



HAL
open science

Étalonnage des instruments de mesure de l'activité volumique du thoron (^{22}Rn) dans l'air

Benoît Sabot

► **To cite this version:**

Benoît Sabot. Étalonnage des instruments de mesure de l'activité volumique du thoron (^{22}Rn) dans l'air. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université Paris Saclay (COMUE), 2015. Français. NNT : 2015SACLS122 . tel-01253649

HAL Id: tel-01253649

<https://theses.hal.science/tel-01253649>

Submitted on 11 Jan 2016

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.

NNT : 2015SACLS122

THESE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY
PREPAREE A
L'UNIVERSITE PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE N° 576
PHÉNIICS – Particules, Hadrons, Énergie et Noyaux : Instrumentation, Imagerie,
Cosmos et Simulation

Spécialité de doctorat : Imagerie Médicale et Radioactivité

Par

M. Benoît Sabot

Étalonnage des instruments de mesure de l'activité volumique
du thoron (^{220}Rn) dans l'air.

Thèse présentée et soutenue à « Gif-sur-Yvette », le « 25/11/2015 » :

Composition du Jury :

M. Élias Khan, Professeur, Université Paris-Sud, Président
M. Dobromir Pressyanov, Professeur, Université de Sofia, Rapporteur
M. George Tymen, Professeur émérite, Université de Bretagne Occidentale, Rapporteur
M. Bruno Barelaud, Professeur, Université de Limoges, Examineur
M. Pierre-Yves Meslin, Enseignant-Chercheur, Université Paul-Sabatier, Examineur
M. Jean-Christophe Sabroux, Expert Sénior, IRSN, Examineur
M. Jean-François Pineau, Ingénieur-Chercheur, ALBEDO Technologies, Examineur
M. Philippe Cassette, Expert International, CEA, Directeur de thèse

M^{me} Nathalie Michielsen, Expert, IRSN, Invitée
M^{me} Sylvie Pierre, Ingénieur-Chercheur, CEA, Invitée

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au sein de deux laboratoires : le Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) au sein du Laboratoire de Métrologie de l'Activité (LMA) et dans le Service de Confinement et d'Aérodispersion (SCA) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) au sein du Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA). Je tiens à remercier Loïc de Carlan, chef du LNHB, Thierry Branger, chef du LMA, Jean-Claude Laborde, chef du SCA et François Gendarmes, chef du LPMA de m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire pendant ces trois années et d'avoir permis cette collaboration entre les deux instituts de recherche.

Je tiens aussi à préciser que ce projet a été rendu possible par l'apport financier du Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE). Je remercie le conseil scientifique du LNE qui a pu juger et apprécier les travaux réalisés au cours de ces années.

J'adresse mes sincères remerciements à Philippe Cassette, mon directeur de thèse qui a été non seulement une des personnes à lancer ce projet, mais a participé activement aux travaux de thèse. Je le remercie d'avoir été présent à toutes mes présentations, de m'avoir appris les ficelles du métier, de sa disponibilité et d'avoir partagé son intérêt pour la science, l'électronique, et bien sur la métrologie. Je le remercie aussi de m'avoir permis de travailler avec lui sur d'autres projets avec ses collaborateurs.

Je tiens à remercier Nathalie Michielsen, qui a encadré mes travaux à l'IRSN et notamment pour les différentes discussions pendant lesquelles nous avons pu échanger et résoudre certains problèmes. Je la remercie pour la confiance qu'elle m'a accordée tout au long de la thèse. Elle m'a permis de rencontrer beaucoup de monde que ce soit au laboratoire, pendant les journées des thèses ou bien même à l'étranger. C'est aussi grâce à son implication dans la métrologie du radon et à sa ténacité que nous avons pu réaliser ces travaux.

Je remercie aussi Sylvie Pierre, qui a encadré mes travaux au LNHB, pour son extrême gentillesse et son soutien tout au long de ces années. Elle m'a appris ce qu'est la spectrométrie alpha et gamma, comment utiliser les logiciels adaptés et elle était la première à relire tous mes documents. Elle a été toujours présente pour me donner un coup de main pour toutes les véritables usines à gaz que j'ai montées au LNHB. Je la remercie pour les différents étalons de radon qu'elle a pu me préparer et qui m'ont fait gagner un temps précieux.

Il me reste aussi à remercier le handballeur des cinq membres de la « team thoron », Sylvain Bondiguel, qui m'a aidé à installer les expériences à l'IRSN dans le banc BACCARA. Sa bonne humeur nous a non seulement permis de monter les expériences nécessaires au projet (avec toujours un peu d'adhésif tarlatane) mais aussi de nous passer de radio et de travailler dans une bonne ambiance !

J'adresse mes sincères remerciements au Professeur Dobromir Pressyanov et au Professeur Georges Tymen d'avoir accepté d'être les deux rapporteurs de ma thèse. Je remercie Jean-François Pineau, Pierre-Yves Meslin et Elias Khan de participer à mon jury de thèse ainsi que Bruno Barelaud et Jean-Christophe Sabroux qui ont aussi pu suivre mes travaux au cours de nos réunions semestrielles. Je tiens aussi à remercier Bruno Chauvenet qui a participé à ces réunions et a aussi relu attentivement ma thèse et m'a donné des conseils très utiles pour la bonne construction du document.

Que ce soit du côté LNHB ou du côté LPMA l'ensemble des équipes a toujours répondu présent pour me faire visiter leurs installations ou répondre à mes questions et je les remercie.

Je tiens tout particulièrement à remercier Michel Barbier qui m'a permis de travailler dans le « laboratoire de préparation » et qui m'a fait pas mal de trous avec la fameuse perceuse colonne que je ne dois pas toucher ! Je remercie aussi Romuald Woo et les quelques dizaines de mètres de barre d'aluminium qu'il m'a découpées. C'est grâce à elles que mes installations ne sont pas prêtes de bouger !

Je remercie Mark Kellett pour ses corrections d'anglais, Marie-Christine Lépy pour ses conseils sous Colegram, Jacques Bouchard pour ses conseils en électronique, Valérie Lourenço qui m'a permis de ne pas oublier ce qu'est la chimie, Christophe Dulieu pour son « œil de lynx » lors de la relecture de ma thèse et de mes posters, Carole Fréchou pour ses conseils, Fabrice Rigoulay mon collègue de bureau avec son café devenu indispensable, Matias Rodrigues qui me motivait pour venir à vélo le matin, l'ensemble des thésards IRSN avec les soirées et les discussions... Je suis reconnaissant envers toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à ces travaux et même si elles ne figurent pas dans ces quelques mots, j'espère qu'elles se reconnaîtront.

Je tiens enfin à remercier mes amis qui m'ont permis de me détendre et d'oublier mes travaux pendant quelques journées pour revenir encore plus en forme et déterminé. Je remercie ma famille : mes parents qui m'ont soutenu et donné les moyens d'arriver jusque-là, mon frère qui m'a permis de me changer les idées plus d'une fois, mes cousins avec les séances de « pêche » au Pavin, et tout le reste de ma famille avec les repas qui ne se terminent jamais et qui me font toujours un si grand bien. Pour finir je pense à mes grands-mères : Renée Sabot, je me souviendrai toujours de sa première phrase lorsque je lui ai annoncé que je faisais une thèse : « Oh là là ! Mais quand est-ce que tu vas t'arrêter bon sang ! », Marie-Louise Planche notre Lisette qui me demandait toujours comment se passait ma thèse. Je dédie cette thèse à la mémoire de ces deux grands-mères exceptionnelles.

Table des matières

Remerciements	3
Table des matières	5
Liste des figures	8
Liste des tableaux	13
Nomenclature	15
Introduction	20
Chapitre 1. Les propriétés du radon, du thoron et de leurs descendants	23
1.1. La chaîne de traçabilité métrologique du radon (^{222}Rn).....	23
1.1.1. Le radon : ^{222}Rn	23
1.1.2. L'étalon primaire de radon	25
1.1.3. L'étalonnage des appareils de mesure de l'activité volumique du radon.....	30
1.2. La chaîne de traçabilité métrologique du thoron (^{220}Rn)	31
1.2.1. Le thoron : ^{220}Rn	31
1.2.2. Les méthodes de mesure du thoron.....	35
1.3. Discussion et conclusion	41
Chapitre 2. Transport des aérosols radioactifs chargés appliqué aux descendants du radon et du thoron	43
2.1. Taille des descendants mesurés.....	43
2.2. Le transport des aérosols nanométriques	44
2.2.1. Nombre de Knudsen	44
2.2.2. Diffusion brownienne, diffusion des petits ions.....	45
2.2.3. Déplacement quadratique moyen.....	47
2.2.4. Vitesse d'écoulement, calcul du nombre de Péclet	48
2.2.5. Dérive des petits ions dans un champ électrique	49
2.2.6. Vitesse de sédimentation.....	51
2.2.7. Phénomène de thermophorèse.....	52
2.2.8. Conclusion sur le transport des aérosols submicroniques appliqué à la fraction libre des descendants du radon	53
2.3. Processus de charge des aérosols radioactifs appliqué aux descendants du radon.....	54
2.3.1. Charge des atomes radioactifs dans le vide	54
2.3.2. Processus de charge des aérosols radioactifs dans l'air	56
2.3.3. Les phénomènes de neutralisation des descendants solides	57
2.3.4. Conclusion sur les processus de charge des descendants du radon et du thoron ...	61
2.4. Charge totale des descendants du radon et du thoron	61
2.4.1. Les différentes études sur la charge totale des descendants du radon	61

2.4.2. Les différentes études sur la charge totale des descendants du thoron	68
2.5. Conclusion	72
Chapitre 3. Développement du prototype de mesure par simulations Monte-Carlo et par méthode à éléments finis	74
3.1. Modèle Monte-Carlo pour le calcul du rendement de détection du dispositif.....	75
3.1.1. Les méthodes Monte-Carlo	75
3.1.2. Choix du code de simulation	75
3.1.3. Introduction du code de calcul MCNPX et description du jeu de données.....	76
3.1.4. Incertitude liée aux simulations MCNPX.....	77
3.2. Mise en place du modèle Monte-Carlo.....	77
3.2.1. Choix du volume	77
3.2.2. Évaluation des paramètres d'influence sur le calcul de rendement.....	79
3.2.3. Forme du spectre attendu avec le dispositif.....	84
3.3. Modélisation du champ électrique pour la capture des descendants à la surface du détecteur	87
3.3.1. Introduction sur le champ électrique.....	87
3.3.2. Limites disruptives.....	88
3.3.3. Code de simulation utilisé	91
3.3.4. Choix de la forme de l'électrode et limites	92
3.4. Calcul de la vitesse du fluide dans le volume	95
3.4.1. Géométrie utilisée.....	95
3.4.2. Régime d'un fluide.....	96
3.4.3. Modèle pour le transport de l'air dans le volume.....	97
3.5. Transport du radon et du thoron dans le volume de mesure	100
3.6. Calcul de la vitesse de dérive des ions	101
3.7. Conclusion	103
Chapitre 4. Validation expérimentale de la méthode de mesure avec une atmosphère de référence en radon.....	105
4.1. Dispositif expérimental, mise en place d'une atmosphère de référence de haute activité volumique.....	106
4.2. Étalonnage en volume du banc de dilution.....	108
4.3. Série de mesures sur une même activité volumique	110
4.3.1. Atmosphère de référence et incertitude	110
4.3.2. Suivi des paramètres expérimentaux au cours de la mesure de ^{222}Rn	111
4.3.3. Méthode d'analyse des résultats.....	112
4.3.4. Résultats sur les trois jours de mesure.....	114
4.4. Évaluation des paramètres d'influence sur la mesure	116
4.4.1. Variation de débit	117

4.4.2. Variation de pression totale dans le volume de mesure.....	119
4.4.3. Température	121
4.4.4. Humidité	125
4.4.5. Variation de l'activité volumique	126
4.5. Évaluation du rendement de détection et incertitudes	128
4.5.1. Méthode d'analyse des spectres	128
4.5.2. Rendement de détection lié au pic de ^{222}Rn	130
4.5.3. Analyse des pics de ^{218}Po et de ^{214}Po	134
4.6. Conclusion	136
Chapitre 5. Mesure de thoron et comparaison des résultats.....	139
5.1. Banc mis en place pour la mesure du thoron.....	139
5.2. Premiers tests de mesure.....	141
5.2.1. Mesure d'une atmosphère de thoron avec et sans champ électrique	141
5.2.2. Mesure d'une forte activité volumique en thoron.....	142
5.3. Analyse du spectre et des descendants à vie longue du thoron.....	143
5.3.1. Évolution du spectre au cours du temps.....	143
5.3.2. Analyse des descendants à vie longue capturés à la surface du détecteur	145
5.3.3. Propositions de méthodes expérimentales pour évaluer le comptage provenant du pic de ^{212}Bi	147
5.3.4. Vérification du rapport d'embranchement entre le ^{212}Bi et le ^{212}Po dans notre système	147
5.4. Évolution du taux d'émanation de la source de ^{228}Th produisant le ^{220}Rn	149
5.5. Paramètres d'influence sur la mesure	153
5.6. Rendement de détection, calcul d'activité volumique et incertitudes.....	157
5.6.1. Dispositif et condition expérimentales	157
5.6.2. Méthode d'analyse des résultats.....	157
5.6.3. Résultats de comptage	159
5.6.4. Calcul de l'activité volumique en ^{220}Rn et incertitudes associées.....	161
5.7. Comparaison avec d'autres dispositifs de mesure	166
5.7.1. Comparaison avec un RAD7 étalonné	166
5.7.2. Comparaison avec les dispositifs de mesure de l'ENEA.....	168
5.8. Conclusion	169
Conclusion générale.....	171
Annexe A : Synthèse des données nucléaires du ^{222}Rn et ^{220}Rn.....	175
Annexe B : Jeu de données MCNPX du dispositif de mesure.....	177
Annexe C : Plan du dispositif de mesure.....	180
Bibliographie.....	181

Liste des figures

Figure 1-1 : Représentation d'une partie de la chaîne de ^{238}U menant au ^{222}Rn	24
Figure 1-2 : Représentation des principaux isotopes de la chaîne de désintégration du radon (Bé, <i>et al.</i> , 2013).....	24
Figure 1-3 : Représentation de l'activité en ^{222}Rn et de ses descendants dans un volume fermé en fonction du temps.....	25
Figure 1-4 : Photographie du nouveau banc de mesure primaire de radon avec le schéma correspondant.....	26
Figure 1-5 : Schéma de la chambre de mesure du radon avec le doigt froid.....	26
Figure 1-6 : Schéma de la méthode par angle solide défini avec : a le rayon du collimateur, b le rayon de la source, z la distance source-collimateur et e l'excentricité de la source.....	27
Figure 1-7 : Spectre alpha du ^{222}Rn et de ses descendants obtenu avec la mesure primaire.....	28
Figure 1-8 : Photographie de l'installation BACCARA avec le schéma correspondant.....	30
Figure 1-9 : Représentation de la chaîne du ^{232}Th menant au ^{220}Rn	31
Figure 1-10 : Représentation de la chaîne du ^{220}Rn	32
Figure 1-11 : Évolution de l'activité en fonction du temps du ^{220}Rn et de son premier descendant, le ^{216}Po , dans un volume fermé.....	32
Figure 1-12 : Évolution de l'activité du ^{220}Rn et de ses descendants dans un volume fermé.....	33
Figure 1-13 : Évolution de l'activité en ^{220}Rn et de ses descendants dans un volume fermé pour une activité maintenue constante en ^{220}Rn	35
Figure 1-14 : Système de mesure de l'activité volumique en ^{220}Rn au PTB (Gargioni & Arnold, 2003).....	36
Figure 1-15 : Schéma du principe du second dispositif d'étalonnage en thoron du PTB. (Röttger, <i>et al.</i> , 2014).....	37
Figure 1-16 : Schéma du principe de mesure du volume SG500 par spectrométrie gamma.....	40
Figure 1-17 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha de ^{220}Rn	42
Figure 2-1 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha du ^{220}Rn avec filtration.....	44
Figure 2-2 : Évolution du coefficient de Knudsen pour différentes tailles de particules dans l'air à 23 °C et 1 013 hPa.....	44
Figure 2-3 : Représentation des coefficients de diffusion des particules chargées et neutres en fonction de leur diamètre (T = 296,15 K et P = 1 013 hPa).....	46
Figure 2-4 : Déplacement quadratique moyen d'une particule neutre et d'une particule chargée en fonction de leur diamètre pour un trajet d'une seconde.....	47
Figure 2-5 : Évolution du nombre de Péclét en fonction de la vitesse du fluide pour des particules nanométriques.....	48
Figure 2-6 : Résultats de calcul de la vitesse de dérive des ions en fonction de l'intensité du champ électrique pour différents diamètres de particules.....	50
Figure 2-7 : Évolution de la vitesse de dérive des ions pour un même champ électrique mais des diamètres de particules différents.....	50

Figure 2-8 : Représentation de la vitesse de thermophorèse en fonction du gradient de température en régime moléculaire.	53
Figure 2-9 : Schéma de désintégration de ^{212}Bi (LNHB, 2015).	55
Figure 2-10 : À gauche, le spectre de charge des atomes de ^{208}Tl (Wieclawik, <i>et al.</i> , 1969) et à droite, la distribution des charges obtenue par plusieurs chercheurs (Pleasanton & Snell, 1957) (Gunter, <i>et al.</i> , 1966) (Joyes, 1969) (Perrin & Wieclawik, 1966).	56
Figure 2-11 : Taux de neutralisation du $^{218}\text{Po}^+$ dans l'azote pour différentes concentrations en H_2O (Hopke & Cho, 1988).	58
Figure 2-12 : Taux de neutralisation du PoO_2^+ en fonction de la concentration en molécules de NH_3 , C_5H_{12} et NO_2 dans l'air (Hopke & Cho, 1988).	59
Figure 2-13 : Évolution du radon et des descendants dans le tube de Zélen. (Abou-Khalil, 2008).	60
Figure 2-14 : Fraction d'ion ^{218}Po positif dans l'air obtenue par calcul à différents taux d'humidité (Porstendörfer, <i>et al.</i> , 2005).	63
Figure 2-15 : Schéma du montage de Dua permettant la détermination de la fraction de descendants chargés.	64
Figure 2-16 : Taux de descendants du radon capturés en fonction de l'humidité de l'air pour différentes intensités de champ électrique (Dua, <i>et al.</i> , 1981).	65
Figure 2-17 : Dispositif expérimental pour l'étude de la charge des descendants du radon (Malet, 1997).	67
Figure 2-18 : Pourcentage des descendants collectés en fonction de la tension appliquée pour différents taux d'humidité (Porstendörfer, <i>et al.</i> , 1979).	69
Figure 2-19 : Évolution du taux de capture en fonction de l'activité en thoron pour un champ électrique faible (Porstendörfer, <i>et al.</i> , 1979).	69
Figure 2-20 : Pourcentage des descendants chargés en fonction du taux d'humidité dans l'air (Dua, <i>et al.</i> , 1983).	71
Figure 2-21 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha du ^{220}Rn avec filtration et champ électrique.	73
Figure 3-1 : Perte d'énergie des alphas de 5,49 MeV dans l'air (Bragg, 1904).	78
Figure 3-2 : Géométrie de détection, représentation d'une coupe avec le logiciel Vised22S (Schwarz, <i>et al.</i> , 2015).	78
Figure 3-3 : Représentation des émissions alpha produites à la surface du détecteur.	80
Figure 3-4 : Représentation du rendement de détection du dépôt à la surface du détecteur en fonction de l'énergie des particules alpha et de l'épaisseur de la fenêtre équivalent silice.	81
Figure 3-5 : Représentation du rendement de détection du dépôt à la surface du détecteur en fonction de l'énergie des particules alpha.	83
Figure 3-6 : Spectre théorique de ^{222}Rn et de ses descendants déposés à la surface du détecteur après une exposition de 4 heures à une atmosphère de ^{222}Rn	84
Figure 3-7 : Spectre théorique de ^{220}Rn et de ses descendants déposés à la surface du détecteur après une exposition de 4 jours à une atmosphère de ^{220}Rn	85
Figure 3-8 : Représentation de l'influence de la masse volumique de l'air sur le pic de ^{222}Rn	85
Figure 3-9 : Spectre théorique d'un mélange de ^{222}Rn et de ^{220}Rn après 4 jours d'exposition pour une activité volumique constante et identique pour les deux gaz.	86
Figure 3-10 : Ligne de champ.	87

Figure 3-11 : Champ électrostatique, une ligne de champ ne peut pas revenir sur la surface du conducteur.....	88
Figure 3-12 : Expression du facteur de Schwaiger (Sc) en fonction de l'angle formé par les asymptotes de l'hyperboloïde de la pointe (Prinz, 1969).....	89
Figure 3-13 : Courbe de Paschen pour l'air à 20 °C.	90
Figure 3-14 : Coupe de la géométrie de l'électrode dans le volume de mesure.....	92
Figure 3-15 : Représentation du maillage à base de quadrilatères de la géométrie en 2D.....	93
Figure 3-16 : Lignes de champ et potentiel en kV dans le volume avec les tubes d'entrée et de sortie.	93
Figure 3-17 : Potentiel et lignes de champ dans le volume sans les tubes d'entrée et sortie.	94
Figure 3-18 : Visualisation du champ électrique : à gauche avec les tubes et à droite avec une grille perpendiculaire aux tubes.....	94
Figure 3-19 : Représentation de la géométrie en 3D.	95
Figure 3-20 : Représentation de la géométrie en 3D avec le plan de symétrie.....	96
Figure 3-21 : Représentation du nombre de Reynolds en fonction du débit et de la vitesse du fluide dans un tube de 4 mm de diamètre interne.	97
Figure 3-22 : Maillage de la géométrie pour les simulations de mécanique des fluides.	98
Figure 3-23 : Vitesse du fluide dans le volume pour une symétrie suivant le plan XY.	99
Figure 3-24 : Calcul du « cell Reynolds Number » de Comsol.....	99
Figure 3-25 : Transport du thoron dans le volume de mesure en tenant compte de la vitesse du fluide, du coefficient de diffusion du thoron et de sa période.....	100
Figure 3-26 : Transport de particules de 1 nm de diamètre dans le volume de mesure sans champ électrique pour une durée de 100 ms.....	101
Figure 3-27 : Schémas des deux électrodes à gauche, résultats de simulation du potentiel électrique dans le volume à droite.....	102
Figure 3-28 : Trajectoire des particules de 1 nm de diamètre soumises à la force de dérive des ions et à la force de traînée due à un débit constant en air de 1 L.min ⁻¹	102
Figure 3-29 : Temps nécessaire pour capturer les 200 particules simulées en entrée du volume en fonction de leur charge et de leur diamètre.....	103
Figure 4-1 : Schéma de l'ensemble du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ²²² Rn.....	106
Figure 4-2 : Photographie du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ²²² Rn.....	108
Figure 4-3 : Schéma simplifié du banc de dilution pour la mesure du volume de dilution.....	108
Figure 4-4 : Évolution de la pression et de la température dans le volume de mesure pendant les trois jours de mesure.....	112
Figure 4-5 : Spectre obtenu par la mesure de l'atmosphère en ²²² Rn avec le dispositif de mesure. L'échelle des ordonnées est en racine carrée.	112
Figure 4-6 : Comparaison d'un spectre réalisé après 1 h d'exposition à un spectre réalisé après 63 h d'exposition.	113
Figure 4-7 : Évolution du comptage pour chaque ROI au cours du temps.....	114
Figure 4-8 : Représentation du comptage pour chaque ROI avec les corrections dues à la décroissance du radon appliquées.	116

Figure 4-9 : Évolution du comptage pour la ROI du ^{222}Rn et du ^{218}Po en fonction du débit de circulation dans le dispositif de mesure.....	118
Figure 4-10 : Évolution du comptage pour une même activité volumique à différentes pressions.....	120
Figure 4-11 : Pic alpha de ^{222}Rn dans le dispositif de mesure pour une même activité volumique à une pression de 900 et 1 050 hPa.....	120
Figure 4-12 : Schéma des conditions expérimentales d'une mesure d'atmosphère en radon ou thoron dans BACCARA.....	121
Figure 4-13 : Évolution du taux de comptage dans la région d'intérêt du spectre en fonction de la température : à gauche pour le ^{218}Po et à droite pour le ^{222}Rn	123
Figure 4-14 : Superposition des quatre spectres de la mesure de l'étalon à des températures différentes.....	123
Figure 4-15 : Résultat des taux de comptage avec la correction de température appliquée.	124
Figure 4-16 : Évolution du quotient du taux comptage par l'activité de référence pour différents taux d'humidité.....	126
Figure 4-17 : Évolution du quotient du taux de comptage par l'activité volumique de référence pour différentes activités volumiques.....	127
Figure 4-18 : Forme d'un pic alpha obtenu par mesure avec un détecteur silicium. Les deux traînes introduites par le logiciel Colegram sont mises en évidence par les lignes en pointillés.....	128
Figure 4-19 : Résultat obtenu avec Colegram de l'ajustement de la fonction ALPHA(x). La courbe bleue représente l'ajustement total du spectre et les courbes rouges correspondent aux ajustements spécifiques à chaque pic.....	129
Figure 4-20 : Représentation des résidus après l'ajustement mathématique en fonction de l'énergie.....	130
Figure 4-21 : Résultats de rendements calculés sur l'ensemble des spectres mesurés pendant 63 h d'exposition à une activité de référence en ^{222}Rn	134
Figure 4-22 : Rapport des pics du ^{218}Po et du ^{214}Po après obtention de l'équilibre.....	135
Figure 4-23 : Résultats de la détermination expérimentale du rendement pour le pic de ^{218}Po	135
Figure 4-24 : Pourcentage de ^{218}Po descendants chargés.....	136
Figure 5-1 : Schéma de l'ensemble du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ^{220}Rn pour des fortes concentrations proches du MBq.m^{-3}	140
Figure 5-2 : Banc permettant la création d'atmosphère de thoron à forte activité volumique....	141
Figure 5-3 : Spectre d'une atmosphère de thoron obtenue sans champ électrique (acquisition de 700 secondes).....	141
Figure 5-4 : Spectre d'une atmosphère de thoron obtenu avec la mise en fonction du champ électrique (acquisition de 100 secondes).....	142
Figure 5-5 : Spectre obtenu pour une mesure d'activité volumique très élevée (environ 100 MBq.m^{-3}).....	143
Figure 5-6 : Exemple de spectre obtenu après une exposition de 100 secondes à une atmosphère d'environ 1 MBq.m^{-3} de ^{220}Rn	144
Figure 5-7 : Exemple de spectre obtenu après une exposition de 4 000 secondes à une atmosphère d'environ 1 MBq.m^{-3} de ^{220}Rn	144

Figure 5-8 : Spectre réalisé dans le dispositif après une exposition à une forte activité volumique en ^{220}Rn . Temps d'acquisition de 2 700 s.....	145
Figure 5-9 : Spectre obtenu après une exposition à une atmosphère en ^{220}Rn de quelques kBq.m^{-3} et un rinçage du volume avec de l'air propre. Temps d'acquisition de 67 000 s.....	146
Figure 5-10 : Spectre du dépôt de ^{212}Bi et ^{212}Po à la surface du détecteur après une exposition à une atmosphère en ^{220}Rn	148
Figure 5-11 : Mesure du débit d'air sec en entrée de la source de ^{228}Th	149
Figure 5-12 : Dernier spectre obtenu pendant l'exposition à l'atmosphère en thoron soit 4 100 secondes d'exposition, la durée d'acquisition est de 100 secondes.....	150
Figure 5-13 : Résultats pour les fenêtres de $^{220}\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}$ et de ^{216}Po	151
Figure 5-14 : Évolution du comptage de la région d'intérêt du pic de ^{212}Po tout au long de l'exposition.	151
Figure 5-15 : Résultat du comptage lié au pic de ^{220}Rn avec la correction des comptages liés au ^{212}Bi	152
Figure 5-16 : Représentation des taux de comptage du ^{220}Rn et du ^{216}Po corrigés en fonction du débit de circulation dans le dispositif de mesure.....	155
Figure 5-17 : Résultats du rapport des taux de comptage entre le ^{216}Po et le ^{220}Rn	156
Figure 5-18 : Représentation du facteur de correction F_{tube} en fonction de la longueur d'un tube de 8 mm de diamètre intérieur.....	156
Figure 5-19 : Exemple de spectre pour une acquisition de 3 000 secondes après 13 h d'exposition à une atmosphère en ^{220}Rn	158
Figure 5-20 : Résultat des résidus de comptage entre l'ajustement mathématique et les comptages bruts.	158
Figure 5-21 : Évolution du comptage pour chaque pic alpha du spectre.	159
Figure 5-22 : Expression du rapport du comptage entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po en fonction du temps d'exposition.	160
Figure 5-23 : Expression du rapport du comptage entre le ^{216}Po et le ^{212}Po pour différentes mesures.....	160
Figure 5-24 : Calcul de l'activité volumique en ^{220}Rn pour chaque point de mesure de la zone d'analyse.	164
Figure 5-25 : Comparaison des résultats de l'activité volumique mesurée au point de prélèvement en utilisant soit le pic du ^{216}Po , soit le pic du ^{220}Rn	165
Figure 5-26 : Montage utilisé pour la comparaison entre un Rad7 étalonné par le PTB et le dispositif de mesure thoron.	166
Figure 5-27 : Spectre obtenu pour la mesure de 2,08 (6) kBq.m^{-3} de ^{220}Rn dans BACCARA. Acquisition de 7 jours.....	167
Figure 5-28 : Montage utilisé pour la comparaison avec le dispositif de mesure thoron développé par l'ENEA.....	168
Figure 5-29 : Spectre obtenu lors de la comparaison après une mesure de 16 h.	169

Liste des tableaux

Tableau 1-1 : Résultats des efficacités de détection calculées pour la fiole de Lucas modèle 300A (Pylon Electronics, 2008).....	39
Tableau 1-2 : Résultats expérimentaux avec leur incertitude-type associée pour des prélèvements d'atmosphère en ^{220}Rn	41
Tableau 2-1 : Résultats de mesure de la fraction chargée (+) et neutre (n) des descendants du radon pour différents auteurs.....	62
Tableau 2-2 : Résultats de mesure de la fraction chargée des descendants du radon. (Dua, <i>et al.</i> , 1981).....	64
Tableau 2-3 : Résultats de la charge des descendants du radon dans l'air sec et propre sous différentes conditions expérimentales (Abou-Khalil, 2008).	66
Tableau 2-4 : Les différents résultats de la fraction chargée (+) et neutre (n) des descendants du thoron.	68
Tableau 2-5 : Charge des descendants du thoron pour un taux d'humidité relative de 16 % à 19 % (Dua, <i>et al.</i> , 1981).	70
Tableau 3-1 : Calcul du rendement de détection en fonction des incertitudes sur les dimensions du dispositif.....	79
Tableau 3-2 : Résultats de calcul de rendement pour une masse volumique de l'air variant entre $1,1 \text{ kg.m}^{-3}$ et $1,4 \text{ kg.m}^{-3}$	82
Tableau 4-1 : Caractéristiques des sondes utilisées dans le dispositif de mesure.....	107
Tableau 4-2 : Résultats de mesure du volume de dilution (V_d).	110
Tableau 4-3 : Évolution des paramètres expérimentaux pendant les trois jours de mesure.	111
Tableau 4-4 : Synthèse des résultats des comptages corrigés pour chaque fenêtre.....	116
Tableau 4-5 : Moyenne et écart-type des paramètres expérimentaux pendant toute la durée d'acquisition du spectre de mesure de ^{222}Rn (2 000 s).....	117
Tableau 4-6 : Moyenne et écart-type des paramètres expérimentaux pendant toute la durée d'acquisition du spectre de mesure de ^{222}Rn (5 000 s).....	119
Tableau 4-7 : Synthèse des conditions expérimentales.....	125
Tableau 4-8 : Relevé de température pendant la mesure pour chaque activité volumique correspondante.....	127
Tableau 4-9 : Rendement et bilan d'incertitude associé pour un point de mesure à la date de référence du 20/02/2015 8 : 00 TU.....	132
Tableau 4-10 : Forme et distribution des valeurs pour le calcul d'incertitude par méthode Monte-Carlo.....	133
Tableau 5-1 : Émission alpha du ^{212}Bi (Bé, <i>et al.</i> , 2013).....	148
Tableau 5-2 : Synthèse des conditions expérimentales.....	153
Tableau 5-3 : Relevé des données expérimentales tout au long des mesures (Plus de 5 jours d'exposition).....	157
Tableau 5-4 : Bilan des incertitudes et résultats selon deux méthodes.....	163
Tableau 5-5 : Bilan des incertitudes et résultats selon deux méthodes en utilisant le pic de ^{216}Po	165

Tableau 5-6 : Résultats de la comparaison entre le Rad7 étalonné et le dispositif de mesure du thoron.....	167
Tableau 5-7 : Résultats de la comparaison entre la fiole de Lucas de l'ENEA et le dispositif de mesure du thoron. L'activité volumique calculée correspond à l'activité volumique en sortie du dispositif de mesure thoron.....	169

Nomenclature

Lettres latines :

a	Coefficient pour le calcul du facteur de Cunningham $a = 1,165$ pour l'air (Kim, <i>et al.</i> , 2005a)	-
A	Nombre de masse d'un atome	-
A_{A_X}	Activité de l'élément X de nombre de masse A	Bq
A_n	Activité de l'élément n	Bq
$A_v A_X$	Activité volumique de l'élément X de nombre de masse A	Bq.m ⁻³
b	Coefficient pour le calcul du facteur de Cunningham $b = 0,483$ pour l'air (Kim, <i>et al.</i> , 2005a)	-
B	Mobilité dynamique d'une particule	m ² .V ⁻¹ .s ⁻¹
c	Coefficient pour le calcul du facteur de Cunningham $c = 0,997$ pour l'air (Kim, <i>et al.</i> , 2005a)	-
C_1	Correction de la mesure par rapport à la date de référence	-
C_2	Correction due à la durée de la mesure du radon	-
C_3	Correction de la mesure après le transfert de radon par rapport à la date de référence	-
C_4	Correction due à la durée de la mesure après le transfert de radon	-
C_{air}	Concentration en molécules d'air à 1 013 hPa et 23 °C : $2,51 \cdot 10^{13}$ cm ⁻³	m ⁻³
C_n	Concentration en descendants solides non chargés du radon	m ⁻³
$corr(X, Y)$	Corrélation entre les variables X et Y	-
$cov(X, Y)$	Covariance entre les variables X et Y	-
C_u	Facteur de Cunningham	-
d	Distance minimale entre les deux électrodes	m
D	Coefficient de diffusion d'un aérosol	m ² .s ⁻¹
d_{air}	Diamètre moyen des molécules composant l'air	m
D_c	Coefficient de diffusion de particules chargées	m ² .s ⁻¹
d_m	Date du début d'une mesure	-
d_p	Diamètre d'une particule	m
d_p^*	Diamètre corrigé pour le calcul du facteur de Cunningham prenant en compte des particules de diamètre inférieur à 2 nm	m
d_{ref}	Date de référence d'une mesure	-
D_{Rn}	Coefficient de diffusion du radon dans l'air $1,1 \cdot 10^{-5}$ m ² .s ⁻¹ (Hirst, <i>et al.</i> , 1939)	m ² .s ⁻¹

e	Charge élémentaire $1,602\ 176\ 565\ (35) \cdot 10^{-19}$ J (Haynes, 2014) ¹	J
\vec{E}	Champ électrique	V.m ⁻¹
f	Fonction représentant une valeur y	-
\vec{F}	Force électrostatique	N
F_{dev}	Facteur de correction due à la décroissance de l'élément pendant la mesure	-
F_e	Force de dérive des ions soumis à un champ électrique	N
F_p	Force de pesanteur induite sur une particule	N
F_{ref}	Facteur de correction pour corriger le résultat à une date de référence	-
F_t	Force de traînée par unité de masse	-
\vec{F}_{th}	Force de thermophorèse	N
F_{tube}	Facteur de correction de la décroissance du thoron dans le tube de prélèvement	-
g	Accélération normale de la pesanteur $980,665$ cm.s ⁻² (BIPM, 1901)	cm.s ⁻²
G	Facteur de géométrie de l'angle solide défini	-
i	Constante 1 déterminée expérimentalement pour différents types de gaz afin de calculer le coefficient de Schwaiger	-
j	Constante 2 déterminée expérimentalement pour différents types de gaz afin de calculer le coefficient de Schwaiger	-
k	Constante 3 déterminée expérimentalement pour différents types de gaz afin de calculer le coefficient de Schwaiger	-
k_B	Constante de Boltzmann : $1,380\ 648\ 8\ (13) \cdot 10^{-23}$ J.K ⁻¹ (Haynes, 2014)	J.K ⁻¹
K_n	Nombre de Knudsen	-
k_Q	Facteur géométrique pour la correction de la non-homogénéité de distribution du ²²⁰ Rn dans la chambre MWIC	-
k_ε	Coefficient d'étalonnage de la chambre MWIC déterminé avec un étalon de ²²² Rn	-
L	Longueur caractéristique	m
m	Masse d'une molécule ou d'un aérosol	g
M	Masse molaire du cluster d'aérosol	g.mol ⁻¹
M_{air}	Masse molaire de l'air en kg.mol ⁻¹	kg.mol ⁻¹
M_{eau}	Masse molaire de l'eau en kg.mol ⁻¹	kg.mol ⁻¹
m_f	Masse de fluide déplacé par une particule de diamètre d_p	kg
m_p	Masse d'une particule	kg

¹ La valeur (35) représente l'incertitude-type absolue sur la valeur de la charge électrique et s'applique au dernier chiffre de la valeur (JCGM, 2008a). Cette notation est appliquée dans l'ensemble du document. Dans le cas présent elle se traduit par $(1,602\ 176\ 565 \pm 0,000\ 000\ 035) \cdot 10^{-19}$ J.

N	Comptage dans une région d'intérêt du spectre	-
N_1	Nombre d'impulsions brutes de la mesure du radon	-
$N_{1,0}$	Nombre d'atomes de l'élément 1 à l'instant 0	-
N_2	Nombre d'impulsions brutes de la mesure après le transfert du radon	-
N_a	Nombre d'Avogadro $6,022\ 141\ 29\ (27) \cdot 10^{23}\ \text{mol}^{-1}$ (Haynes, 2014)	mol^{-1}
N_{bg}	Comptage lié au mouvement propre de l'appareil	-
$\dot{N}_{bg} (^A X)$	Taux de comptage du mouvement propre pour le pic gamma de l'élément X de nombre de masse A	s^{-1}
\dot{N}_k	Taux de comptage de l'étalonnage du dispositif avec une source de ^{228}Th	s^{-1}
$\dot{N}_m (^A X)$	Taux de comptage mesuré pour le pic gamma de l'élément X de nombre de masse A	s^{-1}
$N_{A_X}(d_m)$	Comptage lié au pic de l'élément $^A X$ à la date de la mesure d_m	-
N_{A_X}	Comptage provenant de l'élément X de nombre de masse A	-
p	Entier définissant le nombre de charges	-
P	Pression d'un gaz	Pa
P_A	Poussée d'Archimède	N
P_e	Nombre de Péclet	-
P_{Ref}	Pression d'azote dans le volume de référence	Pa
P_{Tot}	Pression d'azote dans le volume total	Pa
$p_\gamma (^A X)$	Probabilité de l'émission gamma de l'élément X de nombre de masse A	-
q	Charge totale $q = p e$	J
Q	Débit de circulation dans un tube	$\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$
r	Distance entre un point A et B	m
R	Constante molaire des gaz $8,314\ 462\ 1\ (75)\ \text{J}\ \text{mol}^{-1}\ \text{K}^{-1}$ (Haynes, 2014)	$\text{J}\cdot\text{mol}^{-1}\ \text{K}^{-1}$
R_1	Facteur de correction due à l'activité des atomes de recul de ^{224}Ra déposés en dehors de la source plane	-
R_2	Facteur de correction due à l'activité des atomes de recul de ^{216}Po déposés sur les surfaces en dehors de la source	-
r_{air}	Rayon de collision d'une molécule d'air : 0,185 nm	m
R_d^{222Rn}	Rendement de détection du gaz pour le dispositif de mesure du thoron	-
R_e	Nombre de Reynolds	-
r_t	Rayon du tube	m
S_c	Facteur de Schwaiger	-
T	Température	K
$T_{1/2} (^A X)$	Période, demi-vie du radionucléide X de nombre de masse A . $T_{1/2} = \ln 2 / \lambda$	s

t_1	Temps de mesure du radon	s
t_2	Temps de mesure après le transfert du radon	s
t_e	Temps d'exposition d'un instrument de mesure à une atmosphère de radon	s
t_m	Durée d'acquisition d'une mesure	s
T_{Ref}	Température de l'azote dans le volume de référence	K
T_{Tot}	Température de l'azote dans le volume total pendant l'étalonnage en volume	K
$\overrightarrow{\nabla T_\infty}$	Gradient de température loin de la particule d'aérosol	K.cm ⁻¹
$u(x_i)$	Incertitude-type de la valeur x_i	-
U_c	Tension de claquage entre deux électrodes	V
$u_c(y)$	Incertitude-type composée de la valeur y	-
v	Vitesse caractéristique	m.s ⁻¹
V	Potentiel électrique	V
V_A	Potentiel électrique en A	V
V_B	Potentiel électrique en B	V
V_d	Volume de dilution de radon	m ³
V_{det}	Volume du détecteur thoron	m ³
v_e	Vitesse de dérive des ions	m.s ⁻¹
v_f	Vitesse du fluide	m.s ⁻¹
v_m	Vitesse moyenne du gaz porteur	m.s ⁻¹
v_p	Vitesse relative de la particule par rapport à l'air	m.s ⁻¹
v_{rms}	Valeur quadratique moyenne de la vitesse des molécules de l'air pour une pression de 1 013 hPa et une température de 23 °C : $5,02 \cdot 10^2$ m.s ⁻¹ (Malet, 1997)	m.s ⁻¹
V_{Ref}	Volume de référence étalonné : 1088,634 (10) cm ³	m ³
v_s	Vitesse de sédimentation	m.s ⁻¹
V_t	Volume du tube séparant le point de prélèvement du point de mesure	m ³
V_{Tot}	$V_{ref} + V_d$	m ³
$\frac{A}{Z}X$	Élément X de numéro atomique Z et de nombre de masse A	-
x_{rms}	Déplacement quadratique moyen exprimé par la relation $\sqrt{2 D t}$, $\sqrt{4 D t}$, $\sqrt{6 D t}$ respectivement pour 1, 2 et 3 dimensions	m
z	Mobilité électrique des ions ou des particules	m ² .V ⁻¹ .s ⁻¹
Z	Nombre de protons d'un élément	-
Z_c	Facteur de compressibilité d'un gaz	-

Lettres grecques :

$\alpha(^{212}\text{Bi})$	Pourcentage d'émission des rayonnements alpha de ^{212}Bi	-
$\beta(^{212}\text{Bi})$	Pourcentage d'émission des rayonnements bêta de ^{212}Bi	-
ε_0	Permittivité relative du vide	F.m ⁻¹
η	Viscosité dynamique du gaz porteur $\nu = \eta/\rho$ avec η la viscosité dynamique du fluide en Pa.s et ρ la densité volumique. À 23 °C et 1 013 hPa, $\nu = 1,578 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	m ² .s ⁻¹
λ	Constante de désintégration : probabilité de désintégration par noyau et par unité de temps	s ⁻¹
λ_g	Libre parcours moyen du gaz porteur. Dans l'air à 23 °C et à 1 013 hPa, le libre parcours moyen des molécules du gaz est $\lambda_g = 67,3 \cdot 10^{-9} \text{ m}$	m
λ_{CT}	Taux de neutralisation provenant du transfert de charge	s ⁻¹
λ_{IR}	Taux de neutralisation provenant de la recombinaison avec les petits ions de l'air	s ⁻¹
λ_{OH}	Taux de neutralisation provenant de la capture électronique des radicaux libres	s ⁻¹
λ_{AX}	Constante de désintégration de l'élément X de nombre de masse A	s ⁻¹
μ	Viscosité dynamique du fluide	Pa.s
ν	Viscosité cinématique du gaz porteur	m ² .s ⁻¹
ρ_g	Masse volumique du gaz porteur	kg.m ⁻³
ρ_p	Masse volumique de la particule	kg.m ⁻³
τ	Taux de comptage dans le dispositif de mesure de ^{220}Rn	s ⁻¹
τ_R	Taux de réaction	mol.m ⁻³ .s ⁻¹
τ_v	Rapport de τ sur l'activité volumique en ^{222}Rn	m ³
$\varphi(\vec{r}, z)$	Coefficient représentant la distribution de l'activité volumique en ^{220}Rn	-
χ	Coefficient d'émanation de ^{220}Rn provenant de la source de ^{228}Th	-
x_v	Fraction molaire de la vapeur d'eau	-

Introduction

Le radon est un gaz rare inerte chimiquement. Les principaux isotopes naturels étant le radon (^{222}Rn , $T_{1/2} = 3,8$ j), le thoron (^{220}Rn , $T_{1/2} = 55,6$ s) et l'actinon (^{219}Rn , $T_{1/2} = 3,98$ s) provenant respectivement des chaînes de désintégration des isotopes : ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U . Ces gaz radioactifs se désintègrent par transition alpha pour produire des descendants solides formant des aérosols dans l'air et qui sont des isotopes radioactifs du plomb, du polonium et du bismuth.

L'intérêt porté au radon est principalement lié à ses effets sanitaires. Le radon a été estimé comme la seconde cause des cancers pulmonaires après la fumée du tabac par l'IARC² (IARC, 1988). Ainsi suivant les dernières études épidémiologiques, l'OMS³ recommande une concentration limite de 100 Bq.m^{-3} en radon dans l'air dans les habitations. Cette limite peut être étendue à 300 Bq.m^{-3} suivant les conditions économiques et sociales du pays (WHO, 2009).

Connaissant ces limites, les organismes de radioprotection des différents pays ont mis en place leur propre réglementation, en suivant ou non les recommandations de l'OMS. En France, la réglementation pour l'exposition du public au radon est donnée par l'IRSN⁴ : « Si, dans une pièce occupée plus d'une heure par jour, la concentration en radon excède 400 Bq.m^{-3} en valeur moyenne annuelle, des travaux doivent être entrepris pour réduire l'exposition au radon. » (IRSN, 2014). Dans le cas des travailleurs, des réglementations plus spécifiques ont été mises en place par l'ASN⁵. L'estimation de l'activité volumique en radon est ainsi réalisée par des mesures dans les habitations ou les zones d'exploitation à l'aide d'appareils étalonnés.

Dans le cas du radon, il existe déjà une chaîne de traçabilité métrologique nationale et internationale pour les instruments de mesure de l'activité volumique dans l'air. Cette méthode comporte deux étapes ; la première correspond à la création d'un étalon primaire de radon, développé au Laboratoire National Henri Becquerel (LNE-LNHB). Il s'agit d'une mesure sur une source plane de radon solide à l'aide de la méthode par angle solide défini (Picolo, 1995). Cette méthode, que nous avons remise en place et améliorée (Sabot, 2014b), permet ainsi de créer des quantités de radon étalons stockées dans des fioles métalliques. Par la suite, cet étalon est utilisé par l'IRSN au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA) dans le BANC de CALibration du RADon (BACCARA). Ce banc permet de créer des atmosphères de référence en activité volumique de radon dans un volume de 1 m^3 afin d'étalonner des appareils de mesure de terrain (Picolo, 1999) (Michielsen & Voisin, 2003).

Les risques associés au thoron sont connus depuis longtemps dans le domaine de la manipulation des composés du thorium (Pradel, *et al.*, 1959). Cependant il n'existe pas de chaîne de traçabilité métrologique pour le thoron en France à ce jour. La concentration en thoron en France est estimée comme un dixième de celle du radon mais est rarement mesurée. Récemment, de nombreuses mesures de thoron ont été réalisées à travers le monde dans les habitations. En Corée (Kim, *et al.*, 2005b) et en Inde (Khokhar, *et al.*, 2008), les concentrations en thoron se sont avérées très proches de celles du radon dans les habitations. En Roumanie (Baciu, 2005) et au Japon (Yonehara, *et al.*, 2005) des mesures ont montré une activité volumique plus élevée en thoron que celle du radon. Par ailleurs, d'autres études ont montré que la présence de thoron peut entraîner des biais sur les mesures de radon selon l'appareil utilisé (Michielsen & Bondiguel, 2015).

² IARC : International Agency for Research on Cancer

³ OMS : Organisation Mondiale de la Santé

⁴ IRSN : Institut de Radioprotection et Sureté Nucléaire

⁵ ASN : Autorité de Sûreté Nucléaire

Le problème thoron reste aussi d'actualité dans l'industrie nucléaire. En effet le ^{232}Th est considéré comme un candidat pour la production d'énergie dans les réacteurs de générations futures du fait de son abondance dans la croûte terrestre (IAEA, 2002). Enfin les descendants du thoron, dont notamment le ^{212}Pb , sont utilisés dans le traitement des tumeurs (Azari, *et al.*, 2007). En France, le producteur de ^{212}Pb , AREVA Med, doit réaliser des mesures constantes de thoron afin d'évaluer les rejets et l'impact dosimétrique sur les opérateurs.

Le thoron est ainsi un problème d'actualité qui nécessite l'utilisation d'appareils de mesure étalonnés pour évaluer l'activité volumique, que ce soit dans les habitations ou dans l'industrie. Du fait de sa très courte période, il n'est cependant pas possible d'utiliser la même chaîne de traçabilité métrologique que celle du radon ; une nouvelle méthode doit donc être créée. Il s'agit pour nous de développer un dispositif capable de tracer l'activité volumique en thoron d'une atmosphère de référence. La méthode choisie consiste à réaliser, dans un volume de mesure transportable, des mesures par spectrométrie alpha du gaz thoron ainsi que de ses descendants qui sont capturés à la surface du détecteur à l'aide d'un champ électrique. Le rendement de détection de ce dispositif est évalué par une méthode de Monte-Carlo et validé par le transfert d'étalons de référence de radon. Le dispositif ainsi conçu sera utilisé pour mesurer et qualifier une atmosphère de référence en thoron.

La conception d'un tel dispositif nous a conduit à :

- ↳ l'étude des propriétés nucléaires du radon, du thoron et de leurs descendants,
- ↳ la compréhension des phénomènes de charge des aérosols submicroniques, ainsi que leur transport dans l'air,
- ↳ l'utilisation d'une méthode de Monte-Carlo ainsi que de codes déterministes pour le développement du dispositif de mesure,
- ↳ la mise en place de méthodes expérimentales pour la validation du fonctionnement du système de mesure et l'étude complète des paramètres d'influence de la mesure,
- ↳ l'évaluation du bilan d'incertitude sur la mesure.

Dans le premier chapitre de ce mémoire, nous présentons les propriétés des chaînes du radon et du thoron. Par la suite nous présentons la chaîne de traçabilité métrologique du radon ; cette présentation nous permet d'introduire cette notion et de montrer ses limites pour le thoron. Enfin nous nous intéressons aux différentes méthodes de mesures de référence mises en place jusqu'à aujourd'hui pour la mesure du ^{220}Rn afin d'en déduire leur limites et d'identifier les différentes contraintes associées à la conception de tels dispositifs de mesure de référence.

Le chapitre 2 présente les propriétés de charge des descendants du radon et du thoron. Nous nous intéresserons tout particulièrement à définir les conditions expérimentales optimales pour la capture des descendants en étudiant les propriétés de transport des aérosols nanométriques. Cette étude sera complétée par la synthèse des différents résultats expérimentaux de taux de descendants chargés trouvés dans la littérature.

Le chapitre 3 décrit le développement du dispositif par calcul de Monte-Carlo et par méthode des éléments finis. Dans ce chapitre nous nous intéresserons surtout à optimiser la géométrie de détection pour minimiser l'effet des paramètres expérimentaux sur la mesure. La validation de la méthode de mesure et de nos calculs est réalisée par le transfert d'un étalon de ^{222}Rn présentée dans le chapitre 4. Un dispositif expérimental développé pour la création d'atmosphères de référence en radon à haute activité est présenté dans la première partie du chapitre. Ce dispositif nous permet de réaliser toutes les analyses de sensibilité du dispositif liées aux conditions expérimentales.

Enfin le chapitre 5 présente les mesures d'atmosphère en thoron, en utilisant le dispositif de mesure pour des hautes activités, afin de déterminer l'influence du débit sur la mesure. Ces résultats permettent ainsi de présenter le bilan d'incertitudes sur la mesure du thoron et la mise en place de comparaisons avec d'autres dispositifs de mesures d'un autre laboratoire de métrologie de l'activité.

Cette thèse s'inscrit dans le projet de recherche européen MetroNORM (*Metrology for Naturally Occurring Radioactive Materials*) financé par le programme de recherche métrologique de l'Union Européenne (EMRP⁶).

⁶ EMRP : European Metrology Research Program

Chapitre 1. Les propriétés du radon, du thoron et de leurs descendants

La connaissance de la chaîne de désintégration du thoron (^{220}Rn) permet d'identifier les rayonnements émis et le moyen de mesure le plus approprié. Comme pour toute mesure de référence, sa validation est une étape importante. Nous nous sommes donc aussi intéressés au radon (^{222}Rn) qui présente des propriétés similaires à celles du thoron à l'exception de sa période plus longue. Il est un candidat idéal pour la validation de la mesure sachant qu'il existe déjà un étalon de référence pour ce radionucléide. Dans ce chapitre, nous présentons ainsi les différentes propriétés de ces deux gaz et de leurs descendants.

Nous nous intéresserons tout d'abord à la chaîne de traçabilité métrologique de ^{222}Rn . Elle nous permet d'introduire le concept de chaîne de traçabilité métrologique en utilisant l'exemple concret du radon mais aussi d'introduire la mesure primaire de ^{222}Rn que nous utilisons par la suite pour la validation de la mesure de ^{220}Rn .

Enfin après avoir présenté les propriétés du ^{220}Rn et de ses descendants, nous présentons les méthodes de mesures de ^{220}Rn qui sont utilisées pour l'étalonnage des instruments commerciaux. Cette première partie permet d'introduire les problématiques qui ont guidé ces travaux de thèse vers la conception d'un système de mesure de référence de ^{220}Rn .

1.1. La chaîne de traçabilité métrologique du radon (^{222}Rn)

Selon la définition du « Vocabulaire international de métrologie » (JCGM, 2012), une chaîne de traçabilité métrologique consiste en une succession d'étalons et d'étalonnages qui est utilisée pour relier un résultat de mesure à une référence. En France, pour le ^{222}Rn , celle-ci se présente en trois étapes :

- ↳ la première consiste en la création d'un étalon de référence de ^{222}Rn réalisé au laboratoire national de métrologie des rayonnements ionisants, le LNE-LNHB au CEA (mesurande : activité de ^{222}Rn en Bq) et à son transfert au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA) à l'IRSN ;
- ↳ la deuxième correspond à l'étalonnage des instruments de mesure commerciaux de ^{222}Rn au LPMA (mesurande : activité volumique de ^{222}Rn en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) ;
- ↳ la dernière étape correspond à la mesure sur le terrain de l'activité volumique en ^{222}Rn à l'aide de l'appareil étalonné (mesurande : activité volumique de ^{222}Rn en $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$).

Nous nous intéressons aux deux premières étapes qui correspondent à l'étalonnage des instruments de mesure de ^{222}Rn .

1.1.1. Le radon : ^{222}Rn

Le radon est un gaz radioactif issu de la chaîne de désintégration de ^{238}U . La Figure 1-1 présente une version simplifiée de cette chaîne jusqu'au ^{222}Rn .

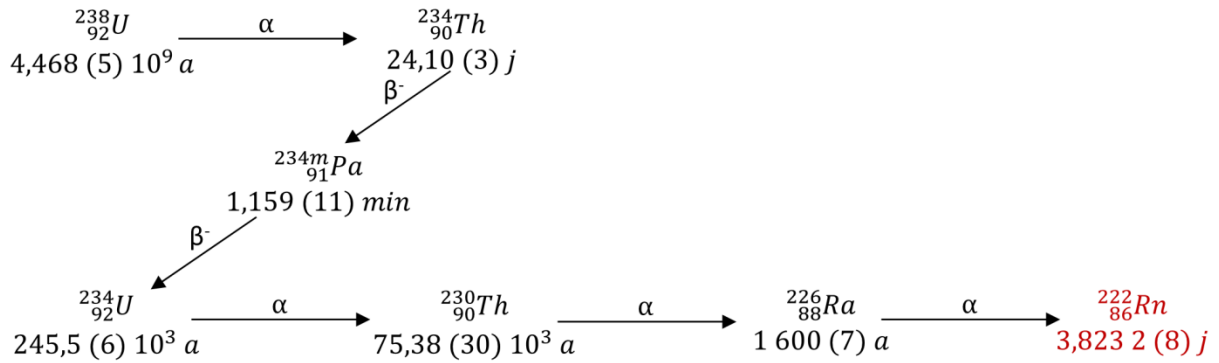


Figure 1-1 : Représentation d'une partie de la chaîne de ^{238}U menant au ^{222}Rn .

NOTE : Les données proviennent de la Table des radionucléides (Bé, et al., 2013). Les valeurs entre parenthèses correspondent à l'incertitude-type absolue, elles s'appliquent aux derniers chiffres significatifs des valeurs (JCGM, 2008a).

Le ^{222}Rn , descendant d'un isotope du radium, ^{226}Ra , (Chisté, et al., 2008), est un gaz qui se désintègre par émission alpha pour former des descendants solides eux-mêmes émetteurs alpha ou bêta (cf. Figure 1-2).

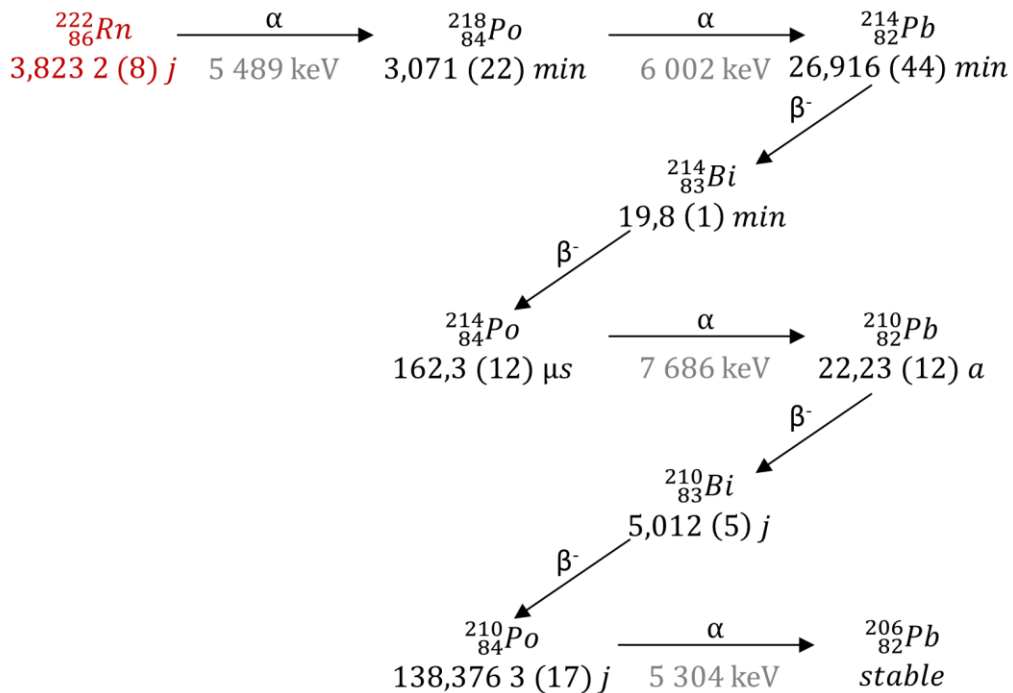


Figure 1-2 : Représentation des principaux isotopes de la chaîne de désintégration du radon (Bé, et al., 2013).

La période du radon est assez élevée pour réaliser la mesure d'un étalon, le transférer dans un contenant et le transporter vers d'autres laboratoires pour l'étalonnage d'appareils commerciaux. Le ^{222}Rn présente un équilibre séculaire avec ses descendants directs qui est rompu à partir de l'isotope ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22,23$ a). L'équation de Bateman (1.1) (Bateman, 1910) permet de calculer l'évolution de l'activité en ^{222}Rn et de ses descendants dans un volume fermé (cf. Figure 1-3) :

$$A_n = \left(\prod_{i=1}^n \lambda_i \right) N_{1,0} \sum_{j=1}^n \left(\frac{\exp(-\lambda_j t)}{\prod_{i=1, i \neq j}^n (\lambda_i - \lambda_j)} \right). \quad (1.1)$$

où A_n est l'activité de l'élément n , λ_i et λ_j les constantes de désintégration des éléments i et j et $N_{1,0}$ le nombre d'atomes initial du premier élément de la chaîne.

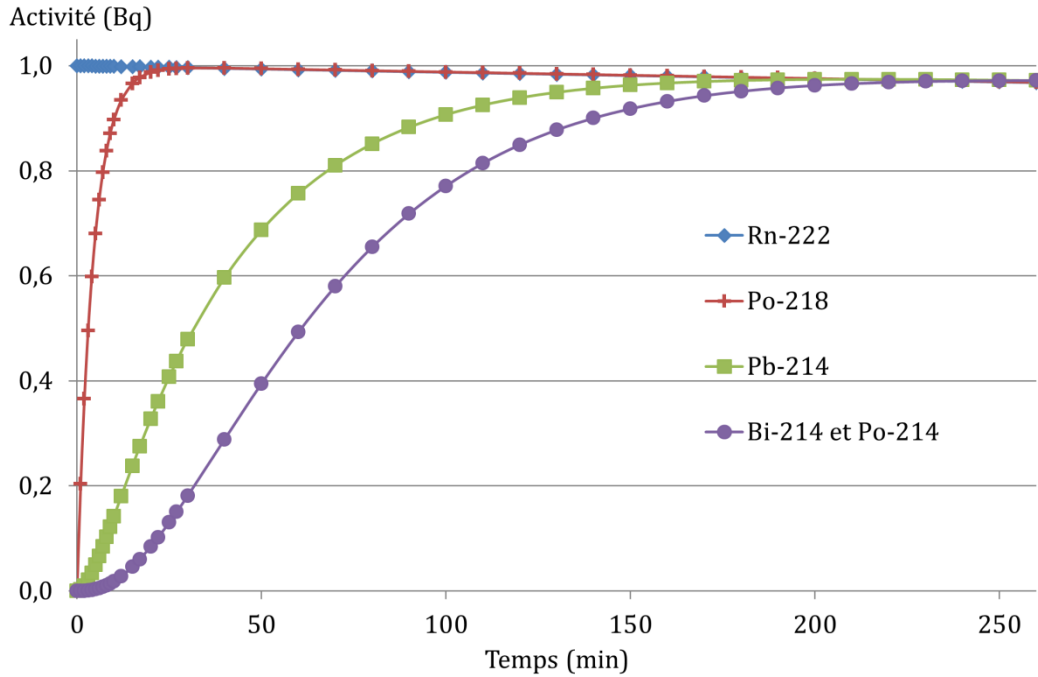


Figure 1-3 : Représentation de l'activité en ^{222}Rn et de ses descendants dans un volume fermé en fonction du temps.

L'équilibre entre le ^{222}Rn et son premier descendant, le ^{218}Pb , est obtenu après 30 minutes et 4 heures sont nécessaires pour atteindre l'équilibre avec les autres descendants jusqu'au ^{210}Pb .

Les facteurs d'équilibre entre chaque descendant peuvent se calculer à l'aide de la *Table des radionucléides* (Bé, et al., 2013). Ils ne sont pas strictement égaux à 1 entre les trois principaux émetteurs alpha :

$$\frac{A_{218\text{Po}}}{A_{222\text{Rn}}} = 1,000\ 56, \quad \frac{A_{214\text{Po}}}{A_{222\text{Rn}}} = 1,009\ 10 \text{ et } \frac{A_{218\text{Po}}}{A_{214\text{Po}}} = 0,991\ 53. \quad (1.2)$$

Le radon et ses principaux descendants à l'équilibre sont des radionucléides qui se désintègrent par transitions alpha ou bêta. Une liste des principales transitions est présentée en Annexe A. Au vu de la résolution d'un détecteur alpha, qui peut varier de 10 keV à 30 keV, il est possible de différencier chacun des éléments de la chaîne par spectrométrie alpha si l'énergie des alphas n'est pas trop dégradée. C'est sur ce principe que repose la mesure primaire de ^{222}Rn .

1.1.2. L'étalon primaire de radon

Une procédure de mesure primaire est utilisée pour obtenir un résultat de mesure sans relation avec un étalon d'une grandeur de même nature (JCGM, 2012). En France, dans le cas du

radon, la méthode primaire développée par le LNE-LNHB repose sur le comptage en angle solide défini des particules alpha émises par une source solide de radon. Cette méthode a été mise en place en 1995 par J.L. Picolo (Picolo, 1995) (Picolo, 1996) et elle a été récemment remise en place et améliorée (Sabot, 2012) (Sabot, 2014b).

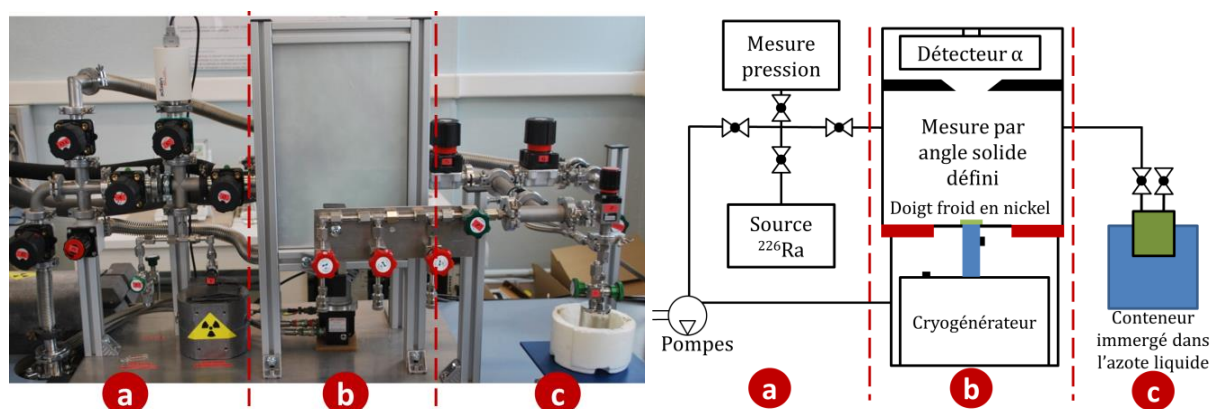


Figure 1-4 : Photographie du nouveau banc de mesure primaire de radon avec le schéma correspondant.

Cette installation entièrement sous vide secondaire, se divise en trois parties (cf. Figure 1-4) : (a) la production de radon, (b) la mesure du radon, (c) le transfert du radon.

1.1.2.1. Production de radon

La première partie correspond à la production de radon à l'aide d'une source de ^{226}Ra . Le ^{226}Ra a une période de 1 600 ans, assez longue pour créer des sources solides à longue durée de vie et produisant en continu le ^{222}Rn . Cette première partie de l'installation permet aussi le pompage sur l'ensemble du système (vide à 10^{-3} Pa).

1.1.2.2. Système de mesure

La deuxième partie correspond au dispositif de mesure. Un système cryogénique, dont la température est stabilisée à 80 K, permet de refroidir une tige de nickel soudée au centre d'un disque en acier inoxydable de 100 μm d'épaisseur. Le bord du disque en acier inoxydable est réchauffé à 293,15 K (cf. Figure 1-5).

