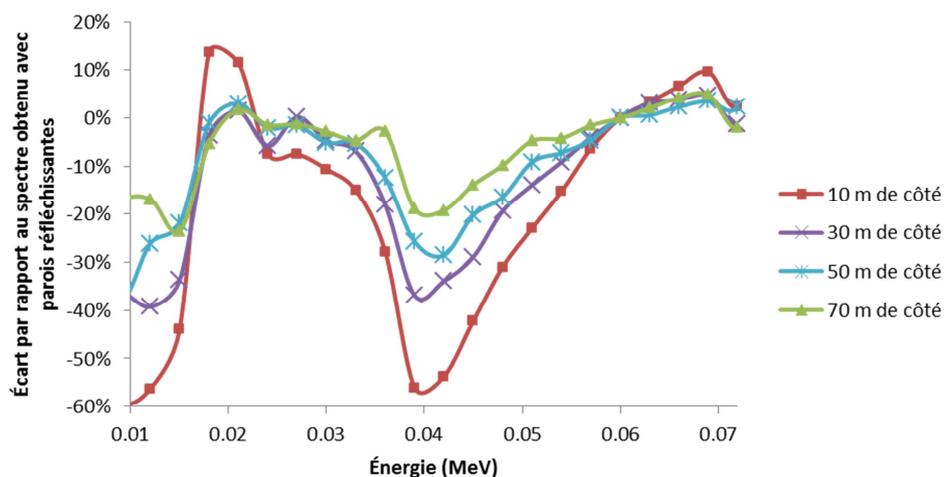


Figure II-18. Évolution des écarts des spectres obtenus avec des sources de différentes dimensions par rapport au spectre obtenu avec parois réfléchissantes.

Lorsque l'on passe d'une source surfacique représentée par un carré de 10 m de côté à celle de 70 m de côté, l'allure du spectre se rapproche de plus en plus de l'allure d'un spectre obtenu avec l'utilisation de parois réfléchissantes. Cette tendance permet de valider la méthode proposée pour la modélisation d'une source infinie. Finalement, une source de 70 mètres de côté sera conservée ce qui représente une source de 4900 m².

On remarque que des écarts existent toujours à une énergie de 40 keV. Cependant aux énergies représentatives du pic d'absorption (entre 48 et 72 keV), cet écart est de l'ordre de 8 % en moyenne entre les spectres de simulation rapide et classique. L'évolution du nombre de coups dans le centroïde en fonction de la surface de la source prise en compte est présentée au Tableau II-5.

Altitude : 11.5 m	
Surface de la source (m ²)	Coups dans le centroïde
100	0.82
900	3.65
2500	5.23
4900	5.92

Tableau II-5. Evolution du nombre de coups dans le centroïde du pic de ²⁴¹Am en fonction de la surface de la source prise en compte.

Lorsque la surface de la source augmente, le nombre de coups dans le centroïde se stabilise.

Les spectres de ²⁴¹Am représentatifs des différentes altitudes de vol ont été obtenus à partir d'une source surfacique infinie. La bibliothèque ainsi créé est normalisée à 1 kBq/m². Les spectres obtenus pour les différentes altitudes et normalisés à leur maximum sont présentés à la Figure II-19.

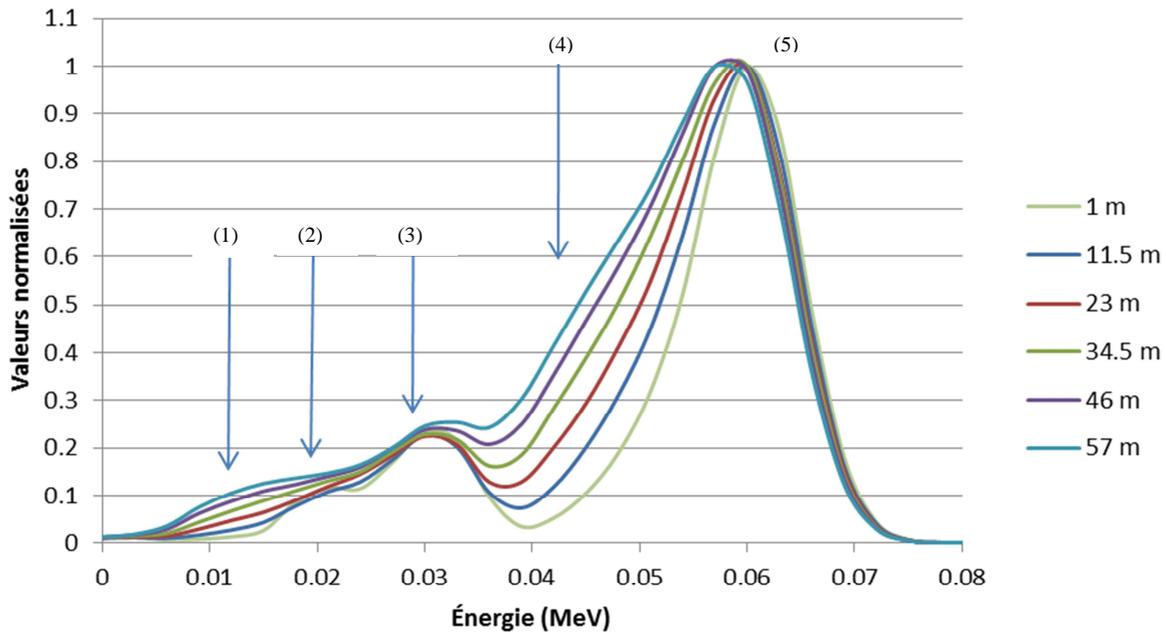


Figure II-19. Évolution des spectres de ^{241}Am normalisés à leur maximum.

Les régions énergétiques des spectres sont numérotées afin d'expliquer les différents phénomènes en présence.

(1) : Le nombre de photons diffusés augmente en fonction de l'altitude. Ces photons proviennent en majorité de la diffusion des photons de 60 keV. Plus l'altitude augmente, plus la probabilité de diffusion augmente.

(2) : L'atténuation des photons X augmente lorsque la source est répartie de façon surfacique infinie : de nombreux photons vont parcourir une distance supérieure à 1 mètre en raison de ce type de répartition. On remarque d'ailleurs que pour une altitude de 11.5 m, la contribution des photons X n'est plus visible. Ces derniers ont été absorbés par effet photoélectrique dans l'air.

(3) : Le pic se trouvant aux alentours des 30 keV reste constant en fonction de l'altitude. Cela veut dire que ce pic ne provient pas du ^{241}Am car il devrait être davantage atténué que le pic à 60 keV. Une hypothèse est que ce pic provient de l'iode du détecteur NaI(Tl). En effet, la détection du gamma de 60 keV de ^{241}Am repose sur l'interaction de celui-ci avec le détecteur par effet photoélectrique. Un électron de la couche la plus profonde est le plus souvent éjecté du cortège. Le trou ainsi créé dans le cortège électronique est alors réoccupé par un électron d'une couche plus externe. L'énergie ainsi cédée peut être transférée à d'autres électrons (électron Auger) ou sous forme de rayons de X (Knoll, 2010). Les électrons de la couche L ont le plus de probabilité de remplir cette couche K laissée vacante (rayonnement k_{α}).

L'énergie de cette raie k_{α} provenant de l'iode ($Z=53$) peut être évaluée à partir de la formule de Moseley (Agarwal, 1991). La constante de Rydberg R est égale à 13.605 eV.

$$E_{k_{\alpha}} = \frac{3}{4} \cdot R \cdot (Z - 1)^2 = \frac{3}{4} \cdot 13,605 \cdot (53 - 1)^2 = 28.6 \text{ keV} \quad (\text{II-11})$$

Ce pic se trouve à $59.5 - 28.6 = 30.9$ keV. C'est donc un pic d'échappement dû au rayonnement X émis provenant de l'iode.

(4) : L'amplitude de la queue de distribution du pic d'absorption augmente avec l'altitude. Cela est provoqué par la diffusion multiple des photons gamma.

(5) : Le centroïde du pic de ^{241}Am se décale lorsque l'altitude augmente. Cet effet est dû à l'interaction des photons gamma avec l'air. Le nombre de ces interactions augmente avec la distance.

L'évolution du nombre de coups dans le centroïde en fonction de l'altitude est présentée au Tableau II-6.

Altitude (m)	Nombre de coups dans le centroïde du pic	
	Plume (nouveau)	Plume (ancien)
1	12.08	7.48
11.5	5.90	3.23
23	3.40	2.14
34	1.94	1.36
46	1.18	1.01
57	0.77	0.66
69	0.47	0.51
80	0.31	0.38
92	0.20	0.26

Tableau II-6. Nombre de coups dans le centroïde en fonction de l'altitude.

Les résultats présentés au Tableau II-6 sont cohérents par rapport aux résultats déterminés avec l'ancienne version de Plume.

Comparaison des profils

Les profils spectraux obtenus avec l'ancienne et la nouvelle version de Plume sont finalement présentés à la Figure II-20.

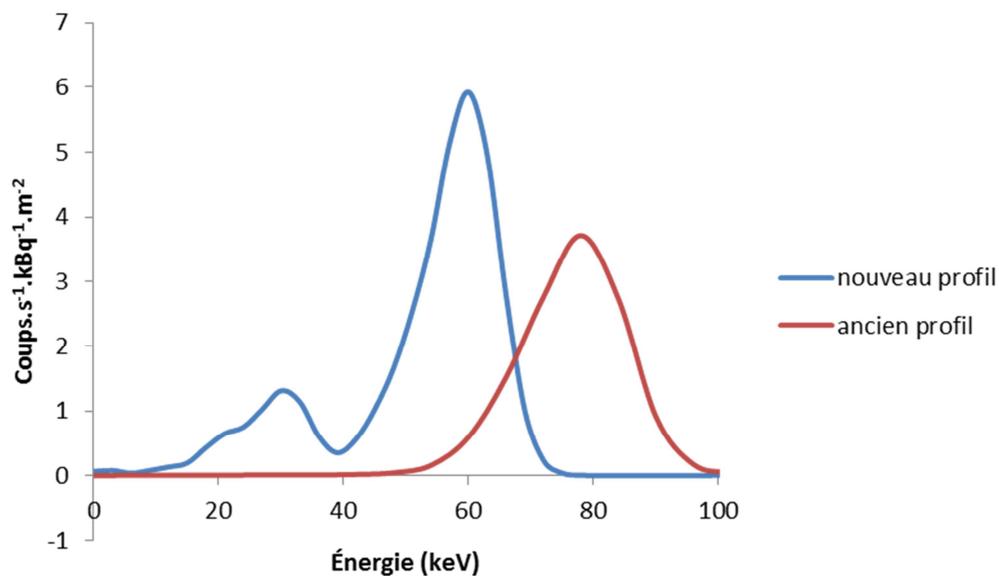


Figure II-20. Comparaison entre ancien et nouveau profil pour une altitude de 11.5 m.

La position du centroïde, l'amplitude du pic ainsi que l'allure générale du spectre sont différentes.

La position du centroïde a été corrigée. La diminution de l'amplitude du centroïde est due à la meilleure résolution en énergie du détecteur mais également à une meilleure calibration du rendement de détection. Enfin, la modification de l'allure générale du spectre est due à une meilleure prise en compte des différents processus physiques dans le détecteur et en dehors.

Les modifications apportées permettent donc de :

- supprimer les phénomènes de surestimation de l'activité ;
- obtenir des implémentations d'activité cohérentes ;
- implémenter des spectres représentatifs des spectres de ^{241}Am en fonction de l'altitude.

Conclusion

Le système HELINUC est un système de détection très performant en matière de stabilité en énergie et de réduction du bruit électronique ce qui a permis de concentrer le travail de thèse sur l'analyse des spectres. Deux sites ont été caractérisés et utilisés pour le développement de nouvelles méthodes d'analyse.

Une modélisation des émetteurs de hautes énergies du premier site a été réalisée à l'aide de simulations Monte Carlo. Des fluctuations statistiques artificielles ont été implémentées afin de tester la réponse de différents filtres (chapitre IV) et le développement d'une méthode de détermination des signatures des radionucléides d'origine naturelle (chapitre VI).

Une application simulant les retombées d'une contamination radioactive a été développée. Celle-ci modélise de manière réaliste le caractère étendu d'une telle contamination que ce soit au niveau de la distribution des activités ou du profil spectral. Cette application a été utilisée afin d'implémenter une contamination artificielle sur le deuxième site présenté dans ce chapitre. Une méthode d'analyse dédiée à ce type de contamination à basse énergie (^{241}Am) est présentée au chapitre V.

III. Etude des méthodes d'analyse de spectres existantes

Le travail bibliographique réalisé durant cette thèse a permis de recenser les méthodes d'analyse spectrale appliquées à la spectrométrie gamma embarquée, et d'identifier leurs avantages et inconvénients. Il est possible de distinguer deux types d'algorithmes d'analyse spectrale, suivant le type de recherche à effectuer :

- détection d'anomalies radiologiques dans un spectre gamma ;
- détection et identification de radionucléides.

Les algorithmes du premier type sont rapides mais ne permettent pas l'identification des radionucléides qui ont conduit à la détection d'anomalies et ne sont donc pas présentés dans cette thèse.

Les méthodes de détection et d'identification de radionucléides permettent d'extraire des informations qualitatives (identité) et quantitatives (activité) pour chaque radionucléide détecté. L'identification des radionucléides à l'origine des anomalies détectées requiert des algorithmes plus complexes nécessitant des temps de calculs plus importants. Les différentes méthodes d'identification des radionucléides présentées dans cette partie reposent sur une utilisation croissante de l'information contenue dans les spectres gamma enregistrés.

Un algorithme basé sur la détection des pics d'absorption totale n'utilise que l'information contenue dans les pics. Ces pics d'absorption totale peuvent ne représenter qu'une très faible fraction du spectre enregistré tant en terme de canaux qu'en terme de nombre de coups.

Un algorithme basé sur la méthode des fenêtres ou sur l'extraction d'une signature gamma à basse énergie utilise l'information dans la fenêtre d'intérêt mais également l'information présente dans d'autres fenêtres du spectre enregistré.

Un algorithme basé sur l'ajustement de spectres à partir de spectres élémentaires utilise la totalité du spectre enregistré (mis à part les coupures aux basses énergies).

Enfin les algorithmes basés sur l'analyse en composantes principales du spectre total utilisent l'information dans le spectre mais également l'information contenue dans d'autres spectres de la même campagne de mesure.

1 Méthode basée sur la détection des pics d'absorption totale

a. Présentation

L'algorithme DETEC développé au CEA (Guillot, 1996 ; 2001) est utilisé pour caractériser les pics d'absorption totale sur un spectre gamma à partir de l'étude des variations du profil spectral.

La méthode d'analyse des pics d'absorption totale est réalisée en plusieurs étapes :

- 1 le filtrage du spectre brut permettant d'éliminer les fluctuations non significatives du spectre ;
- 2 la recherche des pics d'absorption totale par dérivations multiples (dérivée première, seconde ou les deux) du spectre filtré ;
- 3 la modélisation du fond continu ;
- 4 l'identification et le calcul de l'activité à l'origine de ces pics à partir de la comparaison de ces pics à ceux contenus dans une bibliothèque de référence.

Filtrage du spectre

En spectrométrie aéroportée, le filtrage du spectre est nécessaire pour permettre la détection des pics d'absorption totale compte tenu de la faible statistique de comptage. En effet, la détection de ces pics est basée sur l'étude des dérivées premières et secondes. L'absence d'un filtrage entraînerait la détection de nombreux pics correspondant aux fluctuations d'origine statistique.

Le filtrage du spectre est donc réalisé pour minimiser le bruit statistique tout en conservant les caractéristiques des pics d'absorption totale telles que leurs formes gaussiennes et leurs largeurs à mi-hauteur.

Les méthodes de filtrage utilisées sont les suivantes :

- **Méthode basée sur les moindres carrés** : Ajustement d'une fonction sur un nombre limité de points du spectre brut. Les paramètres de la fonction sont déterminés par minimisation de la méthode des moindres carrés entre la fonction et le spectre. Le nombre de points sur lequel est réalisé le filtrage est ajusté en fonction de la résolution en énergie du détecteur. Le filtrage des fluctuations statistiques est donc croissant avec l'énergie. Le point central de l'ajustement est ensuite remplacé par la valeur de la fonction à cette abscisse.
- **Transformée de Fourier** : sélection en fréquence des différentes composantes du spectre. Les fluctuations statistiques présentent une fréquence plus grande que les pics d'absorption totale, notamment de par la résolution du détecteur. L'application d'un filtre passe-bas dans l'espace des fréquences permet de supprimer les fluctuations statistiques. Ce filtre est d'autant plus efficace que le nombre de canaux sur lequel est codé le spectre est important.
- **Filtre de Canny-Deriche** : détection de contour de pente particulière. Ce type de filtre permet de rechercher des contours sous la forme d'une gaussienne qui sont caractéristiques des pics d'absorption totale en prenant en compte l'évolution de la largeur de ces pics avec l'énergie.
- **Transformée en Ondelettes** : décomposition du signal sous la forme d'une somme de fonctions sinusoïdales sur une certaine plage et s'amortissant fortement en dehors de cette plage. L'analyse par ondelettes permet ainsi une analyse temporelle locale du signal.
- **Fonctions splines** : définition de la fonction d'ajustement par morceaux de courbe par des polynômes. La fonction généralement utilisée est un polynôme de degré 3.

Ces filtres sont décrits de manière plus détaillée dans (Guillot, 1996). Les filtres les plus adaptés dépendent du nombre de canaux sur lequel sont échantillonnés les spectres et de la dérivée utilisée pour la recherche de pics. Le Tableau III-1 synthétise les filtres à utiliser préférentiellement en fonction de ces paramètres. La Figure III-1 représente un exemple de spectre brut et de spectre filtré.

Nombre de canaux d'échantillonnage	Dérivée utilisée	Filtre
256	1 ^{ère}	Quartique (moindres carrés)
256	2 ^{ème}	Canny-Deriche Transformée par ondelettes
512	1 ^{ère}	Quartique (moindres carrés)
512	2 ^{ème}	Transformée de Fourier

Tableau III-1. Filtre retenu en fonction du nombre de canaux d'échantillonnage et de la dérivée utilisée pour la recherche de pics (Guillot, 1996).

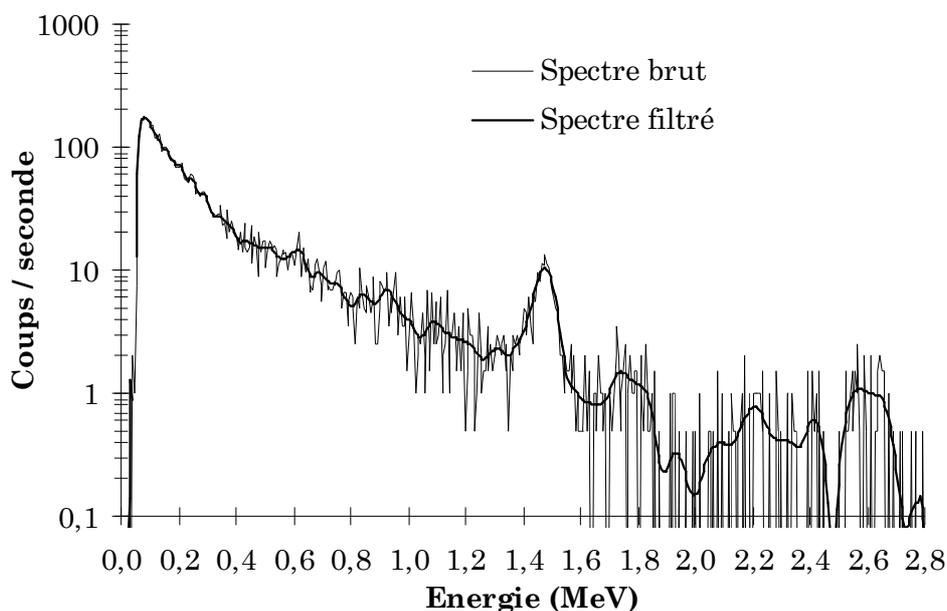


Figure III-1. Comparaison d'un spectre brut et d'un spectre filtré (filtrage quartique) (Guillot, 1996).

Détection et validation des pics

La recherche des pics d'absorption totale est réalisée à partir de l'étude des dérivées premières et secondes du spectre.

L'étude de la dérivée première pour la détection des pics est bien adaptée aux énergies supérieures à 600 keV compte tenu de la présence d'un fond continu relativement plat à ces énergies.

La dérivée seconde étant plus sensible aux fluctuations que la dérivée première, celle-ci est préférée aux énergies inférieures à 600 keV où la pente du fond continu est importante. La dérivée seconde est difficilement exploitable aux énergies supérieures à 600 keV compte tenu des fortes fluctuations de comptage à ces énergies. L'utilisation de la dérivée seconde à ces énergies entraînerait un nombre important de fausses détections dues aux fluctuations de comptage.

Le filtrage évoqué au paragraphe précédent permet de supprimer les fluctuations non significatives les plus importantes. Cependant des fluctuations résiduelles non significatives subsistent après le filtrage. Il est nécessaire de définir un coefficient de sensibilité permettant de rejeter ces fluctuations. Ce coefficient est défini comme étant la somme des rapports entre la dérivée première ou seconde et leur variance respective sur une zone

où la dérivée est de signe constant. Seules les fluctuations pour lesquelles ce coefficient sera supérieur à une valeur seuil seront retenues.

Modélisation du fond continu et calcul des caractéristiques des pics

Afin de pouvoir calculer l'aire sous les pics, il est nécessaire de soustraire le fond continu au spectre brut. Le fond continu est modélisé par une courbe de Galton aux énergies supérieures à 200 keV et par une droite affine aux énergies inférieures à 200 keV. L'utilisation d'une droite affine est impérative compte tenu de la forte pente croissante aux énergies inférieures à 200 keV. Ainsi les pics d'absorption nets sont obtenus en soustrayant le fond continu modélisé au spectre brut.

Afin de déterminer si le nombre de coups sous le pic est significatif, c'est-à-dire de confirmer l'existence de pic d'absorption et d'éliminer les fluctuations résiduelles, il est nécessaire de vérifier que l'aire du pic est supérieure au seuil de décision ($I.e$) et que la résolution du pic corresponde à la résolution attendue.

Identification des radionucléides et calcul des activités respectives

L'identification des radionucléides est réalisée en effectuant une comparaison des énergies des pics d'absorption détectés par rapport à une table de radionucléides. Un algorithme nommé AMPIR (Algorithme Multipics Pour l'Identification des Radionucléides) a été développé afin de permettre l'identification des radionucléides par la prise en compte de raies multiples pour chaque radionucléide (CEA, 2009).

L'identification se base sur plusieurs raies gamma par radionucléide afin de lever des conflits existants entre des radionucléides ayant des raies d'énergie proche. Ce problème se manifeste d'autant plus fortement lorsque la résolution en énergie des détecteurs utilisés est moyenne, ce qui est le cas pour les détecteurs NaI(Tl).

Les raies les plus significatives sont ensuite retenues dans la limite de quatre raies par radionucléide. L'étape suivante est le choix de la (ou les) raie(s) principale(s). Celle-ci ne sera pas définie comme la raie qui a le taux d'embranchement le plus élevé mais comme la raie la plus facile à détecter.

La résolution en énergie a été choisie comme critère de séparabilité des raies principales et secondaires : deux pics séparés de moins d'une FWHM sont confondus. L'algorithme d'identification repose sur ce critère de séparabilité et sur la bibliothèque de radionucléides considérés.

Dès qu'un radionucléide est identifié, sa raie principale et ses raies secondaires (si elles existent) sont supprimées de la liste des raies de la bibliothèque. L'analyse est alors réitérée sur la nouvelle liste.

Les radionucléides sont regroupés en différentes familles :

- les raies principales des radionucléides considérés n'entrent en conflit avec aucune autre raie d'un autre radionucléide (cas le plus simple). On retrouve dans cette famille le ^{60}Co , le ^{232}Th ou encore le ^{40}K .
- les raies principales des radionucléides considérés entrent en conflit avec la raie secondaire d'un autre radionucléide. Dans ce cas, l'algorithme vérifie sur le spectre si la raie principale de cet autre radionucléide est présente. Si cette raie principale n'est pas présente, le radionucléide considéré est identifié. Si cette raie principale est présente, aucune identification n'est déterminée.

- la raie principale d'un radionucléide considéré entre en conflit avec la raie principale d'un autre radionucléide. L'algorithme vérifie sur le spectre si une raie secondaire n'entre pas en conflit avec une raie secondaire de ce second radionucléide.

L'estimation de l'activité au sol est réalisée à partir de l'aire nette des pics retenus et des conditions expérimentales associées à chaque spectre (altitude, température, pression).

b. Avantages / inconvénients de la méthode DETEC

Les méthodes d'analyse spectrale présentées se basent sur la seule détection des pics d'absorption totale des spectres. Le principal avantage de ces méthodes est de ne pas nécessiter une connaissance préalable des radionucléides présents dans le spectre. La méthode basée sur la détection des pics présente de bons résultats en termes de limites de détection (Guillot, 2001) et elle est utilisable en temps réel (avec un temps d'acquisition standard de 1 seconde). Cependant, les pics détectés peuvent ne contenir qu'un faible nombre de coups et rendre l'analyse très peu précise. En effet, la variation statistique du nombre de coups dans ce pic peut être importante notamment à hautes énergies. À basse énergie, la modélisation du fond continu sous les pics peut entraîner une incertitude élevée sur le résultat de la mesure. Le faible rapport pic/fond rencontré dans les spectres obtenus en spectrométrie gamma aéroportée ne permet pas toujours de quantifier avec précision l'activité du radionucléide rencontré.

2 Méthode des fenêtres

a. Présentation

La méthode des fenêtres, aussi appelée méthode de stripping (ou déconvolution spectrale), est utilisée par le CEA. Cette méthode est préconisée par l'AIEA⁷ (IAEA, 1991) et repose sur l'analyse du taux de comptage dans un nombre limité de fenêtres énergétiques d'un spectre. Ces dernières sont centrées sur les raies d'émission majeures des radionucléides à mettre en évidence. Le comptage dans chaque fenêtre est ensuite décomposé sous la forme d'une somme de contributions indépendantes, représentatives des différents radionucléides présents sur le site.

Cette méthode est particulièrement employée dans le cas d'une mesure de la radioactivité naturelle et peut être étendue à d'autres radionucléides dans le cadre de la surveillance environnementale (Sanderson, et al., 1989). La Figure III-2 présente un exemple de choix de fenêtres énergétiques. Ces fenêtres sont centrées sur les énergies de 662 keV (¹³⁷Cs), 1 461 keV (⁴⁰K), 1 764 keV (²¹⁴Bi descendant de ²³⁸U) et 2 615 keV (²⁰⁸Tl descendant de ²³²Th).

⁷ AIEA : Agence Internationale de l'Energie Atomique

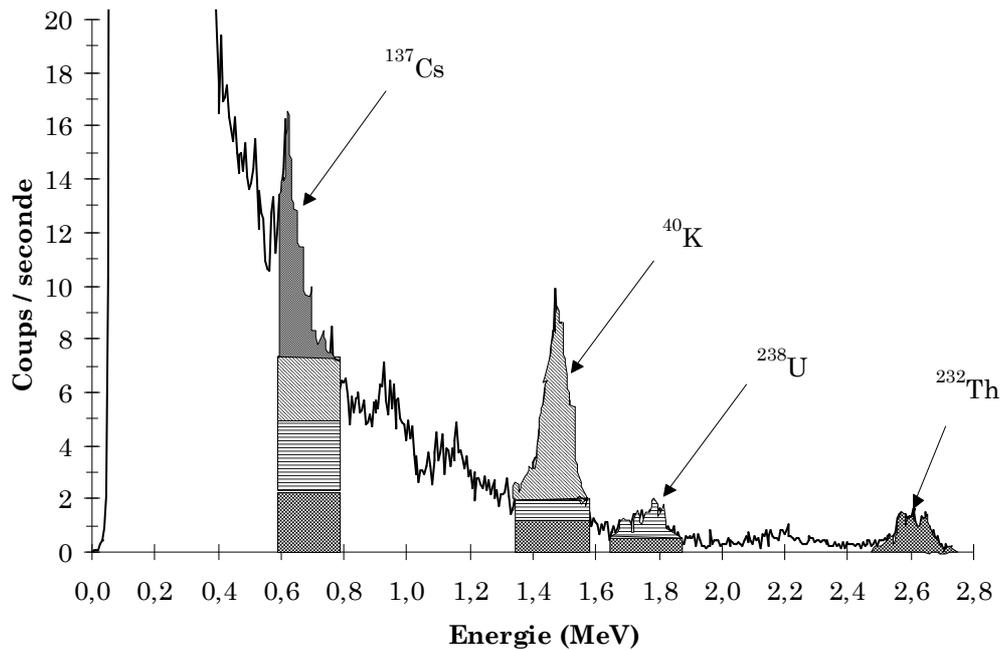


Figure III-2. Exemple de fenêtres énergétiques d'intérêt utilisées dans la méthode des fenêtres.

Cette méthode nécessite d'estimer, pour chaque fenêtre énergétique, la contribution des radionucléides d'énergies supérieures qui entraînent un fond de diffusion aux énergies plus basses. Il est ainsi nécessaire de définir des coefficients de déconvolution, aussi appelés coefficients de stripping, afin de prendre en compte chaque contribution (par exemple la contribution du ^{214}Bi dans le pic ^{137}Cs). Ces derniers peuvent être obtenus expérimentalement à partir de sources mono-élémentaire ou numériquement à partir de calculs Monte-Carlo d'interactions des rayonnements avec la matière.

Ainsi, après avoir soustrait le bruit de fond dû à l'appareillage, au radon et aux rayonnements cosmiques, la contribution de chacun des radionucléides est obtenue par inversion de la matrice des coefficients de stripping :

$$\begin{bmatrix} Cs/Cs & Cs/K & Cs/U & Cs/Th \\ K/Cs & K/K & K/U & K/Th \\ U/Cs & U/K & U/U & U/Th \\ Th/Cs & Th/K & Th/U & Th/Th \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} CN_{Cs} \\ CN_K \\ CN_U \\ CN_{Th} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} CT_{Cs} \\ CT_K \\ CT_U \\ CT_{Th} \end{bmatrix} \quad (\text{III-1})$$

Avec :

- X/Y : coefficients de déconvolution : rapport entre le comptage induit par l'élément Y dans la fenêtre énergétique de l'élément X et le comptage induit par l'élément Y dans sa propre fenêtre énergétique ;
- CN_X : comptage net induit par l'élément X dans sa fenêtre énergétique ;
- CT_X : comptage totale dans la fenêtre de l'élément X.

b. Avantages / inconvénients de la méthode des fenêtres

L'avantage de cette méthode est qu'elle est relativement simple à implémenter, nécessite un temps de calcul plus faible que la majorité des autres méthodes d'identification et permet d'obtenir des limites de détection basses (Cresswell, et al., 2006).

Le principal inconvénient de cette méthode est qu'elle nécessite une connaissance préalable des radionucléides présents sur le site de mesure. La présence sur le spectre de radionucléides sans prise en compte de fenêtres énergétiques correspondantes entraînerait une erreur dans l'évaluation des activités des autres radionucléides. Par exemple la présence de ^{60}Co sans fenêtre énergétique sur ses raies d'énergies à 1 173 keV et 1 333 keV conduirait à une surestimation de la contribution de ^{137}Cs . Le second inconvénient de cette méthode est de ne permettre la détection et l'identification que d'un nombre limité de radionucléides. En effet la fenêtre énergétique définie pour un radionucléide étant large, les radionucléides ayant des énergies proches de l'énergie sur laquelle est centrée la fenêtre ne pourront pas être identifiés.

3 Méthode d'extraction d'une signature gamma à basse énergie (Méthodes 2 fenêtres et 3 fenêtres)

a. Présentation

La présence d'un fond de diffusion relativement intense aux basses énergies (< 400 keV) rend difficile l'identification des radionucléides émettant des rayonnements gamma à ces énergies. C'est le cas notamment du ^{131}I , produit de fission (traceur accident réacteur) émettant à une énergie de 364 keV et du ^{241}Am , traceur du Pu en cas d'accidents d'armes émettant à une énergie de 59 keV.

Deux méthodes d'identification de radionucléides émetteurs gamma à basse énergie appelées « méthode 2 fenêtres » et « méthode 3 fenêtres » (ou 2W et 3W) ont été développées aux Etats-Unis (Hendricks, 1975) et implémentées par le CEA (Martin-Burtart, et al., 2012b). Ces méthodes reposent sur la sélection de fenêtres énergétiques autour de l'énergie du radionucléide d'intérêt. Elles ont été particulièrement optimisées pour la détection de la présence de ^{241}Am et la quantification de ce radionucléide.

Ces méthodes, qui se basent sur le rapport du nombre de coups entre 2 ou 3 fenêtres énergétiques, utilisent le fait que le rapport du nombre de coups entre deux fenêtres énergétiques est constant en présence d'une variation du bruit de fond naturel. Elles permettent donc de détecter la présence du radionucléide d'intérêt en s'affranchissant du bruit de fond.

La méthode 2W appliquée à ^{241}Am revient à sélectionner une fenêtre énergétique centrée sur le pic de 59 keV de ^{241}Am (fenêtre IW) et une fenêtre à plus haute énergie (fenêtre HEW) ne contenant que des contributions du bruit de fond. La méthode 3W repose sur l'utilisation d'une troisième fenêtre à plus basse énergie (fenêtre LEW) que la fenêtre de ^{241}Am qui permet d'interpoler le fond Compton à l'aide de la fenêtre de plus haute énergie. La configuration de ces fenêtres énergétiques est présentée sur la Figure III-3.

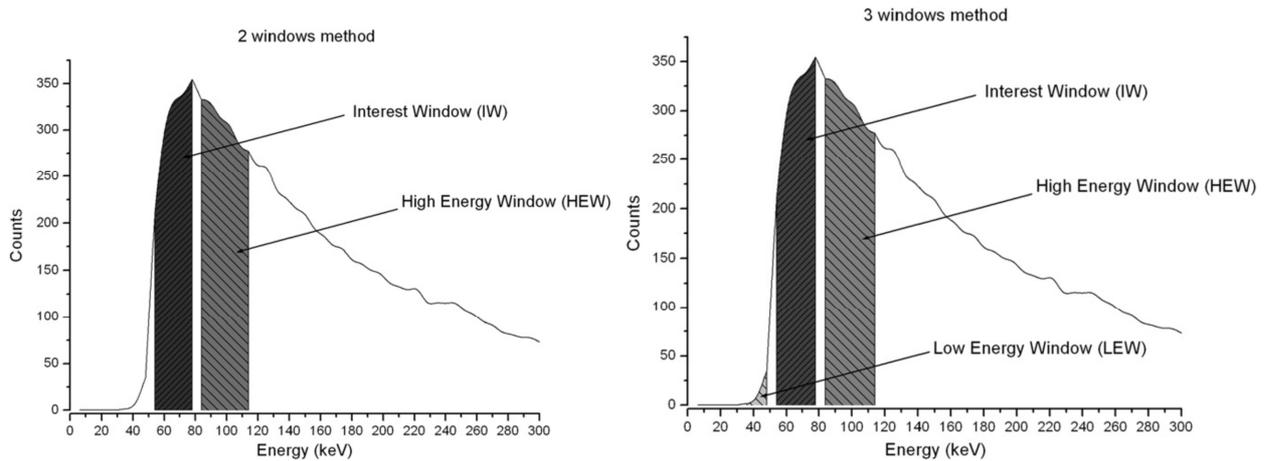


Figure III-3. Configuration des fenêtres énergétiques pour les méthodes 2W et 3W autour du pic de 59 keV de ^{241}Am (Martin-Burtart, et al., 2012b).

Les taux de comptage nets CR_{2W} et CR_{3W} pour les méthodes 2W et 3W sont alors obtenus pour chaque spectre à partir des équations suivantes :

$$CR_{2W} = IW - S_{2W} \cdot HEW \quad (\text{III-2})$$

$$CR_{3W} = IW - S_{3W} \cdot (LEW + HEW) \quad (\text{III-3})$$

Où :

- IW, LEW, HEW : taux de comptage dans les fenêtres IW, LEW, HEW ;
- S_{2W} et S_{3W} : coefficients de bruit de fond déterminés sur les zones survolées représentant le bruit de fond.

S_{2W} et S_{3W} prennent en compte les caractéristiques géologiques du sol à une altitude définie et sont obtenus à partir des équations suivantes :

$$S_{2W} = \frac{IW_{BDF}}{HEW_{BDF}} \quad (\text{III-4})$$

$$S_{3W} = \frac{IW_{BDF}}{LEW_{BDF} + HEW_{BDF}} \quad (\text{III-5})$$

Les variations d'altitude sont prises en compte par une correction de ces coefficients de bruit de fond en fonction de l'altitude, obtenue empiriquement à partir du survol de zone de bruit de fond à différentes altitudes.

b. Avantages / inconvénients des méthodes 2W/3W

Le principal avantage de cette méthode est de pouvoir détecter en temps réel les radionucléides dont les énergies d'émission gamma se situent à basse énergie, typiquement en-dessous de 400 keV.

C'est une méthode simple au niveau du développement informatique et qui présente une grande rapidité en temps de traitement.

La nécessité de centrer les fenêtres énergétiques sur le radionucléide d'intérêt suppose cependant une connaissance a priori des radionucléides d'intérêts.

Aux énergies plus élevées, typiquement au-dessus de 400 keV, les résultats obtenus en vol, en termes de détection spatiale de sources sont meilleurs que ceux obtenus avec la méthode des fenêtres recommandées par l'AIEA (IAEA, 1991). Cependant ces résultats sont moins précis que ceux obtenus avec des méthodes plus générales permettant à la fois l'identification et la détection comme par exemple la méthode de détection des pics DETEC (Figure III-4). La méthode de détection de pics DETEC présente ainsi une limite de détection légèrement plus basse que la méthode 2W ou 3W.

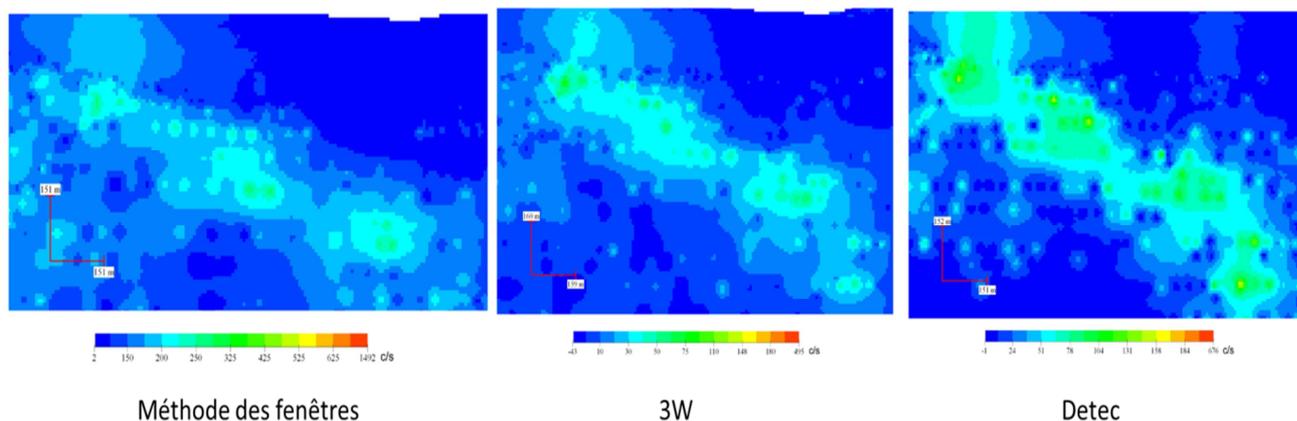


Figure III-4. Détection d'une contamination en ^{137}Cs avec la méthode des fenêtres, la méthode 3W et Detec.