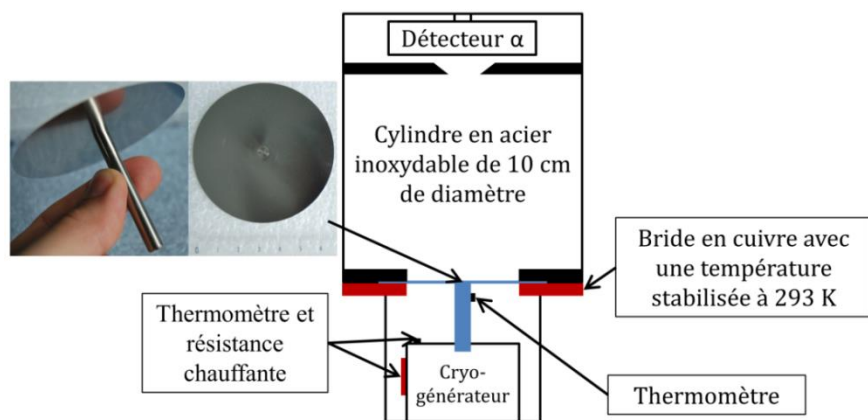


Figure 1-5 : Schéma de la chambre de mesure du radon avec le doigt froid.

Sachant que la pression de vapeur saturante du radon à une température de 100 K est négligeable, celui-ci va se condenser à la surface du doigt et former un disque de radon solide. Cette source plane est par la suite mesurée par spectrométrie alpha.

Le rendement de détection est obtenu à l'aide de la méthode par angle solide défini : un collimateur placé entre la source et le détecteur permet de créer un angle solide ayant pour valeur Ω_{eff} (Curtis, *et al.*, 1955) (cf. Figure 1-6),

$$\Omega_{eff} = \pi \frac{a^2}{z^2} \left(1 - \frac{3}{4} \frac{a^2 + b^2 + 2e^2}{z^2} + \dots \right). \quad (1.3)$$

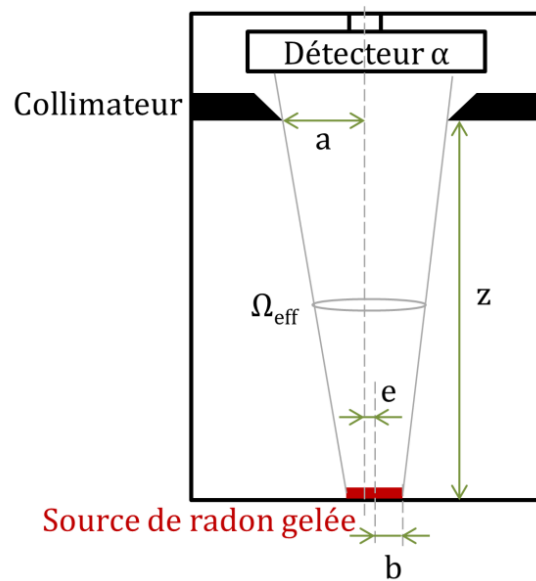


Figure 1-6 : Schéma de la méthode par angle solide défini avec : a le rayon du collimateur, b le rayon de la source, z la distance source-collimateur et e l'excentricité de la source.

Sachant que toutes les particules alpha atteignant le détecteur sont détectées (rendement intrinsèque égal à 1), le facteur de géométrie de l'angle défini G s'exprime ainsi par la relation :

$$G = \Omega_{eff} / 4\pi, \quad (1.4)$$

l'activité mesurée en ^{222}Rn est définie alors comme :

$$A = \frac{\text{taux de comptage pour le pic du } ^{222}\text{Rn}}{G}. \quad (1.5)$$

Le taux de comptage est évalué à l'aide du spectre alpha du radon et de ses descendants (cf. Figure 1-7).

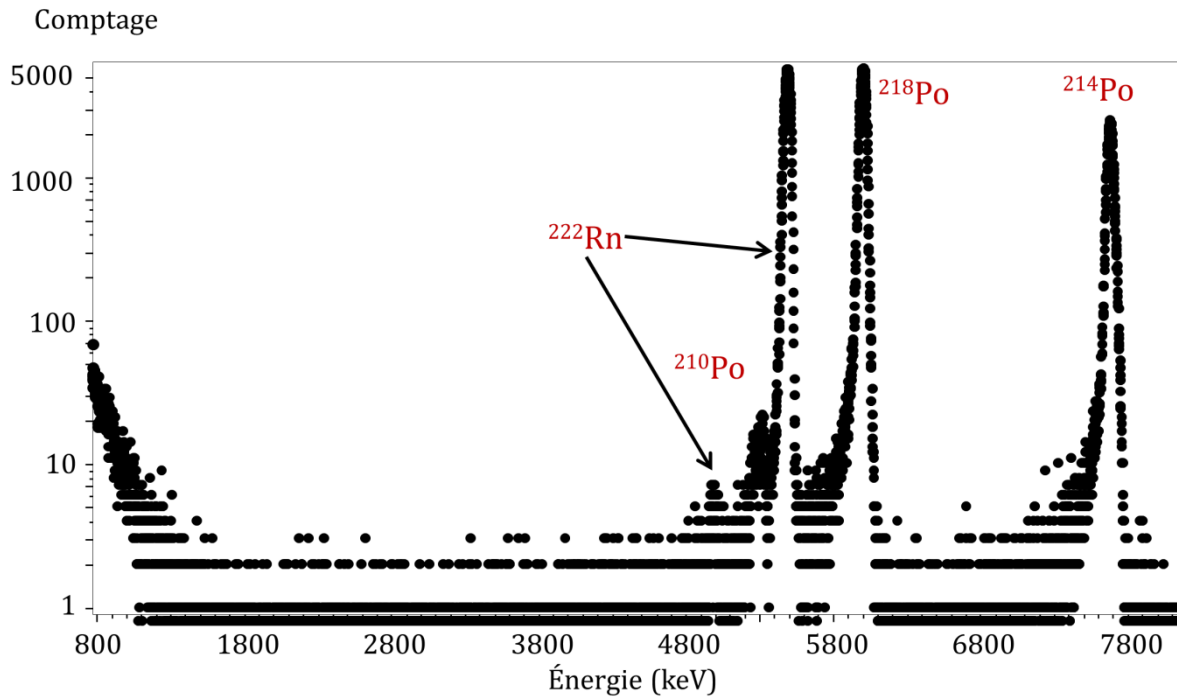


Figure 1-7: Spectre alpha du ^{222}Rn et de ses descendants obtenu avec la mesure primaire.

Le type de spectre obtenu avec ce système présente des largeurs à mi-hauteur de 18 à 23 keV. Le radon déposé et ses descendants solides forment une source plane peu épaisse, ce qui limite la perte d'énergie des alphas émis. Dans le cas présent, l'évaluation du comptage lié au radon peut se faire soit avec le pic de ^{222}Rn soit avec les pics des descendants (^{218}Po et ^{214}Po) en tenant compte des facteurs d'équilibre que nous avons décrits précédemment.

1.1.2.3. Transfert du radon

La troisième partie permet de transférer l'étalon de ^{222}Rn vers un contenant : la source de radon solide est réchauffée à 300 K et le radon gazeux migre vers un contenant baignant dans l'azote liquide. Une fois le contenant isolé, une deuxième mesure dans l'angle solide défini permet de mesurer la quantité de ^{222}Rn non transféré dans le contenant. Cette deuxième mesure est aussi utilisée pour soustraire le mouvement propre de l'ensemble de mesure. Ce mouvement propre est lié à une contamination en ^{210}Po au cours du temps, visible sur la Figure 1-7. Après trois ans de fonctionnement, cette contamination est de l'ordre de 50 Bq à la surface du doigt froid.

1.1.2.4. Calcul de l'activité de l'étalon transféré et bilan d'incertitudes de la mesure.

La mesure de l'activité de l'étalon de radon se fait donc en deux étapes avec la mesure du radon total et la mesure du reste de radon non transféré dans le contenant. L'activité en ^{222}Rn est ainsi calculée en utilisant la relation :

$$A = \frac{\frac{N_1 \times C_1 \times C_2}{t_1} - \frac{N_2 \times C_3 \times C_4}{t_2}}{G} = \frac{B_1 - B_2}{G} = \frac{B}{G'} \quad (1.6)$$

avec :

- ↪ N_1 : le nombre d'impulsions brutes de la mesure du radon ;
- ↪ N_2 : le nombre de d'impulsions brutes de la mesure après le transfert du radon (mouvement propre et reste de radon) ;
- ↪ t_1 : le temps de mesure du radon ;
- ↪ t_2 : le temps de mesure après le transfert du radon (mouvement propre et reste de radon) ;
- ↪ G : le facteur de géométrie de l'angle solide défini ;
- ↪ C_1 : la correction de la mesure par rapport à la date de référence ;
- ↪ C_2 : la correction due à la durée de la mesure du radon ;
- ↪ C_3 : la correction de la mesure après le transfert de radon par rapport à la date de référence ;
- ↪ C_4 : la correction due à la durée de la mesure après transfert de radon.

L'incertitude relative de A s'écrit par la relation :

$$\frac{u_A^2}{A^2} = \frac{u_G^2}{G^2} + \frac{u_B^2}{B^2} = \frac{u_G^2}{G^2} + \frac{u_{B_1}^2 + u_{B_2}^2}{B^2}, \quad (1.7)$$

avec :

$$\frac{u_{B_1}^2}{B_1^2} = \frac{u_{N_1}^2}{N_1^2} + \frac{u_{C_1}^2}{c_1^2} + \frac{u_{C_2}^2}{c_2^2} + \frac{u_{t_1}^2}{t_1^2} + (\text{Incertitude relative sur l'ajustement du pic})^2 + (\text{Incertitude relative due à la rétrodiffusion})^2, \quad (1.8)$$

et :

$$\frac{u_{B_2}^2}{B_2^2} = \frac{u_{N_2}^2}{N_2^2} + \frac{u_{C_3}^2}{C_3^2} + \frac{u_{C_4}^2}{C_4^2} + \frac{u_{t_2}^2}{t_2^2} + (\text{Incertitude relative sur l'ajustement du pic})^2 + (\text{Incertitude relative due à la rétrodiffusion})^2. \quad (1.9)$$

Les incertitudes sur l'ajustement du pic et sur la diffusion sont ajoutées dans les deux cas. Malgré le fait qu'elles soient corrélées, leur importance est négligeable et cette approximation n'aura pas d'impact sur le résultat final.

L'ensemble de ces étapes de mesure nécessite 4 h de manipulations pour la création d'un étalon, ce qui est bien inférieur à la période du radon. Ce dispositif permet la création d'étalons primaires de radon pour des activités de 100 Bq à 4 MBq mesurés avec une incertitude-type relative de 0,3 %. Le bilan des incertitudes ainsi évaluées tient compte de l'ensemble des paramètres de la mesure : les dimensions de l'angle solide, les variations de température (déformation de la tige de nickel et rayon de la source solide de radon), le comptage, le temps de mesure, la rétrodiffusion des particules alpha et l'incertitude sur la période du radon.

Du fait de sa période assez longue, l'étalon de radon ainsi transféré dans le contenant peut être envoyé aux autres laboratoires, comme l'IRSN, pour l'étalonnage des instruments de mesure du radon.

1.1.3. L'étalonnage des appareils de mesure de l'activité volumique du radon

Il existe plusieurs types d'appareils commerciaux pour la mesure de l'activité volumique de radon dans l'air. Ces appareils doivent être régulièrement étalonnés. En France, cet étalonnage est réalisé à l'IRSN dans l'installation BACCARA (Michielsen & Voisin, 2003).

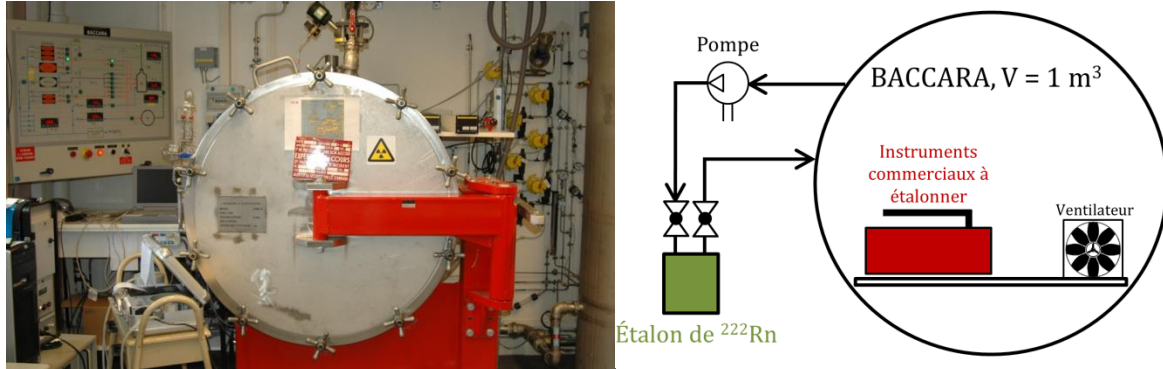


Figure 1-8 : Photographie de l'installation BACCARA avec le schéma correspondant.

BACCARA est un volume cylindrique en acier inoxydable permettant l'étalonnage des instruments de mesure du radon. Le principe de l'étalonnage consiste à enfermer les instruments dans un volume connu, à injecter à un temps t_0 un étalon primaire de radon et à étalonner les appareils en tenant compte de la décroissance radioactive du radon. Comme le montre la Figure 1-8, un ou plusieurs instruments sont placés à l'intérieur du volume étanche BACCARA. L'étalon de radon est mis en circulation dans ce volume à l'aide d'une pompe en cycle fermé, un ventilateur assurant l'homogénéité de l'activité volumique de radon.

L'activité volumique à l'instant t dans le volume V se calcule à l'aide de l'équation (1.10) :

$$A_{v \text{ } ^{222}\text{Rn}}(t) = \frac{A_{^{222}\text{Rn}}(t_0) \times \exp(-\lambda_{^{222}\text{Rn}} t)}{V}, \quad (1.10)$$

où $A_{v \text{ } ^{222}\text{Rn}}(t)$ est exprimé en Bq.m^{-3} . Certains instruments de mesure réalisent des mesures intégrées dans le temps. Dans ce cas, l'équation utilisée est :

$$A_{v \text{ } ^{222}\text{Rn}}(t) = \frac{1}{t_e} \times \frac{A_{^{222}\text{Rn}}(t_0)}{V} \times \frac{1 - \exp(-\lambda_{^{222}\text{Rn}} t_e)}{\lambda_{^{222}\text{Rn}}}, \quad (1.11)$$

où t_e représente le temps d'exposition de l'appareil.

Du fait de la décroissance du radon, les instruments commerciaux sont étalonnés à différentes gammes d'activité volumique, soit typiquement de 40 Bq.m^{-3} à $40\,000 \text{ Bq.m}^{-3}$ dans le cas de BACCARA (Michielsen, *et al.*, 1999). En négligeant l'incertitude sur la période et le temps, l'incertitude relative sur l'activité volumique en radon est exprimée par la relation (1.12) :

$$\frac{u(A_{v \text{ } ^{222}\text{Rn}}(t))}{A_{v \text{ } ^{222}\text{Rn}}(t)} = \sqrt{\frac{u^2(A_{^{222}\text{Rn}}(t_0))}{A_{^{222}\text{Rn}}^2(t_0)} + \frac{u^2(V)}{V^2}}, \quad (1.12)$$

soit une incertitude-type relative de l'ordre de 2 % sur l'activité volumique dans BACCARA.

La chaîne de traçabilité métrologique du radon est ainsi complète en France d'une part grâce à la collaboration du LNE-LNHB qui produit les étalons primaires et d'autre part l'IRSN qui étalonne les appareils à l'aide de BACCARA. Cependant, cette méthode ne prend pas en compte le thoron qui est un autre isotope du radon.

1.2. La chaîne de traçabilité métrologique du thoron (^{220}Rn)

Il n'existe pas à ce jour de chaîne de traçabilité métrologique de ^{220}Rn en France et, du fait de sa période très courte, il n'est pas possible d'utiliser celle de ^{222}Rn . Une méthode de référence doit être ainsi développée pour assurer la traçabilité métrologique des appareils de mesure de ^{220}Rn , ce qui constitue l'enjeu de cette thèse.

Tout comme le ^{222}Rn , la métrologie du ^{220}Rn implique de connaître l'ensemble de la chaîne de désintégration et ses moyens de production.

1.2.1. Le thoron : ^{220}Rn

Comme le ^{222}Rn , le ^{220}Rn est un gaz noble radioactif, inerte chimiquement. Il est issu de la chaîne de désintégration d'un des isotopes du thorium, le ^{232}Th (cf. Figure 1-9).

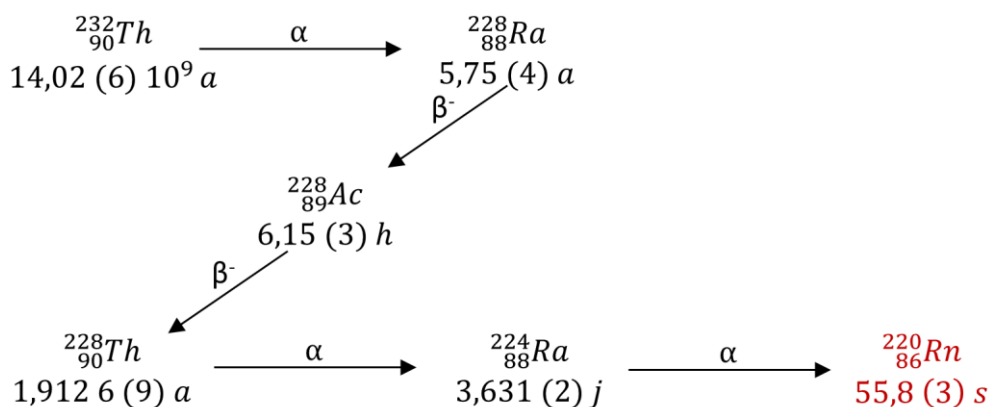


Figure 1-9 : Représentation de la chaîne du ^{232}Th menant au ^{220}Rn .

Le thoron est produit par la désintégration de ^{224}Ra qui, contrairement à son isotope, le ^{226}Ra , possède une période relativement courte. En laboratoire, la production de thoron est ainsi réalisée à l'aide de sources de ^{228}Th pures, le ^{228}Th possédant une période plus confortable d'environ 2 ans. La durée de vie pratique de telles sources est donc réduite à quelques années. À l'opposé, le ^{232}Th possède une période très longue de 14 milliards d'années, ce qui implique la manipulation de plusieurs kilogrammes de ^{232}Th pour produire une source de thoron conséquente en laboratoire. Il reste cependant utilisable dans le cas de sources très anciennes où l'équilibre avec le ^{228}Th est plus avancé.

La chaîne de ^{220}Rn est présentée en Figure 1-10 ; seules les émissions alpha et bêta principales sont présentées, une liste plus complète est disponible en annexe A.

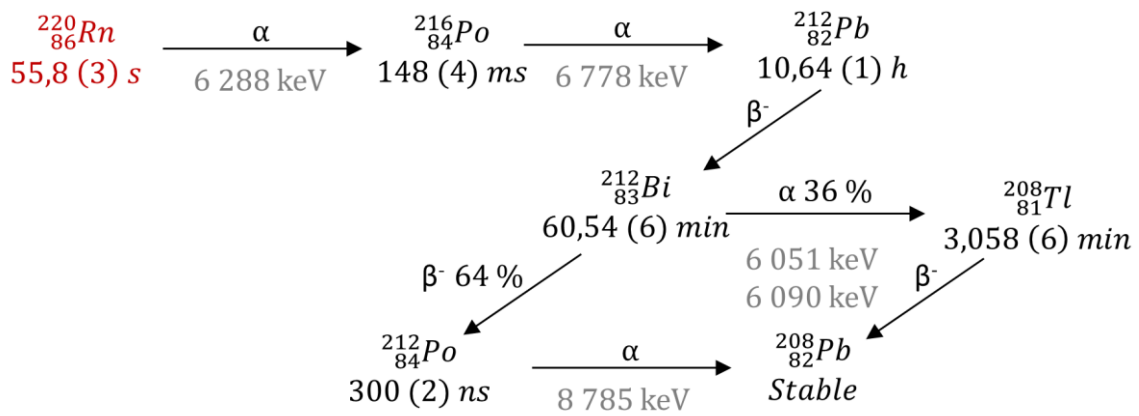


Figure 1-10 : Représentation de la chaîne du ^{220}Rn .

Le ^{220}Rn et ses descendants sont des radionucléides se désintégrant par transition alpha ou bêta ; les énergies alpha émises par le thoron et ses descendants sont bien distinctes les unes des autres. Dans le cas d'une géométrie idéale, telle que la source solide de radon dans l'angle solide défini, une spectrométrie alpha permettrait de bien identifier chacun des éléments. Cependant, contrairement au ^{222}Rn , la période du thoron est très courte (55,8 s) et il devient impossible d'utiliser cette méthode.

Les données de période de ^{220}Rn , de ^{216}Po (Bé, *et al.*, 2013) et l'équation (1.1) nous permettent de calculer l'évolution de l'activité du gaz et de son descendant au cours du temps dans un volume fermé. Les résultats sont présentés en Figure 1-11.

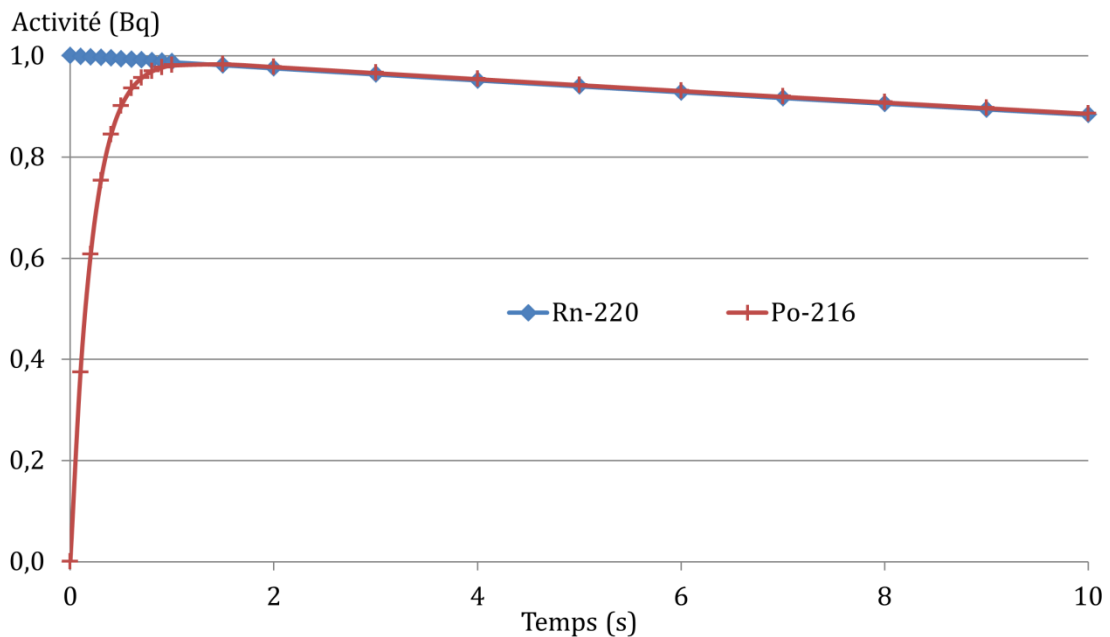


Figure 1-11 : Évolution de l'activité en fonction du temps du ^{220}Rn et de son premier descendant, le ^{216}Po , dans un volume fermé.

L'équilibre entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po apparaît après seulement 1 s. Par la suite, l'équilibre avec le ^{220}Rn est rompu par la présence de ^{212}Pb qui possède une période bien plus grande de 10,64 h (cf. Figure 1-12).

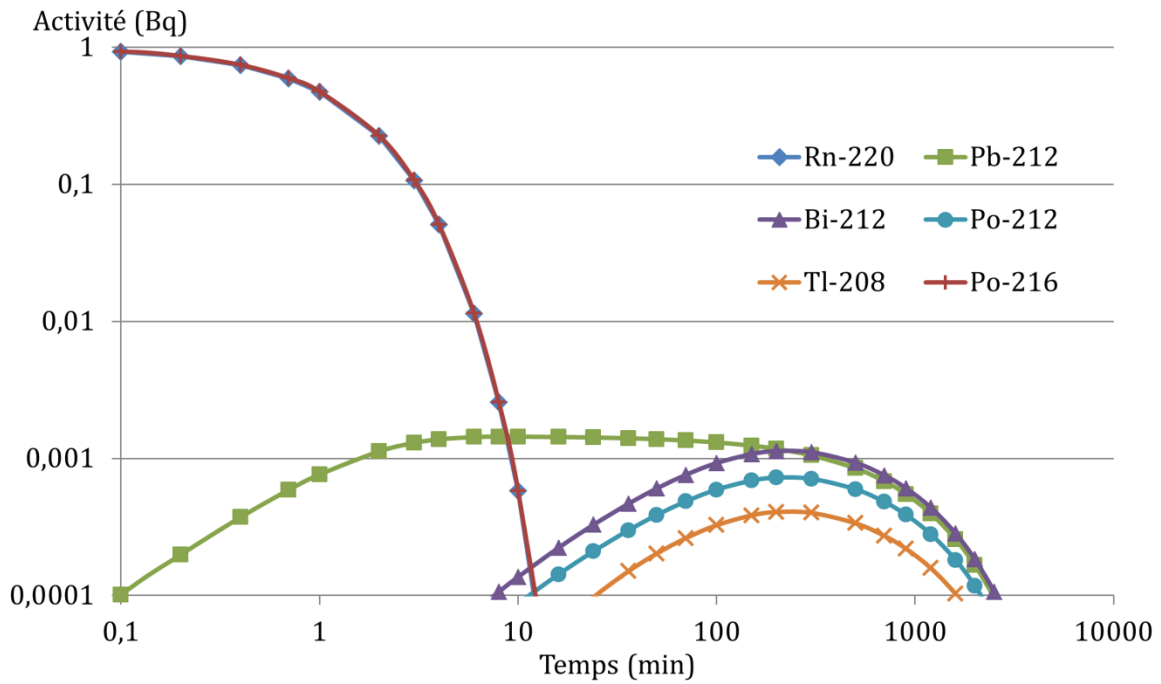


Figure 1-12 : Évolution de l'activité du ^{220}Rn et de ses descendants dans un volume fermé.

Le ^{212}Pb et ses descendants seront eux à l'équilibre après 400 minutes. Du fait de sa période très courte de 300 ns, le ^{212}Po sera en équilibre immédiat avec le ^{212}Bi alors que l'équilibre entre le ^{212}Bi et le ^{208}Tl est atteint après 20 min. Enfin notons que ces descendants restent présents après la disparition de ^{220}Rn : plus de quatre jours (10 périodes) de décroissance sont nécessaires pour que le ^{212}Pb et ses descendants disparaissent presque totalement. L'étalonnage d'appareils de mesure du ^{220}Rn doit se faire ainsi pour une atmosphère constante en ^{220}Rn .

Nous nous plaçons dans un cas où l'atmosphère en thoron est constante dans un volume fermé. Par exemple une source de ^{228}Th est placée dans un volume fermé, l'activité en thoron étant constante (la décroissance du thorium est considérée négligeable dans les calculs).

L'équilibre entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po est considéré immédiat et l'activité de chacun des éléments s'écrit :

$$A_{216\text{Po}}(t) = A_{220\text{Rn}}(t) = \text{constante.} \quad (1.13)$$

L'évolution du nombre d'atomes de ^{212}Pb descendant du ^{216}Po s'exprime par la relation :

$$dN_{212\text{Pb}} = N_{216\text{Po}}(t) \lambda_{216\text{Po}} dt - N_{212\text{Pb}}(t) \lambda_{212\text{Pb}} dt. \quad (1.14)$$

Avec $N_{216\text{Po}}(t) = \text{constante} = N_{216\text{Po}}$, l'équation (1.14) devient :

$$\frac{dN_{212\text{Pb}}(t)}{dt} + N_{212\text{Pb}}(t) \lambda_{212\text{Pb}} = N_{216\text{Po}} \lambda_{216\text{Po}}. \quad (1.15)$$

La solution de l'équation (1.15) est :

$$N_{212Pb}(t) = \frac{\lambda_{216Po} N_{216Po}}{\lambda_{212Pb}} (1 - e^{-\lambda_{212Pb}t}), \quad (1.16)$$

et l'activité en ^{212}Pb s'exprimera par la relation :

$$A_{212Pb}(t) = \lambda_{216Po} N_{216Po} (1 - e^{-\lambda_{212Pb}t}). \quad (1.17)$$

L'équation (1.18) exprime l'évolution du nombre d'atomes de ^{212}Bi en fonction du temps :

$$\begin{aligned} \frac{dN_{212Bi}(t)}{dt} + N_{212Bi}(t) \lambda_{212Bi} &= N_{212Pb}(t) \lambda_{212Pb}, \\ \frac{dN_{212Bi}(t)}{dt} + N_{212Bi}(t) \lambda_{212Bi} &= \lambda_{216Po} N_{216Po} (1 - e^{-\lambda_{212Pb}t}). \end{aligned} \quad (1.18)$$

Elle a pour solution :

$$\begin{aligned} A_{Tot\ 212Bi}(t) &= \lambda_{212Bi} \lambda_{216Po} N_{216Po} \left(\frac{1}{\lambda_{212Bi}} - \frac{e^{-\lambda_{212Pb}t}}{\lambda_{212Bi} - \lambda_{212Pb}} \right. \\ &\quad \left. + \frac{\lambda_{212Pb} e^{-\lambda_{212Bi}t}}{\lambda_{212Bi} (\lambda_{212Bi} - \lambda_{212Pb})} \right), \end{aligned} \quad (1.19)$$

où $A_{Tot\ 212Bi}$ représente l'activité totale en ^{212}Bi qui se désintègre suivant deux types d'émission, α (36 %) et β (64 %). Du fait de leur période, l'équilibre entre ^{212}Bi et ^{212}Po est immédiat, soit :

$$A_{212Po}(t) = 0,64 \times A_{Tot\ 212Bi}(t). \quad (1.20)$$

La fraction de l'activité de ^{212}Bi due aux transitions alpha ne représentera que 36 % de son activité totale soit :

$$A_{\alpha\ 212Bi}(t) = 0,36 \times A_{Tot\ 212Bi}(t). \quad (1.21)$$

Enfin la période du ^{208}Tl est de 3,058 min, ce qui est inférieur à la période du ^{212}Bi de 60,54 min. Ces deux éléments présentent un équilibre de régime (Lagoutine, 1978), pour un temps :

$$t \geq 7 \frac{T_{1/2} (^{212}Bi) T_{1/2} (^{208}Tl)}{T_{1/2} (^{212}Bi) - T_{1/2} (^{208}Tl)} = 22,54 \text{ min}, \quad (1.22)$$

l'activité en ^{208}Tl s'écrit :

$$A_{208Tl}(t) = A_{\alpha\ 212Bi}(t) \frac{T_{1/2} (^{212}Bi)}{T_{1/2} (^{212}Bi) - T_{1/2} (^{208}Tl)} = 1,053 \times A_{\alpha\ 212Bi}(t). \quad (1.23)$$

L'évolution de l'activité en ^{220}Rn et de ses descendants en fonction du temps pour une activité maintenue constante en ^{220}Rn est représentée en Figure 1-13.

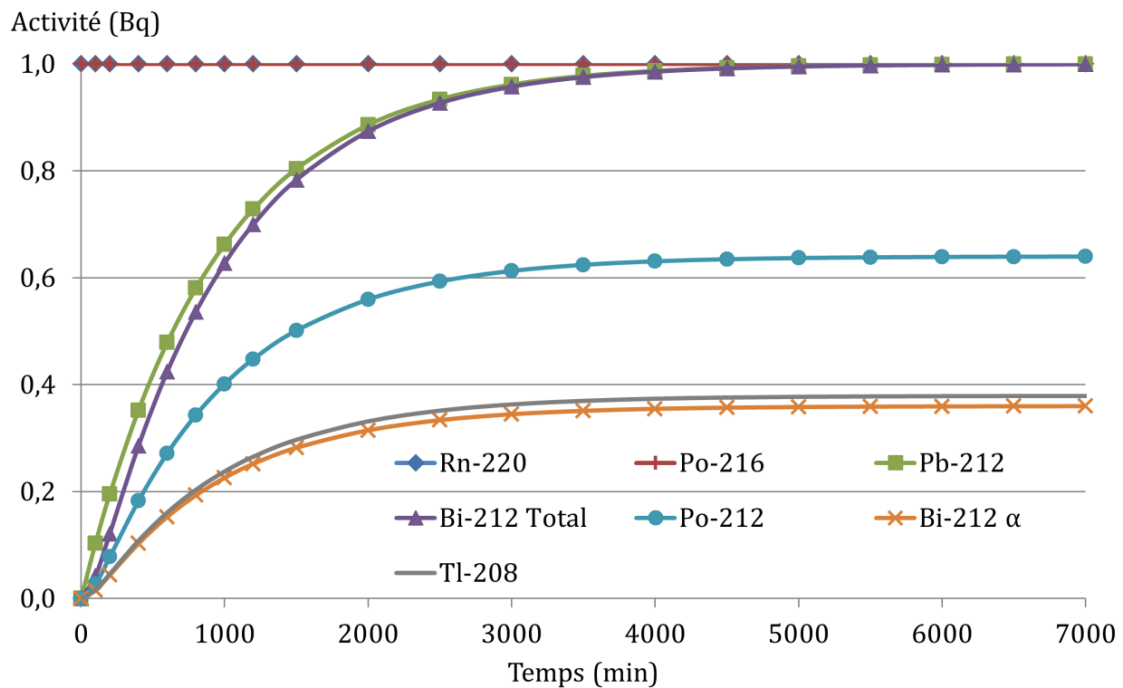


Figure 1-13 : Évolution de l'activité en ^{220}Rn et de ses descendants dans un volume fermé pour une activité maintenue constante en ^{220}Rn .

Après 6 000 minutes d'exposition à une atmosphère en thoron constante, soit environ 4 jours, le ^{220}Rn et les descendants sont à l'équilibre.

Ce type d'atmosphère avec une activité constante en ^{220}Rn est idéal pour l'étalonnage des instruments de mesure du ^{220}Rn . Il est cependant nécessaire de qualifier une telle activité volumique à l'aide d'une mesure de référence. Suivant le dispositif de mesure utilisé, les descendants peuvent être utilisés pour qualifier l'atmosphère en ^{220}Rn sachant qu'ils formeront un équilibre avec le gaz quatre jours après le début de son introduction dans le volume.

1.2.2. Les méthodes de mesure du thoron

Jusqu'à présent il existe un seul moyen de référence pour la mesure de thoron et l'étalonnage des instruments de mesure commerciaux. Celui-ci a été développé au Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB), l'homologue allemand du LNE-LNHB. D'autres études réalisées dans plusieurs laboratoires ont également permis de montrer la limite et la faisabilité de certaines méthodes.

L'objectif est d'étudier ces méthodes de mesure pour déterminer leurs limites et ainsi orienter la construction d'un nouvel étalon de référence au LNE-LNHB utilisable par l'IRSN.

1.2.2.1. Le premier dispositif du PTB permettant de créer une atmosphère de référence en thoron (Gargioni & Arnold, 2003)

Le dispositif mis en place consiste en une chambre de référence dont l'atmosphère en ^{220}Rn est produite par une source de ^{228}Th placée dans le volume. Cette source est réalisée par électrodéposition sur un disque de métal ; un ventilateur permet d'homogénéiser le ^{220}Rn dans

l'air. L'activité volumique en thoron est mesurée à l'aide d'une chambre d'ionisation à grille (MWIC⁷).

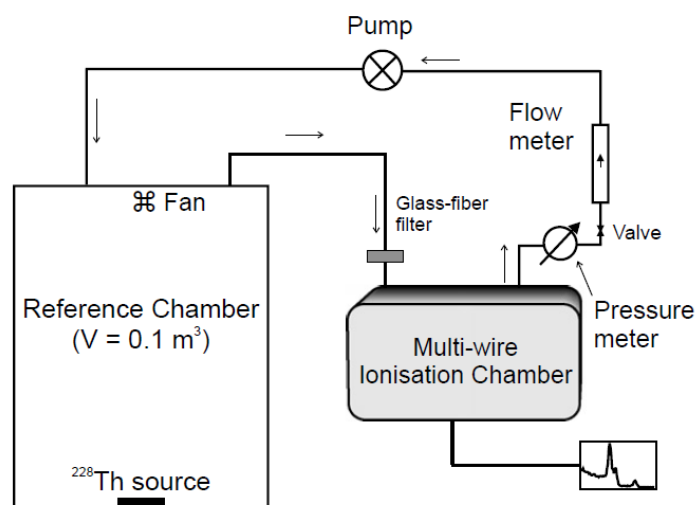


Figure 1-14 : Système de mesure de l'activité volumique en ^{220}Rn au PTB (Gargioni & Arnold, 2003)

Le ^{220}Rn est pompé dans la chambre de référence puis passe dans un filtre ce qui permet d'éliminer les descendants solides produits avant la mesure. Cette chambre permet de collecter les ions formés par les particules alpha émises, l'amplitude de chaque signal étant proportionnelle à l'énergie de la particule alpha émise ; la résolution d'un tel détecteur est de 300 keV pour des énergies entre 5 MeV et 8 MeV.

Les descendants produits à l'intérieur du détecteur restent fixés aux fils de la chambre. Alors que la distribution en radon est homogène dans le volume de mesure, dans le cas du thoron, si le débit n'est pas assez important, la distribution n'est pas homogène. L'auteur a défini expérimentalement un facteur correctif pour le calcul de l'activité volumique en ^{220}Rn à différents débits. Le débit optimum est atteint au-dessus de $7 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Le rendement de détection de la chambre à grille est établi à l'aide d'un étalon de ^{222}Rn . L'activité volumique en ^{220}Rn est déterminée à l'aide de l'équation (1.24).

$$A_{220\text{Rn}} = k_{\varepsilon} k_Q \left(\frac{N_{220\text{Rn}}}{t} - \frac{N_{bg}}{t} \right), \quad (1.24)$$

où k_{ε} représente le coefficient d'étalonnage du dispositif avec l'étalon de ^{222}Rn , N_{bg}/t le taux de comptage du mouvement propre, $N_{220\text{Rn}}/t$ le taux de comptage en ^{220}Rn et k_Q le facteur permettant de corriger la non-homogénéité de distribution du thoron dans la chambre MWIC.

L'activité volumique en ^{220}Rn est mesurée avec une incertitude-type relative de 3 %. Les deux composantes d'incertitude prépondérantes sont liées à l'étalonnage de la chambre en radon (provenant de l'incertitude sur l'activité de référence de ^{222}Rn) ainsi qu'au taux de comptage du ^{220}Rn . La faible activité en thoron entraîne un faible taux de comptage, ce qui augmente l'incertitude ; de plus, cette mesure peut être soumise à des fluctuations statistiques importantes.

⁷ MWIC : Multi-Wire Ionization Chamber

Enfin, dans une autre publication, les auteurs (Gargioni, *et al.*, 2005) mettent en avant la limite de la méthode due à la distribution non homogène du thoron dans la chambre de référence. En utilisant deux détecteurs alpha PIPS™, Passivated-Implanted Planar Silicon (Canberra Ind., 2012), disposés à différentes positions dans la chambre de référence, ils ont pu conclure que l'activité en thoron n'est pas homogène dans le volume et qu'elle est fortement dépendante de la position de l'instrument à étalonner. L'activité mesurée par la chambre MWIC peut alors ne pas correspondre à celle mesurée par l'instrument.

1.2.2.2. Le second dispositif du PTB permettant de créer une atmosphère de référence en thoron (Röttger, *et al.*, 2010)

Plus récemment, le PTB a créé une nouvelle chambre de référence permettant la production d'une atmosphère de ^{220}Rn pour l'étalonnage des instruments de mesure commerciaux. La méthode utilisée consiste en la création d'une atmosphère de référence en ^{220}Rn dans un volume. Pour ce faire, le ^{220}Rn produit par une source fine de ^{228}Th est transféré vers le volume de référence (cf. Figure 1-15).

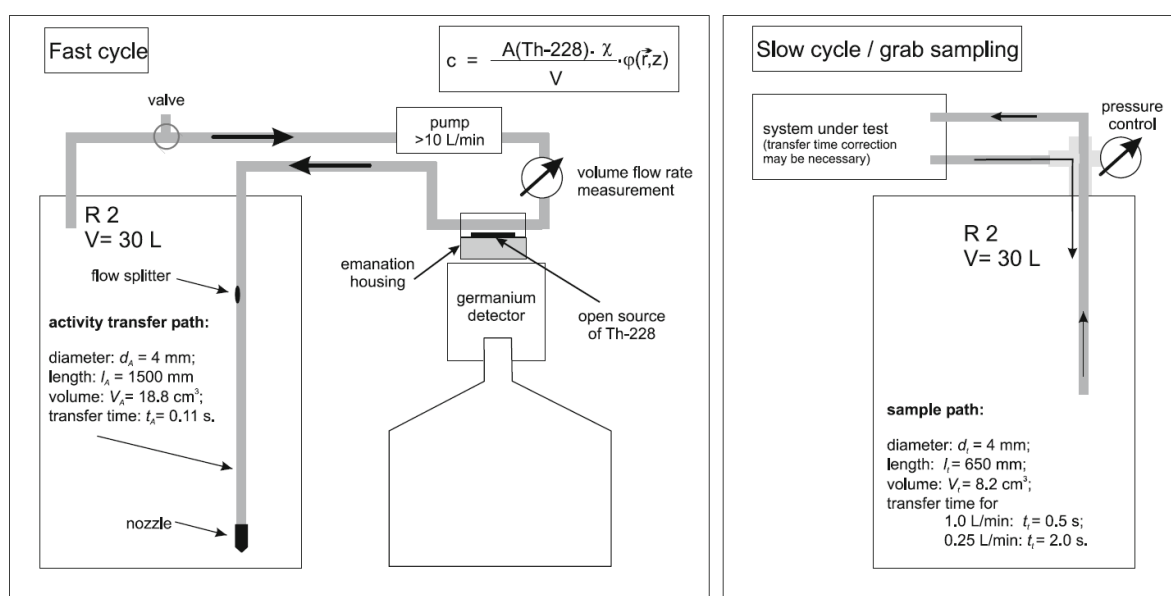


Figure 1-15 : Schéma du principe du second dispositif d'étalonnage en thoron du PTB. (Röttger, *et al.*, 2014)

La source très fine de ^{228}Th permettant de produire le ^{220}Rn est créée par électrodéposition de ^{228}Th sur une surface métallique. L'activité en thoron produite par la source est déterminée par une mesure par spectrométrie gamma de la source de thorium à l'aide d'un détecteur germanium.

Le volume d'émanation est très petit (< 4 mL) et le débit d'air à l'intérieur du volume est supérieur à 10 L.min⁻¹. Le transfert du thoron vers le volume étalon est ainsi très rapide. Afin d'homogénéiser au mieux la concentration en thoron dans le volume de référence, l'arrivée du mélange air-thoron est séparée en deux parties : la première avec un débit de 4 L.min⁻¹ à une certaine hauteur (non précisée) dans le volume, et la deuxième en bas du volume avec un débit de 7 L.min⁻¹. La vitesse du gaz au niveau de la deuxième sortie est augmentée à l'aide d'un bec composé de 10 trous de 1 mm de diamètre. Les auteurs précisent que cette modification permet d'obtenir une distribution homogène en hauteur dans le volume.

L'activité volumique en thoron est déterminée à l'aide de la formule suivante :

$$C_{Tn} = \frac{A_{228Th} \chi}{V} \varphi(\vec{r}, z), \quad (1.25)$$

où $\varphi(\vec{r}, z)$ représente la distribution de l'activité dans le volume V en m^3 , avec $\varphi(\vec{r}, z) = 1$ dans un cas idéal. La distribution est calculée dans tout le volume à l'aide de multiples mesures réalisées avec un petit instrument de mesure relative du thoron. Le coefficient χ représente le coefficient d'émanation de la source qui est évalué par la mesure par spectrométrie gamma en utilisant l'équation (1.26).

$$\chi = \frac{A_{220Rn}}{A_{228Th}} = 1 - \frac{R_2 A_{212Pb}}{R_1 A_{224Ra}}, \quad (1.26)$$

R_1 et R_2 représentent les facteurs de correction dus à l'activité des atomes de recul, respectivement de ^{224}Ra et de ^{212}Pb , déposés en dehors de la source plane. Les auteurs utilisent deux approches pour calculer le coefficient χ , la première par la méthode classique :

$$\chi = 1 - \frac{\dot{N}_m(^{212}Pb) - \dot{N}_{bg2}(^{212}Pb)}{\dot{N}_m(^{224}Ra) - \dot{N}_{bg2}(^{224}Ra)} \times \frac{p_\gamma(^{224}Ra)}{p_\gamma(^{212}Pb)}, \quad (1.27)$$

où \dot{N}_m correspond au taux de comptage de la mesure et \dot{N}_{bg2} au taux de comptage du mouvement propre. Avec cette approche, l'incertitude sur la valeur est principalement liée à l'incertitude sur la valeur d'intensité des pics gamma (p_γ). Avec la source de ^{228}Th utilisée, le coefficient a pour valeur $\chi = 0,405$ (14)⁸.

La deuxième méthode utilisant la formule (1.28) permet de ne pas utiliser les données d'intensité des pics gamma :

$$\chi = 1 - \left(\frac{R_2 \dot{N}_k(^{224}Ra) - \dot{N}_{bg1}(^{224}Ra)}{\dot{N}_k(^{212}Pb) - \dot{N}_{bg1}(^{212}Pb)} \right) / \left(\frac{R_1 \dot{N}_m(^{224}Ra) - \dot{N}_{bg2}(^{224}Ra)}{\dot{N}_m(^{212}Pb) - \dot{N}_{bg2}(^{212}Pb)} \right), \quad (1.28)$$

où \dot{N}_k représente le taux de comptage de l'étalonnage du dispositif avec une source de ^{228}Th scellée et \dot{N}_{bg1} le taux de comptage du mouvement propre pour la mesure de la source scellée. Avec la source de ^{228}Th utilisée, le coefficient a pour valeur $\chi = 0,4105$ (16).

L'activité volumique en ^{220}Rn est ainsi mesurée avec une incertitude-type relative de 3 %. La composante d'incertitude la plus grande sur l'activité volumique dans le système est liée à l'homogénéité du thoron dans le volume. Cette composante a été cependant grandement diminuée avec l'ajout des deux sorties et du bec à la base de la chambre.

Contrairement à la première méthode développée au PTB, celle-ci n'est pas fondée sur une mesure directe du ^{220}Rn mais sur l'évaluation du taux d'émanation d'une source de ^{228}Th par la mesure en activité du ^{224}Ra et du ^{212}Pb . Cette mesure permet de déduire l'activité en ^{220}Rn produit par la source en admettant que tout le ^{220}Rn émis par la désintégration de ^{224}Ra est transféré vers le volume de référence. Elle est aujourd'hui utilisée pour l'étalonnage

⁸ La valeur (14) représente l'incertitude-type absolue sur la valeur de χ et s'applique aux derniers chiffres de la valeur. Elle correspond à la notation $\chi = 0,405 \pm 0,014$ ($k=1$) (JCGM, 2008a). Cette notation est appliquée dans l'ensemble du document.

d'instruments de mesure de l'activité volumique du thoron dans l'air au PTB (Röttger, *et al.*, 2014).

1.2.2.3. Mesure en ligne de ^{220}Rn avec une fiole de Lucas

La fiole de LucasTM consiste en un volume recouvert à l'intérieur par une fine couche scintillante de ZnS(Ag), dans lequel il est possible de faire circuler un gaz à l'aide de deux connecteurs entrée et sortie. Les particules alpha interagissant avec cette couche scintillante entraînent la production de lumière qui par la suite est détectée par un photomultiplicateur placé sur la face transparente de la fiole.

Une première étude (Tokonami, *et al.*, 2002) a mis en évidence que l'utilisation d'une telle fiole permet le suivi de l'activité volumique d'une atmosphère en ^{220}Rn dès lors qu'il n'y a pas présence de ^{222}Rn . Par la suite cette méthode a été appliquée pour la mesure en continu d'une atmosphère de ^{220}Rn par différents laboratoires.

Cette méthode de mesure a été comparée avec une mesure par double filtre et l'estimation du ^{220}Rn produit par une source de ^{228}Th (Eappen, *et al.*, 2007). Cependant l'absence de bilan d'incertitudes sur les mesures rend la comparaison difficile.

Cette méthode présente cependant plusieurs inconvénients que les auteurs précisent dans leurs documents. En effet, la limite de détection de l'appareil reste plus élevée que les concentrations atmosphériques en ^{220}Rn typiques trouvées dans l'environnement. De plus, il n'est pas possible de différencier le ^{222}Rn du ^{220}Rn lors d'une mesure. Enfin l'évaluation du rendement de détection d'un tel dispositif ne peut être faite que par calcul Monte-Carlo mais est réalisée en tenant en compte de beaucoup d'approximations :

- ↪ distribution homogène de ^{220}Rn dans le volume de la fiole ;
- ↪ dépôt des descendants immédiat après leur création dans le volume de mesure ;
- ↪ distribution volumique homogène de ^{216}Po du fait de sa courte période ;
- ↪ détection de toutes les particules alpha atteignant le scintillateur.

Ces résultats peuvent aussi dépendre du code de calcul utilisé car le rendement de détection sera ici très dépendant du parcours des alphas dans l'air et donc du calcul de la perte d'énergie réalisé par le code. Une étude réalisée à l'IRSN (Boyault & Michielsen, 2008) avec le code de calcul Monte-Carlo MCNPX 2.5 (Pelowitz, 2005) présente les résultats obtenus en tenant compte des mêmes approximations pour deux types de fioles de Lucas.

Tableau 1-1 : Résultats des efficacités de détection calculées pour la fiole de Lucas modèle 300A (Pylon Electronics, 2008).

Radionucléide	^{222}Rn	^{218}Po	^{214}Po	^{220}Rn	^{216}Po
(Boyault & Michielsen, 2008)	0,684	0,724	0,854	0,781	0,830
(Tokonami, <i>et al.</i> , 2002)	0,637	0,742	0,864	0,736	0,780

NOTE : Les incertitudes associées aux résultats ne sont pas présentées par les auteurs.

Ces résultats présentent un écart de 7 % qui est très important. Ceci démontre la difficulté de la mise en place d'un tel modèle Monte-Carlo. Les résultats dépendront du modèle utilisé par le code et peuvent énormément varier ; il devient difficile de choisir quel modèle est le plus approprié pour le cas présent.

La limite la plus importante de cette méthode est que l'inhomogénéité de la distribution du thoron dans le volume n'est pas prise en compte. En effet, compte tenu du volume de telles fioles et de la position de l'entrée et de la sortie du gaz (toutes deux l'une à côté de l'autre), la distribution du thoron dans le volume sera très dépendante du débit de circulation. Elle peut ainsi induire un biais dans les mesures.

1.2.2.4. Méthode de mesure par spectrométrie gamma pour l'étalonnage des instruments de mesure du thoron

Les descendants de ^{220}Rn et de ^{222}Rn produisent plusieurs rayonnements gamma dont les principales énergies d'émission sont comprises entre 200 keV et 2 600 keV (cf. Annexe A). Le document rédigé par Michielsen et Mitifiot (Michielsen & Mitifiot, 2010) présente une approche de mesure de ^{220}Rn par spectrométrie gamma de ses descendants.

Les mesures sont réalisées avec un détecteur germanium de type GC3018 de Canberra (Canberra Ind., 2013) sur des prélèvements d'une atmosphère de ^{220}Rn à l'aide d'un volume en acier inoxydable de type SG500 (cf. Figure 1-16).

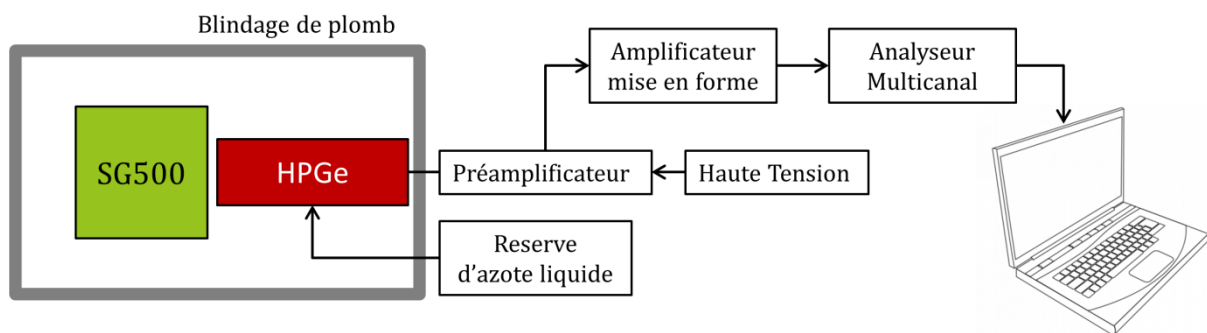


Figure 1-16 : Schéma du principe de mesure du volume SG500 par spectrométrie gamma.

L'étalonnage du système complet de mesure est réalisé à l'aide d'un étalon de référence de ^{222}Rn transféré dans un volume SG500. Cet étalon permet de tracer la courbe de rendement du dispositif en fonction de l'énergie d'émission gamma. Par la suite, différentes atmosphères en ^{222}Rn sont produites dans BACCARA puis un échantillonnage est réalisé par circulation dans le volume SG500 ou par dépression de ce volume. Ces volumes SG500 sont mesurés par spectrométrie gamma puis la courbe de rendement est utilisée pour estimer l'activité collectée dans le volume.

Les auteurs montrent que, dans le cas d'un transfert de radon par dépression du SG500, les résultats de transfert sont compatibles avec les valeurs théoriques de l'activité en ^{222}Rn prélevée en tenant compte de leurs incertitudes associées. La seule limite mise en avant est, dans le cas où l'activité est faible, l'importance du mouvement propre qui perturbe trop la mesure. Enfin les mesures pour un transfert par circulation de ^{222}Rn dans le volume ne sont pas compatibles avec les résultats théoriques. Les valeurs expérimentales sont 25 % plus faibles que la valeur théorique alors que l'incertitude relative élargie sur l'activité mesurée est de 3 % ($k = 2$).

L'expérience a par la suite été poursuivie sur une atmosphère en ^{220}Rn . Le transfert de l'atmosphère en ^{220}Rn est réalisé dans le SG500 en dépression à partir d'une source de ^{228}Th . La mesure par spectrométrie gamma est ainsi utilisée pour évaluer l'activité en ^{220}Rn en utilisant la courbe de rendement déterminée avec l'étalon de ^{222}Rn . Les résultats sont comparés aux valeurs théoriques de l'activité en ^{220}Rn (cf. Tableau 1-2).

Tableau 1-2 : Résultats expérimentaux avec leur incertitude-type associée pour des prélèvements d'atmosphère en ^{220}Rn .

Rendement de détection	Activité expérimentale ^{212}Pb (Bq)	Activité en ^{220}Rn (kBq)	Activité théorique ^{220}Rn (Bq)
2,19 %	8,2 (3)	17,5 (9)	20 280
2,19 %	10,6 (6)	16,6 (10)	20 190
2,19 %	7,9 (5)	8,6 (6)	14 950

Les résultats ainsi obtenus ne sont pas compatibles car les activités volumiques de ^{220}Rn mesurées représentent 58 % à 86 % des valeurs calculées. La valeur théorique en ^{220}Rn est évaluée en supposant que le taux d'émanation de la source de ^{228}Th est de 100 %, ce qui n'est pas le cas, cette approximation entraîne donc un biais des résultats. En outre, l'écart entre les résultats n'est pas constant pour chacune des expériences, ce qui montre que d'autres paramètres influencent la mesure.

Les auteurs précisent que le rendement de détection d'un tel dispositif reste beaucoup plus faible que celui d'une mesure alpha. La limite de détection est beaucoup plus haute, le mouvement propre pouvant être élevé et perturber fortement la mesure.

1.3. Discussion et conclusion

Cette première partie nous a permis d'identifier les propriétés du gaz, ^{220}Rn , et de ses descendants ainsi que son isotope le ^{222}Rn . Nous avons vu que ces deux radionucléides sont des gaz inertes chimiquement tous deux émetteurs alpha. Ils diffèrent par leur période, respectivement de 55,8 s et 3,823 2 j.

Le ^{222}Rn , possédant une chaîne de traçabilité métrologique bien établie, est le candidat parfait pour la validation d'une méthode de mesure de ^{220}Rn . Il a été utilisé pour plusieurs méthodes de mesure pour valider des calculs de rendement et tout particulièrement dans le cas du premier étalon de référence de ^{220}Rn du PTB (Gargioni, *et al.*, 2003). Bien que leur comportement dans un milieu soit le même, la période très courte du thoron entraîne des problèmes d'homogénéité dans l'air. En effet, sur l'ensemble des expériences réalisées et précitées, l'homogénéité du thoron n'est pas possible ou bien doit être corrigée. Il est nécessaire de tenir compte de cette problématique dans l'établissement d'une méthode de mesure de référence. Notons que dans un grand volume, un débit très important sera nécessaire pour obtenir une distribution homogène du thoron ; les petits volumes seront donc plus efficaces.

Les deux gaz sont émetteurs de rayonnements alpha ; une spectrométrie à l'aide d'un détecteur semi-conducteur à base de silicium permet de les mesurer. L'avantage de ce type de spectrométrie est qu'il permet aussi de mesurer une partie des descendants qui peuvent ainsi contribuer à l'évaluation de la concentration en ^{220}Rn dans l'air. La piste par spectrométrie gamma est à l'opposé moins adaptée pour la mesure du gaz du fait de la faible intensité des émissions gamma. Une approche de mesure des descendants par spectrométrie gamma a été étudiée (Michielsen & Mitifiot, 2010) mais le rendement de détection est beaucoup plus faible que celui de la mesure par spectrométrie alpha, ce qui rend la mesure d'activité de référence trop complexe (temps de mesure long, grandes fluctuations statistiques).

La seule méthode primaire actuelle consiste en une mesure par spectrométrie gamma d'une source de ^{228}Th ; elle repose cependant sur l'hypothèse que tout le ^{220}Rn émis par la

désintégration de ^{224}Ra est transféré vers le volume de référence. Elle est aussi très dépendante de l'homogénéité du thoron dans la chambre de référence où le dispositif de mesure à étalonner sera placé. Il s'avère donc très utile de développer une méthode de mesure basée sur un principe différent qui permettra de confronter les résultats lors d'une comparaison. Une telle comparaison permettra soit de valider mutuellement les deux méthodes, soit de mettre en évidence des biais.

Notre travail consiste donc à développer une méthode de mesure de référence pour le ^{220}Rn qui repose sur une spectrométrie alpha qui semble être le principe de mesure le plus efficace. L'objectif sera ainsi de produire une atmosphère en ^{220}Rn dans BACCARA à l'aide d'une circulation d'air constante sur une source de ^{228}Th . Le dispositif permettra de mesurer l'activité volumique en ^{220}Rn en un point de prélèvement à l'intérieur de BACCARA. L'atmosphère en ^{220}Rn circulera à l'intérieur d'un volume de mesure disposant d'un détecteur alpha (cf. Figure 1-17). Le rendement de détection du dispositif sera calculé par méthode de Monte-Carlo.

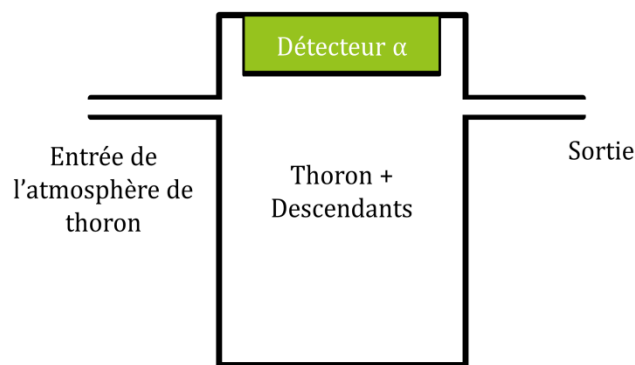


Figure 1-17 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha de ^{220}Rn .

Il est clairement identifié que dans un tel dispositif de mesure, l'homogénéité du ^{220}Rn sera un problème critique. Il est ainsi préférable de privilégier un petit volume de mesure et d'optimiser au mieux le débit de circulation de l'atmosphère en ^{220}Rn pour que sa distribution soit homogène dans le volume de mesure.

Le transfert d'un étalon de ^{222}Rn permettra la validation du système qui, contrairement au ^{220}Rn , sera distribué de façon homogène dans le volume de mesure. Un tel système permettra aussi de mesurer les descendants du ^{220}Rn qui eux, sont des aérosols. Leur comportement dans le volume étant totalement différent d'un gaz, le rendement de détection lié aux descendants sera totalement différent. Nous devons ainsi comprendre les phénomènes de transport des aérosols pour optimiser les caractéristiques du dispositif de mesure.

Chapitre 2. Transport des aérosols radioactifs chargés appliqué aux descendants du radon et du thoron

Contrairement au gaz, inerte chimiquement, les descendants du radon et du thoron peuvent interagir avec d'autres molécules présentes dans l'air et ainsi former des agglomérats de particules (clusters). Les phénomènes régissant le comportement physique de ces agglomérats sont ceux de la physique des aérosols. Un aérosol consiste en une suspension de particules solides ou liquides dans un milieu gazeux (Renoux & Boulaud, 1998).

Les descendants émetteurs de rayonnements alpha ont un comportement bien différent du gaz, et par conséquent leur rendement de détection dans un volume de mesure est différent. L'objectif de ce chapitre est de comprendre les phénomènes régissant le transport des aérosols. Nous étudierons le transport lié aux descendants du radon et du thoron par calcul analytique, ce qui nous permettra d'identifier les points importants pour la mesure du gaz et de ses descendants.

Enfin nous discuterons de la charge électrique des descendants du radon et du thoron. Après avoir synthétisé l'ensemble des résultats expérimentaux sur le pourcentage de descendants chargés, nous étudierons les phénomènes intervenant dans leur neutralisation. Cette étude nous permettra ainsi de définir les conditions expérimentales les plus adaptées à la mesure du radon, du thoron et de leurs descendants.

2.1. Taille des descendants mesurés

Dans le cas des descendants des gaz ^{222}Rn et ^{220}Rn , ces aérosols sont séparés en deux familles. La première est appelée la « fraction libre », elle correspond aux descendants qui viennent de se former après la désintégration du radon et qui peuvent former de petits agglomérats de particules appelés « clusters ». Par la suite ces clusters peuvent se fixer sur d'autres aérosols présents dans l'environnement et ainsi former la « fraction attachée » des descendants des gaz ^{222}Rn et ^{220}Rn .

Nous étudierons seulement la fraction libre des descendants, ce qui correspond à ceux créés par le radon ou le thoron dans notre dispositif de mesure. La mise en place d'un filtre de Très Haute Efficacité (THE) à l'entrée du volume de mesure nous permet de retenir les aérosols atmosphériques naturellement présents dans l'air, d'éliminer tous les descendants produits avant l'entrée du volume de mesure, et ainsi de laisser passer uniquement le gaz (cf. Figure 2-1).

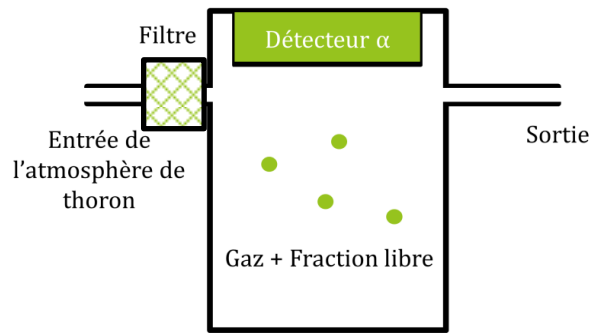


Figure 2-1 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha du ^{220}Rn avec filtration.

Avec un tel dispositif les descendants mesurés correspondent bien à ceux produits dans le volume. Dans nos conditions de mesure, le diamètre de la fraction libre des descendants est de l'ordre du nanomètre (Malet, 1997). Dans la suite du document, les calculs seront réalisés pour des particules de forme sphérique de 1 ou 2 nm de diamètre.

2.2. Le transport des aérosols nanométriques

2.2.1. Nombre de Knudsen

Le nombre de Knudsen permet de caractériser le domaine correspondant au type d'aérosol étudié. Il se calcule par la relation :

$$K_n = \frac{2\lambda_g}{d_p}, \quad (2.1)$$

avec λ_g le libre parcours moyen du gaz porteur et d_p le diamètre des particules d'aérosol. Ce facteur est présenté en Figure 2-2, en considérant que les particules sont sphériques.

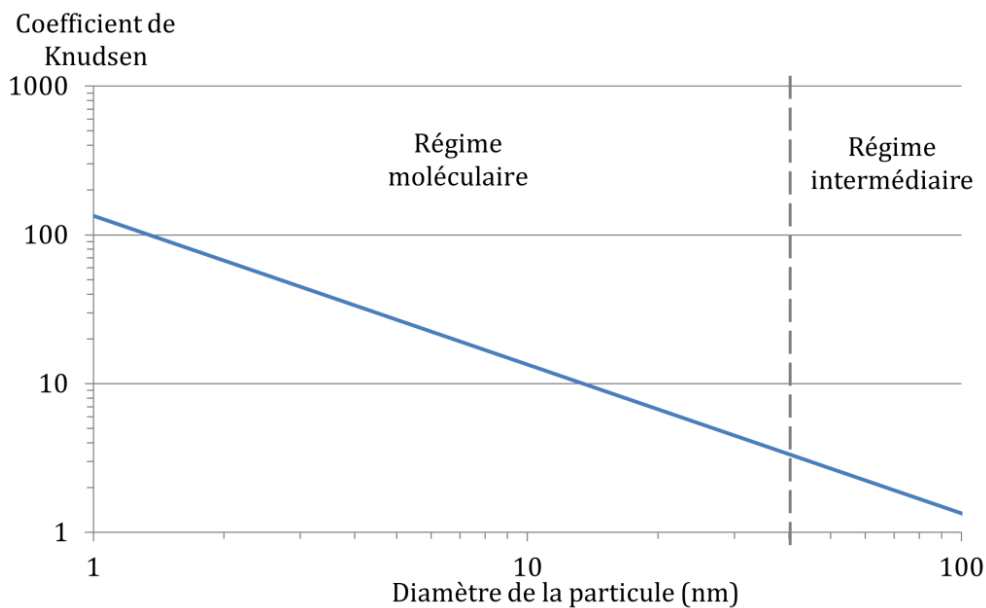


Figure 2-2 : Évolution du coefficient de Knudsen pour différentes tailles de particules dans l'air à 23 °C et 1 013 hPa.

La valeur du coefficient de Knudsen permet d'identifier le régime du domaine :

- ↪ lorsque $K_n \ll 1$: domaine continu ;
- ↪ lorsque $K_n \approx 1$: domaine intermédiaire ;
- ↪ lorsque $K_n \gg 1$: domaine moléculaire.

Dans le cas de la fraction libre des descendants du radon, nous sommes donc dans le domaine moléculaire.

2.2.2. Diffusion brownienne, diffusion des petits ions

Dans le cas d'une particule neutre, le coefficient de diffusion brownienne D dépend du diamètre de la particule d_p et du coefficient de Cunningham C_u , elle s'exprime par la relation (Bricard, 1977) :

$$D = \frac{k_B T C_u}{3 \pi \eta d_p}, \quad (2.2)$$

où k_B représente la constante de Boltzmann, T la température, η la viscosité dynamique du gaz porteur. La valeur du facteur de Cunningham dépend du nombre de Knudsen, c'est-à-dire du diamètre de la particule et du libre parcours du gaz porteur. Il s'exprime par la relation :

$$C_u(d_p) = 1 + K_n \left(a + b \exp\left(-\frac{c}{K_n}\right) \right), \quad (2.3)$$

où a , b et c représentent des constantes déterminées expérimentalement. Pour l'air $a = 1,165$; $b = 0,483$ et $c = 0,997$ (Kim, *et al.*, 2005a). Pour les aérosols ayant une taille inférieure à 2 nm, le diamètre de la particule est corrigé par la relation (Ramamurthi, 1989) :

$$d_p^* = d_p \left(1 + 3 e^{-d_p \cdot 2,2 \cdot 10^9} \right). \quad (2.4)$$

Cette correction est appliquée au calcul du facteur de Cunningham $C_u(d_p^*)$. Le coefficient de diffusion dans le cas des particules de diamètre inférieur à 2 nm s'exprime par la relation :

$$D = \frac{k_B T C_u(d_p^*)}{3 \pi \eta d_p}. \quad (2.5)$$

Dans le cas d'un aérosol chargé électriquement (une seule charge élémentaire), le coefficient de diffusion n'est pas le même. Selon Malet (1997), il s'exprime par la relation (2.6) de Chapman *et al.* (1956).

$$D_c = \frac{0,815 V_{rms} \sqrt{\frac{M+m}{M}}}{3 \pi s^2 C_{air} \left[1 + \frac{0,402 e^2 r_{air}^3}{4 s^2 k_B T} \right]}, \quad (2.6)$$

avec :

- ↪ D_c le coefficient de diffusion des particules nanométriques chargées exprimé en $m^2 \cdot s^{-1}$;
- ↪ v_{rms} la valeur quadratique moyenne de la vitesse des molécules de l'air, soit $5,02 \cdot 10^2 m \cdot s^{-1}$ (à 1 013 hPa et 296,15 K) ;

- ↪ M la masse molaire du cluster (choisie à $208,9824 \text{ g.mol}^{-1}$ ce qui correspond au premier descendant du radon ou du thoron, le polonium) ;
- ↪ m la masse molaire de l'air sec ($28,9 \text{ g.mol}^{-1}$) ;
- ↪ C_{air} la concentration en molécules d'air ($2,51 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, aux conditions normales de température et de pression) ;
- ↪ r_{air} le rayon de collision d'une molécule d'air ($0,185 \text{ nm}$) ;
- ↪ e la charge élémentaire ;
- ↪ s la somme $d_p + d_{air}$;
- ↪ k_B la constante de Boltzmann.

Dans le cas du ^{218}Po dans l'air sec, la relation (2.6) peut alors s'écrire (Malet, 1997) :

$$D_c = \frac{a}{s^2 \left[1 + \frac{b}{s^2}\right]}, \quad (2.7)$$

avec $a = 1,8406 \cdot 10^{-24}$ et $b = 4,0288 \cdot 10^{-48}$ en utilisant les unités du système international.

L'air est composé à 78 % de molécules de diazote de diamètre $0,315 \text{ nm}$ et à 21 % de molécules de dioxygène de diamètre $0,292 \text{ nm}$. Le diamètre moyen des molécules constitutives de l'air est ainsi d'environ $0,3 \text{ nm}$. Pour un diamètre de particule de ^{218}Po de 1 nm et possédant une unique charge, le coefficient de diffusion est de $1,09 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

J. Malet précise qu'il existe d'autres équations (Tammert, 1995) utilisant des concepts de diamètre massique et de rayon de collision. Cependant, cette relation utilise des paramètres qui sont mal définis. Dans notre cas, il est plus intéressant d'utiliser l'équation (2.7) qui nous permet d'exprimer le coefficient de diffusion d'une particule sphérique chargée en fonction de son diamètre et ainsi de le comparer avec celui d'une particule sphérique neutre utilisant la relation (2.5) (cf. Figure 2-3).

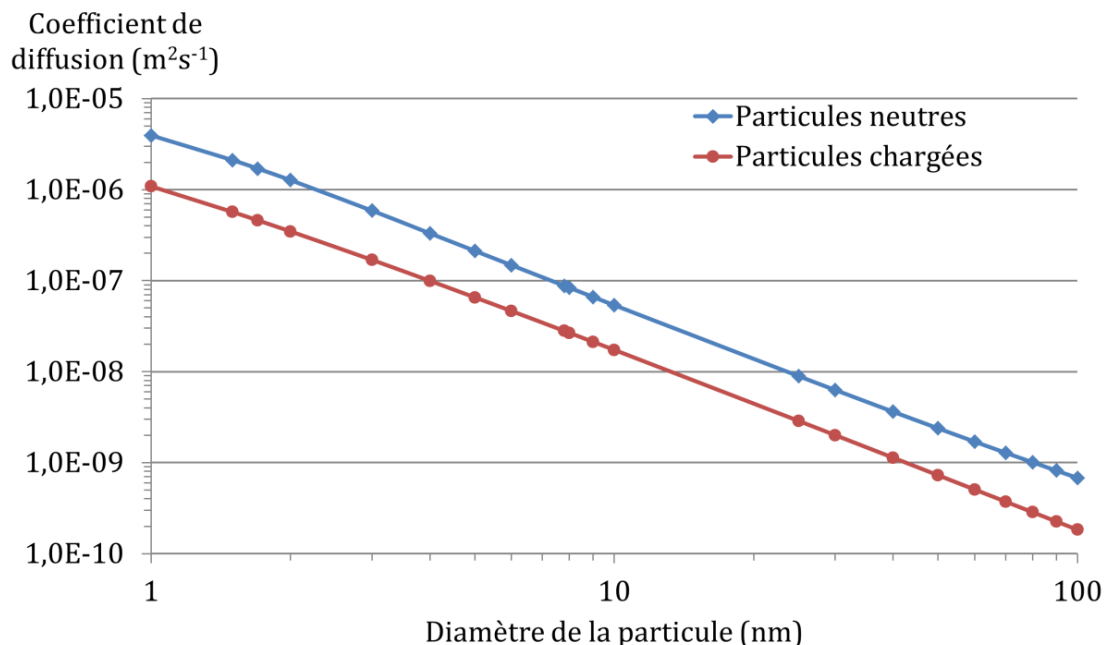


Figure 2-3 : Représentation des coefficients de diffusion des particules chargées et neutres en fonction de leur diamètre ($T = 296,15 \text{ K}$ et $P = 1\,013 \text{ hPa}$).

Les coefficients de diffusion sont ici comparés pour des particules neutres et des particules chargées, de forme sphérique, de même masse (le manque d'un électron est négligeable) et de mêmes dimensions (diamètre).

Dans notre cas, pour des particules entre 0,5 et 2 nm de diamètre, le coefficient de diffusion de la fraction libre des descendants du radon est compris entre $4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour des particules neutres et entre $1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour des particules chargées. Le rapport entre ces deux coefficients est de l'ordre d'un facteur 3, ce qui n'est pas très significatif pour un coefficient de diffusion. Ces valeurs sont aussi proches du coefficient de diffusion du radon dans l'air qui est de $1,2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ (Hirst, *et al.*, 1939).

2.2.3. Déplacement quadratique moyen

Le mouvement brownien, que nous avons caractérisé précédemment à l'aide du coefficient de diffusion, peut être aussi caractérisé par le déplacement quadratique moyen, X_{rms} . Ce déplacement équivaut statistiquement à une distance totale parcourue en moyenne par une particule dans une direction durant un temps t :

$$x_{rms} = \sqrt{2 D t}. \quad (2.8)$$

Le déplacement quadratique moyen à deux dimensions s'exprimera par la relation $\sqrt{4 D t}$ et à trois dimensions par $\sqrt{6 D t}$. La Figure 2-4 représente le déplacement quadratique moyen à une dimension pour différents diamètres de particules et pour un temps de 1 s.

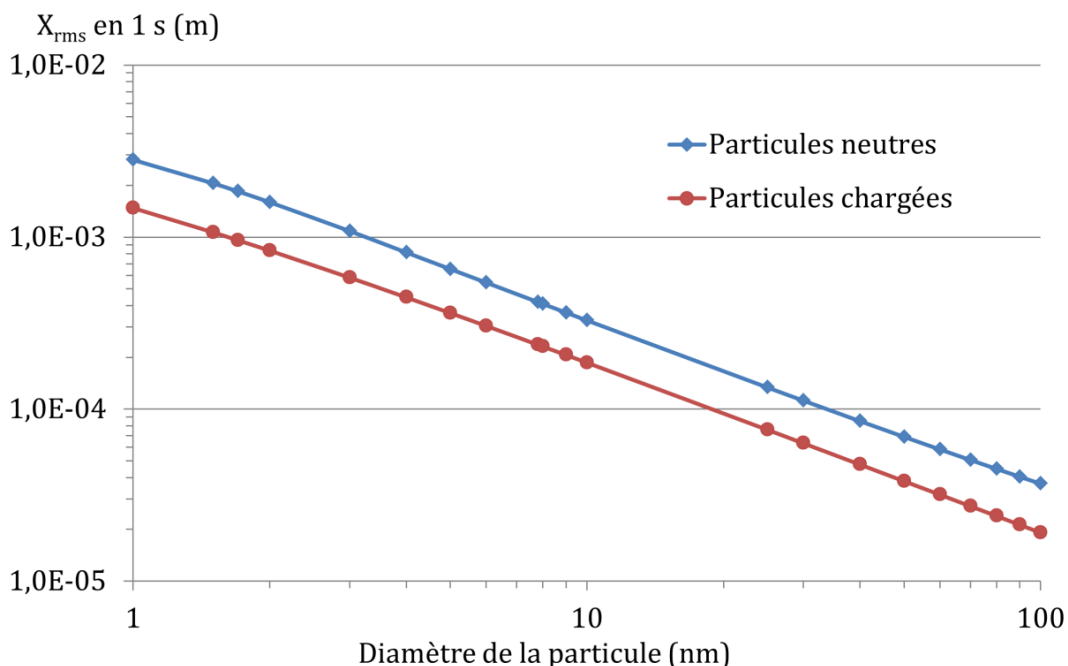


Figure 2-4 : Déplacement quadratique moyen d'une particule neutre et d'une particule chargée en fonction de leur diamètre pour un trajet d'une seconde.

Le déplacement quadratique moyen des particules nanométriques (1 nm de diamètre) pendant une seconde est de $2,8 \cdot 10^{-3} \text{ m}$. Pour des particules chargées (une charge élémentaire, et diamètre 1 nm) et le même temps, il est deux fois moins important, soit $1,4 \cdot 10^{-3} \text{ m}$.

mouvement brownien n'est pas le seul paramètre influençant le déplacement des particules nanométriques, qui peut être dépendant d'autres facteurs.

2.2.4. Vitesse d'écoulement, calcul du nombre de Péclet

Un aérosol nanométrique peut se déplacer grâce à la diffusion, et en suivant les mouvements du fluide provenant de l'écoulement. Afin de comparer le transport des particules par diffusion et par la vitesse d'écoulement, on définit un nombre sans dimension, le nombre de Péclet :

$$P_e = \frac{v_m L}{D}, \quad (2.9)$$

avec v_m la vitesse moyenne du gaz porteur, L une longueur caractéristique et D le coefficient de diffusion des particules. Si P_e est faible, la diffusion prédomine et s'il est supérieur à 1, c'est l'effet de la vitesse d'écoulement qui est prédominante.

La Figure 2-5 représente le nombre de Péclet pour des particules neutres et chargées de 1 nm et 2 nm de diamètre en fonction de la vitesse du fluide. La longueur caractéristique choisie est de 1 cm, les coefficients de diffusion utilisés sont ceux calculés avec les équations (2.5) et (2.6).

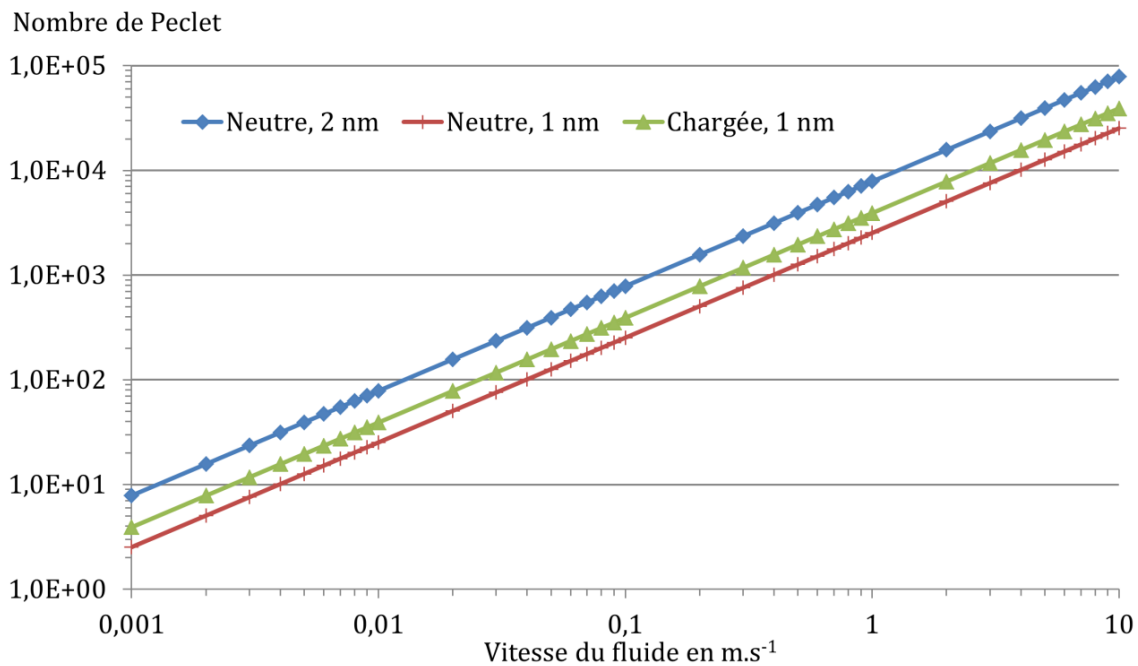


Figure 2-5 : Évolution du nombre de Péclet en fonction de la vitesse du fluide pour des particules nanométriques.

Le calcul du nombre de Péclet montre que, dans le cas des particules nanométriques, c'est l'effet de la vitesse d'écoulement qui est prédominant. Nous pouvons observer que, dans les mêmes conditions, pour deux particules de diamètres équivalents, la charge a un effet négligeable sur le transport.

Ces vitesses de fluides restent très faciles à atteindre pour des petits volumes. Par exemple dans un tube de 6 mm de diamètre interne, un débit de $1,6 \text{ L.min}^{-1}$ permet d'atteindre une vitesse de circulation de 1 m.s^{-1} . La vitesse d'écoulement sera donc le facteur prédominant sur le transport des aérosols nanométriques si le débit de circulation est supérieur à $0,01 \text{ m.s}^{-1}$.

2.2.5. Dérive des petits ions dans un champ électrique

Les aérosols chargés et neutres n'ont pas le même comportement lorsqu'ils sont soumis à un champ électrique. Considérons un aérosol chargé possédant une charge q . Selon l'expérience de Millikan, q ne peut être qu'un multiple entier de la charge élémentaire.

$$q = p e, \quad (2.10)$$

avec p un entier. Soit un champ \vec{E} appliqué à un aérosol chargé, il est soumis à la force électrostatique $\vec{F} = q\vec{E}$ et prend une vitesse proportionnelle à \vec{E} .

$$\vec{v}_E = z \vec{E} \text{ avec } z = p e B, \quad (2.11)$$

avec z la mobilité électrique de l'ion en $\text{m}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. La mobilité dynamique B d'une particule est définie par la relation suivante :

$$B = \frac{C_u}{3 \pi \eta d_p}, \quad (2.12)$$

Avec C_u le facteur de Cunningham (ou le facteur $C_u(d_p^*)$ pour les particules de diamètre inférieur à 2 nm), η la viscosité dynamique du gaz porteur et d_p le diamètre de la particule. La mobilité électrique s'écrit ainsi :

$$z = \frac{p e C_u}{3 \pi \eta d_p}. \quad (2.13)$$

Le nombre de charges portées par une particule de 1 nm de diamètre influence donc beaucoup la mobilité électrique. En utilisant les équations (2.11) et (2.13), il est possible de déterminer la vitesse de dérive des ions dans l'air pour différentes valeurs de champ électrique et différents diamètres. L'équation utilisée est la suivante :

$$v_e = \frac{p e C_u}{3 \pi \eta d_p} E, \quad (2.14)$$

avec :

- ↳ p le nombre de charges élémentaires ;
- ↳ e la charge élémentaire : $1,602\ 176\ 565\ (35) \cdot 10^{-19}$ C ;
- ↳ η la valeur de viscosité dynamique de l'air à 23 °C et 1 013 hPa :
 $\eta = 1,832\ 45\ (69) \cdot 10^{-5}$ kg.m⁻¹.s⁻¹ ;
- ↳ d_p le diamètre de la particule d'aérosol en m ;
- ↳ E le champ électrique en V.m⁻¹.

En prenant le cas le plus pénalisant, soit une seule charge, la formule (2.14) est utilisée pour déterminer la valeur de la vitesse de dérive des aérosols submicroniques soumis à différents champs électriques. Les résultats sont présentés en Figure 2-6.

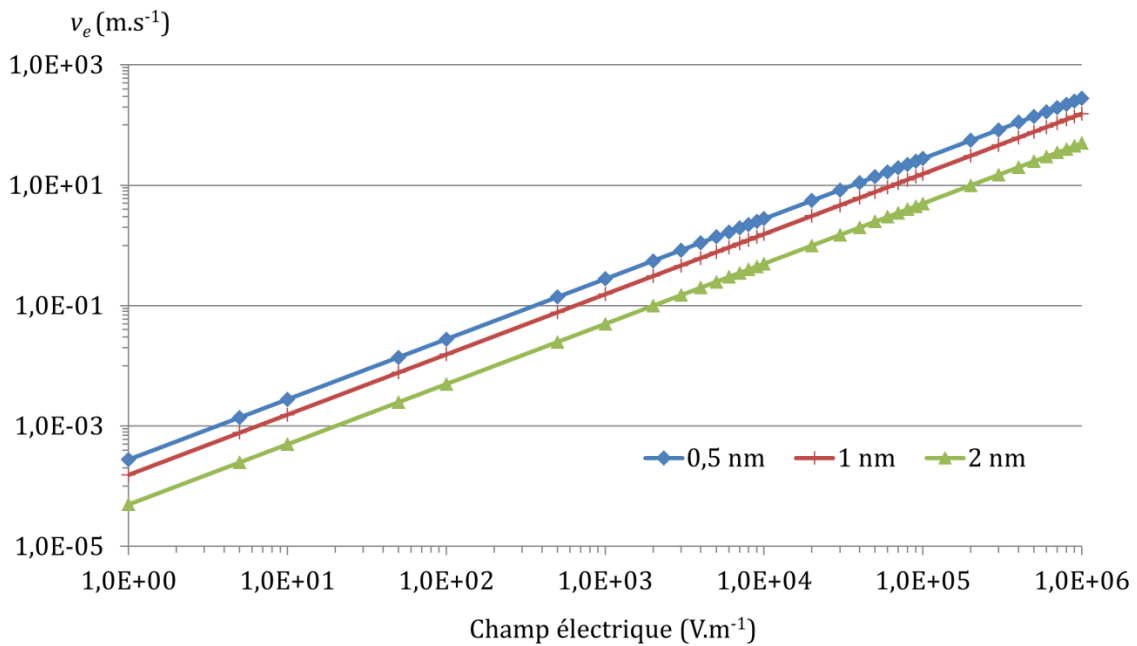


Figure 2-6 : Résultats de calcul de la vitesse de dérive des ions en fonction de l'intensité du champ électrique pour différents diamètres de particules.

La vitesse de dérive des ions soumis à un champ électrique peut devenir très importante. La Figure 2-6, représente la vitesse de dérive des ions pour des particules avec une seule charge. Cette vitesse est directement proportionnelle au nombre de charges électriques que possède la particule.

Ces premiers calculs montrent aussi l'influence non négligeable du diamètre de la particule sur la vitesse de dérive. Un autre calcul est présenté en Figure 2-7 pour deux champs électriques différents, 100 kV.m⁻¹ et 200 kV.m⁻¹, et en faisant varier le diamètre de la particule, la particule possédant toujours une seule charge.

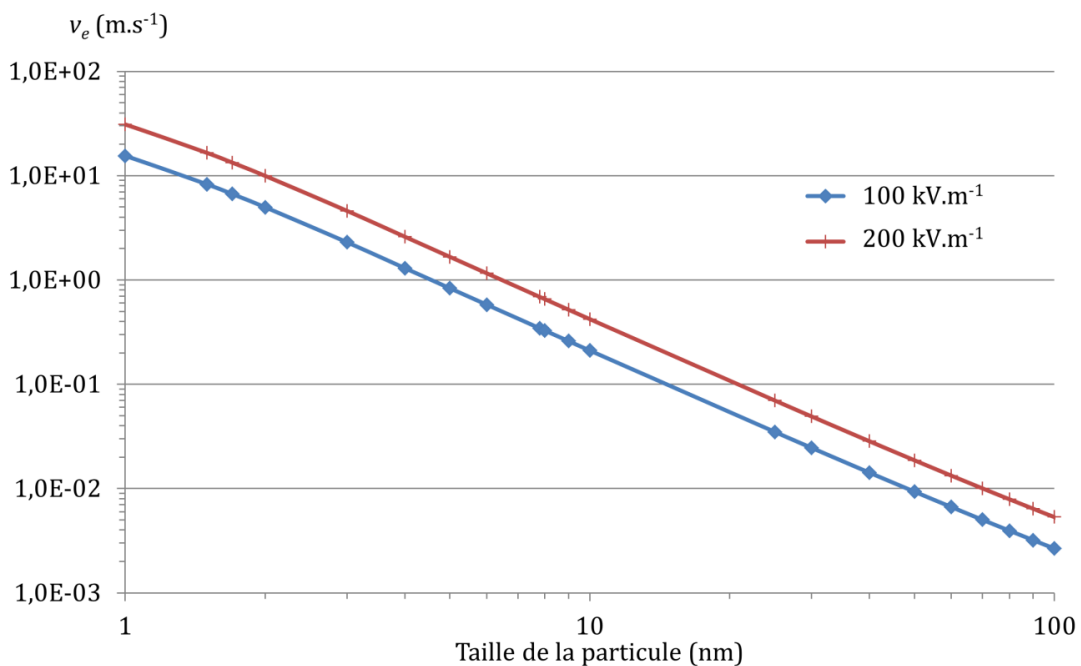


Figure 2-7 : Évolution de la vitesse de dérive des ions pour un même champ électrique mais des diamètres de particules différents.

Le diamètre de la particule est ainsi un facteur important dans le calcul de la vitesse de dérive. Les particules submicroniques auront une vitesse de dérive bien plus importante que les particules de taille plus importante.

2.2.6. Vitesse de sédimentation

Nous avons vu dans le § 2.2.1 que dans le cas de la fraction libre des descendants du radon le régime est dit moléculaire. Le diamètre des particules est ainsi du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen de l'air. Considérons une particule sphérique de diamètre d_p et de vitesse v_p dans un fluide immobile. Cette particule est soumise à la force de pesanteur, la poussée d'Archimède et la force de traînée.

Dans le régime moléculaire ($K_n \gg 1$) (valable aussi pour le régime intermédiaire $K_n \approx 1$), la force de traînée s'exprime par la relation :

$$F_T = \frac{3 \pi \eta d_p v_p}{C_u} \quad (2.15)$$

avec η la viscosité dynamique du gaz porteur et C_u le facteur de Cunningham.

La vitesse de sédimentation, ou vitesse limite de chute, est atteinte lorsque la force de résistance aérodynamique équilibre la force de pesanteur (F_p) et la poussée d'Archimède (P_A) induite sur la particule. L'accélération étant nulle, la deuxième loi de Newton se traduit par la relation :

$$\vec{F}_T = \vec{F}_p - \vec{P}_A = m_p \vec{g} - m_f \vec{g}, \quad (2.16)$$

avec m_p la masse de la particule, m_f la masse de fluide déplacé par la particule soit :

$$\frac{3 \pi \eta d_p v_s}{C_u} = \pi \frac{d_p^3}{6} \rho_p g - \pi \frac{d_p^3}{6} \rho_g g, \quad (2.17)$$

où ρ_p et ρ_g représentent respectivement la masse volumique de la particule et du gaz porteur, v_s est la vitesse de la particule qui correspond ici à la vitesse limite de chute ou vitesse de sédimentation. ρ_g est négligeable devant ρ_p dans le cas du polonium ou du plomb (descendant du radon), la vitesse de sédimentation se traduit donc par la relation :

$$v_s = \frac{\rho_p d_p^2 g C_u}{18 \eta} \quad (2.18)$$

Prenons l'exemple d'une particule de polonium, de masse volumique $\rho_p = 9\,200 \text{ kg.m}^{-3}$, de diamètre $d_p = 1 \text{ nm}$ dans l'air à 23 °C et $1\,013 \text{ hPa}$, la vitesse de sédimentation de la particule sera :

$$v_s = \frac{9\,200 \times (1 \cdot 10^{-9})^2 \times 9,806\,65 \times 222,34}{18 \times 1,83 \cdot 10^{-5}} = 61 \text{ nm.s}^{-1}, \quad (2.19)$$

soit une vitesse extrêmement faible. Dans les mêmes conditions, la vitesse de sédimentation pour les particules nanométriques est négligeable, ce qui implique que le mouvement brownien prédomine dans le cas présent (cf. § 2.2.3).

2.2.7. Phénomène de thermophorèse

La thermophorèse est le phénomène suivant lequel les aérosols sont repoussés par les corps chauds. Lorsqu'il existe dans un gaz un gradient de température, les particules se déplacent dans la direction des températures décroissantes. De ce fait, une zone proche du point chaud est dénuée de particule, cette zone appelée zone claire de Tyndall a généralement une épaisseur de l'ordre de 1 mm. Elle combine à la fois la thermophorèse et les forces aérodynamiques produites par les courants de convection.

Dans notre cas, les particules ont un rayon $r_p < \lambda_g$ ($K_n > 1$), la force de thermophorèse se simplifie alors par la relation :

$$\vec{F}_{th} = - \frac{4 r_p^2}{T} \lambda_g P \vec{\nabla} T_\infty, \quad (2.20)$$

où r_p est le diamètre de la particule, λ_g le libre parcours moyen du gaz porteur, $\vec{\nabla} T_\infty$ le gradient de température en $K.cm^{-1}$, P la pression du gaz porteur (Pa). La vitesse de \vec{V}_{th} thermophorèse s'exprime ainsi par la relation (Renoux, *et al.*, 1998) :

$$\vec{V}_{th} = -0,37 \frac{\lambda_g}{T} v_m \vec{\nabla} T_\infty. \quad (2.21)$$

La vitesse moyenne d'agitation thermique des molécules de l'air, v_m , peut se calculer à l'aide de la relation suivante :

$$E = \frac{1}{2} m v_m^2 = \frac{3}{2} k_B T \text{ soit } v_m = \sqrt{\frac{3 k_B T}{m}} \text{ avec } m = \frac{M}{N_a}. \quad (2.22)$$

L'équation (2.21) devient :

$$\vec{V}_{th} = -0,37 \lambda_g \sqrt{\frac{3 k_B N_a}{T M_{air}}} \vec{\nabla} T_\infty, \quad (2.23)$$

où N_a est le nombre d'Avogadro, M la masse molaire du cluster d'aérosol, k_B la constante de Boltzmann, T la température de l'aérosol, λ_g le libre parcours moyen du gaz porteur.

Dans le cas de particules nanométriques, la vitesse de thermophorèse ne dépend pas du diamètre ou de la nature de la particule mise en jeu. La Figure 2-8 représente l'évolution de la vitesse de thermophorèse d'une particule nanométrique en fonction du gradient de température.

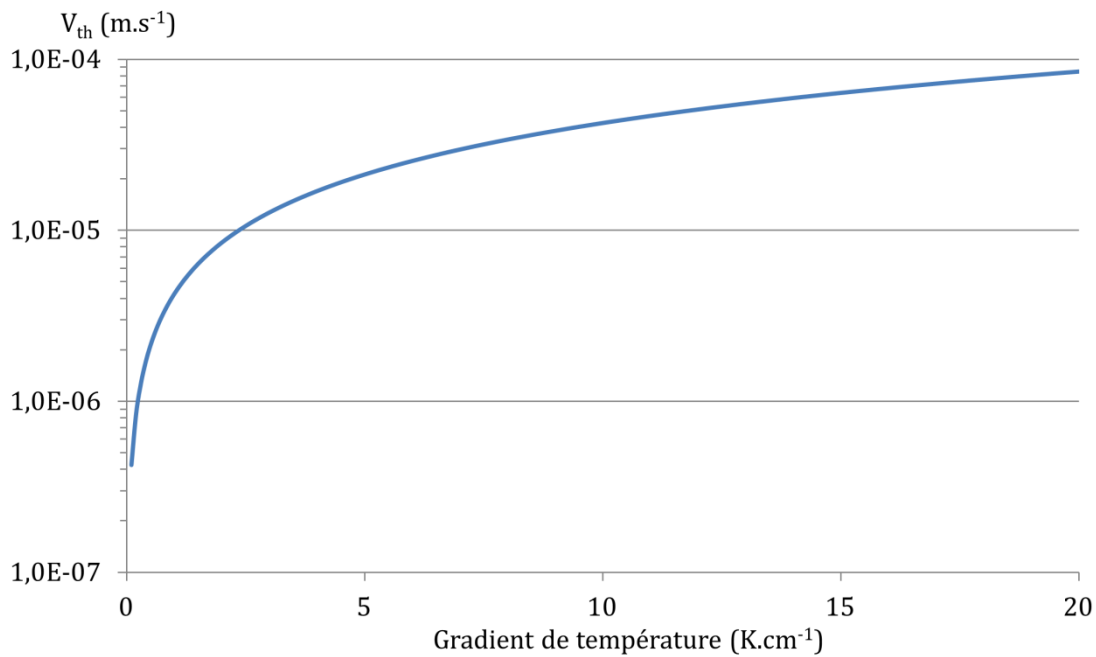


Figure 2-8 : Représentation de la vitesse de thermophorèse en fonction du gradient de température en régime moléculaire.

La vitesse de thermophorèse sera donc plus faible que la vitesse quadratique moyenne due au mouvement brownien des nanoparticules.

2.2.8. Conclusion sur le transport des aérosols submicroniques appliqué à la fraction libre des descendants du radon

Les aérosols sont des particules soumises à de nombreux phénomènes physiques. Nous nous sommes ici intéressés à la fraction libre des descendants du radon, c'est-à-dire des particules avec un diamètre de l'ordre du nanomètre (Malet, 1997). L'ensemble des phénomènes intervenant dans le transport de ces aérosols est rassemblé dans le § 2.2.

Nous avons vu comment caractériser un aérosol par le biais des différentes grandeurs disponibles. En assimilant les descendants à une sphère d'un rayon de 1 nm, nous avons défini le comportement de ces particules dans l'air sous différentes conditions.

Dans le cas des descendants du radon, nous avons étudié deux types de particules : chargées ou neutres. Cette charge induit des changements dans le comportement de ces aérosols. Comme nous l'avons vu, entre les deux types de particules de mêmes diamètre, masse et forme, le coefficient de diffusion varie d'un facteur 3 à 4. Le transport de ces particules dans l'air est donc différent, cependant les ordres de grandeur restent les mêmes.

Ainsi dans notre cas, en calculant les différents facteurs intervenant dans le transport, nous pouvons conclure que pour le cas de la fraction libre des descendants du radon, si les particules sont neutres, le phénomène prédominant est la diffusion brownienne. Si ces particules sont soumises à un débit d'air, elles suivront en majorité le mouvement du fluide ; leur vitesse sera alors dépendante du débit d'écoulement dans notre dispositif de mesure (vitesse du fluide porteur) : plus la vitesse du fluide sera élevée, plus ces particules seront soumises à ce déplacement.

Dans le cas où ces particules sont chargées, un champ électrique même faible produira une vitesse de dérive très importante. Si le champ électrique utilisé est suffisamment intense, même

en admettant que la particule ne possède qu'une charge, la vitesse de dérive sera telle qu'elle prédominera sur tous les autres phénomènes (y compris la vitesse du fluide s'il s'agit d'un système en circulation). Nous sommes ainsi capables de créer un champ suffisamment intense pour que la capture des descendants chargés soit assurée dans sa totalité. Les phénomènes de thermophorèse et de sédimentation sont aussi présentés, mais sont négligeables devant tous les autres phénomènes.

La désintégration alpha du radon et du thoron produisant les descendants solides peut entraîner la production de charges et donc des aérosols submicroniques chargés. Nous avons vu dans cette section qu'il est possible de capturer de telles particules chargées, ce qui constitue une propriété intéressante pour la construction de notre dispositif. Il est cependant possible que ces particules se neutralisent lors de leur transport ou se chargent pour d'autres raisons. Il devient donc important de déterminer les phénomènes intervenant dans la charge ou la neutralisation des descendants du radon et du thoron, et surtout le pourcentage de descendants chargés. La section suivante permet de synthétiser ces différents phénomènes et d'en déduire les facteurs d'influence sur la neutralisation des descendants.

2.3. Processus de charge des aérosols radioactifs appliqué aux descendants du radon

Nous nous intéressons plus particulièrement ici à la charge électrique des éléments de la chaîne du radon et du thoron. L'objectif est d'utiliser les propriétés de charge électrique des descendants pour réaliser leur capture, soit pour les mesurer, soit pour les éliminer afin de mesurer uniquement le gaz. Dans notre cas, il est nécessaire d'étudier le processus de charge des descendants. Dans cette partie, nous cherchons à identifier tous les paramètres pouvant influencer la neutralisation des descendants afin d'optimiser notre système pour favoriser leur capture. Nous étudierons ici la charge des descendants du radon et le thoron pour identifier leurs similitudes ou différences.

2.3.1. Charge des atomes radioactifs dans le vide

En considérant uniquement le phénomène de désintégration :

- ↳ après une désintégration alpha, l'atome perd 2 protons et 2 neutrons, le noyau de recul devrait donc porter 2 charges négatives ;
- ↳ à la suite d'une désintégration β^- , le noyau gagne un proton, il devrait donc porter une charge positive.

Ces deux types de désintégration sont tous deux présents dans les chaînes du radon et du thoron. Cependant, des phénomènes d'ionisation plus complexes interviennent dans le processus de désintégration des éléments. Lors d'une désintégration α ou β , les électrons du cortège subissent une perturbation qui peut entraîner soit une excitation d'un état lié vers un autre état lié non occupé, soit d'un état lié vers un état d'énergie positive. Ces phénomènes d'ionisation interne perturbent les électrons du cortège selon trois causes distinctes :

- ↳ la modification du champ coulombien du noyau (charge Z à $Z-2$ pour émission alpha et Z à $Z+1$ pour β^-) ;
- ↳ l'énergie de recul de l'atome et son interaction avec le milieu ;
- ↳ l'interaction de la particule émise avec les électrons de l'atome.

Ces perturbations se classent en deux catégories : soit instantanées, soit infiniment lentes (Wielclawik & Perrin, 1969). Dans le cas des émissions bêta, les perturbations sont essentiellement dues à la modification du champ coulombien du noyau, elles sont considérées comme brusques quelle que soit la couche étudiée.

Dans le cas des particules alpha, tous les phénomènes sont observables. L'interaction de la particule alpha avec le cortège électronique peut provoquer l'arrachement d'électrons de l'atome. Ces phénomènes d'ionisation interne sont caractérisés par l'émission de rayonnements X (de raies K, L) ou bien d'électrons arrachés ou électrons Auger. Ces phénomènes ont cependant une faible probabilité et peuvent être masqués par d'autres phénomènes plus probables (Riou, 1955). L'atome issu de la désintégration alpha possède quant à lui une énergie de recul assez importante qui peut varier de 100 keV à 130 keV. Cette énergie de recul est à l'origine du phénomène principal qui entraîne la charge de l'atome.

Concernant la distribution de la charge du ^{218}Po , une étude, utilisant un spectromètre de masse et une technique de mesure dite de temps de vol dans le vide, a montré que la majeure partie des atomes de recul est neutre et une petite fraction mono-chargée (Abou-Khalil, *et al.*, 2009).

Concernant la distribution de charge du ^{216}Po , une expérience (Szucs & Delfosse, 1965) a permis de mettre en évidence la faible proportion de ^{216}Po chargé. Cette expérience consistait à utiliser un spectromètre de charge dans lequel on injecte le ^{220}Rn à l'état gazeux, ce qui permet d'étudier la charge du noyau fils ^{216}Po à des pressions de $1,3 \cdot 10^{-3}$ Pa et $2,0 \cdot 10^{-3}$ Pa ; les résultats de cette expérience ont montré que 87 % du ^{216}Po n'est pas chargé alors que le reste est chargé positivement avec une charge pouvant varier de +1 à +9.

Dans le cas plus particulier de la chaîne de désintégration du thoron, le ^{212}Bi se désintègre à 35,93 % par émission alpha (cf. Figure 2-9).

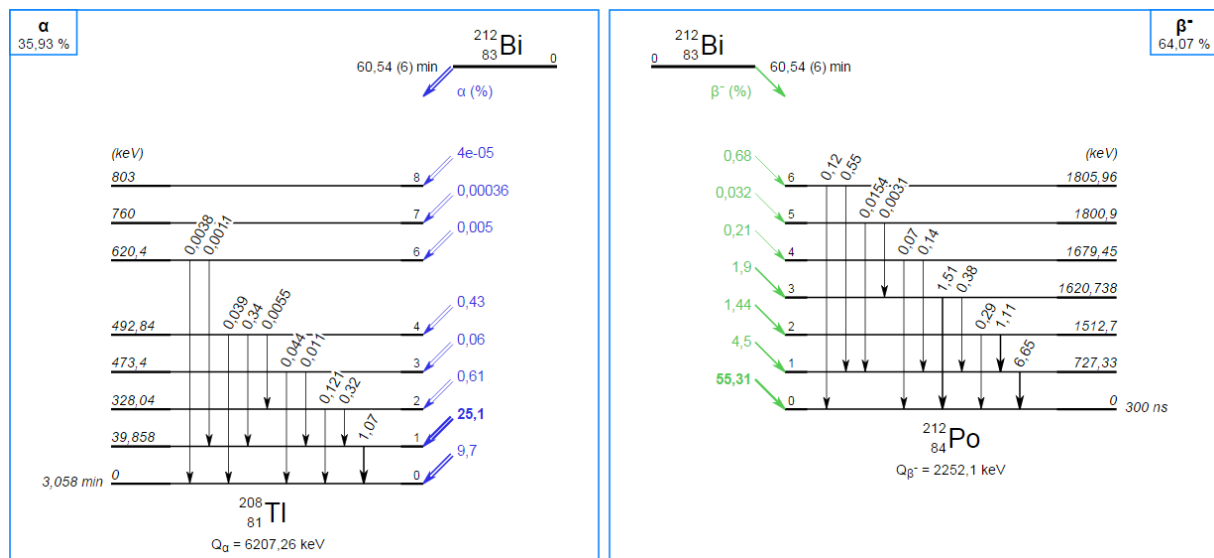


Figure 2-9 : Schéma de désintégration de ^{212}Bi (LNHB, 2015).

Cette désintégration α doit entraîner la production d'atomes chargés. En effet, les chercheurs W. Wielclawik et N. Perrin (1969) ont mis en évidence ce phénomène de façon expérimentale. L'expérience consiste à utiliser une source infiniment mince de ^{212}Bi et à étudier le parcours des noyaux de recul de ^{208}Tl . Sachant que pour une énergie alpha donnée, tous les atomes de recul ont la même vitesse en présence d'un champ électrique, leurs parcours dépendront de leurs charges. Connaissant cette propriété, ils ont recueilli les événements en coïncidence avec

l'émission alpha et ainsi obtenu le spectre de charge des atomes de $^{208}\text{Tl}^{n+}$ présenté en Figure 2-10:

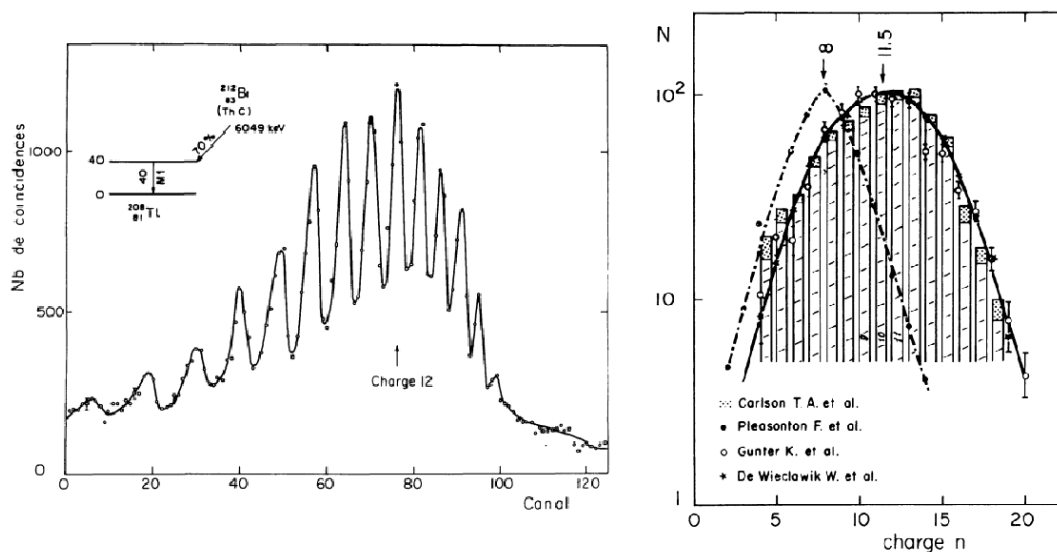


Figure 2-10 : À gauche, le spectre de charge des atomes de ^{208}Tl (Wieclawik, et al., 1969) et à droite, la distribution des charges obtenue par plusieurs chercheurs (Pleasanton & Snell, 1957) (Gunter, et al., 1966) (Joyes, 1969) (Perrin & Wieclawik, 1966).

La désintégration du radon et du thoron par transition alpha entraîne donc la formation de descendants solides possédant un nombre de charges plus ou moins important. Ces descendants peuvent, eux aussi, produire des charges supplémentaires par transition β^- mais aussi par transition α (Brunelle, et al., 1989).

Dans les conditions atmosphériques, ce phénomène n'est pas le seul mis en jeu lors de la formation des descendants solides. La radioactivité du radon ou du thoron ainsi que des descendants va engendrer une modification de l'état du milieu, formation de nouveaux ions avec les particules ou le gaz du milieu, effet de neutralisation des particules... Il est ainsi important d'étudier les phénomènes de charge et neutralisation des aérosols dans le milieu afin d'en déduire le taux de descendants chargés après leur formation.

2.3.2. Processus de charge des aérosols radioactifs dans l'air

Nous avons vu précédemment les phénomènes qui produisent des noyaux de recul chargés. Ces phénomènes atomiques sont liés à la désintégration de l'atome par émission alpha et l'expulsion d'électrons du cortège électronique.

Dans l'air, ces phénomènes ne seront pas les seuls ; nous parlerons ici uniquement de la fraction libre des descendants du radon qui sont des aérosols radioactifs de taille nanométrique en suspension dans l'air.

Un aérosol radioactif est soumis à plusieurs mécanismes influençant sa charge qui proviennent soit d'auto-chargement dû à la désintégration α ou β , soit à la neutralisation de l'aérosol qui dépendra du milieu.

Les phénomènes d'auto-chargement des aérosols radioactifs sont directement liés à leurs activités spécifiques. Ce phénomène ne sera pas identique suivant le type de particules émises. Ainsi deux cas apparaissent dans la chaîne du radon.

Les émetteurs bêta produisent des charges élémentaires égales à 1 (Ivanov, *et al.*, 1970). Dans le cas du radon, il s'agira de ^{214}Pb qui formera le ^{214}Bi avec une charge supplémentaire, et dans le cas du thoron, il s'agit de la désintégration de ^{212}Pb en ^{212}Bi et de ^{212}Bi en ^{212}Po (avec une probabilité d'environ 64 %, cf. § 1.2.1).

Les émetteurs alpha possèdent un mécanisme plus complexe. L'énergie mise en jeu étant plus importante, il est possible qu'elle arrache des électrons à l'atome de recul. L'émission alpha produit donc des aérosols chargés dans l'air. Différentes expériences ont montré que le taux de chargement peut varier énormément. Dans le cas du radon, le nombre de charges positives créées sur des aérosols mono-dispersés de benzène-1,2-dicarboxylate de dibutyle peut varier de 3 à 40 avec une moyenne de +12 (Ivanov, *et al.*, 1969). D'autres expériences ont montré des résultats similaires comme (Yeh, *et al.*, 1978) sur de l'oxyde de plutonium avec une charge moyenne de +9.

L'émission alpha n'est pas la seule cause de chargement des aérosols et des descendants du radon et du thoron. Cette émission produit des descendants avec une énergie de recul conséquente entre 100 et 130 keV pour les émissions alpha des chaînes du radon et du thoron. La vitesse de l'atome de recul n'étant donc pas négligeable, la particule peut ainsi parcourir quelques dizaines de micromètres sur des durées très courtes (ns). Elle peut engendrer l'arrachement des électrons de la couche externe et le descendant devient alors chargé positivement. Tout au long de son parcours l'atome de recul peut ainsi gagner des charges ou bien en perdre en interagissant avec les molécules de l'air. Nous devons donc nous intéresser aux phénomènes qui peuvent engendrer la neutralisation de ces descendants.

2.3.3. Les phénomènes de neutralisation des descendants solides

Le taux de neutralisation des descendants du radon et du thoron dans l'air dépend de plusieurs paramètres. Différentes recherches (Frey, *et al.*, 1981) et (Hopke & Cho, 1988) ont permis de mettre en évidence trois phénomènes décrivant le processus de neutralisation :

- ↳ la recombinaison avec des petits ions de l'air ;
- ↳ la capture électronique des radicaux libres formés par la radiolyse de l'eau ;
- ↳ le transfert de charge avec les molécules ayant un faible potentiel d'ionisation.

Ces phénomènes ont été vérifiés expérimentalement par Porstendörfer sur les descendants du radon (Porstendörfer, *et al.*, 2005). Plus récemment la caractéristique de la charge électrique des descendants du radon a été étudiée lors des travaux de thèse de Abou-Khalil (Abou-Khalil, 2008). Nous nous baserons principalement sur ces travaux pour mettre en avant les phénomènes intervenant dans la neutralisation des descendants du radon et du thoron.

2.3.3.1. Recombinaison avec des petits ions de l'air

Les particules émises lors de la désintégration produisent des ions dans l'air qui peuvent se recombinaison avec les clusters des descendants solides et ainsi les neutraliser. Ce phénomène n'est pas seulement lié au radon dans le gaz porteur. Il peut provenir aussi d'autres rayonnements externes tels que les rayonnements cosmiques ; ils sont cependant négligeables face à une forte concentration en radon.

Expérimentalement, il a été montré que plus la concentration en radon est élevée dans le milieu, plus le taux de neutralisation est élevé (Hopke & Cho, 1988). Une forte activité entraîne un fort potentiel d'ionisation du gaz et ainsi augmente la création de paires d'ions et d'électrons

capables de neutraliser les descendants du radon. Plusieurs études ont été réalisées pour différents gaz porteurs et différentes activités volumiques (Busigin, *et al.*, 1980), (Howard & Strange, 1991), (Howard & Strange, 1994). L'ensemble des auteurs définissent le taux de neutralisation comme :

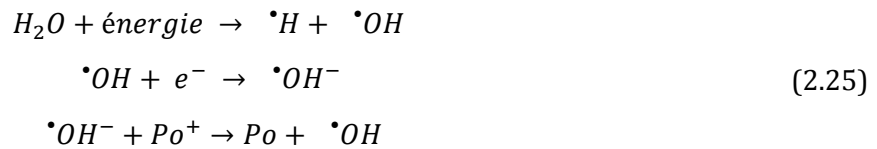
$$\lambda_{IR} = a \sqrt{A_v {}^{222}Rn} + b, \quad (2.24)$$

où λ_{IR} est le taux de neutralisation et s'exprime en s^{-1} , $A_v {}^{222}Rn$ représente l'activité volumique en radon dans le milieu, a et b sont des constantes dépendant du milieu.

La définition des coefficients a et b reste cependant difficile, en effet pour un même milieu (de l'air sec) les résultats de la littérature ne sont pas compatibles entre eux, d'autres paramètres influencent donc ce taux de neutralisation.

2.3.3.2. La capture électronique des radicaux libres formés par la radiolyse de l'eau

Ces radicaux sont d'excellents récupérateurs d'électrons et augmentent la concentration en ions négatifs dans le milieu, ce qui accélère la recombinaison des descendants. Ils sont formés par radiolyse de l'eau et neutralisent les ions positifs de polonium en suivant les processus suivants :



Chu et Hopke ont ainsi étudié le taux de neutralisation des ions ${}^{218}Po^+$ en fonction de l'humidité de l'air ; les résultats obtenus sont présentés en Figure 2-11.

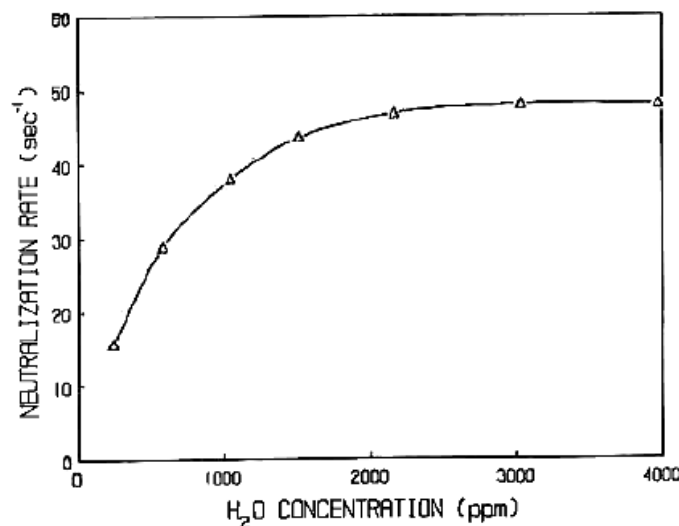


Figure 2-11 : Taux de neutralisation du ${}^{218}Po^+$ dans l'azote pour différentes concentrations en H_2O (Hopke & Cho, 1988).

Ces résultats montrent l'influence de l'eau sur le taux de neutralisation des particules. L'augmentation de la concentration en eau implique un taux de neutralisation plus élevé jusqu'à

atteindre un seuil maximum d'environ 2 000 ppm où l'ajout d'eau n'entraîne pas de neutralisation supplémentaire.

2.3.3.3. Transfert de charge avec les molécules ayant un faible potentiel d'ionisation

Une première étude (Frey, *et al.*, 1981) a mis en avant les modifications des coefficients de diffusion des descendants du radon et du thoron dues aux gaz présents dans l'air. Ce coefficient variant suivant la forme chimique du polonium, les chercheurs ont ainsi déduit qu'un phénomène de neutralisation des descendants du radon et du thoron est dû aux molécules présentes dans l'air et ayant un faible potentiel d'ionisation.

Il a été montré que des transferts de charges se produisent entre les descendants du radon et les molécules présentes dans l'air tel que NO_2 , NH_3 , etc. Ce phénomène dépend de leur concentration dans l'air. Le potentiel d'ionisation de l'atome de polonium est de 8,43 eV (Haynes, 2014); il s'oxyde pour former le PoO_2^+ ayant un potentiel d'ionisation de 10,44 eV (Hopke & Cho, 1988). Ce potentiel est assez important pour que l'oxyde soit neutralisé par collision avec d'autres molécules du milieu à plus faible potentiel d'ionisation tel que : NO_2 (9,79 eV), $n\text{-C}_5\text{H}_{12}$ (10,35 eV), NH_3 (10,2 eV).

Hopke et Chu ont ainsi étudié l'évolution du taux de neutralisation de l'oxyde de polonium en fonction de la concentration des différentes molécules dans l'air.

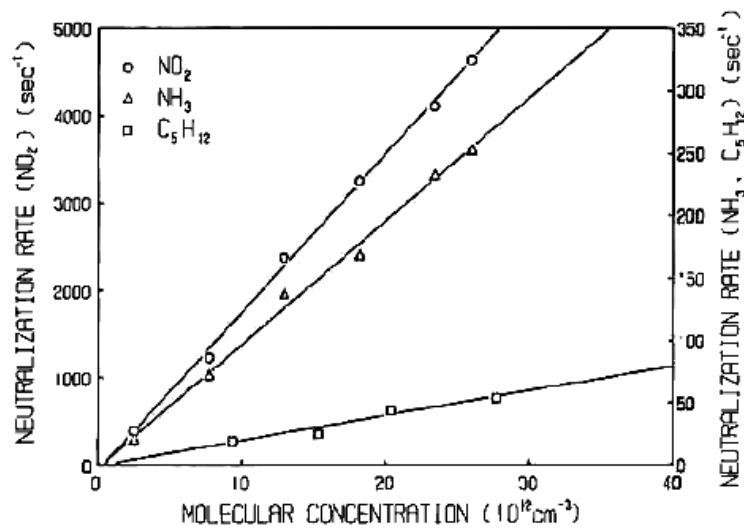


Figure 2-12 : Taux de neutralisation du PoO_2^+ en fonction de la concentration en molécules de NH_3 , C_5H_{12} et NO_2 dans l'air (Hopke & Cho, 1988).

Ces résultats montrent bien l'important taux de neutralisation avec une molécule à faible potentiel d'ionisation telle que le NO_2 , alors que les autres molécules possèdent une énergie d'ionisation plus proche de l'oxyde de polonium et entraînent un taux de neutralisation beaucoup plus faible.

L'évolution du taux de neutralisation est proportionnelle à la concentration des molécules présentes dans l'air. De plus, cette neutralisation est beaucoup plus rapide comparée aux précédents phénomènes. Ceci provient du fait que la neutralisation se produit ici par simple collision avec les atomes d'oxyde de polonium.

2.3.3.4. Détermination du taux de neutralisation du ^{218}Po

Les deux études les plus récentes pour la détermination du taux de neutralisation du ^{218}Po ont été réalisées par Dankelmann *et al.* (2001) et plus récemment grâce aux travaux de Abou-Khalil (Abou-Khalil, 2008). Ces études sont toutes deux basées sur la même méthode expérimentale utilisant un tube de diffusion et un tube de Zélény (cf. Figure 2-13) ; ce dispositif est utilisé dans la majorité des études de la charge des descendants du radon et du thoron.

Le principe de ce tube consiste en un condensateur cylindrique avec une électrode centrale démontable ce qui permet de mesurer les dépôts. Une atmosphère de radon ou de thoron est créée en entrée du tube de Zélény. Un filtre en entrée du tube élimine tous les descendants produits avant d'entrer dans le tube et un filtre en sortie permet de collecter les descendants qui ne seraient pas capturés sur l'électrode.

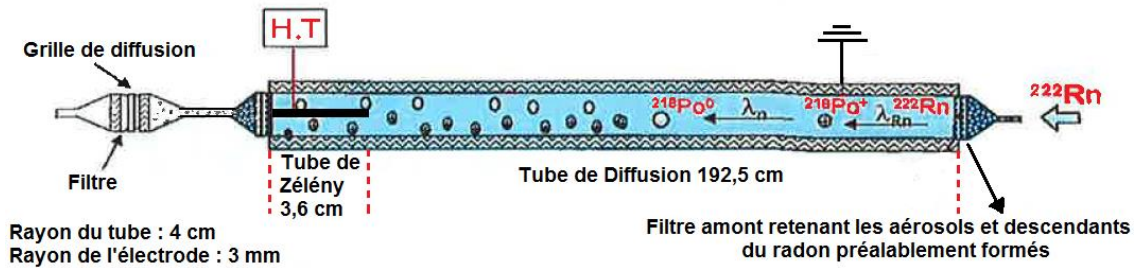


Figure 2-13 : Évolution du radon et des descendants dans le tube de Zélen. (Abou-Khalil, 2008).

Tous deux ont estimé le taux de neutralisation comme étant la somme des trois mécanismes de neutralisation :

$$\lambda_n = \lambda_{CT} + \lambda_{IR} + \lambda_{OH}, \quad (2.26)$$

avec λ_{CT} le taux de neutralisation provenant du transfert de charge, λ_{IR} le taux de neutralisation provenant de la recombinaison avec les petits ions de l'air et λ_{OH} le taux de neutralisation provenant de la capture électronique des radicaux libres.

L'objectif de la thèse d'Abou-Khalil était de pouvoir déterminer le taux de neutralisation en tenant compte de l'ensemble des paramètres expérimentaux, et notamment de la géométrie utilisée qui est un critère important (Abou-Khalil, 2008). Son étude lui a permis d'utiliser les résultats expérimentaux de Dankelmann pour les comparer directement avec ses résultats expérimentaux.

Les taux de neutralisation en fonction du nombre d'ions produits dans le system (n_{∞}) obtenus par d'Abou-Khalil (2.27) et Dankelmann (2.28) sont les suivantes :

$$\lambda_n = 4,44 \cdot 10^{-13} \times n_{\infty} + 0,0719, \quad (2.27)$$

$$\lambda_n = 10,7 \cdot 10^{-13} \times n_{\infty} + 0,0038. \quad (2.28)$$

Ces résultats présentent des pentes du même ordre de grandeur. Abou-Khalil explique que la pente de ces droites représente deux termes qui sont dus à la recombinaison des petits ions de l'air et à la capture électronique des radicaux $\cdot\text{OH}$. La différence de pente peut provenir de la différence d'humidité entre les deux milieux (3,3 % pour Dankelmann et 5,6 % d'humidité pour Abou-Khalil). Une atmosphère plus sèche entraînera moins de neutralisation. Un autre écart provient du fait que dans ses calculs, Dankelmann, contrairement à Abou-Khalil, a utilisé les mêmes coefficients de dépôts pour les ^{218}Po chargé et neutre.

Le terme d'ordonnée à l'origine représente la neutralisation par transfert de charge. La différence entre les deux résultats reste très grande.

2.3.4. Conclusion sur les processus de charge des descendants du radon et du thoron

Nous avons vu que trois processus peuvent intervenir dans la neutralisation des descendants du radon. Ces phénomènes peuvent avoir lieu simultanément mais certains peuvent être prépondérants selon les conditions.

- ↳ Les phénomènes de neutralisation dus aux radicaux libres $\cdot\text{OH}$ sont prépondérants dans l'air humide. Le séchage de l'air permet ainsi de limiter cet effet.
- ↳ Dans le cas d'un air sec, le phénomène prédominant est la recombinaison avec des petits ions de l'air, phénomène variant en fonction de la racine carrée de l'activité en radon et qui présente le taux de neutralisation le plus faible parmi les trois phénomènes.
- ↳ Dans un air sec mais pollué, le phénomène prépondérant est le transfert de charges avec les molécules présentes dans l'air, ce phénomène est d'autant plus important que l'air est pollué. Les molécules fixées sur l'oxyde de polonium entraînent sa neutralisation. Cet effet ne peut être limité que par une filtration importante de l'air.

Ces phénomènes complexes dépendent donc du milieu dans lequel sont produits les descendants et des conditions chimiques et physiques du gaz porteur utilisé.

De plus, comme a pu le montrer Abou Khalil, la détermination du taux de descendants chargés va énormément dépendre de la géométrie du dispositif de mesure utilisé. Ses calculs ont permis d'établir une méthode de détermination du taux de neutralisation dans le milieu mais aussi d'établir une méthode de comparaison entre deux expériences différentes sur le taux de neutralisation. Elle permet de considérer plus de phénomènes intervenant dans la méthode de mesure. La comparaison avec d'autres résultats obtenus par Dankelmann a permis de retrouver des valeurs du même ordre de grandeur mais la méthode reste cependant trop incertaine.

Sachant qu'il est pour le moment impossible d'obtenir de façon analytique le taux de descendants du radon chargés, il devient plus intéressant de synthétiser l'ensemble des expériences réalisées pour mesurer ce taux. Le paragraphe suivant présente l'ensemble des résultats et surtout les conditions dans lesquelles les mesures ont été réalisées, ce qui nous permettra de trouver les conditions optimales pour obtenir le taux de descendants chargés maximal.

2.4. Charge totale des descendants du radon et du thoron

2.4.1. Les différentes études sur la charge totale des descendants du radon

Le Tableau 2-1 présente l'ensemble des résultats expérimentaux sur la charge des descendants du radon obtenus dans différentes conditions expérimentales. Ces expériences ont été réalisées pour la majorité avec un tube de Zélény, à l'exception de celles de Dua, Kotrappa et Maiello.

Les conditions expérimentales dans lesquelles a été déterminé le pourcentage de descendants chargés sont décrites à la suite du tableau ainsi que les différentes propriétés que les auteurs ont observées.

Les informations ne sont pas forcément complètes suivant les différents cas expérimentaux. Elles permettent cependant de faire ressortir les conditions optimales pour la capture des descendants : humidité, activité mesurée, qualité de l'air, temps de séjour,...

Tableau 2-1 : Résultats de mesure de la fraction chargée (+) et neutre (n) des descendants du radon pour différents auteurs.

Référence	Gaz porteur et activité volumique en radon	Temps de résidence (s)	Humidité (% RH)	Charge
(Wellisch, 1913)	<i>Air ambient</i>	<i>Au moment de la formation</i>	<i>Air sec</i>	88 % (+) 12 % (n)
(Renoux, 1965)	<i>Air ambient</i>	<i>Au moment de la formation</i>	-	81,5 % (+) 18,5 % (n)
(Madelaine, 1966)	<i>Air filtré</i>	3 300	40	(n)
(Raabe, 1968)	<i>Air filtré</i> 850 kBq.m ⁻³	330	13 33	(n)
(Dua, <i>et al.</i> , 1978)	<i>Air filtré</i>	<i>Au moment de la formation</i>	17 - 19	91,5 (5) % (+)
(Porstendörfer, <i>et al.</i> , 1979)	<i>Air</i>	<i>Au moment de la formation</i>	≥ 95	88 % (+) 12 % (n)
(Kotrappa, <i>et al.</i> , 1980)	<i>Air ambient</i>	-	15 75	68 % (+) 38 % (+)
(Dua, <i>et al.</i> , 1983)	<i>Air</i>	17,5	< 5 < 90	91,4 (14) % (+) 91,0 (10) % (+)
(Maiello & Harley, 1988)	<i>Air</i> < 1 kBq.m ⁻³	-	-	68 % (+)
(Malet, 1997)	<i>Air filtré</i> 94 kBq.m ⁻³	120	< 15	46 (10) % (+)
(Dankelmann, <i>et al.</i> , 2001)	<i>Air filtré</i> 6,7 kBq.m ⁻³	120	50 %	49 % (+) 51 % (n)
(Porstendörfer, <i>et al.</i> , 2005)	<i>Air ambient</i> 50 Bq.m ⁻³	-	30 - 95	Exp. 1 : 48 % (+) Exp. 2 : 45 % (+)
(Abou-Khalil, 2008)	<i>Air filtré</i> 42 kBq.m ⁻³	248	6	35,5 (29) % (+)

Ces premiers résultats montrent que la majorité des descendants du radon (proche de 90 %) sont chargés positivement lors de leur formation. Le temps de séjour est un facteur important ; il montre que les ions se neutralisent rapidement dans l'air. En effet, après 120 secondes, seulement 50 % des descendants sont positifs. Les différents résultats sont discutés dans les paragraphes suivants.

2.4.1.1. Effet de l'humidité sur le taux de descendants chargés (Dankelmann, *et al.*, 2001) et (Porstendörfer, *et al.*, 2005)

L'effet de l'humidité, ne semble pas rapide. En effet, à très fort taux d'humidité ($\geq 95\%$) Porstendörfer et Mercer retrouvent les mêmes résultats que Wellisch qui a utilisé un air sec. La différence entre ces deux résultats est le temps de séjour plus grand pour Porstendörfer.

Pour un taux d'humidité relatif compris entre 30 % et 95 %, l'influence sur la charge des descendants semble négligeable (Dankelmann, *et al.*, 2001). Porstendörfer confirme cet effet par calcul (Porstendörfer, *et al.*, 2005) (cf. Figure 2-14).

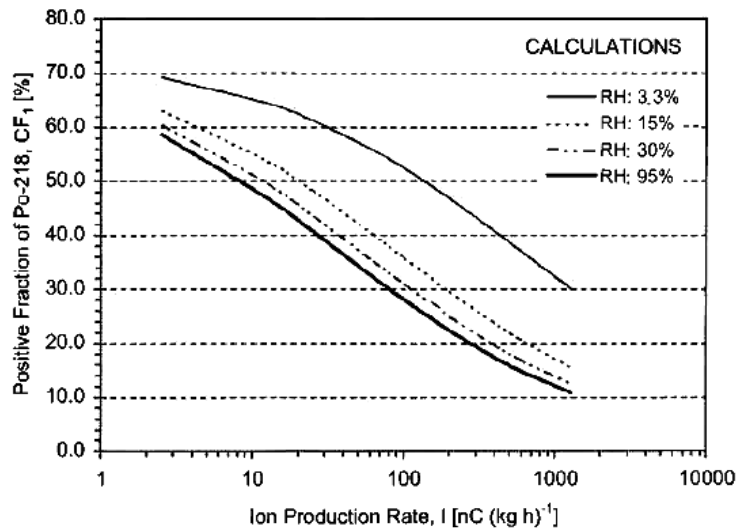


Figure 2-14 : Fraction d'ion ^{218}Po positif dans l'air obtenue par calcul à différents taux d'humidité (Porstendörfer, *et al.*, 2005).

Ces résultats ont été vérifiés expérimentalement : l'effet sur la charge reste significatif entre 14,7 % et 32,6 % d'humidité relative, contrairement à ce qui se passe entre 32,6 % et 92 %.

Ces résultats sont cependant très dépendants du temps de séjour des descendants avant leur exposition à un champ électrique comme le montrent les autres expériences présentées dans le Tableau 2-1. Ces expériences montrent que pour un temps de séjour très court, l'humidité n'aura pas le temps d'avoir un effet sur la neutralisation des descendants. Ces résultats sont observés par Dua *et al.* pour un temps de séjour de 17,5 s et un taux d'humidité de 3 % ou 90 % : les taux de descendants chargés sont les mêmes (Dua, *et al.*, 1983).

2.4.1.2. Mesures du taux de descendants chargés pour un temps de séjour très court et effet de l'humidité (Dua, *et al.*, 1978)

La méthode expérimentale de Dua *et al.* est différente des autres ; elle est aussi bien détaillée et les résultats sont présentés avec une incertitude associée (Dua, *et al.*, 1978). Dans cette étude, c'est un analyseur de mobilité électrique à plaques parallèles qui est utilisé. Il s'agit d'une chambre rectangulaire dans laquelle circule de l'air filtré à flux constant ; un petit tube permet d'injecter des aérosols au centre de l'entrée de la chambre (cf. Figure 2-15). Un champ électrique est généré entre les deux plaques ; les particules chargées vont se déposer ainsi à la surface de l'électrode ; la distance de dépôt dépendra de leur charge. Un filtre est placé en sortie de la chambre pour collecter les descendants non déposés.

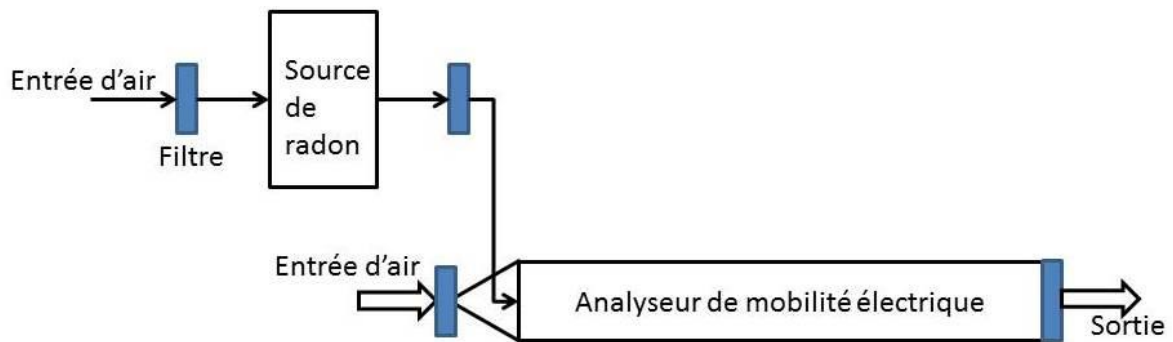


Figure 2-15 : Schéma du montage de Dua permettant la détermination de la fraction de descendants chargés.