4 Méthode d'ajustement de spectres à partir de spectres élémentaires (algorithme GISCE)

a. Présentation

Le principe de l'algorithme GISCE (Gamma Identifier and Self Confident Estimator) (CEA, 25/11/2009) est de décomposer le spectre mesuré en une somme de spectres contenus dans une bibliothèque de référence. Ces données peuvent provenir d'expériences ou de simulations Monte Carlo. Cette bibliothèque de référence peut être interprétée comme un tableau contenant n spectres (colonnes) et m canaux (lignes). L'équation suivante traduit cette décomposition :

$$Y(x_i) = \sum_{j=1}^n \alpha_j \times f_j(x_i) \quad (\text{III-6})$$

Avec :

- n : nombre de spectres dans la bibliothèque de référence ;
- x_i : $i^{\text{ème}}$ canal avec $i = 1, \dots, m$;
- m : nombre de canaux ;
- $Y(x_i)$: le spectre enregistré ;
- $f_j(x_i)$: $j^{\text{ème}}$ spectre issu de la bibliothèque de référence ;
- α_j : activité du radionucléide j avec $j = 1, \dots, n$.

Ce système peut être écrit sous forme matricielle :

$$Y = F \times \theta \quad (\text{III-7})$$

Avec :

- Y : matrice colonne à m lignes contenant les spectres enregistrés $Y(x_m)$.
- F : matrice rectangulaire à m lignes et n colonnes contenant les $f_n(x_m)$;
- θ : matrice colonne à n lignes contenant les α_n ;

Méthode de résolution

Le système d'équations linéaires est résolu au sens des moindres carrés. La méthode des moindres carrés revient à minimiser la différence quadratique entre le spectre enregistré et le spectre ajusté :

$$f(\alpha_i) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^m \left(Y_i - \sum_{j=1}^n \alpha_j f_j(x_i) \right)^2 = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^m \left(Y_i^2 - 2Y_i \sum_{j=1}^n \alpha_j f_j(x_i) + \left(\sum_{j=1}^n \alpha_j f_j(x_i) \right)^2 \right) \quad (\text{III-8})$$

Soit, sous forme matricielle : $f(\theta) = \frac{1}{2} \theta^T A \theta - \theta^T B + C$

Avec :

- $B = F^T Y$;
- $A = F^T F$;
- $C = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^m Y_i^2$.

Le minimum de la fonction $f(\theta)$ est atteint lorsque la dérivée de cette fonction par rapport à θ est nulle soit :

$$\frac{\partial f(\theta)}{\partial \theta} = A\theta - B = 0 \Leftrightarrow A\theta = B \quad (\text{III-9})$$

Les activités des différents radionucléides sont déterminées en résolvant l'équation $A\theta = B$. Cette résolution peut être réalisée de différentes manières. L'application de contraintes sur les résultats finaux permet d'éviter d'obtenir des solutions non-physiques. Deux types de résolutions peuvent alors être envisagés :

- Une résolution des activités sans prise en compte de contrainte ;
- Une résolution des activités des radionucléides avec une contrainte de positivité sur les activités des radionucléides. Cette contrainte découle du fait qu'une activité négative n'a pas de sens physique.

b. Avantages/inconvénients de la méthode GISCE

La méthode présentée permet d'imposer ou non des contraintes de positivité sur les activités des spectres. La Figure III-5 permet de comparer les résultats obtenus en fonction de la méthode d'ajustement utilisée.

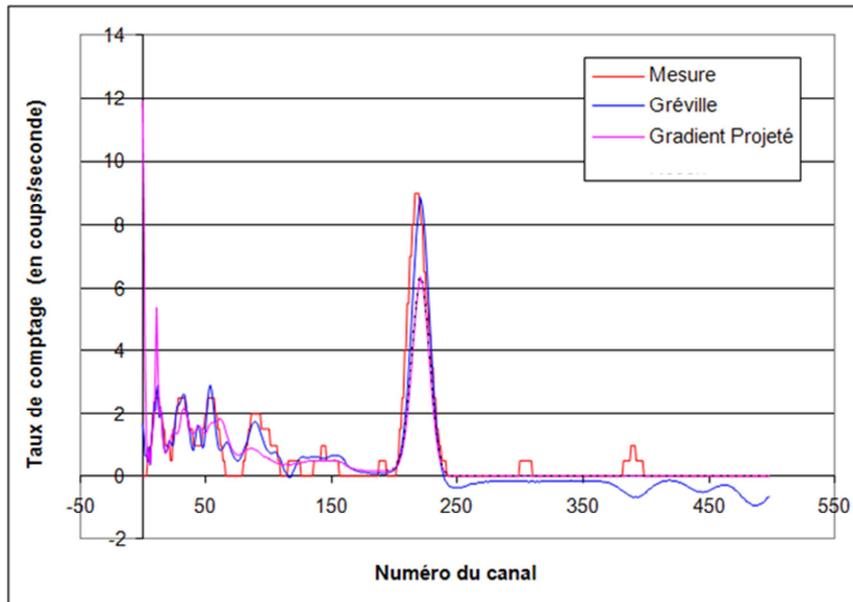


Figure III-5. Comparaison des différentes méthodes de résolution.

Avec la méthode d'ajustement du gradient projeté (Faye, 2011-2012) qui permet d'introduire des contraintes de positivité dans l'ajustement, le pic d'absorption totale n'est pas aussi bien reconstruit qu'avec la méthode de Gréville (Borne, 2000). Cependant la méthode de gradient projeté permet d'éviter d'ajuster le spectre à partir de valeurs négatives qui n'ont pas de sens physique.

Les zones énergétiques en dessous de 400 keV sont mal reconstruites par l'application de cette méthode. Les tests réalisés font ressortir que l'algorithme GISCE ne permet pas de remonter aux radionucléides présents dans une source mono-élémentaire de faible activité et possédant une raie gamma de faible énergie (par exemple ^{201}Tl).

Compte tenu de l'ajustement du spectre canal par canal par des spectres contenus dans la bibliothèque de référence, cette méthode est plus coûteuse en temps de calcul que les méthodes de recherche de pics ou de déconvolution par fenêtre (méthode des fenêtres). Cette méthode est donc plus complexe à mettre en œuvre dans le cas d'analyse en temps réel. L'algorithme présenté n'a d'ailleurs été testé que dans le cas d'une balise terrestre.

En toute rigueur, la méthode des moindres carrés n'est pas la méthode la plus adaptée dans le cas de faibles taux de comptage rencontrés lors des mesures aéroportées. Compte tenu de la faible statistique de comptage, le nombre de coups détectés dans chaque canal suit une distribution de Poisson. Ainsi, l'ajustement de spectres canal par canal devrait être réalisé à partir de méthodes d'ajustement adaptées à cette distribution, comme par exemple la méthode du maximum de vraisemblance (Muravski, 1998).

Enfin, le principal inconvénient dans l'utilisation d'une telle méthode provient de la constitution de la bibliothèque de référence. Celle-ci doit être adaptée de manière précise à chacun des profils spectraux des différents radionucléides en fonction du site analysé. La réelle difficulté d'une telle méthode ne provient donc pas de la méthode de résolution (moindre carré, maximum de vraisemblance,...) mais de la définition d'une bibliothèque réaliste et adaptée à chaque site survolé.

5 Méthode d'analyse en composantes principales du spectre total

La technique d'analyse en composantes principales permet de décomposer les spectres enregistrés en un certain nombre de spectres élémentaires, appelés composantes, tout en supprimant les corrélations entre ces composantes. C'est une méthode d'analyse du spectre total, c'est-à-dire que l'intégralité de l'information contenue dans le spectre enregistré est utilisée. Cette technique d'analyse en composantes principales permet d'exprimer différents degrés de variance de spectres à partir de spectres non corrélés. C'est une méthode basée sur l'analyse statistique multivariée d'un jeu complet de spectres : les contributions des différents radionucléides sont obtenues à partir de l'ensemble des spectres d'une campagne de mesures.

a. Présentation

La méthode NASVD (Noise Adjusted Singular Value Decomposition) (Hovgaard, 1997) permet, à partir d'une décomposition en valeurs singulières, de décomposer linéairement le spectre enregistré en vol en une série de formes spectrales non corrélées entre elles, appelées composantes spectrales (CS).

Ces différentes composantes non corrélées entre elles permettent d'exprimer la covariance⁸ des spectres de façon décroissante. La composante spectrale permettant de représenter au mieux l'ensemble des spectres expérimentaux n'est autre que la moyenne de ces spectres expérimentaux. Les composantes suivantes expriment donc chacune à leur tour, la covariance non exprimée par les composantes précédentes.

Ainsi, une série de n spectres mesurés, codés sur k canaux, peut être exprimée sous la forme d'une combinaison linéaire de différentes formes spectrales assujetties de leurs amplitudes respectives.

L'analyse en composantes principales repose sur la décomposition en valeur singulière (SVD). D'un point de vue mathématique, cela peut être retranscrit sous la forme :

$$X = CFS^T + \Delta \quad (\text{III-10})$$

Où :

- X : matrice d'observation représentant les n spectres de k canaux (matrice nxk) ;
- C : matrice orthonormée des concentrations des radionucléides présents dans les spectres (matrice nxm) ;
- Γ : matrice de normalisation ;
- S^T : matrice des composantes principales (matrice kxm) ;
- Δ : matrice de bruit statistique (matrice nxk).

Avec :

- n : nombre de spectres ;
- k : nombre de canaux de chaque spectre ;

⁸ La variance représente le second moment autour de la valeur moyenne. Dans le cas de l'analyse spectrale, la valeur moyenne d'une forme spectrale n'a aucun sens physique. La dispersion est donc observée autour de l'axe des abscisses du spectre. Les valeurs négatives ne sont donc pas exclues dans la représentation des composantes principales.

- m : dimension du problème.

Les rayonnements gamma enregistrés par voie aéroportée suivent une distribution de Poisson. Une des propriétés d'une telle distribution est que la variance du bruit est égale à l'amplitude du signal.

Si la première valeur propre ressortant de l'équation ci-dessus est grande par rapport aux autres, alors cette valeur propre va représenter la majorité du signal et correspond en soi à une bonne estimation de la variance.

Il est alors possible de normaliser la matrice d'observation X par l'écart-type représentant la dispersion des mesures pour obtenir la matrice X' normalisée.

$$X' = \frac{X}{\sqrt{c_1 \gamma_1 s_1^T}} \quad (\text{III-11})$$

Où :

- c_1 : valeurs de la première colonne de la matrice C ;
- γ_1 : première valeur propre de la matrice Γ (valeur propre dominante) ;
- s_1^T : valeurs de la première ligne de la matrice S^T .

Cette normalisation permet de s'assurer que la variance du bruit statistique est la même pour les différents spectres de la matrice d'observation.

Les composantes principales (avec leurs amplitudes associées) sont obtenues et classées à partir de leurs valeurs propres, en fonction de l'importance de leur contribution au spectre expérimental.

Ainsi, il est possible de supprimer le bruit statistique en ne reconstruisant le spectre expérimental qu'à partir des premières composantes principales représentant effectivement de l'information spectrale. Les composantes de degrés les plus élevés représentent le bruit statistique et ne sont donc pas prises en considération pour la reconstruction du spectre. Cela revient donc à réduire la dimension du problème.

Les huit premières composantes provenant d'un jeu de données issu d'une mesure spectrométrique aéroportée au Nevada sont présentées sur la Figure III-6 (Hovgaard, et al., 1998). Les conditions de survol sont les suivantes :

- détecteur utilisé : NaI(Tl) 16,8 litres ;
- altitude moyenne : 120 m ;
- espacement entre les lignes de survol : 400 mètres.

La première composante spectrale représente la moyenne de l'intégralité des spectres du jeu de données. Les pics d'absorption totale du ^{40}K et des descendants du ^{238}U (^{214}Bi) et du ^{232}Th (^{208}Tl) constituent pour l'essentiel cette première composante.

La deuxième composante principale fait ressortir une signature négative de l'ensemble des raies de ^{214}Bi , qui peut être interprétée comme une forte variation du radon dans l'air durant la mesure.

Le pic négatif de thorium présent sur la troisième composante permet par association des trois premières composantes de recréer un spectre comportant des proportions variées de ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th .

L'allure de la quatrième composante peut être interprétée comme la conséquence de la différence de parcours des photons pour atteindre le détecteur suivant qu'ils aient pour origine le radon dans l'air ou l'uranium et ses descendants provenant du sol.

L'allure de la cinquième composante comportant une légère asymétrie entre les pics positifs et les pics négatifs qui les suivent traduit une dérive du spectromètre durant la mesure. En effet, ajouter cette composante à la première composante représentant le spectre moyen entraîne un déplacement des pics de ^{214}Bi , ^{40}K et ^{208}Tl vers les basses énergies.

Les fréquences d'oscillation plus élevées des pics sur les composantes suivantes traduisent principalement le bruit statistique.

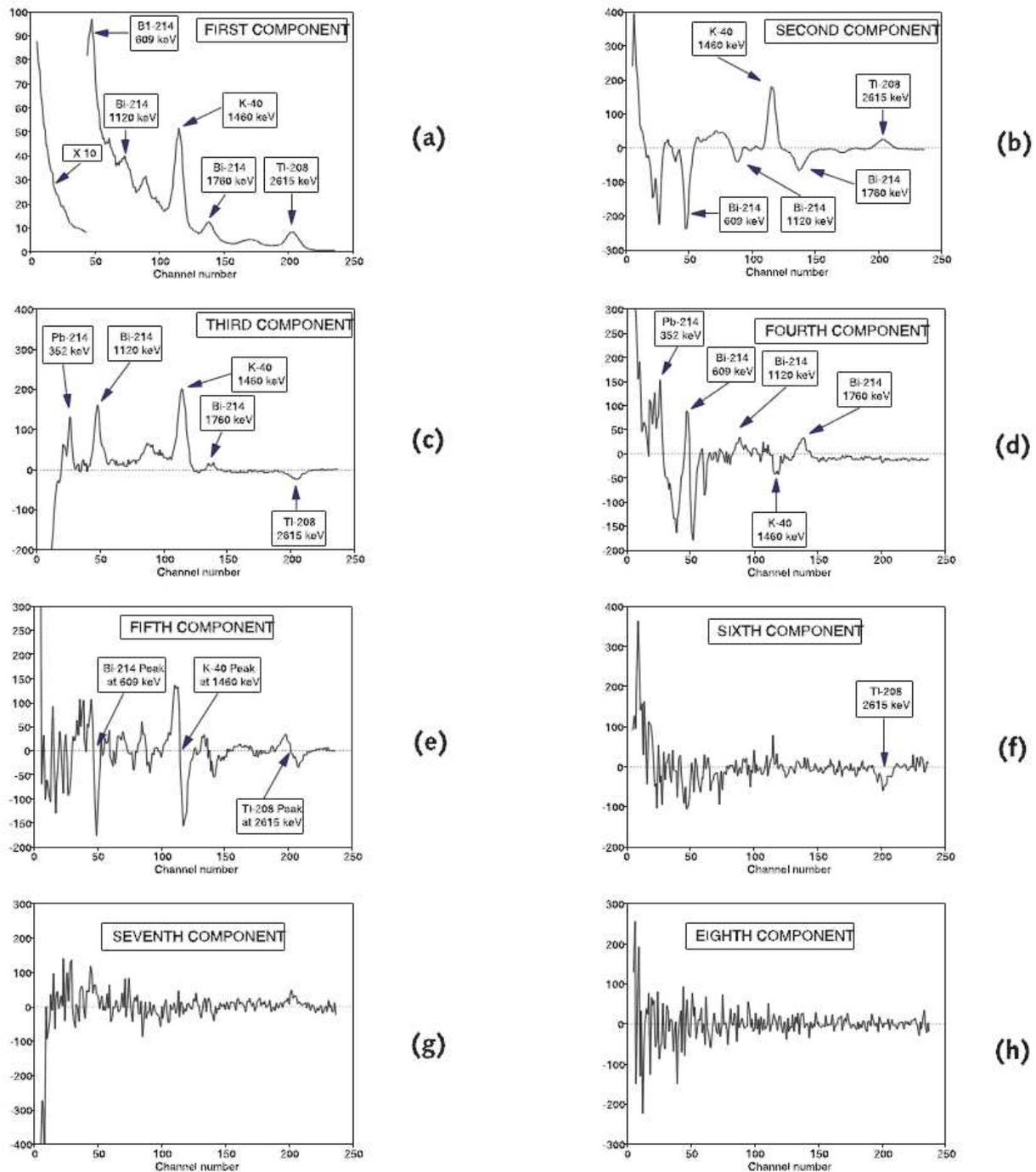


Figure III-6. Présentation des 8 premières composantes principales provenant d'un jeu de données issu d'une mesure spectrométrique aéroportée au Nevada (Hovgaard, et al., 1998) (Note : les amplitudes des différents spectres sont arbitraires).

Les composantes principales déterminées peuvent par la suite être utilisées directement ou indirectement pour déterminer les concentrations des radionucléides d'intérêt.

Méthode directe

Les composantes déterminées n'apportent pas directement l'information sur la quantification des radionucléides d'intérêt. Il est nécessaire d'appliquer un calcul supplémentaire via une matrice de transformation A_j avec j le nombre de radionucléides d'intérêt à quantifier. Cette matrice permet la transformation des composantes

spectrales en composantes représentatives de chacun des radionucléides d'intérêt. La matrice de transformation relie la composante spectrale principale des radionucléides d'intérêt à la composante spectrale principale initiale. Une autre méthode a été mise au point à partir de la technique NASVD et permet d'atteindre des limites de détection relativement basses ($< 1\text{ kBq/m}^2$ pour le ^{137}Cs) (Aage, et al., 1999).

Méthode indirecte

La méthode d'analyse en composantes principales peut également être utilisée comme filtre. En effet les composantes principales de degrés les plus élevés ne représentent que le bruit statistique. La reconstruction des spectres sans utiliser ces composantes de degré supérieur permet alors de filtrer statistiquement le spectre. Des méthodes standards comme la méthode des fenêtres (III.2) peuvent ensuite être appliquées sur les spectres filtrés, permettant d'obtenir les concentrations des radionucléides d'intérêt dont les incertitudes associées sont significativement plus faibles (Hovgaard, et al., 1998).

b. Avantages/inconvénients

Dans le cas de la méthode directe, il est difficile de séparer deux radionucléides présents dans les mêmes proportions sur l'ensemble des spectres. Les différentes composantes ne sont pas toujours représentatives d'un seul radionucléide, ce qui rend la détermination des concentrations complexe.

L'interprétation des spectres sous formes de composantes principales reste à la charge de l'opérateur. Cependant, l'interprétation de ces composantes principales peut fournir des informations supplémentaires notamment sur la présence de radon ou sur la stabilité du spectromètre utilisé.

Utilisée comme technique de filtrage, l'analyse en composante principale d'une série de spectres est très efficace. En effet, elle permet de supprimer le bruit à partir d'une analyse statistique contrairement à des filtres plus classiques s'appuyant sur une analyse mathématique du spectre. Cependant, le comportement d'une telle méthode de filtrage dépend fortement des mesures et de la covariance qu'elles présentent.

Cette méthode repose sur une étude statistique et requiert donc un large jeu de données. Cette méthode n'est donc pas applicable dans le cadre de zones de petites tailles et le traitement en temps réel est impossible.

6 Méthode d'ajustement de spectres à partir de l'analyse en composantes principales

a. Présentation

La méthode d'ajustement de spectres à partir de l'analyse en composantes principales (Minty, et al., 1998) a été développée dans le but d'améliorer les résultats obtenus avec la méthode standard des fenêtres dans l'estimation des concentrations des radionucléides ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th . Cette méthode, utilisée dans le cadre de la spectrométrie gamma aéroportée, utilise l'ensemble des informations contenues dans tous les canaux constituant chaque spectre. La méthode se base sur la modélisation d'un spectre réel à partir de composantes spectrales acquises durant la calibration du détecteur. La méthode est utilisée avec des détecteurs NaI(Tl) de 32 litres. À la différence de la méthode précédente, chaque composante spectrale est caractéristique d'un radionucléide donné. L'analyse en composantes principales est dans ce cas réalisée en se basant sur les spectres issus de la calibration.

La méthode peut être décomposée en plusieurs étapes :

- détermination expérimentale des composantes spectrales en fonction de la hauteur source-détecteur ;
- estimation de la hauteur effective entre la source et le détecteur lors de la mesure. La hauteur effective prend en compte la hauteur sol-détecteur, l'écrantage de matériau non-radioactif et la variation de la distribution des radionucléides d'intérêt (^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th) ;
- détermination du taux de comptage pour chacun des radionucléides d'intérêt à partir des composantes spectrales élémentaires obtenues à partir de la hauteur effective et permettant de reconstruire au mieux le spectre expérimental ;
- détermination des concentrations des différents radionucléides à partir des taux de comptages respectifs.

Cette méthode utilise une compression du spectre en 21 canaux pour l'estimation de la hauteur effective et de la détermination du taux de comptage. Cette compression en 21 canaux permet l'utilisation de la méthode des moindres carrés pondérés et réduit l'effet des erreurs de calibration (Minty, et al., 1998).

Les différentes étapes de la méthode sont détaillées ci-après.

Détermination expérimentale des composantes spectrales

La méthode présentée a pour but de déterminer la concentration des radionucléides naturels ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th dans le sol. Les spectres enregistrés expérimentalement sont considérés comme étant une combinaison de composantes spectrales représentant le bruit de fond (dû à l'appareillage, aux rayonnements cosmiques et au radon) et de composantes spectrales représentant les radionucléides ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th .

L'allure d'un spectre enregistré à partir de détecteur aéroporté résulte de différentes interactions de rayonnements avec le détecteur et le milieu environnant. Ainsi, la distribution en énergie du spectre enregistré va dépendre au premier ordre de la source (épaisseur de la source, largeur de la source), de l'écrantage de la source (hauteur détecteur-sol, blindage de la source) et de la distribution des radionucléides pour une source considérée.

Les composantes spectrales représentatives des différents radionucléides et prenant en compte les différents phénomènes de diffusion peuvent être obtenues à partir de simulations Monte Carlo ou à partir de mesures expérimentales. Les composantes spectrales représentatives des radionucléides d'intérêt peuvent être obtenues expérimentalement à partir de trois sources parallélépipédiques de dimensions 1 m x 1 m x 0,3 m contenant respectivement de fortes concentrations de ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th (Minty, et al., 1998). Une quatrième source de même dimension et contenant les impuretés radioactives contenues dans les trois sources précédentes est utilisée pour représenter le bruit de fond des sources. Ces composantes spectrales sont déterminées pour différentes hauteurs en plaçant ces sources sous le détecteur et en blindant ces sources à l'aide de plaques de béton de différentes épaisseurs. Ce blindage permet de simuler l'atténuation des photons dans l'air pour différentes hauteurs d'air.

La calibration du bruit de fond cosmique et du bruit de fond de l'appareillage est obtenue à partir de spectres enregistrés lors du survol de vastes étendues d'eau. La calibration du radon est obtenue à partir des spectres enregistrés à des altitudes importantes (1 à 4 km au-dessus du sol).

Estimation de la hauteur effective source-détecteur

À partir d'une analyse en composantes principales (ACP), il est possible de décomposer les composantes spectrales représentatives de ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th en fonction de la hauteur en une combinaison de deux composantes principales.

$$S_i(h, E) = a_i(h) \cdot f_{1i}(E) + b_i(h) \cdot f_{2i}(E) \quad (\text{III-12})$$

Avec :

- $S_i(h, E)$: composante spectrale du radionucléide i à la hauteur h ;
- f_{1i} et f_{2i} : 1^{ère} et 2^{nde} composantes principales du radionucléide i ;
- $a_i(h)$ et $b_i(h)$: amplitudes de f_{1i} et f_{2i} ;

Les amplitudes des composantes principales dépendent de la hauteur et sont définies ainsi :

$$a_i(h) = A_1 \cdot e^{-\mu_1 \cdot h} + C_1 \quad (\text{III-13})$$

et

$$b_i(h) = A_2 \cdot e^{-\mu_2 \cdot h} + C_2 \quad (\text{III-14})$$

Avec :

- $A_1, A_2, \mu_1, \mu_2, C_1$ et C_2 : paramètres dépendants du radionucléide considéré.

En considérant que les amplitudes des composantes principales (a_x et b_x) représentent les concentrations des radionucléides (respectivement $[X1]$ et $[X2]$), le spectre enregistré I_{obs} peut s'écrire sous la forme :

$$\begin{aligned} I_{\text{obs}} &= a_K(h_K) \cdot f_{1K} + b_K(h_K) \cdot f_{2K} + a_U(h_U) \cdot f_{1U} + b_U(h_U) \cdot f_{2U} + a_{Th}(h_{Th}) \cdot f_{1Th} + b_{Th}(h_{Th}) \cdot f_{2Th} \\ &= [K1] \cdot f_{1K} + [K2] \cdot f_{2K} + [U1] \cdot f_{1U} + [U2] \cdot f_{2U} + [Th1] \cdot f_{1Th} + [Th2] \cdot f_{2Th} \end{aligned} \quad (\text{III-15})$$

Cette méthode est appelée méthode paramétrique des composantes principales.

Sous réserve que les deux premières composantes principales expriment la plus grande partie de la variance, les concentrations des radionucléides $[K]$, $[U]$ et $[Th]$ sont données par les équations suivantes :

$$[K] = [K1] + [K2] \quad (\text{III-16})$$

$$[U] = [U1] + [U2] \quad (\text{III-17})$$

$$[Th] = [Th1] + [Th2] \quad (\text{III-18})$$

À partir de la méthode des moindres carrés pondérés, il est alors possible de déterminer les concentrations des radionucléides en ajustant le spectre expérimental avec les composantes principales.

Une hauteur effective moyenne sur chaque ligne de vol est obtenue à partir du ratio $\frac{[K2]}{[K1]}$. Cette hauteur effective prend en compte la hauteur sol-détecteur, l'écrantage de matériau non-radioactif et la distribution volumique moyenne des radionucléides d'intérêt (^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th) dans le sol. La hauteur mesurée à partir de l'altimètre en chaque point de la ligne de vol est combinée à la hauteur effective moyenne pour déterminer la hauteur effective en chaque point. Une des principales difficultés dans la détermination de la hauteur effective est la

présence de radon dans l'air. En effet, les zones contenant davantage de radon que la référence issue de la calibration vont entraîner une hauteur effective inférieure pour le ^{238}U que la hauteur effective réelle. La variation de la concentration de radon dans l'air va donc biaiser la hauteur effective calculée pour le ^{238}U . De plus, il existe une corrélation entre la présence de radon dans le sol et l'humidité du sol. La concentration du radon dans les premières couches de sol augmente lorsque le sol est humide (Figure III-7), ce qui entraîne une dépendance de la hauteur effective déterminée pour l'uranium à l'humidité du sol.

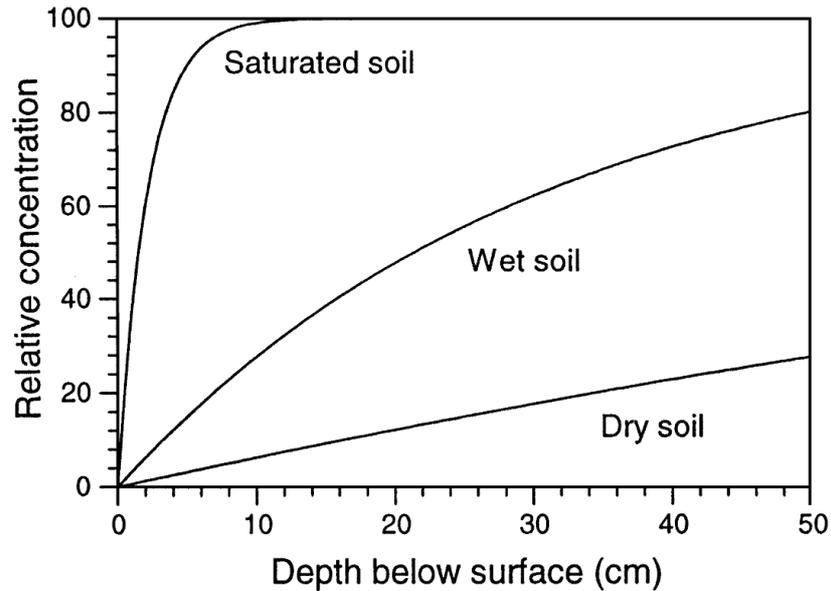


Figure III-7. Variation de la concentration du ^{222}Rn provenant du sol pour différents taux d'humidité du sol (Minty, et al., 1998).

Détermination de la concentration des radionucléides d'intérêt

La hauteur effective déterminée à partir de l'altitude mesurée par l'altimètre et de la méthode paramétrique des composantes principales, pour chaque point des lignes de vol, est utilisée pour générer une composante spectrale par radionucléide. Cette hauteur effective possède une dépendance exponentielle avec la hauteur de vol dans les conditions standards de température et de pression.

La détermination des taux de comptage de chacun des radionucléides est réalisée à partir de leur première composante spectrale principale respective. La première composante spectrale principale de chacun des radionucléides est considérée comme le spectre moyen de chacun des radionucléides.

Ainsi l'équation à résoudre devient :

$$I_{obs} = [K].f_K + [U].f_U + [Th].f_{Th} \quad (\text{III-19})$$

Celle-ci est résolue au sens des moindres carrés pondérés.

La concentration de chacun des radionucléides dans le sol est obtenue à partir des taux de comptages des différents radionucléides en utilisant des coefficients de sensibilité déterminés expérimentalement.

b. Avantages/inconvénients de cette méthode d'ajustement

La calibration est un point crucial de cette méthode. La calibration réalisée à partir de sources de faibles dimensions ne permet pas de prendre en compte la composante diffusée par effet de ciel, c'est-à-dire les rayonnements gamma diffusés par l'air et contribuant au fond continu. Ainsi, il n'est pas possible de réaliser un bon ajustement des spectres expérimentaux à partir des composantes spectrales pour des énergies inférieures à 400 keV. La calibration permet également de déterminer :

- les coefficients d'atténuation utilisés pour la correction de la hauteur ;
- les coefficients de sensibilité pour déterminer les concentrations des différents radionucléides ;
- la qualité de l'ajustement du spectre enregistré par les composantes spectrales.

Cette méthode n'a pas été conçue pour être utilisée à des énergies inférieures à 400 keV. En effet, l'utilisation du modèle paramétrique des composantes principales donne des résultats peu satisfaisants aux énergies inférieures à 400 keV lorsque la hauteur de vol est inférieure à 90 mètres.

Une possibilité permettant de mieux prendre en compte les phénomènes de diffusion des rayonnements par l'air, et par les différentes sources d'écrantage, notamment à basse énergie, serait d'utiliser les outils de simulation (code de calcul) afin de déterminer les fonctions de réponse des détecteurs en fonction ces différents paramètres.

L'utilisation de filtres statistiques basés sur l'analyse en composantes principales (III.5) est également une piste intéressante d'amélioration des résultats de cette méthode. En effet un filtrage statistique pourrait permettre un meilleur ajustement des spectres expérimentaux à partir des composantes spectrales.

Un des avantages de cette méthode réside dans la détermination de la hauteur effective entre la source et le détecteur. Cette hauteur effective permet d'estimer l'écrantage de la source et la prise en compte des différentes contributions au fond de diffusion dues à l'environnement (distribution du radon dans l'air, humidité de l'air, écrantage des radionucléides par la végétation).

Conclusion

Les différentes méthodes présentées dans ce chapitre sont dédiées à une application spécifique (recherche de sources, mesures environnementales,...) dans des domaines en énergie différents.

L'état de l'art réalisé a ainsi permis d'identifier des pistes de développement de méthodes de détection, d'identification et de quantification des radionucléides.

Les méthodes basées sur une partie du spectre (pic de pleine absorption) présentent une bonne détection des radionucléides en présence. Cependant, ces méthodes ont des lacunes au niveau de la précision des activités déterminées car elles ne considèrent qu'une faible fraction du spectre ce qui les rend plus sensibles aux fluctuations statistiques de comptage.

Une méthode basée sur l'ajustement de l'ensemble du spectre énergétique semble être plus robuste aux fluctuations statistiques de comptage lors de l'estimation de l'activité. Cependant, la qualité des résultats obtenus dépend quasiment en totalité de la bibliothèque de spectres utilisés et non de la méthode d'ajustement utilisée. La

représentativité de ces spectres par rapport aux spectres rencontrés sur sites est donc le critère de fonctionnement de cette méthode.

Les méthodes basées sur une analyse statistique des spectres semblent être les plus complètes : elles utilisent l'ensemble de l'information enregistrée. Dans un premier temps, celles-ci peuvent être couplées à une méthode « classique » de détermination des activités (par exemple la méthode des fenêtres) afin d'atténuer les fluctuations statistiques de comptage et ainsi améliorer la précision des activités déterminées.

En effet, contrairement aux filtres « mathématiques » (III.1), les filtres statistiques (III.5) se basent sur les variations de la forme du spectre déterminées à partir d'un large jeu de données. Des informations supplémentaires peuvent ainsi être retirées des spectres enregistrés, notamment la dérive éventuelle en énergie au cours du temps du spectromètre utilisé. Les performances de ces deux types de filtres dans différents cas de figure ont été testées et sont comparées au chapitre IV afin de quantifier l'apport de chacune d'entre elles.

L'utilisation de méthodes statistiques à basse énergie à la fois pour la suppression du fond de diffusion et pour la quantification d'un radionucléide est une piste d'amélioration de la précision des activités. Ces méthodes couplées à l'utilisation d'une bibliothèque spectrale représentative des activités au sol est donc envisageable.

En effet les contributions des paramètres tels que la distribution géométrique du terme source et l'écrantage de la source peuvent être ardues à estimer lors d'une calibration expérimentale. Leur estimation via des simulations Monte Carlo d'interactions rayonnement-matière est plus aisée de par la maîtrise des paramètres d'entrée. Une méthode de détection et de quantification reposant sur la combinaison d'une bibliothèque de spectres obtenus par simulation couplée à l'utilisation de filtres statistiques, est présentée au chapitre V. Cette méthode est spécifiquement dédiée au domaine des basses énergies dans le cadre de l'étude de la contamination en ^{241}Am lors d'un incident intéressant la Défense.

Enfin, une méthode permettant d'utiliser toute la puissance de l'analyse statistique multivariée lors de mesure en temps réel est développée au chapitre VI. Cette méthode vise à optimiser les blancs radiologiques réalisés lors des différentes mesures HELINUC réalisées au cours des dernières années.

D'autres pistes non présentées dans cette thèse permettraient également d'améliorer la précision des activités déterminées comme par exemple le couplage d'un algorithme de détection avec une méthode de quantification : la méthode de détection permettrait de détecter la région énergétique de l'anomalie, puis la méthode de quantification utiliserait cette information afin de sélectionner dans une bibliothèque de référence, la ou les signatures spectrales à utiliser.

IV. Etude de techniques de filtrage des fluctuations statistiques

Dans le cadre de la mesure environnementale des radionucléides naturels (^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th) et anthropiques (^{137}Cs), les méthodes utilisées au CEA sont la méthode des fenêtres recommandées par l'AIEA et la méthode DETEC, présentées au chapitre III.

Les principales sources d'erreur lors de l'estimation de l'activité d'un radionucléide déterminée à partir d'un survol à une hauteur de 40 mètres et un temps d'acquisition d'une seconde, sont les erreurs liées aux fluctuations statistiques et au calcul de l'activité au sol.

L'incertitude liée aux fluctuations statistiques est celle qui contribue le plus à l'incertitude totale lors de l'estimation des activités avec ces méthodes (Pigeon, 2005). Ces fluctuations proviennent du caractère poissonnien de la décroissance radioactive. La variation de la matrice des sources (humidité du sol, végétation, présence d'éléments agissant comme écran) mais aussi le type de distribution des radionucléides dans le sol (volumique, surfacique ou exponentielle) influent également de manière importante sur l'incertitude totale. Les autres sources d'incertitudes sont la concentration de radon dans l'air, le fond cosmique, l'efficacité du détecteur et l'atténuation de l'air.

Le but de cette partie est de comparer les performances de différentes techniques de filtrage des fluctuations statistiques présentes sur des spectres enregistrés en vol. Différentes études se sont intéressées par le passé aux méthodes de réduction de fluctuations statistiques (Hovgaard, 1997; Muring, 2005). Cependant ces études se concentraient principalement sur la réduction des fluctuations statistiques (Dickson, 1998) sans étudier en détail l'impact de l'utilisation de ces méthodes sur la reconstruction du signal (spectres ou activités). L'originalité de ce travail de thèse est de présenter une analyse détaillée tant sur la reconstruction des formes spectrales que sur l'estimation de l'activité des radionucléides. L'utilisation du travail de simulation présenté au II.4 permet de déterminer en détail l'impact du filtrage sur les formes spectrales et de mettre en avant les avantages et inconvénients des méthodes de filtrage numériques et statistiques.

1 Présentation des techniques de filtrage

Le chapitre III a montré que différentes techniques de filtrage peuvent être utilisées afin de supprimer les fluctuations statistiques. Ces techniques peuvent être classées en deux groupes :

- Les filtres qui considèrent chaque spectre indépendamment les uns des autres tels qu'une moyenne locale, un filtrage quartique, une transformée de Fourier ou un filtrage de Canny Deriche (III.1)
- Les filtres basés sur une analyse statistique des spectres enregistrés en vol qui se basent sur la covariance des spectres entre eux tel que le filtre NASVD (III.5)

a. Moyenne locale et filtrage quartique

Ces deux techniques de filtrage s'appuient sur l'ajustement d'un spectre par une fonction polynomiale de degré 0 (moyenne locale) et de degré 4 (filtrage quartique), à partir d'une méthode des moindres carrés. Le nombre de

canaux utilisés pour le lissage du spectre $(2N+1)$ évolue en fonction de la largeur à mi-hauteur obtenue à partir de l'équation (II-2). Le spectre filtré $s_f(t)$ est alors le produit de convolution du spectre initial $s_i(t)$ avec la fonction de filtrage $h(t)$:

$$s_f(t) = s_i(t) \otimes h(t) \quad (\text{IV-1})$$

Les fonctions de filtrage d'une moyenne locale et d'un filtrage quartique sont présentées en fonction du nombre N :

Moyenne locale (degré 0):

$$h(t) = \frac{1}{2N + 1} \quad (\text{IV-2})$$

Filtrage quartique (degré 4):

$$h(t) = \frac{15(15N^4 + 30N^3 - 35N^2 - 50N + 12) - 525(2N^2 + 2N - 3)t^2 + 945t^4}{4(2N + 5)(2N + 3)(2N + 1)(2N - 1)(2N - 3)} \quad (\text{IV-3})$$

Le détail de ces méthodes est donné dans (Blackburn, 1965).

b. Filtrage par transformée de Fourier

La transformée de Fourier permet de séparer les fréquences des différentes composantes d'un signal. Les bruits de toute nature sont généralement présents à haute fréquence alors que le signal recherché possède des fréquences inférieures. L'application d'un filtre passe-bas dans l'espace des fréquences puis d'une transformation inverse permet de supprimer toutes les contributions hautes fréquences du signal. Cette méthode est applicable dès lors que le signal est échantillonné par intervalles réguliers. On peut donc l'appliquer aux spectres gamma puisque le codage numérique des impulsions est effectué sur des plages énergétiques de largeur constante. La transformée discrète d'un signal de N points (x_1, x_1, \dots, x_N) produit deux jeux de valeurs :

$$\begin{cases} R_k = \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} x_j \cdot \cos\left(\frac{2\pi jk}{N}\right) \\ I_k = \frac{-1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} x_j \cdot \sin\left(\frac{2\pi jk}{N}\right) \end{cases} \quad \text{Avec } k = 0, \dots, N - 1 \quad (\text{IV-4})$$

La régénération du signal réel s'effectue par une transformation inverse :

$$x_k = \sum_{k=0}^{N-1} R_k \cos\left(\frac{2\pi jk}{N}\right) - I_k \sin\left(\frac{2\pi jk}{N}\right) \quad (\text{IV-5})$$

Les fluctuations statistiques seront supprimées à partir d'une suppression des hautes fréquences (application d'un filtre passe bas)

c. Filtre de Canny Deriche

La méthode de filtrage de Canny –Deriche (Bourenane, 1993) a été développée pour des applications liées au traitement d'image. Cette méthode est basée sur la détection de forme particulière (dans notre cas gaussienne). Les paramètres des gaussiennes sont définis à partir de l'évolution de la résolution en énergie. La résolution est reliée à la forme gaussienne S à détecter par la relation :

$$S = \frac{a}{FWHM} \times 512 \quad (IV-6)$$

Avec a une constante.

L'évolution de la résolution en énergie est prise en compte par l'équation (II-2).

d. Méthode NASVD

La méthode NASVD (Hovgaard, 1997) est basée sur l'analyse statistique multivariée appelée Décomposition en Valeurs Singulières (ou SVD pour Singular Value Decomposition en anglais). La SVD d'une matrice de m spectres de n canaux chacun, $X(m \times n)$ est donnée par :

$$X = USV^T \quad (IV-7)$$

Où $U(m \times n)$ et $V^T(n \times n)$ sont des matrices colonnes orthogonales et S est une matrice diagonale contenant les valeurs singulières. Les vecteurs propres de $X^T X$ sont les colonnes de V et les valeurs propres sont les carrés des éléments de S . Cette expression est simplifiée en regroupant les termes U et S sous un seul terme appelé concentration et noté C :

$$X = CV^T \quad (IV-8)$$

Le terme V^T contiendra alors les formes spectrales résultantes de la décomposition (appelées composantes spectrales), la concentration C représentera le coefficient multiplicateur à appliquer à chaque composante pour reconstruire chacun des spectres originels. Pour prendre en compte la distribution de Poisson des fluctuations statistiques, chaque spectre du jeu de données initiales est normalisé par la première moyenne de l'ensemble des spectres du jeu de données. La SVD transforme alors les spectres normalisés en composantes spectrales orthogonales entre elles et ordonnées suivant le degré de contribution qu'elles apportent à la reconstruction des spectres initiaux. Les formes spectrales des composantes de premier ordre présentent des corrélations entre canaux qui sont interprétées comme étant du signal. Les fluctuations statistiques ne présentant pas de corrélation d'un canal à l'autre sont présentes dans l'ensemble des composantes spectrales et deviennent dominantes dans les composantes d'ordre supérieur. Les fluctuations statistiques sont alors atténuées dans le signal reconstruit en utilisant seulement les composantes présentant un signal corrélé (composantes de premier ordre), permettant ainsi une réduction de dimension. Les composantes spectrales V^T à retenir sont déterminées à partir d'une inspection visuelle de celles-ci (détection de forme structurée).

2 Méthodologie de comparaison

L'étude des performances des différentes techniques de filtrage est réalisée à partir des spectres issus de la modélisation Monte Carlo du site 1 (chapitre II). Cette modélisation permet de procéder à l'étude à partir de spectres correspondants à une statistique de comptage qui tend vers l'infini. Ces spectres obtenus par simulation seront dénommés « spectres vrais » en référence au terme de valeur vraie utilisé en métrologie. Les données d'entrée utilisées pour la comparaison des techniques de filtrage sont ces spectres vrais auxquels auront été ajoutés des fluctuations statistiques suivant une distribution de Poisson pour chaque canal. Ces spectres bruités sont dénommés spectres bruts. La méthodologie d'obtention et de comparaison des spectres est présentée à la Figure IV-1.

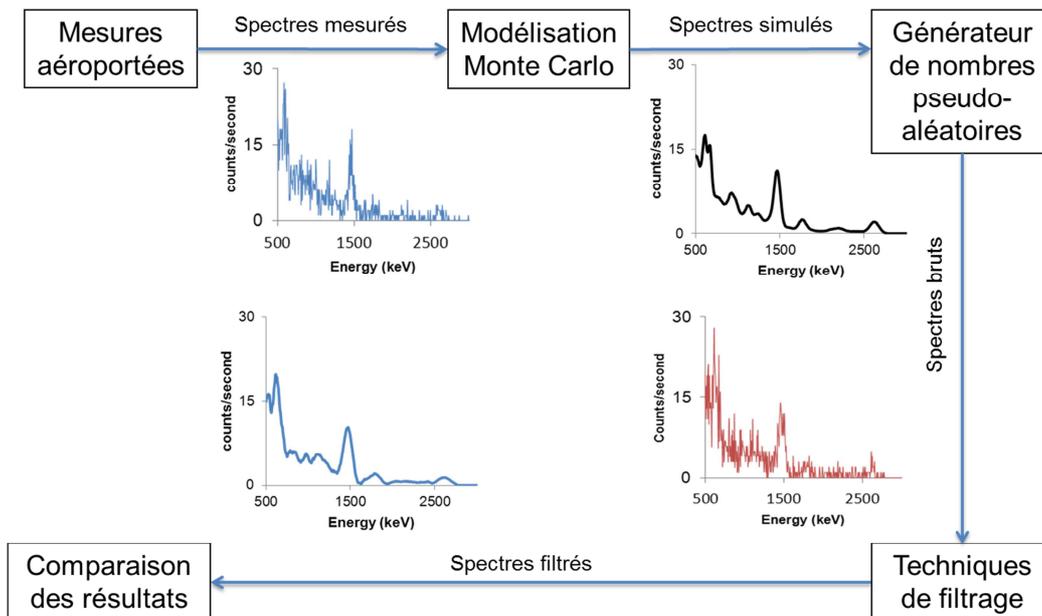


Figure IV-1. Méthodologie de d'obtention des données d'entrée et comparaison des spectres.

Les spectres bruts utilisés pour la comparaison des filtres sont obtenus avec la même graine d'initialisation (donc le même début de la séquence de nombre pseudo-aléatoires) de la distribution de Poisson, ce qui permet de comparer les différents filtres à partir des mêmes spectres bruts.

3 Etude des performances

Dans la première partie de l'étude, les erreurs sont définies comme étant la différence du nombre de coups, à chaque canal, entre les spectres filtrés et les spectres vrais. Ces erreurs sont utilisées afin de sélectionner les deux méthodes permettant d'obtenir le niveau d'erreur le plus bas. Dans un second temps, les erreurs obtenues sur l'estimation des activités par application de la méthode des fenêtres (après filtrage) serviront à déterminer le filtrage qui permet d'obtenir la valeur d'activité la plus précise lors de l'utilisation d'une méthode de déconvolution.

a. Comparaison générale

La première partie de l'étude consiste en une comparaison générale des différentes techniques de filtrage. Les différences absolues entre les spectres filtrés et les spectres vrais sont déterminées pour tous les canaux dans la gamme d'énergie comprise entre 500 keV et 3 000 keV. Les résultats sont sommés suivant les 13 lignes de vol regroupant environ 200 spectres chacune. Ces différences sont alors normalisées par le nombre de coups total dans la même gamme d'énergie afin d'obtenir des différences relatives. Ces différences relatives sont présentées à la Figure IV-2.

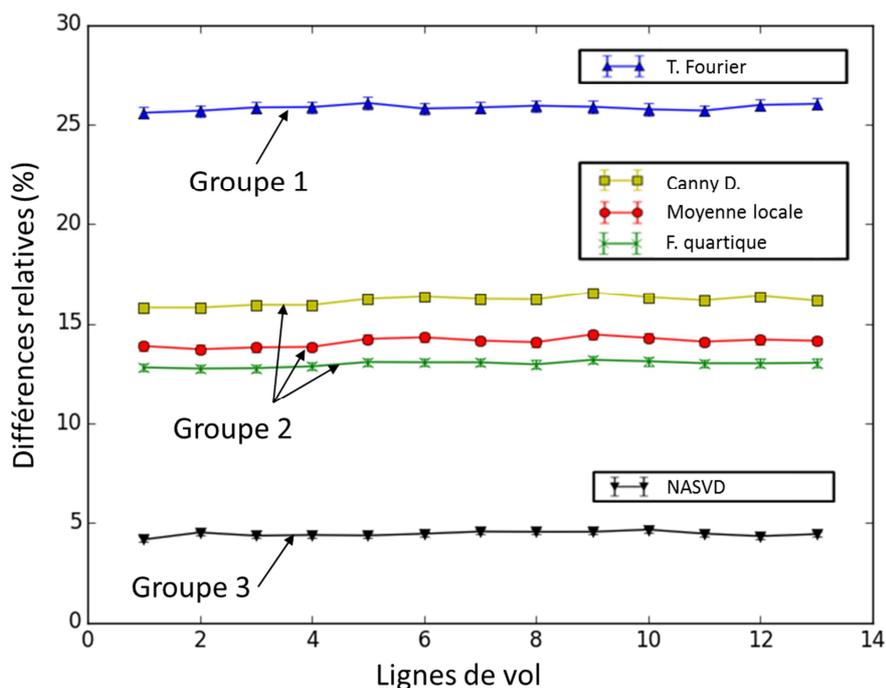


Figure IV-2. Erreur relative obtenue avec différentes techniques de filtrage suivant les 13 lignes de vol du site 1. Chaque ligne de vol regroupe environ 200 spectres.

La Figure IV-2 permet d'identifier trois groupes de filtrage en fonction du niveau d'erreur :

- Transformée de Fourier (groupe 1) ;
- Moyenne Locale, filtrage quartique et méthode de Canny-Deriche (groupe 2) ;
- Méthode NASVD (groupe 3).

La transformée de Fourier présente une erreur environ 7 fois plus importante que celle obtenue avec la méthode NASVD. Cette erreur importante est notamment due à la décomposition des spectres en fonctions sinus et cosinus conduisant à des oscillations lors du filtrage. En effet, les régions énergétiques pauvres en comptage (notamment à hautes énergies ou plusieurs canaux successifs peuvent présenter un taux de comptage nul) ne peuvent pas être correctement exprimées sous la forme de telles fonctions.

La moyenne locale et le filtrage quartique, ainsi que la méthode de Canny Deriche (groupe 2), atteignent un niveau d'erreur 3 ou 4 fois plus important que la méthode NASVD. Cela est principalement dû au manque de statistique de ces méthodes qui ne traitent qu'un spectre à la fois. La méthode NASVD (groupe 3) est la meilleure méthode en termes de réduction d'erreur. Cette méthode présente le niveau d'erreur le plus bas. Les résultats obtenus avec les méthodes NASVD et filtrage quartique sont analysés en détail dans la suite de cette section.

b. Comparaison des méthodes NASVD et de filtrage quartique : étude de cas

Les méthodes NASVD et filtrage quartique sont analysées d'un point de vue spectral et en termes d'impact sur les activités déterminées. Deux spectres ont été sélectionnés pour une étude de cas. Le premier spectre est

représentatif de la majorité des spectres du jeu de données initiales en termes d'activité des différents radionucléides (spectre 674). Le second spectre est sélectionné pour son faible taux de comptage qui le rend différent d'un point de vue statistique des autres spectres du jeu de données (spectre 2391). Ces deux spectres sont analysés en détail (Figure IV-5 et Figure IV-6).

La méthode NASVD est dépendante du jeu de spectres considéré. Il est nécessaire d'analyser les composantes spectrales à retenir pour chaque nouveau jeu de spectres (Figure IV-3 et Figure IV-4).

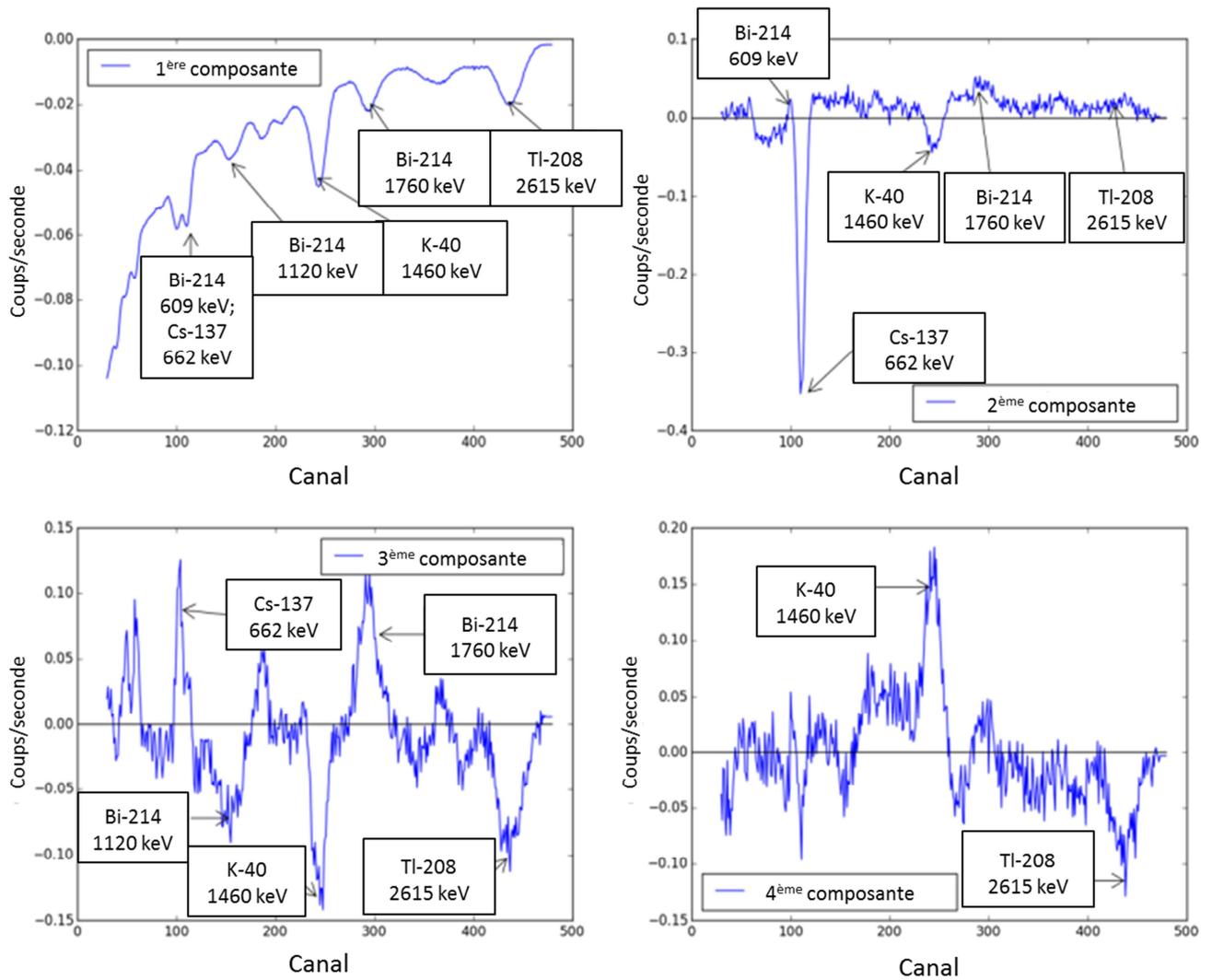


Figure IV-3. Composantes spectrales 1 à 4 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales.

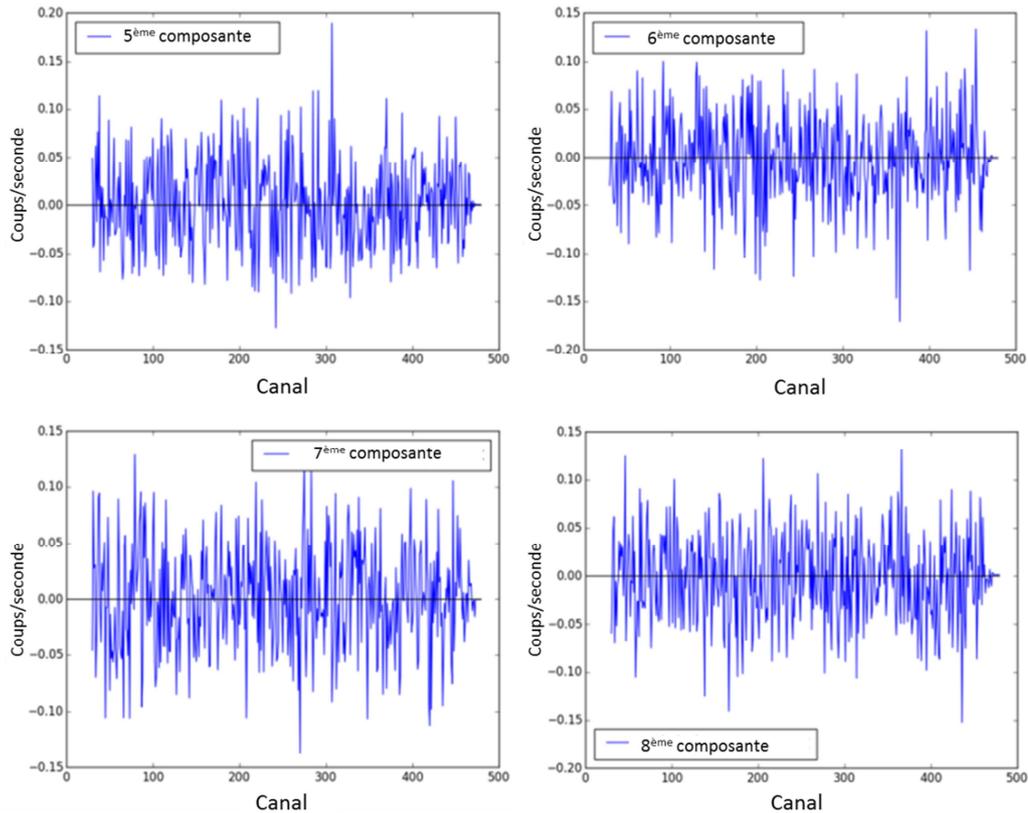


Figure IV-4. Composantes spectrales 5 à 8 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales.

Les quatre premières composantes contiennent des formes spectrales cohérentes. On peut identifier les contributions des différents émetteurs naturels présents sur l'ensemble du spectre (Figure IV-3) grâce à la corrélation du signal entre les canaux induits par la résolution en énergie du détecteur. Différentes contributions se retrouvent sur plusieurs composantes, permettant ainsi de prendre en compte les variations d'activité des différents radionucléides sur l'ensemble des spectres. Un exemple est le pic de ^{40}K présent sur les quatre composantes permettant d'ajuster l'ensemble des cas de figures rencontrés dans le jeu de données initiales. Les quatre composantes suivantes (composantes 5 à 8) contiennent en grande majorité des fluctuations statistiques qui ne présentent pas de corrélation d'un canal à l'autre (Figure IV-4). Il est à noter qu'il existe autant de composantes spectrales que de canaux considérés dans la SVD. Cependant, celles-ci exprimant un degré de covariance décroissant, elles contiendront de moins en moins d'informations spectrales (donc de plus en plus de fluctuations statistiques).

Dans notre cas, l'ensemble des spectres du jeu de données initiales sera donc reconstruit à partir des quatre premières composantes spectrales. L'analyse de spectres reconstruits est présentée à la Figure IV-5.

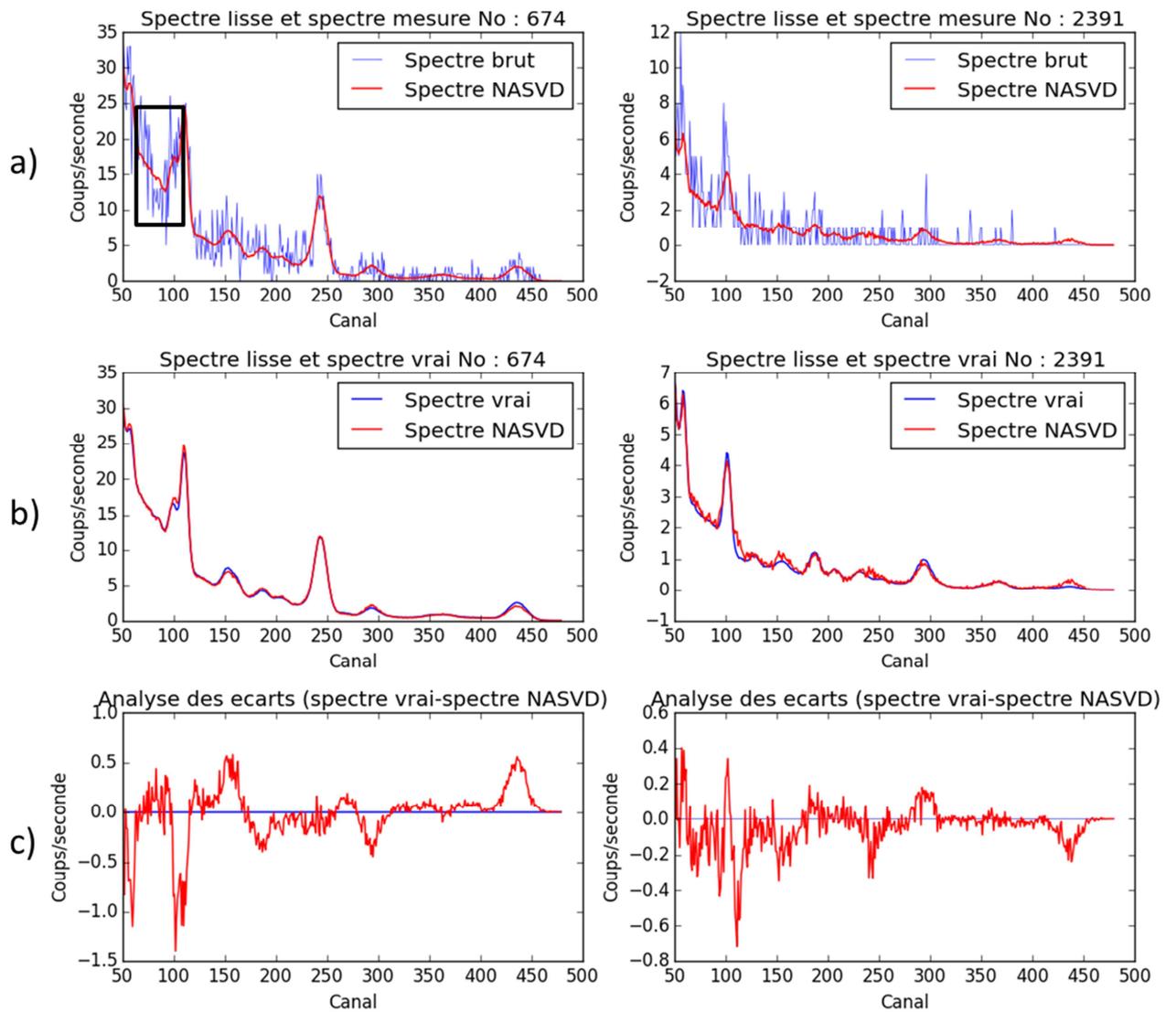


Figure IV-5. Filtrage des spectres 674 (à gauche) et 2391 (à droite) avec la méthode NASVD: a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence entre les spectres vrais et les spectres filtrés.

La Figure IV-5(a) montre que les spectres filtrés par la méthode NASVD ne suivent pas de manière stricte les spectres bruts dans certaines zones du spectre (encadré noir). Les erreurs sont cependant clairement plus faibles que celles obtenues avec un filtrage quartique (Figure IV-6) même si certaines régions spectrales sont mieux en adéquation avec le spectre vrai que d'autres (Figure IV-5 (b)). L'analyse des erreurs présentée à la Figure IV-5 (c) montre que la variation de ces erreurs est non-corrélée avec le nombre de coups.

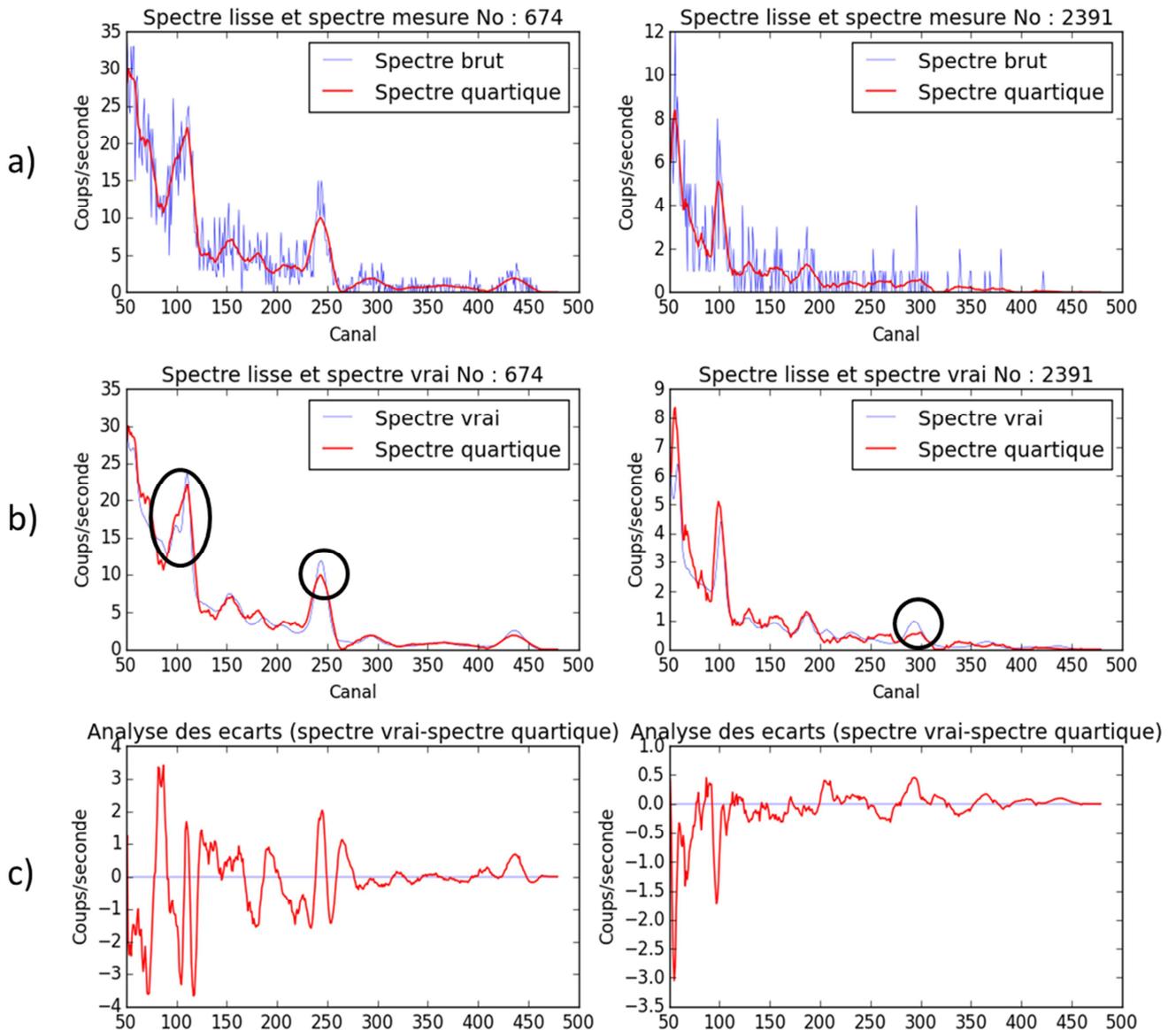


Figure IV-6. Filtrage quartique des spectres 674 (à gauche) et 2391 (à droite) : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence entre les spectres vrais et les spectres filtrés.

La Figure IV-6 permet d'apprécier l'impact du filtrage quartique sur les spectres et les écarts créés par rapport aux spectres vrais. La Figure IV-6 (a) montre que le filtrage quartique permet d'obtenir un spectre lissé composé de pics gaussiens. Cependant, en comparant les spectres vrais et les spectres filtrés, d'importantes erreurs apparaissent sur l'ensemble du spectre (Figure IV-6 (b)). Les erreurs diminuent lorsque le nombre de coups diminue (donc lorsque l'énergie augmente).

Les erreurs relatives obtenues avec les deux techniques de filtrage sont comparées Figure IV-7 et Figure IV-8 pour deux spectres typiques. Ces figures présentent les erreurs induites sur chaque canal par l'utilisation des techniques de filtrage. Ces erreurs sont calculées comme étant la différence du nombre de coups de chaque canal entre le spectre filtré et le spectre vrai, normalisée par le nombre de coups du canal correspondant dans le spectre vrai.

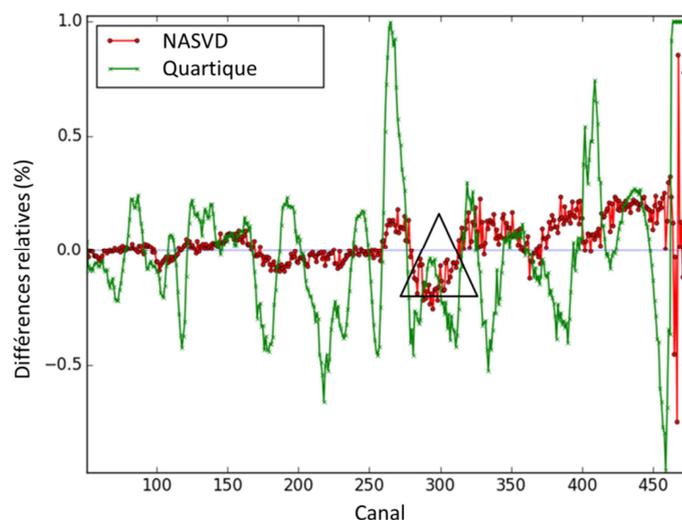


Figure IV-7. Analyse des erreurs induites par l'utilisation de filtres quartiques et NASVD sur le spectre 674. Cette analyse est présentée pour les erreurs relatives obtenues par la différence entre spectre vrai et spectre filtré normalisée par le nombre de coups dans chaque canal du spectre vrai.

Pour un spectre contenant les quatre radionucléides d'intérêt (spectre 674), la méthode NASVD est toujours plus précise que la méthode quartique, mise à part pour le ^{214}Bi (descendant de ^{238}U) présent au canal 293 (1760 keV) marqué par un triangle noir sur la Figure IV-7.

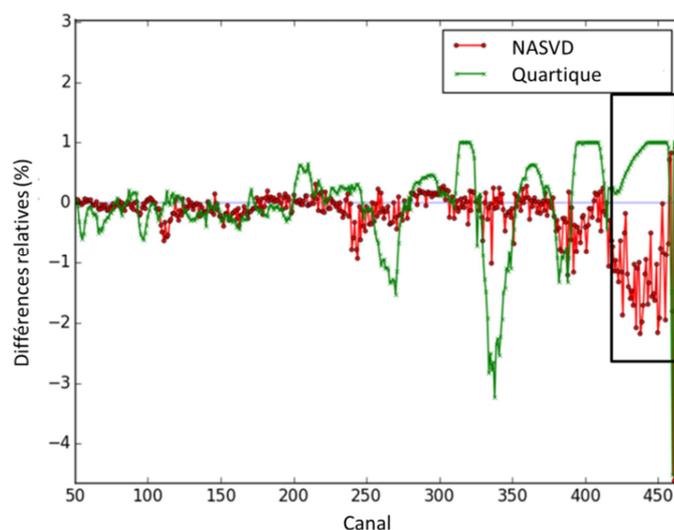


Figure IV-8. Analyse des erreurs induites par l'utilisation de filtres quartiques et NASVD sur le spectre 2391. Cette analyse est présentée pour les erreurs relatives obtenues par la différence entre spectre vrai et spectre filtré normalisée par le nombre de coups dans chaque canal du spectre vrai.

Certains spectres ne contiennent que trois des quatre radionucléides d'intérêt (^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U), comme le spectre 2391, l'activité du ^{232}Th étant en-dessous des limites de détection pour ces spectres. Dans ce cas, la méthode NASVD est encore plus précise en dehors de la région de ^{208}Tl (descendant du ^{232}Th) se trouvant autour du canal 436 (2 615 keV), signalé par l'encadré noir. Cependant, la reconstruction de spectres contenant des signatures spectrales différentes sur peu de spectres doit être étudiée (IV.3.e). Cela est typiquement le cas dans le cas d'une source orpheline d'un radionucléide anthropique, perdue sur un site (source ponctuelle).

c. Estimation des activités

Les activités de ^{232}Th , ^{238}U , ^{40}K et ^{137}Cs estimées à partir de la méthode des fenêtres avant et après application des différentes techniques de filtrage sont présentées respectivement à la Figure IV-9, Figure IV-10, Figure IV-11 et Figure IV-12. Ces activités sont exprimées en Bq/kg pour les radionucléides d'origine naturelle et en Bq/m² pour le ^{137}Cs .

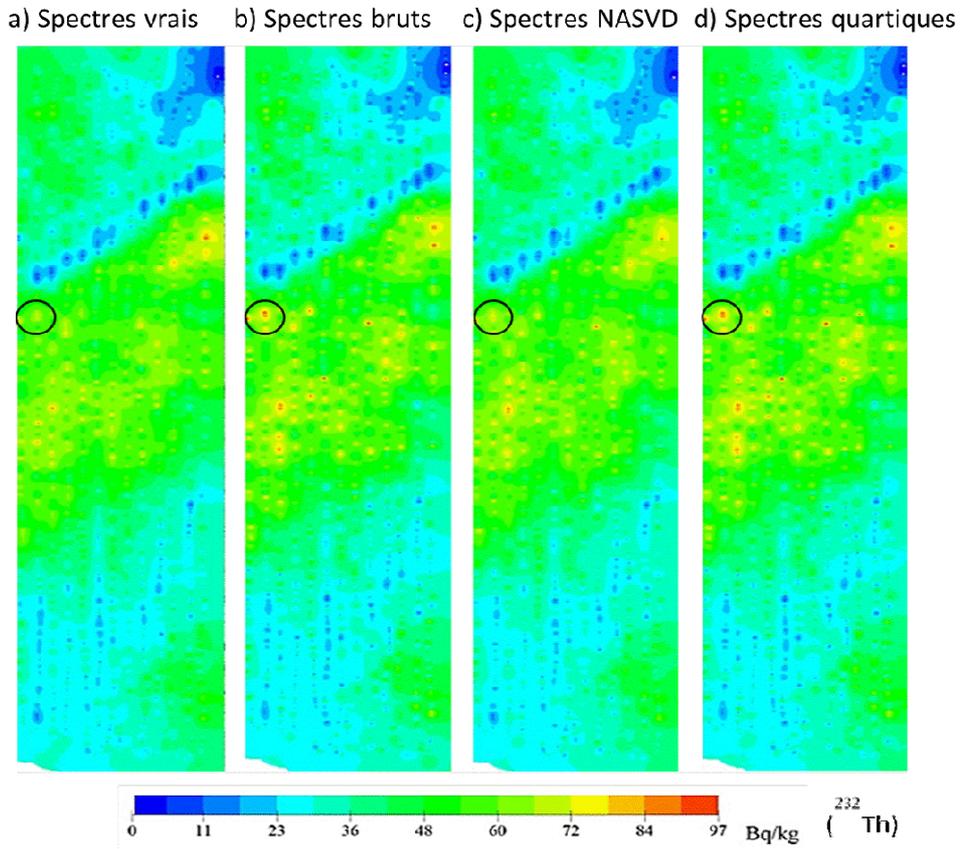


Figure IV-9. Comparaison des activités massiques de ^{232}Th déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.

a) Spectres vrais b) Spectres bruts c) Spectres NASVD d) Spectres quartiques

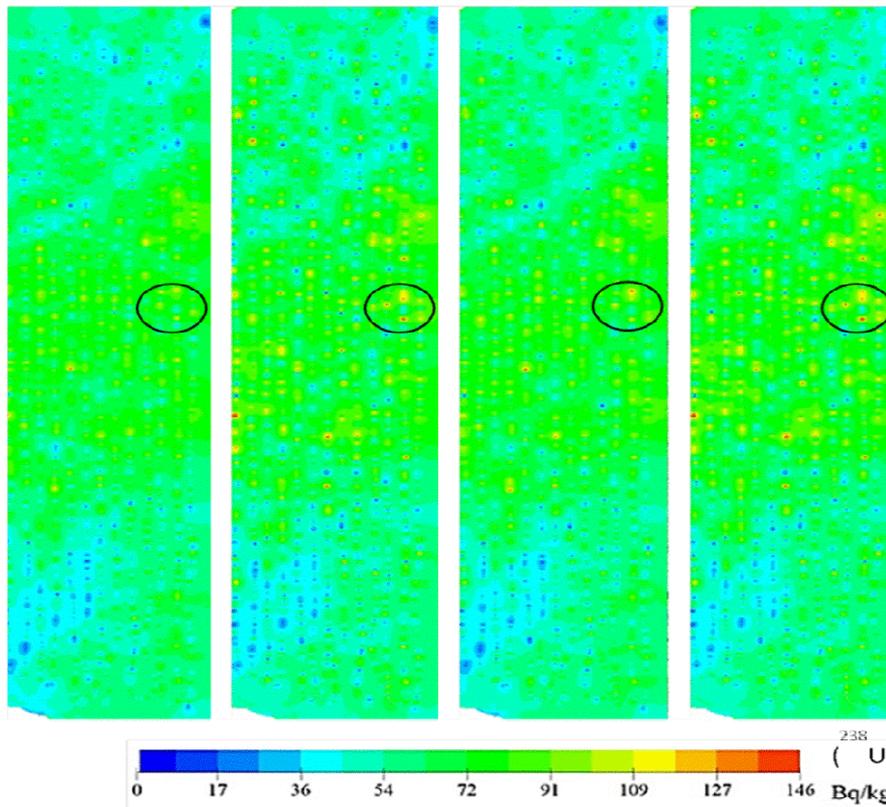


Figure IV-10. Comparaison des activités massiques de ^{238}U déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.

a) Spectres vrais b) Spectres bruts c) Spectres NASVD d) Spectres quartiques

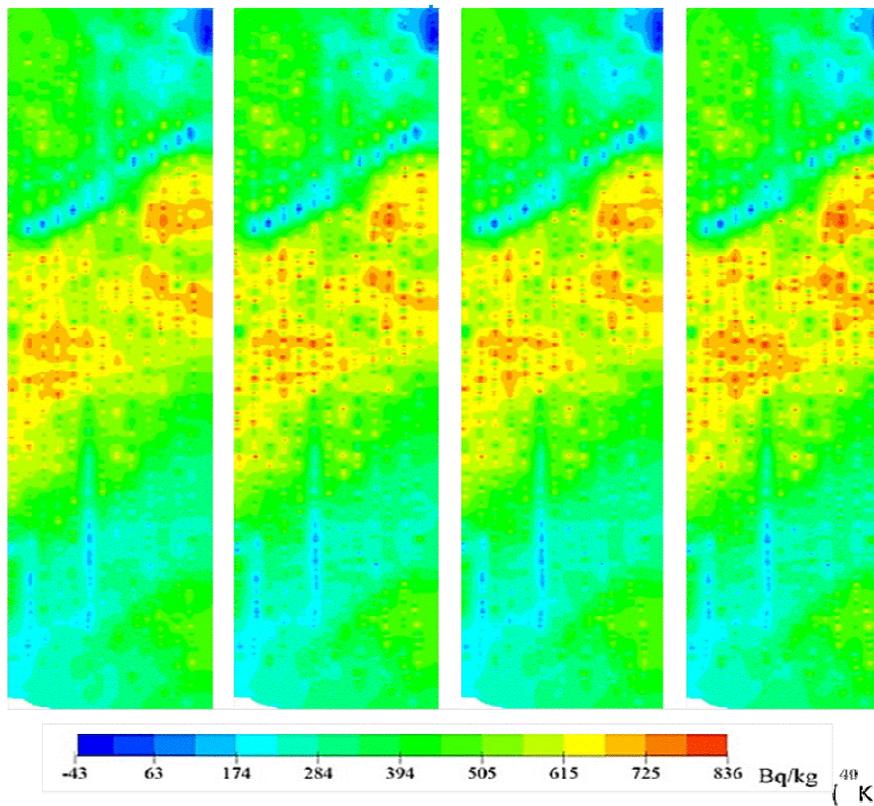


Figure IV-11. Comparaison des activités massiques de ^{40}K déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.

a) Spectres vrais b) Spectres bruts c) Spectres NASVD d) Spectres quartiques

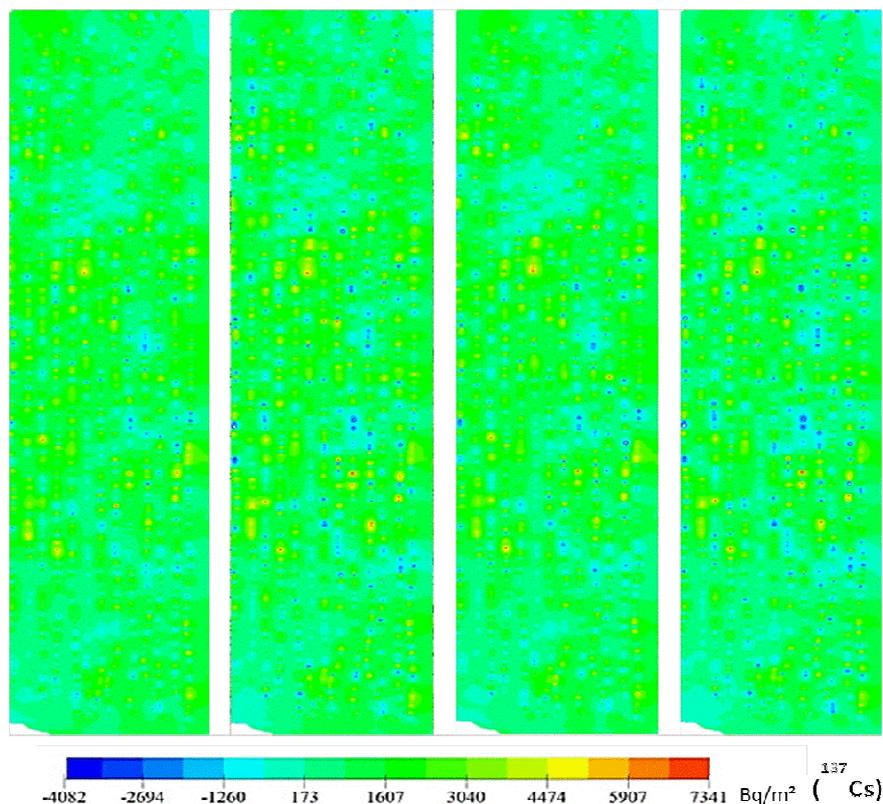


Figure IV-12. Comparaison des activités surfaciques de ^{137}Cs déterminées par la méthode des fenêtres pour a) les spectres vrais, b) les spectres bruts, c) le filtrage NASVD et d) le filtrage quartique.