Ce montage a permis de réaliser l'expérience sous différents champs électriques. L'intensité du champ est beaucoup plus importante et aussi plus uniforme comparée à la méthode avec le tube de Zélény. Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- ↳ l'humidité de l'air est comprise entre 16 % et 19 % pour l'air filtré ;
- ↳ le débit d'air est gardé constant à 5,2 L.min⁻¹, soit une vitesse moyenne de 3,82 m.s⁻¹ ;
- ↳ la quantité de radon injectée est identique pour chaque mesure.

Tableau 2-2 : Résultats de mesure de la fraction chargée des descendants du radon. (Dua, et al., 1981)

Champ électrique (V.cm ⁻¹)	Dépôt sur la partie neutre (%)	Dépôt sur l'électrode positive (%)	Dépôt sur l'électrode négative (%)
0	30,5 (24)	30,5 (24)	39,0 (25)
900	4,8 (1)	3,7 (4)	91,5 (5)
2 900	5,3 (2)	3,9 (1)	90,8 (8)

Lorsque le champ électrique est activé, plus de 90 % des descendants du radon se déposent sur l'électrode négative et sont donc chargés positivement (cf. Tableau 2-2). Contrairement aux autres résultats présentés dans le Tableau 2-1, une partie des descendants se déposent sur l'électrode positive ce qui indique qu'ils sont chargés négativement. Ce dépôt est cependant très faible et il pourrait s'agir d'un dépôt par diffusion malgré la correction effectuée en utilisant les résultats pour un champ électrique nul.

Dua *et al.* ont continué cette expérience en faisant varier différents paramètres tel que l'intensité du champ électrique et le taux d'humidité de l'air. La concentration en radon, la température, ainsi que le flux de gaz sont gardés identiques entre chaque mesure. Le temps de séjour du radon dans le système est le même entre chaque mesure (Dua, *et al.*, 1981). Les résultats sont synthétisés en Figure 2-16.

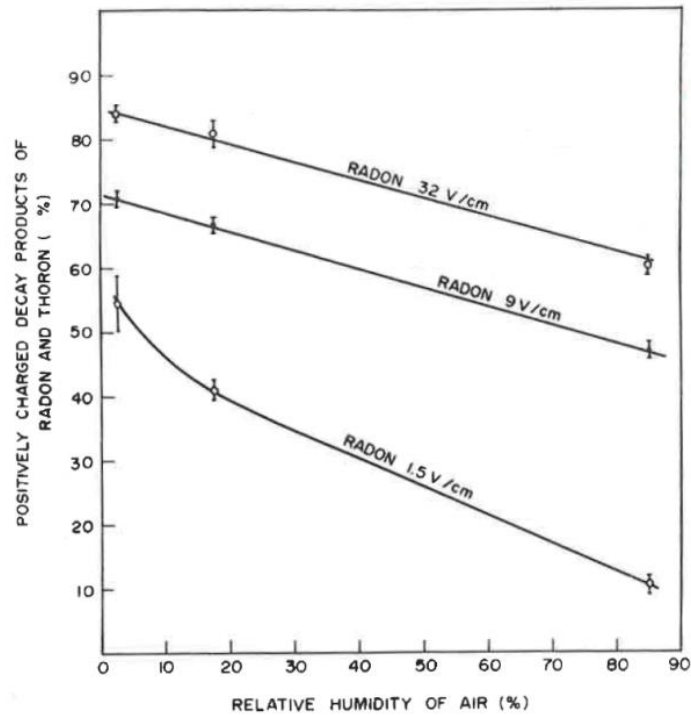


Figure 2-16 : Taux de descendants du radon capturés en fonction de l'humidité de l'air pour différentes intensités de champ électrique (Dua, et al., 1981).

Ces résultats permettent ainsi de confirmer l'effet de l'humidité sur la charge des descendants du radon comme nous l'avons vu précédemment (Porstendörfer, et al., 2005).

À faible champ électrique ($1,5 \text{ V.m}^{-1}$) et pour un taux d'humidité inférieur à 20 %, une variation de l'humidité entraîne une forte variation du taux de particules chargées. Pour un champ électrique identique, l'effet devient plus faible pour une variation de l'humidité entre 20 % et 90 %.

À l'opposé, dans le cas d'un champ électrique plus élevé (9 V.m^{-1} et 32 V.m^{-1}), l'effet de l'humidité n'est pas aussi significatif pour des variations du taux d'humidité allant de 0 % à 20 %. De plus, entre pour des taux d'humidité compris entre 20 % et 90 %, les pentes des droites sont moins importantes.

Ces résultats montrent ainsi qu'il est possible de compenser l'effet de l'humidité en appliquant un champ électrique très élevé : les descendants doivent être capturés plus rapidement, limitant leur temps de séjour avant la capture et donc leur neutralisation.

2.4.1.3. Mesure de la charge totale des descendants pour des temps de séjour élevés (Abou-Khalil, 2008) et (Malet, 1997)

Le Tableau 2-3 présente les dernières mesures de la charge des descendants du radon (Abou-Khalil, 2008). Dans ses expériences, Abou-Khalil utilise aussi un tube de Zélény mais avec de plus petites dimensions que ceux utilisés dans les précédentes expériences. Le dispositif d'Abou-Khalil lui a permis de faire varier de nombreux paramètres :

- ↳ le débit d'air ;
- ↳ l'activité volumique en radon ;
- ↳ le temps de résidence dans le tube de diffusion ;

↳ le temps de résidence dans le tube de Zélény.

Les deux derniers paramètres dépendent de la taille de l'électrode, comme schématisé en Figure 2-17. La première partie du tube permet aux descendants de se diffuser dans le milieu, la deuxième partie avec l'électrode correspond au tube de Zélény. En fonction du débit de gaz, le temps de séjour des descendants du radon n'est pas le même. Le temps de séjour dans le Tableau 2-3 correspond au temps de séjour total (tube de diffusion et tube de Zélény).

Tableau 2-3 : Résultats de la charge des descendants du radon dans l'air sec et propre sous différentes conditions expérimentales (Abou-Khalil, 2008).

Activité volumique en radon (kBq/m ³)	Temps de séjour dans le tube (s)	Fraction chargée apparente du ²¹⁸ Po (%)
42 (3)	248	35,5 (29)
177 (7)	248	32,5 (16)
1 508 (9)	248	29,7 (14)
184 (2)	177	31,3 (11)
102 (5)	124	28,9 (11)
912 (12)	124	24,1 (8)
56 (2)	62	20,8 (12)
456 (3)	62	13,2 (9)
46 (2)	48	22,1 (12)

Cet ensemble de résultats permet de montrer l'importance du temps de résidence des descendants. En effet, contrairement aux expériences précédentes (Wellisch, 1913), (Renoux, 1965), (Porstendörfer, *et al.*, 1979) et (Dua, *et al.*, 1981) où la mesure est réalisée directement après la formation des descendants, ces mesures sont réalisées pour un temps de résidence plus long. En comparant les résultats pour un temps de séjour très long (248 s) et le plus court (48 s), alors que les activités volumiques sont proches, le résultat de taux de descendants chargés ne suit pas les hypothèses faites jusqu'à présent. En effet, il y a plus de descendants chargés (35,5 (29) %) pour le temps de séjour le plus élevé que pour le temps de séjour le plus court (22,1 (12) %). Il y a donc un possible rechargement des descendants dans l'air.

Cette expérience est similaire à celles réalisées précédemment (Dankelmann, *et al.*, 2001) et (Malet, 1997). Dankelmann et Malet ont réalisé des mesures pour un temps de résidence de l'ordre de 120 secondes, comparables aux mesures de R. Abou-Khalil réalisées pour un temps de séjour de 124 secondes. Les résultats obtenus par Dankelmann (49 %) et Malet (46 %) sont compatibles mais malgré tout bien différents de ceux obtenus par Abou-Khalil (28,9 % et 24,1 %).

Cette différence peut s'expliquer par les activités mises en jeu lors des mesures. En effet, dans le cas d'Abou-Khalil, l'activité en radon est de 102 kBq.m⁻³ et 912 kBq.m⁻³. Ces niveaux d'activité sont beaucoup plus élevés que Dankelmann qui, lui, réalise ses expériences pour une activité de 6,7 kBq.m⁻³. Ainsi une activité volumique forte en radon favorise la neutralisation des descendants si le temps de séjour est long. Ce phénomène est tout à fait observable avec les résultats présentés dans le Tableau 2-3. Pour un temps de séjour identique, plus l'activité en radon est grande, plus la fraction de ²¹⁸Po chargé diminue.

Malet a obtenu, par mesure, 46 % du ²¹⁸Po formé chargé positivement pour une activité volumique de 94 kBq.m⁻³ et un temps de résidence de 120 secondes. Les conditions sont donc

proches de celles mises en place par Abou-Khalil (102 kBq.m^{-3} et 124 secondes de temps de résidence). Cependant, le résultat est éloigné car il n'obtient que 28,9 % du ^{218}Po formé chargé positivement. Cette incompatibilité des valeurs peut provenir de la différence de conception de leur système ; en effet, bien que le temps de résidence soit le même, il est décomposé en deux parties. Une partie correspond au temps de résidence dans le tube de diffusion et une autre dans le tube de Zélény.

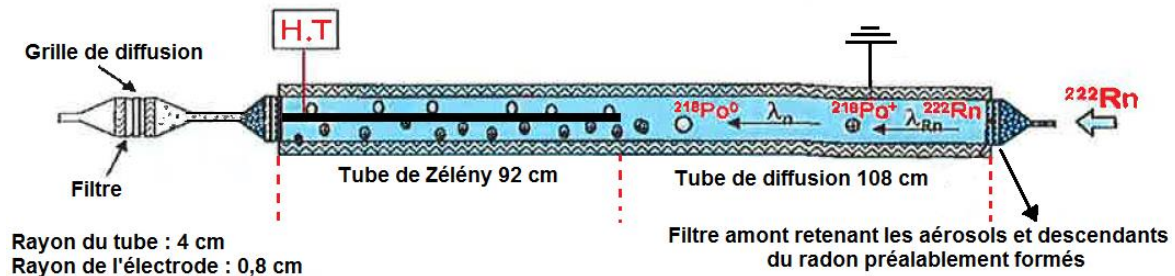


Figure 2-17 : Dispositif expérimental pour l'étude de la charge des descendants du radon (Malet, 1997).

Le dispositif de Malet présente de plus grandes dimensions et surtout un tube de Zélény plus long. Le temps de résidence dans le tube de diffusion est de 65 s et dans le tube de Zélény de 55 s contre 122 s et 2 s pour Abou-Khalil.

Tout au long de l'électrode trois processus vont être observés :

- ↳ la formation du ^{218}Po par désintégration du radon caractérisé par la constante de désintégration du radon λ_{Rn} (s^{-1}) sur la Figure 2-17,
- ↳ la neutralisation du ^{218}Po chargé positivement caractérisé par le taux de neutralisation λ_n (s^{-1}) sur la Figure 2-17,
- ↳ la disparition du ^{218}Po en suspension dans l'air par désintégration et par dépôts sur le tube de diffusion.

Dans le cas de Malet, ces processus interviennent autant sur l'électrode que dans le volume de diffusion, contrairement à Abou-Khalil qui utilise un tube plus petit avec une petite électrode. La comparaison entre les deux résultats devient donc difficile.

2.4.1.4. Conclusion sur le taux de descendants du radon chargés

De nombreux facteurs influencent les résultats du taux de descendant chargés, mais les trois principaux qui peuvent être contrôlés par les conditions expérimentales sont :

- ↳ le taux d'humidité qui doit être le plus faible possible, comme l'ont montré les expériences précédentes ;
- ↳ l'activité en radon dans le système : une forte activité aura tendance à favoriser la neutralisation des descendants solides ;
- ↳ le temps de séjour, la capture des descendants devant avoir lieu immédiatement après leur formation pour éviter toute neutralisation.

Ces résultats nous montrent aussi que si le champ électrique est assez intense pour capturer très rapidement les descendants, l'effet de l'activité volumique et de l'humidité devrait être

négligeable. Ainsi le plus haut taux de descendants chargés capturés est présenté par Dua *et al.* : il est de 91,4 (14) % pour un temps de séjour de 17,5 secondes.

Nous pouvons ainsi dire que par hypothèse, pour un temps de séjour plus court, il sera possible de capturer plus de descendants.

2.4.2. Les différentes études sur la charge totale des descendants du thoron

Il existe moins d'études concernant la charge des descendants du thoron. Le Tableau 2-4 résume les principaux résultats obtenus dans la littérature.

Tableau 2-4 : Les différents résultats de la fraction chargée (+) et neutre (n) des descendants du thoron.

Référence	Gaz porteur et activité volumique en thoron	Temps de résidence (s)	Humidité (% RH)	Charge
(Madelaine, 1966)	Air filtré 925 kBq.m ⁻³ à 1,48 MBq.m ⁻³	6 000	40	N
(Porstendörfer, et al., 1979)	Air filtré 12,6 MBq.m ⁻³ à 12,6 GBq.m ⁻³	46	30 à 90	85 à 88 % (+)
(Bigu, 1985)	Air 10 Bq.m ⁻³	-	< 36	>60 % Chargé
(Bigu, 1989)	Air ambiant mine 14 Bq.m ⁻³ à 66 Bq.m ⁻³	-	-	65% (+) 45 % N
(Dua, et al., 1981)	Air filtré 9,25 MBq.m ⁻³	17,5	16 – 19%	99,17 (70) % (+) 0,48 (2) % (-) 0,35 (1) % N

Les paragraphes suivants décrivent certaines des expériences présentées dans le Tableau 2-4 afin d'identifier les points importants sur le taux de descendant chargé.

2.4.2.1. L'expérience de Porstendörfer (1979)

Porstendörfer a réalisé ses expériences dans un tube de Zélény de 1 m de long et d'un diamètre de 1,82 cm. Le flux de gaz dans le tube est gardé constant à 333 cm³.min⁻¹, la tension appliquée sur l'électrode centrale étant au maximum de 500 V (champ électrique d'environ 275 V.cm⁻¹), tension pour laquelle la capture des descendants du thoron atteint le maximum à différents taux d'humidité. Les mesures sont réalisées à température constante (22 °C).

Ce dispositif expérimental a permis à Porstendörfer de faire varier plusieurs paramètres influençant le taux de capture des descendants du thoron :

- ↳ humidité de l'air ;
- ↳ champ électrique appliqué ;
- ↳ activité en thoron injectée.

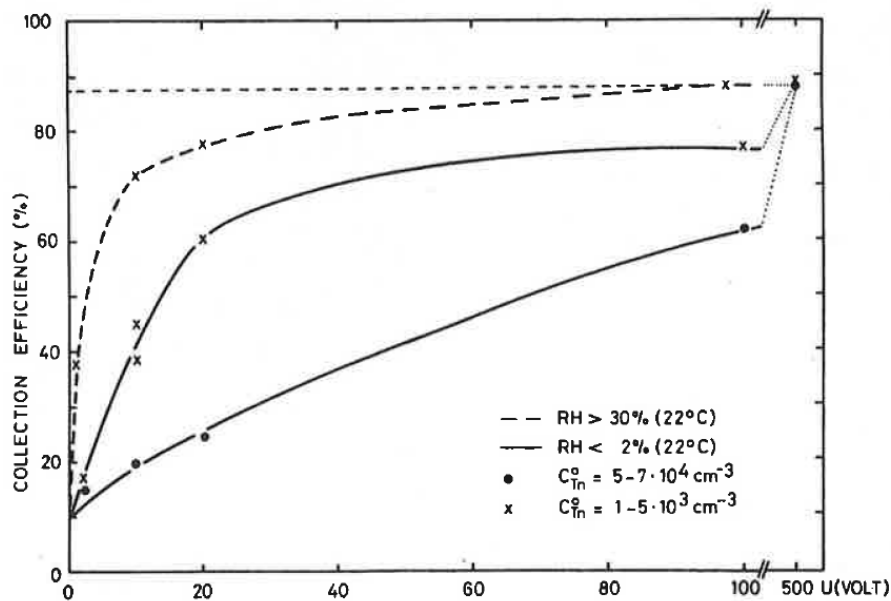


Figure 2-18 : Pourcentage des descendants collectés en fonction de la tension appliquée pour différents taux d'humidité (Porstendörfer, et al., 1979).

Ces résultats montrent que l'humidité de l'air influence le taux de capture des descendants du thoron. En effet, pour un taux d'humidité supérieur à 30 %, 88 % des descendants sont capturés avec une tension électrique de 100 V contre 500 V pour une humidité à 2 %. Ces résultats montrent ainsi que, comme pour le radon, la tension plus importante permet de limiter le temps de séjour des descendants chargés et ainsi d'éviter l'influence de l'humidité de l'air. En effet pour une tension de 500 V, le taux de descendants chargés est le même quel que soit le taux d'humidité relative de l'air (cf. Figure 2-18).

Les résultats de la Figure 2-18 et de la Figure 2-19 mettent en avant l'effet d'une activité importante sur le taux de capture des descendants. Comme pour les descendants du radon, une forte activité implique un taux de neutralisation beaucoup plus élevé. Pour un faible champ électrique, le taux de capture diminuera fortement, le champ n'étant pas assez intense pour capturer les descendants avant leur neutralisation. Cet effet n'est plus observable si le champ électrique est important, le temps de séjour étant trop faible avant leur capture.

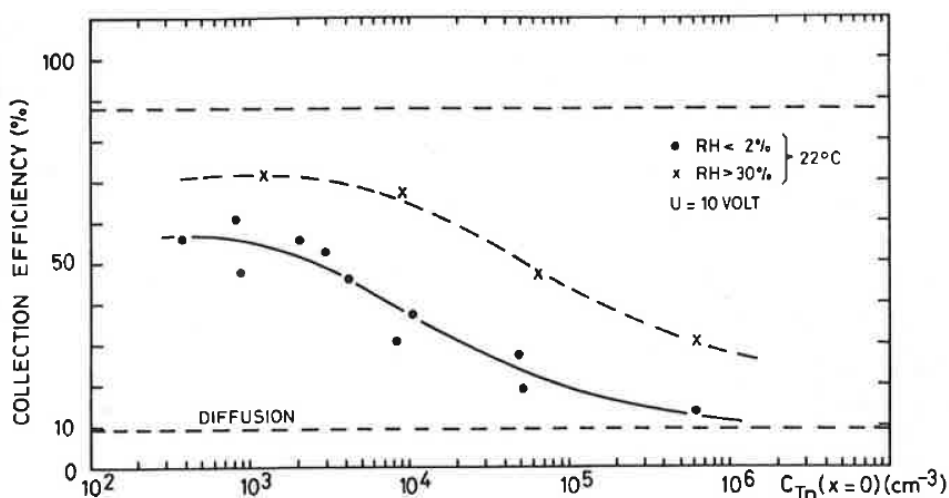


Figure 2-19 : Évolution du taux de capture en fonction de l'activité en thoron pour un champ électrique faible (Porstendörfer, et al., 1979).

Nous observons par conséquent que le taux d'humidité de l'air a un fort effet sur le taux de capture des descendants du thoron, notamment pour une faible intensité du champ électrique. Cependant ces résultats ne sont pas cohérents avec ceux obtenus pour les descendants du radon ; en effet, nous avons vu que l'effet de l'humidité était non négligeable pour des taux d'humidité entre 14,7 % et 32,6 % alors qu'entre 32,6 % et 92 %, l'effet est négligeable. De plus, un fort taux d'humidité a tendance à entraîner la neutralisation des descendants chargés comme le montrent les résultats expérimentaux du § 2.4.1 ; or dans les résultats précités, c'est l'inverse qui semble observé.

2.4.2.2. L'expérience de Dua *et al.* (1981)

Pour mesurer le pourcentage de descendants du thoron chargés, les auteurs utilisent un analyseur de mobilité électrique à plaques parallèles comme schématisé en Figure 2-15.

Lors de leurs premières expérimentations (Dua, *et al.*, 1978), les auteurs utilisent un champ électrique faible ($1,5 \text{ V.cm}^{-1}$ à 18 V.cm^{-1}) ; ils obtiennent 91,2 (29) % des descendants chargés positivement, 4,2 (21) % des descendants chargés négativement et 4,6 (25) % des descendants neutres. Après un échange d'informations avec Mercer en 1979, Dua et Kotrappa en viennent à la conclusion que le champ électrique dans le système n'était pas assez fort et qu'il y a une forte possibilité de dépôt due à la diffusion des particules. Ils décident de refaire les mesures, cette fois-ci avec un champ électrique beaucoup plus intense. Les résultats sont présentés dans le Tableau 2-5.

Tableau 2-5 : Charge des descendants du thoron pour un taux d'humidité relative de 16 % à 19 % (Dua, *et al.*, 1981).

Flux d'air (L/min)	Vitesse moyenne (cm/sec)	Champ électrique (V/cm)	Dépôt sur la partie neutre (%)	Dépôt sur l'électrode positive (%)	Dépôt sur l'électrode négative (%)
5,2	3,82	0	50,0 (4)	25 (3)	25 (3)
5,2	3,82	900	0,35 (1)	0,53 (2)	99,12 (60)
5,2	3,82	2 700	0,35 (3)	0,50 (2)	99,15 (70)
15,5	11,40	900	0,35 (1)	0,48 (2)	99,17 (70)

Dans le cas du radon, pour les mêmes conditions expérimentales (cf. Tableau 2-2), le taux de capture des descendants est plus faible (de l'ordre de 90 %). Ceci provient de la période très courte du premier descendant du thoron, ^{216}Po (0,148 s), qui lui-même décroît par émission alpha pour former le ^{212}Pb . Même si le ^{216}Po perd sa charge, il se désintègre très rapidement pour former à nouveau une particule chargée qui pourra être collectée sur l'électrode. Le premier descendant du radon (^{218}Po , $T_{1/2} = 3,071 \text{ min}$) possède une période plus grande comparée au ^{216}Po . Si la particule est neutralisée avant sa capture sur l'électrode, elle a une plus grande chance de traverser le dispositif avant sa désintégration et sera capturée par le filtre.

Ceci permet d'expliquer la différence entre la charge des descendants des deux gaz dans les mêmes conditions expérimentales. Dua et Kotrappa ont continué d'étudier les différents paramètres influençant le taux de capture des descendants du thoron et du radon (Dua, *et al.*, 1983). Ils ont ainsi réalisé plusieurs expériences pour des intensités de champ électrique différentes et des taux d'humidité allant de 5 % à 90 %.

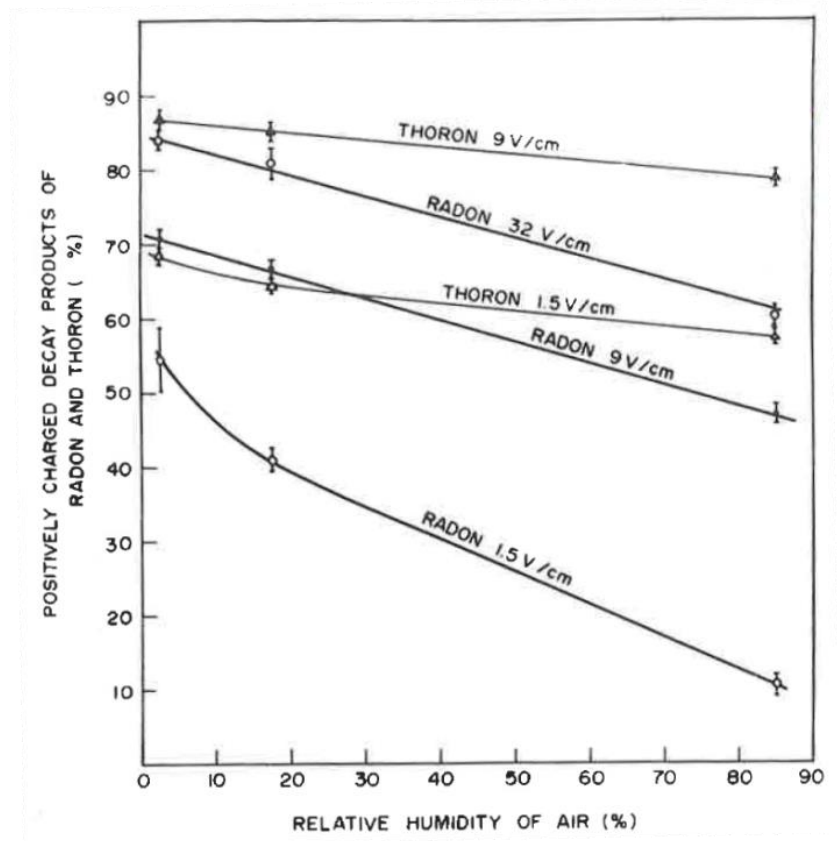


Figure 2-20 : Pourcentage des descendants chargés en fonction du taux d'humidité dans l'air (Dua, et al., 1983).

Avec ces résultats, dans les mêmes conditions expérimentales, on observe que la capture des descendants du thoron est plus rapide que ceux du radon. Dans les mêmes conditions expérimentales, les descendants du thoron sont capturés avec un champ électrique beaucoup plus faible que pour les descendants du radon à des taux similaires. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que les descendants du thoron sont plus chargés que ceux du radon. En effet l'énergie d'émission des alphas, et donc celle de l'énergie de recul des descendants, est plus importante, ce qui implique un plus grand potentiel d'ionisation. Le second effet peut provenir aussi de la période très courte du ^{216}Po qui peut se désintégrer alors qu'il possède encore de nombreuses charges et ainsi produire un descendant encore plus chargé.

Tout comme pour le radon, un taux d'humidité élevé entraîne une neutralisation importante des descendants et donc diminue le taux de capture. Cependant l'effet sur les descendants du thoron est moins prononcé. En effet, comme nous l'avons décrit précédemment, la propriété du ^{216}Po à se désintégrer rapidement par émission alpha permet à son descendant, le ^{212}Pb , de se retrouver dans un état chargé très rapidement.

Une autre expérience (Kotrappa, et al., 1980), qui consiste en un dispositif de mesure du radon et du thoron par capture des descendants, n'a pas mis en évidence une évolution de l'efficacité de collecte des descendants du thoron en fonction de l'humidité. Le champ électrique utilisé est plus élevé que précédemment. Pour un champ électrique très élevé, l'humidité du milieu aura un effet négligeable car les descendants seront capturés avant qu'ils ne soient neutralisés.

2.4.2.3. Conclusion sur le taux de descendants du thoron chargés

Ainsi dans des conditions expérimentales proches, (Porstendörfer, *et al.*, 1979) (Dua, *et al.*, 1983), il a été montré qu'il était possible de capter 90 % des descendants solides du thoron, et d'en capter la totalité pour un champ électrique assez élevé. Cependant lors de l'étude de l'influence de l'humidité, les résultats diffèrent entre les deux expériences. Cette différence reste difficile à expliquer.

L'expérience de Postendörfer utilise un tube de Zélény, un cylindre de 1 m de long et de 1,82 cm de diamètre au centre duquel se trouve un fil relié à un potentiel négatif. Dans ce dispositif, la collection des descendants se fait sur l'électrode centrale. Le champ électrique n'est pas homogène dans tout le volume : il est plus faible sur les bords du volume. À l'opposé, le système utilisé par Dua utilise deux plaques parallèles : le champ électrique est uniforme dans tout le volume.

L'autre paramètre variant entre les deux expériences est l'activité en thoron utilisée, beaucoup plus forte dans le cas de Porstendörfer, ce qui entraîne une neutralisation des descendants plus importante. Au final, la capture des descendants solides est plus importante avec le système de Dua par rapport à celui de Porstendörfer. Cet effet est amplifié par la différence de temps de séjour dans le système. Dans le cas de Porstendörfer, le temps de séjour est de 46 s contre 17,5 s pour Dua.

Tout comme les descendants du radon, les descendants du thoron produisent des particules chargées. Dans des conditions expérimentales appropriées, ces descendants seront capturés en totalité si le champ électrique est suffisamment élevé pour limiter le temps de séjour dans le volume et ainsi éviter leur neutralisation.

2.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté l'ensemble des phénomènes intervenant dans le transport des descendants du radon et du thoron régi par la physique des aérosols. Nous avons tout d'abord décidé de placer un filtre THE en entrée de notre système de mesure. Ceci nous permet d'éliminer les descendants produits avant le volume de mesure et de ne prendre en compte que le gaz et ses produits de filiations créés dans le volume de mesure. Nous avons vu que, dans ces conditions, les descendants produits dans le volume de mesure sont appelés la « fraction libre ». Il s'agit en fait de particules sous forme de petits clusters nanométriques entre 0,5 et 2 nm de diamètre.

Nous avons assimilé ces clusters à de petites sphères de 1 nm de diamètre, ce qui nous a permis de calculer l'ensemble des propriétés définissant leur transport dans l'air. Dans le cas de notre système, pour un débit de circulation élevé, le transport des descendants sera principalement lié à la vitesse d'écoulement. Si ces descendants sont chargés, un champ électrique suffisamment intense permettra de leur donner une vitesse de dérive plus importante que celle due à la vitesse d'écoulement.

Nous avons ainsi décidé d'utiliser un champ électrique dans notre système de mesure afin de capturer ces descendants à la surface du détecteur alpha tout en gardant un flux de circulation élevé, ce qui permettra d'éliminer les descendants non chargés (cf. Figure 2-21).

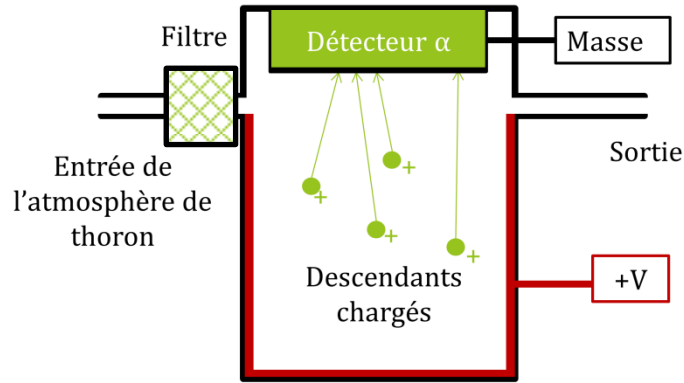


Figure 2-21 : Schéma du principe de la mesure par spectrométrie alpha du ^{220}Rn avec filtration et champ électrique.

Ce choix nous a ainsi amené à étudier les phénomènes de charge et de neutralisation des descendants du radon et du thoron dans la deuxième partie de ce chapitre. Nous avons tout d'abord vu que les phénomènes de charge des descendants proviennent à la fois de l'émission β^- et surtout de l'émission α du fait principalement de l'énergie de recul de l'atome fils qui peut produire un grand nombre de charges sur son parcours dans l'air.

Cette charge n'est cependant pas constante, les descendants du radon peuvent se neutraliser dans l'air suivant différents phénomènes que nous avons identifiés au cours de nos recherches, notamment grâce au travail de thèse d'Abou-Khalil portant sur la définition du taux de neutralisation des descendants du radon (Abou-Khalil, 2008). Ces travaux ont montré qu'il n'est cependant pas possible d'estimer ce taux de neutralisation pour l'utiliser dans notre dispositif afin d'obtenir des résultats avec une bonne qualité métrologique.

Nous avons donc décidé d'étudier les différents résultats expérimentaux obtenus sur la charge des descendants du radon et du thoron. Tous les résultats rassemblés ont montré qu'une proportion supérieure à 90 % des descendants était chargée positivement. Chacune des expériences a aussi montré l'effet des concentrations élevées en thoron (ou radon) et de l'humidité sur le taux de neutralisation des descendants.

Toutes ces expériences tendent à montrer que si le champ électrique est suffisamment intense pour capturer très rapidement les descendants, ils ne seront pas ou peu neutralisés. L'objectif principal est alors de minimiser le temps de séjour des descendants dans le dispositif, ce qui permettra d'opérer à n'importe quels taux d'humidité et activité volumique. Cette optimisation est réalisée à l'aide de simulations pour définir les dimensions et la forme du dispositif et fait l'objet du Chapitre 3.

Chapitre 3. Développement du prototype de mesure par simulations Monte-Carlo et par méthode à éléments finis

Notre dispositif se base sur une mesure par spectrométrie alpha à l'aide d'un détecteur silicium couplé à un champ électrique permettant la capture des descendants solides du ^{220}Rn . En se basant sur les premières observations réalisées, nous avons vu que ce volume doit être de préférence petit parce qu'il permettra de faire circuler plus rapidement le gaz dans le volume même pour un faible débit. Cette circulation rapide couplée à un champ électrique intense doit nous permettre de limiter le temps de séjour des descendants dans le volume et de les capturer très rapidement.

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il sera difficile d'estimer si le taux de descendants chargés sera le même dans le volume pour le ^{220}Rn et le ^{222}Rn . Notre objectif est de calculer le rendement de détection dans le cas du ^{222}Rn , de le valider expérimentalement avec un étalon de ^{222}Rn , et par la suite de refaire les calculs pour le ^{220}Rn . Du fait des propriétés différentes observées pour les descendants du radon et du thoron, il n'est plus possible d'utiliser les descendants comme point de comparaison sans faire d'approximation. Le point commun entre les deux éléments reste le gaz lui-même ; ceux-ci auront le même comportement avec pour seule différence leur période. Notre géométrie va donc être d'abord basée sur la mesure du gaz. L'objectif est donc d'être capable de mesurer le gaz par spectrométrie alpha sans que les descendants, eux aussi émetteurs alpha, ne perturbent sa mesure.

En pratique, deux solutions sont possibles :

- ↳ construire une géométrie capable de détecter les particules alpha émises par le gaz, avec un rendement identique pour le ^{222}Rn et le ^{220}Rn , et éliminer toute présence de descendants dans le dispositif à l'aide d'un champ électrique. Ces descendants sont capturés dans une partie du volume de mesure invisible pour le détecteur alpha ;
- ↳ construire une géométrie capable de détecter le ^{220}Rn ou le ^{222}Rn avec un rendement de détection identique. Les descendants sont capturés à la surface du détecteur ce qui formerait des pics alpha bien résolus sur le spectre de la mesure, alors que le gaz formera un pic large dépendant des dimensions du volume du fait de la perte d'énergie des particules alpha dans l'air. Comme la différence des énergies d'émission alpha de chaque radionucléide est bien supérieure à la résolution d'un détecteur silicium, cette configuration permet d'identifier le gaz et les descendants.

Comme nous l'avons présenté à la fin du Chapitre 2, nous avons décidé d'utiliser la deuxième option ; elle nous permettra de comptabiliser plus d'évènements. Ainsi, une fois le rendement calculé pour le gaz thoron et validé par expérience avec le ^{222}Rn , il nous sera possible d'en déduire le rendement pour chaque pic des descendants.

L'optimisation de la géométrie repose donc à la fois sur un problème de détection alpha et sur une capture des descendants à la surface du détecteur.

Nous allons utiliser des calculs Monte-Carlo, sous MCNPX 2.7 (Pelowitz, 2011), permettant de simuler le transport des particules alpha afin de calculer le rendement de détection. Il nous permettra notamment d'obtenir une représentation du spectre de mesure attendu et ainsi d'optimiser la géométrie. L'objet de la première partie de ce chapitre est de présenter le code de calcul utilisé ainsi que le modèle et la géométrie conçue. Ce chapitre ne présentera pas l'intégralité des géométries étudiées au cours de la thèse, mais seulement celle choisie ainsi que les raisons de ce choix.

La deuxième partie de ce chapitre comprend la mise en place du champ électrique dans le dispositif de mesure. Nous utilisons un code de simulation déterministe aux éléments finis, COMSOL Multiphysics 4.3 (COMSOL Inc., 2014a), qui permet de simuler le champ électrique dans une géométrie 3D et ainsi d'optimiser la forme ou l'intensité du champ. Ce code de simulation nous permet aussi de réaliser des calculs de mécanique des fluides et de les coupler aux simulations de champ électrique pour simuler le transport des particules chargées. Ces simulations ont un objectif qualitatif : nous permettre d'en déduire certaines caractéristiques du dispositif.

3.1. Modèle Monte-Carlo pour le calcul du rendement de détection du dispositif

3.1.1. Les méthodes Monte-Carlo

Les méthodes Monte-Carlo sont fondées sur l'échantillonnage de fonctions de probabilité qui décrivent des processus physiques par des tirages de nombres aléatoires. Par conséquent, ce type de méthode est adapté à la physique des rayonnements à cause de la nature stochastique des processus d'émission, d'interaction et de transport.

Dans le cas des rayonnements, une méthode Monte-Carlo simule le trajet d'une particule de sa création à sa disparition dans un milieu. Les phénomènes physiques tels que les interactions avec le milieu sont représentées par des distributions de probabilité déterminées à partir des sections efficaces d'interaction qui dépendent du type et de l'énergie de la particule ainsi que des caractéristiques du milieu. Chacun des événements (type d'interaction, angle sortant à l'issue de l'interaction et donc énergie de la particule, type de particule secondaire...) subis par la particule tout au long de son trajet sont tirés aléatoirement à l'aide de générateurs de nombres pseudo-aléatoires.

Lorsque suffisamment d'évènements sont représentés, les résultats simulent la réalité. Il peut être nécessaire de réaliser des milliards d'évènements pour certaines simulations et une grande puissance de calcul est requise pour donner un résultat rapidement. Les codes de simulation du transport des particules par méthode Monte-Carlo possèdent souvent des outils de réduction de variance ou « biasing » permettant de rendre ces calculs plus rapides.

3.1.2. Choix du code de simulation

Le choix du code de calcul pour les simulations du transport des particules alpha dans un milieu est un choix très important. Seuls trois codes de simulation en trois dimensions semblent capables de simuler le parcours des particules alpha dans un milieu en tenant compte d'un maximum de phénomènes physiques : MCNPX (Pelowitz, 2011), FLUKA (Ferrari, *et al.*, 2005) et GEANT4 (Agostinelli, *et al.*, 2003).

Notre choix s'est orienté vers le code MCNPX qui présente plus d'études dans la littérature que le code GEANT4 ou FLUKA sur les simulations du transport des particules alpha dans un milieu : (Nourreddine, *et al.*, 2005) (Geryes, 2009) (Stella, *et al.*, 2009). Toutes ces études ont été validées expérimentalement avec d'excellents accords entre les résultats, que ce soit pour des calculs de rendement ou pour la simulation de spectres alpha. Enfin ce code a été utilisé dans le cas du radon pour réaliser différents dispositifs de mesure : (Hayes, *et al.*, 2007) (Meslin, 2008) (Boyault & Michielsen, 2008) (Sabot, 2014a) (Sabot, 2014b). Leurs résultats ont eux aussi montré de bons accords avec l'expérience (écart maximal de 2 %) pour la simulation de spectres alpha obtenus par détecteur silicium sur la mesure du radon et de ses descendants dans l'air ou dans le dioxyde de carbone à basse pression.

3.1.3. Introduction du code de calcul MCNPX et description du jeu de données

MCNPX⁹ (Pelowitz, 2011) est une extension du code Monte-Carlo MCNP pour la simulation des interactions particules-matière. Il est développé au Laboratoire de Los Alamos (McKinney, *et al.*, 2006), et permet de simuler un grand nombre de particules et notamment les particules alpha.

Le programme MCNPX permet de générer le transport des particules de notre choix dans une configuration tridimensionnelle. La version utilisée dans notre cas est la 2.7 en format exécutable qui nous empêche d'avoir accès au code source de MCNPX. Le logiciel est donc utilisé sans modification de notre part.

Le jeu de données est créé par l'utilisateur dans un seul et même fichier qui sera lu par le programme. Le fichier, séparé en plusieurs parties visibles en Annexe B, comprend :

- ↳ la géométrie en 3 dimensions qui est composée de cellules construites à partir de différents types de surfaces. À chacune de ces cellules est attribué un numéro de matériau et une masse volumique associée ;
- ↳ les matériaux qui sont définis par une composition isotopique ; ces matériaux peuvent être associés à n'importe quelle cellule ;
- ↳ le type et la forme de la source qui peut comprendre un très grand nombre de paramètres : type de particule (alpha), dimensions et forme de la source, distribution en énergie (énergie d'émission alpha), probabilité d'émission associée à chaque énergie, distribution de la source. Il est cependant possible de ne simuler qu'un seul type de source à la fois : chacune des sources utilisées est présentée dans l'Annexe B ;
- ↳ le choix du « tally » qui correspond au type de résultat que nous calculons dans la cellule d'intérêt de notre choix. Ici il s'agit de la cellule du détecteur silicium, le « tally » utilisé, appelé F8, nous permet de calculer la distribution en énergie des interactions dans le volume de détection. Ce « tally » est couplé à une distribution et un découpage en énergie. Le résultat final donne un spectre alpha et le rendement de détection du dispositif de mesure ;
- ↳ la physique utilisée, le choix des modèles et les limites, avec la possibilité de forcer certaines interactions. Dans notre cas, il s'agit du model (Vavilov, 1957) ;
- ↳ l'impression des données et des tests statistiques, une des fonctionnalités très complète sur MCNPX. Une des grosses parties du développement de MCNPX a porté sur cet

⁹ MCNPX : Monte Carlo with N Particles eXtended.

ensemble de tests. Bien que complexe à déchiffrer, ils permettent de vérifier si le jeu de données est correctement construit (Hendricks & Schwarz, 2014) ;

- ↳ le temps ou le nombre d'évènements simulés. Il dépendra du type de phénomènes observés. Si le phénomène a une faible probabilité d'occurrence, il sera nécessaire de réaliser des simulations longues sur un très grand nombre d'évènements.

3.1.4. Incertitude liée aux simulations MCNPX

Les incertitudes liées aux simulations Monte-Carlo ont des composantes de type A et de type B.

La première, de type A, est liée à l'incertitude statistique σ_x qui est dépendante du nombre d'histoires simulées. Plus le nombre d'histoires simulées est important, plus l'incertitude statistique est faible. Cette incertitude est directement donnée par le code MCNPX pour chaque résultat. L'hypothèse est que la distribution des résultats donnée par MCNPX suit une loi normale, ainsi la valeur vraie de x est contenue dans l'intervalle $x \pm 3\sigma_x$ avec une probabilité de 99,7 %.

La seconde, de type B, est principalement liée à l'erreur propre à la simulation. Elle comprend l'incertitude sur le modèle physique, sur les erreurs de programmation, sur les sections efficaces,... Les codes ne fournissent pas d'information relative à ce type d'incertitude. Dans notre cas elle sera surtout dépendante de l'incertitude liée aux dimensions de la géométrie choisie.

Nos simulations étant réalisées pour un très grand nombre d'évènements, l'incertitude de type A est très faible. L'incertitude finale sur nos résultats sera principalement liée à l'incertitude de type B sur notre géométrie.

3.2. Mise en place du modèle Monte-Carlo

3.2.1. Choix du volume

Nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il est préférable de détecter le gaz, ce qui sera le plus adapté pour réaliser un transfert de rendement de ^{222}Rn vers le ^{220}Rn . Nous avons aussi vu qu'il sera possible de capturer les descendants à la surface du détecteur, qui se trouvera donc en présence de deux types de sources alpha :

- ↳ une source volumique correspondant au gaz distribué de façon homogène dans tout le volume. Ce type de source sera donc très dépendant du parcours des alphas dans le milieu (air) ;
- ↳ une source surfacique correspondant aux descendants déposés à la surface du détecteur ; ces émissions alpha perdront peu d'énergie avant d'atteindre le détecteur, cette perte sera uniquement due à l'épaisseur de la fenêtre du détecteur.

Sachant que les particules alpha perdent beaucoup d'énergie dans l'air, comme le montre le pic de Bragg (cf. Figure 3-1), nous devons utiliser une petite géométrie qui limitera cet effet et rendra le spectre alpha du gaz exploitable.

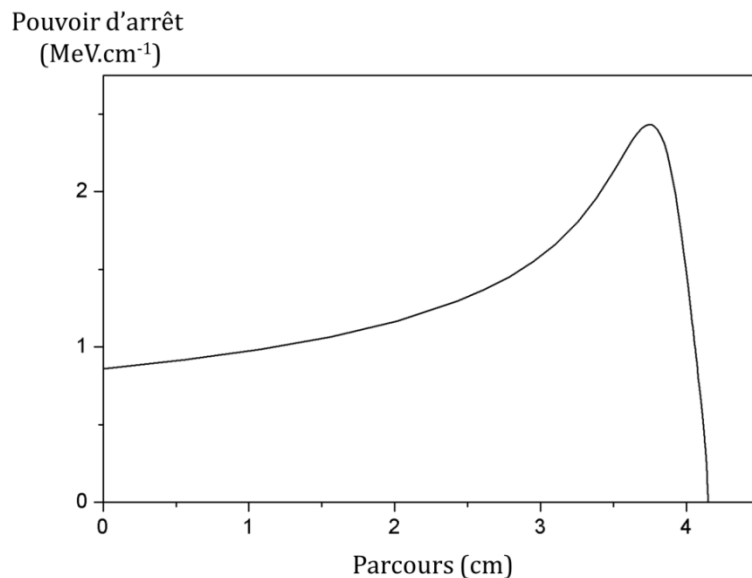


Figure 3-1 : Perte d'énergie des alphas de 5,49 MeV dans l'air (Bragg, 1904).

Les dimensions du volume ne sont pas les seuls paramètres entrant en jeu. La surface de détection est elle aussi très importante. Nous avons donc choisi d'utiliser un détecteur silicium ayant une grande surface de détection ce qui permet d'obtenir un rendement de détection plus important. Cette surface plus grande a cependant le défaut d'entraîner une diminution de la résolution du détecteur.

Nous avons donc d'abord choisi un détecteur silicium de type PD-1200-25-300AM (Canberra Ind., 2012). Il possède une surface de 1 200 mm², une résolution de 25 keV et une épaisseur de silicium de 300 µm avec une fenêtre d'environ 50 nm d'épaisseur équivalent silice. Le volume de détection ainsi choisi est de 1 cm d'épaisseur et de 39 mm de diamètre correspondant au diamètre de la surface de détection. Une coupe de cette géométrie cylindrique est représentée en Figure 3-2 :

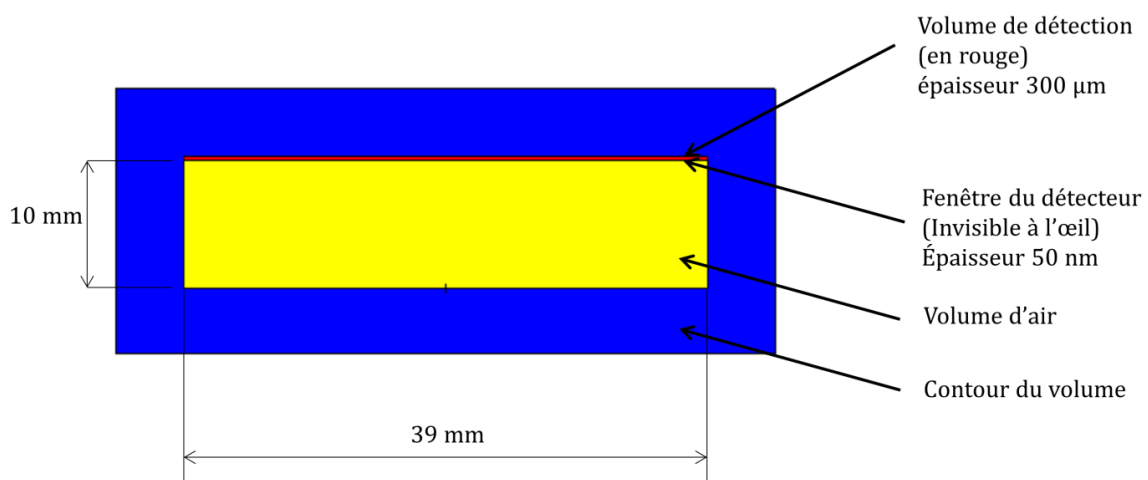


Figure 3-2 : Géométrie de détection, représentation d'une coupe avec le logiciel Vised22S (Schwarz, et al., 2015).

Cette géométrie très simple nous permet de détecter les rayonnements alpha émis par le gaz distribué de façon uniforme dans tout le volume d'air, mais aussi les descendants qui sont déposés à la surface du détecteur.

Ces dimensions ont été choisies pour limiter la perte d'énergie des émissions alpha dans l'air. Ainsi, le rendement de détection de ^{220}Rn et de ^{222}Rn sera le même si la distribution des deux gaz dans le volume est identique. Elle doit nous permettre aussi de limiter l'impact des changements de pression, température et humidité de l'air sur le rendement de détection du gaz.

Sa forme permet d'intégrer facilement le détecteur dans le dispositif de mesure. Cette intégration du détecteur dans le volume constitue une limite importante, notamment due au champ électrique à appliquer sur les surfaces du volume, comme nous le verrons dans la suite du document.

3.2.2. Évaluation des paramètres d'influence sur le calcul de rendement

Le jeu de données ainsi conçu nous permet de calculer le rendement de détection du dispositif pour le gaz et ses descendants de notre choix. Ce rendement dépendra cependant des dimensions du détecteur et de l'air présent dans le volume. Nous appliquons donc ce calcul aux différentes conditions possibles.

3.2.2.1. Influence des dimensions du dispositif sur le rendement de détection

Les dimensions du dispositif sont connues avec une incertitude associée. Soit ici un diamètre intérieur de $d = 3,896 (5) \text{ cm}$ et une hauteur intérieure de $h = 0,9575 (18) \text{ cm}$ mesurés avec une colonne ROCH étalonnée. Des variations de dimensions identiques aux incertitudes sont appliquées au jeu de données MCNPX. Les résultats sont résumés dans le Tableau 3-1 :

Tableau 3-1 : Calcul du rendement de détection en fonction des incertitudes sur les dimensions du dispositif.

Variation	Rendement ^{222}Rn	Rendement ^{220}Rn	Rendement moyen des descendants de ^{222}Rn	Rendement moyen des descendants de ^{220}Rn
<i>Normal</i>	<i>0,318 3 (3)</i>	<i>0,318 6 (3)</i>	<i>0,492 9 (2)</i>	<i>0,493 2 (2)</i>
<i>+50 μm sur d</i>	<i>0,318 5 (3)</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	-	-
<i>-50 μm sur d</i>	<i>0,318 2 (3)</i>	<i>0,318 4 (3)</i>	-	-
<i>+18 μm sur h</i>	<i>0,318 1 (3)</i>	<i>0,318 4 (3)</i>	-	-
<i>- 18 μm sur h</i>	<i>0,318 6 (3)</i>	<i>0,318 8 (3)</i>	-	-
<i>-18 μm sur h, -50 μm sur d,</i>	<i>0,318 4 (3)</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	-	-
<i>+18 μm sur h, +50 μm sur d,</i>	<i>0,318 3 (3)</i>	<i>0,318 5 (3)</i>	-	-
<i>20 nm de fenêtre équivalent en silice</i>	<i>0,318 8 (3)</i>	<i>0,318 8 (3)</i>	<i>0,496 1 (2)</i>	<i>0,496 2 (2)</i>
<i>-18 μm sur h, -50 μm sur d,</i> <i>20 nm de fenêtre équivalent en silice</i>	<i>0,318 9 (3)</i>	<i>0,318 9 (3)</i>	-	-
<i>+18 μm sur h, +50 μm sur d,</i> <i>20 nm de fenêtre équivalent en silice</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	-	-
Moyenne	0,318 5 (4)	0,318 7 (3)	0,495 (2)	0,495 (2)

L'influence des dimensions et de l'épaisseur de la fenêtre équivalent silice, dans la limite des incertitudes de mesure indiquées, est négligeable sur l'évaluation du rendement de détection des deux gaz. En effet, l'écart maximal entre les résultats est de 0,2 %, c'est-à-dire inférieur à l'incertitude-type statistique des rendements donnée par MCNPX. Les rendements de ^{222}Rn et de ^{220}Rn sont aussi calculés dans le cas où il n'y a pas de fenêtre équivalent silice, le résultat obtenu, 0,318 9 (3), est le même pour les deux gaz. Cette valeur reste compatible avec celles calculées pour les fenêtres équivalent silice de 20 et 50 nm. L'épaisseur de cette fenêtre a donc peu d'effet sur le rendement de détection du gaz. Les rendements de détection de ^{222}Rn et de ^{220}Rn sont identiques en tenant compte des incertitudes-types associées aux résultats. Ce choix de géométrie est donc adapté pour la mesure des deux gaz.

Le rendement de détection du dépôt de descendants sur le détecteur n'est, quant à lui, pas influencé par les variations de dimension. En effet, le dépôt se faisant directement sur le détecteur, le rendement sera identique quelles que soient les dimensions de la surface de détection. Cependant il n'est pas rigoureusement égal à 0,5, comme on pourrait le supposer *a priori*. L'auto-absorption de la source ici est considérée comme négligeable car il s'agit de quelques atomes déposés à la surface du détecteur. Des phénomènes de rétrodiffusion ou d'absorption dans la fenêtre du détecteur sont vraisemblablement responsables de ce rendement inférieur à 0,5 (cf. Figure 3-3).

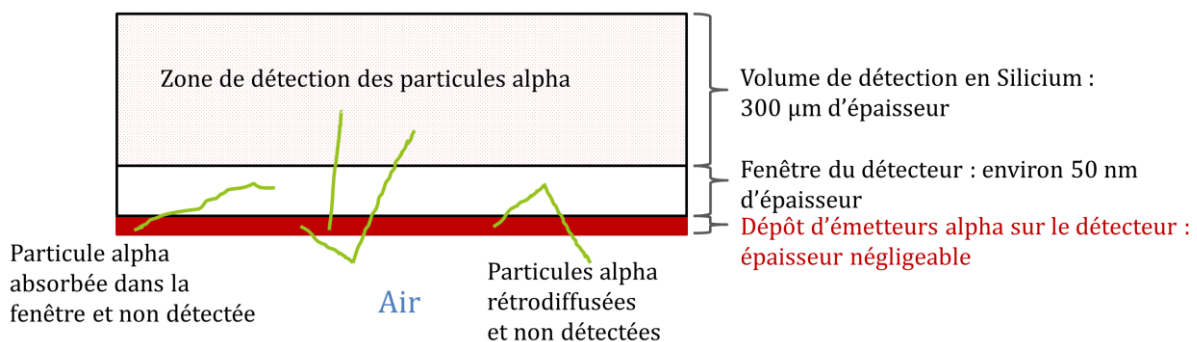


Figure 3-3 : Représentation des émissions alpha produites à la surface du détecteur.

Pour une fenêtre de 20 nm d'épaisseur, les simulations donnent un rendement plus élevé que celui obtenu pour une fenêtre de 50 nm d'épaisseur, ce qui confirme cette hypothèse. Les caractéristiques du détecteur indiquent une épaisseur de fenêtre inférieure à 50 nm sans plus de précision (Canberra Ind., 2012). Le rendement estimé pour le dépôt correspond ainsi à la moyenne des deux valeurs calculées à 20 nm et 50 nm avec pour incertitude-type l'écart entre les résultats obtenus. Cet écart est de 0,6 %. L'incertitude de l'épaisseur de la fenêtre est donc la composante principale de l'incertitude du rendement de détection du dépôt. Ces résultats tiennent cependant compte d'une très grande variation de l'épaisseur de la fenêtre équivalente en silice de 20 à 50 nm. Le rendement moyen de détection pour l'ensemble des descendants du radon et du thoron semble le même (cf. Tableau 3-1).

Pour aller plus loin, ce calcul est appliqué à chaque émission alpha des descendants séparément. Un groupe de jeux de données est ainsi conçu pour chaque émission alpha listée en Annexe A. La courbe de rendement du dépôt en fonction de l'énergie d'émission des particules est représentée en Figure 3-4.

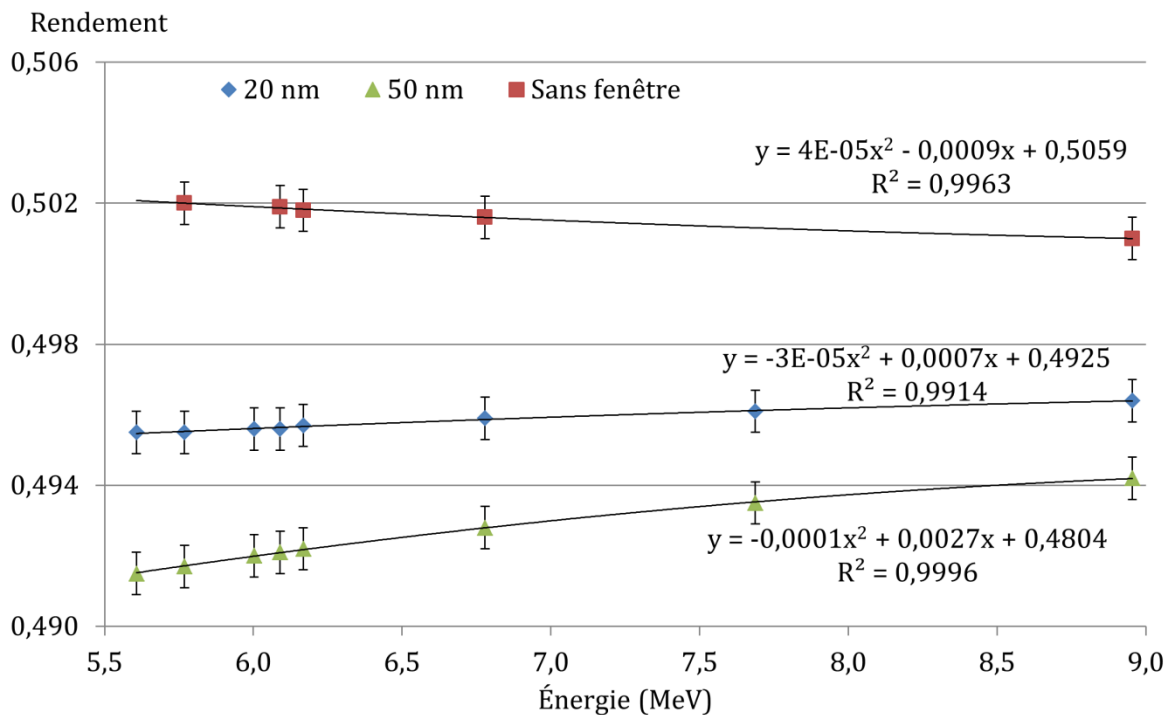


Figure 3-4 : Représentation du rendement de détection du dépôt à la surface du détecteur en fonction de l'énergie des particules alpha et de l'épaisseur de la fenêtre équivalent silice.

Les incertitudes représentées en Figure 3-4 correspondent à une incertitude élargie (trois fois l'incertitude-type donnée par MCNPX). L'écart entre les deux fenêtres varie de 0,5 % à 0,8 % de la plus grande à la plus petite énergie. Le rendement de détection propre à chaque épaisseur de fenêtre est dépendant de l'énergie de la particule alpha mais l'écart entre les résultats reste faible. En effet, entre l'émission alpha de 5,6 MeV et l'émission alpha de 8,9 MeV la variation du rendement est seulement de 0,4 % pour la fenêtre de 50 nm et 0,2 % pour la fenêtre de 20 nm.

Le rendement de détection du dépôt est aussi calculé dans le cas où la fenêtre du détecteur est supprimée. Le rendement moyen obtenu est ainsi de 0,501 6 (4). Ce résultat montre qu'une partie des alphas émis en direction opposée au détecteur peut revenir sur la surface de détection du fait d'une rétrodiffusion, soit dans l'air, soit sur le bord du détecteur.

La variation de 0,2 % du rendement en fonction de l'énergie est inversée par rapport aux cas avec fenêtre : le rendement sera plus faible pour des particules alpha très énergétiques. Ce cas sans fenêtre ne sera pas pris en compte dans l'évaluation du rendement de détection du dépôt ; il permet cependant d'observer d'autres phénomènes simulés, dont notamment l'effet de l'air sur le rendement. Une variation de densité d'air peut ainsi engendrer une variation du rendement de détection. Ce paramètre est étudié dans le paragraphe suivant.

3.2.2.2. Influence des caractéristiques du milieu sur le rendement de détection

Deux paramètres d'entrée permettent de définir le milieu dans lequel le radon est mélangé, dans notre cas l'air :

- ↳ la composition isotopique du milieu ;
- ↳ la masse volumique du milieu.

Nous nous intéressons ici aux variations de température, d'humidité et de pression de ce milieu. Nous faisons donc varier la masse volumique de l'air en fonction de ces paramètres pour les utiliser dans le code de calcul MCNPX et en déduire l'effet sur le rendement de détection.

La formule utilisée pour le calcul de la masse volumique de l'air est la suivante (Davis, 1991) :

$$\rho = \frac{P M_{air}}{Z R T} \left[1 - x_v \left(1 - \frac{M_{eau}}{M_{air}} \right) \right], \quad (3.1)$$

avec :

- ↪ x_v la fraction molaire de la vapeur d'eau ;
- ↪ T la température en K ;
- ↪ M_{air} la masse molaire de l'air en kg.mol^{-1} ;
- ↪ M_{eau} la masse molaire de l'eau en kg.mol^{-1} ;
- ↪ R la constante molaire des gaz en $\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$;
- ↪ P la pression en Pa ;
- ↪ Z_c le facteur de compressibilité de l'air.

Ainsi en prenant en compte une variation de pression de 900 hPa à 1 100 hPa, une variation de température de 285 K à 310 K et une variation du taux d'humidité de 0 à 100 % RH, la masse volumique de l'air peut varier de 1,1 à 1,4 kg.m^{-3} .

En appliquant cette variation aux jeux de données MCNPX sur le calcul de rendement des gaz ^{222}Rn et ^{220}Rn , nous obtenons les résultats présentés en Tableau 3-2 :

Tableau 3-2 : Résultats de calcul de rendement pour une masse volumique de l'air variant entre 1,1 kg.m^{-3} et 1,4 kg.m^{-3} .

Masse volumique de l'air (kg.m^{-3})	Géométrie	Rendement ^{222}Rn	Rendement ^{220}Rn
1,1	<i>Normale</i>	<i>0,318 5 (3)</i>	<i>0,318 6 (3)</i>
	<i>+18 μm sur h</i>	<i>0,318 2 (3)</i>	<i>0,318 5 (3)</i>
	<i>+ 18 μm sur h, +50 μm sur d, 20 nm de fenêtre Silicium</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	<i>0,318 7 (3)</i>
	<i>20 nm de fenêtre Silicium</i>	<i>0,318 8 (3)</i>	<i>0,318 8 (3)</i>
1,4	<i>Normale</i>	<i>0,318 2 (3)</i>	<i>0,318 6 (3)</i>
	<i>+18 μm sur h</i>	<i>0,318 1 (3)</i>	<i>0,318 4 (3)</i>
	<i>+ 18 μm sur h, +50 μm sur d, 20 nm de fenêtre Silicium</i>	<i>0,318 7 (3)</i>	<i>0,318 7 (3)</i>
	<i>20 nm de fenêtre Silicium</i>	<i>0,318 8 (3)</i>	<i>0,318 8 (3)</i>
Moyenne		<i>0,318 5 (3)</i>	<i>0,318 6 (3)</i>

Les simulations prennent en compte aussi les plus grandes variations dues aux incertitudes sur les dimensions du dispositif ainsi que l'épaisseur de la fenêtre du détecteur en silicium.

Le rendement moyen ainsi calculé tient compte de l'ensemble des paramètres pouvant intervenir dans la mesure : variation de pression, température, humidité, incertitude sur la

dimension du volume de mesure, incertitude sur l'épaisseur de la fenêtre de détection du PIPS. Le rendement pour le ^{220}Rn est ainsi de 0,318 6 (3) alors que le rendement de détection de ^{222}Rn est de 0,318 5 (3). Les deux résultats sont compatibles en tenant compte de leur incertitude. Nous pouvons ainsi dire que, dans notre système, le rendement pour les deux gaz est le même, et indépendant des conditions atmosphériques.

Cette étude est étendue aux descendants du radon et du thoron déposés à la surface du détecteur. En effet, des particules alpha émises en surface du détecteur et en direction du volume d'air peuvent revenir à la surface du détecteur et ainsi être détectées (cf. Figure 3-3). Ce phénomène peut être à la fois fonction de l'énergie de la particule et de la masse volumique de l'air. Le rendement de détection est ainsi calculé en fonction de l'énergie de la particule pour les deux épaisseurs de fenêtre 20 nm et 50 nm et pour les deux masses volumiques d'air, soit $1,1 \text{ kg.m}^{-3}$ et $1,4 \text{ kg.m}^{-3}$ (cf. Figure 3-5).

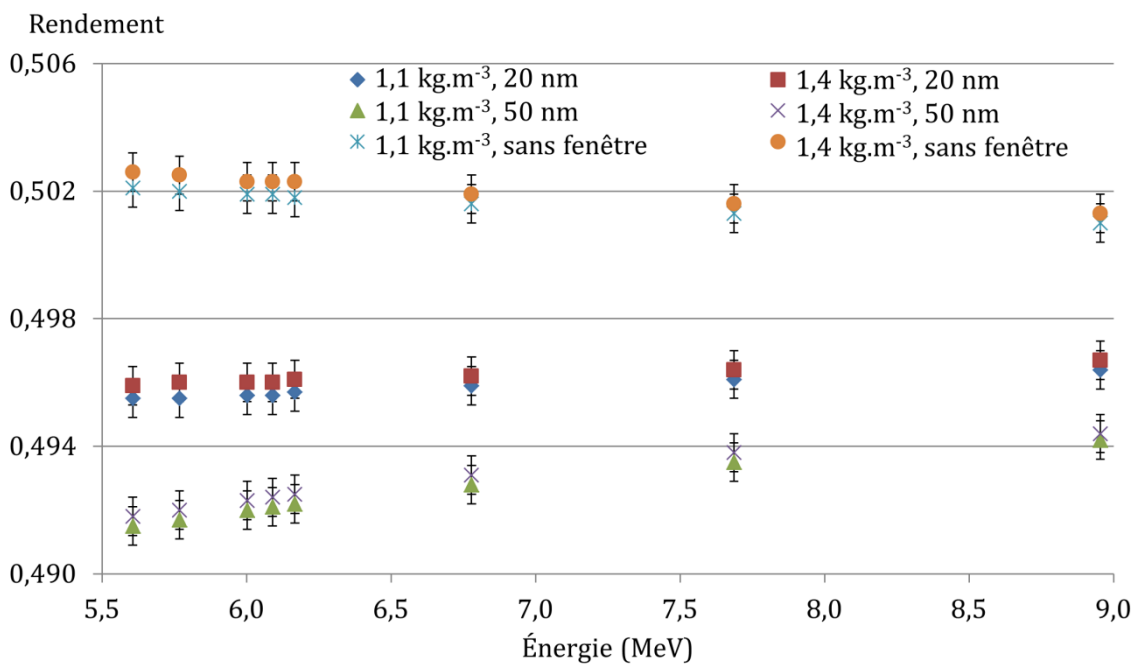


Figure 3-5 : Représentation du rendement de détection du dépôt à la surface du détecteur en fonction de l'énergie des particules alpha.

Pour les deux épaisseurs de silicium de fenêtre du détecteur, l'écart de 0,09 % entre les résultats pour les deux masses volumiques d'air est négligeable comparé aux incertitudes associées aux simulations. L'effet de la variation de la température, de la pression ou du taux d'humidité sur le rendement de détection du dépôt est donc négligeable. L'écart entre les deux résultats reste principalement lié à l'épaisseur de la fenêtre du détecteur.

En résumé, le rendement de détection lié au pic du gaz de ^{220}Rn ou de ^{222}Rn est donc de 0,318 6 (3) et le rendement moyen de détection lié au dépôt sur le détecteur silicium est de 0,495 (2). L'incertitude sur le rendement de détection du dépôt est plus grande du fait de l'incertitude importante choisie sur l'épaisseur de la fenêtre équivalent silice. Ne disposant pas plus d'informations sur les caractéristiques du détecteur de la part du constructeur, nous avons décidé d'utiliser une plage d'épaisseur comprise entre 20 nm et 50 nm. Cette incertitude sur l'épaisseur de la fenêtre aura ainsi un impact prédominant sur le rendement du dépôt mais restera négligeable pour le rendement de détection du gaz.

3.2.3. Forme du spectre attendu avec le dispositif

MCNPX nous permet de tracer le spectre en énergie théorique obtenu avec le détecteur silicium. Comme il n'est pas possible de réaliser un seul et même jeu de données pour deux types de sources, deux jeux de données sont lancés séparément. Un premier permet de simuler le gaz et un deuxième l'ensemble des descendants. Les résultats des spectres en énergie sont alors sommés en admettant que le gaz et les descendants sont à l'équilibre comme calculé en Figure 1-3 et Figure 1-13 du Chapitre 1. Le rendement calculé pour chaque radionucléide tient ainsi compte des rapports d'embranchement obtenus à l'aide des données des radionucléides (Bé, *et al.*, 2013) et de la géométrie.

Les simulations sont réalisées pour les deux gaz et leurs descendants séparément et l'ensemble des résultats sont représentés en Figure 3-6 pour le radon et en Figure 3-7 pour le thoron.

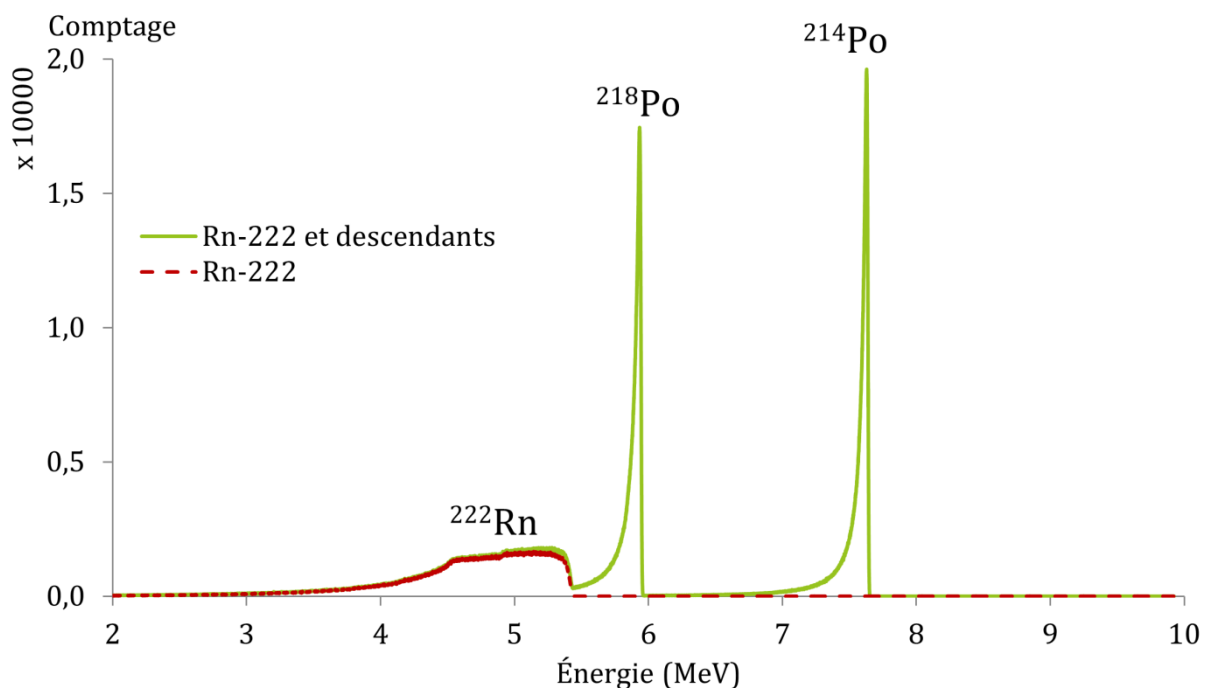


Figure 3-6 : Spectre théorique de ^{222}Rn et de ses descendants déposés à la surface du détecteur après une exposition de 4 heures à une atmosphère de ^{222}Rn .

Le spectre théorique de ^{222}Rn , calculé avec MCNPX, présente la forme recherchée pour l'analyse du gaz et de ses descendants. Le gaz est bien identifiable par un pic alpha très large avec une forme caractéristique due à la géométrie. Les descendants déposés sur le détecteur forment des pics bien résolus. Notons que, à l'équilibre, le pic de ^{214}Po est plus grand que le pic de ^{218}Po . Cet effet provient du rapport d'embranchement entre le ^{214}Po et ^{218}Po évalué à $\frac{A_{218\text{Po}}}{A_{214\text{Po}}} = 0,991\ 53$ (cf. § 1.1.1). Cet effet de hauteur peut aussi provenir du straggling des particules alpha dans la fenêtre équivalant silice. Cet effet est d'autant plus important que l'énergie est faible. Le pic alpha de ^{218}Po sera donc plus large et à aire égale sa hauteur sera réduite comparée à celle du pic de ^{214}Po . Ce phénomène est cependant moins important que le facteur d'équilibre.

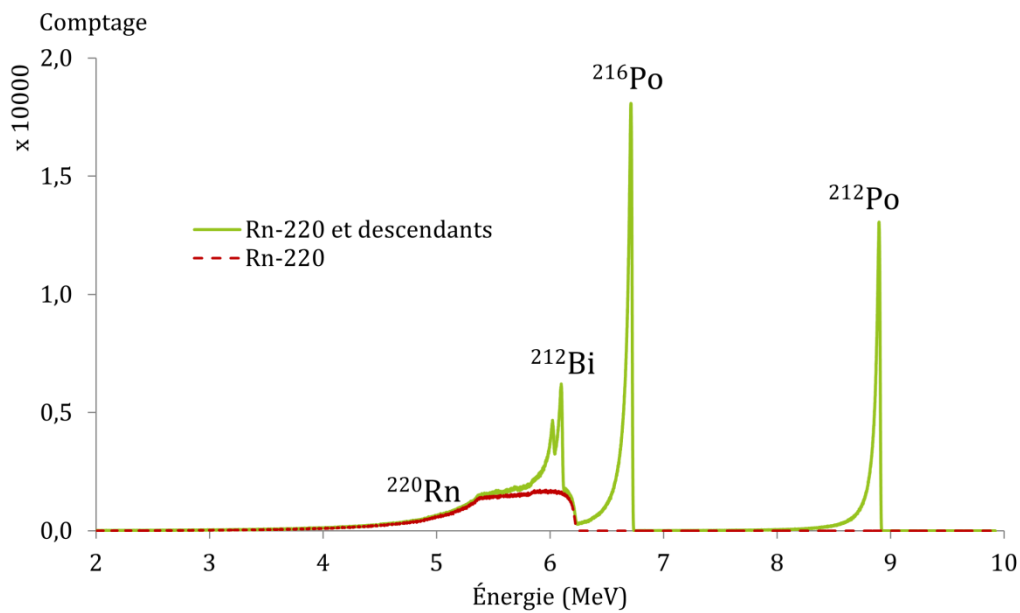


Figure 3-7 : Spectre théorique de ^{220}Rn et de ses descendants déposés à la surface du détecteur après une exposition de 4 jours à une atmosphère de ^{220}Rn .

De façon analogue au spectre de ^{222}Rn , le spectre de ^{220}Rn présente un pic large pour le gaz de la même forme que celui de ^{222}Rn avec un rendement identique en tenant compte des incertitudes associées. Les descendants quant à eux forment des pics bien résolus et bien identifiables. À l'inverse de ^{222}Rn , le pic de ^{220}Rn est perturbé par les pics alpha de ^{212}Bi . Nous devons ainsi trouver un moyen de supprimer ce comptage. Cette méthode fera l'objet de la partie expérimentale présentée en Chapitre 5.

Le spectre est aussi simulé pour une variation de la masse volumique de l'air de $1,1 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ à $1,4 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$, l'effet n'est pas visible sur les pics des descendants déposés à la surface du détecteur. Il est uniquement visible sur le pic du gaz, comme illustré par les résultats sur le pic de ^{222}Rn présenté en Figure 3-8.

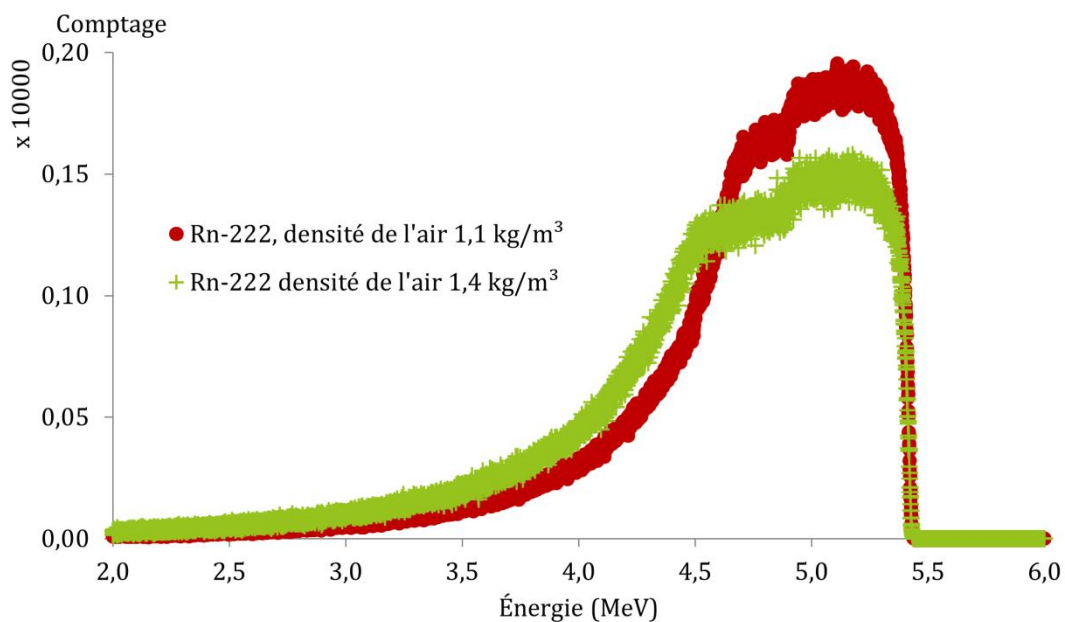


Figure 3-8 : Représentation de l'influence de la masse volumique de l'air sur le pic de ^{222}Rn .

Ces résultats sont aussi observés sur le pic du ^{220}Rn , il sera donc important de choisir une région d'intérêt assez grande pour l'analyse du spectre afin de ne pas avoir d'impact sur le comptage. La solution la plus adaptée sera d'utiliser une fonction mathématique à ajuster sur le pic pour estimer sa surface et qui tiendra bien compte de la traîne associée au pic.

Les simulations nous permettent également de représenter un spectre théorique obtenu pour une atmosphère de ^{220}Rn et de ^{222}Rn . Nous considérons ici que l'activité volumique en ^{222}Rn et en ^{220}Rn est identique et que le dispositif a subi 4 jours d'exposition à cette atmosphère. Les descendants capturés à la surface du détecteur sont donc à l'équilibre avec le gaz (cf. Figure 3-9).

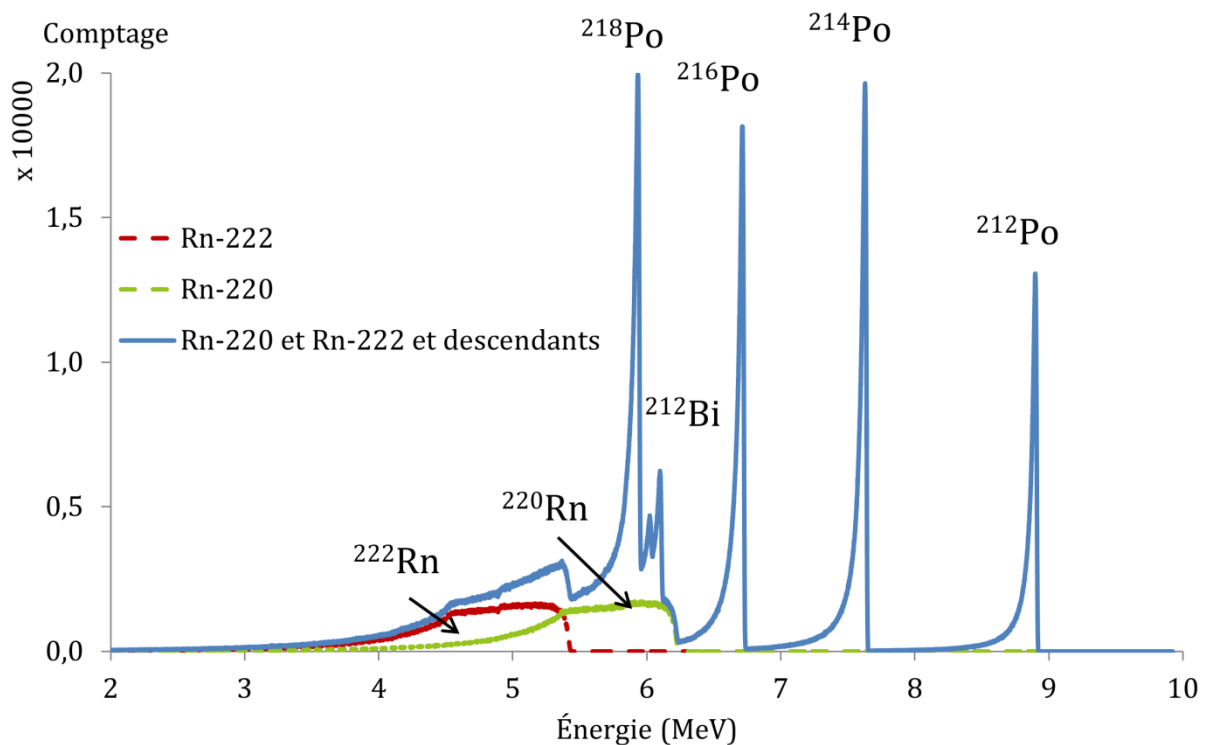


Figure 3-9: Spectre théorique d'un mélange de ^{222}Rn et de ^{220}Rn après 4 jours d'exposition pour une activité volumique constante et identique pour les deux gaz.

Bien que ceci ne soit pas l'objectif principal du dispositif de mesure, les simulations nous montrent qu'il est possible de mesurer le mélange des deux gaz. Seuls trois pics seront bien identifiables lors de la mesure, le ^{216}Po , le ^{214}Po et le ^{212}Po : il sera possible d'estimer l'activité volumique en ^{222}Rn et ^{220}Rn respectivement à partir des pics de ^{214}Po et de ^{212}Po .

Ces résultats obtenus par simulation sont considérés comme l'optimum possible. En effet, ils ne tiennent compte que de la géométrie du détecteur et notamment de l'épaisseur de sa fenêtre en silicium (ici 50 nm). Le spectre expérimental sera dégradé en résolution à cause du bruit électronique induit par la chaîne d'acquisition : préamplificateur, alimentation, amplificateur, mise en forme du signal et analyseur multicanal. Chacun de ces éléments de la chaîne d'acquisition peut engendrer une dégradation de la résolution et donc des pics plus larges. Enfin un dépôt de particules ou de poussières sur le détecteur peut, lui aussi, dégrader la résolution du système : le choix de travailler en atmosphère dépoussiérée est donc le plus adapté pour éviter ce phénomène. Le filtre en entrée de notre dispositif est ainsi nécessaire pour éviter une dégradation de la résolution des spectres.

3.3. Modélisation du champ électrique pour la capture des descendants à la surface du détecteur

Par simulation MCNPX, nous avons défini une géométrie adaptée à la mesure de ^{222}Rn et du ^{220}Rn avec leurs descendants capturés à la surface du détecteur.

Cette partie présente le modèle adapté à la création d'un champ électrique dans le dispositif. Dans cette section, nous décrirons notre choix sur la forme de l'électrode après avoir fait un bref rappel sur l'électromagnétisme et sur les limites disruptives dans l'air.

3.3.1. Introduction sur le champ électrique

L'objectif de cette étude est de tracer les lignes de champs issues de deux conducteurs électriques. Prenons la circulation du champ le long d'une ligne allant de A vers B ; soit \vec{dl} le déplacement élémentaire le long d'une ligne de champ électrostatique. \vec{E} est parallèle à \vec{dl} dans le vide (cf. Figure 3-10).

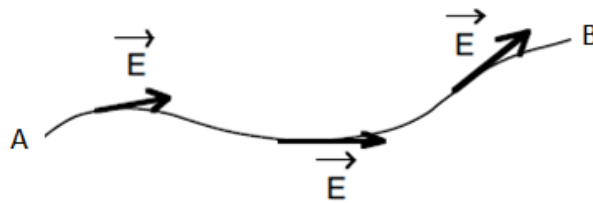


Figure 3-10 : Ligne de champ.

Le potentiel électrostatique V est relié au champ électrostatique \vec{E} par la relation :

$$\vec{E} = -\overrightarrow{\text{grad}} V \quad (3.2)$$

avec le potentiel V en B s'exprimant par la relation :

$$V_B = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \iiint \frac{\rho_V dV}{r} + V_A \quad (3.3)$$

où ϵ_0 est la permittivité du vide, ρ_V la densité de charge volumique, r la distance entre les deux points A et B .

Le potentiel entre deux points s'exprime par la relation (3.4):

$$\int_A^B \vec{E} \cdot \vec{dl} = -\int_A^B dV = V_A - V_B. \quad (3.4)$$

La circulation ne dépend pas du chemin suivi. Le long d'une ligne de champ avec $\vec{E} \cdot \vec{dl} > 0$ et un potentiel V_A supérieur à V_B , les lignes de champ sont orientées dans le sens des potentiels décroissants.

À l'intérieur d'un conducteur, le champ électrostatique total est nul. Dans le cas où le conducteur est chargé, il existe un champ électrique non nul à sa surface. À l'équilibre, il est équipotentiel et le champ électrostatique est normal à la surface du conducteur. La forme du

conducteur est donc le facteur prédominant pour l'orientation des lignes de champ (Cf. Figure 3-11).

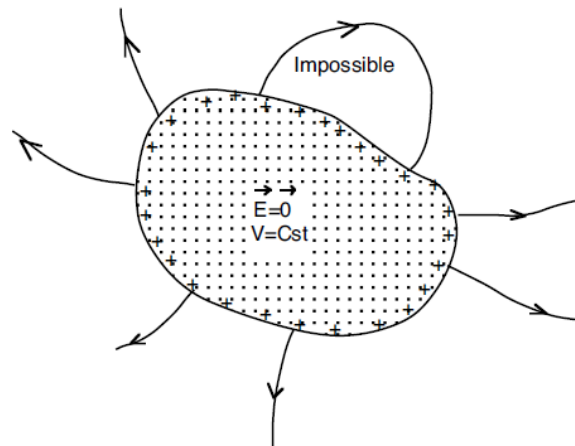


Figure 3-11 : Champ électrostatique, une ligne de champ ne peut pas revenir sur la surface du conducteur.

Connaissant ces propriétés, il est donc essentiel d'établir la géométrie de l'électrode qui sera déterminante pour l'orientation des lignes de champ. Dans notre cas, la surface du détecteur utilisé ainsi que son armature sont reliées à la masse et correspondront à notre potentiel 0. Toutes les lignes de champ du dispositif convergeront donc vers ces surfaces.

3.3.2. Limites disruptives

La conception du dispositif impose des limites physiques. Il est primordial d'éviter la création d'un phénomène disruptif entre la surface de l'électrode et la surface du détecteur. Ce phénomène engendrerait la destruction du détecteur silicium.

Cette partie permet de traiter le problème des phénomènes disruptifs afin de déterminer les dimensions minimales possibles pour notre chambre dans l'air et dans le vide. Un phénomène disruptif correspond à la formation de claquages électriques entre deux électrodes. Ce phénomène provient d'une avalanche électronique issue de l'interaction des électrons avec le milieu, créant ainsi une multitude d'ions et la production d'étincelles. Dans notre cas il s'agit d'un claquage possible entre la surface du détecteur et la surface de l'électrode.

Le physicien allemand Friedrich Paschen a mis en évidence une relation en 1889, connue sous le nom de loi de Paschen, permettant de montrer que la tension de claquage U_c dépend du produit de la pression P et de la distance d entre les électrodes :

$$U_c = S_c j \frac{Pd}{\ln[i Pd] - k} \quad (3.5)$$

avec

- ↳ S_c , le facteur de Schwaiger ;
- ↳ i, j et k des constantes qui ont été déterminées expérimentalement pour différents types de gaz ;
- ↳ d , la distance minimale entre les deux électrodes.

Plusieurs facteurs influencent la création de claquages :

- ↳ la forme des électrodes formant un champ plus ou moins uniforme. Cette influence est traduite par le facteur de Schwaiger S_c (Cf. Figure 3-12). Ce paramètre est un facteur important, par exemple pour un angle droit $S_c = 0,6$;

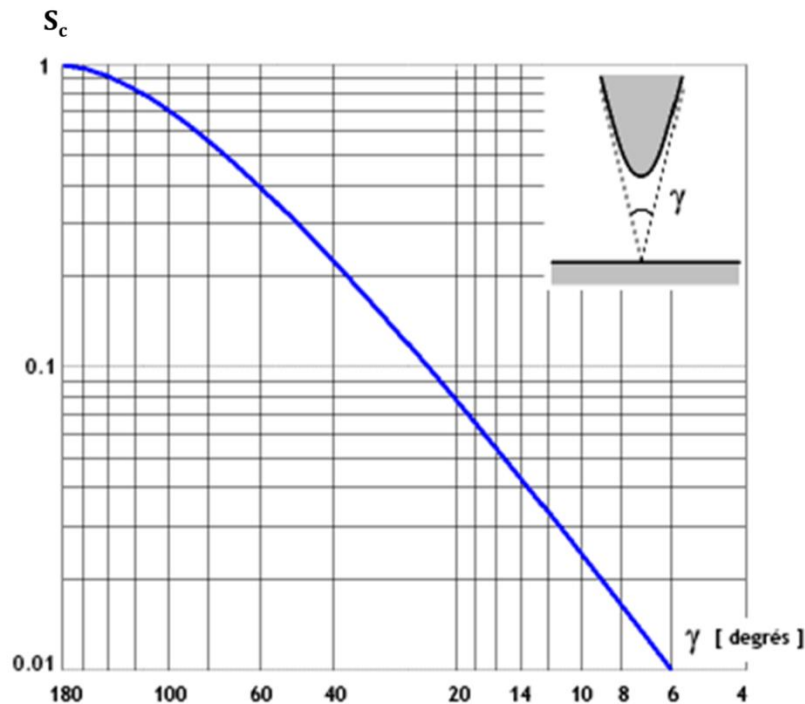


Figure 3-12 : Expression du facteur de Schwaiger (S_c) en fonction de l'angle formé par les asymptotes de l'hyperboloïde de la pointe (Prinz, 1969).

- ↳ les conditions atmosphériques de pression, température et humidité ;
- ↳ la nature de la tension appliquée (fréquence, alternative ou continue) ;
- ↳ la vitesse d'accroissement de la tension ; par expérimentation il a été montré que la tension à laquelle le claquage survient est d'autant plus faible que sa vitesse d'accroissement est plus grande.

Dans notre cas, le milieu entre les électrodes est de l'air sec à pression atmosphérique et à température ambiante et le système peut être aussi dans le vide (air à très faible pression de l'ordre de 10^{-5} hPa). L'air est un milieu isolant naturel et de ce fait, beaucoup de publications présentent l'étude des phénomènes de rupture diélectrique de l'air dans les conditions normales de pression et de température.

Le document (Dakin, *et al.*, 1971) est une synthèse des différentes données expérimentales obtenues pour différents gaz. La courbe de Paschen synthétisant les différents résultats pour l'air est présentée en Figure 3-13. Le champ électrique utilisé dans ces expériences étant très uniforme, le facteur de Schwaiger est donc de 1.

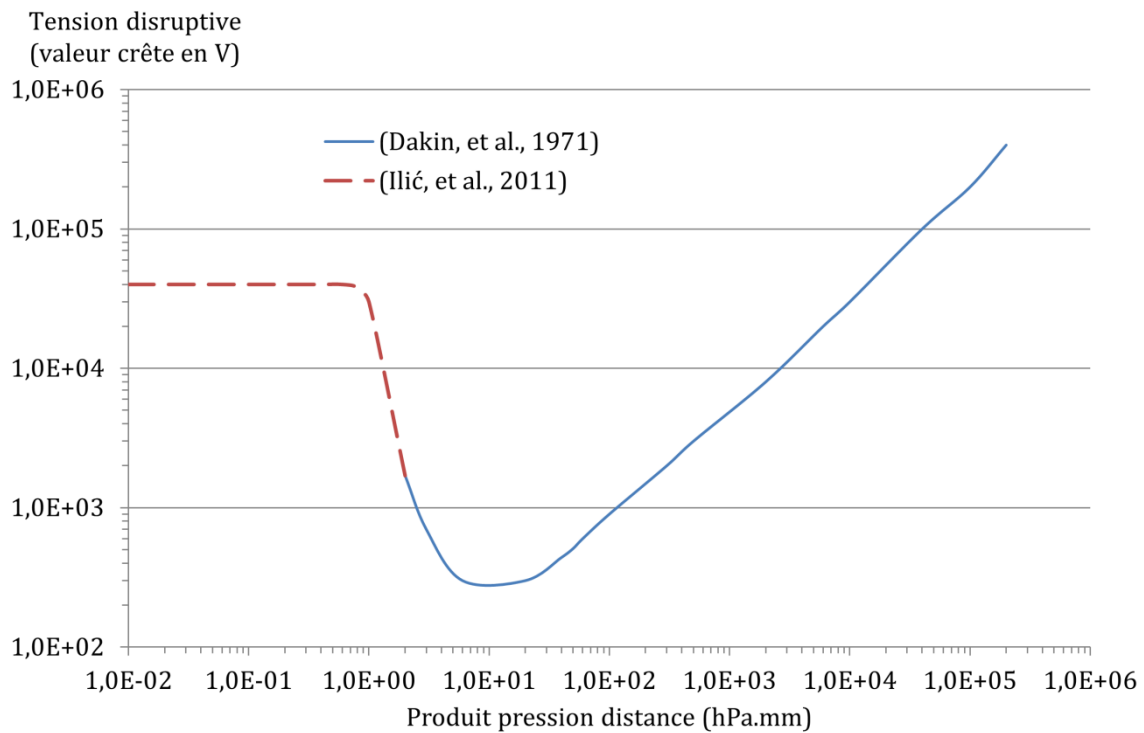


Figure 3-13 : Courbe de Paschen pour l'air à 20 °C.

Ces résultats montrent qu'à pression atmosphérique, l'air est un bon isolant. En effet pour une tension entre les deux électrodes de l'ordre de 2 kV la distance minimale avant rupture est de 0,3 mm.

Dans le cas d'une entrée de tube, c'est-à-dire la présence d'un angle droit, il faut tenir compte du facteur de Schwaiger qui est de 0,6 sur la tension de rupture soit $3,4 \times 0,6 \approx 2$ kV. Ainsi en utilisant la courbe précédente, la distance minimale sera de 0,8 mm entre un angle droit et la surface de l'électrode pour 2 kV de tension.

Dans l'air, il est donc possible d'utiliser une forte différence de potentiel avant d'obtenir des phénomènes disruptifs. Dans notre cas, nous utiliserons une distance minimale entre les deux électrodes de l'ordre de 2 mm, ce qui est bien au-dessus des limites précédentes.

Cette limite n'étant cependant pas applicable aux faibles pressions, il ne sera donc pas possible d'utiliser le dispositif pour des pressions de l'ordre de 100 hPa où la tension de claquage sera inférieure à 2 kV pour une distance de 2 mm.

Dans le cas d'un vide plus poussé, la densité d'atomes dans le milieu deviendra trop faible pour produire une cascade électronique et donc un phénomène disruptif. Cette hypothèse a été vérifiée expérimentalement pour différents gaz comme le montre la Figure 3-13 avec les données de (Ilić, *et al.*, 2011). Il sera donc possible d'utiliser le dispositif avec un champ de 2 kV pour une pression inférieure à 1 Pa.

La limite de tension à appliquer entre les deux électrodes est donc de 2 kV pour une distance minimale de 2 mm à pression atmosphérique ou encore inférieure à 1 Pa. Il ne sera pas possible d'utiliser ce système pour des conditions de pression comprises entre 0,1 hPa et 300 hPa.

3.3.3. Code de simulation utilisé

Le code utilisé pour la simulation du champ électrique dans le dispositif de mesure est le logiciel Comsol Multiphysics 4.3b (COMSOL Inc., 2014a). Il s'agit d'un code utilisant une méthode déterministe qui résout les équations après avoir discrétisé les variables. Dans le cas de Comsol, le logiciel est basé sur la méthode des éléments finis (FEM¹⁰). Cette méthode est utilisée pour résoudre numériquement des équations aux dérivées partielles qui peuvent représenter analytiquement un comportement dynamique de certains phénomènes physiques.

De manière simplifiée, cette méthode consiste à découper un volume en petites formes élémentaires pour former un « maillage ». Les paramètres de l'état de l'objet définis dans chaque maille du maillage sont reliés par des équations algébriques à ceux des mailles voisines.

L'avantage de Comsol est qu'il s'agit d'un logiciel très complet pour l'ingénierie et la recherche. Il permet la construction de géométries complexes en 3D, de disposer d'un grand nombre de phénomènes physiques (fluide, mécanique, électrique, thermique, particules...), d'utiliser son propre système de maillage, de disposer de plusieurs type de solveur suivant la physique utilisée, il permet aussi d'intégrer ses propres équations... (COMSOL Inc., 2013). Enfin son point fort est qu'il permet de coupler plusieurs phénomènes physiques entre eux afin de résoudre des problèmes complexes. Il dispose aussi d'un grand nombre de possibilités pour l'exploitation et le traitement des résultats de calcul.

L'utilisation du logiciel se résume en plusieurs étapes :

- ↳ la création de la géométrie en 1D, 2D ou 3D. Elle peut être à la fois composée de formes géométriques simples ou de modèles CAO¹¹ ;
- ↳ la définition des matériaux composant chacun des volumes de la géométrie. Ces matériaux peuvent à la fois être créés par l'utilisateur ou en utilisant la bibliothèque du logiciel. À chacun de ces matériaux, seront associées toutes les constantes physiques nécessaires au problème (permittivité, densité, viscosité, conduction thermique,...) ;
- ↳ la définition de la physique simulée qui permettra à la fois de définir les équations et les phénomènes à prendre en compte mais aussi les conditions aux limites du modèle. Cette physique sera directement liée aux matériaux utilisés dans la construction du modèle et fera appel aux constantes propres de ces matériaux ;
- ↳ la définition du maillage : Comsol dispose de son propre système de maillage qui est attribué à chaque type de physique ; il est aussi possible de construire le maillage de son choix en entrant toutes les caractéristiques des mailles dans le logiciel ;
- ↳ le choix du solveur, le logiciel proposant plusieurs solveurs propres à la société Comsol ou bien d'autres compagnies ou organismes de recherche. Les solveurs sont propres à chaque physique utilisée ;
- ↳ le type de grandeur à analyser. Le logiciel résolvant les équations dans l'intégralité du modèle, il est ainsi possible de choisir sa zone d'intérêt, la grandeur à analyser et le type de graphique en 2D ou 3D. Le logiciel dispose d'un grand choix de fichiers de sortie ainsi que la possibilité de créer des animations ou films décrivant l'évolution du système simulé au cours du temps.

¹⁰ FEM : Finite Elements Method

¹¹ CAO : Conception Assistée par Ordinateur.

En utilisant chacune de ces étapes nous pouvons ainsi construire un jeu de données capables de simuler le champ électrique dans notre volume. Du fait du caractère multi-physique du logiciel, il sera possible de coupler ce jeu de données avec les calculs de vitesse de fluide et de transport de particules pour en déduire les limites du dispositif.

Nous nous servirons de ce logiciel pour son aspect qualitatif : nous ne cherchons pas à simuler l'ensemble des phénomènes dans le dispositif pour en déduire un rendement de capture des descendants. Comme nous l'avons vu précédemment, ce processus est très complexe, il dépend de beaucoup de paramètres et la plupart sont mal définis. Ces rendements de capture seront par la suite déterminés expérimentalement (Chapitre 4 et Chapitre 5).

3.3.4. Choix de la forme de l'électrode et limites

Notre géométrie de base est de forme cylindrique. Nous relierons la surface de détection et donc l'armature du détecteur à la masse électrique et la surface interne du volume à un potentiel V . Ces deux caractéristiques sont les deux limites de notre modèle.

La géométrie la plus simple pour le dispositif semblerait être deux électrodes planes face à face. Cependant, du fait de la distance entre les deux surfaces d'environ 1 cm, une telle configuration produirait des lignes de champ orientées vers les côtés du volume (Sabot, 2014a). La géométrie choisie correspond à celle présentée en Figure 3-14.

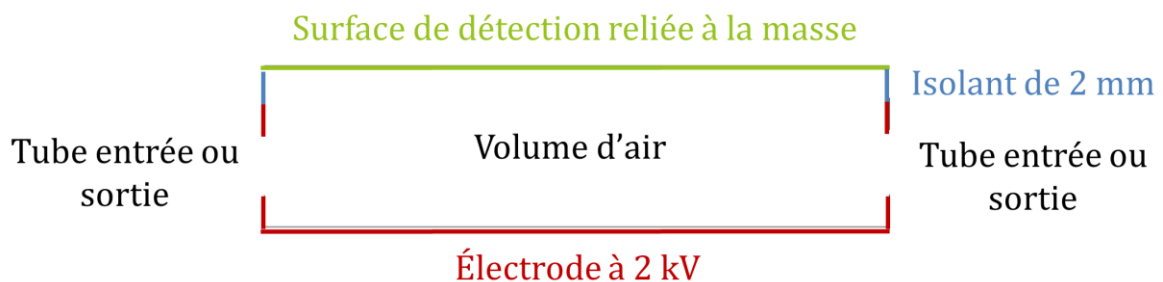


Figure 3-14 : Coupe de la géométrie de l'électrode dans le volume de mesure.

En tenant compte des observations synthétisées en § 3.3.2, nous simulons les lignes de champ pour un potentiel maximal de 2 kV au niveau de l'électrode. La distance minimale entre les deux électrodes est de 2 mm. Deux trous permettent de représenter une entrée et une sortie d'air de diamètre 4 mm et d'ainsi observer leur effet sur le champ électrique. Ce modèle simple est suffisant pour représenter les lignes de champ dans le volume. Du fait de la symétrie du volume, une coupe du cylindre est suffisante pour définir les lignes de champs : deux simulations seront faites, une avec les trous et une sans.

La géométrie 2D est maillée à l'aide de quadrilatères, ce choix étant le plus approprié à la géométrie et tout à fait compatible avec ce type de simulation.

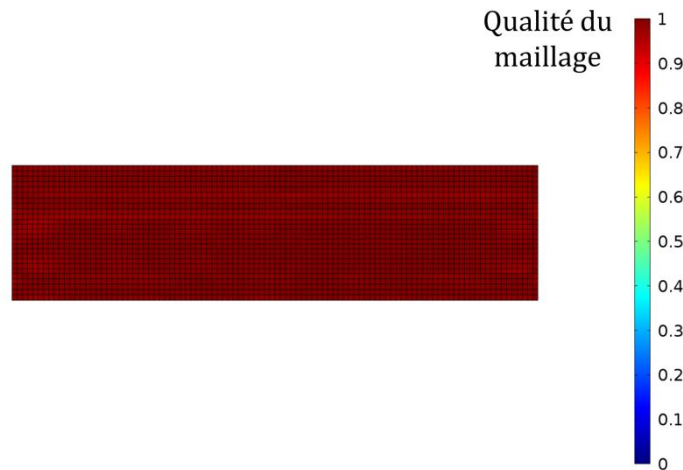


Figure 3-15 : Représentation du maillage à base de quadrilatères de la géométrie en 2D.

La qualité du maillage est ici représentée en Figure 3-15, l'indice de qualité, exprimé de 0 à 1, dépend de plusieurs facteurs :

- ↳ la forme géométrique de la maille utilisé (carrée, hexagonale, tétraédrique,...) ;
- ↳ la distribution en taille des mailles ;
- ↳ le « facteur de forme » qui dépend des angles formant chaque maille ; plus les angles des mailles sont différents, plus la qualité est mauvaise ;
- ↳ le ratio des surfaces des éléments ; une distribution homogène des dimensions de chaque maille sera plus adaptée pour la simulation ;
- ↳ la physique utilisée.

Cet indice de qualité doit être supérieur à 0,6 selon les critères du logiciel ; ici il est de 0,9912.

Le volume interne est composé d'air, le seul paramètre physique utilisé dans les simulations est la permittivité de l'air sec qui est de $\epsilon_0 = 1$. Les résultats des simulations sont présentés en Figure 3-16 :

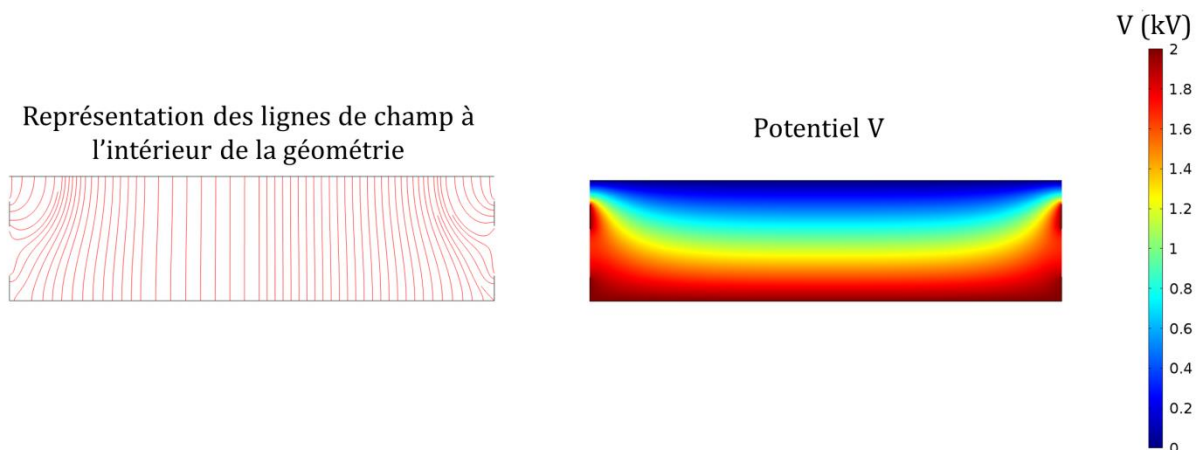


Figure 3-16 : Lignes de champ et potentiel en kV dans le volume avec les tubes d'entrée et de sortie.

Avec cette géométrie, les lignes de champ sont bien toutes orientées vers la surface du détecteur, la partie isolante est trop petite pour les perturber. Cette géométrie d'électrodes semble donc la plus adaptée.

Une seconde simulation est lancée, cette fois-ci sans les tubes d'entrée et de sortie qui sont remplacés par l'électrode. Les résultats sont présentés en Figure 3-17.

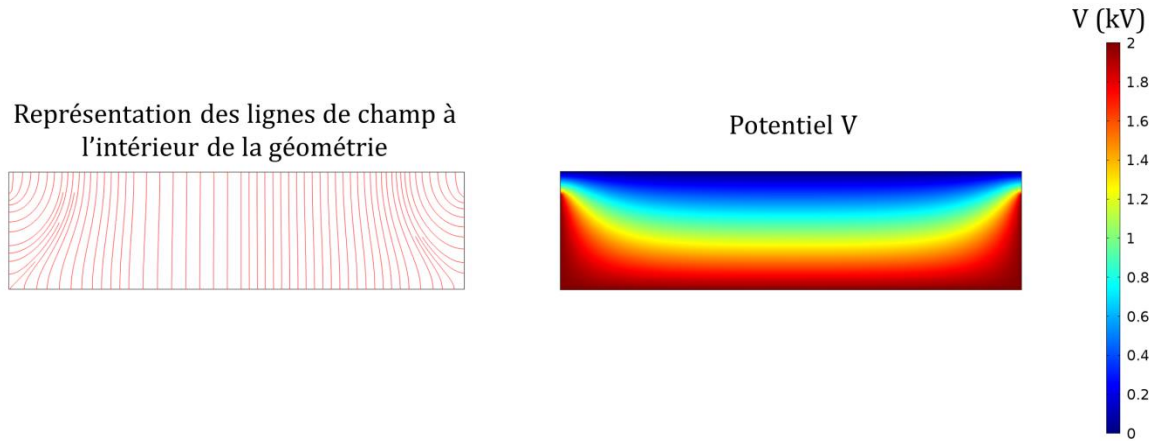


Figure 3-17 : Potentiel et lignes de champ dans le volume sans les tubes d'entrée et sortie.

Les tubes d'entrée et de sortie n'ont pas d'influence significative sur l'orientation des lignes de champ. Il n'est donc pas nécessaire d'ajouter des grilles sur l'entrée et la sortie pour homogénéiser le champ électrique. En outre, l'ajout de grilles serait un problème car elles peuvent capturer les descendants en entrée et en sortie et ainsi produire des sources planes de descendants sur les côtés du volume et perturber le spectre de mesure. Le choix de ne pas utiliser des grilles reste donc le plus judicieux. Nous traçons aussi le champ électrique pour ces deux géométries (avec ou sans tubes) (cf. Figure 3-18).

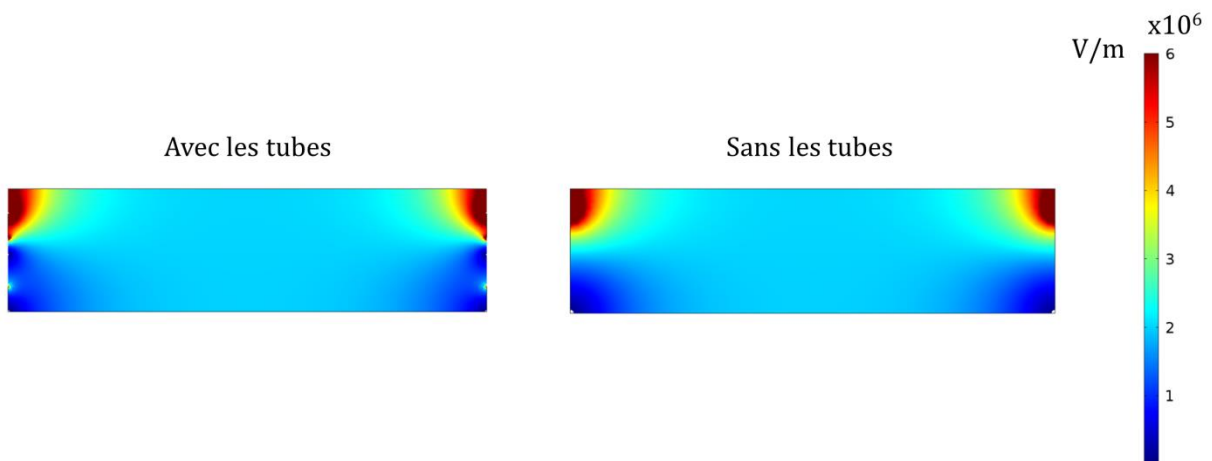


Figure 3-18 : Visualisation du champ électrique : à gauche avec les tubes et à droite avec une grille perpendiculaire aux tubes.

Les grilles sur les tubes permettent d'homogénéiser légèrement le champ électrique. On note cependant deux zones en bas du volume où le champ électrique semble visuellement plus faible; il reste cependant très intense dans ces deux points et est supérieur à 200 kV.m^{-1} . Les deux

points chauds proches du détecteur permettront un champ plus intense à ce niveau et ainsi éloigneront les particules proches des parois isolantes du volume. Au vu de ces résultats, le champ électrique étant très intense dans le volume, l'intérêt de placer des grilles en entrée et sortie du gaz ne semble pas essentiel. Le champ électrique maximum dans le volume sera de 600 kV.m^{-1} .

3.4. Calcul de la vitesse du fluide dans le volume

3.4.1. Géométrie utilisée

Dans cette partie l'objectif est de calculer la vitesse du fluide dans le volume de mesure en fonction du débit de circulation choisi. Cette vitesse devra être assez faible par rapport à la vitesse de dérive des ions afin que les descendants du radon soient capturés à la surface du détecteur.

Différentes configurations ont été étudiées. Deux paramètres vont influencer le transport du fluide dans nos volumes :

- ↳ le débit d'air : ce paramètre peut être adapté à convenance suivant le débit de la pompe utilisée pour faire circuler le gaz dans le système ;
- ↳ les positions d'entrée et de sortie du gaz dans le volume : nous pouvons favoriser certaines positions pour homogénéiser la distribution en radon dans le volume. Dans le cas présent, la géométrie retenue est un petit volume ; cette caractéristique permet à notre détecteur de détecter l'intégralité du radon dans le volume. Du fait de sa petite taille, il n'est pas possible d'utiliser une entrée en face du détecteur. Une telle configuration perturberait le rendement de détection et le volume serait mal défini. Dans le modèle final, nous avons décidé d'utiliser une entrée et deux sorties perpendiculaires à cette entrée pour homogénéiser la distribution du gaz dans le volume. En effet, une sortie directement en face de l'entrée entraînerait un flux direct hors du volume et deux zones mortes sur le côté ; à l'opposé, une entrée avec une sortie perpendiculaire éviterait le flux direct vers la sortie mais produirait une zone morte du côté opposé à la sortie.

Le modèle utilisé sous Comsol est, cette fois-ci, un modèle 3D représentant l'ensemble du volume de détection (cf. Figure 3-19).

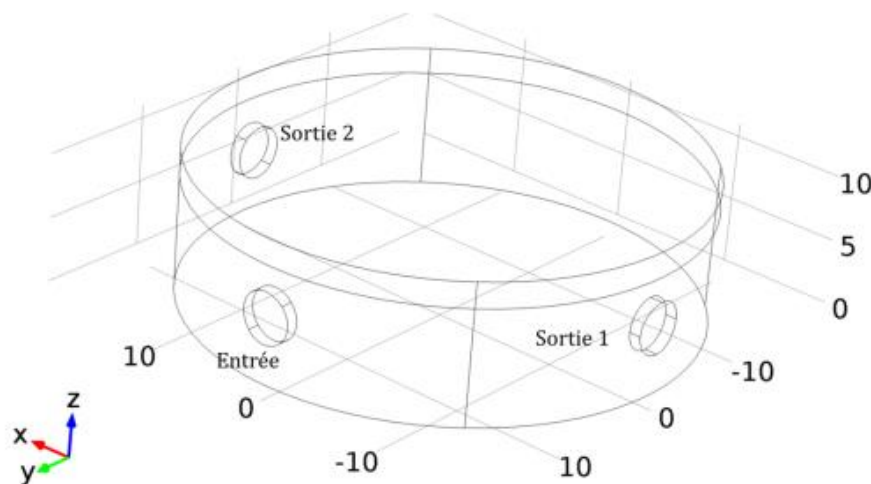


Figure 3-19 : Représentation de la géométrie en 3D.

Du fait de la position de l'entrée et des sorties du dispositif, la géométrie présente une symétrie représentée par un plan coupant en deux le volume en passant par le centre du point d'entrée. Le logiciel COMSOL permet de simuler une moitié de la géométrie en donnant la surface de symétrie comme présenté en Figure 3-20.

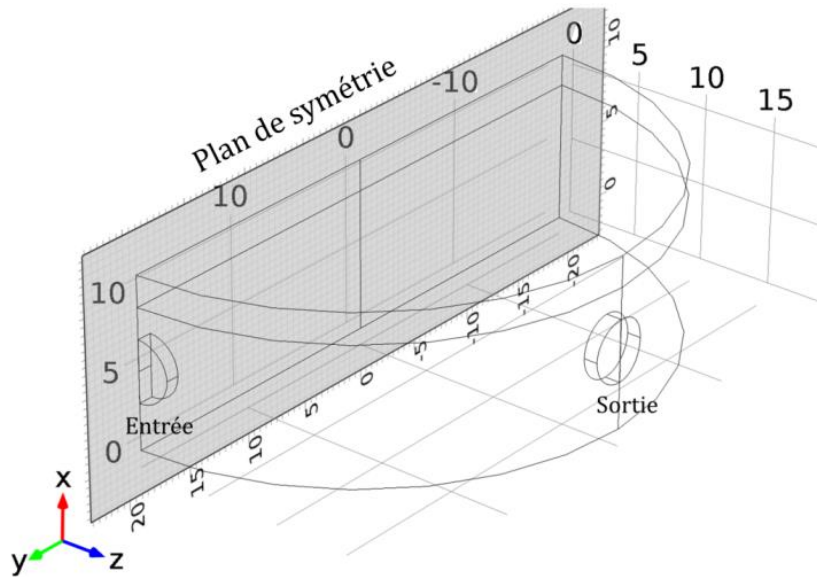


Figure 3-20 : Représentation de la géométrie en 3D avec le plan de symétrie.

Ce plan de symétrie nous permet de simplifier la simulation car elle comprendra moins de mailles et sera moins coûteuse en ressources informatiques.

3.4.2. Régime d'un fluide

Le régime d'un fluide est caractérisé par le nombre de Reynolds s'exprimant par la relation suivante :

$$R_e = \frac{\text{Force d'inertie}}{\text{Force de viscosité}} \quad (3.6)$$

Dans le cas d'un cylindre, l'équation (3.6) s'exprime par la relation :

$$R_e = \frac{2 v_f r_t}{\nu} \quad (3.7)$$

où r_t représente le rayon du cylindre, v_f la vitesse du fluide et ν la viscosité cinématique du gaz porteur. La relation (3.7) peut s'écrire aussi :

$$R_e = \frac{\rho 2 v_f r}{\mu} \quad (3.8)$$

avec ρ la masse volumique du fluide et μ sa viscosité dynamique.

Le diamètre interne des tubes utilisés dans le système est de 4 mm. Les conditions de pression et de température sont prises à 296,15 K et 1 013 hPa. La Figure 3-21 présente l'évolution du nombre de Reynolds en fonction du débit et de la vitesse correspondante.

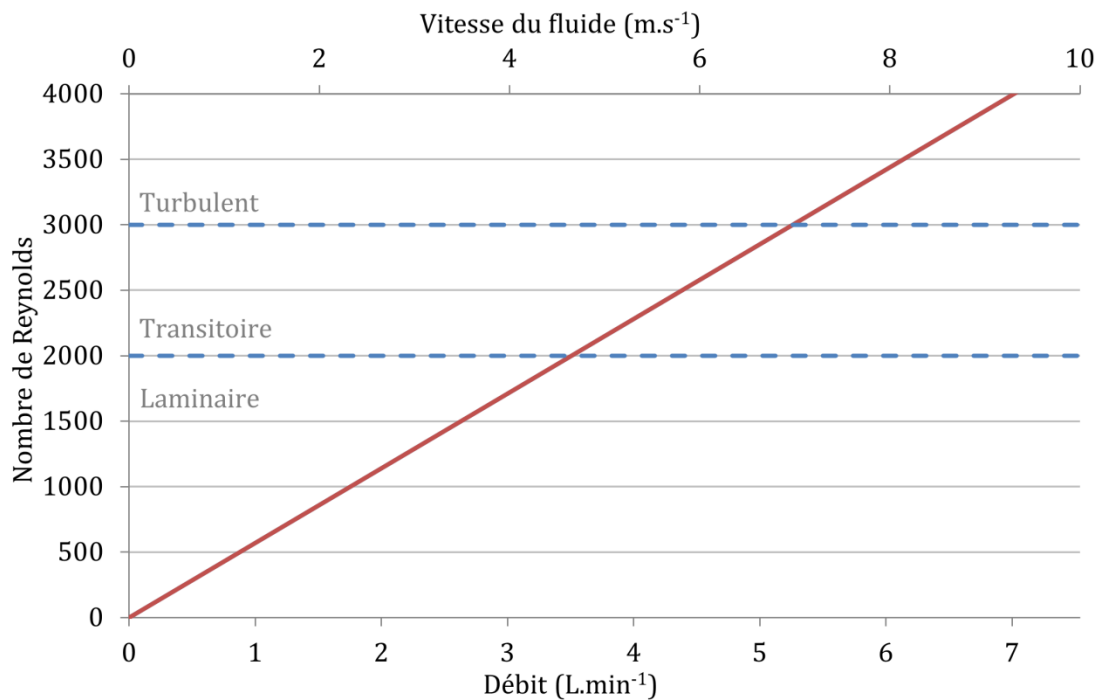


Figure 3-21 : Représentation du nombre de Reynolds en fonction du débit et de la vitesse du fluide dans un tube de 4 mm de diamètre interne.

Nous avons choisi un débit de 1 L.min⁻¹ dans le tube, qui semble un débit assez élevé pour avoir un taux de renouvellement d'air très rapide dans le volume. Ce débit semble produire une vitesse dans le tube d'environ 1,326 m.s⁻¹, qui, au vu des calculs préliminaires effectués au Chapitre 2, n'est pas trop élevée pour assurer la capture des descendants à la surface du détecteur. À ce débit, le régime du fluide étant donc laminaire dans le tube, nous décidons en première approximation de calculer la vitesse du fluide dans notre volume en utilisant un régime laminaire sachant que la vitesse du fluide à l'intérieur du volume sera plus faible. La force d'inertie devrait donc être plus faible alors que la viscosité restera la même.

Cette approximation sera suffisante pour nos calculs car nous recherchons l'aspect qualitatif des résultats. Nous vérifierons cette approximation en utilisant une fonction du logiciel Comsol permettant le calcul du nombre de Reynolds dans le volume.

3.4.3. Modèle pour le transport de l'air dans le volume

Contrairement au précédent modèle, le maillage en mécanique des fluides est beaucoup plus fin et de caractéristiques différentes. Il s'agit principalement d'un ensemble de tétraèdres définissant le maillage interne du volume. La particularité du maillage en mécanique des fluides repose sur un modèle en couche limite au niveau des parois du volume. Ces couches limites, visibles en bleu sur la Figure 3-22, sont composées de prismes.

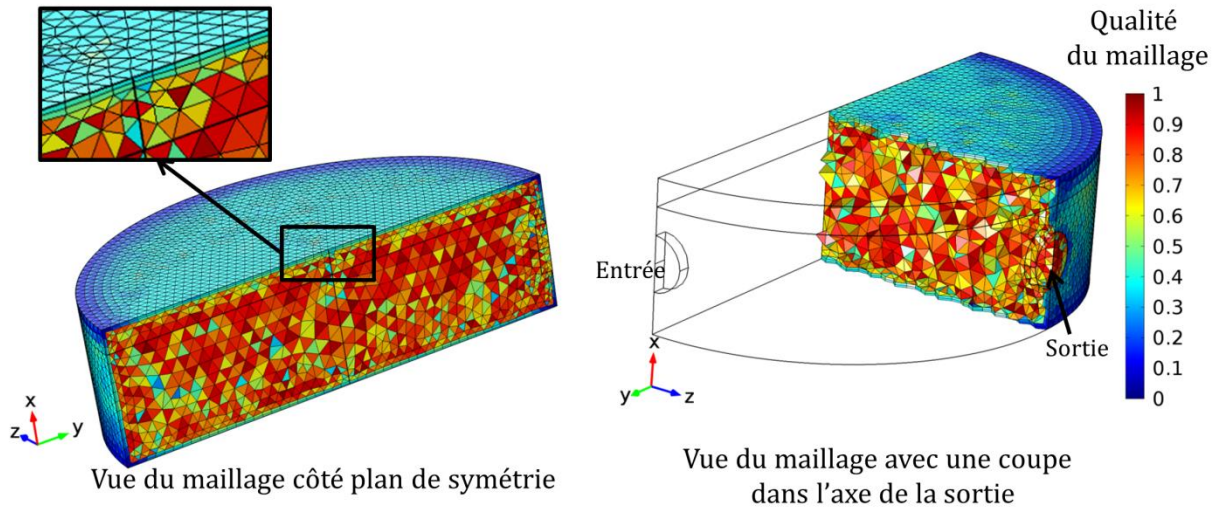


Figure 3-22 : Maillage de la géométrie pour les simulations de mécanique des fluides.

Ce maillage en couches limites, plus fin au niveau des parois, est nécessaire pour la mécanique des fluides. En effet, les bords du volume correspondent à l'interface entre le corps et le fluide environnant. S'agissant de zones à fort gradient, un maillage local plus fin est nécessaire pour les simulations.

L'équation résolue par le logiciel est basée sur celle de Navier Stokes exprimant la conservation des moments :

$$\rho_g \left(\frac{\delta v_f}{\delta t} + v_f \cdot \nabla v_f \right) = -\nabla P + \nabla \cdot \left(\mu \left(\nabla v_f + (\nabla v_f)^T \right) - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot v_f) I \right) + F, \quad (3.9)$$

avec v_f la vitesse du fluide, P la pression du fluide, T la température du fluide, ρ_g la masse volumique du fluide, μ sa viscosité dynamique et F les forces externes appliquées sur le fluide comme, par exemple, la gravité.

Chaque membre de l'équation représente respectivement les forces inertielles, les forces de pression, les forces de traînées de viscosité et la force externe appliquée au fluide. Ces équations sont toujours résolues avec l'équation de la continuité représentant la conservation de la masse :

$$\frac{\delta \rho_g}{\delta t} + \nabla \cdot (\rho_g v_f) = 0, \quad (3.10)$$

Notre modèle est ainsi caractérisé par une vitesse moyenne normale à l'entrée du volume, soit $1,32 \text{ m.s}^{-1}$ correspondant à un débit de circulation de 1 L.min^{-1} . La pression choisie est de 1013 hPa et la température de $293,15 \text{ K}$. Le milieu est considéré comme de l'air sec dont la viscosité dynamique et la masse volumique sont directement calculées par Comsol en tenant compte de la température et de la pression.

Les résultats de vitesse du fluide dans le volume sont présentés en Figure 3-23.

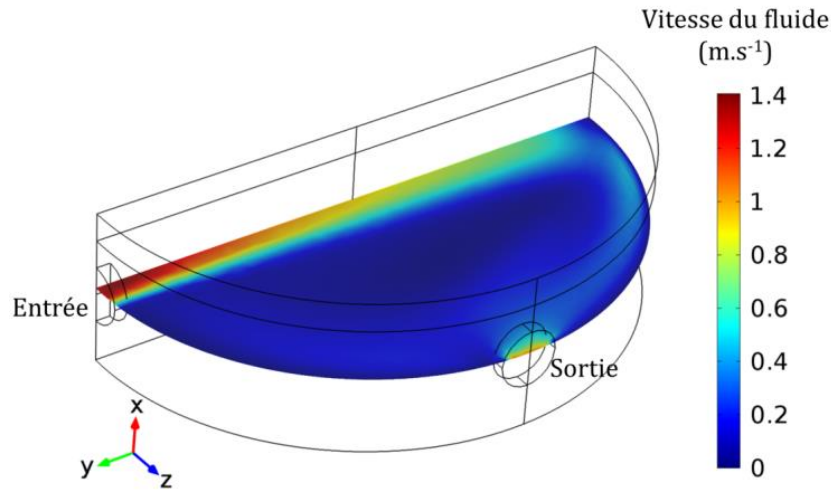


Figure 3-23 : Vitesse du fluide dans le volume pour une symétrie suivant le plan XY.

La vitesse dans le volume varie de 0,01 m.s⁻¹ à 1,4 m.s⁻¹. Le fluide formera deux vortex symétriques de chaque côté de l'entrée. Le mélange sera assuré par le débit de soufflage en entrée du volume.

Le logiciel Comsol permet de calculer le nombre de Reynolds dans le volume en tenant compte de la vitesse calculée pour chaque maille du volume (cf. Figure 3-24).

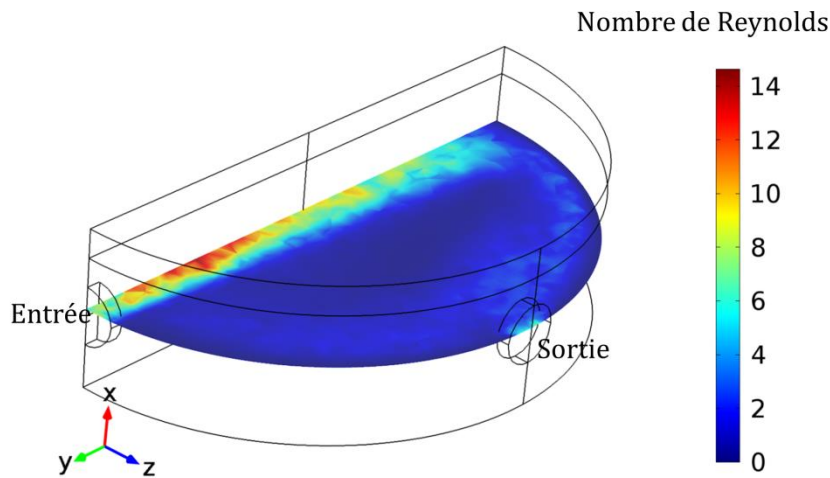


Figure 3-24 : Calcul du « cell Reynolds Number » de Comsol.

Le calcul du « Cell Reynolds Number » sous Comsol est réalisé à l'aide de l'équation suivante :

$$Re = \frac{\rho_g U L}{\mu}, \quad (3.11)$$

où ρ_g est la masse volumique du fluide, v est la vitesse caractéristique, L est une échelle de longueur caractéristique qui dépend du maillage (il est donc nécessaire de choisir un maillage assez fin), μ est la viscosité dynamique du fluide. La documentation du logiciel indique que pour une valeur du nombre de Reynolds inférieure à 100, le modèle laminaire stationnaire est suffisant pour décrire la physique du problème (COMSOL Inc., 2014b).

3.5. Transport du radon et du thoron dans le volume de mesure

Comme nous l'avons présenté précédemment, Comsol est un logiciel multi-physique, qui permet de simuler d'autres phénomènes et notamment de coupler plusieurs calculs. Nous allons ainsi utiliser les calculs de vitesse du fluide réalisés dans le volume pour simuler le mélange du ^{220}Rn dans le volume de mesure.

Pour ce faire, nous admettons que le thoron est une espèce chimique diluée dans l'air. Nous implémentons ainsi l'équation de l'équilibre des masses dans le jeu de données qui s'exprime par la relation :

$$\frac{\delta C_{Rn}}{\delta t} + v_f \nabla C_{Rn} = \nabla \cdot (D_{Rn} \nabla C_{Rn}) + \tau_R, \quad (3.12)$$

où C_{Rn} représente la concentration en thoron exprimée en mol.m^{-3} , D_{Rn} est le coefficient de diffusion du radon dans l'air soit $1,1 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ à 1 013 hPa et 293,15 K, v_f est le vecteur vitesse calculé à l'aide des précédentes simulations, τ_R est un taux de réaction du gaz dans le milieu qui s'exprime en $\text{mol.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$. Comme le thoron est un gaz inerte chimiquement, la seule « réaction » possible est sa disparition due à sa décroissance, nous exprimons ainsi le taux de réaction par la relation :

$$\tau_R = -\lambda_{^{220}\text{Rn}} C_{Rn}, \quad (3.13)$$

où $\lambda_{^{220}\text{Rn}}$ représente la constante radioactive du ^{220}Rn qui est de $12,42 (7) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Nous injectons une concentration (activité volumique) constante en ^{220}Rn en entrée du volume. Le logiciel permet de résoudre les équations (3.12) et (3.13). Les résultats ainsi calculés sont présentés en Figure 3-25. L'activité volumique dans le volume est normalisée à l'activité volumique injectée.

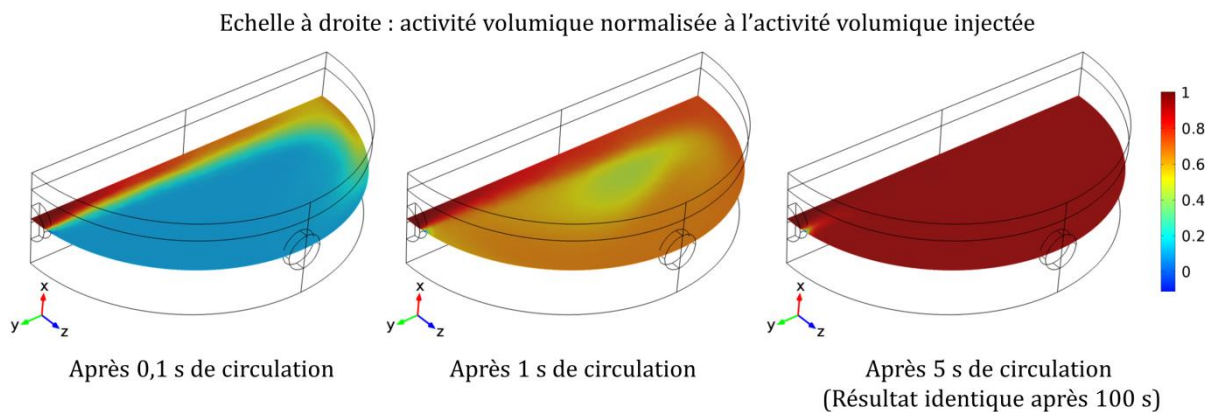


Figure 3-25 : Transport du thoron dans le volume de mesure en tenant compte de la vitesse du fluide, du coefficient de diffusion du thoron et de sa période.

Après seulement 5 secondes, la concentration en ^{220}Rn semble homogène dans le volume. Le temps de renouvellement étant très rapide, la période du ^{220}Rn n'a pas d'effet sur sa distribution dans le volume. En effet les résultats restent identiques en supprimant le terme τ_R . Comme la distribution du gaz ne dépend pas de sa période dans le cas de ce volume, les gaz ^{222}Rn ou ^{220}Rn auront le même type de distribution.

On remarque qu'il existe une zone ponctuelle où la concentration ne semble pas homogène à l'entrée cependant cela reste négligeable comparé à l'ensemble du volume.

3.6. Calcul de la vitesse de dérive des ions

Nous souhaitons utiliser les calculs de vitesse de l'air dans le volume afin de simuler le transport des particules pour estimer qualitativement l'efficacité du champ électrique pour la capture des descendants des gaz ^{220}Rn et ^{222}Rn .

Nous avons vu dans le § 2.2.4 que le mouvement d'advection est le transport prédominant pour les particules de taille nanométrique et une vitesse du fluide supérieure à $0,1 \text{ m.s}^{-1}$.

Dans les simulations sous Comsol Multiphysics, l'équation utilisée pour calculer la trajectoire des particules est définie par une formulation Newtonienne :

$$\frac{d}{dt}(m_p v_p) = m_p F_t (v_f - v_p), \quad (3.14)$$

où :

$$F_t = \frac{18 \eta}{\rho_p d_p^2}, \quad (3.15)$$

avec m_p la masse de la particule en kg, v_p la vitesse de la particule en m.s^{-1} , F_t la force de traînée par unité de masse, v_f la vitesse du fluide en m.s^{-1} , ρ_p la masse volumique de la particule en kg.m^{-3} et d_p le diamètre de la particule en m.

Cette équation est résolue pour des particules de diamètre 1 nm et une masse volumique de $9\,200 \text{ kg.m}^{-3}$. La vitesse du fluide correspond à celle calculée précédemment (cf. § 3.4). Deux cents particules sont injectées en entrée du dispositif pour suivre leur parcours dans le volume comme présenté en Figure 3-26.