Les cartographies des activités des radionucléides d'intérêt présentent différentes répartitions spatiales des radionucléides (cartes a)). Le ^{232}Th et le ^{40}K semblent être répartis de manière hétérogène sur l'ensemble du site (présence de zones avec des activités plus importantes que d'autres) alors que le ^{238}U et le ^{137}Cs semblent être répartis de manière plus homogène. Cela est dû à la présence de champs cultivés avec utilisation d'engrais potassique qui crée une augmentation locale de l'activité de ^{40}K (répartition hétérogène) alors que la présence dans l'air de radon, descendant de ^{238}U homogénéise les activités obtenues pour ^{238}U . En effet, la méthode présentée ne fait pas la différence entre les descendants de l'uranium présents dans le sol et ceux présents dans l'air (même signature spectrale). Enfin, les résultats obtenus pour le ^{137}Cs sont entachés d'incertitudes importantes liées à la mauvaise estimation de l'activité des radionucléides de plus haute énergie utilisés pour la déconvolution de l'activité de ^{137}Cs .

L'implémentation des fluctuations statistiques (cartes b) au niveau des régions présentant de faibles activités entraînent l'apparition de faux « points chauds », particulièrement pour le ^{232}Th et le ^{238}U . L'application de la méthode NASVD comme filtre avant l'utilisation de la méthode des fenêtres permet d'améliorer les résultats (suppression des points chauds) alors qu'un filtrage quartique n'apporte aucune réelle différence par rapport aux spectres bruts. L'impact de l'utilisation des méthodes de filtrage sur l'ensemble des données brutes est présenté au Tableau IV-1 en termes d'erreur relative sur les activités déterminées.

Radionucléides	Spectres bruts	Erreurs relatives (%)	
		Spectres quartiques	Spectres NASVD
²³² Th	13.8	13.8	9.0
²³⁸ U	21.9	21.7	12.7
⁴⁰ K	10.6	10.8	8.7
¹³⁷ Cs	85.9	85.8	41.7

Tableau IV-1. Erreurs relatives sur les activités déterminées à partir de la méthode des fenêtres sans traitement au préalable (Spectres bruts), avec un filtrage quartique (Spectres quartiques) et avec un filtrage NASVD (Spectres NASVD).

Le Tableau IV-1 montre que l'utilisation d'un filtrage quartique n'améliore pas les erreurs sur l'estimation des activités comparativement à l'analyse directe des spectres bruts. À l'opposé, l'utilisation d'un filtre NASVD avant l'application de la méthode des fenêtres présente une amélioration notable de l'estimation des activités pour les quatre radionucléides. Bien que le ²³⁸U et le ¹³⁷Cs présentent des variations importantes d'activités d'un spectre à l'autre (Figure IV-10 et Figure IV-12), la méthode NASVD est particulièrement efficace pour réduire les erreurs liées à l'estimation des activités de ces deux radionucléides. Avec l'utilisation d'un nombre restreint de spectres (environ 2600 spectres), la méthode NASVD permet ainsi une réduction des erreurs de 20% à 50% sur les activités déterminées.

d. Taux de détection des radionucléides

Une détection de pics est ensuite réalisée à partir de la méthode DETEC présentée au chapitre III. La détection du pic est validée si la résolution en énergie du pic détecté est supérieure à 0.5 fois la résolution théorique attendue de ce pic et si le nombre de coups dans le pic est supérieur au seuil de détection calculée avec l'équation (I-44).

Radionucléides	Taux de détection			
	Spectres vrais	Spectres bruts	Spectres quartiques	Spectres NASVD
²³² Th	100.0% (2592)	99.9% (2590)	99.9% (2591)	100.0% (2592)
²³⁸ U	100.0% (2592)	98.4% (2552)	99.7% (2586)	99.8% (2589)
⁴⁰ K	99.7% (2585)	99.3% (2576)	99.6% (2583)	99.7% (2585)
¹³⁷ Cs	70.8% (1837)	59.2% (1534)	66.1% (1715)	68.2% (1769)
⁶⁰ Co	0.0% (0)	0.1% (2)	0.2% (5)	0.0% (0)

Tableau IV-2. Taux de détection des différents radionucléides dans les spectres vrais, spectres bruts, spectres quartiques et spectres NASVD. Le nombre de spectres correspondants au pourcentage de détection est donné entre parenthèses.

Le Tableau IV-2 montre que l'utilisation d'une méthode de filtrage permet d'améliorer les taux de détection des radionucléides initialement présents dans le jeu de données. Concernant le ¹³⁷Cs, les deux techniques de filtrage permettent d'améliorer le taux de détection respectivement de 11.8% pour le filtrage quartique (passage de 1534 à 1715 spectres détectés) et de 15.3% pour le filtrage NASVD (passage de 1534 à 1769 spectres détectés). Cependant, le filtrage quartique conduit à la fausse détection de ⁶⁰Co sur 5 spectres alors que ce radionucléide n'est pas présent dans le jeu de données initiales. Ce taux de fausses détections est plus important que celui

obtenu en n'utilisant aucune technique de filtrage, qui n'est que de deux fausses détections. Cela est dû au fait que la méthode de filtrage quartique arrondit les formes et peut ainsi créer des pics gaussiens qui ne sont initialement pas présent dans le jeu de données. La méthode NASVD ne conduit à aucune fausse détection du ^{60}Co . Il est ainsi intéressant d'étudier plus en détail le comportement des techniques de filtrage en présence d'une source ponctuelle de ^{60}Co .

e. Source ponctuelle de ^{60}Co

Pour cette étude, une source de ^{60}Co a été implémentée sur les 21 premiers spectres du jeu de données. Le spectre de ^{60}Co est obtenu à partir d'une simulation MCNPX. Le nombre de coups des spectres implémentés est présenté à la Figure IV-13.

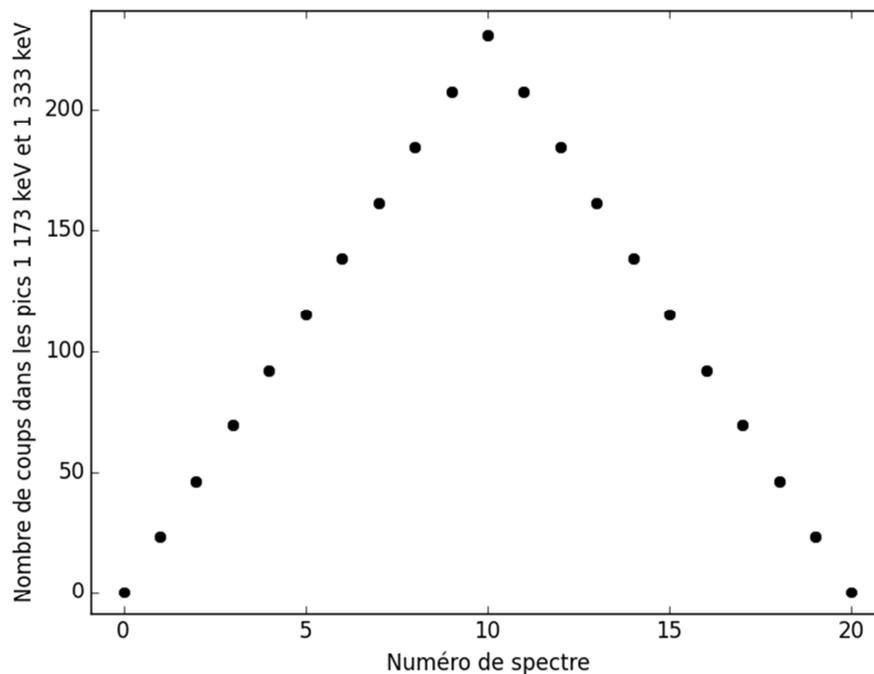


Figure IV-13. Distribution de la source de ^{60}Co implémentée sur les 21 premiers spectres.

Les résultats sont obtenus en utilisant la méthode des fenêtres sur :

- Les spectres « contaminés » en ^{60}Co ;
- Les spectres « contaminés » en ^{60}Co filtrés avec un filtre quartique ;
- Les spectres « contaminés » en ^{60}Co filtrés avec la méthode NASVD.

L'analyse des composantes spectrales est présentée ci-dessous :

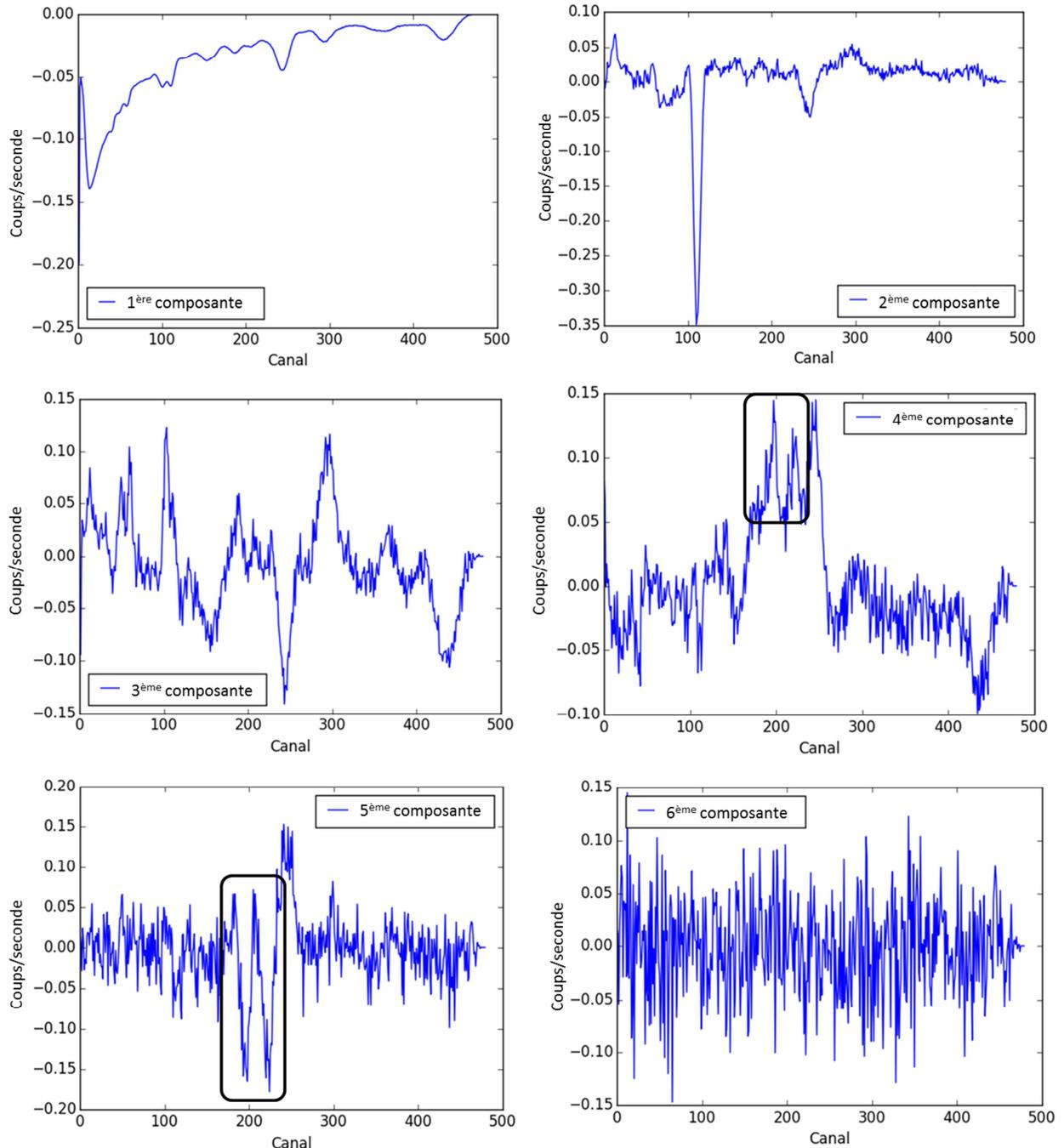


Figure IV-14. Composantes spectrales 1 à 6 issues de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales contenant des spectres « contaminés » en ^{60}Co .

Les cinq premières composantes sont caractéristiques d'un signal cohérent. Ces cinq premières composantes seront donc retenues pour la reconstruction des différents spectres. La contribution de ^{60}Co augmente sur les composantes au fur et à mesure que l'ordre de celle-ci augmente. Ainsi, sur les composantes 4 et 5, le signal de ^{60}Co (encadré en noir) prédomine avec celui de ^{40}K . Ces deux composantes permettent de prendre en compte les variations différentes des activités de ^{40}K et de ^{60}Co . Les spectres contaminés en ^{60}Co du jeu de données initiales sont donc visibles à partir des concentrations des composantes 4 et 5 (Figure IV-15 et Figure IV-16).

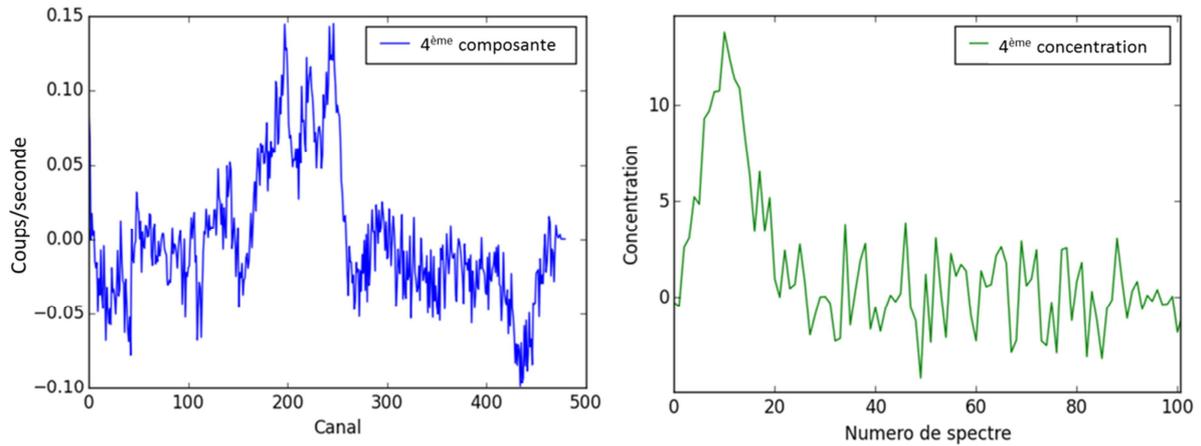


Figure IV-15. 4^{ème} composante spectrale (à gauche) et sa concentration associée (sans unité) (à droite).

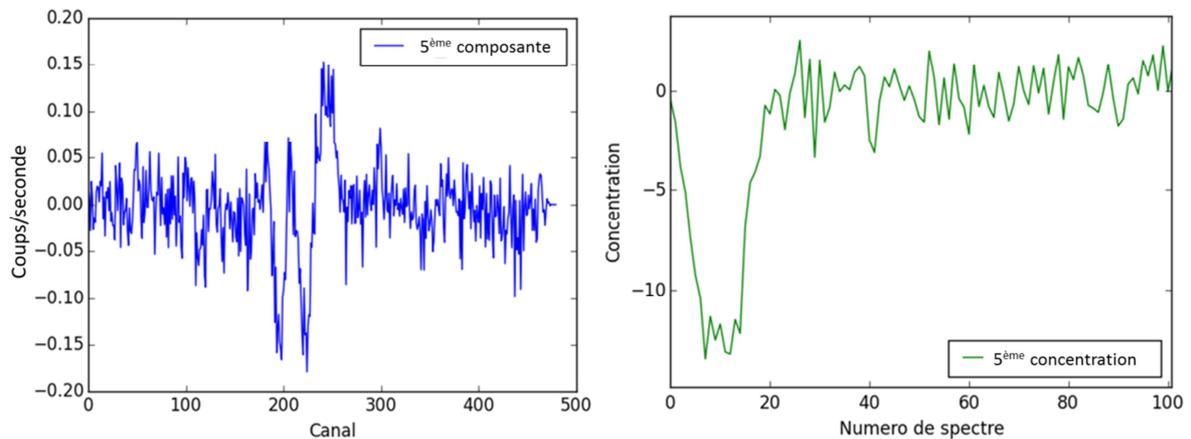


Figure IV-16. 5^{ème} composante spectrale (à gauche) et sa concentration associée (sans unité) (à droite).

Les concentrations des composantes 4 et 5 (Figure IV-15 et Figure IV-16) évoluent pour prendre en compte les activités de ^{60}Co implémentées. Cette évolution est visible sur les spectres numérotés de 1 à 19 comme attendu, compte tenu de la constitution du jeu de données initiales (Figure IV-13). Le signal dû au ^{60}Co se trouve donc sur les composantes d'ordres les plus élevés. La reconstruction correcte des spectres affectés d'une contribution en ^{60}Co s'effectuera donc par l'utilisation des composantes 1 et 6.

Deux spectres représentatifs contenant une source de ^{60}Co et filtrés avec les méthodes quartiques et NASVD ont été sélectionnés et analysés en détail.

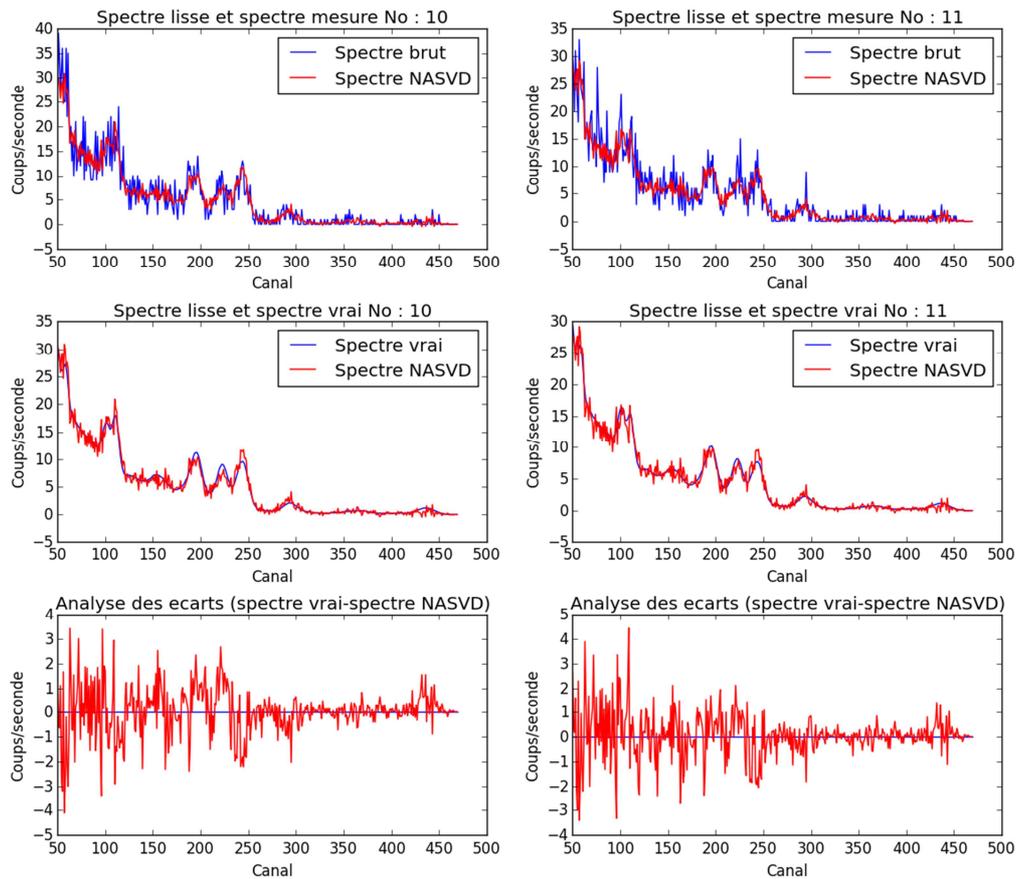


Figure IV-17. Filtrage avec la méthode NASVD des spectres 10 (à gauche) et 11 (à droite) présentant une contamination en ^{60}Co : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence absolue entre les spectres vrais et les spectres filtrés.

La Figure IV-17 présente une augmentation des fluctuations au niveau des spectres filtrés avec la méthode NASVD comparés aux spectres précédemment filtrés (sans contamination de ^{60}Co) avec cette même méthode (Figure IV-5). Cette augmentation provient de la composante additionnelle qu'il a fallu intégrer pour prendre en compte les formes spectrales du ^{60}Co (cinq composantes au lieu de quatre précédemment). Cette composante d'ordre supérieur comporte en effet davantage de bruit statistique que les composantes précédentes. De plus, les formes spectrales des autres radionucléides sont moins bien reconstruites que précédemment. L'utilisation de la méthode NASVD conduit à une surestimation du nombre de coups présent dans le pic de ^{40}K et une sous-estimation de celui présent dans les pics de ^{60}Co .

Le filtrage quartique réalisé sur les mêmes spectres est présenté à la Figure IV-18.

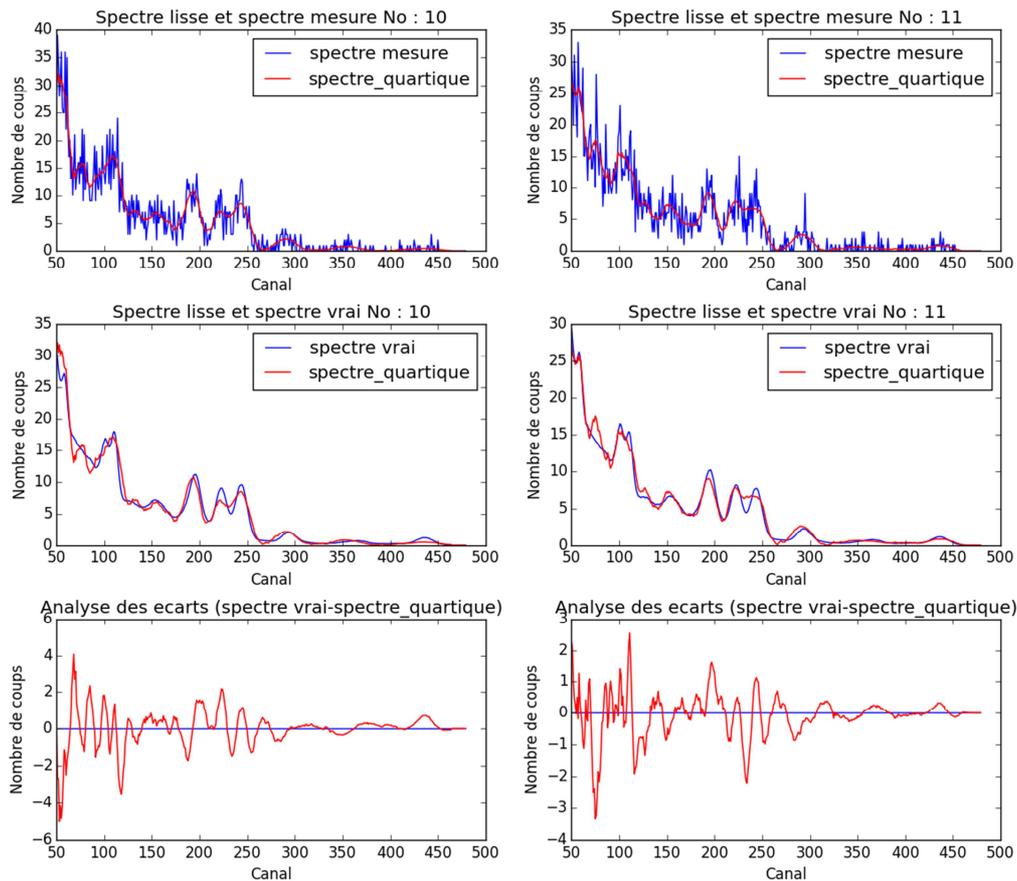


Figure IV-18. Filtrage quartique des spectres 10 (à gauche) et 11 (à droite) présentant une contamination en ^{60}Co : a) Comparaison des spectres bruts et filtrés, b) Comparaison des spectres vrais et filtrés et c) Analyse des écarts entre spectres vrais et spectres filtrés. Ces écarts sont calculés comme étant la différence absolue entre les spectres vrais et les spectres filtrés.

La méthode quartique permet d'obtenir des spectres contenant peu de fluctuations statistiques mais crée des artefacts sur les spectres traités au niveau des régions énergétiques du ^{60}Co . Le pic à 1 333 keV du ^{60}Co (canal 222) est trop proche du pic du ^{40}K (canal 243) pour que les deux soient correctement résolus, créant ainsi des artefacts liés au filtrage.

Les erreurs moyennes associées à l'estimation des activités par la méthode des fenêtres à partir des 21 spectres contenant du ^{60}Co sont de 75% avec un filtrage NASVD et 50% avec un filtrage quartique.

Les erreurs plus importantes obtenues avec la méthode NASVD proviennent de la sous-estimation du pic de ^{60}Co et de la surestimation de celui de ^{40}K . La surestimation de ce dernier conduit à une surestimation du fond de diffusion au niveau du pic de ^{60}Co , venant s'ajouter à la sous-estimation du nombre de coups dans le pic de ^{60}Co . Ces deux effets conduisent finalement à une estimation médiocre de l'activité d'un radionucléide anthropique (^{60}Co) dans le cadre de sources ponctuelles localisées. C'est une limite importante à prendre en compte en cas d'utilisation de la méthode NASVD.

4 Discussion des résultats

La comparaison générale des techniques de filtrage, basée sur les erreurs relatives obtenues sur les 13 lignes de vol (§ IV.3.a), a montré de grandes disparités des résultats obtenus avec les différentes techniques. Les erreurs

importantes obtenues avec la méthode de la transformée de Fourier proviennent de la différence de forme spectrale à haute et basse énergie et de la décomposition du signal en sinus et cosinus. L'utilisation de telles fonctions crée de grandes variations, notamment lorsque le nombre de coups dans le spectre est proche de zéro. Cette technique de filtrage n'est donc pas adaptée aux faibles taux de comptage mais pourrait éventuellement être utilisée pour des sources émettant dans des gammes d'énergie où le taux de comptage est plus élevé (jusqu'à 1 500 keV par exemple). Les résultats obtenus avec les méthodes de filtrage quartique, moyenne locale et Canny Deriche sont proches. Ces méthodes utilisent toutes l'évolution de la résolution en énergie, et permettent ainsi d'imposer les formes à reproduire par filtrage sans créer de fluctuations résiduelles. Les meilleurs résultats obtenus avec la méthode NASVD proviennent de l'utilisation de la résolution en énergie à partir de l'étude de la covariance des canaux et des spectres entre eux. La résolution impose une forme spectrale covariante sur un certain nombre de canaux adjacents. Cette évolution se retrouve sur plusieurs spectres d'un même jeu de données. La méthode auto-détermine les formes spectrales d'intérêt par la redondance de celle-ci sur un nombre important de spectres.

La conclusion de cette comparaison globale est confirmée par la comparaison plus détaillée des méthodes quartiques et NASVD sur deux spectres filtrés (IV.3.b). Alors que les spectres filtrés par filtrage quartique ne dépendent que de la fonction d'évolution de la résolution en énergie utilisée, ceux obtenus avec la méthode NASVD dépendent de l'ensemble des spectres du jeu de données. La stabilité de la calibration et de la résolution en énergie durant le vol, ainsi que les faibles différences observées d'un spectre à l'autre, expliquent les bons résultats obtenus avec la méthode NASVD. Cependant, les spectres présentant d'importantes variations de leur forme spectrale entraînent des erreurs de mêmes ordres de grandeur que celles obtenues avec les filtres quartiques (^{214}Bi et ^{208}Tl , respectivement Figure IV-7 et Figure IV-8). Ainsi, malgré la bonne précision obtenue pour la reconstruction du spectre filtré, l'étude de cas pointe un inconvénient de la méthode NASVD en présence de fortes variations d'activité : une signature spectrale très différente des autres spectres du jeu de données initial ne sera pas correctement reconstruite. Dans le cas du spectre 2391, la signature différente réside dans l'absence du pic du ^{208}Tl . Ce problème n'affecte cependant qu'un faible nombre de spectres du jeu de données et ne se retrouve donc pas directement sur la cartographie des activités déterminées (Figure IV-9, Figure IV-10, Figure IV-11 et Figure IV-12).

Les performances d'un filtre quartique ne dépendront en revanche ni des variations des formes spectrales ni du nombre de spectres considéré dans l'analyse, ce qui la rend plus robuste à la présence éventuelle de sources anthropiques ponctuelles.

L'application des méthodes de filtrage sur l'ensemble du site montre que la méthode NASVD utilisée avant l'application de la méthode des fenêtres conventionnelle permet de réduire les erreurs sur l'activité de 20 à 50% alors que la méthode quartique n'apporte pas d'amélioration tangible. Le filtrage quartique est basé sur une méthode des moindres carrés, ce qui explique l'absence d'effet de ce filtrage lors de la détermination des activités. En effet, ce filtrage se contente de réaliser un produit de convolution sur un certain nombre de canaux consécutifs ayant pour effet de lisser le spectre. Son utilisation présente donc peu d'influence en combinaison avec une méthode de déconvolution.

La méthode NASVD est particulièrement adaptée lorsqu'aucune contamination n'est présente : elle permet d'améliorer le taux de détection pour les radionucléides présents (jusqu'à 10% pour le ^{137}Cs) tout en n'apportant pas de fausse détection. La méthode quartique permet également d'améliorer le taux de détection des pics des radionucléides présents, même si elle peut conduire dans certains cas à des fausses détections.

Dans le cas d'une source ponctuelle (qui serait visible uniquement sur un nombre restreint de spectres), la méthode NASVD ne dispose pas de suffisamment de spectres contenant la signature de ce radionucléide pour le considérer comme du signal. Une partie du signal est alors contenue dans les composantes spectrales d'ordres plus élevés et ne sera donc pas utilisé pour la reconstruction des spectres. La méthode NASVD produit alors de ce fait des résultats d'activité erronés (IV.3.e). En effet, il a été vu que le signal dû au ^{60}Co se retrouve sur les composantes d'ordres plus élevés et qu'une partie plus faible se trouve sur les composantes considérées comme du bruit et donc non retenues pour le filtrage. Utiliser malgré tout ces composantes lors de la reconstruction reviendrait donc à mieux reconstruire le spectre dans la région du ^{60}Co tout en apportant davantage de fluctuations statistiques sur l'ensemble de la gamme énergétique. La méthode n'est donc pas adaptée, en l'état, au cas des sources ponctuelles.

Une solution pour remédier à ce problème serait « d'apprendre » à la méthode les éventuelles signatures spectrales recherchées. Cela pourrait être réalisé en injectant la signature du ^{60}Co au début des jeux de données analysés. Cela nécessite de créer une bibliothèque des signatures spectrales à rechercher. Une autre solution pourrait être de regrouper les spectres présentant des formes spectrales similaires avant l'utilisation de la méthode NASVD (Minty, 1998). Le nombre de groupes à réaliser peut alors être déterminé à partir de la matrice de corrélation de l'ensemble des spectres du jeu de données. La méthode peut être applicable en temps réel si la décomposition est utilisée de manière glissante sur l'ensemble des spectres et peut permettre la réduction du nombre de spectres devant présenter la même signature spectrale pour être détecté comme du signal.

Outre la problématique des fluctuations statistiques abordée dans ce chapitre, la méthode des fenêtres présente des limites lorsque les radionucléides recherchés sont caractérisés par des pics d'absorption totale à basse énergie (< 500 keV). En effet, le nombre de contributions des radionucléides de haute énergie augmente et entraîne ainsi une augmentation de l'incertitude sur les résultats obtenus. Une méthode basée sur un ajustement de l'ensemble du spectre après suppression des fluctuations peut être réalisée avec le risque de supprimer la signature de radionucléides anthropiques. À très basses énergies (< 100 keV), le nombre de radionucléides créant un fond de diffusion est trop important pour une méthode de déconvolution prenant en compte chacun de ces radionucléides.

Conclusion

Le travail réalisé a permis de mettre en avant les performances et les limites d'une méthode statistique de filtrage des fluctuations et d'étudier l'impact du filtrage sur l'évaluation des activités en spectrométrie gamma aéroportée. Il s'est appuyée sur des données simulées représentatives d'un site réellement survolé. Les résultats montrent que la méthode NASVD est particulièrement adaptée à l'analyse de mesures environnementales. Dans ce cadre, l'utilisation de cette méthode couplée à la méthode des fenêtres recommandée par l'AIEA permet une réduction des erreurs d'estimation de l'activité allant jusqu'à 50%. Ces résultats sont visibles sur les

cartographies des activités environnementales où les artefacts de détection de radionucléides naturels sont réduits. Ce travail a également permis d'identifier l'intérêt des méthodes de filtrage pour une application en temps réel. Celles-ci sont dans ce cas particulièrement utiles dans le cadre de la détection de sources, mais pas pour l'estimation de leur activité.

L'étude de la détection de sources ponctuelles a permis de mettre en évidence que la méthode NASVD n'est pas adaptée en l'état à ce type de détection. Dans ce cas, un filtrage quartique des données pourra permettre la détection de telles sources. Si des sources anthropiques sont présentes de manière étendue sur un site, comme dans le cas d'une contamination surfacique de taille importante, la méthode NASVD pourra cependant être utilisée. Le point crucial pour le fonctionnement d'une telle méthode statistique est que le jeu de données initiales considère la forme spectrale d'intérêt, ce qui est obtenu si un signal similaire est présent sur un nombre de spectres suffisant. Il est alors possible de réduire le nombre de spectres utilisés pour la décomposition en valeurs singulières tout en gardant à l'esprit que ce nombre de spectres doit être supérieur au nombre de canaux considérés dans l'analyse. Une autre solution pour la détection de source ponctuelle est d'apprendre à la méthode à reconnaître la forme spectrale d'intérêt en injectant dans le jeu de données une forme semblable à celle recherchée.

Le chapitre V présente une méthode spécifiquement développée pour la détection et la quantification d'une contamination étendue en ^{241}Am (principal pic d'absorption totale à 59 keV) utilisant un filtrage statistique des fluctuations. Le développement d'une méthode de détection de radionucléides anthropiques basés sur une différence de signature entre une bibliothèque et les spectres enregistrés est présenté au chapitre VI.

V. Développement d'une nouvelle méthode de détermination des activités surfaciques du ^{241}Am

1 Introduction

a. Contexte

En spectrométrie gamma aéroportée, ces émetteurs gamma peuvent se trouver dans le sol (réparti de manière volumique ou exponentielle), sur le sol (de manière surfacique ou ponctuelle) ou même dans l'air (exemple : le radon) (IAEA, 2003). Or lorsque le nombre d'émetteurs gamma est important et que la distribution spatiale et la géométrie de la source ne sont pas connues précisément, l'analyse des spectres résultants est souvent difficile. Le nombre de superposition des signatures des différents émetteurs gamma augmente lorsque l'énergie étudiée diminue. À basse énergie (< 400 keV), les spectres acquis lors du survol d'une zone deviennent également plus complexes à analyser du fait de la diminution du rapport pic d'absorption/fond de diffusion lors de la diminution de l'énergie et de l'augmentation de l'altitude. Ces deux effets (augmentation du fond de diffusion et diminution du rapport pic / fond de diffusion) sont particulièrement importants à 60 keV, énergie du principal pic d'absorption de ^{241}Am .

Le ^{241}Am est un descendant du ^{241}Pu , ce qui permet, sous certaines conditions, de quantifier le ^{241}Pu à partir de l'activité de ^{241}Am déterminée. Ainsi, en cas d'incident entraînant le rejet de ^{241}Am , la signature de ce radionucléide s'ajoutera au spectre de bruit de fond radiologique mesuré. Bien que l'énergie d'émission du ^{241}Am soit faible, cet émetteur reste l'un des émetteurs gamma privilégiés en spectrométrie gamma aéroportée lors de ce type d'accident. Cela est dû au rapport d'embranchement relativement élevé de l'émission gamma de 60 keV (environ 36%).

b. Objectif et méthodologie

Des méthodes de détection et de quantification de ce radionucléide ont déjà été développées. Dans le cadre de l'amélioration des outils d'analyse des résultats enregistrés en spectrométrie gamma aéroportée, une nouvelle méthode de détection et de quantification a été mise en place durant cette thèse. Son principe et ses performances sont détaillés dans ce chapitre.

La méthode 3W (III.3) sera considérée comme la référence afin d'étudier les performances de la nouvelle méthode développée. Des tests ont été effectués sur des contaminations simulées et des contaminations réelles. Les résultats des analyses menées sur ces différents cas sont discutés de façon détaillée à la fin de ce chapitre (V.3).

2 Matériels et méthodes

Le développement de cette méthode a été réalisé en utilisant les outils de simulation de contamination développés au chapitre II. Le principe de cette application est d'insérer, entre autre, des spectres calibrés de ^{241}Am sur des spectres obtenus en vol afin de simuler la présence d'une source de ^{241}Am présente de manière surfacique. L'insertion de spectres repose sur la notion d'interpolation des signaux dus au ^{241}Am en fonction de

la distance du spectre mesuré par rapport aux sources présentes au sol. La nouvelle méthode présentée a ensuite été testée sur un site réellement contaminé.

Cette méthode développée se compose de trois parties :

- La suppression des fluctuations statistiques présentes sur les spectres ;
- La suppression du fond radiologique au niveau du pic d'absorption du ^{241}Am ;
- La détermination des activités de ^{241}Am présentes à partir d'une bibliothèque de référence.

a. Suppression des fluctuations statistiques

Différentes techniques de filtrage des fluctuations statistiques présentes sur les spectres enregistrés avec le système HELINUC peuvent être utilisées. La comparaison de ces techniques (chapitre IV) a fait ressortir que la méthode NASVD était la plus adaptée pour supprimer ces fluctuations sans altérer l'allure du spectre.

La méthode NASVD n'a cependant jamais été appliquée à basse énergie (< 500 keV). Utiliser cette méthode à basse énergie permettrait de supprimer les fluctuations, ce qui rendrait possible l'utilisation de méthodes d'ajustement du fond de diffusion en vue de sa suppression, et l'ajustement du signal de ^{241}Am à partir d'une bibliothèque de référence.

Ce travail se focalise sur la région énergétique du ^{241}Am , dont le principal pic d'absorption se trouve à 60 keV. Il semble donc inutile (voire contre-productif) de considérer l'ensemble de la gamme énergétique du spectre lors de l'utilisation de la méthode NASVD. En effet, utiliser l'ensemble de la gamme énergétique reviendrait à obtenir des composantes spectrales qui prennent en compte les variations à haute énergie, et donc à moins bien évaluer celles à basse énergie. Le signal dû aux faibles énergies serait alors déplacé vers les composantes d'ordre élevé. Ainsi, reconstruire l'ensemble du spectre sans biais nécessiterait l'utilisation d'un nombre plus important de composantes. Or plus l'ordre des composantes augmente, plus les composantes comportent des fluctuations statistiques. La reconstruction du spectre avec davantage de composantes diminuerait ainsi l'efficacité de la suppression des fluctuations statistiques.