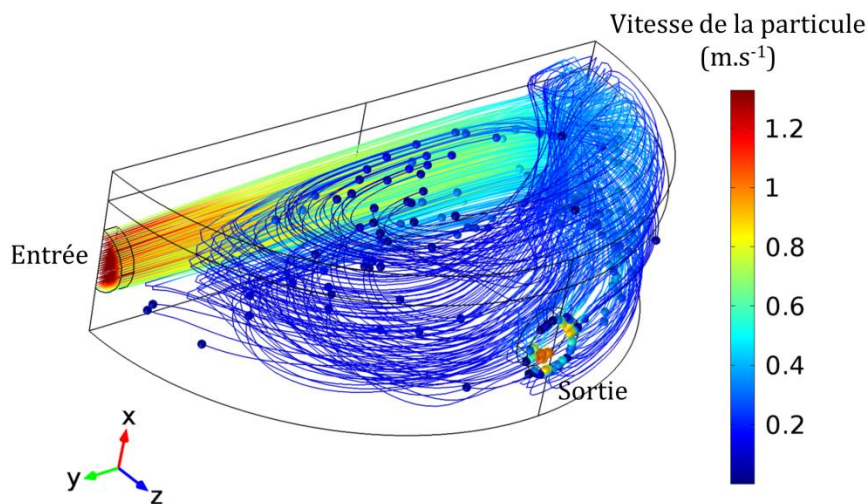


Figure 3-26 : Transport de particules de 1 nm de diamètre dans le volume de mesure sans champ électrique pour une durée de 100 ms.

Les particules suivent le mouvement du fluide et acquièrent une vitesse. Dans le cas présent nous supposons une interaction nulle des particules sur les parois.

À cette géométrie est ajouté le champ électrique comme schématisé en Figure 3-27. Le potentiel appliqué à l'électrode est de 2 kV et la surface du détecteur est reliée à la masse.

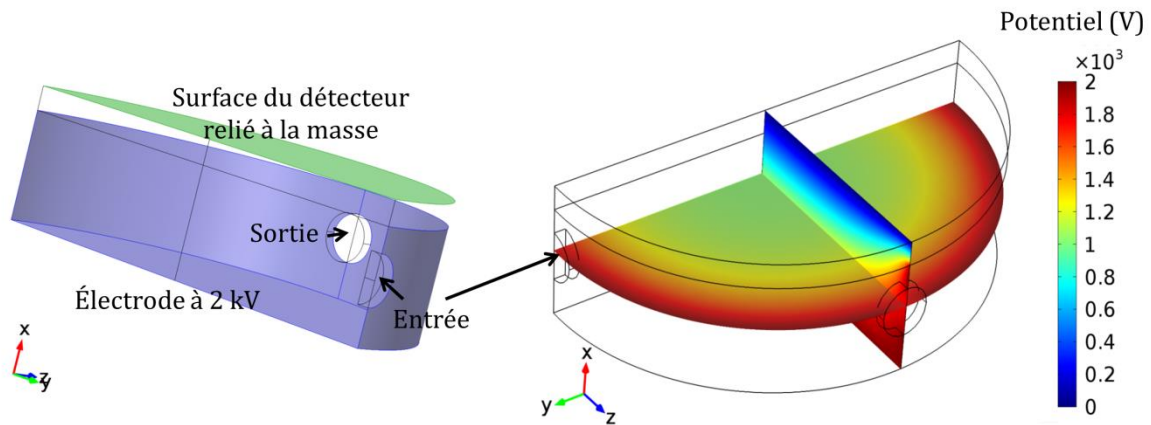


Figure 3-27 : Schémas des deux électrodes à gauche, résultats de simulation du potentiel électrique dans le volume à droite.

Une fois le champ simulé, nous appliquons une charge positive aux particules nanométriques. Le transport des particules est ainsi modifié en ajoutant une force de dérive liée au champ électrique et à la charge de la particule. Cette force se traduit par l'équation :

$$F_e = e p E, \quad (3.16)$$

où F_e est la force de dérive des ions soumis à un champ électrique, e est la charge élémentaire, p le nombre de charges et E l'expression du champ électrique.

Cette équation est couplée au calcul du transport des ions lié à la vitesse du fluide. Un exemple de résultat est présenté en Figure 3-28, toujours pour un débit de circulation de 1 L.min^{-1} et un nombre de charge unitaire. Cette simulation n'est pas parfaitement réaliste : elle tient compte uniquement des descendants créés en entrée du volume. Les particules possèdent ainsi la plus grande vitesse induite par la circulation du fluide ce qui suffit à estimer les temps caractéristique de dépôts à la surface du détecteur.

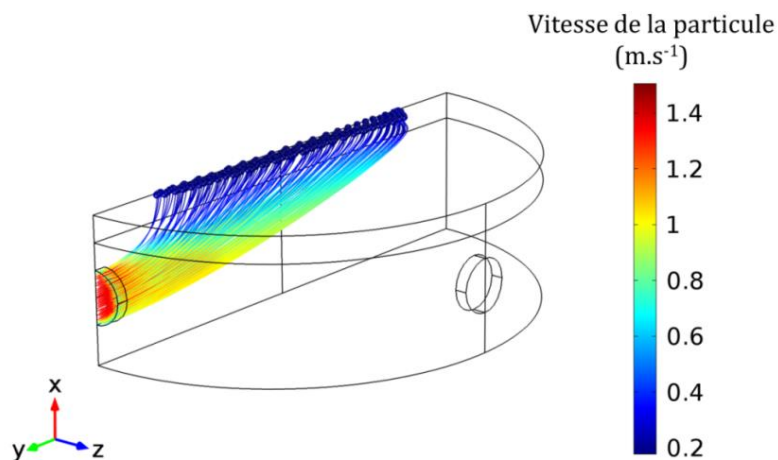


Figure 3-28 : Trajectoire des particules de 1 nm de diamètre soumises à la force de dérive des ions et à la force de traînée due à un débit constant en air de 1 L.min^{-1} .

Nous observons que les particules sont immédiatement capturées à la surface du détecteur, la dérive des ions prédomine sur le transport des particules par convection. Le plus long temps de séjour avant capture de toutes les particules est de 50 ms ; il s'agit du cas où la particule possède la vitesse de convection maximale dans le volume. Cet exemple est appliqué à une particule possédant une seule charge. Nous avons vu que les descendants du radon et du thoron peuvent posséder plusieurs charges. Cette simulation est donc réalisée pour différentes particules chargées avec un nombre de charges variant de 1 à 15 et un diamètre de 1 nm à 2 nm. Les résultats sont présentés en Figure 3-29. Le temps de séjour maximal correspond au temps nécessaire pour capturer l'ensemble des 200 particules simulées.

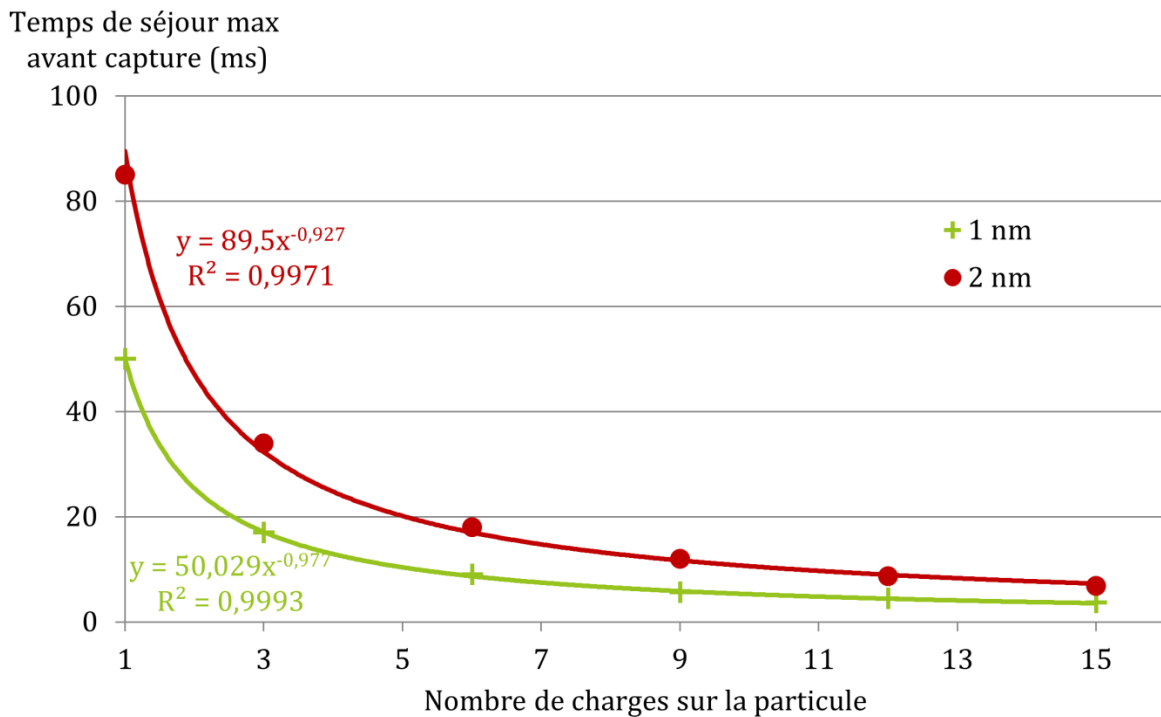


Figure 3-29 : Temps nécessaire pour capturer les 200 particules simulées en entrée du volume en fonction de leur charge et de leur diamètre.

Ce temps de séjour maximal va correspondre aux particules créées juste à l'entrée du volume, c'est-à-dire celles qui possèdent la plus grande vitesse initiale induite par la convection (de l'ordre de 1,3 m.s⁻¹). En réalité dans le reste du volume, cette vitesse de convection est bien plus faible et la dérive des ions sera encore plus importante. Le cas présenté ici correspond au cas le plus pénalisant qui représente une faible portion des particules créées dans le volume. Dans le reste du volume, le temps de séjour avant capture sera beaucoup plus faible, sachant que la vitesse du fluide sera quasiment 10 fois moins importante.

Ces résultats montrent que les descendants du thoron et du radon chargés seront capturés très rapidement par le champ électrique. Il s'agit du cas le plus pénalisant et le temps de séjour avant la capture est inférieur à la période du ²¹⁶Po.

3.7. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons développé un modèle Monte-Carlo en utilisant le code de calcul MCNPX afin de calculer le rendement de détection des deux gaz, le ²²²Rn et le ²²⁰Rn, et de leurs descendants capturés à la surface du détecteur.

Nous avons montré que le choix d'une petite géométrie est parfaitement adapté à la détection des deux gaz. Elle permet d'obtenir un rendement identique pour les deux gaz qui est évalué avec MCNPX à 0,318 6 (3) dans l'air pour une pression comprise entre 900 hPa et 1 100 hPa, un taux d'humidité relatif compris entre 0 % et 100 %, une température comprise entre 285 K et 310 K et une incertitude-type relative sur les dimensions du dispositif de l'ordre de 0,1 %.

Nous avons montré que, cette petite géométrie permet de minimiser les effets sur le rendement de détection du gaz liés à la pression, la température, l'humidité. Le rendement de détection lié aux descendants déposés sur la surface de détection est quant à lui peu dépendant de ces paramètres. En effet, nous en avons déduit un rendement de détection du dépôt des descendants sur le détecteur de 0,495 (2). L'incertitude associée à ce rendement est principalement due à l'épaisseur de la fenêtre que nous avons fait varier entre 20 nm et 50 nm. Nous avons aussi montré que le rendement de détection de ce dépôt est dépendant de l'énergie de la particule alpha émise. Cet effet reste bien inférieur à l'incertitude due à l'épaisseur de la fenêtre.

Ces simulations nous ont aussi permis de représenter les spectres théoriques obtenus pour le ^{222}Rn et ses descendants ainsi que celui du ^{220}Rn et de ses descendants. Nous avons montré que dans le cas d'un dépôt des descendants à la surface du détecteur, il est possible d'identifier chaque élément et notamment les pics des deux gaz.

L'identification du mélange des deux gaz ne pourra cependant se faire qu'à l'aide du pic de ^{212}Po pour le ^{220}Rn et du pic de ^{214}Po pour le ^{222}Rn . Les autres éléments ne sont pas suffisamment différenciables.

Cette étude a été complétée par des simulations à l'aide d'un code déterministe : Comsol Multiphysics. Ce logiciel nous a permis de définir la forme et les caractéristiques de l'électrode à utiliser pour permettre la création d'un champ électrique entre la surface du détecteur et le reste des surfaces du volume. Après avoir analysé les conditions de production de décharges électriques entre deux électrodes, nous avons décidé de nous limiter à une distance minimale entre les deux électrodes de 2 mm afin d'éviter la destruction du détecteur silicium.

Ces simulations de champs électriques ont été couplées à des calculs de vitesse du fluide et de transport de particules qui ont permis de prouver l'efficacité du champ électrique. En effet, il est possible de capturer les descendants soumis à une vitesse du fluide de l'ordre de $1,3 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ en seulement quelques millisecondes. Ces résultats sont même inférieurs à la période du ^{216}Po , premier descendant du thoron. Il sera donc possible de le capturer avant sa décroissance. Cette capture très rapide des descendants nous permettra aussi d'éviter tous les phénomènes de neutralisation des ions (cf. Chapitre 2), et l'effet de l'humidité ne devra pas se ressentir sur la capture des descendants. Dans le cas contraire, ils auront déjà acquis une vitesse de dérive assez importante pour atteindre le détecteur avant d'être neutralisés. Nous faisons donc l'hypothèse que la probabilité de capture des descendants chargés est de 1 dans le dispositif.

Enfin, en utilisant les calculs de vitesse de l'air dans le dispositif couplé au transport de ^{220}Rn dû à la convection et à sa diffusion et en tenant compte de sa décroissance, nous avons montré que la distribution en gaz dans le volume de mesure est homogène. Ceci est principalement dû aux petites dimensions du dispositif et au débit de circulation important. Le temps de séjour du gaz dans le volume étant très inférieur à la période du ^{220}Rn , sa décroissance n'a pas d'effet sur sa distribution dans le volume.

Ces simulations ont permis de concevoir un dispositif de mesure capable de mesurer les deux gaz et leurs descendants capturés à la surface du détecteur. Ses caractéristiques techniques sont présentées en Annexe C.

Chapitre 4. Validation expérimentale de la méthode de mesure avec une atmosphère de référence en radon

Le dispositif de mesure ainsi conçu est capable de mesurer le ^{222}Rn afin de valider les calculs de rendement obtenus avec MCNPX. Pour réaliser la validation, nous utilisons l'étalon de ^{222}Rn de référence présenté dans le Chapitre 1 que nous mélangeons avec de l'air dans un volume fermé afin de créer une atmosphère de référence. Dans le cas présent, nous n'utilisons pas BACCARA (IRSN) qui présente certaines limites pour la validation rapide par transfert d'étalon :

- sa disponibilité : il peut être utilisé pour l'étalonnage d'appareils commerciaux ce qui peut empêcher son utilisation pendant un mois ;
- l'incertitude sur le volume : en utilisant un plus petit volume de dilution, nous pourrions directement le raccorder à un volume de référence étalonné par le LNE¹² ;
- l'activité volumique : BACCARA est principalement utilisé dans des conditions normales d'activité entre quelques centaines de Bq et 40 kBq. Son volume de 1 m³ nécessite des sources de 1 MBq pour réaliser des mesures rapides dans le dispositif ;
- le transport de sources : plusieurs étalons sont nécessaires pour valider les mesures et le transport de plusieurs sources de 1 MBq de ^{222}Rn reste un processus administrativement lourd à gérer ;
- la température de la pièce n'est pas régulée, ce qui ne permet pas de réaliser des études d'influence des variations de pression, de température et d'humidité dans un volume fermé. L'installation d'un système de régulation de la température de la pièce reste un travail long dépassant le cadre de cette thèse ;
- il n'est pas possible de créer des atmosphères de référence pour différents taux d'humidité dans BACCARA.

Afin de gagner du temps, un nouveau dispositif a ainsi été conçu au LNE-LNHB. Ce petit volume de dilution, d'environ 45 L, nous permet de créer des atmosphères de référence avec des activités volumiques importantes (de l'ordre de 1 MBq.m⁻³) et ainsi de réaliser des mesures plus courtes dans notre dispositif. Il permet aussi le contrôle de tous les paramètres expérimentaux lors de la mesure afin d'évaluer les paramètres d'influence et le rendement de détection comme nous le présentons dans ce chapitre.

¹² LNE : Laboratoire National de Métrologie et d'Essais

4.1. Dispositif expérimental, mise en place d'une atmosphère de référence de haute activité volumique

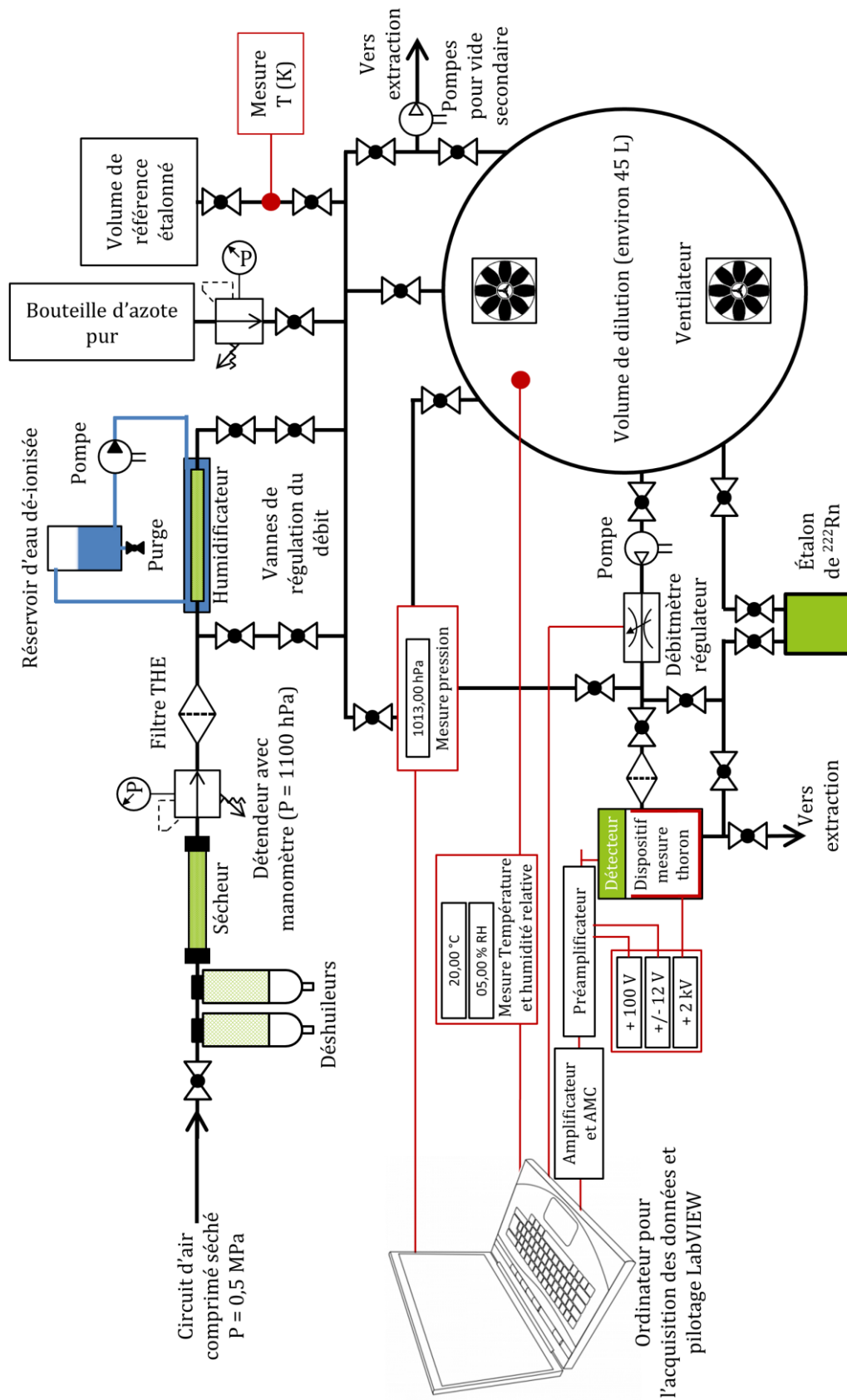


Figure 4-1 : Schéma de l'ensemble du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ^{222}Rn .

La création d'une atmosphère de référence en ^{222}Rn est assurée par le mélange d'un étalon primaire de ^{222}Rn transféré dans un contenant métallique à de l'air dans un volume fermé. Le schéma présenté en Figure 4-1 décrit l'ensemble du circuit. Le dispositif est divisé en trois parties.

La première correspond au circuit d'injection du gaz de dilution : l'air comprimé séché en entrée du système est déshuilé puis repasse dans un sécheur et un filtre de Très Haute Efficacité (THE). L'humidité relative de l'air en sortie du filtre est ainsi proche de 0 % RH. Par la suite, ce circuit est divisé en deux : une partie passe par un humidificateur et l'autre directement dans le volume de dilution. L'humidificateur est composé d'un tube en Naflon® dans lequel circule l'air sec et autour duquel circule de l'eau dé-ionisée. Cette matière plastique permet le transfert d'eau sous forme gazeuse dans l'air sec. L'air en sortie du circuit est ainsi humidifié à un taux d'humidité relative de plus de 90 % RH. En utilisant deux vannes de régulation de débit pour le circuit air sec et pour le circuit air humide, il est ainsi possible de produire une atmosphère d'air avec un taux d'humidité de notre choix compris entre 0 % RH et 92 % RH. Le circuit d'injection possède aussi une connexion vers une pompe à vide, une bouteille d'azote pur, une sonde de pression, une sonde de température et un volume de référence étalonné qui permettra l'étalonnage en volume de tout le système (cf. § 4.2).

La deuxième partie correspond au volume cylindrique de dilution. Ce volume d'environ 45 L est testé étanche à 0,2 MPa et au vide secondaire (10^{-4} Pa). À l'intérieur de ce volume nous avons disposé deux ventilateurs permettant l'homogénéisation du mélange. Une sonde de température et d'humidité étalonnée est placée au centre du dispositif afin d'assurer un suivi en continu lors des expériences. Une connexion sur la sonde de pression étalonnée permet aussi le suivi constant de la pression dans le volume.

La troisième partie correspond au dispositif de mesure et au contenant de l'étalon de ^{222}Rn . Une pompe suivie d'un débitmètre massique étalonné permet de réaliser une circulation constante de l'atmosphère en ^{222}Rn sur le dispositif de mesure. Différentes vannes permettent soit de mesurer la pression en amont du filtre, soit de réaliser un by-pass ou un rinçage avec de l'air propre sur le volume de mesure. Enfin l'étalon de radon est connecté en aval du dispositif, ce qui permet de réaliser son mélange dans le volume de dilution en utilisant le circuit de circulation précédemment cité.

L'ensemble des données de pression, température, humidité relative, débit et acquisition du spectre sont sauvegardées à l'aide d'un programme développé sous LabVIEW (National Instruments, 2014). Les caractéristiques des sondes utilisées sont listées ci-dessous :

Tableau 4-1 : Caractéristiques des sondes utilisées dans le dispositif de mesure.

Sonde	Gamme de mesure	Incertitude absolue sur l'étalonnage ($k = 2$)
Débitmètre massique ($\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$)	0 à 2	0,01
Pression (hPa)	0 à 2 000	0,07
Humidité relative (% RH)	0 à 100	2
Température ($^{\circ}\text{C}$)	-40 à 100	0,07

L'incertitude donnée sur l'étalonnage de la sonde de température est très faible, car il est effectué dans un bain thermostaté. Dans l'air en fonction du point de mesure, l'incertitude-type liée à la mesure de température sera plus proche de 1 $^{\circ}\text{C}$.

La Figure 4-2 présente une photographie du banc de dilution avec le dispositif de mesure de ^{220}Rn connecté.

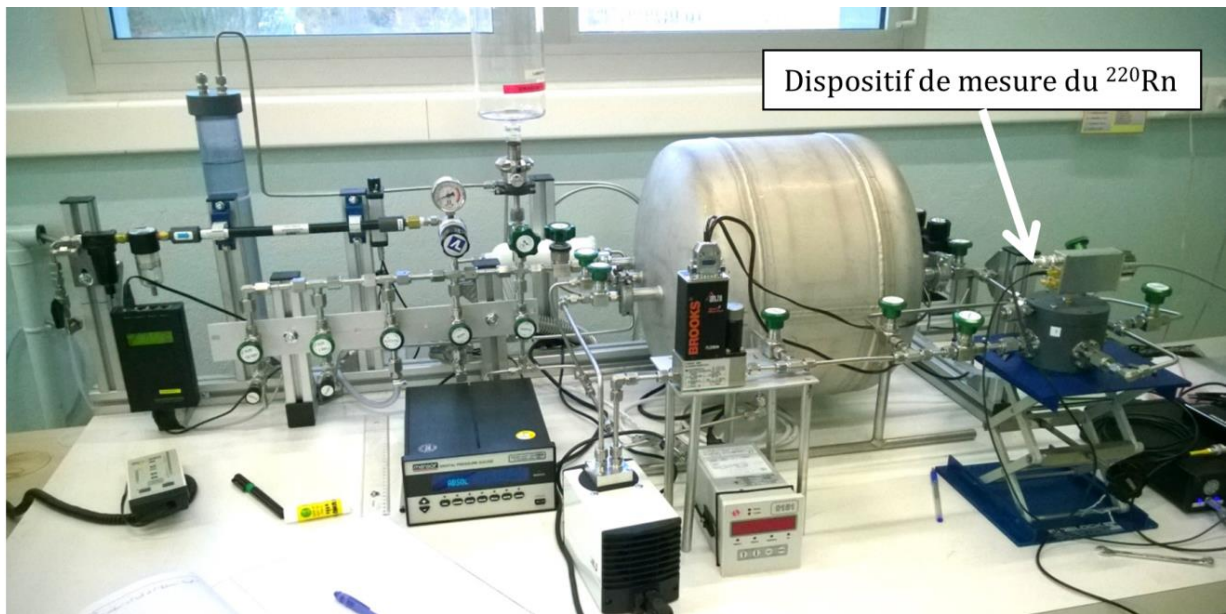


Figure 4-2 : Photographie du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ^{222}Rn .

Ce volume peut permettre aussi de connecter directement une source de ^{226}Ra ou de ^{228}Th pour produire une atmosphère en ^{222}Rn ou ^{220}Rn . Au vu du petit volume et des deux ventilateurs à l'intérieur ayant un débit de $12 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ chacun, il sera possible d'assurer un bon mélange et ainsi de produire une atmosphère en ^{222}Rn ou ^{220}Rn homogène à l'intérieur du volume.

4.2. Étalonnage en volume du banc de dilution

L'étalonnage en volume de l'ensemble du circuit permet de définir l'activité volumique. Dans le cas présent nous avons réalisé une mesure par pression à l'aide d'azote pur et d'un volume de référence. La Figure 4-3 présente l'ensemble du circuit de manière simplifiée.

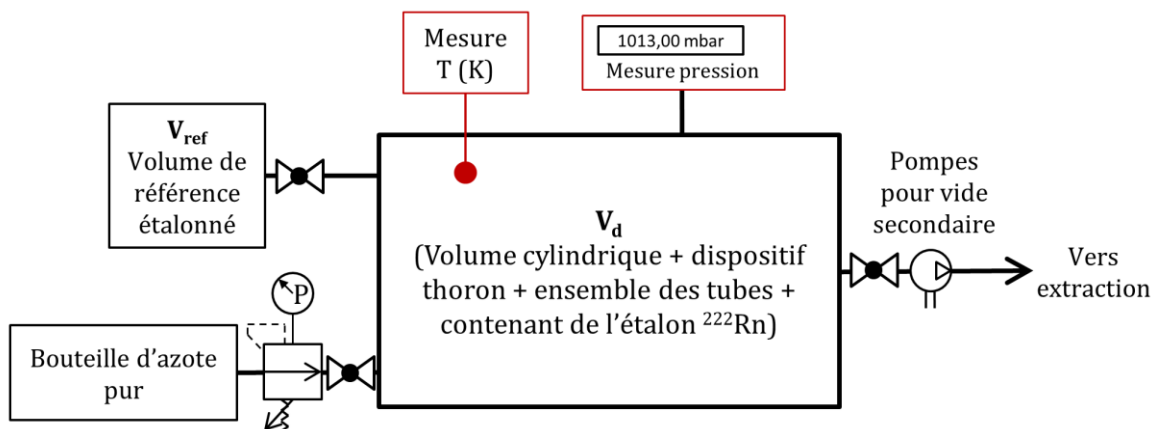


Figure 4-3 : Schéma simplifié du banc de dilution pour la mesure du volume de dilution.

Le volume V_{ref} est un volume en verre avec une vanne. Le volume interne a été étalonné par le LNE par mesure de masse en le remplissant d'eau pure. Le volume interne, vanne fermée, a une valeur certifiée de 1 088,634 (10) cm³. L'objectif est de déterminer le volume V_d qui correspond à l'ensemble du circuit de dilution. Ce volume est déterminé par mesure de la pression et de la température :

- ↳ V_{ref} est vidé par pompage puis rempli d'azote pur à une pression P_{ref} et à une température T_{ref} puis sa vanne est fermée ;
- ↳ le reste du circuit est vidé puis isolé ;
- ↳ la vanne du volume de référence est ouverte puis la pression P_{Tot} et la température T_{Tot} sont mesurées.

Cette méthode est très sensible aux variations de température. Le volume de dilution est ainsi déterminé par la relation :

$$\frac{P_{ref}V_{ref}}{T_{ref}} = \frac{P_{Tot}V_{Tot}}{T_{Tot}}, \quad (4.1)$$

avec $V_{Tot} = V_{ref} + V_d$ soit :

$$V_d = \frac{P_{Ref}V_{Ref}}{T_{Ref}} \frac{T_{Tot}}{P_{Tot}} - V_{Ref}. \quad (4.2)$$

En utilisant le guide pour l'expression de l'incertitude de mesure (GUM) (JCGM, 2008a), l'incertitude relative de V_{Tot} s'exprime par la relation :

$$\frac{u(V_{tot})}{V_{tot}} = \sqrt{\left(\frac{u(P_{Ref})}{P_{Ref}}\right)^2 + \left(\frac{u(P_{Tot})}{P_{Tot}}\right)^2 + \left(\frac{u(T_{Tot})}{T_{Tot}}\right)^2 + \left(\frac{u(V_{Ref})}{V_{Ref}}\right)^2 + \left(\frac{u(T_{Ref})}{T_{Ref}}\right)^2}, \quad (4.3)$$

où $u(X)$ représente l'incertitude-type absolue de X . L'incertitude sur V_d s'exprime par la relation :

$$\begin{aligned} u(V_d) &= \sqrt{u(V_{Tot})^2 + u(V_{Ref})^2 + 2 \text{cov}(V_{Tot}, V_{Ref})} \\ &= \sqrt{u(V_{Tot})^2 + u(V_{Ref})^2 + 2 u(V_{Tot}) u(V_{Ref}) \text{corr}(V_{Tot}, V_{Ref})}, \end{aligned} \quad (4.4)$$

où $\text{corr}(V_{Tot}, V_{Ref})$ est le coefficient de corrélation entre V_{Tot} et V_{Ref} , il est de -1. L'incertitude-type absolue sur V_{Ref} est de 0,010 cm³ alors que celle sur V_{Tot} est de l'ordre 24 cm³, l'incertitude sur V_d peut se simplifier et s'exprime alors par la relation :

$$u(V_d) \approx u(V_{Tot}). \quad (4.5)$$

L'incertitude peut aussi être évaluée par la propagation de distribution par méthode Monte-Carlo qui est décrite dans le *GUM supplément 1* (JCGM, 2008b). Cette méthode consiste à engendrer un ensemble de variables aléatoires suivant des densités de probabilités données (gaussienne, gamma, rectangulaire,...) pour chacune des grandeurs d'entrée. Ces densités de probabilité sont par la suite propagées dans l'équation définissant la valeur expérimentale pour en déduire la distribution finale avec son incertitude associée. Pour appliquer cette méthode, il est ainsi nécessaire de connaître la distribution de chacune des variables de l'équation. Cette

méthode représente un résultat plus robuste face à la méthode classique car elle tient compte non seulement des incertitudes, mais aussi du type de distribution associée.

L'homologue américain du LNE, le NIST¹³ a développé un logiciel en langage R (R Core Team, 2014), le *NIST Uncertainty Machine* (Lafarge & Possolo, 2015). Ce logiciel permet de calculer l'incertitude sur une grandeur en utilisant la propagation d'incertitude par méthode Monte Carlo. Dans notre exemple, il suffit d'entrer dans le logiciel l'équation (4.2) et le type de distribution pour chacune des valeurs V_{ref} , T_{ref} , P_{ref} , P_2 et T_2 . Dans notre cas, chacune des valeurs est représentée par une distribution gaussienne dont la moyenne correspond à la valeur de mesure et l'écart type à l'incertitude absolue sur l'étalonnage.

NOTE : Cette méthode Monte-Carlo (MC) sera utilisée dans la suite du document pour comparaison avec la méthode classique.

Les résultats de mesure du volume de dilution avec les incertitudes obtenues associées par les deux méthodes sont présentés en Tableau 4-2.

Tableau 4-2 : Résultats de mesure du volume de dilution (V_d).

Numéro de mesure	Volume de dilution (cm ³)	Incertitude-type (cm ³)	Incertitude-type relative (%)	Incertitude-type MC (cm ³)
1	43 451	24	0,06	26
2	43 473	23	0,06	25
3	43 461	23	0,06	24
Moyenne	43 462	24	0,06	

Les mesures sont compatibles compte tenu de leur incertitude. Les résultats d'incertitude obtenus par méthode Monte-Carlo sont eux aussi compatibles avec l'incertitude calculée par méthode classique. Le volume de dilution est ainsi de 43 462 (24) cm³, cette valeur sera utilisée par la suite dans tout le document pour déterminer l'activité volumique en ²²²Rn dans le volume de dilution.

4.3. Série de mesures sur une même activité volumique

4.3.1. Atmosphère de référence et incertitude

L'objectif de cette mesure est d'observer la linéarité de la réponse du système pendant plusieurs jours sur une même atmosphère de radon. Dans le cas présent, l'atmosphère en ²²²Rn est produite par le mélange d'un étalon primaire de ²²²Rn à de l'air sec dans le volume de référence. L'activité volumique à la date de référence est déduite de l'activité A_{222Rn} à la même date en utilisant l'équation (4.6) :

$$A_v^{222Rn} = \frac{A_{222Rn}}{V_d}. \quad (4.6)$$

¹³ NIST : National Institute of Standards and Technology.

L'incertitude-type relative sur l'activité volumique à la date de référence de l'étalon primaire est exprimée par la relation :

$$\frac{u(A_v^{222Rn})}{A_v^{222Rn}} = \sqrt{\left(\frac{u(A^{222Rn})}{A^{222Rn}}\right)^2 + \left(\frac{u(V_d)}{V_d}\right)^2}. \quad (4.7)$$

Pour cette expérience, l'activité de l'étalon primaire est de 144,0 (4) kBq au 20 février 2015 à 8 h TU, soit une activité volumique de 3,31 (1) MBq.m⁻³ dans le volume de dilution à la même date. L'activité volumique est ainsi estimée avec une incertitude-type relative de 0,3 % (résultats identiques par les méthodes classique et Monte-Carlo). L'atmosphère étant produite dans un volume fermé, l'activité en ²²²Rn va décroître au cours du temps. Comme nous l'avons montré précédemment (cf. §1.1.1), sa période étant de 3,823 2 (8) jours, il est ainsi possible de réaliser des mesures pendant plusieurs jours sur cette même atmosphère.

4.3.2. Suivi des paramètres expérimentaux au cours de la mesure de ²²²Rn

L'atmosphère est mise en circulation sur le dispositif de mesure du ²²⁰Rn en boucle fermée pendant environ trois jours de mesure. Les paramètres expérimentaux sont suivis en continu (toutes les 120 s) au cours de la mesure. Une synthèse des résultats est présentée dans le Tableau 4-3.

Tableau 4-3 : Évolution des paramètres expérimentaux pendant les trois jours de mesure.

Paramètre mesuré	Moyenne des mesures	Écart-type des résultats	Incertitude sur l'étalonnage de l'appareil
Débit (L.min ⁻¹)	1,007	0,020	0,005
Pression (hPa)	1 013,64	0,86	0,04
Humidité relative (% RH)	0,9	0,3	1,0
Température (°C)	20,99	0,3	0,04

Les paramètres sont stables au cours du temps. L'ensemble du dispositif étant bien étanche, la variation de pression au cours de la mesure n'est pas due à une fuite. En effet, étant en cycle fermé, la température et la pression sont deux variables dépendantes comme le montrent les résultats présentés en Figure 4-4.

Tout au long de la mesure, l'intégralité du radon est bien conservé dans le volume. Bien que le laboratoire soit climatisé, la variation de température correspond au cycle jour-nuit ; cette variation reste cependant très faible.

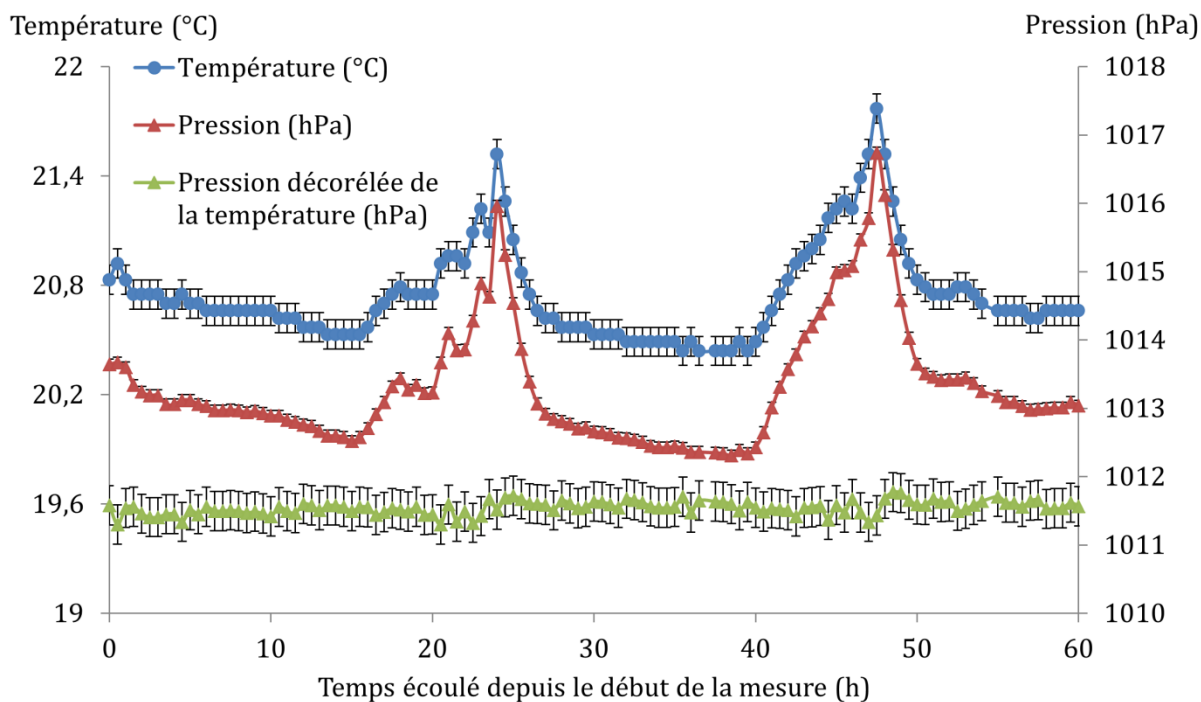


Figure 4-4 : Évolution de la pression et de la température dans le volume de mesure pendant les trois jours de mesure.

4.3.3. Méthode d'analyse des résultats

Après la mise en circulation de l'atmosphère en radon dans le dispositif de mesure, plusieurs acquisitions de 2 000 secondes sont lancées. Le type de spectre obtenu pour chaque mesure est présenté en Figure 4-5.

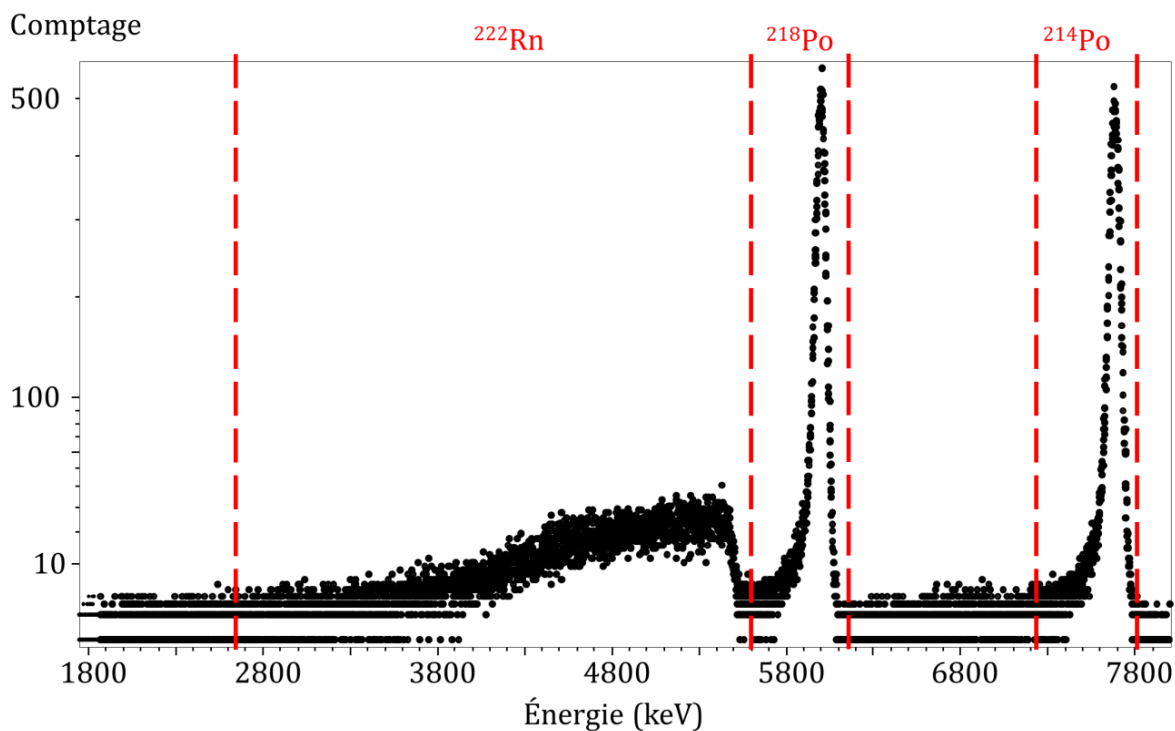


Figure 4-5 : Spectre obtenu par la mesure de l'atmosphère en ^{222}Rn avec le dispositif de mesure. L'échelle des ordonnées est en racine carrée.

Chaque radionucléide de la chaîne du radon est facilement identifiable avec ce type de spectre. Pour comparer les résultats entre chaque mesure, une région d'intérêt (ROI) est choisie pour chaque pic correspondant à un radionucléide de la chaîne (cf. Figure 4-5). Les deux ROI du ^{218}Po et du ^{214}Po ont des largeurs identiques. Les mêmes ROI sont utilisées pour exploiter chacune des mesures réalisées dans les différentes conditions. Cette méthode permet de comparer directement le comptage de chaque ROI pour chaque spectre obtenu. Cette analyse ne tient pas compte de la traîne des pics mais elle permet de comparer tous les résultats entre eux d'une manière simple dont la seule composante d'incertitude est liée au comptage.

Cette méthode d'analyse reste applicable s'il n'y a pas de décalage des pics au cours du temps. Pour évaluer ce décalage, nous sélectionnons deux spectres qui semblent les plus décalés parmi l'ensemble des mesures. Ainsi, un spectre réalisé après 1 h d'exposition est comparé avec le dernier spectre réalisé lors de l'expérience, soit après 63 h d'exposition à l'atmosphère de référence. Les deux spectres superposés sont présentés en Figure 4-6.

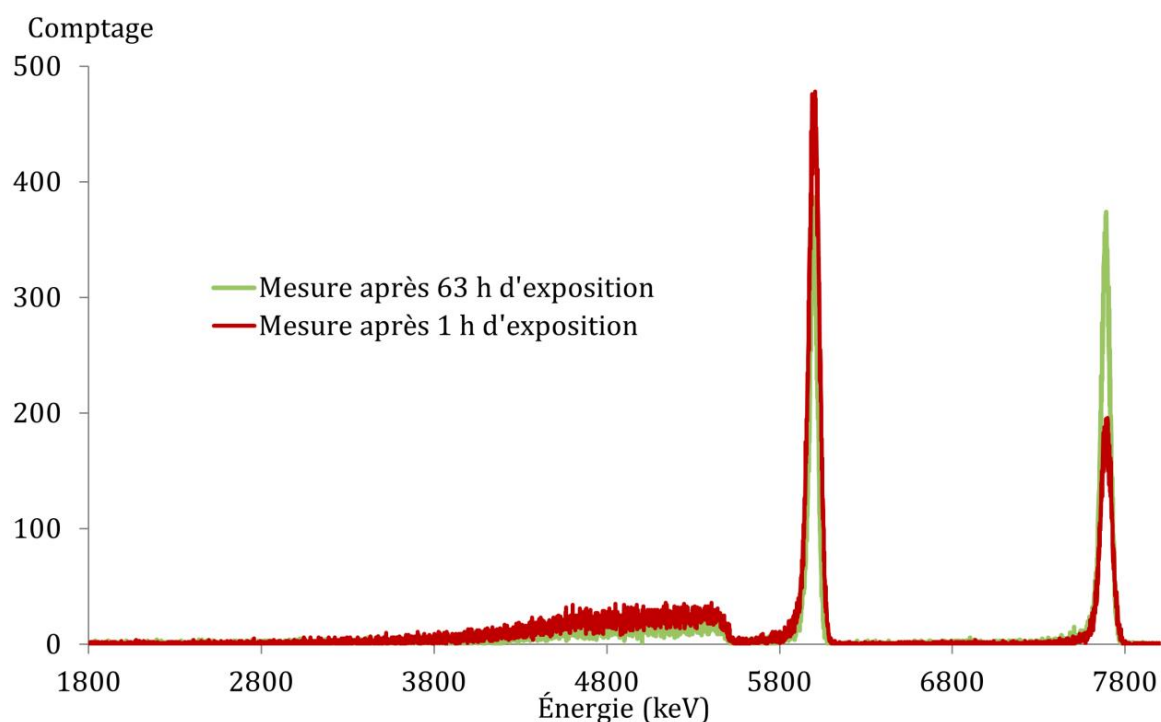


Figure 4-6 : Comparaison d'un spectre réalisé après 1 h d'exposition à un spectre réalisé après 63 h d'exposition.

Le logiciel d'acquisition permet de déterminer le centroïde des pics. Dans le cas du pic du ^{218}Po , le centroïde est déplacé de 2,3 keV entre les deux mesures. De même pour le pic du ^{214}Po , le centroïde est déplacé de 3,5 keV. Compte tenu de la résolution des pics de 70 keV et de l'évaluation du centroïde du pic qui présente une incertitude de plusieurs keV, le décalage est donc négligeable entre les spectres. Il est ainsi possible d'utiliser directement ces ROI pour comparer chacun des résultats.

Cette comparaison de spectre permet d'observer un autre phénomène : les pics gagnent en résolution au cours du temps, l'amélioration de la résolution étant de 4 % entre les deux spectres. Cette amélioration n'a cependant pas d'impact sur le comptage de chaque pic, ceux-ci étant déjà bien séparés. Cette amélioration est principalement due à la stabilisation en température de l'électronique et des différents modules d'alimentation que nous avons conçue pour que notre dispositif de mesure soit transportable.

Nous avons observé une variation de la résolution sur d'autres spectres tout au long de la mesure, certainement due à des variations de température ou des perturbations électromagnétiques environnantes. Cette variation de résolution ne remet pas en cause la méthode d'analyse rapide car les ROI sont assez larges pour ne pas être perturbées. Cette ROI a aussi été choisie en utilisant le spectre ayant la plus mauvaise résolution.

4.3.4. Résultats sur les trois jours de mesure

La mise en circulation de l'atmosphère en ^{222}Rn démarre en même temps que la première mesure. La Figure 4-7 représente le comptage dans chaque ROI ; l'incertitude présentée sur le graphique correspond à deux fois l'incertitude-type sur le comptage dans la ROI. Soit N , le nombre d'évènements dans la ROI, l'incertitude-type absolue sur le nombre d'évènements est calculée au moyen d'une méthode de type B (JCGM, 2008a) en utilisant la loi de Poisson. L'incertitude-type sur le nombre d'évènements se traduit par l'équation (4.8) :

$$u(N) = \sqrt{N}. \quad (4.8)$$

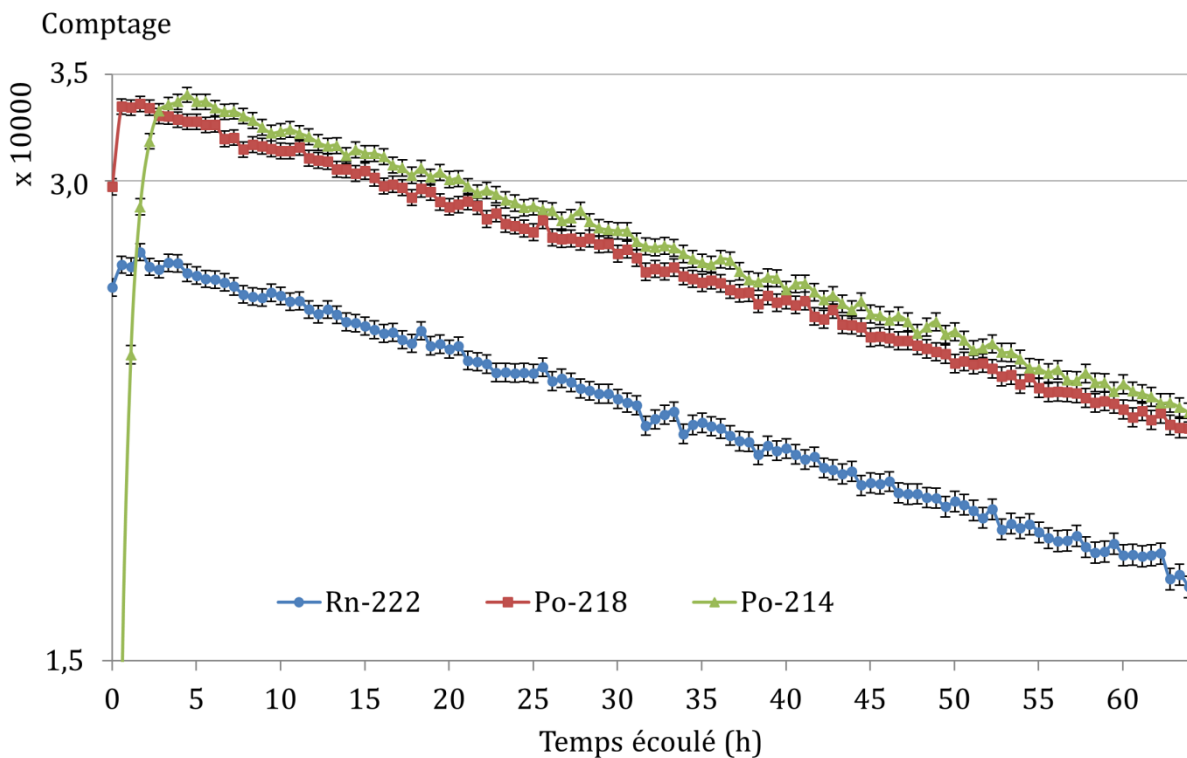


Figure 4-7 : Évolution du comptage pour chaque ROI au cours du temps.

L'équilibre entre le ^{218}Po et le ^{222}Rn est obtenu après 30 min, et l'équilibre entre le ^{222}Rn et le ^{214}Po est obtenu après 4 h comme calculé en Figure 1-3. Une fois l'équilibre atteint, les trois isotopes décroissent en suivant la même période qui correspond à celle du ^{222}Rn . Pour comparer tous les résultats obtenus dans les trois régions d'intérêt, le comptage pour chaque mesure est corrigé en tenant compte de la période du radon. Les résultats de comptage sont corrigés pour ramener leur valeur à une date de référence avec la formule (4.9) :

$$N(d_{ref}) = N(d_m) e^{\frac{\ln 2}{T_{222Rn}} \times (d_m - d_{ref})} = N(d_m) F_{ref}, \quad (4.9)$$

avec $N(d_{ref})$ le comptage à la date de référence d_{ref} , $N(d_m)$ le comptage à la date de mesure d_m et T_{222Rn} la période du radon. Dans le cas de variables indépendantes, l'incertitude-type composée s'exprime par la relation (JCGM, 2008a) :

$$u_c^2(y) = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial f}{\partial x_i} \right)^2 u^2(x_i), \quad (4.10)$$

où $u_c(y)$ représente l'incertitude-type composé de y , f la fonction représentant la valeur y , x_i une variable composant la fonction f avec pour incertitude-type $u(x_i)$.

En considérant l'incertitude sur le temps négligeable, l'incertitude-type relative sur le facteur de correction F_{ref} est exprimée par la relation :

$$\frac{u(F_{ref})}{F_{ref}} = \ln 2 \times \frac{(d_m - d_{ref})}{(T_{222Rn})} \times \frac{u(T_{222Rn})}{(T_{222Rn})}. \quad (4.11)$$

Le comptage doit aussi être corrigé par le facteur F_{dec} , du fait de la décroissance du radon pendant la durée de la mesure :

$$N(t_{ref}) = N(t_m) F_{ref} F_{dec} = N(t_m) F_{ref} \frac{\frac{\ln 2}{T_{222Rn}} \times t_m}{1 - \exp\left(\frac{-\ln 2}{T_{222Rn}} \times t_m\right)}, \quad (4.12)$$

où t_m correspond à la durée d'acquisition de la mesure, soit dans notre cas 2 000 s. L'incertitude-type relative sur le facteur F_{dec} s'exprime par la relation :

$$\frac{u(F_{dec})}{F_{dec}} = \frac{u(T_{222Rn})}{T_{222Rn}} \times \left(1 + F_{dec} \times \exp\left(\frac{-\ln 2}{T_{222Rn}} \times t_m\right) \right). \quad (4.13)$$

L'incertitude-type relative sur le comptage avec les corrections appliquées s'exprime par la somme quadratique des incertitudes-type relatives de F_{dec} , F_{ref} , et $N(t_m)$ soit :

$$\frac{u(N(t_{ref}))}{N(t_{ref})} = \sqrt{\left(\frac{u(F_{ref})}{F_{ref}}\right)^2 + \left(\frac{u(F_{dec})}{F_{dec}}\right)^2 + \left(\frac{u(N(t_m))}{N(t_m)}\right)^2}. \quad (4.14)$$

Les résultats de comptage de ^{222}Rn , de ^{218}Po et ^{214}Po , sont donc tous corrigés en utilisant la période de ^{222}Rn du fait de l'équilibre après 4 h. Les résultats sont présentés en Figure 4-8 :

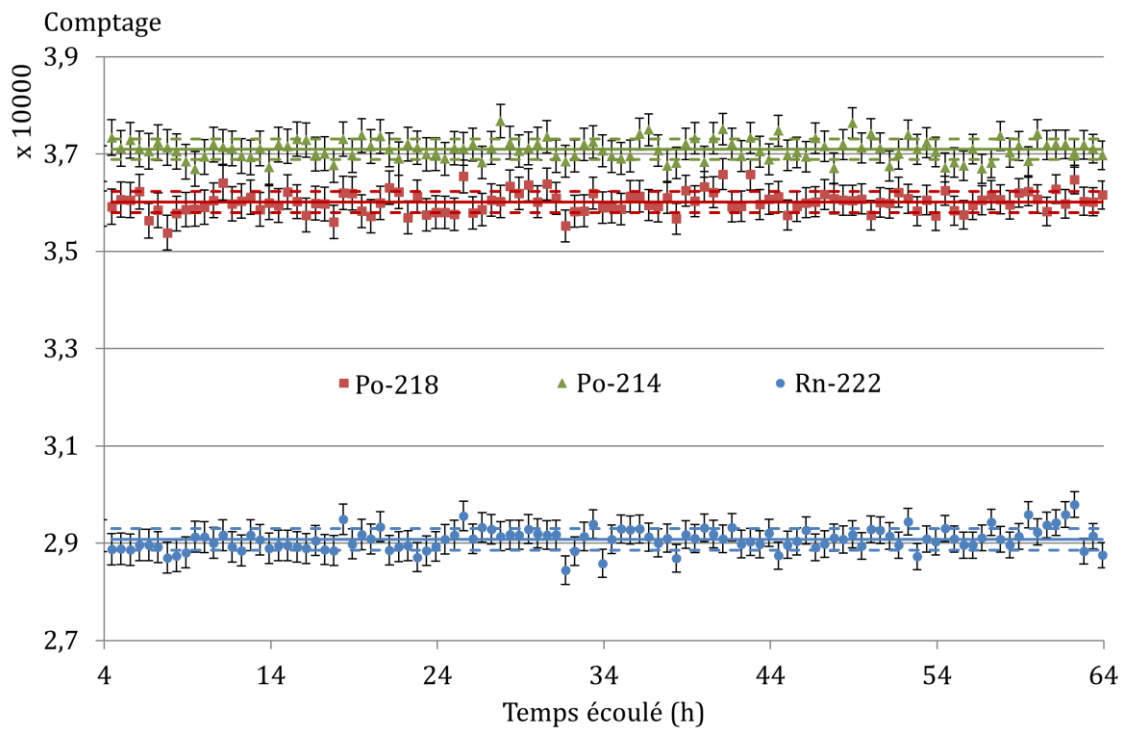


Figure 4-8 : Représentation du comptage pour chaque ROI avec les corrections dues à la décroissance du radon appliquées.

NOTE : Sur le graphique, les incertitudes de la mesure sont élargies à $k = 2$; la ligne continue traduit la moyenne des valeurs et les lignes en pointillés correspondent à l'écart-type des mesures autour de la moyenne. Cette façon de présenter les résultats sera appliquée à l'ensemble des graphiques dans la suite du document.

Avec les corrections de décroissance appliquées, les résultats pour chaque mesure sont compatibles en tenant compte de leurs incertitudes comme le montre le Tableau 4-4.

Tableau 4-4 : Synthèse des résultats des comptages corrigés pour chaque fenêtre.

Radionucléide	Moyenne	Incertitude absolue élargie à $k = 2$ du comptage corrigé	Écart-type des résultats
^{222}Rn	29 079	360	222
^{218}Po	35 797	350	218
^{214}Po	37 099	350	210

Les résultats ne présentent pas de variations significatives au vu des incertitudes associées. Nous n'observons pas de variations du comptage directement corrélées avec les changements de température ou de pression.

Il est cependant nécessaire de réaliser une évaluation de l'influence de ces paramètres sur la mesure pour des gammes de température, pression, humidité et débit bien plus importants.

4.4. Évaluation des paramètres d'influence sur la mesure

Comme nous l'avons montré dans le chapitre 3, une variation de pression, température ou humidité ne doit pas entraîner de variation significative sur le rendement de détection du gaz.

De plus, elle ne doit pas influencer le taux de capture des descendants du fait du temps de séjour faible dans la chambre de mesure.

Pour confirmer ces résultats nous avons mis en place plusieurs expériences pour lesquelles l'objectif est de faire varier un seul des paramètres de mesure et d'étudier la réponse du système. Les comparaisons mises en place utilisent la méthode la plus simple possible qui permet de minimiser les facteurs d'incertitude intervenant dans la comparaison.

Dans la mesure du possible, seuls les comptages de chaque ROI seront comparés. Si nécessaire, les comptages seront pondérés par l'activité volumique ou le temps de mesure. Les méthodes d'analyse utilisées sont synthétisées dans les protocoles expérimentaux présentés dans les sections suivantes.

4.4.1. Variation de débit

4.4.1.1. Protocole expérimental et analyse

Le protocole expérimental est similaire à celui utilisé précédemment : un étalon de référence de ^{222}Rn , d'une activité de 145,5 (5) kBq à la date du 10/03/2015 à 8 h TU, est mélangé à de l'air sec dans le volume de dilution. La pression est ajustée à environ 1 013 hPa dans le volume de dilution.

Pour cette même atmosphère, plusieurs acquisitions de spectres de ^{222}Rn sont réalisées pour différents débits de circulation. L'acquisition est lancée au minimum 30 min après chaque changement de débit. Comme calculé dans le § 1.1.1, et vérifié expérimentalement avec notre dispositif de mesure, cette durée est suffisante pour obtenir l'état d'équilibre entre le ^{222}Rn et le ^{218}Po . Nous n'avons pas d'intérêt à attendre l'équilibre avec le ^{214}Po étant donné que le ^{214}Po mesuré provient de la désintégration du ^{218}Po déposé sur le détecteur, cet équilibre n'étant pas influencé par les variations de débit. Les paramètres sont mesurés au cours de l'acquisition du spectre pour chaque débit comme présenté en Tableau 4-5.

Tableau 4-5 : Moyenne et écart-type des paramètres expérimentaux pendant toute la durée d'acquisition du spectre de mesure de ^{222}Rn (2 000 s).

Moyenne Débit (L/min)	Moyenne Pression (hPa)	Moyenne T (°C)	Humidité (% RH)
0,200 (1)	1 013,4 (3)	21,34 (9)	1 (1)
0,400 (1)	1 013,9 (1)	21,52 (4)	1 (1)
0,600 (1)	1 013,5 (1)	21,38 (4)	1 (1)
0,698 (7)	1 012,6 (1)	20,92 (4)	1 (1)
0,796 (5)	1 013,2 (1)	21,10 (4)	1 (1)
0,900 (1)	1 012,7 (1)	21,14 (4)	1 (1)
1,000 (1)	1 013,8 (1)	21,32 (4)	1 (1)
1,100 (1)	1 017,6 (3)	22,57 (6)	1 (1)
1,200 (1)	1 013,4 (1)	21,21 (4)	1 (1)
1,400 (2)	1 012,1 (1)	20,79 (4)	1 (1)
1,800 (1)	1 012,2 (1)	20,94 (5)	1 (1)
2,000 (1)	1 012,5 (1)	21,02 (4)	1 (1)

Note : l'incertitude correspond à l'écart-type des résultats si celui-ci est plus grand que l'incertitude sur l'étalonnage de l'appareil de mesure.

Les valeurs présentées dans le tableau correspondent à la moyenne et à l'écart-type des résultats de mesure des paramètres expérimentaux pendant toute la durée de l'acquisition du spectre, soit 2 000 s. Les incertitudes liées à l'étalonnage des appareils de mesure sont les mêmes que celles présentées en Tableau 4-3.

Sur chaque débit étudié, les paramètres expérimentaux sont bien constants et les écart-types sont inférieurs à l'incertitude de mesure, à l'exception de quelques mesures de pression (les incertitudes sur les mesures sont présentées en Tableau 4-3).

La méthode d'analyse des spectres est identique à celle présentée en § 4.3.3 ; une même ROI est choisie pour évaluer le comptage correspondant au ^{222}Rn et au ^{218}Po pour chaque spectre. La comparaison des résultats est réalisée directement sur le comptage en appliquant les corrections dues à la décroissance du radon comme présenté en § 4.3.4. Cette méthode permet ainsi de minimiser l'incertitude sur la mesure qui dépendra uniquement de l'incertitude due au comptage et aux corrections de décroissance.

4.4.1.2. Résultats de mesure

La Figure 4-9 présente une synthèse des résultats de mesure en fonction du débit. Les incertitudes-types relatives de chaque mesure pour le ^{222}Rn et le ^{218}Po sont respectivement de 0,55 % et 0,50 %. L'écart-type des résultats est compatible avec les incertitudes élargies à $k = 2$.

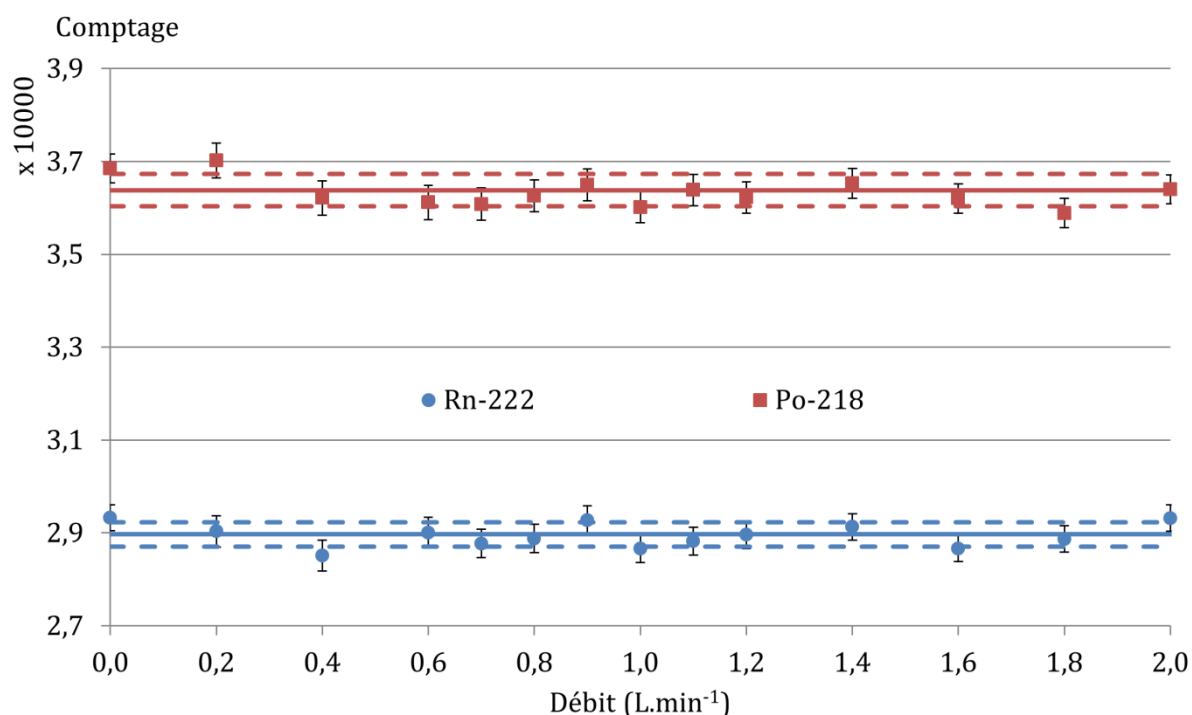


Figure 4-9 : Évolution du comptage pour la ROI du ^{222}Rn et du ^{218}Po en fonction du débit de circulation dans le dispositif de mesure.

Concernant le pic de ^{222}Rn , le comptage reste le même quel que soit le débit, sa période étant très grande, la distribution est homogène dans tout le volume et n'est pas fonction du débit.

Dans le cas du pic de ^{218}Po , les résultats sont eux aussi compatibles entre eux sur toute la gamme de débit, y compris dans le cas où le radon rentre dans le volume juste par diffusion

(débit nul). Ceci démontre l'efficacité du champ électrique qui est ainsi assez intense pour capturer les descendants solides chargés à la surface du détecteur malgré un débit important.

L'écart entre les deux comptages provient de la différence de rendement entre les deux éléments, en effet le dépôt possède un rendement de détection plus important que le gaz comme le montrent les calculs MCNPX (cf. Chapitre 3).

4.4.2. Variation de pression totale dans le volume de mesure

4.4.2.1. Protocole expérimental et analyse

Un étalon de ^{222}Rn d'une activité de 55,9 (2) kBq à la date du 25/02/2015 à 8 h TU est mélangé à de l'air dans le volume de dilution. Le remplissage en air est d'abord limité à 900 hPa puis après chaque mesure de ^{222}Rn et de ^{218}Po à l'équilibre (acquisition de 5 000 s), la pression est augmentée par injection d'air pour réaliser d'autres mesures.

Chacun des paramètres expérimentaux est enregistré pendant les 5 000 s d'acquisition de spectre. Une synthèse des résultats est présentée en Tableau 4-6.