Pour limiter le nombre de composantes lors de la reconstruction, la zone énergétique considérée a été [0 ; 150] keV. Cette zone est plus large que la zone du ^{241}Am car la suppression des fluctuations est également utilisée pour l'ajustement du fond radiologique en vue de sa suppression.

Le nombre de composantes à conserver est déterminé de manière visuelle. Les six premières composantes et leurs concentrations associées, telles que définies à l'équation (IV-8)) sont présentées en Figure V-1.

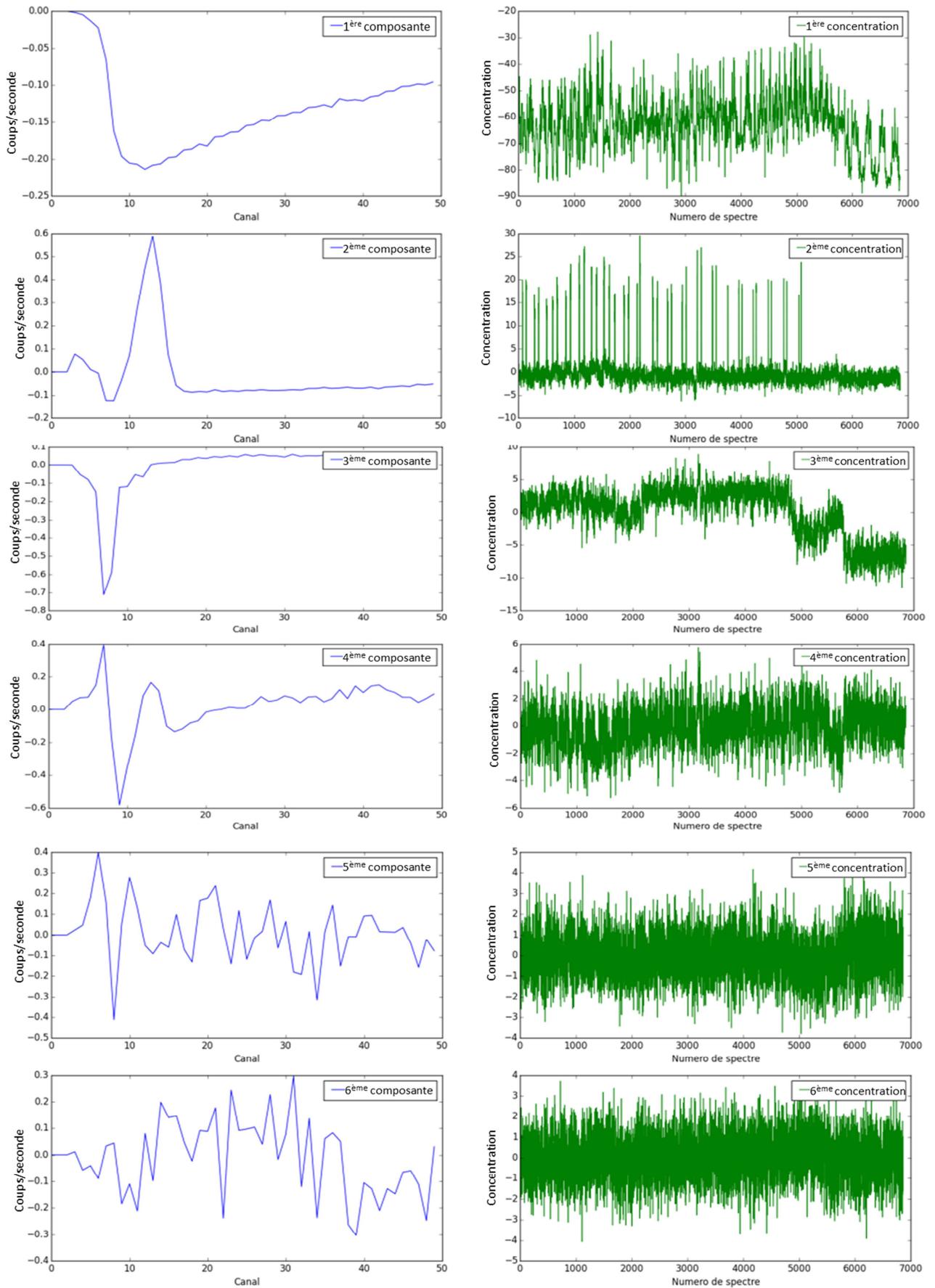


Figure V-1. Composantes et concentrations associées, obtenues par une décomposition en valeurs singulières sur un site contenant du ^{241}Am .

Les formes spectrales à analyser dépendent du site étudié et des conditions de vol (variations d'altitude, activités des radionucléides présents,...). L'interprétation des composantes présentées à la Figure V-1 est la suivante :

- la première composante représente l'allure moyenne des spectres contenus dans la matrice de départ (à un facteur négatif près). Ce constat est toujours vrai, quelles que soient les conditions opératoires. En effet, il n'y a pas de spectre permettant de mieux synthétiser l'ensemble des spectres d'un jeu de données de départ, que le spectre moyen. Les concentrations associées permettent, par combinaison avec la première composante, de représenter le spectre moyen ajusté à chacun des spectres de départ. Le premier couple (1^{ère} composante et 1^{ère} matrice des concentrations) représente donc le spectre moyen ajusté à chacun des spectres.
- La 2^{ème} composante contient essentiellement le pic dû au ²⁴¹Am. Les spectres de la matrice de départ contenant une source importante de ²⁴¹Am sont repérables à partir de la 2^{ème} matrice des concentrations qui indique sur quels spectres se trouve le signal dû au ²⁴¹Am présenté à la 2^{ème} composante. En dehors de la moyenne, c'est donc le pic de ²⁴¹Am qui est la forme spectrale la plus redondante sur l'ensemble des spectres de départ.
- en fonction de l'altitude, le signal dû au ²⁴¹Am peut être modifié, c'est cette modification qui est représentée sur la composante 3.
- la composante 4 permet un ajustement plus fin de la zone du pic d'absorption mais commence à contenir des fluctuations statistiques.
- les composantes 5 et 6 contiennent essentiellement des fluctuations statistiques. Cela est visible à partir des composantes (stabilité de l'amplitude des fluctuations et de la ligne de base de celle-ci) mais également des concentrations (stabilité de la ligne de base des concentrations).

Ainsi, les composantes conservées pour la reconstruction des spectres sont les quatre premières composantes.

Il est possible d'automatiser le choix du nombre de composantes à conserver. Pour cela, il faut définir un critère permettant d'affirmer ou d'infirmer la présence de signal cohérent.

Un critère possible consiste à utiliser la fonction d'autocorrélation qui permet d'étudier la corrélation croisée de la composante avec elle-même. L'utilisation de cette fonction permet de détecter des régularités dans la composante. L'équation est définie d'un point de vue statistique par :

$$r(k) = \frac{\text{cov}(X_i, X_{i+k})}{\sigma_{X_i}^2} \quad (\text{V-1})$$

Utiliser cette formule revient à étudier la covariance du spectre X par rapport au spectre X décalé de k canaux en la divisant par la variance du signal non décalé. On remarque que si le décalage k vaut 0, le coefficient $r(k)$ sera égal à 1. C'est une fonction dont les valeurs se trouvent dans l'intervalle $[-1 : 1]$ avec 1 indiquant une parfaite corrélation (les signaux se recouvrent exactement quand le temps est décalé de k) et -1 indiquant une parfaite anti-corrélation. Les coefficients d'autocorrélation avec un décalage de 1 canal des 25 composantes considérées sont présentés à la Figure V-2.

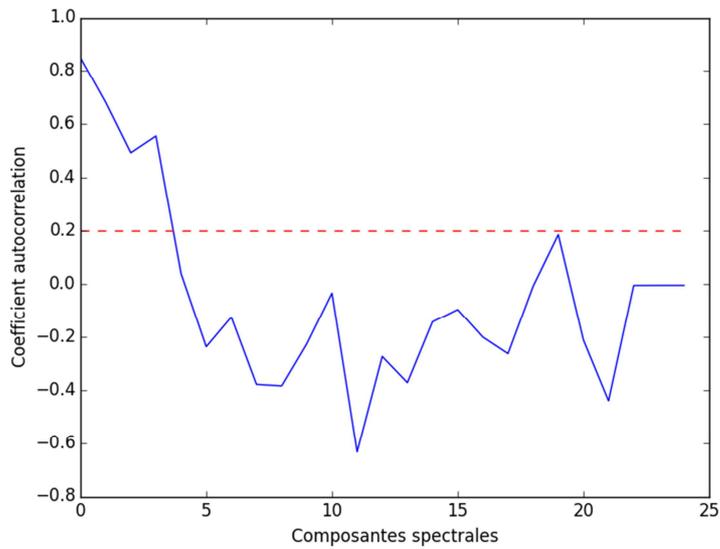


Figure V-2. Coefficients d'autocorrélation des 25 composantes spectrales décalées d'un canal.

Les coefficients d'autocorrélation sont supérieurs à 0.5 pour les 4 premières composantes (Composantes 0 à 3). Les coefficients d'autocorrélation des autres composantes sont tous inférieurs à 0,2. Le choix du critère d'un décalage d'un canal du coefficient d'autocorrélation est justifié par l'absence de corrélation des fluctuations d'un canal à l'autre. Ce critère confirme l'analyse visuelle et la sélection de 4 composantes.

Afin d'étudier l'apparition d'un biais sur l'allure générale des spectres reconstruits avec les 4 premières composantes, des spectres filtrés et non filtrés sont comparés à la Figure V-3.

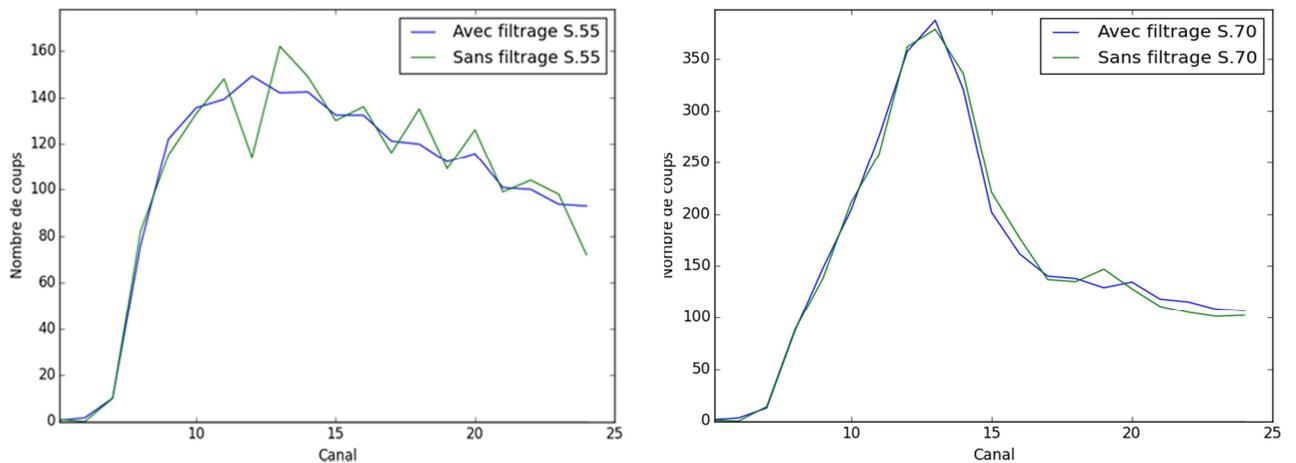


Figure V-3. Impact du filtrage des fluctuations sur un spectre sans ^{241}Am (à gauche) un spectre avec ^{241}Am (à droite).

Les fluctuations présentes sur le spectre ne contenant pas de ^{241}Am (Figure V-3, gauche) sont importantes par rapport au signal. L'utilisation de la technique de filtrage permet de retrouver la forme spectrale que l'on obtiendrait si l'on augmentait le temps de comptage. L'allure générale du spectre est conservée mais les fluctuations ont été supprimées. L'allure générale du spectre contenant du ^{241}Am est également bien reconstruite après filtrage (Figure V-3, droite). Même si le signal dû au ^{241}Am n'est pas présent sur tous les spectres de la matrice de départ, la méthode présentée permet ainsi de conserver le signal dû au ^{241}Am sans introduire de biais lors de la suppression des fluctuations.

b. Suppression du bruit de fond radiologique

Principe

Afin de quantifier le signal dû au ^{241}Am , il est nécessaire de l'isoler. Pour cela, il faut supprimer le fond radiologique au niveau de la gamme d'énergie du ^{241}Am . Le fond radiologique est très intense aux énergies inférieures à 400 keV. De plus, l'amplitude de ce dernier peut varier rapidement en fonction de l'altitude. Cette variation peut entraîner des sur-estimations, sous-estimations ou même introduire des fausses détections de ^{241}Am .

Deux méthodes de suppression du bruit de fond peuvent être envisagées. La première méthode repose sur l'utilisation d'un bruit de fond fixe, déterminé à partir d'une moyenne de plusieurs spectres du site considérée ne contenant pas de ^{241}Am . Pour cette méthode, le bruit de fond doit être obtenu pour des altitudes représentatives des altitudes rencontrées en vol ou un spectre de bruit de fond de référence doit être obtenu pour les différentes altitudes rencontrées en vol. L'ajustement de ce bruit de fond de référence est réalisé sur les canaux directement supérieurs aux canaux contenant le signal du ^{241}Am des spectres enregistrés en vol. Le principal inconvénient de cette méthode est la difficulté à prendre en compte l'évolution de l'altitude au cours du vol.

La seconde méthode de suppression du fond radiologique est une méthode numérique. Celle-ci repose sur l'extrapolation à basse énergie d'une fonction dont les bornes ont préalablement été ajustées aux canaux directement supérieurs à ceux contenant le signal du ^{241}Am . L'étude de différentes fonctions mathématiques prenant en compte le fond radiologique a permis de sélectionner celle permettant le meilleur ajustement.

Moyenne de n spectres de la matrice de départ

Sur un site présentant de faibles variations du bruit de fond radiologique et survolé à une altitude stable, la moyenne de n spectres du site ne contenant pas de ^{241}Am peut être utilisée comme spectre de référence. Ce spectre de référence est alors ajusté au niveau des spectres analysés dans la région énergétique directement supérieure à la région contenant le signal du ^{241}Am . La soustraction de cette moyenne ajustée permet ainsi d'obtenir le signal dû au ^{241}Am .

L'obtention de spectres de bruit de fond de référence pour différentes altitudes permet une meilleure prise en compte du fond radiologique en vue de sa soustraction. Un exemple de ce spectre de référence obtenu sur les 50 premiers spectres d'un site est présenté à la Figure V-4.

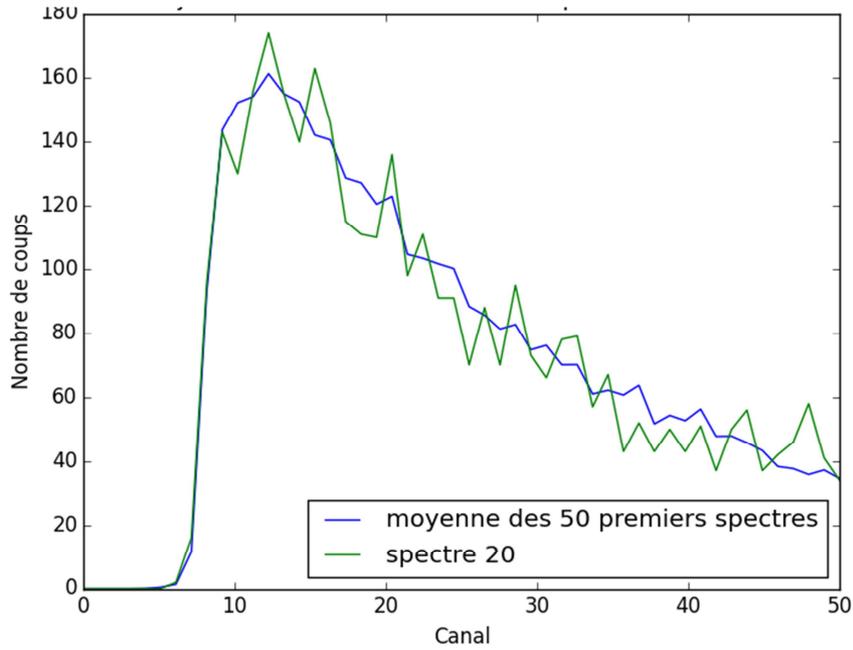


Figure V-4. Moyenne des 50 premiers spectres.

Comme le montre la Figure V-4, la moyenne des 50 premiers spectres permet d'obtenir un spectre dont les fluctuations statistiques ont considérablement été atténuées par rapport à un spectre enregistré en vol. Le principal inconvénient de cette méthode est de nécessiter des spectres moyens représentatifs de différentes altitudes et du site étudié. Ces spectres moyens doivent ainsi être obtenus avant chaque nouvelle mesure en s'assurant que le fond radiologique conserve la même allure (pas de changements importants du fond radiologique).

Fonctions mathématiques considérées

La seconde méthode de prise en compte du fond radiologique consiste à modéliser celui-ci à partir d'une fonction mathématique. Pour cela, il faut avant tout identifier précisément les canaux qui serviront à ajuster la fonction mathématique préalablement choisie.

Les différentes fonctions mathématiques considérées sont :

- Fonction exponentielle à 2 paramètres :

$$y = \alpha \cdot e^{-\beta \cdot \left[\frac{(E-E_0)^2}{2 \cdot E_0^2 \cdot E^2} \right]} \quad (V-2)$$

- Fonction puissance-exponentielle à 3 paramètres :

$$y = \alpha \cdot x^\beta \cdot e^{\gamma \cdot x} \quad (V-3)$$

- Fonction double exponentielle à 3 paramètres :

$$y = \alpha \cdot (e^{-\theta_1 \cdot x} - e^{-\theta_2 \cdot x^{0.85}} + cste) \quad (V-4)$$

Après une étude comparative, la fonction permettant d'ajuster au mieux le fond de diffusion en l'absence de source de ^{241}Am est la fonction double exponentielle.

Le terme « $-e^{-\theta_2 \cdot x}$ » de la fonction permet de modéliser la montée rapide de la première partie du spectre tandis que le terme « $e^{-\theta_1 \cdot x}$ » de la fonction permet de modéliser la lente descente de la deuxième partie du spectre.

Une illustration de ces deux termes est présentée à la Figure V-5.

L'idée d'utiliser ce type de fonction provient de l'analogie avec l'équation d'évolution du nombre de noyaux d'un corps radioactif B alimentés par la désintégration d'un corps radioactif A. Dans ce type d'équation, la variable x est remplacée par la variable « temps ».

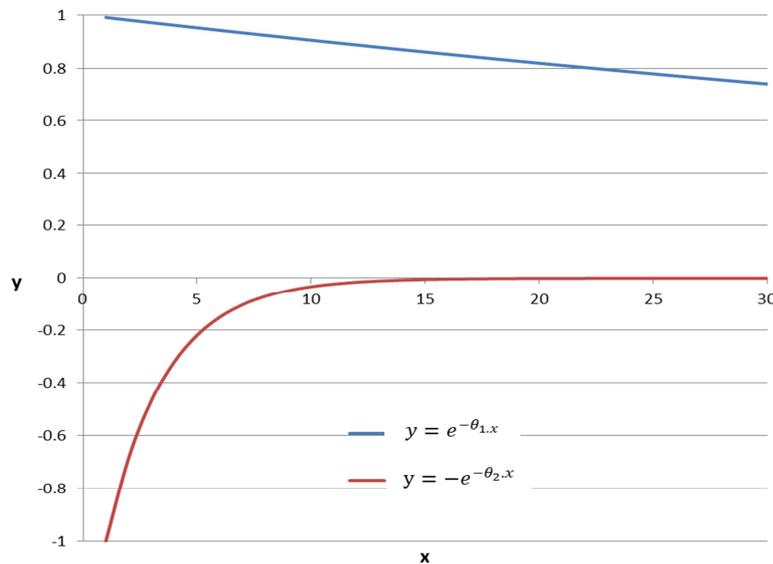


Figure V-5. Illustration des 2 termes de la fonction double exponentielle.

Les canaux utilisés pour l'ajustement du fond de diffusion sont ceux qui se situent dans la région directement supérieure à celle du ^{241}Am . Les canaux utilisés sont [13 : 16] correspondant à la gamme d'énergie [78 : 96] keV. L'utilisation d'un faible nombre de canaux pour réaliser l'ajustement de la fonction est possible grâce à la suppression des fluctuations obtenues à partir de la méthode décrite précédemment.

Afin d'obtenir une fonction permettant d'ajuster précisément le fond radiologique dans la région du ^{241}Am , un point d'ajustement dans les canaux inférieurs à la région d'ajustement du ^{241}Am est nécessaire pour faire converger l'ajustement. Les canaux d'ajustement de ^{241}Am étant [8 : 12] soit [48 : 72] keV, le canal 7 est utilisé pour l'ajustement du fond de diffusion. Cependant, le nombre de coups dans ce canal dépend directement de la présence ou non de ^{241}Am et biaiserait donc l'ajustement du fond de diffusion. Pour pallier ce problème, la mesure du canal 7 ne sera pas utilisée dans l'ajustement mais une valeur extrapolée à partir du nombre de coups dans le canal 13 (qui n'est pas biaisé par la présence de ^{241}Am), sera utilisée. Cette valeur est obtenue à partir d'une régression linéaire du rapport de nombre de coups dans le canal 13 et dans le canal 7, en l'absence de ^{241}Am . La régression doit cependant être réalisée en fonction de l'altitude. Afin de donner autant de poids à chaque valeur, la moyenne du rapport du nombre de coups dans le canal 13 et 7 pour chaque altitude de vol est prise en compte. Les résultats sont présentés à la Figure V-6.

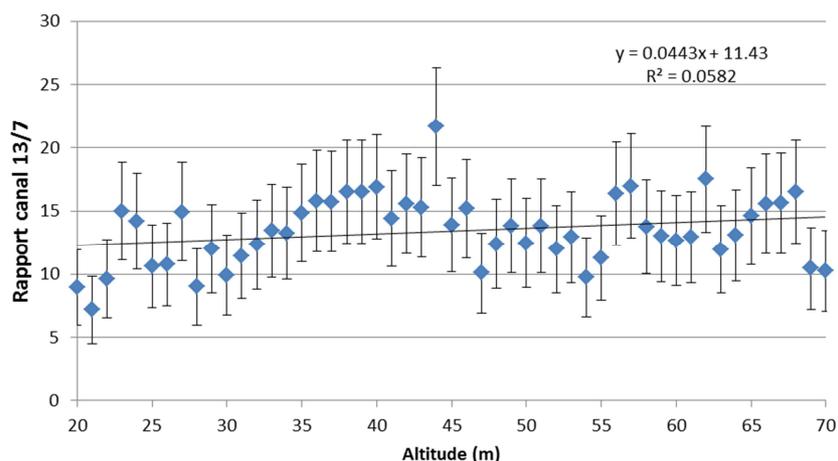


Figure V-6. Évolution du rapport du nombre de coups dans les canaux 13 et 7 en fonction de l'altitude.

On remarque que sur la plage d'altitude [20 : 70] m, ce rapport augmente très légèrement. Cela peut être expliqué par l'absorption plus importante des photons de basse énergie que celle des photons de plus haute énergie lorsque l'altitude augmente. L'équation d'évolution du rapport des coups dans les canaux 13 et 7 en fonction de l'altitude est utilisée pour calculer un nombre de coups dans le canal 7 qui sera indépendant de la présence ou non de ^{241}Am .

Un exemple d'ajustement réalisé sur un spectre ne contenant pas de ^{241}Am est présenté à la Figure V-7. Les barres d'erreurs utilisées lors de l'ajustement sont issues de la statistique poissonnienne des mesures $\sigma(\text{coups}_i) = \sqrt{(\text{coups}_i)}$. Ces erreurs poissonniennes sont légèrement surestimées car elles ne prennent pas en compte l'utilisation des N spectres du jeu de données.

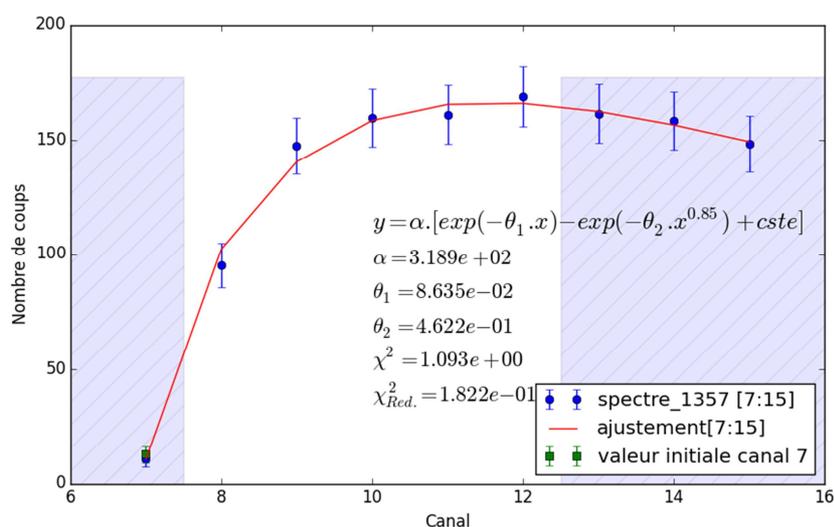


Figure V-7. Ajustement du fond de diffusion par une fonction double exponentielle. Pour cet ajustement, seuls les canaux 7,13, 14 et 15 sont utilisés (zone hachurée, violette).

L'ajustement présenté à la Figure V-7 est réalisé à partir des coups contenus dans les canaux 7 (extrapolation), 13, 14 et 15. L'ajustement de la fonction pour les canaux 7 à 15 est cohérent avec les valeurs expérimentales même si le $\chi^2_{\text{Réduit}}$ est assez faible en raison de la surestimation des erreurs.

Le résultat valide l'utilisation de cette méthode pour la prise en compte du fond de diffusion.

Deux spectres obtenus de manière rapprochée permettent d'analyser la qualité de l'ajustement, en l'absence et en présence d'une source de ^{241}Am (Figure V-8).

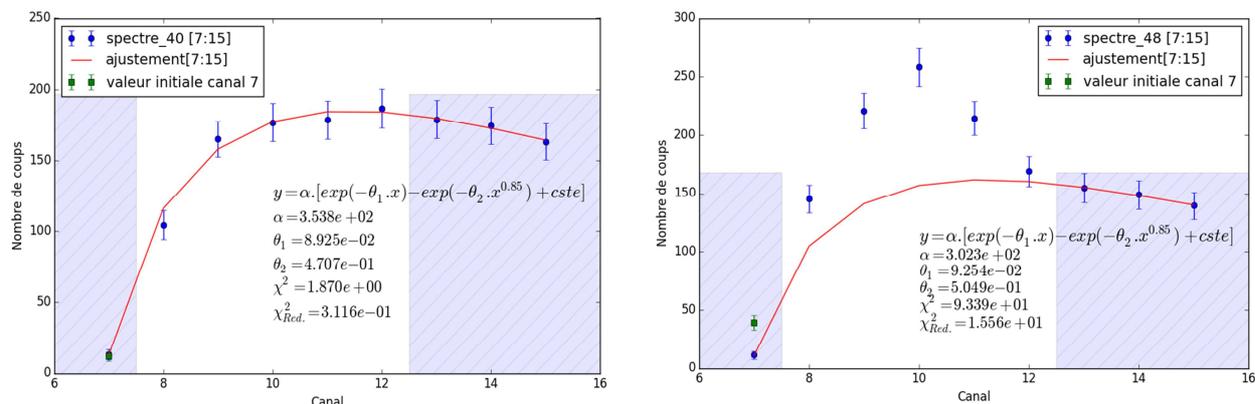


Figure V-8. Ajustement du fond de diffusion sur un spectre sans ^{241}Am (à gauche) et avec ^{241}Am (à droite).

L'ajustement permet de prendre correctement en compte le fond de diffusion en l'absence de ^{241}Am (Figure V-8, gauche). La fonction d'ajustement n'est pas perturbée par la présence de ^{241}Am : la région de ^{241}Am présente un signal caractéristique du pic d'absorption à 60 keV. La présence de ce pic entraîne, comme attendu, l'augmentation du $\chi^2_{Réduit}$ (Figure V-8, droite).

Après avoir isolé le signal dû au ^{241}Am , il faut quantifier son activité. C'est le rôle de la troisième partie de la méthode qui repose sur un ajustement du signal de ^{241}Am à partir d'une bibliothèque de référence. Le travail de création d'une bibliothèque de référence a été réalisé lors du développement de l'application d'insertion de la contamination surfacique présentée au chapitre II. La même bibliothèque de référence a été utilisée pour déconvoluer les spectres.

La méthode d'estimation des activités du ^{241}Am , regroupant les parties de suppression de fluctuations, de suppression du fond de diffusion et d'ajustement du signal de ^{241}Am a été nommée AJAM T1 (AJustement du signal d'AMéricium 241, Type 1).

3 Résultats

La méthode AJAM T1 a été testée afin de s'assurer non seulement de la précision des résultats obtenus mais également de pouvoir estimer l'apport de cette méthode par rapport aux méthodes existantes. Dans ce cadre, l'application d'insertion d'une contamination surfacique, développée au chapitre II, a été utilisée. La contamination a été implémentée perpendiculairement aux lignes de vol afin de ne pas regrouper l'ensemble des spectres présentant une contamination, ce qui reviendrait alors à traiter un cas particulier.

a. Données simulées

Les résultats obtenus à partir du survol environnemental d'un site réel (site 2) sur lequel des spectres de ^{241}Am ont été implémentés sont présentés dans cette partie. L'utilisation d'une contamination artificielle permet de tester à la fois les étapes de suppression des fluctuations et de soustraction du fond de diffusion. Les résultats sont comparés à la méthode 3W (Figure V-9). Ces résultats permettent d'évaluer le comportement des deux méthodes précitées notamment lors de variations d'altitude. L'estimation de la précision de ces méthodes est

alors réalisée dans un cas simple où la bibliothèque utilisée pour déconvoluer le signal de ^{241}Am contient les mêmes spectres que ceux implémentés avec l'application d'insertion d'une contamination surfacique. Ce cas simple permet de mettre en évidence l'intérêt du filtrage NASVD sur l'estimation des zones contaminées et des activités associées.

Les différents résultats obtenus sont présentés sous la forme de graphiques et de cartographies. Les graphiques présentent l'intérêt de comparer les résultats obtenus avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W tout en vérifiant l'influence de l'altitude de vol sur ces résultats.

La Figure V-9 présente les activités surfaciques en ^{241}Am implémentées et reconstruites par les deux méthodes (exprimées en kBq/m^2), et l'altitude de survol du site par l'hélicoptère (en rouge). L'axe des abscisses représente le numéro du spectre considéré.

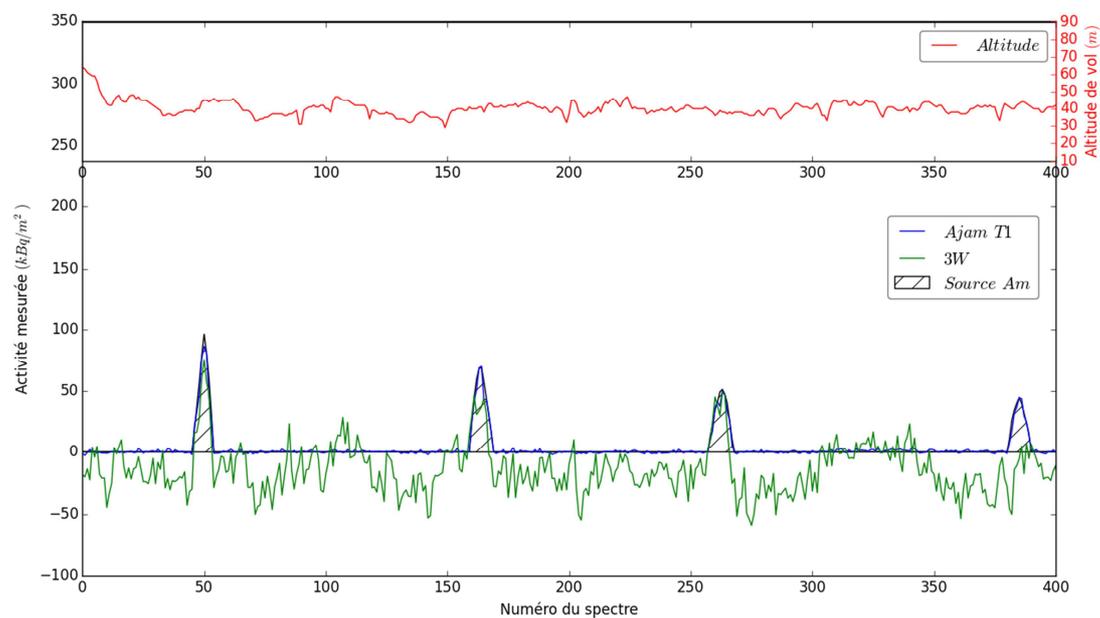


Figure V-9. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les 400 premiers spectres du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)

Le pilote de l'hélicoptère a réalisé un vol d'une bonne stabilité du point de vue de l'altitude (en rouge). De plus, l'altitude de référence a été respectée (40 mètres). Ceci permet donc de comparer les résultats sans prendre en compte l'influence de la variation de l'altitude.

La ligne de base des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 fluctue très légèrement autour de 0 kBq/m^2 . Cela est dû à la suppression des fluctuations statistiques qui permet un ajustement de la fonction mathématique non perturbé par ces fluctuations. La fonction mathématique choisie permet de prendre en compte les variations du bruit de fond provenant pour la majorité des radionucléides présents dans le sol (étant donné que l'altitude est relativement stable). Ces fluctuations sont beaucoup plus importantes avec la méthode 3W.

Lorsqu'une source de ^{241}Am représentative d'une certaine activité au sol est présente, on remarque que la méthode AJAM T1 est très précise quant à l'estimation de l'activité et de sa distribution. Une des craintes à ce niveau était que la suppression des fluctuations entraîne également une suppression d'une partie du signal de

^{241}Am . Les résultats obtenus avec la méthode 3W sont moins précis. Les sources ne sont pas toutes identifiées et un nombre important de fausses détections a lieu.

La méthode AJAM T1 est donc nettement plus performante en termes de détection et de quantification de l'activité des sources de ^{241}Am que la méthode 3W.

Lors du survol d'un site, il peut cependant arriver que le pilote de l'hélicoptère soit amené à dévier de sa trajectoire que ce soit en termes de respect de la ligne de vol ou de respect de l'altitude. La robustesse de la méthode AJAM T1 aux variations d'altitudes doit donc être testée.

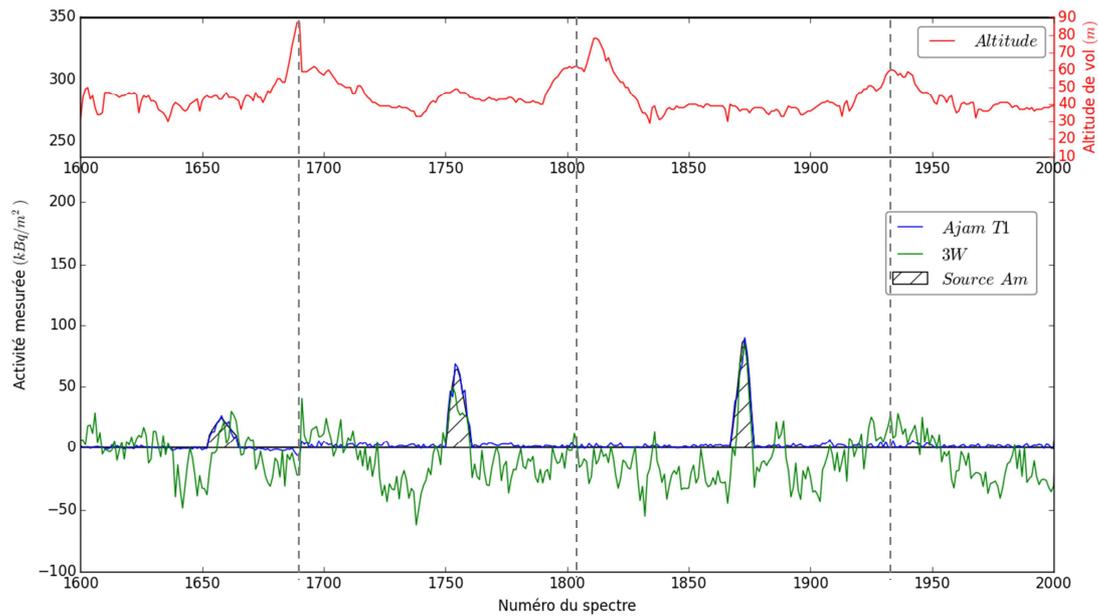


Figure V-10. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les spectres 1600 à 2000 du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)

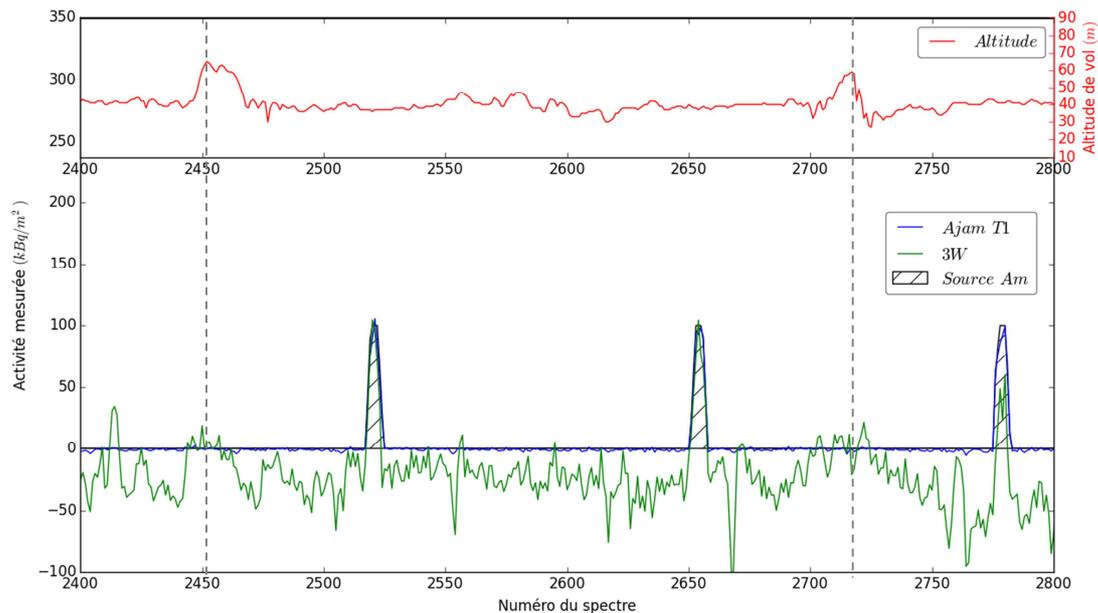


Figure V-11. Comparaison des activités déterminées avec la méthode AJAM T1 et la méthode 3W sur les spectres 2400 à 2800 du site 2, en fonction de l'altitude. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)

Les spectres considérés ont été choisis car certains d'entre eux présentent une brusque variation d'altitude, ce qui permet d'étudier directement les effets de l'altitude sur les résultats obtenus avec les deux méthodes. Les principales variations d'altitude ont été représentées par des tirets gris sur la Figure V-10 et la Figure V-11. La principale remarque est que la méthode AJAM T1 apparaît insensible à ces variations : la ligne de base des activités reste à 0 kBq/m² en l'absence d'insertion de ²⁴¹Am, l'amplitude des fluctuations n'augmente pas. La méthode 3W, bien qu'elle tienne compte de l'altitude dans son calcul de l'activité, est plus impactée par ces variations brusques d'altitude.

Les résultats sont systématiquement présentés sous forme de cartographies en spectrométrie gamma aéroportée. Ce type de représentation permet d'avoir une lecture très rapide de l'ensemble des résultats d'une mesure. La cartographie des activités obtenues avec la méthode AJAM T1 pour le site considéré, est présentée à la Figure V-12.