Tableau 4-6 : Moyenne et écart-type des paramètres expérimentaux pendant toute la durée d'acquisition du spectre de mesure de ^{222}Rn (5 000 s).

Moyenne Pression (hPa)	Moyenne T (°C)	Humidité (% RH)	Moyenne Débit (L/min)
898,9 (2)	20,86 (6)	3 (1)	1,000 (4)
945,0 (1)	20,79 (4)	3 (1)	1,001 (3)
980,2 (1)	20,81 (4)	3 (1)	0,980 (14)
991,5 (3)	21,35 (8)	3 (1)	0,959 (9)
999,9 (2)	21,43 (7)	3 (1)	0,971 (19)
1 010,1 (1)	21,63 (2)	3 (1)	0,972 (10)
1 018,9 (4)	21,29 (12)	3 (1)	0,984 (10)
1 051,2 (2)	21,08 (6)	3 (1)	0,924 (24)

Note : l'incertitude correspond à l'écart-type des résultats si celui-ci est plus grand que l'incertitude sur l'étalonnage de l'appareil de mesure.

Dans l'ensemble, les paramètres expérimentaux sont stables tout au long des mesures. Les variations de débit sont plus conséquentes que dans l'expérience précédente du fait de la pompe utilisée. Comme montré au § 4.4.1.2, ceci n'a pas d'influence sur le résultat.

La méthode d'analyse des spectres est la même que celle présentée en § 4.4.1.1, où nous utilisons uniquement la fenêtre de ^{222}Rn et de ^{218}Po .

4.4.2.2. Résultats de mesure

L'ensemble des résultats expérimentaux est synthétisé dans la Figure 4-10.

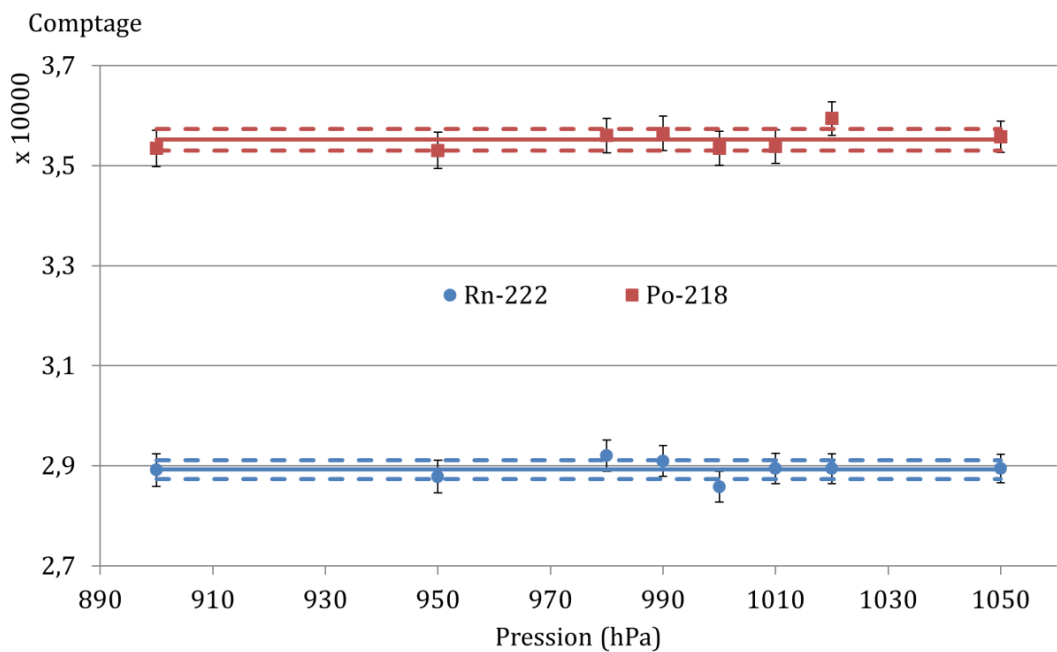


Figure 4-10 : Évolution du comptage pour une même activité volumique à différentes pressions.

L'incertitude-type relative de chaque point de mesure pour le ^{222}Rn et le ^{218}Po est respectivement de 0,55 % et de 0,50 %. L'écart-type des résultats est inférieur à deux fois leur incertitude-type.

Tout comme le montrent les simulations présentées en Chapitre 3, la pression n'influence pas l'évaluation du comptage lié au pic de ^{222}Rn . Le petit volume de détection permet de limiter l'influence de la pression sur la mesure étant donné que, dans tous les cas, la perte d'énergie des alphas reste faible du fait du très court parcours dans l'air. Ce phénomène peut être observé directement sur le spectre de mesure comme le montre la Figure 4-11 :

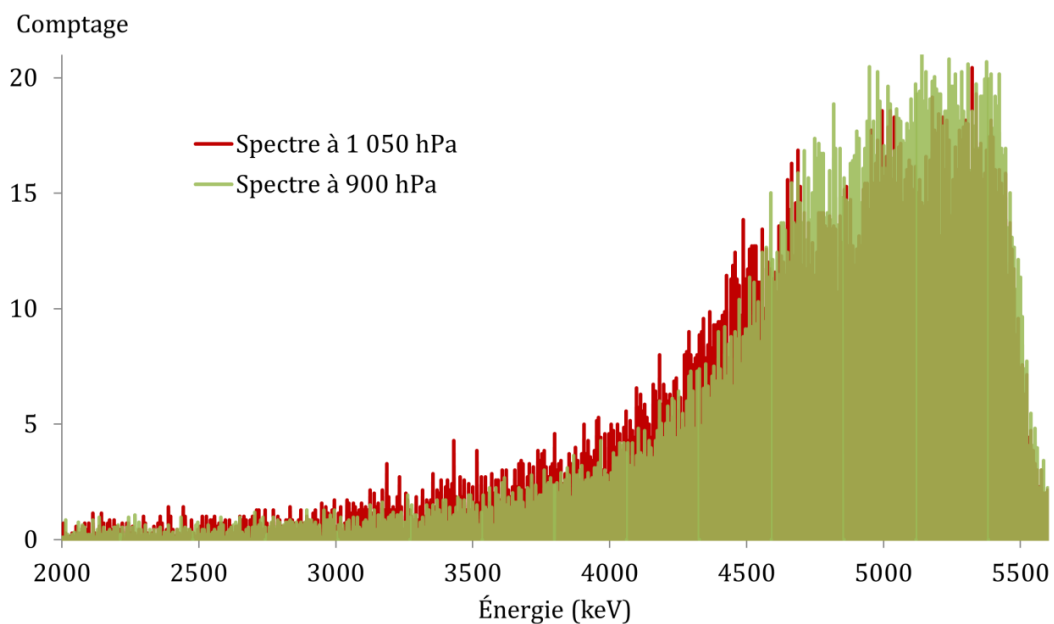


Figure 4-11 : Pic alpha de ^{222}Rn dans le dispositif de mesure pour une même activité volumique à une pression de 900 et 1 050 hPa.

Les comptages dans chacun des canaux des deux spectres alpha du radon pour les pressions de 900 et 1 050 hPa sont ramenés à la même date de référence en utilisant l'équation (4.11) et comparés. Ces résultats montrent une légère différence entre le spectre à 1 050 hPa où la traîne à gauche est plus conséquente que celle du spectre à 900 hPa. Ceci montre que la perte d'énergie des alphas est plus conséquente ; cependant, du fait de la géométrie, cette déformation du spectre reste minime, voire même ici difficile à identifier par manque de statistique et peut être considérée comme ayant une influence négligeable sur le comptage. Nous vérifions donc bien que la perte d'énergie des alphas dans l'air est peu dépendante de la pression dans le cas de notre géométrie.

Nous pouvons conclure aussi qu'une variation de pression totale dans le système n'entraîne pas de changement sur la capture du ^{218}Po , les résultats sont tous compatibles en tenant compte de leur incertitude.

4.4.3. Température

4.4.3.1. Le phénomène étudié

L'influence de la température sur un détecteur semi-conducteur silicium est bien connue. Elle entraîne un décalage des pics alpha du spectre. Ce phénomène peut être identifié directement sur la forme des pics alpha qui présenteront une résolution dégradée, ou une traîne anormale. Il est aussi possible de directement corriger ce phénomène en réalisant des acquisitions successives de spectres. Nous n'étudierons pas ici ce phénomène qui n'apparaît pas ou peu lors de nos expériences, la température du laboratoire étant bien stable.

Un autre phénomène plus spécifique à notre mesure est cependant possible et spécialement au niveau de l'installation de BACCARA. Dans BACCARA l'atmosphère en radon ou en thoron est produite à l'aide d'une circulation constante d'air comprimé sur une source de radium ou de thorium. L'air circule ainsi de manière constante et est expulsé en continu vers l'extérieur (cf. Figure 4-12). Nous avons observé que la température de l'air comprimé à l'intérieur de BACCARA varie peu au cours du temps (variation d'environ 1 °C). Le laboratoire n'étant pas climatisé, la température de l'air comprimé peut être bien différente de la température de la pièce et donc de notre dispositif de mesure et des tubes de circulation. Les tubes de prélèvement et le volume de mesure sont petits et représentent une grande surface d'échange avec l'atmosphère. Ceci peut entraîner une variation de température de l'atmosphère mesurée par rapport à celle de BACCARA.

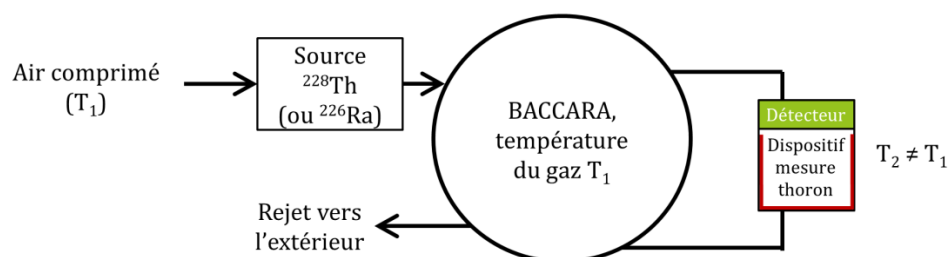


Figure 4-12 : Schéma des conditions expérimentales d'une mesure d'atmosphère en radon ou thoron dans BACCARA.

Dans ces conditions, la concentration en gaz dans le volume de mesure peut être différente de celle dans BACCARA. Nous souhaitons observer ce phénomène avec notre banc expérimental (cf. Figure 4-1). Comme nous ne pouvons pas chauffer le dispositif de mesure, nous avons décidé de

chauffer l'atmosphère de ^{222}Rn . Le dispositif de mesure, la pompe de circulation et les tubes de prélèvement seront par contre à la température de la pièce qui est ici stable au cours des expériences.

4.4.3.2. Protocole expérimental et analyse

Comme pour les mesures précédentes, un étalon de 181,2 (5) kBq à la date du 19/03/2015 à 10 h TU est mélangé à de l'air sec dans le volume de dilution. Plusieurs mesures sont réalisées à l'aide du dispositif de mesure thoron à différentes températures ; entre chaque mesure nous attendons l'équilibre entre le ^{222}Rn et le ^{218}Po .

L'air est réchauffé à l'aide d'un cordon chauffant enroulé autour du volume de dilution en acier inoxydable. La température est régulée à l'aide d'une sonde fixée entre la tresse chauffante et le volume de dilution en acier inoxydable.

Bien qu'il ait été possible de chauffer l'air avec la tresse, la température interne n'est pas stable comparée aux mesures précédentes. Les écarts de température tout au long de la mesure de ^{222}Rn pouvaient monter jusqu'à 1,2 °C pour la température la plus élevée. La variabilité des mesures est ainsi plus importante en comparaison des expériences réalisées précédemment.

L'air étant bien sec, la variation de température n'a pas entraîné de variation du taux d'humidité. Dans le cas présent, et au vu des précédentes expériences, le bilan des paramètres expérimentaux n'est pas nécessaire, seul les résultats de température sont utilisés.

Ces mesures ont été réalisées pour des temps d'acquisition différents. Le taux de comptage pour chacune des ROIs de ^{222}Rn et de ^{218}Po permet de comparer les résultats soit :

$$\tau = \frac{N(t_{ref})}{t_m}, \quad (4.15)$$

avec $N(t_{ref})$ le comptage corrigé calculé avec la formule (4.12) et t_m le temps de mesure. L'incertitude-type relative de τ s'exprime par la relation :

$$\frac{u(\tau)}{\tau} = \sqrt{\left(\frac{u(N(t_{ref}))}{N(t_{ref})}\right)^2 + \left(\frac{u(t_m)}{t_m}\right)^2}, \quad (4.16)$$

où $u(t_m)$ représente l'incertitude-type absolue de t_m . Le temps de mesure est calculé à l'aide de l'horloge de l'ordinateur, régulièrement corrigée grâce à un logiciel la raccordant à une date de référence. Sans cette correction, des décalages de plusieurs secondes ont déjà été observés sur des ordinateurs. Dans notre cas, nous choisissons une incertitude-type de 1 s sur le temps ; ce choix est conservatif au regard des corrections de quelques centaines de millisecondes effectuées par le logiciel. $N(t_{ref})$ représente le comptage corrigé pour la ROI choisie, son incertitude-type associée est calculée avec la formule (4.14). L'incertitude-type relative sur le temps de mesure est de l'ordre de 0,05 % ; elle reste négligeable pour l'ensemble des mesures.

4.4.3.3. Résultats de mesure

Les deux graphiques présentés en Figure 4-13 correspondent aux résultats pour la ROI de ^{222}Rn et de ^{218}Po . Le cordon chauffant a permis de réaliser des mesures pour seulement quatre températures.

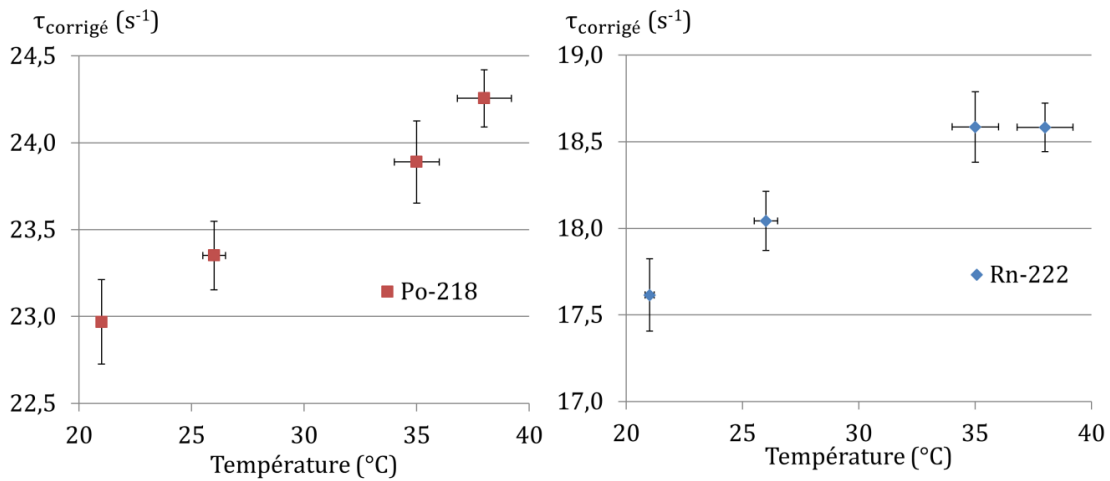


Figure 4-13 : Évolution du taux de comptage dans la région d'intérêt du spectre en fonction de la température : à gauche pour le ^{218}Po et à droite pour le ^{222}Rn .

L'incertitude-type relative sur le taux de comptage varie entre 0,4 % et 0,6 % pour les deux ROI. Les résultats présentent un écart significatif pour des grandes variations de température.

Les calculs sous MCNPX ont montré qu'une variation de température entraîne une variation de la masse volumique de l'air, mais ne fera pas varier de façon significative le rendement de détection de ^{222}Rn . Dans cette expérience, le taux de comptage de ^{222}Rn et de ^{218}Po augmentent tous les deux. Il n'y a donc pas d'influence de la température sur le taux de descendants capturés à la surface du détecteur. Les résultats montrent que l'activité volumique en ^{222}Rn augmente dans le volume de mesure.

Nous pourrions suspecter un effet de la variation de température sur l'électronique qui implique une dérive des résultats. Cet effet serait plus particulièrement attribué au détecteur silicium qui est directement en contact avec l'atmosphère alors que le reste de l'électronique est à la température de la pièce. Les quatre spectres sont représentés en Figure 4-14. Les spectres ne présentent pas de décalage au niveau des canaux, les ROI choisies sont bien valables. L'atmosphère est bien refroidie lorsqu'elle atteint le détecteur qui reste à une température constante, la différence de comptage est donc due à un autre phénomène.

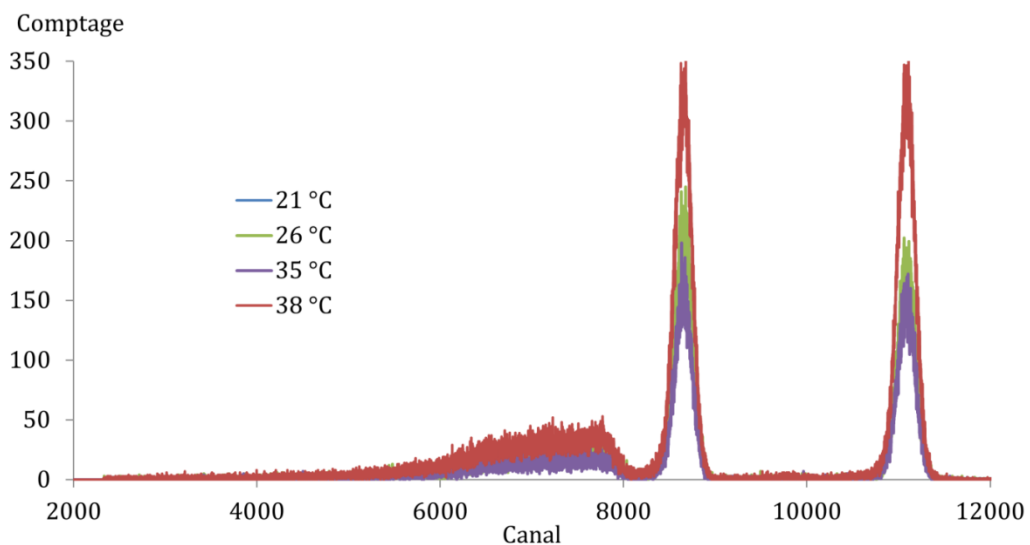


Figure 4-14 : Superposition des quatre spectres de la mesure de l'étalon à des températures différentes.

L'écart des résultats peut donc être directement attribué au gradient de température entre l'atmosphère en ^{222}Rn produite dans le volume de dilution et la température de l'atmosphère dans notre système de mesure.

Les mesures sont ici réalisées dans un volume fermé et constant, le nombre d'atomes de ^{222}Rn est constant au cours du temps, la pression totale après injection d'air est de 1 000 (1) hPa. L'élévation de température entraînera directement une variation de la pression totale dans le volume (elle atteint 1 040 (1) hPa à 38 °C). La pression dans le volume de mesure sera différente sachant que sa température est de 21 °C. Cette variation de pression peut être corrigée en utilisant la loi des gaz parfaits pour un volume constant soit :

$$P_0 = P_{mesure} \frac{T_0}{T_{mesure}}, \quad (4.17)$$

avec P_0 la pression dans le volume de mesure à la température $T_0 = 294,15 \text{ K}$, P_{mesure} la pression dans le volume de mesure à la température T_{mesure} . Cette variation de pression entre le volume de mesure et le volume de dilution influencera directement la concentration en ^{222}Rn dans ces deux volumes. Le taux de comptage dans le dispositif de mesure peut donc être corrigé par la relation :

$$\tau_{corrigé} = \tau \frac{T_0}{T_{mesure}}, \quad (4.18)$$

avec $\tau_{corrigé}$ le taux de comptage corrigé à une température $T_0 = 294,15 \text{ K}$ et T_{mesure} la température pendant la mesure exprimée en kelvin. Les résultats corrigés sont représentés en Figure 4-15 :

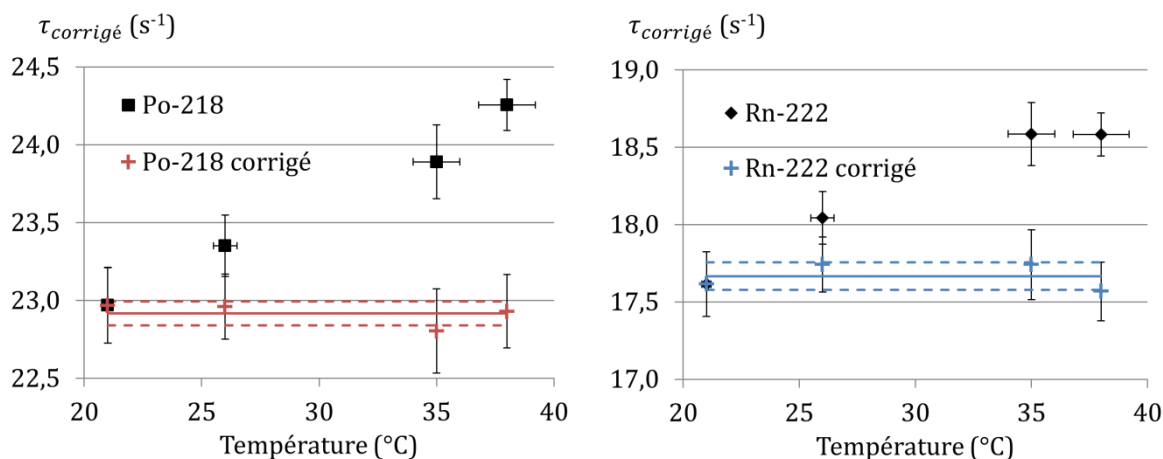


Figure 4-15: Résultat des taux de comptage avec la correction de température appliquée.

Lorsque les taux de comptage sont corrigés par la température, l'ensemble des résultats sont compatibles en tenant compte des incertitudes-type relatives associées variant de 0,5 % à 0,7 %.

Dans les conditions expérimentales normales, cette variation reste négligeable dans le laboratoire où la température est gardée stable à $20 \pm 2 \text{ }^{\circ}\text{C}$. Cette hypothèse est confirmée au vu des résultats précédents qui n'ont pas montré de variations corrélées avec des changements de température (cf. § 4.3.4). Il est cependant nécessaire de donner les conditions expérimentales lors de la mesure de l'activité volumique ou de s'assurer que le dispositif de mesure et l'atmosphère sont bien à la même température.

4.4.4. Humidité

4.4.4.1. Protocole expérimental et analyse

L'humidificateur utilisé permet un échange entre l'air et l'eau par une membrane de Naflon®. Comme le radon peut être absorbé par certains types de plastique, il n'est pas possible d'utiliser ce système pour humidifier l'atmosphère de référence. Nous devons alors créer une atmosphère à un taux d'humidité choisi puis la mélanger à l'étalon de référence.

Il est donc nécessaire de créer un étalon pour chaque atmosphère de référence. Du fait du temps nécessaire pour réaliser l'ensemble des manipulations, seuls cinq points de mesure sont réalisés ; une synthèse des valeurs d'humidité et de l'activité volumique en ^{222}Rn est présentée en Tableau 4-7.

Tableau 4-7 : Synthèse des conditions expérimentales.

Humidité Relative (% RH)	Température Moyenne (°C)	Activité volumique (MBq.m ⁻³)	Date de référence
1 (1)	21,32 (4)	3,347 (10)	04/03/2015 08:00
14 (1)	21,59 (10)	3,336 (11)	04/03/2015 08:00
37 (1)	20,99 (5)	3,995 (13)	03/03/2015 08:00
53 (1)	21,96 (5)	2,535 (9)	03/03/2015 08:00
71 (1)	21,08 (7)	3,513 (21)	04/03/2015 08:00
87 (1)	21,31 (5)	2,267 (7)	02/03/2015 08:00

Note : l'incertitude correspond à l'écart-type des résultats si celui-ci est plus grand que l'incertitude sur l'étalonnage de l'appareil.

Comme chaque étalon est différent, il n'est plus possible de comparer les résultats entre eux juste en utilisant le comptage ou le taux de comptage. Pour chaque résultat, le taux de comptage ainsi obtenu est divisé par l'activité volumique dans le banc de dilution soit :

$$\tau_v = \frac{\tau}{A_v^{222\text{Rn}}}, \quad (4.19)$$

avec pour incertitude-type relative associée :

$$\frac{u(\tau_v)}{\tau_v} = \sqrt{\left(\frac{u(\tau)}{\tau}\right)^2 + \left(\frac{u(A_v^{222\text{Rn}})}{A_v^{222\text{Rn}}}\right)^2}. \quad (4.20)$$

Dans notre cas cette équation sera appliquée uniquement aux pics de ^{218}Po et de ^{222}Rn qui seront à l'équilibre pendant la mesure.

4.4.4.2. Résultats de mesure

L'ensemble des résultats de mesure sont présentés en Figure 4-16. L'incertitude-type relative sur les points expérimentaux de ^{222}Rn varie de 0,4 % à 0,6 % et pour le ^{218}Po de 0,5 % à 0,7 %.

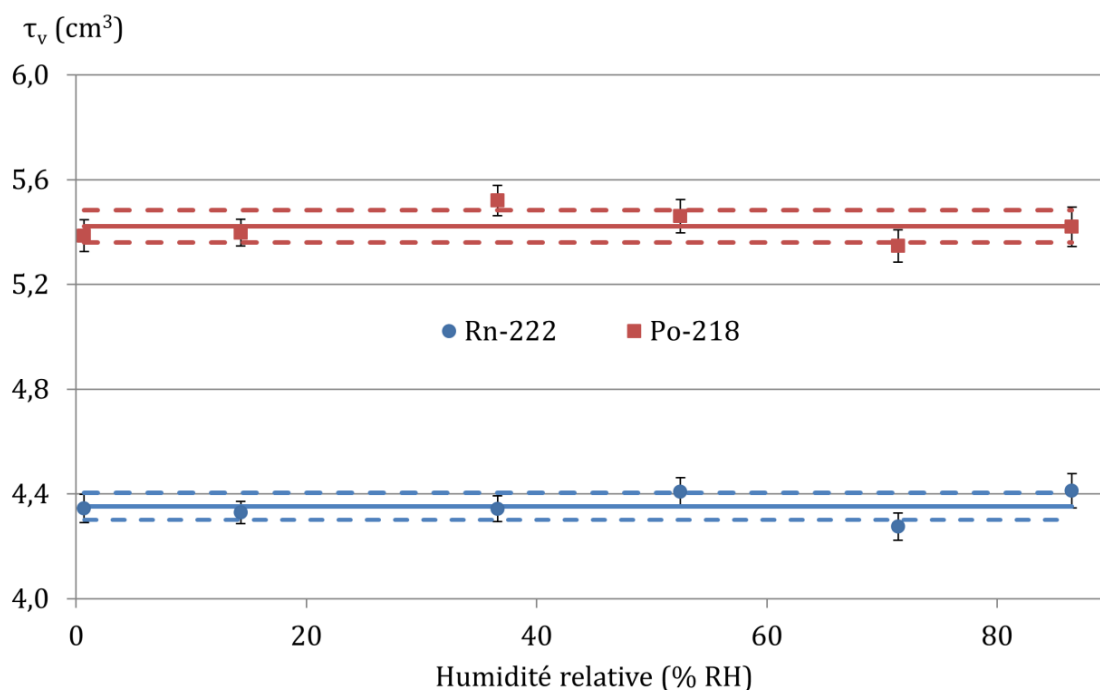


Figure 4-16 : Évolution du quotient du taux comptage par l'activité de référence pour différents taux d'humidité.

L'écart-type entre les résultats est inférieur aux incertitudes élargies à $k = 2$ des résultats expérimentaux pour le pic de ^{222}Rn et de ^{218}Po .

Il n'y a pas de mise en évidence d'une influence du taux d'humidité sur la mesure de ^{222}Rn ou sur le taux de dépôt de ^{218}Po . Ces résultats sont compatibles avec les simulations présentées en Chapitre 3.

4.4.5. Variation de l'activité volumique

4.4.5.1. Protocole et analyse des résultats

Plusieurs étalons de ^{222}Rn d'activités différentes sont mélangés à de l'air sec dans le volume de référence. Chacune de ces atmosphères est mesurée à l'aide du dispositif de mesure thoron. Le quotient du taux de comptage par l'activité volumique, τ_v , est calculé en utilisant l'équation (4.19) pour une même ROI entre chaque spectre et permet de comparer les résultats. Comme précédemment, les deux ROIs correspondent aux pics de ^{222}Rn et de ^{218}Po qui sont à l'équilibre lors des mesures.

Au vu des résultats précédents, les variations liées à la pression, à l'humidité et au débit n'auront pas d'impact sur nos mesures. La température pour chaque mesure est relevée pour s'assurer d'un faible écart entre chaque mesure. Les résultats sont présentés en Tableau 4-8.

Les écarts de température entre chaque mesure sont au maximum de 1 °C, il est ainsi possible de comparer directement chacun des résultats compte tenu des résultats précédents.

Tableau 4-8 : Relevé de température pendant la mesure pour chaque activité volumique correspondante.

Moyenne T (°C)	Activité volumique (MBq.m ⁻³)
21,68 (15)	0,894
20,97 (4)	1,262
21,31 (5)	2,162
21,96 (5)	2,420
21,32 (4)	2,676
20,87 (4)	3,046

4.4.5.2. Résultats de mesure

La Figure 4-17 représente le taux de comptage corrigé, τ_v , calculé pour les ROIs provenant des pics de ²²²Rn et de ²¹⁸Po pour chaque activité volumique mesurée. L'incertitude-type relative pour les résultats de ²²²Rn est comprise entre 0,7 % et 0,9 % et pour les résultats du ²¹⁸Po elle est comprise entre 0,6 % et 0,9 %.

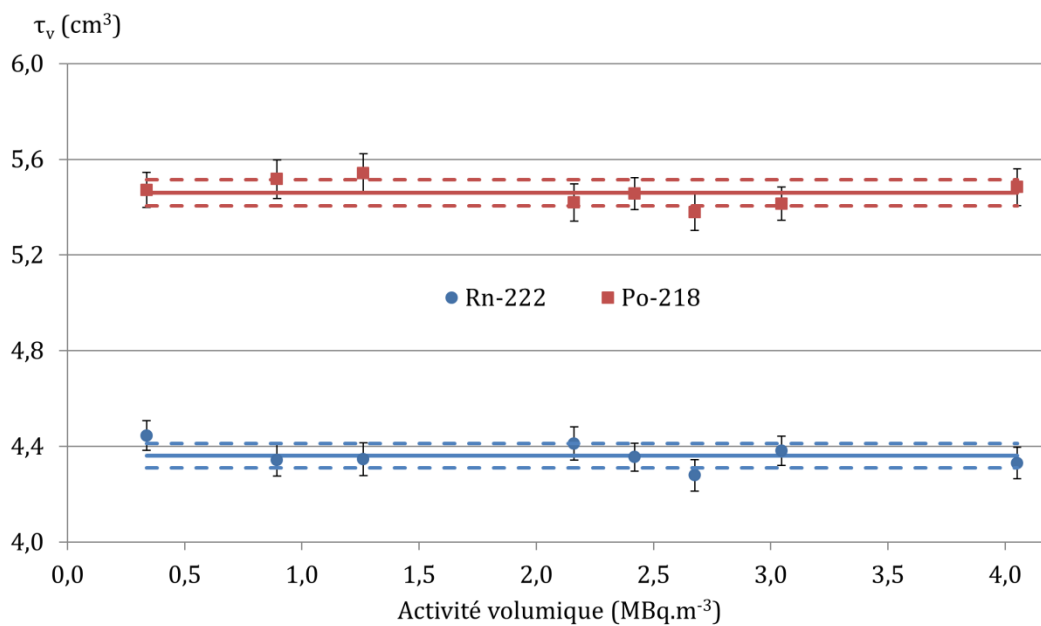


Figure 4-17 : Évolution du quotient du taux de comptage par l'activité volumique de référence pour différentes activités volumiques.

L'écart-type entre les résultats du ²²²Rn est inférieur aux incertitudes de la mesure élargie à $k = 2$. Ces résultats montrent qu'il n'y a pas d'influence de l'activité volumique en ²²²Rn sur le rendement du dispositif. De même, la réponse du ²¹⁸Po reste la même suivant l'activité volumique : il n'y a pas de variation du taux de capture des descendants.

4.5. Évaluation du rendement de détection et incertitudes

4.5.1. Méthode d'analyse des spectres

Jusqu'à présent les comparaisons ont été fondées sur des régions d'intérêt (ROI) du spectre. L'évaluation du rendement de détection du gaz seul ou de chaque pic ne peut pas se faire avec ce type de ROI. Afin d'évaluer le rendement de détection lié à chaque élément de la chaîne du radon, nous devons évaluer correctement la surface de chaque pic.

Un pic alpha obtenu par un détecteur silicium a la forme d'une gaussienne avec une traîne sur la gauche. Ainsi dans le cas de notre spectre, le pic du ^{218}Po va s'empiler avec le ^{222}Rn . Bien que cette proportion soit faible, il est nécessaire de soustraire la traîne du ^{218}Po du pic du ^{222}Rn afin d'évaluer correctement le rendement de détection du ^{222}Rn et de le comparer aux résultats MCNPX. Le LNE-LNHB dispose d'un logiciel, Colegram (Lépy, 2004) permettant de calculer l'aire des pics d'un spectre à l'aide de fonctions mathématiques. Dans le cas de spectres alpha obtenus par mesure avec un détecteur PIPS, le logiciel possède une fonction spécifique $ALPHA(x)$ qui correspond à une fonction gaussienne avec deux traînes à gauche, comme illustré en Figure 4-18.

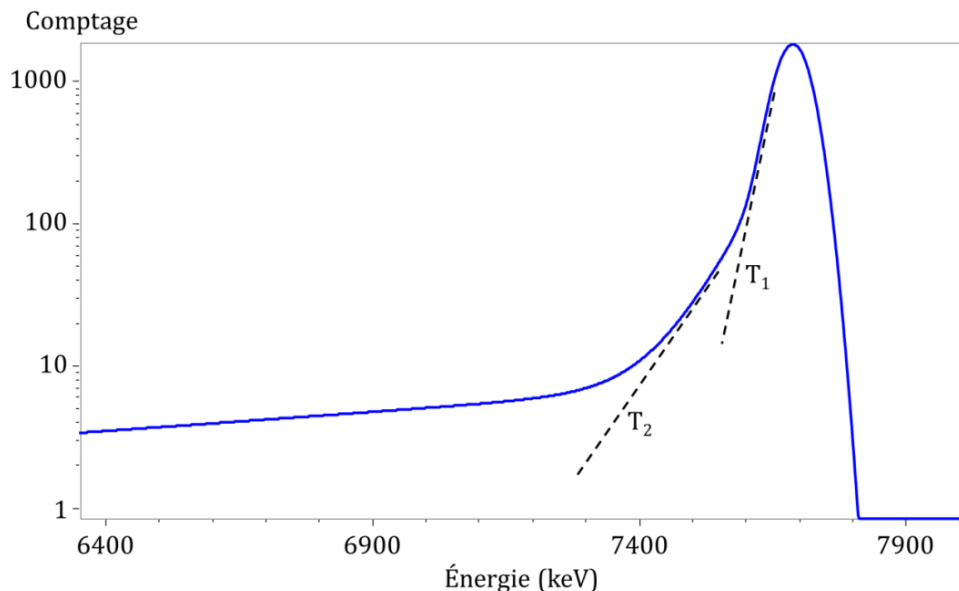


Figure 4-18 : Forme d'un pic alpha obtenu par mesure avec un détecteur silicium. Les deux traînes introduites par le logiciel Colegram sont mises en évidence par les lignes en pointillés.

Cette fonction se traduit par la relation établie par (Bortels & Collaers, 1987):

$$ALPHA(x) = G(x) + T_1(x) + T_2(x), \quad (4.21)$$

avec :

$$G(x) = \frac{a}{\sigma\sqrt{2\pi}} \times \exp\left[\frac{-(x - x_0)^2}{2\sigma}\right], \quad (4.22)$$

et :

$$T_i(x) = a \frac{T_i}{2} \exp \left[(x - x_0)\tau_i + \frac{\sigma^2 \tau_i^2}{2} \right] \operatorname{erfc} \left[\frac{1}{\sqrt{2}} \left(\frac{(x - x_0)}{\sigma} + \sigma \tau_i \right) \right], \quad (4.23)$$

où A est l'amplitude du pic, σ l'écart type de la gaussienne, $(x - x_0)$ la distance par rapport au centroïde du pic, T_i l'amplitude de la traîne, τ_i un paramètre de la pente de l'exponentielle définissant l'inclinaison de la traîne, et erfc une fonction d'erreur complémentaire. Le logiciel Colegram permet de choisir l'ensemble de ces paramètres pour ajuster la fonction sur les pics alpha comme le montre la Figure 4-19.

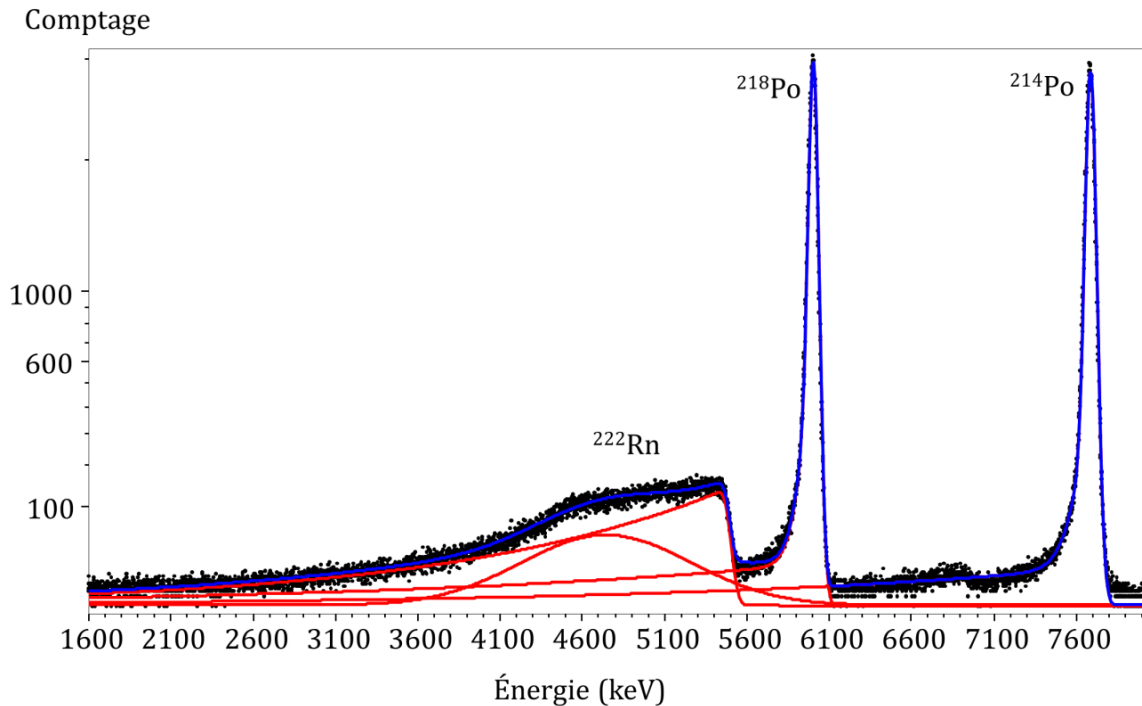


Figure 4-19 : Résultat obtenu avec Colegram de l'ajustement de la fonction $ALPHA(x)$. La courbe bleue représente l'ajustement total du spectre et les courbes rouges correspondent aux ajustements spécifiques à chaque pic.

NOTE : Le petit pic présent entre le pic de ^{218}Po et le pic de ^{214}Po provient d'une contamination due à une manipe précédente, ce pic n'est pas réapparu dans les autres expériences réalisées (Sabot, et al., 2015a)

Chacun des pics est ajusté à l'aide de la fonction mathématique (4.21). Comme le pic du ^{214}Po est bien séparé des autres, il est possible de l'utiliser pour déterminer les caractéristiques de la traîne du ^{218}Po . Dans le cas du pic du ^{222}Rn , nous utilisons ici deux fonctions pour surfer le pic. Cette technique semble la plus adaptée du fait de la forme du pic. En effet, le plateau sur le pic alpha de ^{222}Rn , qui est dû à la géométrie choisie comme discuté au Chapitre 3, ne permet pas d'utiliser une fonction $ALPHA(X)$ unique pour surfer le pic. Ce choix permet l'ajustement mathématique du pic et de calculer son aire automatiquement avec Colegram. Une autre méthode consisterait à directement prendre le comptage brut dans la zone d'intérêt du ^{222}Rn et du ^{218}Po et de supprimer le comptage lié au pic du ^{218}Po .

Le logiciel Colegram nous permet aussi de tracer les résidus après l'ajustement de la fonction mathématique. Dans le logiciel, le résidu relatif s'exprime en pourcentage avec la relation :

$$r_i = \frac{y_i - f_i}{\sigma_i^2} \times 100 = \frac{y_i - f_i}{y_i} \times 100 \quad (4.24)$$

où y_i représente le point expérimental du spectre, f_i la valeur de l'ajustement mathématique au point y_i , σ_i l'écart-type du point expérimental. Comme il s'agit d'une distribution de Poisson, $\sigma_i^2 = y_i$.

Les résidus obtenus après l'ajustement mathématique sont présentés en Figure 4-20.

Résidus (%)

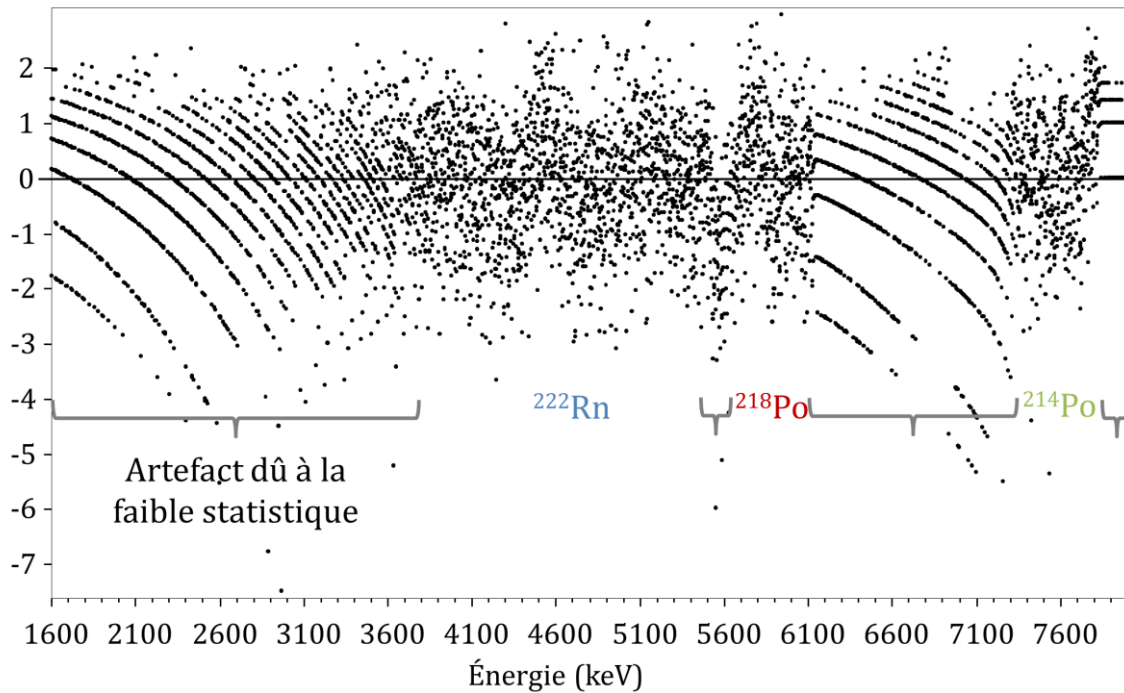


Figure 4-20 : Représentation des résidus après l'ajustement mathématique en fonction de l'énergie.

Dans les zones où le comptage est assez important, les résidus sont faibles et surtout présentent une bonne distribution autour du 0 ce qui montre un bon ajustement de la fonction. L'incertitude-type relative sur l'ajustement de la fonction, donnée par le logiciel Colegram est estimée à $\frac{U(fit)}{fit} = 1 \cdot 10^{-4}$.

4.5.2. Rendement de détection lié au pic de ^{222}Rn

La détermination expérimentale du rendement se fait à l'aide d'une atmosphère de référence en ^{222}Rn produite dans le volume de dilution. Nous nous plaçons dans les conditions les plus adaptées, soit à une température de 21 °C stable dans le temps, ce qui permet de ne pas tenir compte de la variation de température. Nous utilisons les données acquises lors de l'expérience présentée en § 4.5 qui sont réalisées dans les conditions idéales. Afin d'augmenter la statistique, les spectres sont ajoutés par groupe de six, ce qui représente un total de dix-neuf points pour évaluer le rendement de détection.

4.5.2.1. Mesure du rendement pour un seul spectre avec une incertitude évaluée par méthode classique

Le calcul du rendement du ^{222}Rn , $R_{d^{222}\text{Rn}}$, est réalisé à partir de la surface du pic en utilisant la formule suivante :

$$R_{d^{222}\text{Rn}} = \frac{N_{^{222}\text{Rn}}(d_m) F_{ref} F_{dec}}{t_m A_v^{^{222}\text{Rn}} V_{det}}, \quad (4.25)$$

Où :

- ↳ $N_{^{222}\text{Rn}}(d_m)$ représente le nombre d'impulsions provenant du pic du ^{222}Rn à la date de la mesure d_m ;
- ↳ F_{ref} le facteur de correction pour ramener le comptage à la date de référence présenté en équation (4.9) ;
- ↳ F_{dec} le facteur de correction pour corriger la décroissance de l'élément pendant la mesure (cf. équation (4.12)) ;
- ↳ t_m le temps de mesure ;
- ↳ $A_v = \frac{A_{^{222}\text{Rn}}}{V_d}$ l'activité volumique en ^{222}Rn obtenue par le rapport de l'activité de l'étalon primaire de ^{222}Rn ($A_{^{222}\text{Rn}}$) à la date de référence d_{ref} , et le volume de dilution V_d ;
- ↳ V_{det} le volume de détection ;
- ↳ d_{ref} la date de référence correspondant ici à celle de l'étalon de ^{222}Rn ;
- ↳ $T_{^{222}\text{Rn}}$ la période du ^{222}Rn .

L'incertitude-type relative associée à l'équation (4.25) s'exprime par la relation :

$$\left(\frac{u(R_{d^{222}\text{Rn}})}{R_{d^{222}\text{Rn}}} \right)^2 = \left(\frac{u(F_{ref})}{F_{ref}} \right)^2 + \left(\frac{u(F_{dec})}{F_{dec}} \right)^2 + \left(\frac{u(N(d_m))}{N(d_m)} \right)^2 + \left(\frac{u(t_m)}{t_m} \right)^2 + \left(\frac{u(A_v^{^{222}\text{Rn}})}{A_v^{^{222}\text{Rn}}} \right)^2 + \left(\frac{u(V_{det})}{V_{det}} \right)^2, \quad (4.26)$$

où $u(X)$ représente l'incertitude-type de la valeur X , $\frac{u(F_{ref})}{F_{ref}}$ correspond à l'équation (4.11), $\frac{u(F_{dec})}{F_{dec}}$ à l'équation (4.13), $\frac{u(A_v^{^{222}\text{Rn}})}{A_v^{^{222}\text{Rn}}}$ à l'équation (4.7) et :

$$\left(\frac{u(N_{^{222}\text{Rn}}(d_m))}{N_{^{222}\text{Rn}}(d_m)} \right)^2 = \left(\frac{u(N)}{N} \right)^2 + \left(\frac{u(fit)}{fit} \right)^2, \quad (4.27)$$

avec N le comptage dont l'incertitude-type absolue est \sqrt{N} et $\frac{u(fit)}{fit}$ représente l'incertitude-type relative liée à l'ajustement mathématique de Colegram.

Le volume de détection est mesuré à l'aide d'une colonne de mesure (ROCH France, 1995) étalonnée. Ce dispositif de mesure permet soit d'évaluer la distance entre deux points, soit de

mesurer le diamètre interne ou externe d'un cylindre. La mesure est effectuée avec une incertitude-type absolue de 3 μm . Nous avons utilisé ce dispositif pour définir le volume de détection qui a une forme cylindrique (Cf. Chapitre 3). Du fait des défauts de planéité de la pièce de l'ordre de quelques dizaines de micromètres, l'incertitude de mesure est négligeable comparée à l'écart-type des résultats. Nous avons donc réalisé plusieurs mesures de la hauteur et du diamètre du volume, la valeur choisie étant la moyenne des mesures avec pour incertitude-type associée l'écart-type des résultats. Comme il s'agit d'un cylindre, son volume est calculé avec l'équation :

$$V_{det} = \pi(h_c + h_d) \left(\frac{d}{2}\right)^2, \quad (4.28)$$

où h_c et h_d représentent les deux distances mesurées pour évaluer la hauteur du cylindre et d le diamètre du volume de détection. Comme les grandeurs ne sont pas corrélées et que l'incertitude liée à la mesure est négligeable, l'expression de l'incertitude composée se calcule à l'aide de la formule du GUM (JCGM, 2008a) :

$$u^2(y) = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\delta f}{\delta x_i}\right)^2 u^2(x_i), \quad (4.29)$$

soit ici :

$$u^2(V_{det}) = \left(\frac{\pi(h_c + h_d)d}{2}\right)^2 u^2(d) + \left(\frac{\pi d^2}{4}\right)^2 u^2(h_d) + \left(\frac{\pi d^2}{4}\right)^2 u^2(h_c), \quad (4.30)$$

et :

$$\frac{u^2(V_{det})}{V_{det}^2} = 4 \frac{u^2(d)}{d^2} + \frac{u^2(h_d) + u^2(h_c)}{(h_c + h_d)^2}. \quad (4.31)$$

Le bilan complet appliqué à un premier cas est présenté dans le tableau suivant :

Tableau 4-9 : Rendement et bilan d'incertitude associé pour un point de mesure à la date de référence du 20/02/2015 8 : 00 TU.

Grandeur	Valeur	Incertitude-type relative (%)	Contribution (%)
$N_{222Rn}(d_m)$	147 285 (384) s^{-1}	0,26	32,93
F_{ref}	1,060 54 (1)	$9 \cdot 10^{-4}$	0,00
F_{dec}	1,012 6 (4)	$4 \cdot 10^{-4}$	0,74
t_m	12 000,6 (10) s	$8 \cdot 10^{-4}$	0,03
$A_v 222Rn$	3,313 (6) MBq.m ⁻³	0,18	16,08
V_{det}	12,444 (40) cm ⁻³	0,32	50,21
d	3,896 (5) cm	0,12	-
h_d	0,096 7 (9) cm	0,93	-
h_c	0,947 8 (18) cm	0,18	-
R_{d222Rn}	0,319 6 (14)	0,44	

Le rendement de détection pour le ^{222}Rn est ainsi déterminé expérimentalement avec une incertitude-type relative de 0,44 %.

4.5.2.2. Mesure du rendement pour un seul spectre avec une incertitude évaluée par méthode Monte-Carlo

L'incertitude est aussi évaluée par propagation d'incertitude avec une méthode Monte-Carlo en utilisant le logiciel du NIST (Lafarge, *et al.*, 2015). La formule complète du calcul est directement utilisée dans le logiciel soit :

$$R_{d^{222}\text{Rn}} = \frac{N_{222\text{Rn}}(d_m) F_{ref} F_{dec}}{t_m A_{v^{222}\text{Rn}} V_{det}} \frac{\frac{\ln 2}{T_{222\text{Rn}}} \times t_m}{1 - \exp\left(\frac{-\ln 2}{T_{222\text{Rn}}} \times t_m\right)} e^{\frac{\ln 2}{T_{222\text{Rn}}} \times (d_m - d_{ref})} \quad (4.32)$$

$$= \frac{N_{222\text{Rn}}(d_m) \frac{\ln 2}{T_{222\text{Rn}}} \times t_m}{t_m \frac{A_{222\text{Rn}}}{V_d} \pi(h_c + h_d) \left(\frac{d}{2}\right)^2} e^{\frac{\ln 2}{T_{222\text{Rn}}} \times (d_m - d_{ref})}$$

Avec cette méthode nous ne faisons aucune approximation et ne négligeons pas l'incertitude de t_m dans les calculs de F_{dec} et F_{ref} contrairement à la méthode précédente. Le type de distribution des valeurs est présenté en Tableau 4-10.

Tableau 4-10 : Forme et distribution des valeurs pour le calcul d'incertitude par méthode Monte-Carlo.

Grandeur	Valeur	Incertainde-type relative (%)	Contribution (%)	Type de distribution
$N_{222\text{Rn}}(d_m)$	147 285 ± 384	0,26	34,4	Gamma
$T_{222\text{Rn}}$	330 320 (70) s	0,02	0,0	Gaussienne
t_m	12 000,6 (10) s	$8 \cdot 10^{-4}$	0,0	Rectangulaire
$A_{222\text{Rn}}$	143 975 ± 217 Bq	0,3	11,6	Gaussienne
V_d	43 462 (24) cm ³	0,02	1,5	Gaussienne
d	3,896 (5) cm	0,12	3,8	Rectangulaire
h_d	0,096 7 (9) cm	0,93	15,1	Rectangulaire
h_c	0,947 8 (18) cm	0,18	33,5	Rectangulaire
$R_{d^{222}\text{Rn}}$	0,319 5 (14)	0,44		

Dans le cas d'un comptage, le GUM (JCGM, 2008b) indique qu'il faut utiliser une distribution de type Gamma. Comme la distribution de l'incertitude sur le temps est inconnue, elle est ici imposée rectangulaire afin de rester conservatif. Les distances sont mesurées entre deux points, nous choisissons ici une distribution rectangulaire qui est la plus appropriée.

Les incertitudes calculées par les deux méthodes sont compatibles. L'incertitude sur le temps de mesure est négligeable dans le calcul d'incertitude par méthode classique.

4.5.2.3. Résultats de rendement pour l'ensemble des spectres

La méthode d'analyse est appliquée sur l'ensemble des 19 spectres de ^{222}Rn . L'ensemble des résultats est présenté en Figure 4-21.

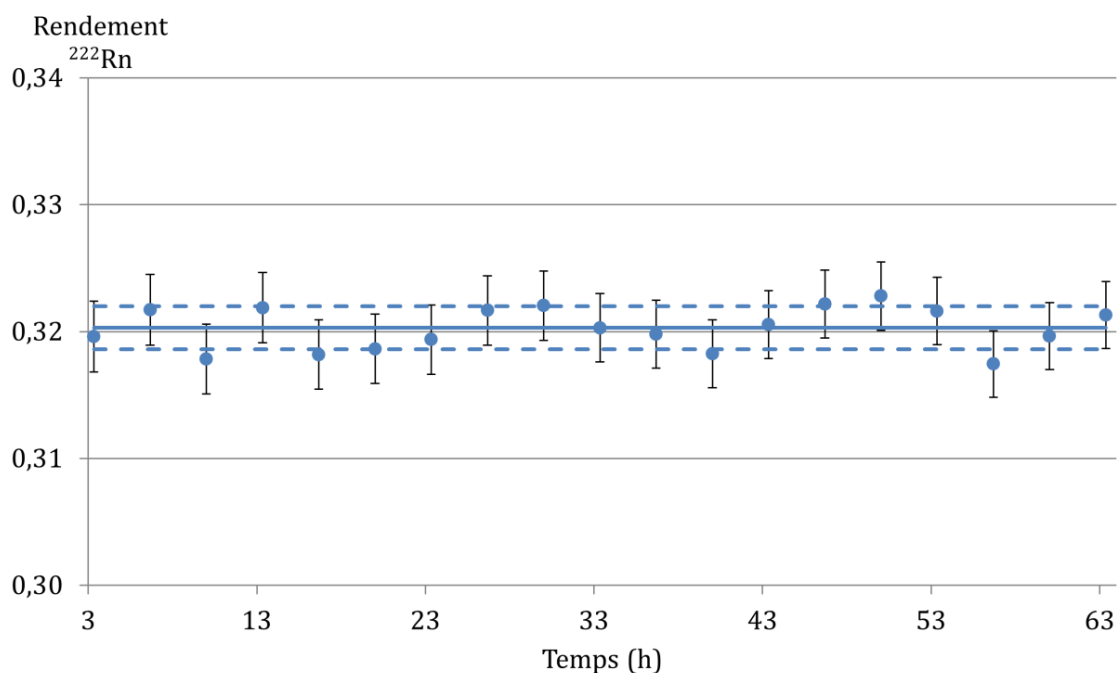


Figure 4-21 : Résultats de rendements calculés sur l'ensemble des spectres mesurés pendant 63 h d'exposition à une activité de référence en ^{222}Rn .

L'incertitude-type absolue sur les valeurs de rendement obtenu est de 0,001 4. La moyenne est évaluée à 0,320 avec un écart-type associé aux valeurs de 0,002. Ces résultats sont compatibles avec le rendement calculé par méthode Monte-Carlo qui est de 0,318 6 (3) (cf. § Chapitre 3).

4.5.3. Analyse des pics de ^{218}Po et de ^{214}Po

Sur l'ensemble de ces mesures nous analysons aussi les résultats liés aux deux descendants du ^{222}Rn , le ^{218}Po et le ^{214}Po . Le rendement de détection pour les descendants est différent de celui du gaz du fait de leur comportement dans le volume.

À l'inverse, les deux descendants sont tous les deux déposés à la surface du détecteur. Le signal du ^{214}Po provient en fait du ^{218}Po qui a été capturé à la surface du détecteur et s'est désintégré au cours du temps. Il est ainsi possible de comparer directement la surface de ces deux pics sur les spectres après obtention de l'équilibre (soit 4 heures).

Les résultats présentés en Figure 4-22 correspondent au rapport de comptage entre le pic de ^{218}Po et le pic de ^{214}Po . L'incertitude-type relative associée à ce calcul s'exprime par la relation :

$$\frac{u \left(N_{218\text{Po}} / N_{214\text{Po}} \right)}{N_{218\text{Po}} / N_{214\text{Po}}} = \sqrt{\left(\frac{u \left(N_{218\text{Po}} \right)}{N_{218\text{Po}}} \right)^2 + \left(\frac{u \left(N_{214\text{Po}} \right)}{N_{214\text{Po}}} \right)^2}, \quad (4.33)$$

l'incertitude présentée dans le graphique correspond à l'incertitude élargie à $k = 2$:

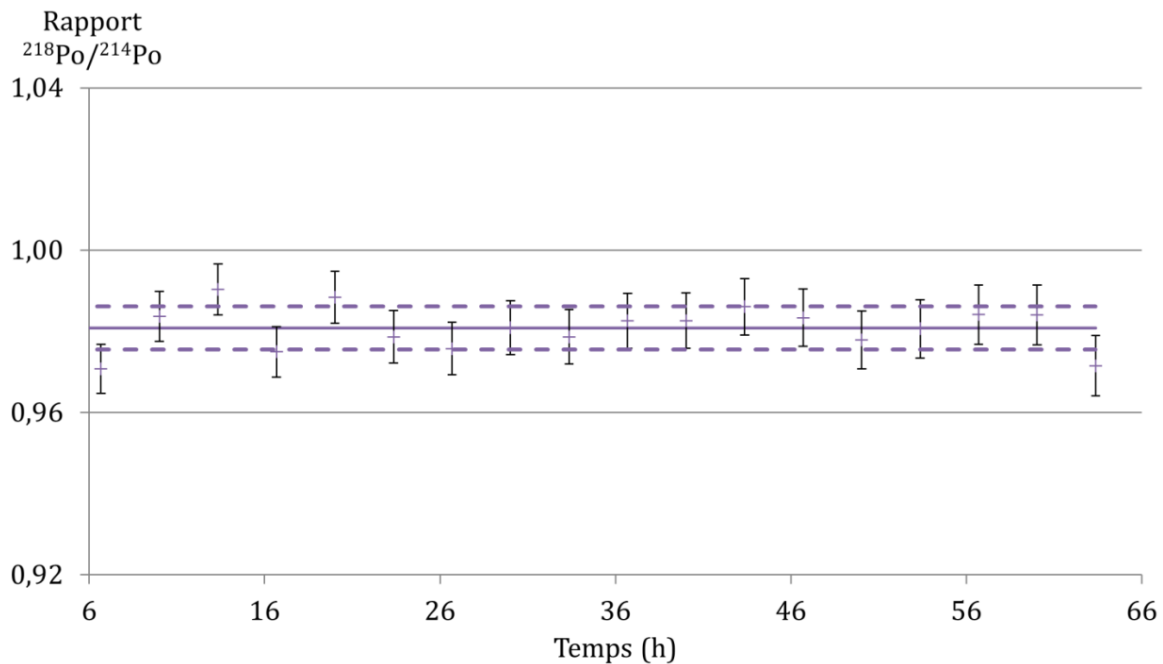


Figure 4-22 : Rapport des pics du ^{218}Po et du ^{214}Po après obtention de l'équilibre.

L'incertitude absolue élargie à $k = 2$ varie de 0,006 à 0,008 pour l'ensemble des valeurs des rapports. La moyenne est évaluée à 0,981 avec un écart-type de 0,005. Ce résultat est compatible avec les données présentées en § 1.1.1 à deux écarts-types.

En utilisant les équations du § 4.5.2.1 appliquées au comptage de ^{218}Po , nous pouvons déterminer expérimentalement le rendement lié au ^{218}Po avec une incertitude associée comme le montrent les résultats présentés en Figure 4-23.

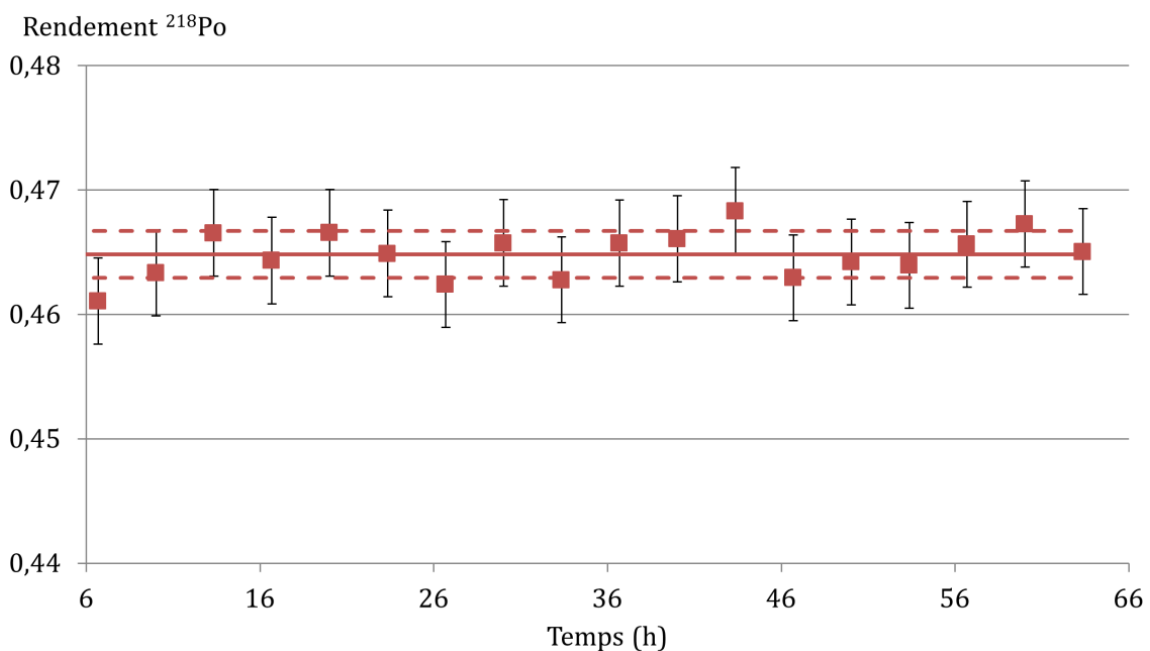


Figure 4-23 : Résultats de la détermination expérimentale du rendement pour le pic de ^{218}Po .

L'incertitude absolue élargie à $k = 2$ est de 0,003 pour l'ensemble des valeurs. La moyenne du rendement du ^{218}Po est de 0,465 avec un écart-type sur les résultats de 0,002. Ce rendement est inférieur au rendement calculé par MCNPX pour un dépôt sur un détecteur silicium qui doit être proche de 0,495 (2). Nous savons cependant que tous les atomes de ^{218}Po produits, ne sont pas chargés, d'où l'écart entre les deux valeurs. En comparant les deux rendements, il est possible de déterminer le taux de descendants chargés en faisant le rapport du rendement de détection calculé et le rapport du rendement théorique. L'incertitude-type relative du taux de descendants chargés correspond à la racine carrée de la somme quadratique des incertitudes types relatives du rendement expérimental et du rendement théorique. Les résultats avec leurs incertitudes élargies à $k = 2$ sont présentés en Figure 4-24.

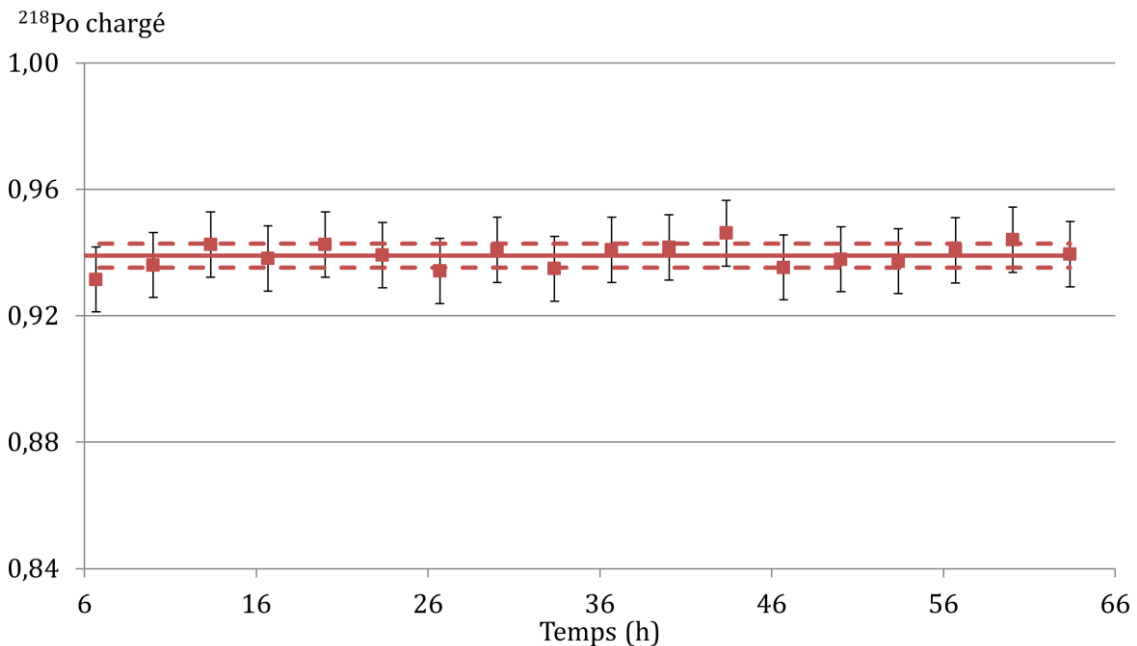


Figure 4-24 : Pourcentage de ^{218}Po descendants chargés.

La moyenne du taux de ^{218}Po chargé est évaluée à 0,939 avec un écart-type sur les résultats de 0,004. Ce résultat est compatible avec celui obtenu par (Dua, *et al.*, 1983) qui était de 91,4 (14) % (cf. Chapitre 2) en tenant compte des incertitudes élargies à $k = 2$.