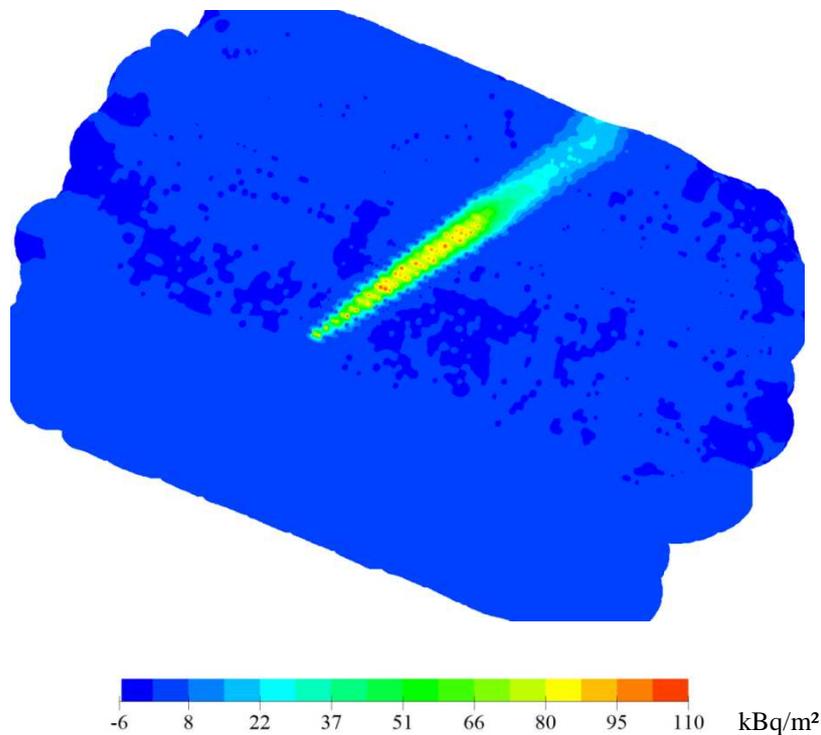


Figure V-12. Cartographie de l'activité de ²⁴¹Am déterminée avec la méthode AJAM T1 (amplitude maximale).

La forme de la plume de ²⁴¹Am insérée est retrouvée très précisément. Le reste de la zone à survoler est de couleur quasi-uniforme, ce qui indique un nombre très faible de fausses détections.

Il est alors possible de comparer la cartographie avec celle obtenue par la méthode 3W. Pour cela, il est nécessaire de définir une échelle de couleur commune. L'échelle commune choisie consiste à fixer la valeur minimale de l'activité à 0 kBq/m² et de fixer la même valeur maximale pour les deux cartographies (Figure V-13).

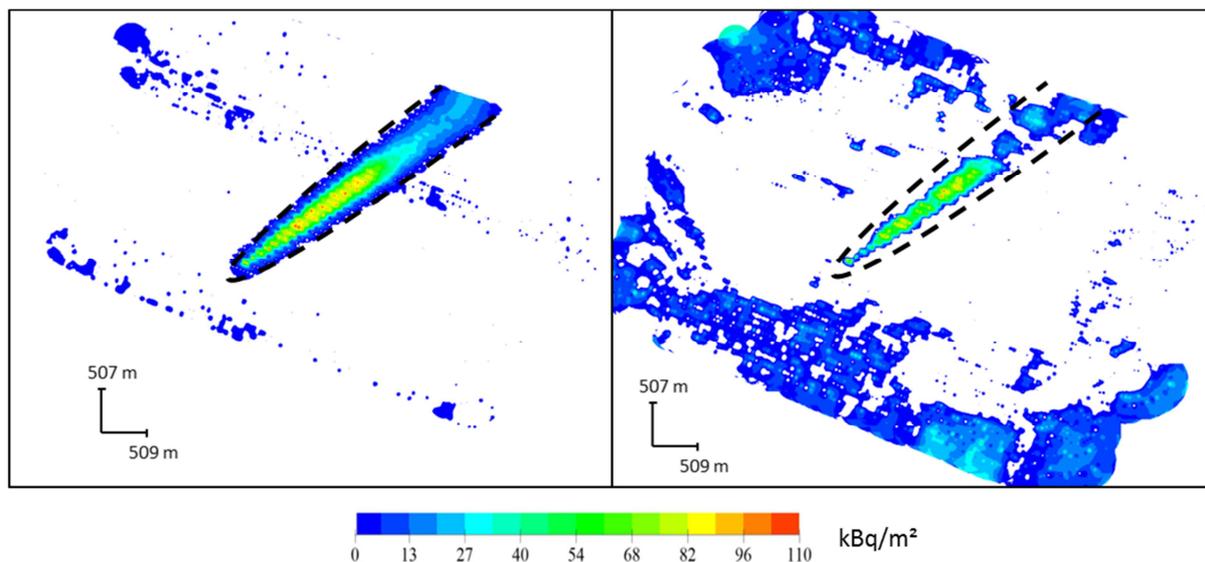


Figure V-13. Cartographies des activités de ^{241}Am obtenues avec les méthodes AJAM T1 (gauche) et 3W (droite). La même échelle de couleur est considérée pour les deux cartographies.

La première remarque est que les nombreux « trous » dans ces cartographies ne les rendent pas très esthétiques. C'est pour cela que généralement l'échelle entière de couleur est préférée même si celle-ci indique des activités négatives qui n'ont pas de sens physique. Pour rappel, les valeurs négatives sont issues des traitements mathématiques (des méthodes AJAM T1 ou 3W) avant d'être corrélés à la réalité physique du phénomène mesuré.

La seconde remarque concerne la taille de la plume de contamination implémentée. La méthode AJAM T1 étant plus sensible, un halo bleu est visible autour de la Plume. Celui-ci représente les plus faibles activités (<13 kBq/m²) de ^{241}Am détectées. Ce halo n'est pas visible sur les résultats obtenus avec la méthode 3W. La méthode AJAM T1 présente également moins de fausses détections que la méthode 3W. De plus, le niveau de ces fausses détections est toujours inférieur à 5 kBq/m². À titre de comparaison, les activités des fausses détections peuvent monter jusqu'à 45 kBq/m² avec la méthode 3W. Ces valeurs sont définies comme étant les seuils de détection pour le site, et sont reprises dans le Tableau V-1. Les activités maximales déterminées avec les deux méthodes sont quasiment identiques (110 kBq/m² pour AJAM T1 et 105 kBq/m² pour 3W). L'estimation du seuil de détection se fait généralement avec un risque de première espèce de 5 %, c'est-à-dire un risque que la détection d'une activité supérieure au seuil de détection soit en fait une fausse détection. Ce seuil de détection (SD) est déterminé par l'analyse des paramètres moyenne (μ) et écart type (σ) de la distribution des fausses détections et du coefficient de risque de première espèce k_α à l'équation (V-5) définie au chapitre I (I.6.e).

$$SD = \mu + k_\alpha \times \sigma \quad (\text{V-5})$$

La distribution des fausses détections obtenues avec la méthode AJAM T1 est présentée à la Figure V-14.

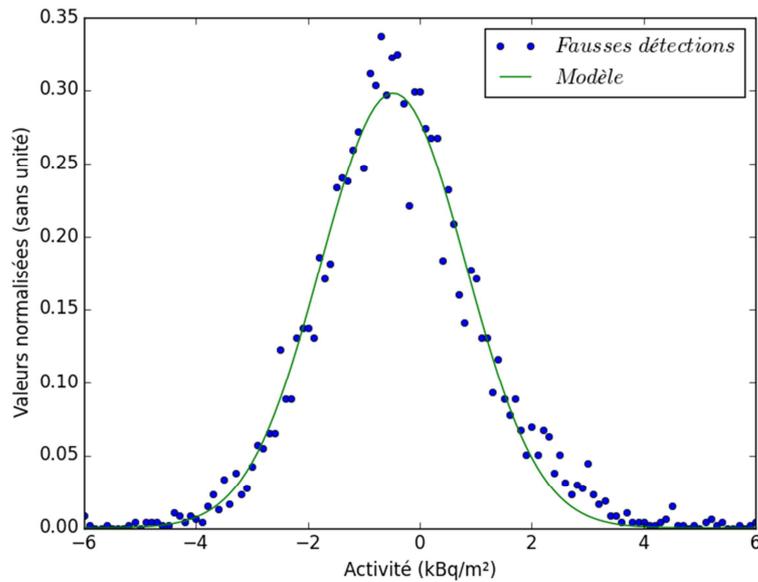


Figure V-14. Distribution de fausses détections obtenues avec la méthode AJAM T1. La distribution est ajustée par une fonction gaussienne.

Les seuils de détection à 5% pour la méthode AJAM T1 et 3W sont présentés dans le Tableau V-1.

Paramètres	AJAM T1	3W
μ	-0.30	-12.49
σ	1.27	19.22
$k\alpha$	1.64	1.64
Seuils de détection à 5% (kBq/m²)	2	20

Tableau V-1. Seuils de détection des méthodes AJAM T1 et 3W.

Les très bons résultats obtenus avec la méthode AJAM T1 sont intrinsèques à la méthode. La suppression des fluctuations joue un rôle majeur dans les performances de mesures obtenues. Cette suppression des fluctuations permet d'utiliser une fonction mathématique sur un nombre limité de canaux pour supprimer le bruit de fond et ajuster de manière précise le signal de ²⁴¹Am. L'apport de cette étape de suppression est visible à la Figure V-15 et la Figure V-16 où les résultats sont présentés avec et sans la suppression de ces fluctuations.

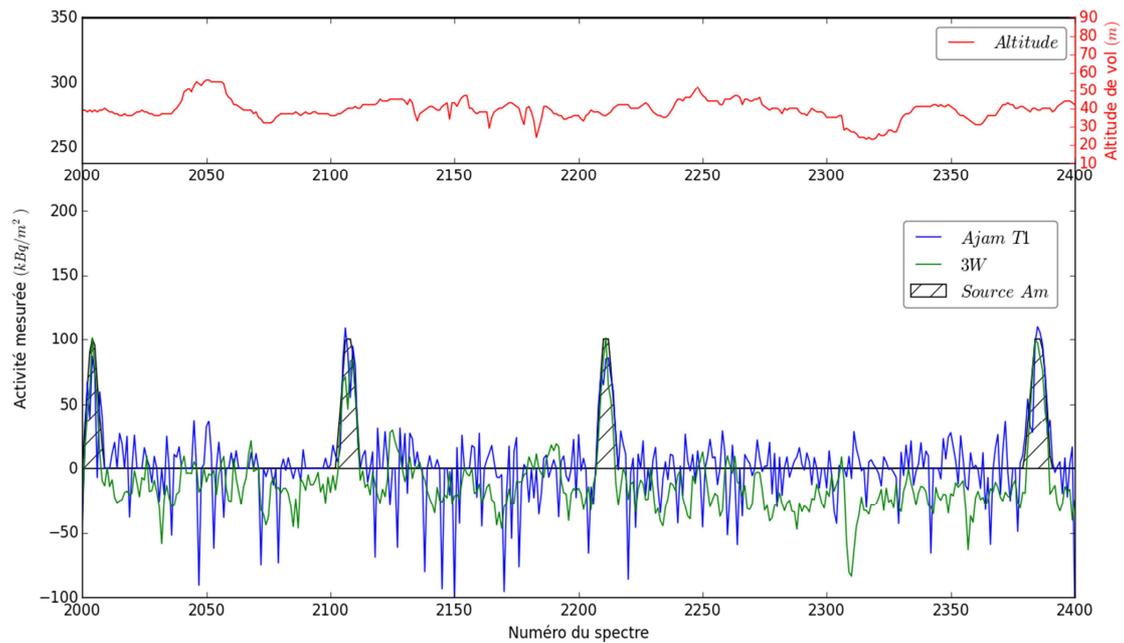


Figure V-15. Détermination des activités de ^{241}Am avec la méthode 3W et la méthode AJAM T1 SANS suppression au préalable des fluctuations statistiques. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)

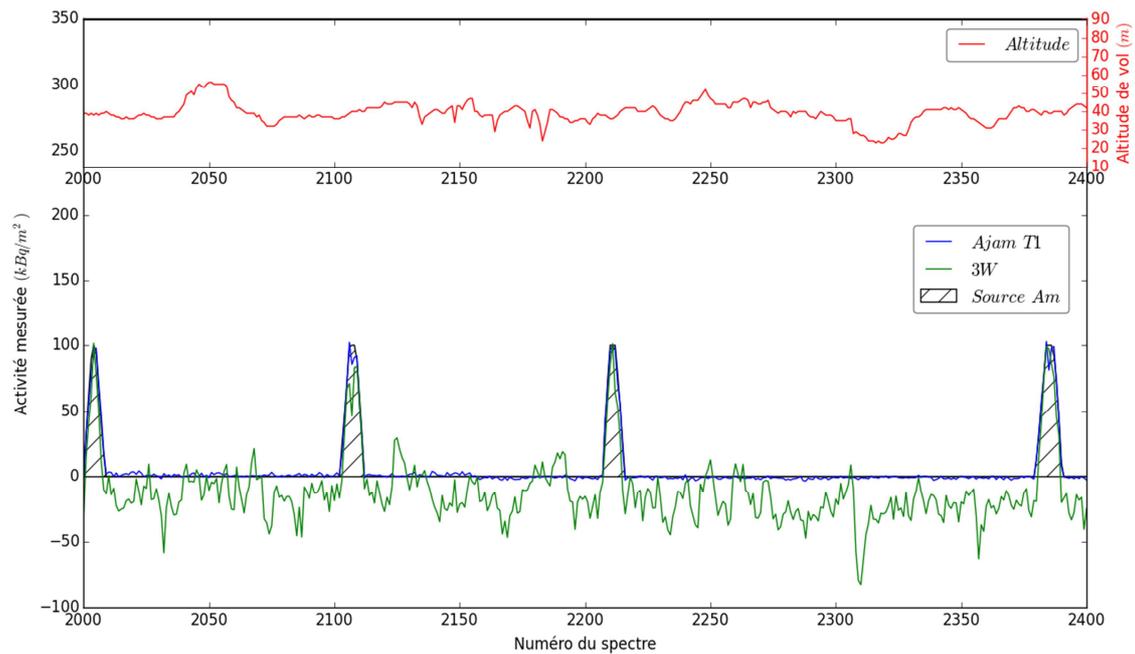


Figure V-16. Détermination des activités de ^{241}Am avec la méthode 3W et la méthode AJAM T1 AVEC suppression au préalable des fluctuations statistiques. L'activité implémentée est également représentée (zones hachurées)

Les sources de ^{241}Am sont identifiées dans les deux cas de figure, mais l'absence de la suppression des fluctuations statistiques sur les spectres en entrée entraîne une large fluctuation des activités déterminées avec la méthode AJAM T1. La suppression des fluctuations est donc une étape importante pour améliorer la précision des résultats d'analyse de ^{241}Am .

b. Site réellement contaminé

Les performances des deux méthodes ont ensuite été comparées dans le cas d'un site réellement contaminé.

Comme pour le site précédemment étudié, les résultats sont d'abord exprimés sous la forme de spectres d'activités puis sous la forme de cartographie.

Le début du survol de ce site a été réalisé au-dessus d'une zone non contaminée. La Figure V-17 présente les activités de ^{241}Am déterminées pour les méthodes AJAM T1 et 3W dans cette zone. Pour une facilité de comparaison des résultats, les activités maximales estimées avec la méthode 3W ont été normalisées aux activités maximales obtenues avec la méthode AJAM T1.

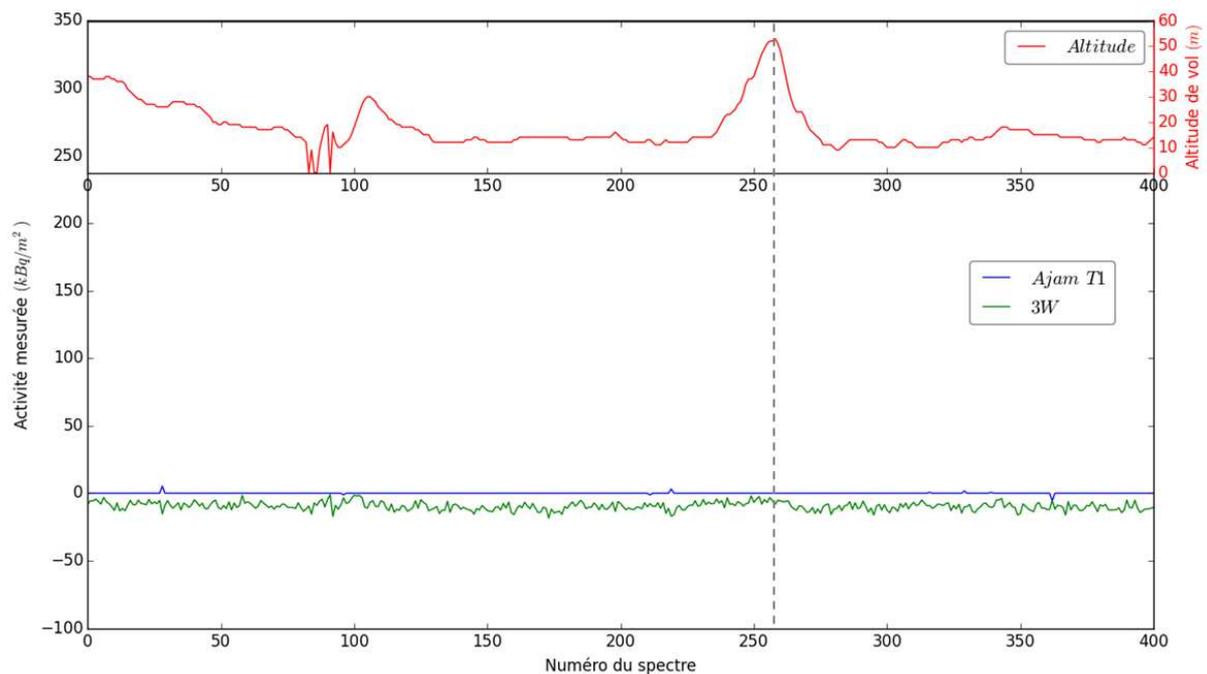


Figure V-17. Comparaison des activités déterminées sur les 400 premiers spectres du site NTS, avec les méthodes AJAM T1 et 3W.

On remarque que les fluctuations statistiques sont très faibles quelle que soit la méthode considérée. La méthode 3W présente une ligne de base légèrement inférieure à 0 kBq/m². Cela permet de supprimer artificiellement un grand nombre de fausses détections. Comme pour le cas d'étude précédent, la méthode AJAM T1 a une ligne de base centrée autour de zéro et présente de très faibles fluctuations.

Les deux méthodes ne semblent pas être impactées par les variations d'altitudes en l'absence de contamination. Il est intéressant d'étudier plus en détail différents spectres contenant des activités de ^{241}Am d'intensité différentes de façon à comparer la précision des deux méthodes de détection dans un cas réel de contamination. Les activités déterminées sur les spectres 4800 à 5200 sont présentés à la Figure V-18.

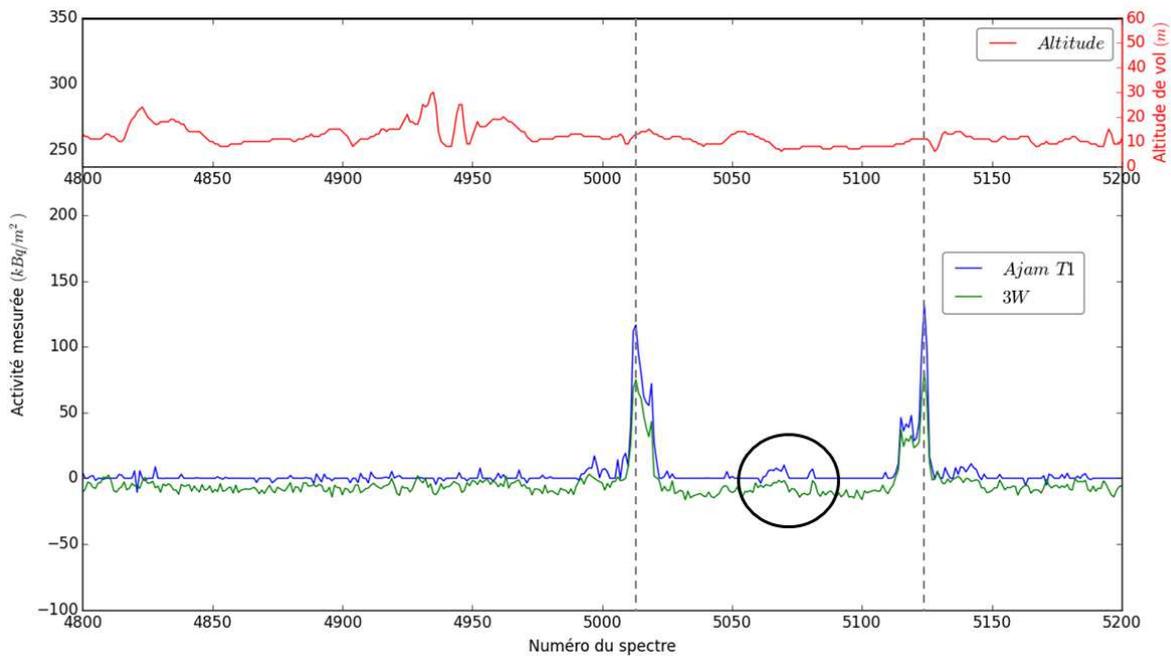


Figure V-18. Comparaison des activités de ^{241}Am déterminées sur les spectres 4800 à 5200 du site NTS, avec la méthode AJAM T1 et 3W.

Les activités déterminées en présence de sources « évidentes » (autour des spectres 5013 et 5124) localisés par les tirets gris sont détectées par les deux méthodes. Le profil des sources détectées est très similaire. La région aux alentours de spectre 5075 (entourée en noir) présente cependant une différence notable en termes d'activités selon la méthode utilisée. L'activité déterminée avec la méthode 3W ne dépasse pas les 0 kBq/m², tandis que l'activité avec la méthode AJAM T1 est d'environ 9 kBq/m². D'autres régions où les activités de ^{241}Am sont très faibles, comme au niveau des spectres 7 600 à 8 000, ont été analysées (Figure V-19).

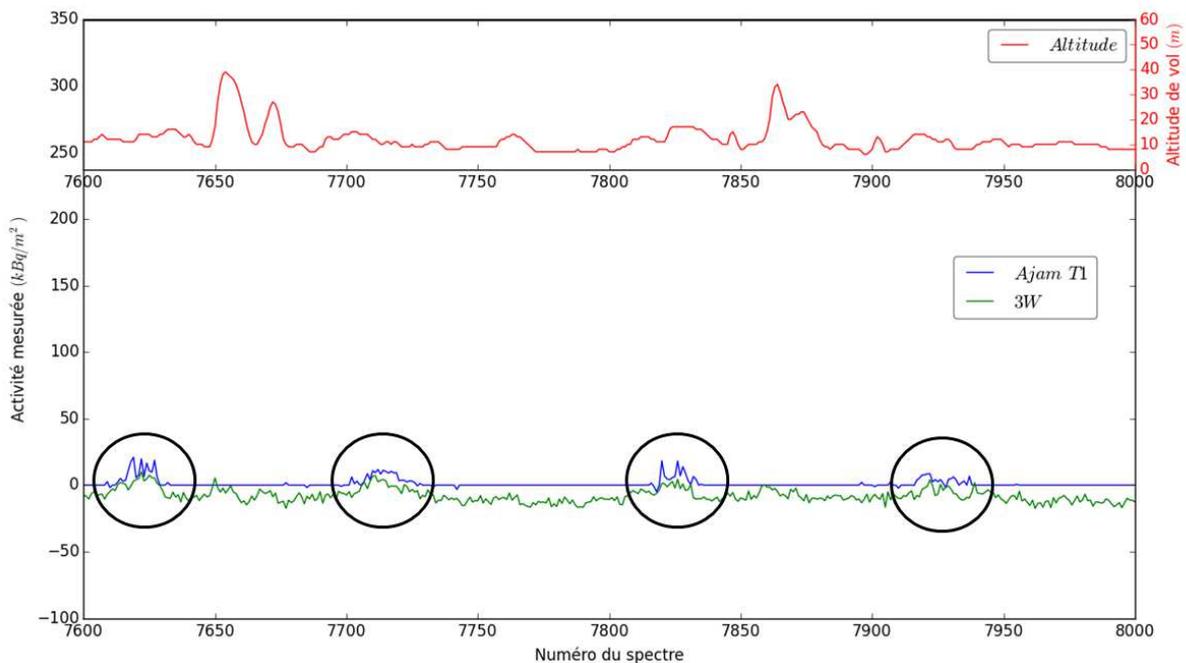


Figure V-19. Comparaison des activités de ^{241}Am déterminées sur les spectres 7 600 à 8 000 du site NTS, avec les méthodes AJAM T1 et 3W.

Les activités déterminées avec la méthode AJAM T1 sur la Figure V-19 font ressortir quatre groupes de spectres présentant du ^{241}Am . Plusieurs spectres de la gamme 7 600-8 000 ont été étudiés de manière plus détaillée afin d'évaluer les performances de la méthode (Figure V-20). L'analyse doit permettre de déterminer si une source de ^{241}Am est réellement présente ou non (Figure V-20). Les spectres 7610 et 7620 sans suppression des fluctuations sont comparés à la Figure V-20.

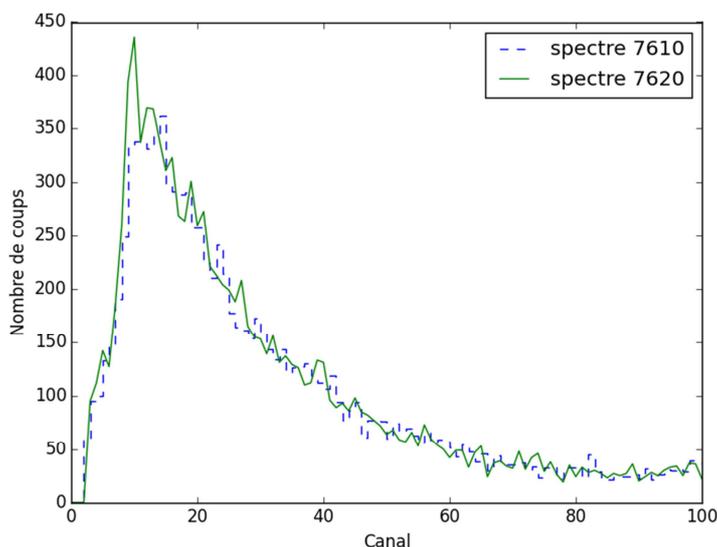


Figure V-20. Comparaison de spectres mesurés 7610 et 7620. Recherche d'une signature de ^{241}Am .

Un signal dû à ^{241}Am apparaît clairement sur le spectre 7 610 en le comparant au spectre 7620. Les ajustements des fonds de diffusion correspondants sont présentés à la Figure V-21.

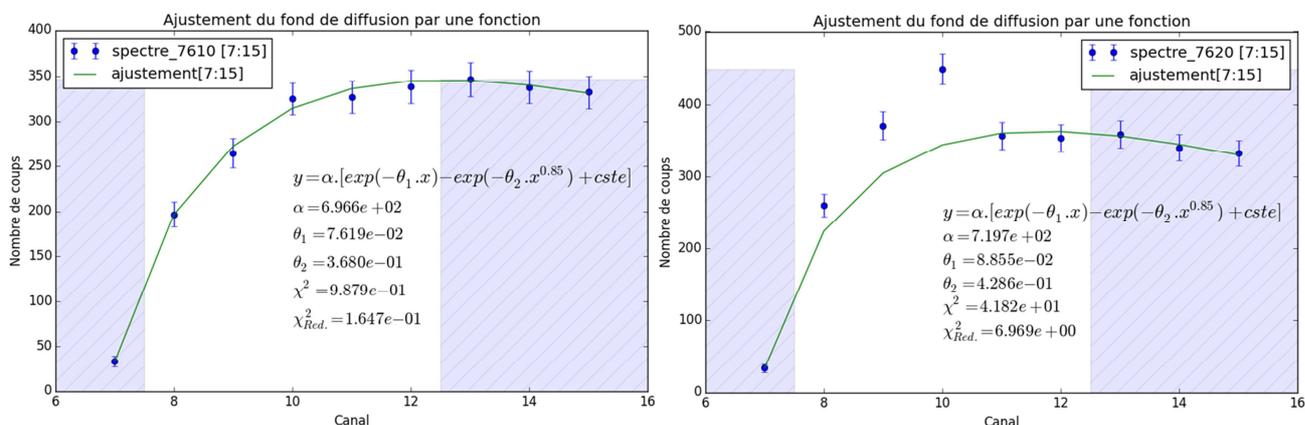


Figure V-21. Ajustement du fond de diffusion sur d'un spectre sans ^{241}Am (à gauche) et avec ^{241}Am (à droite).

L'ajustement des spectres permet finalement de supprimer le fond de diffusion (Figure V-21, gauche) tout en conservant le signal dû au ^{241}Am .

La recherche d'un signal dû au ^{241}Am lorsque les activités sont plus faibles (aux alentours des spectres 7920) est réalisé en moyennant les spectres sur lesquels du ^{241}Am a été détecté (moyenne des spectres 7917 à 7927). Ce spectre moyen est comparé au spectre moyen ne présentant pas de détection de ^{241}Am (spectres 7934 à 7940). L'utilisation d'une moyenne permet d'atténuer les fluctuations statistiques et permet ainsi d'affirmer plus aisément la présence ou non d'un signal dû à ^{241}Am . Cette comparaison est présentée à la Figure V-22.

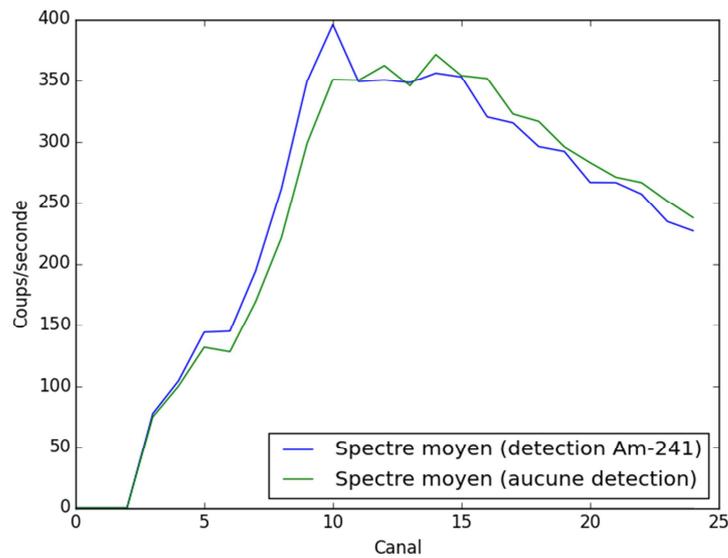


Figure V-22. Comparaison de la moyenne des spectres présentant une détection en ^{241}Am (spectres 7 917 à 7 927) à la moyenne des spectres n'en présentant pas (7 934 à 7 940), permettant la recherche d'une signature de ^{241}Am .

On remarque la présence d'une source de ^{241}Am sur le spectre moyen des spectres présentant une détection, marquée par un pic au canal 10. La méthode 3W montre bien une légère remontée au niveau de ces spectres, mais la ligne de base étant biaisée (légèrement inférieure à 0 kBq/m²) cela entraîne une très faible détection (Figure V-19). La ligne de base de la méthode AJAM T1 étant très proche de 0 kBq/m², la présence d'une source couplée à la bonne prise en compte du fond de diffusion permet de détecter plus facilement cette source.

Les résultats sous formes de cartographies pour les méthodes 3W et AJAM T1 sont présentés à la Figure V-23.

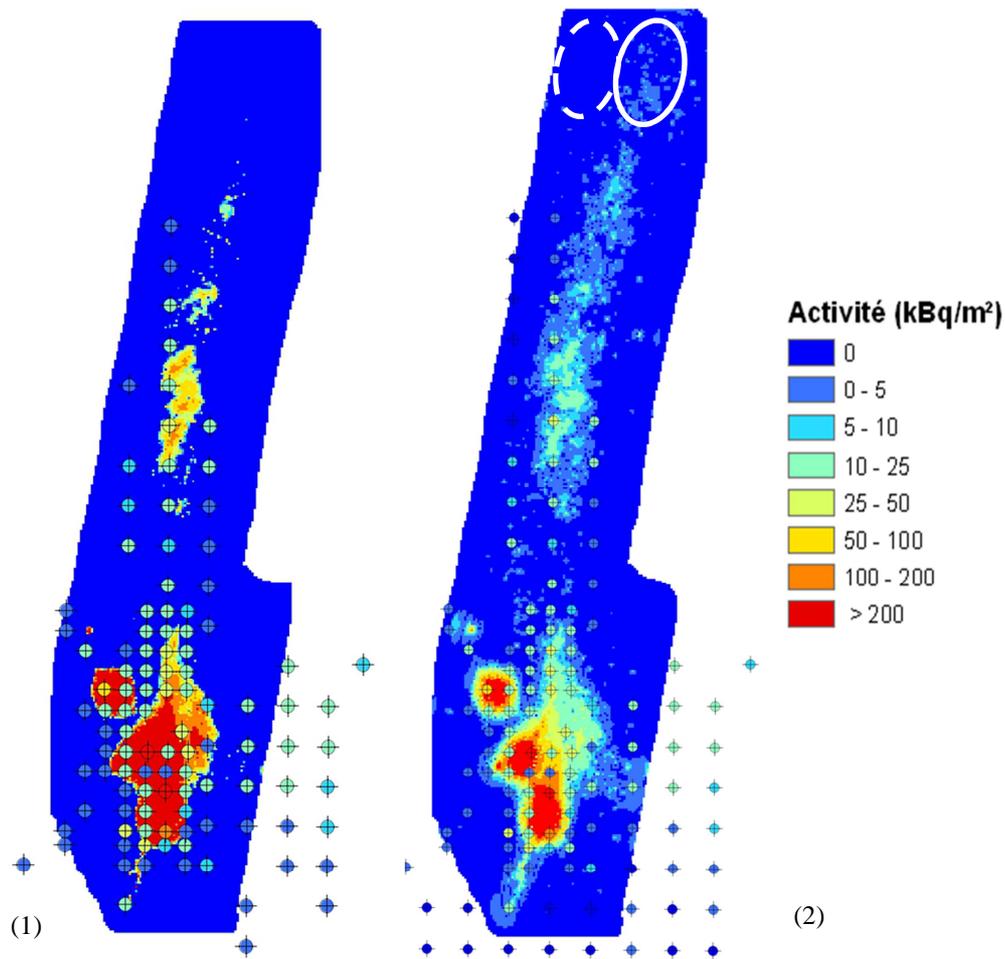


Figure V-23. Cartographies des activités de ^{241}Am obtenues pour la méthode 3W tenant compte des corrections d'altitude (1) et avec la méthode AJAM T1 (2). Les points représentent des mesures ponctuelles effectuées au niveau du sol.

L'utilisation de la méthode 3W avec prise en compte de l'altitude, sur le site réellement contaminé, a donné lieu à la cartographie 1 (Figure V-23 à gauche). Les résultats obtenus avec la méthode AJAM T1 sont présentés sur la cartographie 2 (Figure V-23 à droite).

La région fortement contaminée est détectée par les deux méthodes (zone rouge). La taille de cette région est plus importante avec l'utilisation de la méthode 3W qu'avec la méthode AJAM T1. La méthode 3W surestime également l'activité de ^{241}Am dans la zone contaminée (plume de rejet) par rapport à la méthode AJAM T1. Cependant, la méthode 3W réduit la taille de cette plume par rapport à la méthode AJAM T1. Cela provient d'une différence d'étalonnage des activités. En effet, les coefficients utilisés pour transposer les coups en activités ont pu être surestimés avec la méthode 3W, ce qui montre une limite dans l'utilisation de formules analytiques lors de la transposition des coups en activités. Ainsi, les régions où une détection a eu lieu verront le nombre de coups dus au signal ^{241}Am multiplié par un coefficient engendrant une activité plus importante que celle réellement présente tandis que les régions où aucune activité n'a été détectée resteront à 0 kBq/m^2 . Les zones encerclées en blanc sur la Figure V-23 mettent en lumière la détection de très faibles activités. La moyenne de dix spectres obtenus à une même altitude pour chacune des zones permet de mettre en évidence la capacité de détection de très faibles activités de ^{241}Am avec la méthode AJAM T1. Comme pour la Figure V-22,

la prise en compte d'une moyenne permet de faire ressortir le signal parmi les fluctuations statistiques. Ces spectres moyens sont représentés à la Figure V-24.

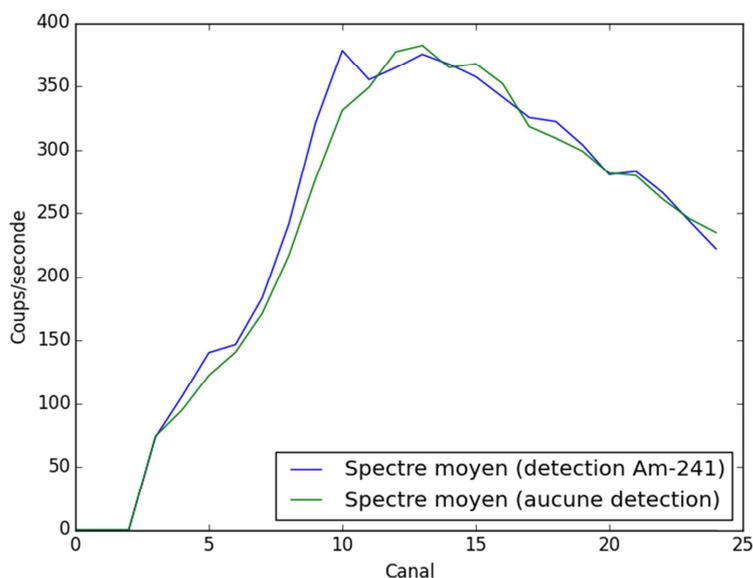


Figure V-24. Comparaison des spectres moyens contenus dans une région spatiale présentant des détections de ^{241}Am et dans une région spatiale n'en présentant pas. Les régions considérées sont encadrées en blanc sur la Figure V-23. Dix spectres par région sont considérés pour obtenir chacun des spectres moyens. Ces spectres moyens ont été obtenus à même altitude.

L'analyse de ces spectres moyens permet de mettre en évidence le signal dû à ^{241}Am (canal 10) détecté par la méthode AJAM T1.

Les activités déterminées avec la méthode AJAM T1 sont davantage en accord avec les mesures réalisées au sol que la méthode 3W (Figure V-23). C'est notamment le cas au niveau de la plume de relâchement, et entre les deux points chauds les plus bas spatialement. Au niveau de la plume, l'étendue de la zone contaminée et les activités déterminées avec la méthode AJAM T1 sont en bon accord avec les mesures au sol. La méthode AJAM T1 permet également de différencier les deux points chauds mis en évidence par ces mesures au sol. La méthode AJAM T1 permet donc finalement de diminuer la limite de détection tout en conservant un nombre réduit de fausses détections.

Dans ce travail, les méthodes AJAM T1 et 3W ont été mises en opposition afin de comprendre leur complémentarité. Les deux méthodes fonctionnant sur des principes très différents, (ce qui permet de garantir l'indépendance des méthodes entre elles), une détection réalisée de manière conjointe par les deux méthodes permettrait d'augmenter la probabilité que la détection soit due à une réelle présence de ^{241}Am .

Il est à noter que la méthode AJAM T1 a été spécialement développée pour les fortes fluctuations statistiques afin de rechercher, parmi ces fluctuations, les formes spectrales présentes sur plusieurs spectres et qui seraient caractéristiques d'un signal réel. Pour information, l'altitude à laquelle a été survolé le site réellement contaminé est plus faible que l'altitude généralement adoptée lors d'une mesure avec le système HELINUC (15 m au lieu de 40 m). Augmenter cette altitude reviendrait à diminuer un peu plus le signal présent sur chacun des spectres et

rendrait l'influence des fluctuations statistiques encore plus importantes. La méthode AJAM T1 serait ainsi particulièrement adaptée dans ce cas de figure, qui est celui le plus souvent rencontré lors d'un survol avec le système HELINUC (altitude de référence de 40 mètres).

Conclusion

Une des caractéristiques de la spectrométrie gamma aéroportée est d'enregistrer des spectres de manière continue suivant une même ligne de vol et présentant des écarts importants entre chaque ligne de vol. La vitesse, l'altitude et le temps d'acquisition conduisent alors à un signal faible sur chacun des spectres, mais redondant entre les spectres (recouvrement spatial de mesures contiguës). Cette redondance spectrale a été utilisée pour développer une nouvelle méthode de recherche de contamination en ^{241}Am . La méthode AJAM T1 présente des performances très intéressantes, en particulier en termes de limite de détection et de fausse détection. L'apport des différentes étapes de la méthode a été présenté à savoir le filtrage des fluctuations, l'ajustement du fond de diffusion et la déconvolution du signal de ^{241}Am .

La plupart des systèmes de spectrométrie aéroportés utilisent des détecteurs NaI(Tl). Même si des détecteurs à base de GeHP peuvent être amenés à être utilisés avec le système HELINUC (Gutierrez, 2002), les scintillateurs NaI(Tl) leur sont généralement préférés en raison de leur meilleur rendement de détection à volume égal. L'utilisation de scintillateurs NaI(Tl) entraîne cependant une résolution en énergie relativement médiocre des spectres comparée à celle des détecteurs à semi-conducteurs. Ce qui peut apparaître comme un inconvénient a été utilisé comme un avantage dans la suppression des fluctuations statistiques, mais également lors de l'ajustement des signaux de ^{241}Am . En effet, la mauvaise résolution en énergie de ce type de détecteur entraîne un étalement du pic d'absorption sur plusieurs canaux. La covariance entre ces canaux est alors utilisée afin de séparer le signal du bruit à partir de la méthode de suppression des fluctuations et de l'ajustement des spectres.

L'utilisation d'une fonction mathématique dont l'évolution des paramètres permet de prendre en compte le fond de diffusion en fonction de l'altitude, permet d'isoler le signal de ^{241}Am . L'ajustement de cette fonction se base sur les canaux encadrant le pic d'absorption de ^{241}Am (énergie inférieure et supérieure au pic d'absorption).

L'idée générale de la méthode AJAM T1 est finalement d'utiliser l'ensemble des caractéristiques des conditions opératoires et d'en tirer profit dans l'analyse des données expérimentales.

VI. Détection d'anomalies

L'une des principales missions du système HELINUC est la mesure radiologique aéroportée de sites militaires ou civils afin de déceler, en situation accidentelle, une éventuelle contamination surfacique ou la présence de sources ponctuelles. Lors de la sécurisation de grands événements, la recherche de sources ponctuelles est également une mission importante du système. Les raies d'émissions des radionucléides d'intérêt se trouvent toutes à des énergies inférieures à 1 500 keV. Afin d'optimiser le temps de réponse des opérateurs au sol, il est alors nécessaire d'utiliser des méthodes de traitement rapides des spectres enregistrés en vol permettant une utilisation en temps réel.

Le système de spectrométrie gamma HELINUC a couvert une grande partie des sites militaires ou civils faisant l'objet d'une surveillance radiologique périodique, permettant ainsi d'avoir un état des lieux radiologique de ces sites à un instant. Cet état des lieux, appelé blanc radiologique, représente une référence qui sera utilisée lors de la réalisation des prochaines campagnes de mesure. La méthode considérée jusqu'à présent repose sur la comparaison dans son ensemble de la cartographie réalisée à l'instant $T + T_o$ avec celle obtenue à l'instant T_o .

Ce chapitre propose une nouvelle utilisation des blancs radiologiques afin d'établir une comparaison en temps réel des spectres mesurés d'un site avec les analyses réalisées au temps T_o pour détecter, le cas échéant, une évolution de l'état radiologique d'un site. La méthode proposée s'appuie sur cette connaissance a priori de l'état radiologique à T_o pour créer une bibliothèque des signatures spectrales des différents radionucléides d'origine naturelle. La bibliothèque ainsi créée servira de base de données spectrales lors de la nouvelle campagne de mesures du site en question.

La nécessité d'avoir une méthode applicable en temps réel et pouvant être utilisée en même temps que d'autres méthodes d'analyse nécessite le développement d'une méthode de détection rapide. Pour cela des critères de comparaison entre spectres mesurés et spectres de référence ont été étudiés. Une différence importante entre ces deux types de spectres sert en effet d'indicateur pour la détection d'une anomalie radiologique.

1 Matériels et méthodes

Dans un premier temps, l'étude de faisabilité de cette méthode a été réalisée en utilisant la simulation du site 1 présentée au chapitre II. Un spectre de ^{131}I a été injecté sur l'un des spectres simulés pour modéliser la présence d'une source ponctuelle. L'étude a ensuite été transposée à un site réel avec ajout par simulation d'une source de radionucléide anthropique (^{131}I) sur des données expérimentales.

La méthode est divisée en deux étapes. L'objectif de la première étape est de déterminer l'allure des spectres caractérisant l'état radiologique d'un site « propre » c'est-à-dire sans contamination radioactive. Les signatures spectrales recherchées sont donc celles du ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th . La seconde étape repose sur l'ajustement à haute énergie (> 600 keV) des spectres mesurés à partir des signatures des radionucléides déterminées. L'analyse de la différence à basse énergie entre ces spectres mesurés et les spectres ajustés sera utilisée comme critère de

détection de la présence d'un radionucléide d'origine anthropique. Une différence importante signifiera la présence d'un radionucléide d'origine anthropique qui sera qualifiée d'anomalie gamma.

a. Création de la bibliothèque des radionucléides naturels

Pour créer une bibliothèque de référence, l'idée est d'utiliser la covariance entre les spectres enregistrés sur un site en adaptant la méthode NASVD (III.5). Une combinaison linéaire des composantes spectrales est ainsi réalisée dans l'espace des composantes en appliquant des contraintes de nullité et de continuité :

- Contrainte de nullité : les canaux supérieurs aux canaux contenant le signal du radionucléide d'intérêt sont fixés à zéros.
- Contrainte de continuité : la présence des radionucléides de plus faible énergie ne doit pas être visible sur la signature des radionucléides de plus haute énergie (continuité du fond de diffusion à l'endroit où un pic de pleine absorption d'un radionucléide de plus basse énergie pourrait être présent).

La reconstruction du spectre initial se base uniquement sur les composantes spectrales contenant du signal (les composantes ne contenant que du bruit ne sont pas utilisées pour la reconstruction du spectre).

L'exemple suivant est donné pour le ^{137}Cs pour lequel aucun radionucléide n'est présent à plus basse énergie.

Le signal induit par le ^{137}Cs ne se trouve pas sur les canaux supérieurs au canal 122 (énergie 732 keV). Ce canal correspond à l'énergie d'émission de la principale raie du ^{137}Cs (662 keV) et à l'élargissement du pic provenant de la résolution en énergie du détecteur. La condition de nullité est donc appliquée aux coups présents dans les canaux supérieurs au canal 122. Il faut déterminer les coefficients a_i permettant de vérifier l'équation (VI-1) :

$$\forall j > 122; \sum_{i=1}^{Cp_max} a_i \times \text{Composante}[i, j] = 0 \quad (\text{VI-1})$$

Mathématiquement, pour obtenir des solutions non triviales au système d'équations homogène proposé, les vecteurs de la matrice « Composante » doivent être linéairement dépendants entre eux. Or ces vecteurs, obtenus par la décomposition en valeurs singulières utilisée pour la création des composantes, sont par définition linéairement indépendants entre eux (les vecteurs sont orthogonaux entre eux). Un des coefficients a_i doit donc être fixé, ce qui permet d'obtenir les autres coefficients en fonction de celui-ci. Le coefficient de la première composante (a_1) est ainsi fixé à l'unité. L'équation précédente devient alors :

$$\forall j > 122; \sum_{i=2}^{Cp_max} a_i \times \text{Composante}[i, j] = \text{Composante}[1, j] \quad (\text{VI-2})$$

Pour les radionucléides de plus haute énergie, une condition de continuité est appliquée. Celle-ci revient à obtenir un fond de diffusion continu dans les régions énergétiques où se trouverait potentiellement le pic d'absorption des radionucléides de plus faibles énergies.

Afin d'estimer les biais et l'efficacité de la méthode proposée, la méthode a tout d'abord été testée sur les spectres simulés du site 1. Les composantes obtenues via l'application de la décomposition en valeurs singulières sont donc les mêmes que celles présentées à la Figure IV-3 et Figure IV-4 (chapitre IV).

b. Anomalie radiologique

L'utilisation d'un spectre de ^{131}I permet d'analyser le comportement de la méthode face à une anomalie radiologique dont le principal pic d'absorption se trouve à une énergie de 365 keV. Le taux d'émission de cette raie est de 81.2 %. Ce spectre est injecté sur un ou plusieurs spectres afin d'étudier la réponse de la méthode à la présence d'anomalies gamma et de pouvoir comparer cette réponse à la variation du comptage total. L'allure du spectre de ^{131}I considéré est présentée à la Figure VI-1.

Ce spectre a été obtenu par simulations Monte Carlo et calibrations en laboratoire du système HELINUC.

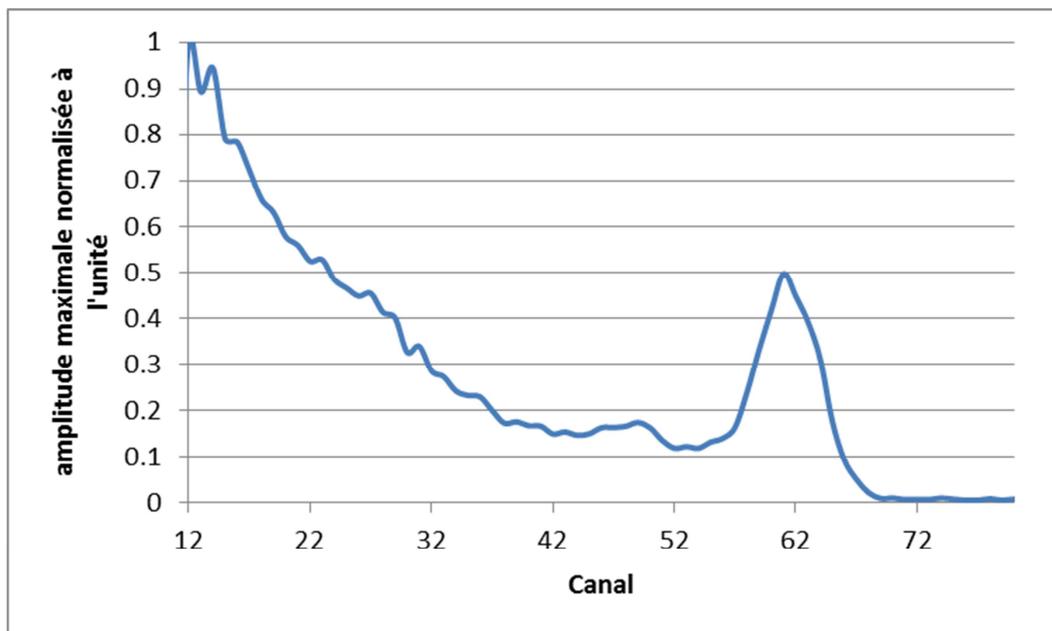


Figure VI-1. Spectre de ^{131}I obtenu par simulations Monte Carlo du système HELINUC. L'allure du spectre est représentative d'une altitude de 40 mètres.

Le rapport entre la somme des taux de comptage compris dans les canaux 15 à 68 (fond de diffusion + pic de pleine absorption) et la somme des taux de comptage compris entre les canaux 55 à 68 (pic de pleine absorption) est supérieur à 5 (Figure VI-1). Une méthode utilisant l'ensemble du spectre, et non exclusivement le pic de pleine absorption, donnera de ce fait de meilleurs résultats en termes de détection d'anomalies.

2 Résultats

a. Site 1 (site simulé)

Détermination des signatures spectrales et analyse des résidus

La définition des signatures des radionucléides ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th est réalisée à partir de la combinaison linéaire des quatre premières composantes et des différentes conditions d'optimalité. Les résultats sont présentés à la Figure VI-2.

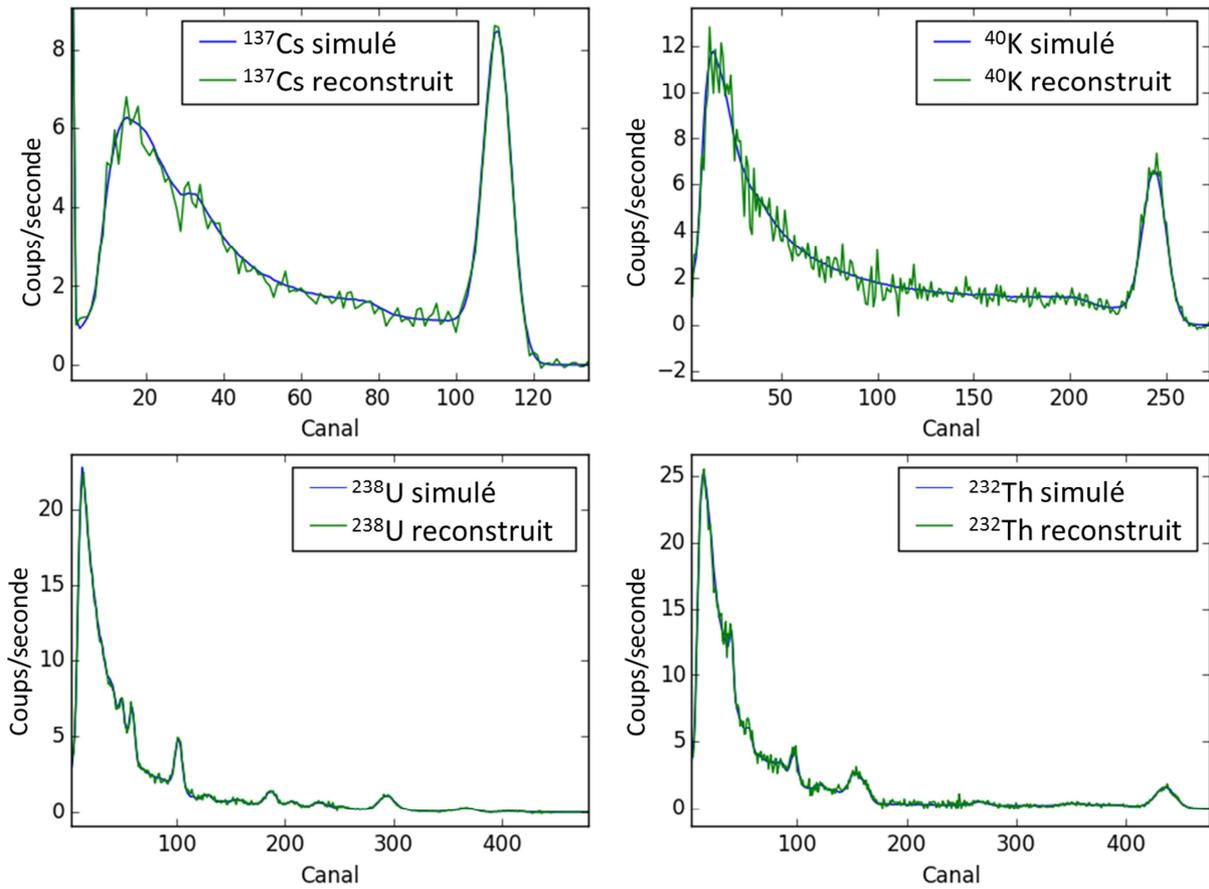


Figure VI-2. Spectres reconstruits par combinaison linéaire des quatre premières composantes issus de la décomposition en valeurs singulières du jeu de données initiales. Ces spectres sont comparés aux spectres vrais obtenus par simulation Monte Carlo du site 1.

L'allure générale des spectres est correctement reconstruite mais des fluctuations statistiques subsistent. Afin d'améliorer la reconstruction des signatures obtenues, les fluctuations statistiques résiduelles sont ensuite atténuées par application d'un filtre quartique (Figure VI-3).

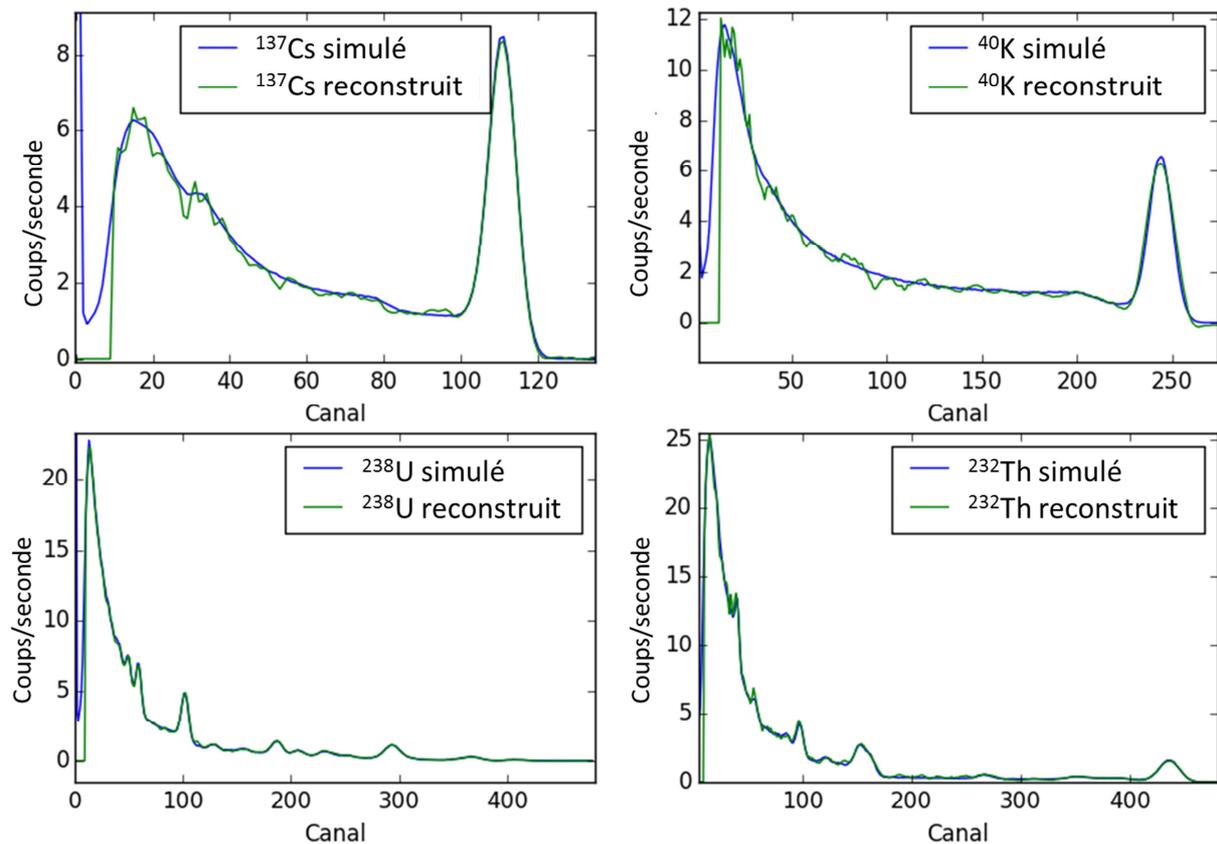


Figure VI-3. Spectres reconstruits par combinaison linéaire des quatre premières composantes issus de la décomposition en valeurs singulières avec application d'un filtrage quartique. Ces spectres sont comparés aux spectres vrais obtenus par simulation Monte Carlo du site 1.

La méthode permet de reproduire de manière très satisfaisante les signatures des radionucléides naturels (^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th) et du ^{137}Cs . Cependant, l'intensité de chacun de ces spectres unitaires pour reconstruire le spectre initial n'est pas déterminée. En effet, l'utilisation de l'équation (VI-2) impose de réaliser la somme des composantes spectrales en fixant le coefficient de la première composante à 1. Cette contrainte a pour conséquence d'exprimer les formes spectrales en fonction de la composante 1 utilisée pour la reconstruction, ce qui entraîne la perte de l'information sur l'intensité réelle de chaque signature dans les spectres mesurés. L'intensité peut cependant être obtenue par ajustement des spectres à haute énergie (canaux supérieurs à 100) avec les différentes signatures.

La différence entre les spectres reconstruits et simulés sera dénommée résidus dans la suite. L'analyse de ces résidus à basse énergie (canaux inférieurs à 100) permettra d'indiquer la présence d'une anomalie gamma. La somme des résidus dans la plage de canaux [15 : 100], pour chaque spectre, est présentée à la Figure VI-4.

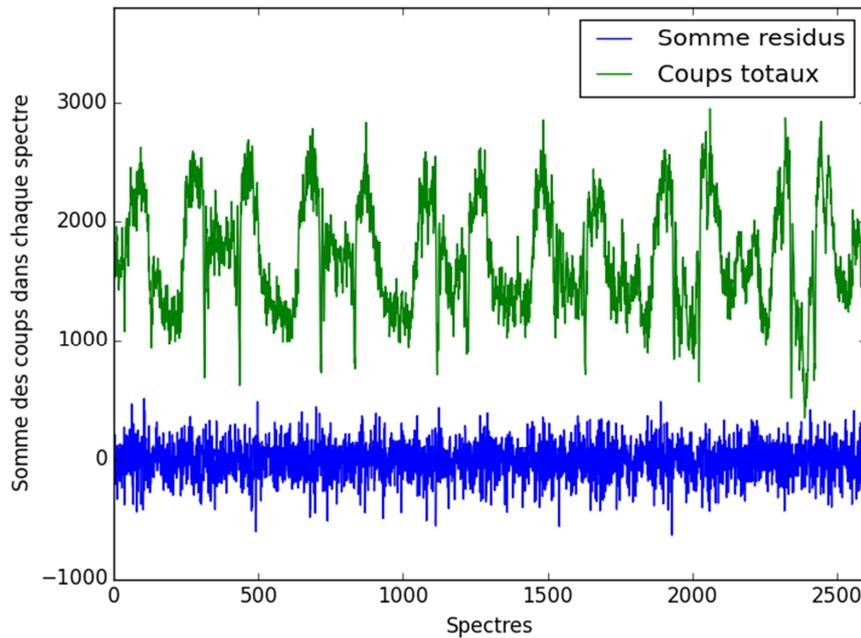


Figure VI-4. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre. Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].

La somme des résidus pour l'ensemble des spectres présentent moins de variation que l'évolution des coups totaux de chaque spectre. Cela indique que l'ajustement réalisé à haute énergie permet de prendre en compte de manière précise les variations d'activité du site 1. L'étude de la distribution de ces résidus est présentée à la Figure VI-5.

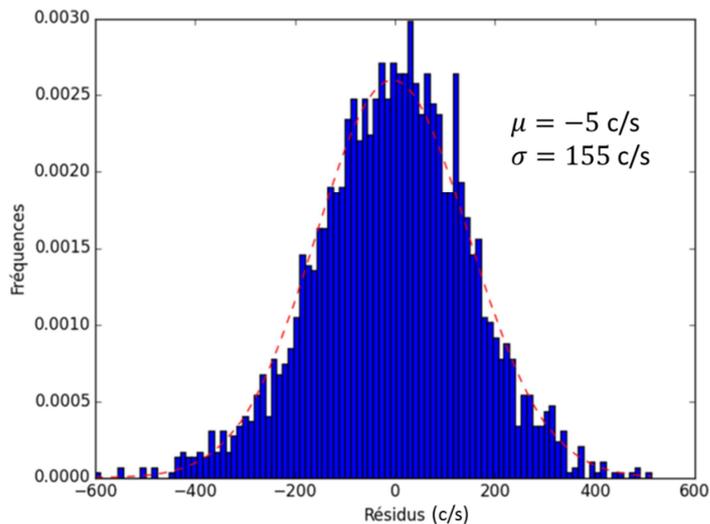


Figure VI-5. Distribution de la somme des résidus issus de l'ajustement des spectres simulés à partir des signatures spectrales déterminées. Les canaux considérés pour cette somme sont [15 : 100]. Cette distribution est modélisée par une gaussienne de paramètre (μ , σ).

L'analyse des résidus présentée à la Figure VI-5 fait ressortir que ceux-ci suivent une loi normale de paramètre $\mu = -5 \text{ c/s}$ et $\sigma = 155 \text{ c/s}$. Une valeur de résidus supérieure à 355 coups/seconde assurera ainsi une détection d'anomalie avec niveau de risque de fausse détection de 1% ($k_{alpha} = 2.326$).

Détection d'anomalies gamma

Un spectre de ^{131}I non bruité contenant 1100 coups entre les canaux 12 à 68 a été injecté sur un des spectres (spectre numéro 131) du jeu de données simulées. Les résidus entre les spectres reconstruits et spectres simulés sont représentés à la Figure VI-6.

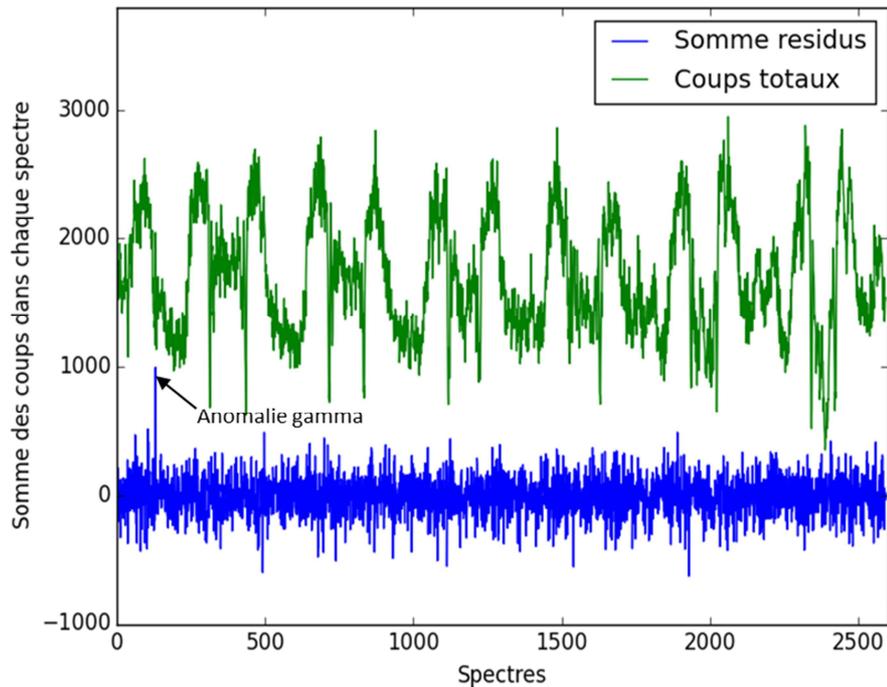


Figure VI-6. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre avec injection d'un spectre de ^{131}I au niveau du spectre 131 (indiqué par une flèche). Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].

Tandis que la présence de l'anomalie est noyée dans les variations d'activité (tracé en vert), l'analyse des résidus fait clairement apparaître l'anomalie gamma (représentée par une flèche).

Après l'étude par simulation, la méthode développée a été appliquée à un site réel.

b. Site 2 (site réel)

L'utilisation du site 2 (chapitre II) permet de tester la méthode sur un site réel. Les signatures spectrales obtenues sont présentées à la Figure VI-7, et sont comparées à celles obtenues pour la simulation du site 1. En effet, contrairement au cas du site 1 qui est un site simulé, le site 2 ne possède pas de signature spectrale de référence permettant de juger de la qualité des signatures spectrales obtenues. Le nombre de coups dans les pics d'absorption des spectres simulés ont été normalisés à ceux des spectres reconstruits pour faciliter la comparaison.

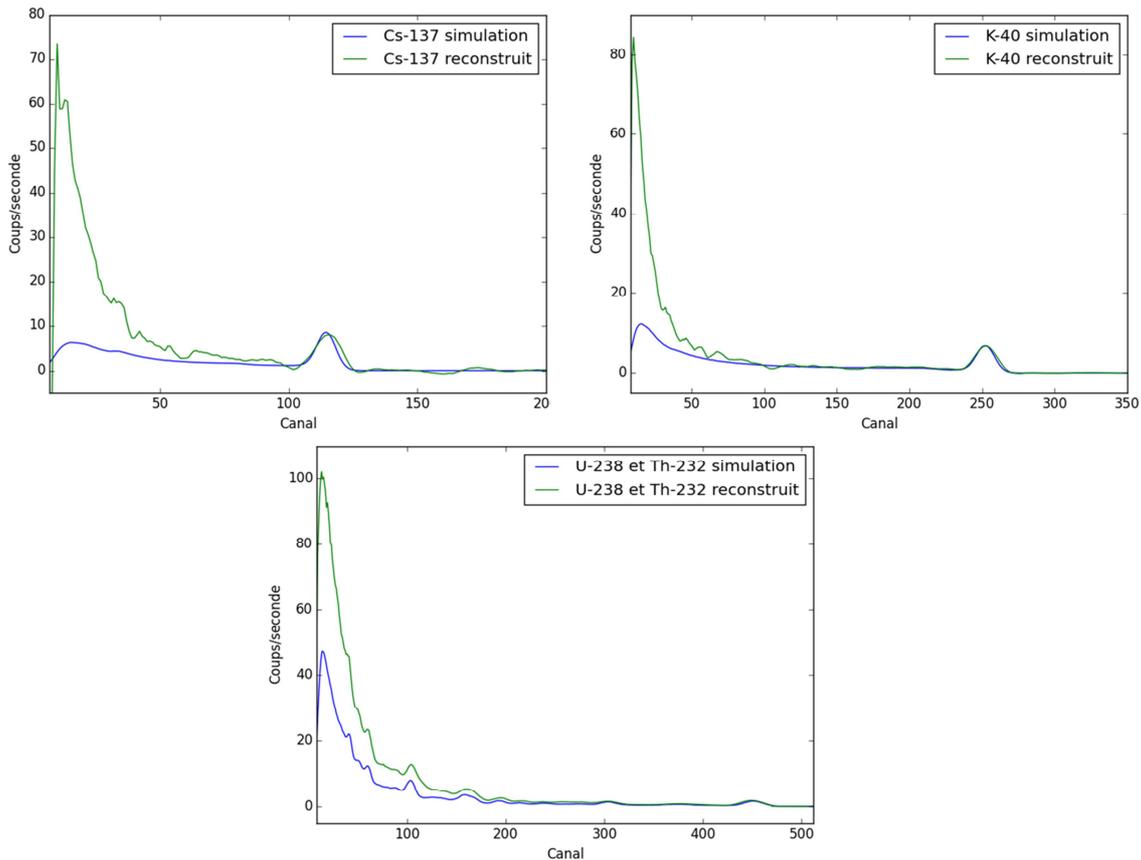


Figure VI-7. Signatures spectrales du ^{137}Cs , ^{40}K , ^{238}U et ^{232}Th obtenues par simulation Monte Carlo du site 1 et par décomposition en valeurs singulières des spectres mesurés au site 2.

Les variations conjointes des activités de ^{238}U et de ^{232}Th ne permettent pas leur séparation par cette méthode, ce qui explique que les deux signatures soient regroupées sur le même spectre. La détermination des composantes spectrales fait apparaître une différence entre celles-ci et les spectres obtenus par modélisation du site 1. Cette différence est importante à basse énergie (en dessous du canal 50, correspondant à 300 keV) pour le ^{137}Cs et le ^{40}K et même à moyenne énergie pour les spectres sommes de ^{238}U et ^{232}Th (canal 150). Cette différence provient de la diffusion dans l'air et surtout dans la matrice sol. La différence de diffusion des photons peut notamment provenir de la composition de la matrice sol contenant la source (un sol de Beck (Beck, 1972) a été pris en compte pour la simulation), de sa densité, ou encore de la distribution des radionucléides dans le sol. La méthode permet donc de prendre en compte de manière précise les phénomènes de diffusion dus aux caractéristiques du sol et à la répartition des radionucléides. Les signatures spectrales obtenues sur spectres simulés sont utilisées afin d'ajuster les spectres mesurés. L'ajustement est réalisé sur la région énergétique supérieure à 600 keV. Pour cet ajustement, des groupes de canaux sont considérés afin d'augmenter la statistique de comptage et permettre l'utilisation de la méthode d'ajustement des moindres carrés. Des exemples d'ajustement de spectres caractéristiques de la diversité du jeu de données sont présentés à la Figure VI-8.

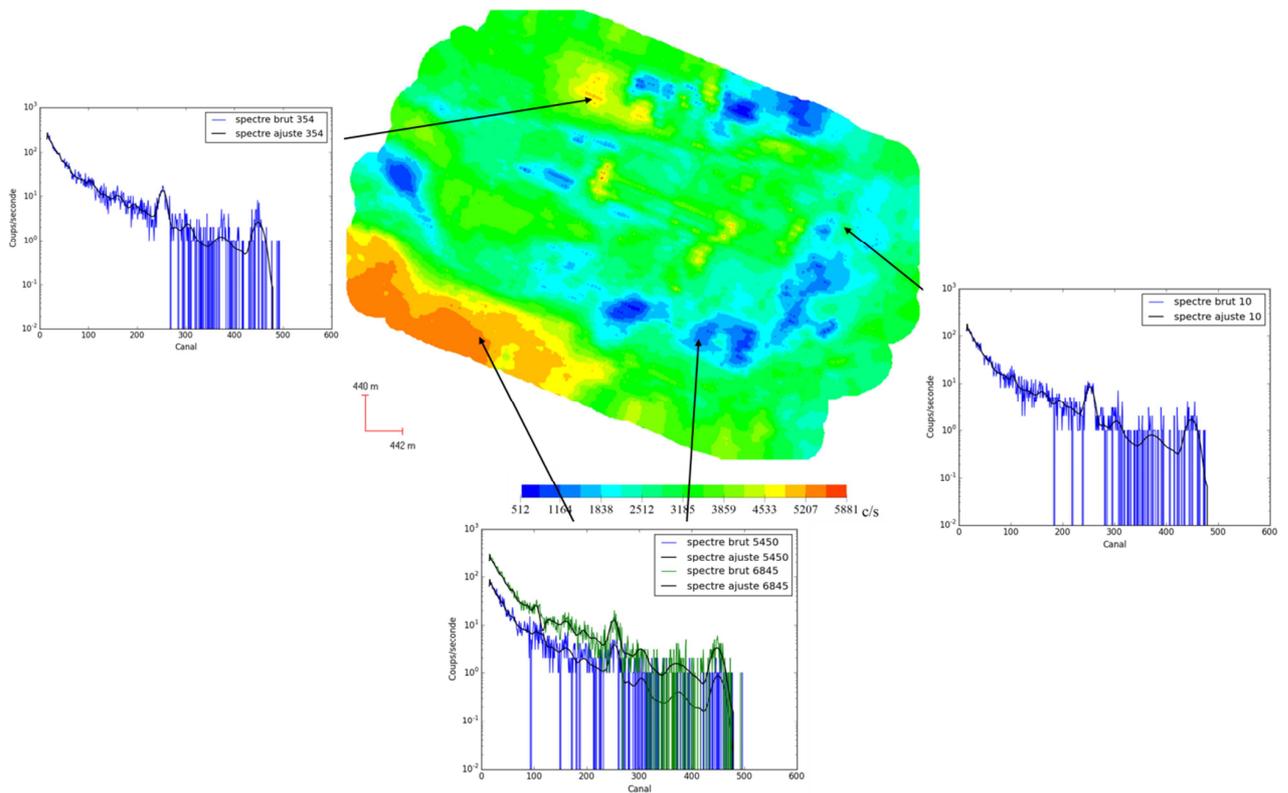


Figure VI-8. Comparaison de spectres reconstruits et mesurés. Pour cette comparaison, les spectres reconstruits sont ajustés aux spectres mesurés à partir des pics d'absorption se trouvant à haute énergie (utilisation des canaux supérieurs à 100 correspondant à 600 keV).

Que ce soit dans les zones les plus actives (présentant un taux de comptage important) ou les moins actives (présentant un taux de comptage faible), l'ajustement des spectres mesurés, réalisé au niveau des canaux supérieurs à 100, permet de reproduire précisément le fond de diffusion (canaux inférieurs à 100) (Figure VI-8)). De plus, la qualité de cet ajustement ne dépend pas de la région spatiale considérée. L'analyse des résidus (différence entre les spectres ajustés et mesurés) permet d'évaluer la tendance de ces variations. Cette analyse est présentée à la Figure VI-9.

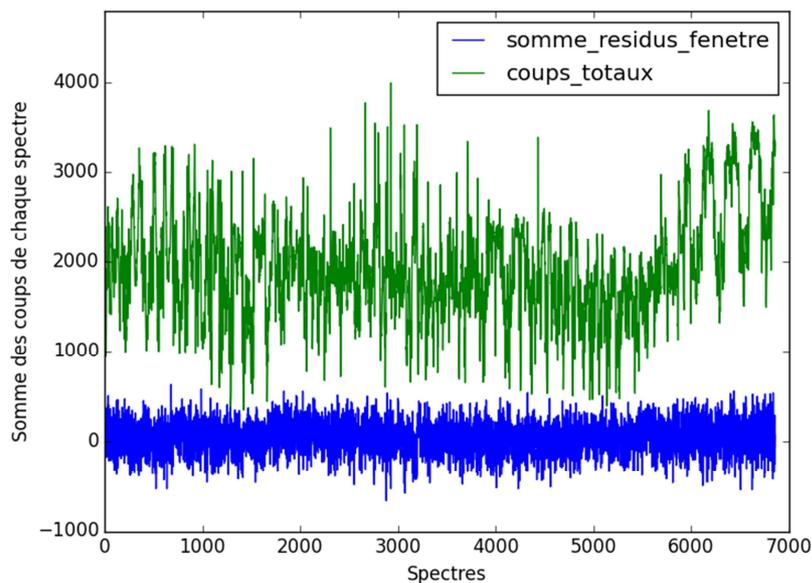


Figure VI-9. Analyse des résidus de l'ajustement à partir des signatures spectrales. Comparaison de la somme de résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre du site mesuré. Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].

La Figure VI-9 fait apparaître une variation importante du taux de comptage d'un spectre à l'autre. Les sommes des taux de comptage entre les canaux [15 :100] fluctuent entre 350 coups/seconde et 4000 coups/seconde. Les spectres 5800 à 6861 traduisent l'élévation des activités des radionucléides d'origine naturelle (zone orangée en bas à gauche de la cartographie présentée à la Figure VI-8). Les résidus sont en revanche insensibles à ces variations. L'ajustement des spectres permet d'avoir des résidus dont la valeur moyenne est proche de zéro coups/seconde. Cette faible sensibilité des résidus face aux variations naturelles d'activité des radionucléides d'origine naturelle et du ^{137}Cs (historiquement présent), permet d'affirmer que les signatures spectrales déterminées sont adaptées pour reconstruire de manière précise l'ensemble des spectres d'un site. L'analyse des altitudes minimales et maximales de ce vol montrent que celles-ci ont peu d'impact sur les résidus. Le spectre 1 006 enregistré à une altitude de 89.0 mètres par exemple présente un taux de résidus de 125 coups/seconde et le spectre 5 203 enregistré à une altitude de 17 mètres présente un taux de résidus de 11 coups/seconde. Ces deux taux de résidus sont donc largement compris dans la distribution des résidus à 1 sigma (Figure VI-11).

Une anomalie gamma (spectre de ^{131}I contenant 1200 coups) a ensuite été insérée sur un spectre du jeu de données initiales (spectre 317) permettant de juger de la capacité de l'analyse par résidus à permettre la détection d'un radionucléide anthropique. Les résidus obtenus avec cette insertion sont présentés à la Figure VI-10.

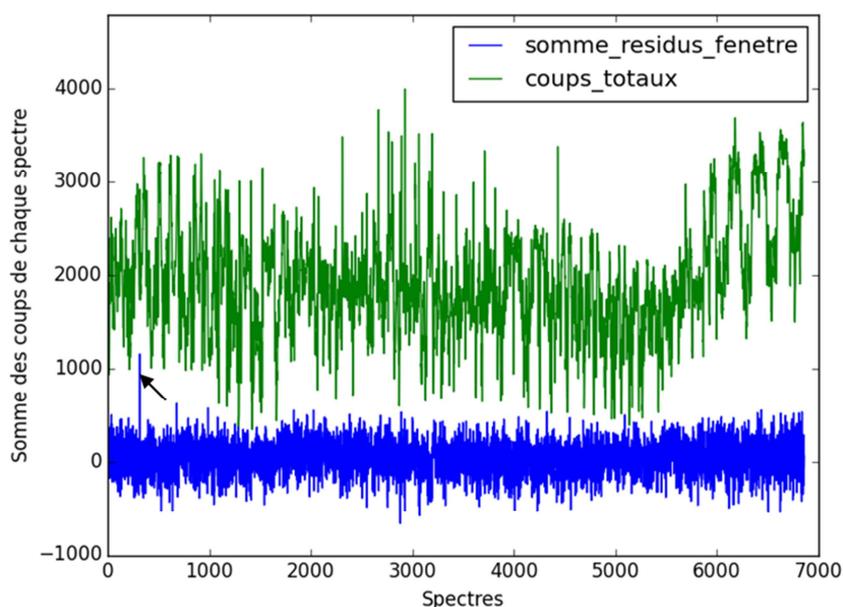


Figure VI-10. Comparaison de la somme des résidus et de la somme des coups totaux pour chaque spectre, en présence d'une anomalie gamma (^{131}I) au spectre 317 (indiquée par une flèche). Les canaux considérés pour les différentes sommes sont [15 : 100].

Comme pour le cas du site simulé, l'analyse du taux de comptage à moyenne énergie (canaux 15 à 100) ne permet pas de faire ressortir l'anomalie radiologique. La présence de cette anomalie est au contraire clairement mise en évidence par l'analyse des résidus. La représentation de la distribution de ces derniers permet d'appuyer davantage cette détection (Figure VI-11).

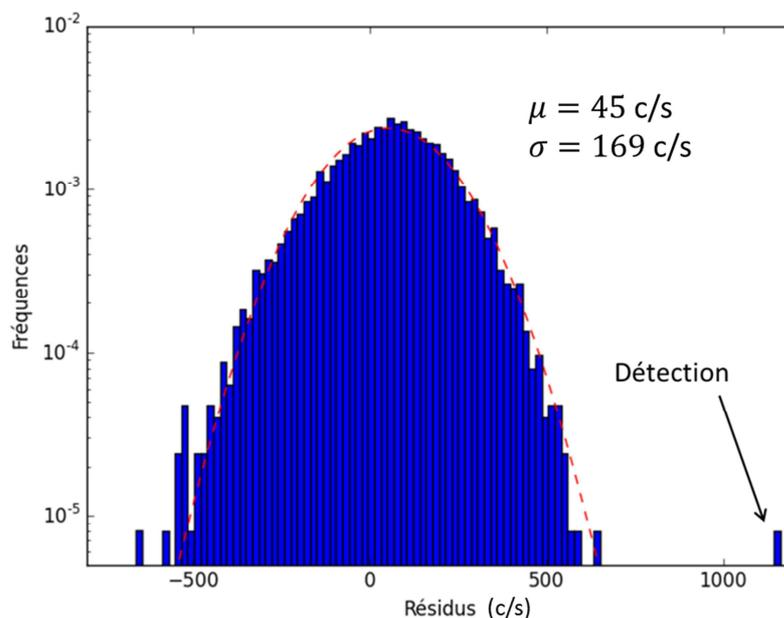


Figure VI-11. Distribution de la somme des résidus issus de l'ajustement des spectres mesurés à partir des signatures spectrales déterminées. Les canaux considérés pour cette somme sont [15 : 100]. Cette distribution est modélisée par une gaussienne de paramètre μ et σ .

La distribution des résidus modélisée par une gaussienne fait apparaître un biais dans l'estimation de la moyenne. En effet, la moyenne de cette distribution se trouve à 45 coups/seconde (au lieu de 0 coups/seconde). Ce biais est relativement faible en comparaison de la variation des taux de comptage (variation maximale de 3650 coups/seconde des taux de comptage totaux entre les canaux [15 : 100]). Ce biais indique une sous-estimation du fond de diffusion. Cette sous-estimation peut provenir d'une mauvaise définition des signatures spectrales par radionucléide ou alors d'une mauvaise estimation de la contribution de chacun des radionucléides. L'étude du taux de comptage dans le pic du ^{208}Tl montre que celui-ci se retrouve à de nombreuses reprises inférieur à 10 coups/seconde. L'utilisation d'une méthode d'ajustement par les moindres carrés sur les sommes des coups dans les pics d'absorption tend ainsi à minimiser légèrement les taux du comptage réellement présent. En effet, la statistique de la somme des taux de comptage ne suit pas une loi normale mais une loi de Poisson, ce qui entraîne que le mode (la valeur la plus souvent obtenue) est différent de la moyenne. L'utilisation d'une méthode plus adaptée à ce type de statistique, mais également plus gourmande en temps de calcul (procédé itératif par estimation du maximum de vraisemblance, par exemple) peut permettre de résoudre ce problème. Une autre solution pour atténuer les fluctuations sur la somme des résidus peut être de réduire les erreurs lors de l'ajustement des signatures spectrales.

3 Discussion des résultats

La méthode développée dans ce chapitre tend à tirer parti des nombreuses mesures des différents sites déjà réalisés dans le but de déterminer les signatures radiologiques des radionucléides d'origines naturelles (NORM) ou présents de manière historique (^{137}Cs) pour chaque site. L'objectif est d'obtenir la signature spectrale de chaque radionucléide, propre aux caractéristiques d'un site spécifique. En effet, la distribution volumique des radionucléides dans le sol entraîne une atténuation des photons gamma et génère un fond de diffusion important

à basses et moyenne énergie (< 500-600 keV). Le rapport pic de pleine absorption sur fond de diffusion évolue en fonction des matériaux composant le sol. Un sol granitique ne présentera pas la même atténuation qu'un sol argileux. Les caractéristiques géologiques du sol influent ainsi fortement sur la signature des radionucléides les rendant propres à chaque site

La méthode présentée a pour but de déterminer la signature des radionucléides pour chaque site en optimisant les données « dormantes » du CEA. Ainsi les survols réalisés ces dernières années ont été utilisés afin de prendre en compte les caractéristiques géologiques des sites.

La définition de ces signatures permet alors, à partir d'un ajustement à hautes énergies (> 600 keV) des spectres mesurés (au temps T) par les signatures déterminées au temps T_0 , d'étudier toute variation significative du taux de comptage à moyenne énergie par rapport à l'ajustement réalisé (analyse des résidus).

La qualité des signatures spectrales déterminées est validée par les faibles valeurs moyennes des résidus par rapport au taux de comptage considéré pour la plage énergétique [90 : 600] keV :

- (-5 ± 3) coups/seconde à 1σ pour un site simulé (le taux de comptage moyen dans la même région énergétique est de 2 058 coups/seconde)
- (45 ± 2) coups/seconde à 1σ pour un site réel (le taux de comptage moyen dans la même région énergétique est de 1 921 coups/seconde).

Ces moyennes représentent respectivement 0.3 % et 2.4 % du taux comptage moyen des spectres simulés et mesurés.

La variation des résidus permet également d'estimer les seuils de détection théoriques d'anomalie avec un risque de 1‰ pour les différents sites :

- 355 coups/seconde pour un site simulé ;
- 438 coups/seconde pour un site réel ;

Ces seuils sont obtenus en considérant une large partie du spectre (domaine énergétique allant de 90 keV à 600 keV) contrairement à certaines méthodes, plus classiques, n'utilisant que le pic de pleine d'absorption. L'utilisation d'un large domaine énergétique permet ainsi d'utiliser le fond de diffusion (très intense par rapport au pic d'absorption) pour la détection d'anomalie.

De nombreux tests doivent encore être réalisés pour éprouver la méthode dans l'ensemble des conditions d'application possible. Le premier consiste à appliquer les signatures spectrales déterminées aux mesures expérimentales du même site survolé à un instant $T+T_0$.

L'analyse de l'allure des résidus peut permettre de déterminer le cas échéant, qualitativement dans un premier temps, de quel radionucléide provient l'anomalie. L'utilisation de la simulation Monte Carlo peut ensuite être utilisée pour remonter à l'activité du radionucléide. Les variations d'altitudes dans les plages habituellement rencontrées avec le système HELINUC n'entraînent pas un dysfonctionnement de la méthode. L'effet des conditions météorologiques (concentration de radon) et de l'état des sols (notamment l'humidité de ces derniers) reste cependant à caractériser.

La méthode développée peut trouver de nombreuses applications dans les domaines de la géologie. L'étude de différents sites permettrait une étude statistique de la signature des radionucléides. Cette étude couplée à des carottages du sol pourrait permettre, à partir d'une base de données, de déterminer le type de sol en fonction de la signature radiologique. L'étude de la migration du ^{137}Cs dans le sol pourrait également être effectuée à partir de ce type de méthode.

La détection de contamination surfacique, ne pouvant pas être usuellement discriminée des NORM (par exemple le ^{238}U et ses descendants) ou du ^{137}Cs présents de manière historique, est également envisageable. En effet, la différence de signature entre les radionucléides présents dans le sol (possédant un fond de diffusion important), et les radionucléides présents en surface (dont le rapport pic/fond de diffusion est bien plus important) pourrait être exploitée par cette méthode. Dans le cas de la recherche de ^{238}U , l'ajustement à haute énergie du pic à 1 760 keV du ^{214}Bi provenant à la fois du sol et de la surface du sol, entrainerait un fond de diffusion ajusté très différent du fond de diffusion réellement mesuré, ce qui mettrait en avant la détection d'un radionucléide présent de manière non naturelle.

Conclusion

Une méthode innovante et performante de détection d'anomalies a été développée au cours de cette thèse. Celle-ci se base sur l'estimation des signatures des différents radionucléides naturels NORM ou présents de manière historique (^{137}Cs). Cette méthode propose une nouvelle utilisation des mesures aéroportées réalisées au cours des vingt dernières années par le CEA. Elle permet d'utiliser l'ensemble des mesures aéroportées réalisées afin d'améliorer la prise en compte du fond de diffusion et ainsi la détection d'anomalies. En plus de permettre la détection d'anomalies gamma, la méthode présentée peut être utilisée à des fins d'analyse géologiques des sols.

Conclusion et perspectives

La spectrométrie gamma est une technique d'analyse nucléaire très répandue pour identifier et quantifier les radionucléides en présence à partir de leurs émissions gamma respectives. La spectrométrie gamma dans son mode aéroporté permet la caractérisation radiologique d'un site en un temps relativement court tout en s'affranchissant des problèmes d'accessibilité au sol. La réalisation des mesures aéroportées repose sur un compromis entre la vitesse de vol, le temps d'acquisition des spectres et la résolution spatiale désirée. Le temps d'acquisition court des spectres (généralement 1 seconde) permet d'avoir une bonne résolution spatiale au détriment d'une statistique de comptage faible. Les fluctuations statistiques importantes ainsi engendrées dans les spectres mesurés nécessitent de mettre en place des méthodes d'analyse avancées afin d'améliorer la précision des résultats.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du développement continu des méthodes d'analyse utilisées en spectrométrie gamma aéroportée avec le système HELINUC. Le premier travail mené a consisté à définir l'orientation générale de cette thèse. La définition de cette orientation a conduit à une rupture conceptuelle de l'analyse des spectres par rapport aux méthodes utilisées jusqu'alors au CEA : l'analyse ne repose plus sur une considération individuelle et séquentielle des mesures aéroportées, mais sur une considération globale et simultanée de celles-ci. Cette approche globale de l'analyse a entraîné l'utilisation de méthodes statistiques multivariées appliquées à l'ensemble des spectres. Le développement de nouvelles méthodes a alors été organisé suivant trois axes de travail correspondants à différents domaines énergétiques du spectre et différentes applications (mesure environnementale, quantification de radionucléides à basse énergie et détection d'anomalies gamma à moyenne énergie).

L'étude détaillée des performances et des limites d'application de méthodes statistiques par rapport aux méthodes numériques pour la détection et la quantification des radionucléides d'origine naturelle et du ^{137}Cs a permis de valider la méthode de filtrage statistique sélectionnée pour l'analyse des mesures aéroportées réalisées avec le système HELINUC. La transposition de cette analyse à basse énergie a permis le développement d'une méthode innovante mêlant analyse statistique et analyse numérique. Cette méthode a montré sa capacité à détecter du ^{241}Am de faible activité. La détermination des signatures spectrales caractéristiques de l'état radiologique du site à partir d'une analyse statistique a finalement permis une définition précise du fond de diffusion à moyenne énergie des sites considérés en l'absence d'émetteur gamma anthropique. Cette modélisation est à la base d'une méthode d'analyse rapide de l'ensemble du spectre à moyenne énergie pour la détection d'une anomalie gamma.

L'étude détaillée du système de spectrométrie gamma aéroportée HELINUC et la modélisation Monte Carlo de celui-ci a entraîné la création de deux outils utilisés pour l'étude et le développement de nouvelles méthodes de détection et de quantification des radionucléides :

- 1) la simulation complète et représentative d'un site réel pour tester les méthodes avec la connaissance précise des radionucléides en présence, de leur activité et de leurs formes spectrales.

- 2) la correction et l'amélioration d'une application permettant l'insertion de contaminations radiologiques représentatives d'une réelle contamination.

Comparaison des méthodes de filtrage

L'étude bibliographique détaillée des différentes méthodes d'analyse utilisées en spectrométrie gamma aéroportée a permis d'identifier une méthode adaptée à la suppression des fluctuations statistiques : la méthode NASVD. Cette étude bibliographique a donné lieu à une étude des performances de cette méthode de suppression des fluctuations statistiques et une comparaison avec des méthodes de suppression plus classiques en termes de détection et de quantification des radionucléides. Cette étude a montré que la suppression des fluctuations statistiques par la méthode NASVD permettait de diminuer de 50 % l'erreur sur l'estimation de l'activité du ^{137}Cs lorsqu'elle était couplée à une méthode des fenêtres (recommandée par l'AIEA), ainsi qu'une augmentation de la détection des radionucléides présents de manière étendue. Par contre, l'étude a mis en évidence des limites quant à la détection de radionucléides présents de manière moins étendue (cas de sources ponctuelles). Les résultats obtenus dans cette première partie ont permis une meilleure compréhension du fonctionnement de la méthode avec une analyse de l'évolution des spectres débruités. Ces résultats ont également permis de mettre en avant l'apport de cette méthode statistique de suppression des fluctuations à basse énergie dans le cas d'une contamination étendue.

Développement d'une analyse dédiée à la mesure à basse énergie (AJAM T1)

Le ^{241}Am est un descendant du ^{241}Pu , ce qui permet, sous certaines conditions, de quantifier le ^{241}Pu à partir de l'activité de ^{241}Am déterminée. Ainsi, en cas d'accident intéressant la Défense, la signature du ^{241}Am s'ajoutera au spectre de bruit de fond radiologique mesuré. Bien que l'énergie d'émission du ^{241}Am soit faible, cet émetteur reste l'un des émetteurs gamma détectables en spectrométrie gamma aéroportée lors de ce type d'accident. Cela est dû au rapport d'embranchement relativement élevé de l'émission gamma de 60 keV (environ 36%).

Les incidents ou accidents intéressant la Défense peuvent entraîner une contamination étendue en ^{241}Am . La détection et la quantification des zones contaminées nécessitent ainsi une méthode d'analyse permettant de détecter et de quantifier de manière précise une contamination de faible activité.

L'étude des performances des techniques de filtrage a permis de démontrer que l'utilisation d'une méthode statistique était adaptée à une contamination étendue. La méthode NASVD a été utilisée afin de supprimer les fluctuations statistiques. Il a été démontré que l'utilisation d'une telle méthode n'entraînait pas de perte du signal de ^{241}Am . Une fonction numérique prenant en compte les variations d'altitude permet alors de supprimer le fond de diffusion pour isoler le signal de ^{241}Am . L'estimation des activités de ^{241}Am en présence est réalisée à partir d'une bibliothèque de spectres obtenus par simulation Monte Carlo d'interaction rayonnement-matière et validée par des mesures expérimentales.

Les performances de la suppression du fond de diffusion après filtrage des fluctuations statistiques ont été mises en évidence, ainsi que l'insensibilité des résultats obtenus face aux variations d'altitudes (insensibilité que ne présentent pas, ou dans une moindre mesure, les méthodes usuelles). La validation de l'ensemble de la méthode a été obtenue à partir de l'analyse d'un site réellement contaminé. Cette méthode a été comparée à une méthode de référence et aux mesures ponctuelles réalisées au niveau du sol. Les très bons résultats obtenus sont en accord

avec les mesures au sol et permettent de détecter les faibles contaminations en ^{241}Am de manière beaucoup plus précise que la méthode de référence utilisée jusqu'alors par le CEA.

Détection d'anomalie

Le système HELINUC réalise des mesures gamma aéroportées depuis plus de 20 ans ce qui lui a permis de couvrir un nombre de sites très important. L'ensemble des sites civils ou militaires à vocation nucléaire fait en France l'objet de plans de surveillance particuliers leur imposant de justifier de l'absence d'impact radiologique de leurs activités sur l'environnement proche de leur site. Les radionucléides recherchés émettent des photons gamma aux énergies inférieures à 1 500 keV, voire même aux énergies inférieures à 600 keV pour la majorité de ces radionucléides. À ces énergies, les pics d'absorption sont très atténués, la majorité du signal se trouvant alors localisée dans la région énergétique où le fond de diffusion est le plus intense. Les méthodes basées uniquement sur la recherche des pics d'absorption éprouvent ainsi des difficultés à détecter la présence de ces radionucléides. Une méthode permettant de prendre en compte l'intégralité du spectre a été développée afin d'améliorer la détection de ces radionucléides. Cette méthode repose sur une analyse statistique des spectres mesurés en s'appuyant sur les variations d'activité des radionucléides d'origine naturelle et du ^{137}Cs , afin d'en extraire leur signature spectrale sur l'ensemble du spectre. Cette méthode, testée sur données simulées, a montré sa capacité à reproduire de manière très précise les signatures des différents radionucléides considérés sur l'ensemble de la gamme en énergie. Son étude sur données réelles a également montré qu'elle permettait d'obtenir des signatures spectrales pouvant caractériser l'ensemble des spectres d'une même campagne de mesure de manière précise.

Lors d'un second survol, les signatures spectrales déterminées lors d'un précédent survol sont ajustées aux spectres mesurés aux énergies supérieures à 600 keV. L'analyse des résidus entre spectre mesuré et spectre ajusté permet alors la détection d'anomalies gamma.

L'utilisation d'une telle méthode permet d'augmenter la quantité d'information du signal utilisée pour la détection. Dans le cas traité du ^{131}I , le rapport du signal d'un facteur 5 permettrait en théorie d'améliorer sensiblement les seuils de détection par rapport à une méthode reposant sur la seule détection du pic d'absorption.

L'étude de la méthode NASVD a permis l'amélioration de l'estimation des radionucléides à haute énergie. Sa transposition à basse énergie couplée à l'utilisation d'une bibliothèque de spectres a montré sa capacité à détecter les faibles activités de ^{241}Am . Enfin la méthode de détermination des signatures spectrales des radionucléides d'origine naturelle proposée a permis le développement d'une méthode de détection des anomalies gamma à moyenne énergie.

Perspectives :

Cette thèse a été consacrée au développement de méthodes de détection et de quantification innovantes exploitant au mieux, non seulement la manière dont les mesures sont enregistrées en spectrométrie gamma aéroportée (à travers l'analyse statistique multivariée), mais également le nombre important de mesures déjà réalisées par le CEA.

Pour les mesures avec un système de spectrométrie gamma aéroportée, de nombreuses perspectives sont envisageables :

La méthode de détection du ^{241}Am (AJAM T1) a été adaptée pour permettre une utilisation en temps réel (travail non présenté dans cette thèse). L'idée est d'appliquer la méthode NASVD sur un nombre de spectres restreint (une cinquantaine) de manière glissante. Ainsi, le spectre mesuré à l'instant T se trouve groupé avec les spectres enregistrés précédemment, et bénéficie ainsi de l'ensemble de la statistique de comptage.

L'augmentation du nombre de canaux sur lesquels sont codés les spectres est également une amélioration en cours de réalisation (passage de 512 à 1024 canaux), ce qui permettrait d'utiliser d'avantage de points d'ajustement à la fois pour la fonction mathématique de suppression du fond de diffusion mais également pour la déconvolution du signal de ^{241}Am . La précision des résultats obtenus avec la méthode présentée en serait alors améliorée.

La prise en compte des mouvements de l'hélicoptère et du relief topographique peut également être une piste intéressante afin d'améliorer la précision des résultats (Minty B., 2015), car elle permet de prendre en compte les variations d'angle solide lors des mesure aéroportées.

L'utilisation de la méthode de détermination des signatures spectrales présentées au chapitre VI est celle qui présente le plus de perspectives d'évolution. Celle-ci peut être employée dans le cadre d'une contamination surfacique à basse énergie afin d'en extraire la signature du radionucléide en question. En effet, la variation des activités de la contamination totalement décorrélée de la variation des radionucléides d'origine naturelle permet d'isoler la signature spectrale du radionucléide à quantifier (par exemple le ^{241}Am). Cette signature spectrale sera alors utilisée comme spectre de référence pour la détection des régions spatiales contaminées en ^{241}Am . Cette méthode est également transposable aux contaminations avec d'autres radionucléides (^{131}I , par exemple). Cette recherche sera facilitée si le radionucléide à rechercher possède une énergie maximale d'émission gamma inférieure à celle du ^{137}Cs .

La méthode proposée peut également être utilisée dans le cadre d'autres applications.

La réalisation de simulations Monte Carlo d'interaction des rayonnements avec la matière peut permettre d'obtenir l'activité équivalente de chacune des signatures spectrales en faisant varier dans la simulation, les paramètres de la distribution du ^{137}Cs dans le sol (migration du ^{137}Cs dans le sol avec le temps) où la matrice du sol (type de sol et sa densité). Cette détermination pourrait alors être utilisée pour améliorer la précision de la quantification du ^{137}Cs dans le cadre de mesures environnementales mais également à des fins de caractérisation géologique.

Enfin, l'avantage de cette méthode est qu'elle peut être utilisée lors de la recherche d'un radionucléide non présent de manière naturelle ou historique mais dû à une source égarée ou à une contamination (exemple ^{137}Cs). En effet, la signature entre le ^{137}Cs présent depuis plusieurs années et qui a migré dans les sols est différente de celle du ^{137}Cs déposé en surface d'où l'intérêt d'étudier et d'exploiter les différences de profils spectraux.

Les travaux exposés dans cette thèse peuvent finalement s'appliquer à d'autres moyens de mesure mobiles ou à des mesures fixes réalisées à différents endroits d'un même site. La variation d'activités des mesures environnementales réalisées avec un détecteur fixe pourra permettre la création des signatures spectrales représentatives du sol. Dès lors, la recherche de source de très faible activité mais répartie de manière étendue pourra être envisagée.

Bibliographie

Age H. K. et al. A new technique for processing airborne gamma ray spectrometry data for mapping low level contaminations [Revue] // Applied Radiation and Isotopes, volume 51. - 1999. - pp. 651-662.

AFNOR NF ISO 18589-7 Mesurage de la radioactivité dans l'environnement - Sol - Partie 7 : Mesurage in situ des radionucléides émetteurs gamma. [Conférence]. - 2013.

Agarval Bipin K X Ray Spectroscopy: an introduction [Ouvrage]. - [s.l.] : Springer, 1991.

Agostinelli S. [et al.] Geant4—a simulation toolkit". [Revue] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment 506 (3). - 2003. - pp. 250-303.

Allyson J. D. Environmental gamma ray spectrometry: simulation of absolute calibration of in situ and airborne spectrometers for natural and anthropogenic sources [Rapport]. - Scotland : PhD Thesis, University of Glasgow, 1994.

Battistoni G., Cerutti F., Fasso A., Ferrari A., Muraro S., et al The FLUKA code: description and benchmarking [Conférence] // AIP Conference Proceedings, 896:31. - 2007.

Beck H. L., Decampo, J., Gogolak, C. In situ Ge(Li) and NaI(Tl) gamma-ray spectrometry [Ouvrage]. - [s.l.] : HASL-258, 1972.

Berbezier J., Blangy, J., Guitton, J., Lallemand, C. Methods of car-borne and air-borne prospecting: the technique of radiation prospecting by energy discrimination [Conférence] // Proc. 2nde U. N. Int. conf. peaceful uses of atomic energy, vol. 2, United Nations. - Genova, Switzerland : [s.n.], 1958. - p. 799.

Blackburn A "Computer program for multicomponent spectrum analysis using least-squares method" [Revue] // Analytical chemistry, 37. - 1965. - pp. 1000-1003.

Borne P., Rotella, F. Théorie et pratique du calcul matriciel [Ouvrage]. - [s.l.] : Editions TECHNIP, 2000.

Bourennane E., Painsavoine, M., Truchetet, F. "Amélioration du filtre de Canny-Deriche pour la détection des contours sous forme de rampe" [Revue] // Traitement du signal, 10-(4). - 1993. - pp. 297-310.

Bourgeois C. Interaction particules-matière. [Ouvrage]. - [s.l.] : Techniques de l'Ingénieur, Dossier: AF3532, 1998.

Bourgeois L., & Antoni, R. Physique appliquée à l'exposition externe - Dosimétrie et radioprotection. [Ouvrage]. - [s.l.] : Springer, 2012.

Bristow Q. The application of airborne gamma ray spectrometry in the search for radioactive debris from the russian satellite Cosmos-954 [Revue] // Geological Survey of Canada. - 1978. - pp. 151-162.

Bucher B. , Guillot, L., Strobl, C., et al International intercomparison exercise of airborne gamma spectrometric systems of Germany , France and Switzerland in the framework of the Swiss exercise ARM07 [Rapport]. - [s.l.] : Nr.09-07, Paul Scherrer Institut, ISSN:1019-0643, 2009.

CEA Cartographie gamma autoportée (AUTONUC) ou héliportée (HELINUC) - Principe et performances. [Ouvrage]. - 2010.

CEA Cartographie gamma du site de Bayard-Sur-Marne réalisée par le système HELINUC [Rapport]. - Paris : CEA, 2013.

CEA Rapport 1 "Etude de l'algorithme de déconvolution spectrale" [Rapport]. - [s.l.] : rapport interne, 25/11/2009.

CEA Rapport 2 "Etude et qualification d'une nouvelle méthode d'identification des radionucléides applicable aux systèmes de mesures gamma" [Rapport]. - [s.l.] : Rapport interne, 25/08/2009.

CEA Rapport 3 "Introduction de nouveaux algorithmes de résolution" [Rapport]. - [s.l.] : Rapport interne, 04/04/2012.

CEA Rapport 4 "Proposition d'algorithmes lot 1" [Rapport]. - [s.l.] : Rapport interne, 20/03/2012.

CEA Rapport 5 "Optimisation d'algorithmes de détection et d'identification temps réel des radionucléides émetteurs gamma". Rapport interne [Rapport]. - [s.l.] : CEA, 2009.

Cooley James W. and John W. Tuckey. "An algorithm for the machine calculation of Complex Fourier Series" [Revue] // Math. Comput. 19. - 1965. - pp. pp. 297-301.

Cresswell A. J. et al. 137Cs measurement uncertainties and detection limits for airborne gamma spectrometry (AGS) data analysed using a spectral windows method [Revue] // Applied Radiation and Isotopes, volume 64. - 2006. - pp. 247-253.

D. B Pelowitz et al . MCNPXTM User's Manual Version 2.7.0 [Rapport]. - [s.l.] : LA-CP-11-0438, Los Alamos National Laboratory report, April 2011.

Darnley A.G., Bristow, Q., Donhoffer, D.K. Airborne Gamma-ray spectrometer experiments over the canadian shield [Revue] // Nuclear technique and Mineral resources International Atomic Energy Agency, Vienna. - 1969. - p. 163.

Deal L. J., Doyle, Z. G., Burson, P. K. Boyns Locating the lost Athena missile in Mexico by the aerial radiological measuring system (ARMS) [Revue] // Health Phys., 23. - 1972. - pp. 95-98.

Dickson B., Taylor, G. "Noise reduction in aerial gamma-ray surveys" [Revue] // Exploration Geophysics, 29. - 1998. - pp. pp. 324-329.

Faye A. Optimisation mathématique [Ouvrage]. - Evry : ENSIIE, 2011-2012.

Grasty R. L. The search for Cosmos-954. Search theory and applications [Conférence] // Plenum Press Co.. - 1980.

Guillot L. "Spectrométrie Gamma Aéroportée : Etudes de nouvelles méthodes de traitement spectral et de calibration permettant une interprétation qualitative et quantitative des mesures", rapport de thèse [Rapport]. - [s.l.] : Université de Bourgogne, 1996.

Guillot L. Aerial gamma spectrometry in case of emergency: example of Franco-German exercise Helga [Conférence] // Proc. INSINUME2004 Conference. - Albena : [s.n.], 2004.

Guillot L., Bourgeois, C., The use of the airborne system Helinuc for orphan sources search [Conférence] // Proc. Of International Conference on the Safety and Security of Radioactive Sources, IAEA-CN-134. - Bordeaux : IAEA-CN-134, 2005.

Guillot Ludovic « Extraction of full absorption peaks in airborne gamma-spectrometry by filtering techniques coupled with a study of the derivatives. Comparison with the window method" [Revue] // Journal of Environmental Radioactivity, volume 53. - [s.l.] : Journal of Environmental Radioactivity, 2001. - pp. 381-398.

Gutierrez S. "Mesures par spectrométrie gamma de l'abondance des radioéléments naturels et artificiels en surface et dans les sols par moyen mobile (détecteurs au germanium embarqués à bord d'un hélicoptère ou d'un véhicule)", rapport de thèse [Rapport]. - [s.l.] : Université de Paris XI, 2002.

Gutierrez S. Contribution of a germanium detector in mobile gamma-ray spectrometry. Spectral analysis and performance [Revue] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A482. - 2002. - pp. 425-433.

Heaps Leo Operation morning light: terror in our skies: the true story of Cosmos 954 [Revue] // New York Paddington Press Ltd. - 1978. - p. 13.

Hendricks T. J. "Extraction of point source signals from aerial survey data taken over a Las Vegas, Nevada, residential area" [Rapport]. - [s.l.] : Remote Sensing Laboratory, Rapport technique, 1975.

Hofstadter R. Alkali Halide Scintillation Counters [Ouvrage]. - [s.l.] : Phys. Rev. 74,100, 1948.

Hovgaard J. A new processing technique for airborne gamma-ray spectrometric data (Noise adjusted singular value decomposition) [Conférence] // American nuclear society symposium on emergency preparedness and response. - 1997.

Hovgaard J. et al. Reducing Statistical Noise in Airborne Gamma-Ray Data Through Spectral Component Analysis [Rapport]. - [s.l.] : Radiometric Methods and Remote Sensing, 1998.

- IAEA International Atomic Energy Agency "Airborne gamma ray spectrometer surveying".** Rapport technique [Ouvrage]. - [s.l.] : IAEA-TECDOC-323, 1991.
- IAEA Guidelines for Radioelement mapping Using Gamma-Ray Spectrometry Data [Rapport].** - [s.l.] : IAEA-TECDOC-1363, 2003.
- ICRU International Commission on Radiation Units and measurements Gamma-Ray Spectrometry in the Environment [Ouvrage].** - Bethesda MD : ICRU Report 53, 1994.
- J.E. Glynn T. R. Caroll, P. B. Holman, R. L. Grasty** An airborne gamma ray snow survey of a forest covered area with a deep snowpack [Revue] // Remote sensing of environment V. 26. - 1988. - pp. 149-160.
- Klein O. Nishina Y.** Uber die Streuung von Strahlung durch dreie Elektronen nach den neuen relativistischen Quantendynamik von Dirac [Revue]. - [s.l.] : Z. Phys. 52 (11-12), 1929. - Vol. Z. Phys. 52 (11-12). - pp. 853-869.
- Knoll G. F.** Radiation Detection and Measurement", Fourth Edition [Ouvrage]. - [s.l.] : Ed. Wiley, 2010.
- Koji Niita Norihiro Matsuda, Yosuke Iwamoto, Hiroshi Iwase, Tatsuhiko Sato, Hiroshi Nakashima, Yukio Sakamoto And Lembit Sihver** PHITS: Particle and Heavy Ion Transport code System, Version 2.23 [Rapport]. - [s.l.] : JAEA-Data/Code 2010-022, 2010.
- Laroche B., Richer de Forges, A., C., Saby, N.P.A., Martelet, G, Tourlière, B., DeParis, J., Messner, F. Wetterling J., Moulin, J., Froger, D., Arrouays, D.** Potentiel de la spectrométrie gamma aéroportée pour la cartographie des sols et du régolithe: une mini-revue et des premiers exemples en régions Centre et Limousin [Revue] // Etudes et Gestion des Sols Vol. 20. - 2013. - pp. 15-26.
- Lindhahl I., Habrekke, H.** Mapping the radioactive fallout after the Chernobyl accident [Revue] // Geoexploration 24 (3). - 1987. - p. 267.
- Lyoussi A.** Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire - Génie atomique [Ouvrage]. - [s.l.] : EDP Sciences, 2010.
- Mallander H.** Airborne gamma spectrometric measurements of the fallout over sweden after the nuclear reactor accident at Chernobyl,USSR [Ouvrage]. - [s.l.] : IAEA/NENF/NM-89-1, 1989.
- Marie-Martine Bé Christophe Dulieu, Vanessa Chisté** Nucléide-Lara, bibliothèque des émissions alpha, X et gamma classées par ordre d'énergie croissante [Rapport]. - [s.l.] : Rapport CEA-R-6201, 2008.
- Martin-Burtart N.** "Développement d'algorithmes d'analyse spectrale en spectrométrie gamma embarquée", rapport de thèse [Rapport]. - [s.l.] : Université de Strasbourg, 2012.
- Martin-Burtart N. et al.** "Airborne spectrometry: Extraction of low energy γ -rays using two or three spectral windows" [Revue] // Applied Radiation and Isotopes, volume 70. - 2012b. - pp. 1784-1791.
- Mashnik S. G. Bull J. S. Hughes H. G., Prael R. E., Sierk A. J.** Current status of MCNP6 as a simulation tool useful for space and accelerator applications [Rapport] : proceedings . - St. Petersburg, Florida, United States : Los Alamos National Laboratory, 2012.
- Mauring E., Smethurst, M. A.** "Reducing noise in radiometric multi-channel data using noise adjusted singular value decomposition (NASVD) and maximum noise fraction (MNF) [Rapport]. - Trondheim, Norway : NGU Report 2005.014., 2005.
- MC LEPY J. Plagnard, L. Ferreux** Measurement of ^{241}Am L X-ray emission probabilities [Rapport]. - [s.l.] : Applied Radiation and Isotopes 66, 2008.
- Megara J.** Dropping nuclear bombs on Spain. The Palomares accident of 1966 and the US airborne alert [Ouvrage]. - Florida : Florida State University, Department of history, 2006.
- Minty B. Brodie R.** 3D inversion of airborne gamma ray spectrometric data [Revue]. - 2015.
- Minty B. et al.** "Multichannel processing for airborne gamma-ray spectrometry" [Revue] // Geophysics, Vol. 43, NO. 6. - [s.l.] : Geophysics, Vol. 63, No 6, 1998. - pp. 1971-1985.
- Minty B., McFadden, P.** "Improved NASVD smoothing of airborne gamma-ray spectra" [Revue] // Exploration Geophysics 29. - 1998. - pp. 516-523.

- Minty B., Morse, M. P. and Richardson, L.M.** "Portable calibration sources for airborne gamma-ray spectrometers" [Revue] // Exploration Geophysics 21. - 1990. - pp. pp. 187-195.
- Muravski V. A., Tolstov, S.A., Kholmetskii, A.L.** Comparison of the least squares and the maximum likelihood estimators for gamma spectrometry [Revue] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 145. - 1998. - pp. 573-577.
- OCDE AEN Tchernobyl: Évaluation des incidences radiologiques et sanitaires** [Rapport]. - 2002.
- Peck E. L., Bissel, V. C., Jones, E. B. Borge, D. L.** Evaluation of snow water equivalent by airborne measurements of passive terrestrial gamma radiation [Revue] // Water Ressources Res. 7(5). - 1971. - pp. 1151-1159.
- Pigeon B.** Recensement et quantification des incertitudes entachant la spectrométrie gamma aéroportée (système HELINUC) [Rapport] : Rapport de Master. - [s.l.] : CEA, 2005.
- Pringle R. W., Roulston, K. I., Brownell, G.M** Ultrasensitive portable gamma-ray spectrometer [Revue] // Nature (165). - 1950. - p. 527.
- R. L. Grasty J. Hovgaard, J. Multala** Airborne gamma ray measurements in the chernobyl plume [Revue] // Radiation Protection Dosimetry Vol. 73,. - 1997. - pp. 225-230.
- Rambaut M. L.** "Détection d'un rayonnement corpusculaire et information" [Revue] // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, volume 248. - 1986. - pp. 471-482.
- RSI Document constructeur** [Rapport]. - [s.l.] : RSI, 2006.
- Salvat F. Fernandez-Varea J.M., Acosta E. et Sempau J.** PENELOPE, A Code System for Monte Carlo Simulation of Electron and Photon Transport [Conférence] // Proceedings of a Workshop/Training Course, OECD/NEA 5-7 November 2001 NEA/NSC/DOC. - 2001.
- Sanderson D. C. W. et al.** The use and potential of radiometrics for monitoring environmental radioactivity [Revue] // Lancaster Conference. - 1989.
- Sanderson D. C. W., Cresswell, A. J., Scott, E.M., Lang, J. J.** Demonstrating the european capability for airborne gamma spectrometry: results from the ECOMAGS exercice [Revue] // Radiation Protection Dosimetry Vol. 109, Nos 1-2. - 2004. - pp. 119-125.
- Truffert C. et al.** "Airborne gamma-ray spectrometry-How to settle Rn atmospheric correction" [Revue] // 11th SAGA Biennial Technical Meeting and Exhibition, Swaziland. - 2009. - pp. 450-452.
- Vershinina L. K. Dimaksyan, A. M.** Determination of the water equivalent of snow cover: methods and accuracy [Revue] // Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem. - 1971.
- Wilhelm E.** Study of different filtering techniques applied to spectra from airborne gamma spectrometry [Conférence] // ANIMMA 2015. - Lisbonne : [s.n.], 2015.
- Winn W. G.** "GRABGAM, Analysis of ultra low level HPGE Gamma spectra". Rapport technique [Rapport]. - [s.l.] : Westinghouse Savannah River Company, 1999.

Résumé

Depuis le début des années 1980, le Commissariat à l'Énergie Atomique développe et met en œuvre un système de spectrométrie gamma aéroportée, appelé HELINUCTM. Ce système, composé de détecteurs NaI(Tl) d'un volume de 16 L, est utilisé afin d'établir un état des lieux radiologique des sites survolés. Les principales missions du système HELINUC consistent en la réalisation de contrôles environnementaux, l'intervention en situation de crise et la recherche de sources ponctuelles. La réalisation de ces missions nécessite le développement de méthodes d'analyse adaptées.

L'approche considérée dans cette thèse repose sur une rupture conceptuelle de l'analyse des spectres par rapport aux méthodes utilisées jusqu'alors au CEA : l'analyse ne repose plus sur une considération individuelle et séquentielle des mesures aéroportées, mais sur une considération globale et simultanée de celles-ci.

L'étude et le développement de méthodes statistiques adaptées à la quantification des radionucléides naturels et du ¹³⁷Cs (de 600 keV à 3 MeV), à l'estimation de la contamination en ²⁴¹Am (basse énergie, inférieure à 100 keV) en cas de crise radiologique et la détection de sources ponctuelles (moyenne énergie, entre 100 keV et 600 keV) permettent d'améliorer la précision sur les activités déterminées en vol et la détection de sources de faibles activités.

Mots clés : Spectrométrie gamma aéroportée, analyse spectrale, méthodes statistiques, simulations Monte Carlo.

Abstract

Since the beginning of 1980's, the CEA has been developing an airborne gamma spectrometry (AGS) system called HELINUCTM using large volume (16 L) NaI(Tl) detectors. HELINUC is used to produce radioactivity mapping of the soil. The different missions of HELINUC are environmental control of radioactivity, nuclear emergency response and research of orphan sources. The continuous development of analysis methods is then required.

The approach considered in this thesis is based on a conceptual break from the analysis of spectra compared to the methods used at the CEA until now: the analysis does not rely on an individual and sequential consideration of airborne measurements, but on an overall and simultaneous consideration of them.

The study and development of statistical methods for the quantification of natural radionuclides and ¹³⁷Cs (from 600 keV to 3 MeV), for the estimation of ²⁴¹Am contamination (low energy, inferior to 100 keV) in case of radiological emergency and for the detection of orphan sources (medium energy, between 100 keV and 600 keV) improve the accuracy of activities estimation and detection of low activities sources.

Keywords : Airborne gamma spectrometry, spectral analysis, statistical methods, Monte Carlo simulations.