4.6. Conclusion

Nous avons mis en place un dispositif expérimental capable de produire une atmosphère de ^{222}Rn avec une incertitude-type relative de 0,3 % sur l'activité volumique. Ce dispositif permet le contrôle et le suivi précis des différents paramètres de l'air tel que le débit, la pression, la température et l'humidité relative. Avec ce dispositif expérimental, nous avons pu valider les hypothèses faites sur les caractéristiques du dispositif en tenant compte des incertitudes associées à la mesure.

Nous avons tout d'abord réalisé une analyse des régions d'intérêt (ROI) propres à chacun des isotopes. Ceci nous a permis de minimiser les paramètres d'incertitude et de dépendre uniquement du comptage, soit une incertitude type-relative de 0,5 % sur nos mesures. Nous avons montré qu'avec ce dispositif, l'évolution des comptages liés au ^{222}Rn et à ses descendants, le ^{218}Po et le ^{214}Po , suivent la décroissance du ^{222}Rn . L'équilibre entre chaque élément est bien atteint après 4 h de circulation. L'hypothèse d'une perte de descendants due à l'énergie de recul

n'est donc pas avérée ou est négligeable compte tenu de nos incertitudes lors de l'analyse des régions d'intérêt du spectre. Les conditions expérimentales pour cette mesure étaient optimales, car le débit, la température, la pression et le taux d'humidité sont restés stables au cours des 117 mesures réalisées.

Par la suite l'étude a été étendue à l'évaluation des paramètres d'influence sur la mesure. La géométrie choisie a été optimisée pour éviter l'influence des paramètres tels que la pression, l'humidité, le débit et la température lors de la mesure. Afin de valider ce comportement de façon expérimentale, l'impact de chacun de ces paramètres a été étudié à l'aide de plusieurs expériences dans des conditions bien définies. Les résultats ont par la suite été comparés entre eux tout en essayant de simplifier au maximum la méthode d'analyse afin de minimiser les paramètres d'incertitude. L'influence de ces paramètres est négligeable en tenant compte des incertitudes de mesure, comme décrit ci-dessous :

- ↳ le débit n'a pas d'influence sur la mesure du ^{222}Rn entre 0 et 2 L.min⁻¹ (incertitude-type relative sur les mesures de 0,5 %) : le taux de descendants capturés reste le même dans toute la gamme de débit et, le champ électrique est assez intense pour capturer les descendants chargés ;
- ↳ la pression totale entre 900 et 1 050 hPa n'a pas d'influence sur le comptage lié au pic de ^{222}Rn et de ses descendants (incertitude-type relative sur les mesures de 0,5 %). La perte d'énergie du rayonnement alpha émis par le radon reste négligeable du fait de la petite géométrie et la variation de pression n'entraîne pas de différence sur le taux de descendants capturés ;
- ↳ la température n'a pas d'influence sur le taux de descendants capturés à la surface du détecteur. Il est important de bien s'assurer que le dispositif de mesure et les tubes de prélèvement soit à la même température que l'atmosphère à mesurer. Ceci permet d'éviter d'appliquer une correction sur les résultats mesurés ;
- ↳ l'humidité n'a pas d'influence sur la mesure du ^{222}Rn et ses descendants entre 0 % RH et 90 % RH (incertitude-type relative sur les mesures de 0,4 % à 0,6 %). Les descendants chargés produits sont capturés assez rapidement pour empêcher leur neutralisation due à la vapeur d'eau présente dans l'air ;
- ↳ aucune dérive de la mesure n'a été observée après 4 jours consécutifs d'exposition à une atmosphère en ^{222}Rn (incertitude-type relative sur les mesures de 0,5 %) ;
- ↳ le rendement de détection du dispositif reste le même pour toute la gamme d'activité volumique (incertitude-type relative sur les mesures de 0,7 % à 0,9 %) : même dans le cas où l'activité volumique en ^{222}Rn est forte, les effets de neutralisation n'ont pas le temps de se produire du fait de la capture très rapide des descendants.

Par la suite, l'analyse des résultats a été réalisée pour évaluer précisément la surface de chaque pic et notamment corriger les résultats de comptage en tenant compte de la traîne de chaque pic. Nous avons utilisé le logiciel Colegram du LNE-LNHB qui nous a permis d'utiliser une fonction mathématique décrivant une gaussienne avec deux traînes à gauche afin de l'ajuster au mieux sur un pic alpha. Après analyse des résidus, nous avons vu que la méthode est adaptée à notre spectre. La méthode présente aussi une bonne reproductibilité et donne des résultats compatibles en tenant compte des incertitudes associées. Il sera cependant peut-être utile d'utiliser à l'avenir une méthode plus récente telle que la fonction « BEST » (Pommé, *et al.*, 2015) qui devrait permettre d'obtenir un résidu plus petit. Cette analyse a permis d'évaluer expérimentalement le rendement de détection lié au ^{222}Rn à 0,320 (2) avec une incertitude-type relative de 0,6 % qui est compatible avec les calculs MCNPX donnant un rendement de 0,318 6 (3) (cf. Chapitre 3). L'évaluation de l'incertitude sur la mesure a été réalisée par deux

approches, la méthode classique et la méthode Monte-Carlo ; les deux méthodes ont donné le même résultat.

L'analyse plus complète des spectres nous a permis aussi d'évaluer le rendement de détection lié aux descendants du ^{222}Rn : que sont le ^{218}Po et le ^{214}Po . Tout d'abord le rapport des comptages liés aux deux spectres est évalué à 0,981 (5) qui est à comparer avec le rapport calculé à partir des données nucléaires qui est de 0,991 53. Ce résultat reste compatible avec le calcul utilisant les données nucléaires à $k = 2$. La légère différence peut s'expliquer par un détachement de noyaux de recul produit par la désintégration du ^{218}Po sur le filtre qui seraient chargés et donc capturés à la surface du détecteur. Ces noyaux de recul seraient donc détectés en tant que ^{214}Po mais pas en ^{218}Po . Ce phénomène a déjà été mis en évidence à l'aide d'une étude sur deux filtres plans collés l'un à l'autre ; le deuxième filtre montrait la présence de descendants alors qu'il ne devait pas en avoir. Au vu de nos incertitudes, il n'est cependant pas possible de conclure sur ce phénomène. Ce léger écart ne pose cependant aucun problème pour la méthode de mesure qui est principalement basée sur la mesure du gaz et du premier descendant capturé (^{222}Rn et ^{218}Po pour le radon et ^{220}Rn et ^{216}Po pour le thoron). Il sera cependant nécessaire de tenir compte de cet écart dans le cas où le dispositif est utilisé pour la mesure d'une activité de référence en ^{222}Rn en utilisant le pic du ^{214}Po .

Enfin il nous a été aussi possible d'évaluer le rendement lié au ^{218}Po dans le dispositif qui est de 0,465 (2). Ce rendement est légèrement inférieur à celui calculé par méthode Monte-Carlo de 0,495 (2), ce qui montre qu'une petite partie des descendants n'est pas chargée. Dans le cas présent, le taux de ^{218}Po chargé et capturé représente 93,9 (4) % du ^{218}Po produit par le ^{222}Rn , ce qui est compatible avec les résultats présentés par (Dua, *et al.*, 1983) de 91,4 (14) % en tenant compte des incertitudes.

Chapitre 5. Mesure de thoron et comparaison des résultats

Le dispositif de mesure ainsi conçu a été validé par la production d'une atmosphère en ^{222}Rn à l'aide de l'étalon de référence. Nous avons évalué le rendement de détection du gaz à 0,320 (2), ce qui est compatible avec les résultats effectués par calcul Monte-Carlo sous MCNPX. Les résultats obtenus par calcul pour le rendement du ^{220}Rn sont identiques à ceux du ^{222}Rn dans le cas de notre géométrie. Nous pouvons ainsi directement utiliser ce rendement de détection pour l'évaluation de l'activité volumique du ^{220}Rn .

Ce chapitre présente l'ensemble des études effectuées avec le dispositif de mesure sur une atmosphère de ^{220}Rn . Après avoir effectué les études expérimentales nécessaires à l'évaluation des paramètres d'influence sur la mesure du ^{220}Rn , nous présentons les résultats obtenus et notamment le bilan d'incertitude associé.

La dernière partie de ce chapitre présente les différentes comparaisons qui ont été mises en place avec d'autres systèmes de mesure de référence provenant des homologues étrangers du LNE-LNHB.

5.1. Banc mis en place pour la mesure du thoron

Du fait de sa période très courte, il n'est pas possible d'utiliser la même technique que celle présentée en Chapitre 4 pour créer une atmosphère en ^{220}Rn . Cette fois-ci nous utilisons des sources de ^{228}Th commercialisées par Pylon® (Pylon Electronics, 2015) que possède l'IRSN :

↳ Source 1 : 3,60 (8) MBq au 8/03/10 à 12 h TU ;

↳ Source 2 : 4,13 (16) MBq au 28/06/95 à 12 h TU.

Le schéma en Figure 5-1 représente l'ensemble du circuit permettant la production d'atmosphère de haute activité volumique en ^{220}Rn . Une circulation d'air sec et régulée à l'intérieur de la source permet la production d'une atmosphère constante en ^{220}Rn . Avec ce type de montage, les activités volumiques de ^{220}Rn produites varient de quelques 10 kBq.m^{-3} à 1 MBq.m^{-3} . Cette activité volumique sera fonction de l'activité de la source de ^{228}Th utilisée ainsi que du débit de circulation dans la source, qui peut varier de 0 à 10 L.min^{-1} .

Cette atmosphère, créée en sortie de la source, circule dans un volume de 400 mL. Ce volume est utilisé comme zone de prélèvement de l'atmosphère de ^{220}Rn . Le prélèvement de l'atmosphère est réalisé à l'aide d'une pompe et d'un débitmètre régulateur. Cette circulation forme une boucle fermée sur le volume de prélèvement et passe par le dispositif de mesure du thoron. La pompe, le débitmètre et le dispositif de mesure du thoron sont les mêmes que ceux utilisés lors des expériences avec le radon (cf. Chapitre 4). Le débit dans la source de ^{228}Th et dans le dispositif de mesure sont régulés. La pression, la température et le taux d'humidité sont mesurées à intervalles de temps réguliers.

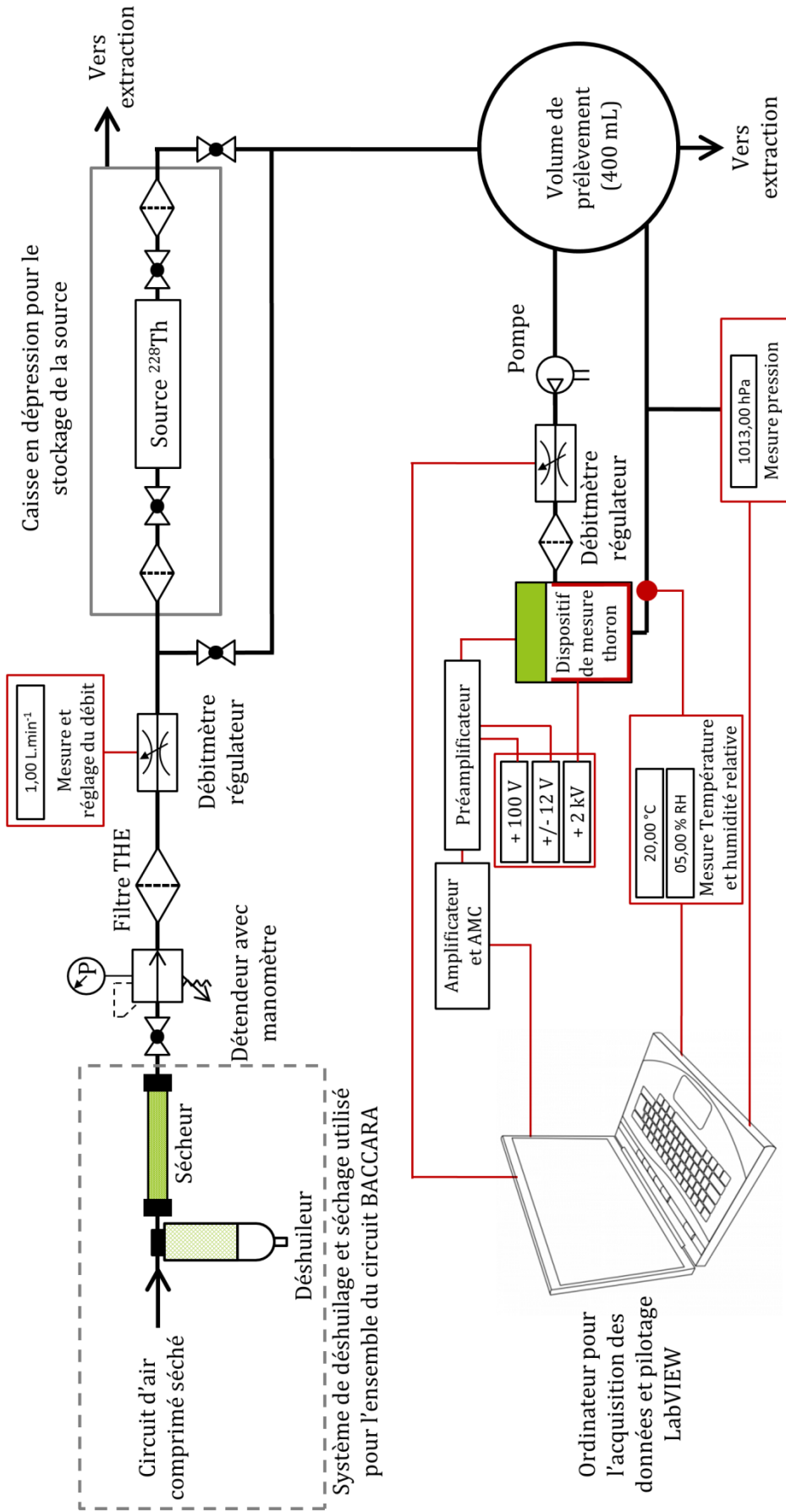


Figure 5-1 : Schéma de l'ensemble du montage expérimental pour la création d'atmosphère de référence en ^{220}Rn pour des fortes concentrations proches du $\text{MBq}\cdot\text{m}^{-3}$.



Figure 5-2 : Banc permettant la création d'atmosphère de thoron à forte activité volumique.

Ce dispositif expérimental (cf. Figure 5-2), permet la production d'atmosphères avec une forte activité volumique en thoron. Cette activité volumique élevée nous permet de réaliser des mesures avec un comptage suffisant pour un temps d'acquisition relativement court.

5.2. Premiers tests de mesure

5.2.1. Mesure d'une atmosphère de thoron avec et sans champ électrique

Le premier test réalisé consistait à vérifier l'efficacité du champ électrique. Une atmosphère en thoron est ainsi mise en circulation sur le dispositif, avec un débit de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, alors que champ électrique n'est pas en fonction. Un spectre est enregistré comme présenté en Figure 5-3.

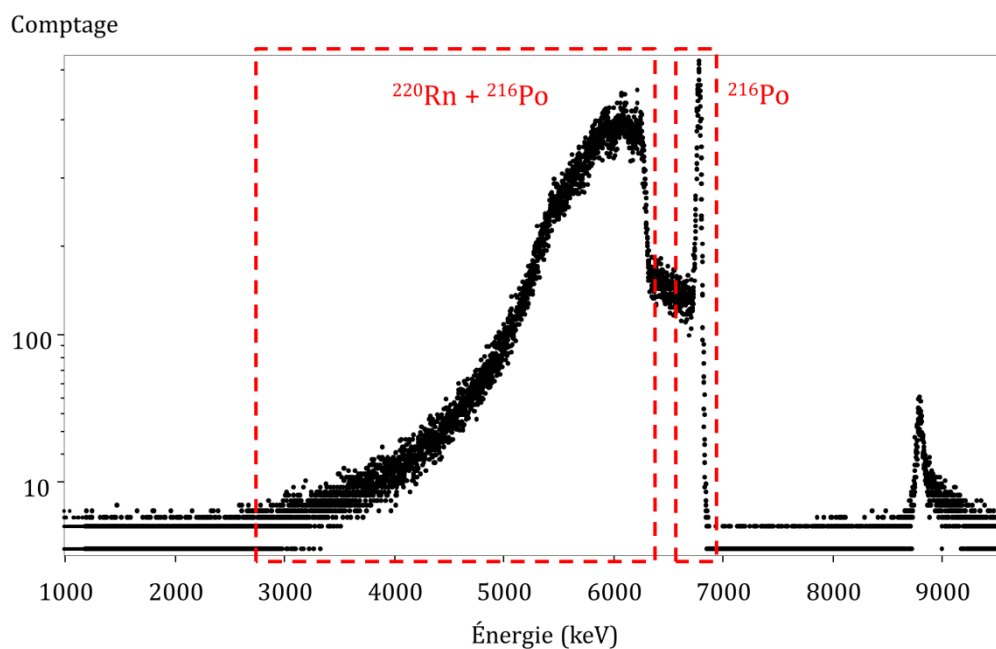


Figure 5-3 : Spectre d'une atmosphère de thoron obtenue sans champ électrique (acquisition de 700 secondes).

Sans champ électrique, il est difficile de différencier suffisamment le ^{220}Rn du ^{216}Po . La traîne liée au pic du ^{216}Po ne présente pas la forme classique du pic alpha et remonte dans le pic du ^{220}Rn .

Deux ROI sont choisies pour identifier le ^{220}Rn , entre 2 600 keV et 6 300 keV, et le ^{216}Po , entre 6 570 keV et 6 870 keV. Ces ROI sont visibles en Figure 5-3. Pour le pic du ^{220}Rn , mélangé avec le ^{216}Po , le taux de comptage est de 475 s^{-1} et le taux de comptage lié au pic de ^{216}Po seul est de 57 s^{-1} .

Une seconde mesure est lancée avec le champ électrique ; après 10 minutes d'attente, l'acquisition est lancée, le spectre obtenu est présenté sur la Figure 5-4 :

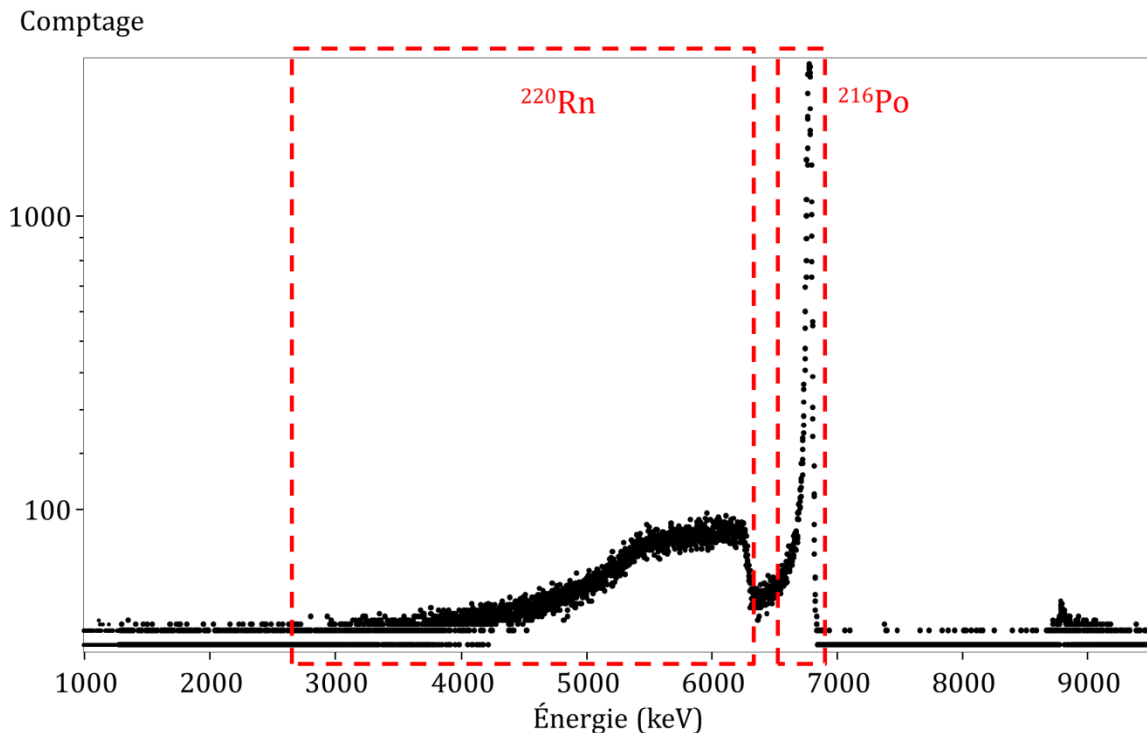


Figure 5-4 : Spectre d'une atmosphère de thoron obtenu avec la mise en fonction du champ électrique (acquisition de 100 secondes).

Les spectres des Figure 5-3 et Figure 5-4 sont relatifs à la même atmosphère en ^{220}Rn . Il est maintenant possible d'identifier le ^{220}Rn et le ^{216}Po . Le taux de comptage est ainsi comparé pour les mêmes ROI. L'ensemble des deux ROI donne un taux de comptage de 986 s^{-1} alors que la ROI de ^{220}Rn donne 437 s^{-1} et celle de ^{216}Po donne 525 s^{-1} . Le taux de comptage lié au ^{216}Po augmente ainsi d'un facteur proche de 10. Ce test nous démontre l'efficacité du champ électrique pour la capture de ^{216}Po .

5.2.2. Mesure d'une forte activité volumique en thoron

L'avantage du montage en Figure 5-1 est qu'il nous permet de mesurer de fortes activités en ^{220}Rn . Notre dispositif possède cependant une limite haute de détection. Passée cette limite, le spectre ne devient plus exploitable (cf. Figure 5-5).

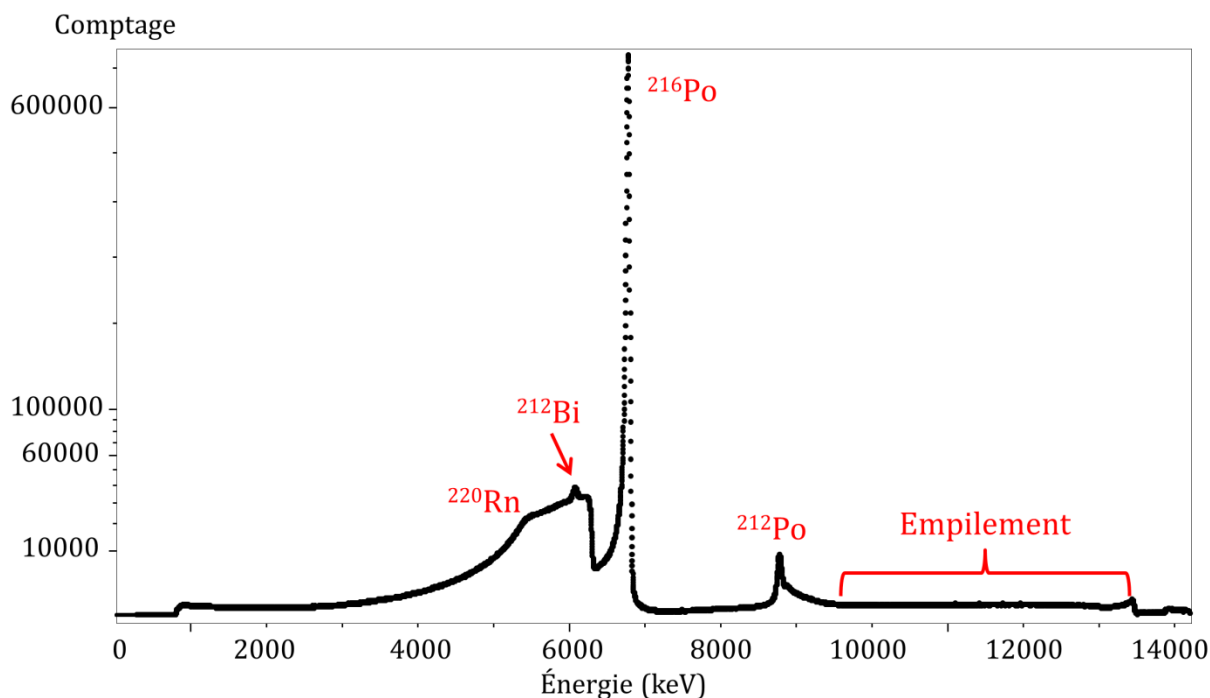


Figure 5-5 : Spectre obtenu pour une mesure d'activité volumique très élevée (environ 100 MBq.m^{-3}).

En effet, du fait du temps de mise en forme du signal relativement long de $2 \mu\text{s}$, dans le cas d'une activité volumique de plus de 100 MBq.m^{-3} , il ne sera parfois plus possible de différencier deux émissions alpha provenant de deux désintégrations différentes. Nous avons ainsi l'apparition d'un empilement de deux particules alpha ou d'un alpha et d'un bêta visible à droite sur le spectre. Dans notre cas, nous nous limiterons à des activités volumiques de l'ordre de quelques kBq.m^{-3} à quelques MBq.m^{-3} .

Contrairement au spectre présenté en Figure 5-4, le pic du ^{220}Rn est perturbé par le ^{212}Bi qui n'était pas visible dans le spectre précédent du fait de la plus faible activité volumique en ^{220}Rn . Afin d'évaluer le comptage lié au ^{220}Rn , il est nécessaire de soustraire le comptage provenant du ^{212}Bi .

5.3. Analyse du spectre et des descendants à vie longue du thoron

5.3.1. Évolution du spectre au cours du temps

Une circulation constante d'air sec sur la source de ^{228}Th nous permet de produire une atmosphère constante en ^{220}Rn dans le petit volume de dilution. Cette atmosphère est mesurée par notre dispositif en la faisant circuler avec un débit de 1 L.min^{-1} . Le spectre obtenu est présenté en Figure 5-6. La forme du spectre du thoron est identique à celle du radon.

Le gaz, se distribuant dans tout le volume, produit un pic large sur la gauche du spectre. Son premier descendant, le ^{216}Po , est directement à l'équilibre avec le gaz, les descendants chargés sont capturés à la surface du détecteur et forment un pic bien résolu. La traîne du ^{216}Po se superpose légèrement au pic du ^{220}Rn . Il sera nécessaire d'évaluer cette traîne pour estimer correctement la surface du pic du ^{220}Rn .

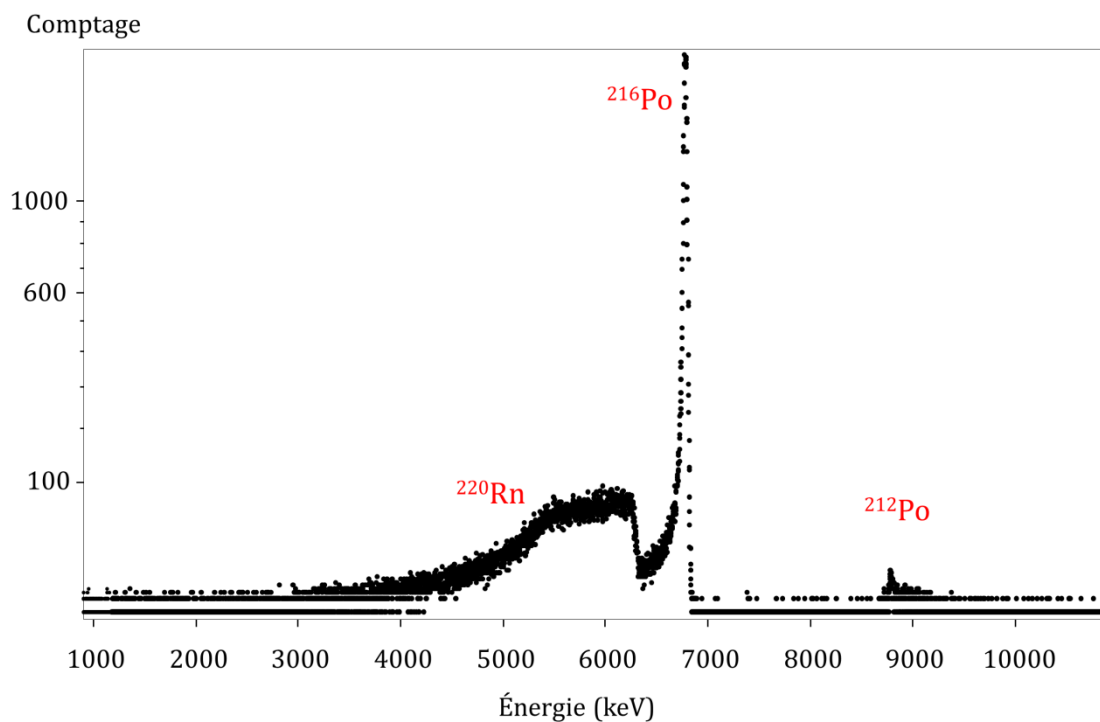


Figure 5-6 : Exemple de spectre obtenu après une exposition de 100 secondes à une atmosphère d'environ 1 MBq.m^{-3} de ^{220}Rn .

Comme nous l'avons décrit en § 1.2.1, le descendant du ^{216}Po , le ^{212}Pb , possède une période relativement longue de plus de 10 h. Il s'agit d'un émetteur bêta qui n'est pas détecté dans cette région du spectre. Il se désintègre en ^{212}Bi ($T_{1/2} = 60,54 \text{ min}$) qui, lui, est un émetteur alpha et bêta. Ce radionucléide sera donc détecté par le système. Au vu de l'énergie d'émission principale du ^{212}Bi qui est de 6 051 keV, celui-ci va perturber le pic alpha du ^{220}Rn (cf. Figure 5-7).

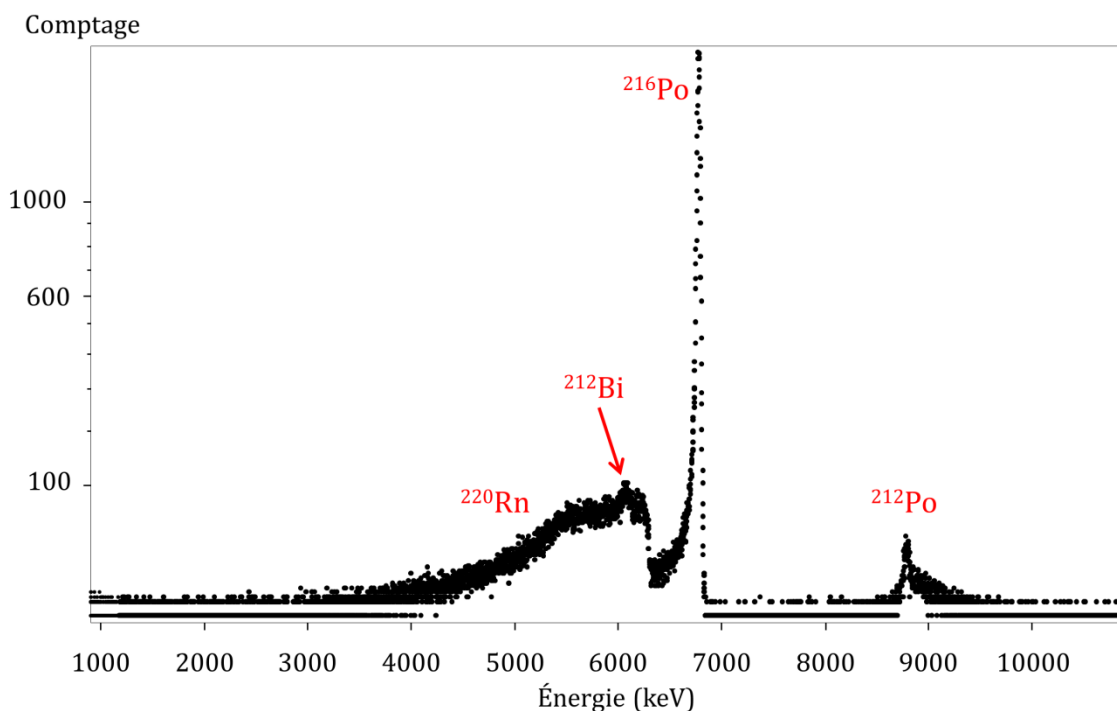


Figure 5-7 : Exemple de spectre obtenu après une exposition de 4 000 secondes à une atmosphère d'environ 1 MBq.m^{-3} de ^{220}Rn .

Son apparition sera progressive au cours du temps à cause de la longue période de l'élément père du ^{212}Bi . Comme nous l'avons calculé en § 1.2.1 (cf. Figure 1-13), l'équilibre sera atteint après 4 jours d'exposition.

Le dernier élément visible dans le spectre est le ^{212}Po ($T_{1/2} = 300 \text{ ns}$), descendant du ^{212}Bi , et émetteur alpha de haute énergie, qui est donc bien séparé des autres pics et visible à droite du spectre. Cet élément atteindra aussi un état d'équilibre après 4 jours d'exposition à l'atmosphère en thoron.

Notons qu'avec un tel spectre, il est possible de savoir si l'atmosphère en ^{220}Rn est polluée par du ^{222}Rn . En effet, le ^{214}Po ayant une énergie d'émission de 7 686 keV, le pic correspondant sera bien visible entre le ^{216}Po et le ^{212}Po .

5.3.2. Analyse des descendants à vie longue capturés à la surface du détecteur

Comme l'activité en thoron est constante au cours du temps, nous avons vu que l'activité en descendants déposés sur le détecteur va augmenter au cours de la mesure jusqu'à un équilibre atteint après 4 jours. (cf. Chapitre 1 : Figure 1-13). Une fois la mesure arrêtée, il sera donc nécessaire d'attendre la décroissance des descendants à vie longue (^{212}Pb et ^{212}Bi) pour que l'activité déposée ait disparu, soit plus de 4 jours. Cette durée étant assez élevée, il nous est possible de mesurer directement le dépôt de descendants à vie longue à la surface du détecteur après une mesure de ^{220}Rn .

En effet, après la mesure d'une atmosphère en ^{220}Rn , la circulation dans la source de ^{228}Th est arrêtée et nous utilisons le circuit de dérivation autour de la source afin de faire circuler de l'air propre et sec dans le dispositif. Une mesure est lancée après 10 minutes de rinçage, et obtenons le spectre visible en Figure 5-8.

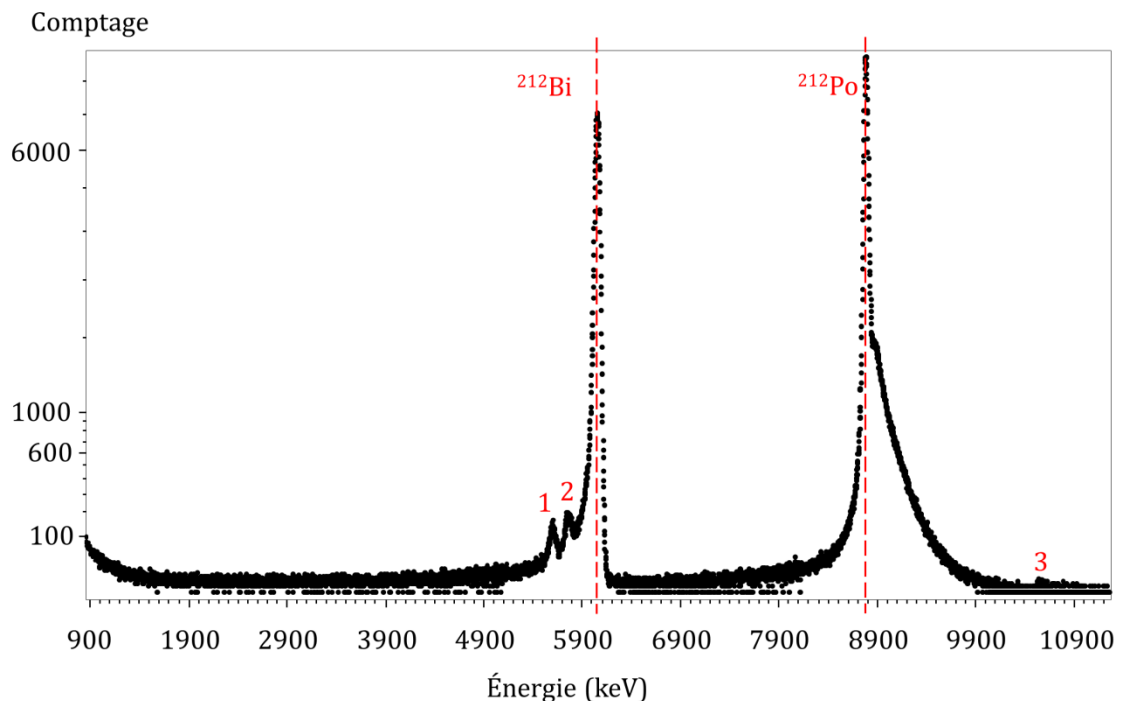


Figure 5-8 : Spectre réalisé dans le dispositif après une exposition à une forte activité volumique en ^{220}Rn . Temps d'acquisition de 2 700 s.

Sur ce spectre, deux descendants, le ^{212}Bi et le ^{212}Po , sont visibles. Le pic du ^{212}Po présente une traîne à droite qui n'était pas ou peu visible sur les spectres précédents du fait du faible comptage. Cette traîne est due à une coïncidence entre le rayonnement bêta émis par le ^{212}Bi et la particule alpha émise par le ^{212}Po . En effet, le temps de mise en forme de notre système d'acquisition est de 2 μs alors que la période du ^{212}Po est de 300 ns (cf. Annexe A). Il ne nous est donc pas possible de différencier ces deux événements d'où l'apparition de cette traîne correspondant à la somme de l'énergie déposée dans le détecteur par les particules alpha du ^{212}Po et bêta du ^{212}Bi . L'évaluation du comptage provenant du ^{212}Po devra donc se faire en tenant compte de l'ensemble de la surface du pic, traîne à droite incluse.

Le spectre est étalonné en énergie en utilisant le centroïde des 2 pics principaux comme identifié sur la Figure 5-8. Celui de gauche correspond à l'énergie d'émission principale du ^{212}Bi soit 6 051,04 (3) keV et celui de droite à l'énergie d'émission du ^{212}Po soit 8 785,17 (11) keV (Bé, *et al.*, 2013). Cet étalonnage en énergie permet de déterminer l'énergie des autres petits pics présents sur le spectre identifiés par les numéros 1, 2 et 3 sur la Figure 5-8.

Le pic 1 à gauche du spectre a un centroïde placé à 5 762 keV correspondant à l'émission alpha du ^{212}Bi avec une énergie de 5 768,29 (6) keV et une intensité de 0,61 (3) %. Le pic numéro 2 a un centroïde placé à 5 604 keV, ce qui correspond aux deux émissions alpha de 5 606,60 (5) keV et 5 625,7 (4) keV avec des intensités respectives de 0,43 (3) % et 0,060 (3) %. Enfin, nous pouvons observer un petit pic à droite du spectre dont le centroïde est placé à 10 546 keV : ce pic correspond à une émission alpha du ^{212}Bi à 10 552,1 (2) keV avec une probabilité de 0,010 6 (7) %. Du fait de la forte activité mesurée, nous sommes capables d'observer la majorité des pics alpha de ^{212}Bi et de ^{212}Po ; dans le cas d'une mesure à une activité plus faible, seuls les deux pics principaux sont observables comme le montre la Figure 5-9.

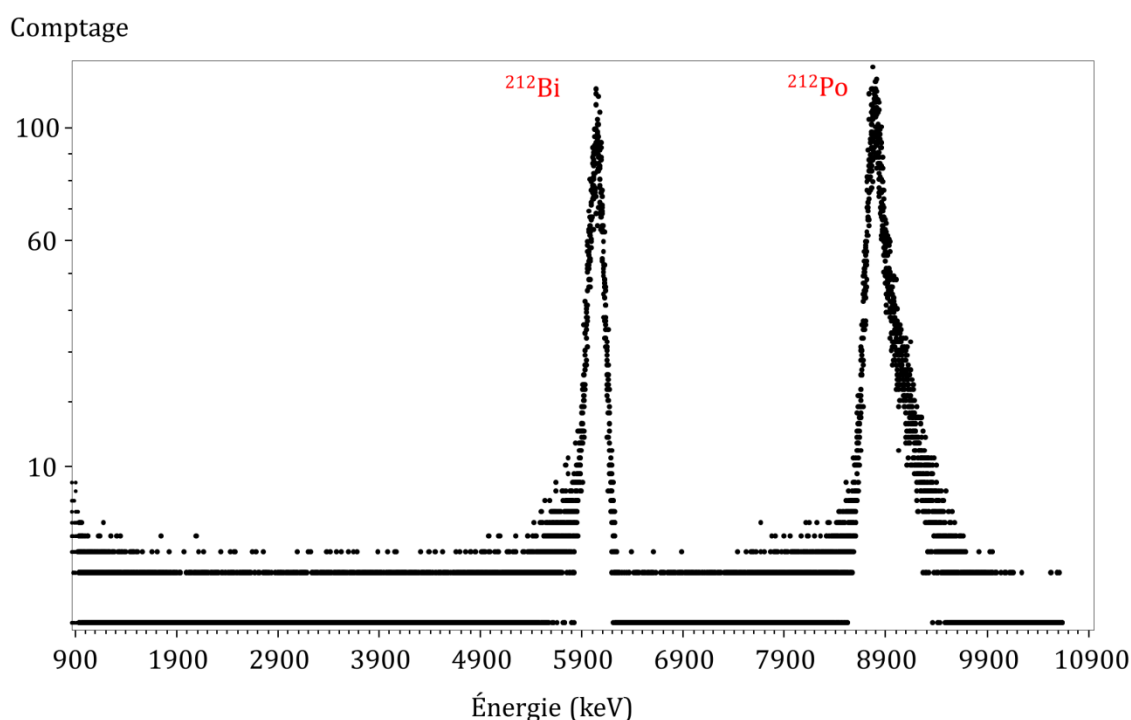


Figure 5-9 : Spectre obtenu après une exposition à une atmosphère en ^{220}Rn de quelques kBq.m^{-3} et un rinçage du volume avec de l'air propre. Temps d'acquisition de 67 000 s.

Ces deux descendants sont donc bien identifiés par spectrométrie alpha. La contribution du ^{212}Bi qui apparaît dans le pic de ^{220}Rn devra cependant être soustraite afin d'utiliser le rendement de détection du dispositif évalué par le transfert d'un étalon de ^{222}Rn (cf. Chapitre 3).

5.3.3. Propositions de méthodes expérimentales pour évaluer le comptage provenant du pic de ^{212}Bi

Au vu des caractéristiques de ces descendants à vie longue, trois approches ont été envisagées.

- ↳ La première méthode consiste à réaliser une mesure du ^{212}Bi déposé à la surface du détecteur après la mesure de l'atmosphère en ^{220}Rn . Cette mesure correspond à l'expérience décrite précédemment : une fois la mesure de ^{220}Rn terminée, le volume est nettoyé avec de l'air propre afin de lancer une deuxième mesure sans ^{220}Rn qui permettra d'obtenir un spectre identique à celui de la Figure 5-9. L'évaluation du comptage provenant du ^{212}Bi sera donc possible directement sur le pic alpha mesuré. En tenant compte des temps de mesure et de la période du ^{212}Bi , il sera par la suite possible de soustraire le comptage lié au ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn .
- ↳ La deuxième méthode serait d'utiliser directement le spectre obtenu lors de la mesure de l'atmosphère en ^{220}Rn . Comme pour le radon, en utilisant le logiciel Colegram (Lépy, 2004), il est possible d'ajuster une fonction mathématique à la forme du pic du ^{220}Rn puis une autre au pic du ^{212}Bi qui permettra d'évaluer le comptage lié à chacun des deux radionucléides. La forme du pic du ^{220}Rn est d'abord déterminée avec une mesure pour une forte activité volumique en ^{220}Rn et un temps d'exposition très court ; ce qui permet de négliger le comptage lié au ^{212}Bi . L'exposition est par la suite prolongée afin que l'activité en ^{212}Bi augmente ; l'évaluation de la surface du ^{212}Bi peut ainsi être réalisée en ajoutant une autre fonction mathématique.
- ↳ La dernière méthode envisagée est d'utiliser directement le spectre mesuré et plus particulièrement le pic du ^{212}Po . Du fait de sa période très courte, ce radionucléide est directement à l'équilibre avec le ^{212}Bi (cf. § 1.2.1). Connaissant le rapport d'embranchement entre les deux éléments (Bé, *et al.*, 2013), il est possible d'en déduire le comptage provenant du ^{212}Bi en utilisant le pic du ^{212}Po . Comme nous l'avons vu sur les spectres précédents, le pic de ^{212}Po est bien séparé des autres éléments, l'évaluation du comptage lié à ce pic est donc plus simple à réaliser.

Cette dernière méthode nous semble la plus appropriée à mettre en œuvre, elle sera donc retenue pour soustraire le comptage du ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn .

5.3.4. Vérification du rapport d'embranchement entre le ^{212}Bi et le ^{212}Po dans notre système

Sachant que nous allons utiliser le pic du ^{212}Po pour déterminer le comptage en ^{212}Bi , il nous faut connaître le rapport d'embranchement entre ces deux éléments. Les émissions alpha du ^{212}Bi sont présentées en Tableau 5-1.

Tableau 5-1 : Émission alpha du ^{212}Bi (Bé, et al., 2013).

Énergie (keV)	Intensité (%)
5 302 (2)	0,000 040 (4)
5 344 (2)	0,000 36 (3)
5 481,4 (3)	0,005 0 (4)
5 606,60 (5)	0,43 (3)
5 625,7 (4)	0,060 (3)
5 768,29 (6)	0,61 (3)
6 051,04 (3)	25,1 (1)
6 090,14 (3)	9,7 (1)
Intensité totale	35,91 (14)

Comme l'équilibre entre le ^{212}Po et le ^{212}Bi est immédiat, et que le ^{212}Po se désintègre uniquement par transition alpha, le taux de transitions alpha du ^{212}Po correspond au taux de transitions bêta du ^{212}Bi soit 64,09 (14) %. Le rapport entre les émissions alpha du ^{212}Po et celles du ^{212}Bi s'écrit :

$$\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\alpha(^{212}\text{Po})} = \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})} = \frac{35,91}{64,09} = 0,560 (3), \quad (5.1)$$

Ce rapport est vérifié directement avec un spectre obtenu à l'aide du dispositif de mesure. Une atmosphère en ^{220}Rn de quelques $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ est mesurée. Après quelques heures d'exposition, la chambre est rincée avec de l'air propre. Après quelques minutes, il ne reste plus que le ^{212}Bi et le ^{212}Po déposés à la surface du détecteur comme le montre la Figure 5-10 :

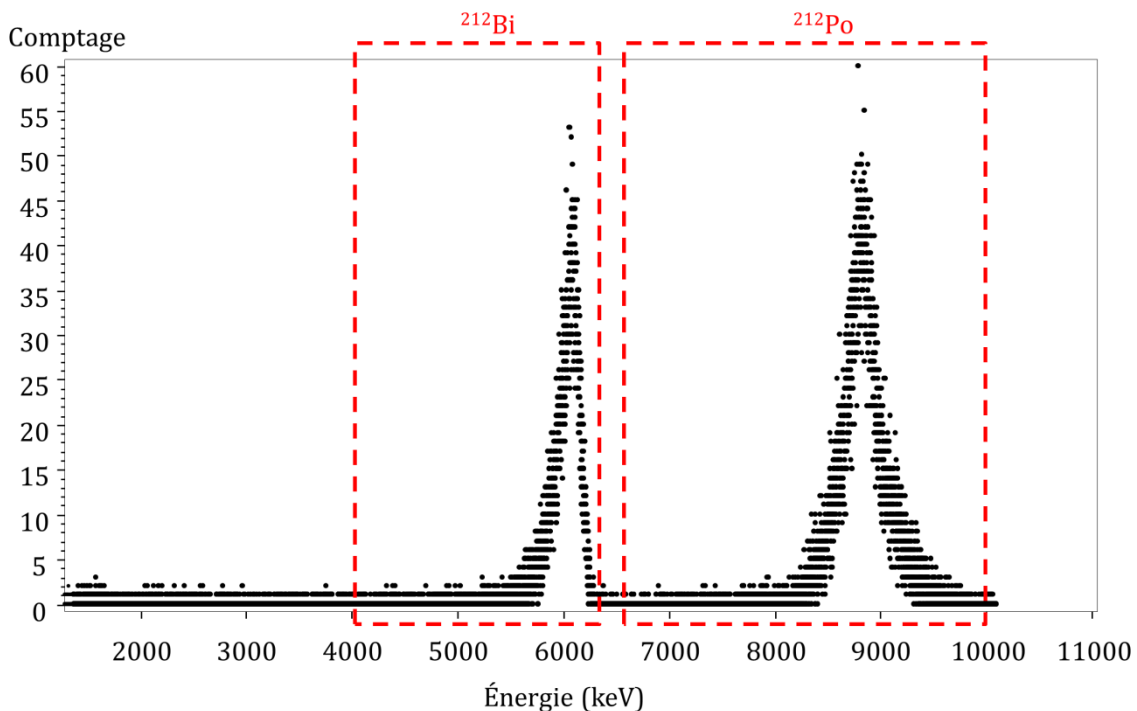


Figure 5-10 : Spectre du dépôt de ^{212}Bi et ^{212}Po à la surface du détecteur après une exposition à une atmosphère en ^{220}Rn .

Comme les deux éléments sont à l'équilibre, nous pouvons réaliser le rapport du comptage correspondant à chaque région d'intérêt des deux éléments. Ce rapport est de :

$$\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})} = \frac{11\,122}{19\,808} = 0,561 \quad (7).$$

L'incertitude-type relative sur le rapport correspond à la racine carrée de la somme quadratique des incertitudes-types relatives liées aux deux comptages, elle est ici de 1,2 %. Ce résultat est compatible avec le résultat du calcul (5.1). Nous pouvons donc utiliser le pic du ^{212}Po afin de déduire le comptage provenant du ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn .

5.4. Évolution du taux d'émanation de la source de ^{228}Th produisant le ^{220}Rn

Le dispositif permet de mesurer une atmosphère en ^{220}Rn ; celle-ci doit être cependant constante au cours du temps. En effet, dans le cas d'une atmosphère en ^{220}Rn de faible activité, il sera difficile d'identifier des variations de concentration du fait du taux de comptage très faible. Prenons comme exemple une activité volumique de 10 kBq.m^{-3} , soit $10^{-2}\text{ Bq.cm}^{-3}$ de ^{220}Rn . Le rendement de détection lié au pic du ^{220}Rn étant de 0,320 (2) pour un volume de détection de 12,44 (4) cm^3 , le taux de comptage peut être estimé à :

$$12,44 \times 10^{-2} \times 0,320 = 0,04\text{ s}^{-1}. \quad (5.3)$$

Il est donc impossible de vérifier si l'atmosphère est constante dans le temps sur de très courtes durées. Nous pouvons cependant vérifier si le taux d'émanation en ^{220}Rn de la source est constant au cours du temps à l'aide de ce nouveau dispositif de mesure. Pour cela nous réalisons des mesures très courtes du ^{220}Rn produit par la source à un débit constant. Le dispositif présenté en Figure 5-1 est utilisé pour produire une atmosphère en ^{220}Rn , le débit d'air sec provenant du circuit d'air comprimé étant régulé par un débitmètre massique en entrée de la source de ^{228}Th . Les résultats de mesure du débit sont présentés en Figure 5-11.

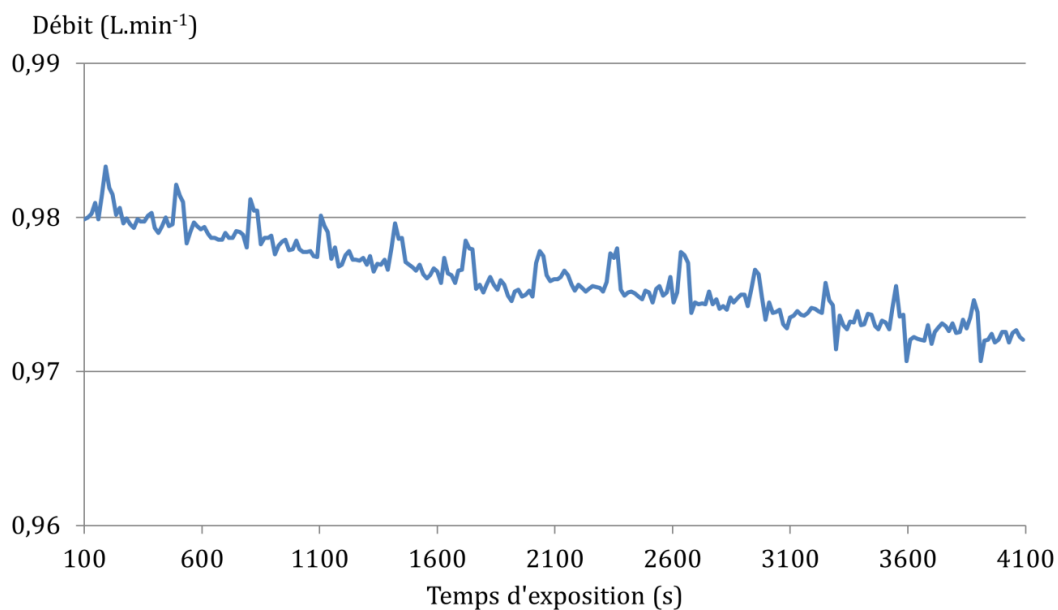


Figure 5-11 : Mesure du débit d'air sec en entrée de la source de ^{228}Th .

Sur tout le temps d'exposition, la valeur du débit diminue d'environ 1 %. Notons aussi la présence de pics de débit de 0,003 L.min⁻¹. Ces pics se reproduisent toutes les 300 secondes ; ils proviennent du cycle du système de séchage de l'air comprimé utilisé par l'ensemble des installations de BACCARA. Ces variations restent faibles sur l'ensemble des mesures, mais elles peuvent entraîner une variation de la concentration en ²²⁰Rn qui peut être observable en réalisant une série de mesures.

Pendant tout le temps d'exposition (soit 4 100 secondes), 40 spectres de 100 secondes ont été enregistrés par le dispositif de mesure (cf. Figure 5-12). L'activité volumique en sortie de la source étant de l'ordre de 700 kBq.m⁻³, ces très courtes acquisitions étaient suffisantes pour obtenir une statistique de comptage conséquente.

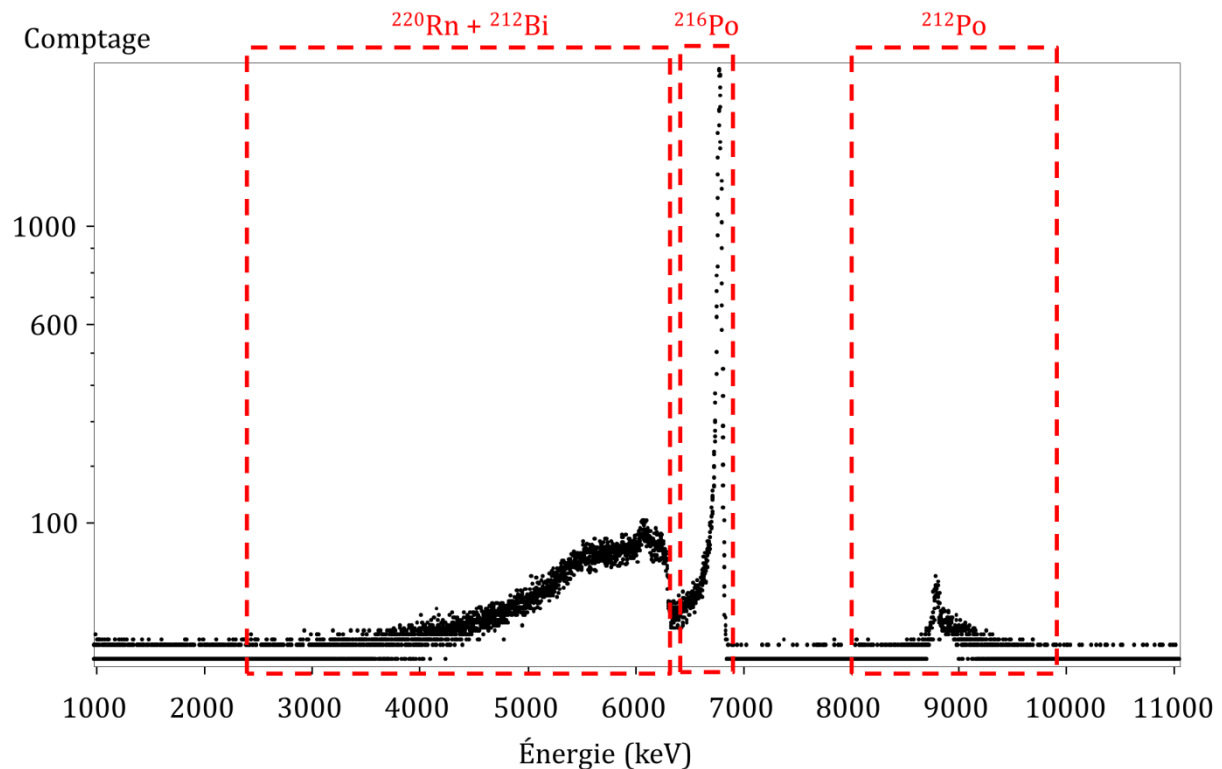


Figure 5-12 : Dernier spectre obtenu pendant l'exposition à l'atmosphère en thoron soit 4 100 secondes d'exposition, la durée d'acquisition est de 100 secondes.

L'analyse de chaque spectre est réalisée en utilisant une région d'intérêt correspondant à chacun des pics comme visible sur la Figure 5-12 :

- ↳ ROI du ²²⁰Rn entre 2 600 et 6 330 keV ;
- ↳ ROI du ²¹⁶Po entre 6 370 et 6 850 keV ;
- ↳ ROI du ²¹²Po entre 8 000 et 9 900 keV.

Le temps d'acquisition pour chaque mesure est le même (100 s), il est donc possible de comparer directement les résultats obtenus pour les 40 mesures. Les résultats avec leur incertitude élargie à $k = 2$ sont présentés en Figure 5-13. L'incertitude-type absolue sur le nombre d'évènements est calculée au moyen d'une méthode de type B (JCGM, 2008a) en utilisant la loi de Poisson, elle est prise égale à la racine carrée du comptage.

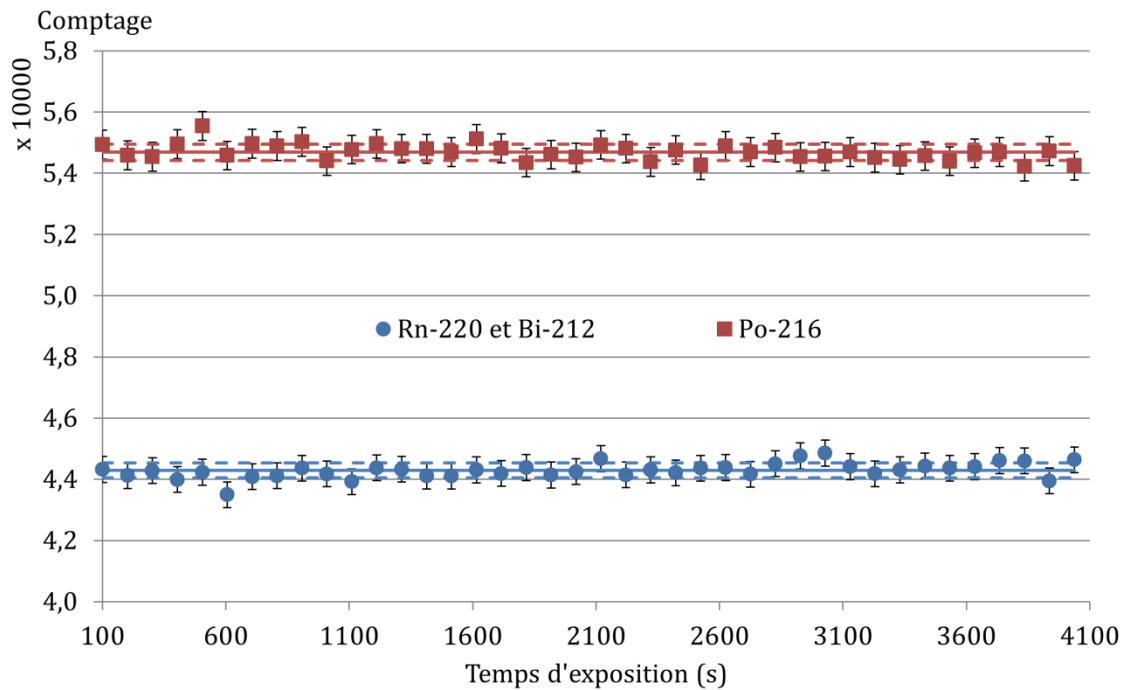


Figure 5-13 : Résultats pour les fenêtres de $^{220}\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}$ et de ^{216}Po .

Les résultats provenant du pic du ^{216}Po sont stables au cours du temps. La moyenne du comptage est de 54 691 avec un écart-type de mesure de 266. L'incertitude-type relative sur le comptage est de 0,4 %, l'ensemble des résultats sont compatibles.

Dans le cas de la fenêtre du ^{220}Rn mélangé au ^{212}Bi la moyenne du comptage est de 44 290 avec un écart-type de 248. L'incertitude-type relative sur la mesure est de 0,5 %, l'ensemble des résultats sont compatibles. Les comptages de la région d'intérêt du radon nécessitent cependant une correction ; en effet, la contribution du ^{212}Bi augmente au cours du temps. Ce phénomène est vérifié en analysant la fenêtre du ^{212}Po (cf. Figure 5-14) présentant un équilibre séculaire immédiat avec le ^{212}Bi .

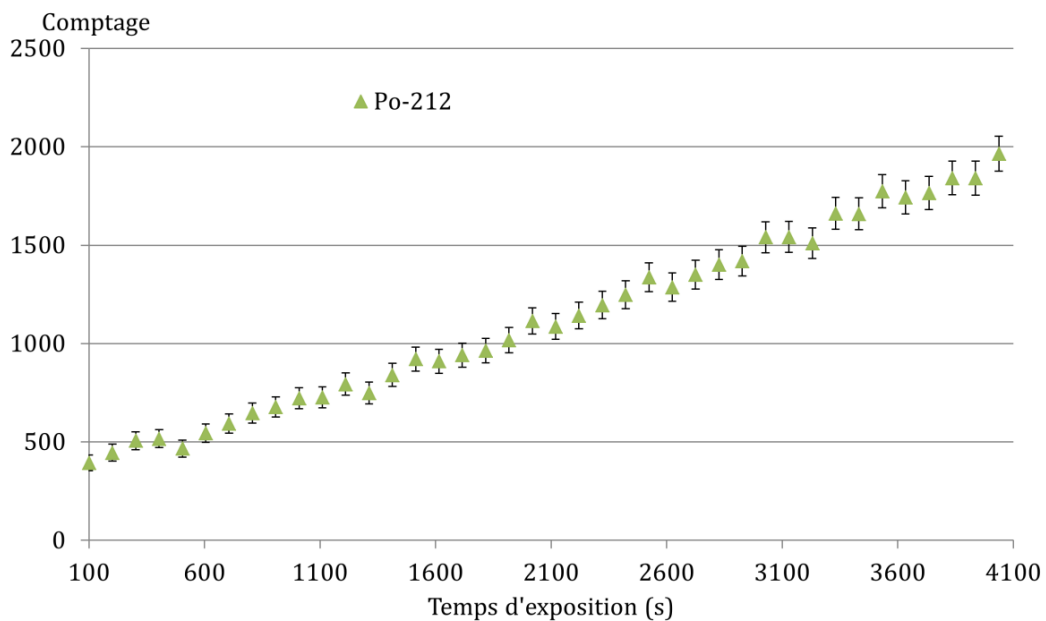


Figure 5-14 : Évolution du comptage de la région d'intérêt du pic de ^{212}Po tout au long de l'exposition.

Nous utilisons la dernière méthode présentée en § 5.3.3, sélectionnée pour soustraire le comptage lié au ^{212}Bi présent dans le pic du ^{220}Rn . Le pic du ^{212}Po est utilisé pour en déduire le comptage lié au ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn en utilisant le rapport d'embranchement des deux émissions alpha :

$$N_{212\text{Bi}} = N_{212\text{Po}} \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})} \quad (5.4)$$

où $N_{212\text{Po}}$ est le comptage provenant du ^{212}Po , $N_{212\text{Bi}}$ le comptage provenant du ^{212}Bi , $\alpha(^{212}\text{Bi})$ le taux d'émission alpha du ^{212}Bi et $\beta(^{212}\text{Bi})$ le taux d'émission bêta du ^{212}Bi correspondant au pic alpha du ^{212}Po . L'évaluation du comptage lié à la fenêtre du ^{220}Rn sans les comptages du ^{212}Bi s'écrit alors :

$$N_{220\text{Rn}} = N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}} - N_{212\text{Bi}} = N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}} - N_{212\text{Po}} \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})} \quad (5.5)$$

où $N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}}$ est le comptage de la région d'intérêt du pic du ^{220}Rn et du ^{212}Bi . Sachant que ces variables sont indépendantes, le carré de l'incertitude absolue associée au comptage $N_{220\text{Rn}}$ est donnée par l'équation (5.6) :

$$u^2(N_{220\text{Rn}}) = u^2(N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}}) + \left(\frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})}\right)^2 u^2(N_{212\text{Po}}) + \left(\frac{N_{212\text{Po}}}{\beta(^{212}\text{Bi})}\right)^2 u^2(\alpha(^{212}\text{Bi})) + \left(\frac{N_{212\text{Po}} \alpha(^{212}\text{Bi})}{(\beta(^{212}\text{Bi}))^2}\right)^2 u^2(\beta(^{212}\text{Bi})), \quad (5.6)$$

où $u(X)$ représente l'incertitude-type absolue de la valeur X . Les résultats obtenus avec leurs incertitudes élargies à $k = 2$ sont présentés en Figure 5-15.

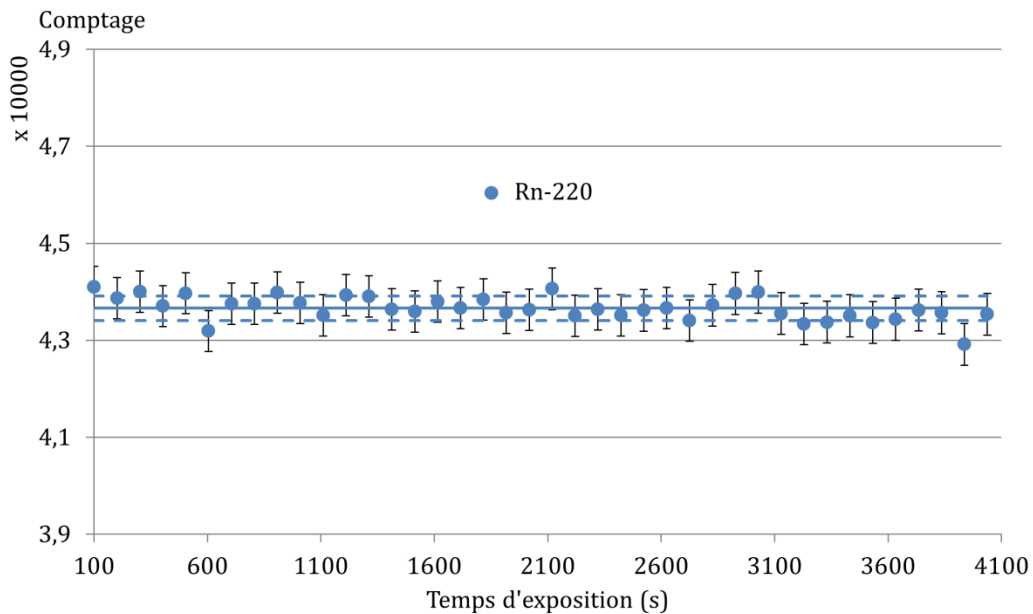


Figure 5-15 : Résultat du comptage lié au pic de ^{220}Rn avec la correction des comptages liés au ^{212}Bi .

L'incertitude-type relative liée au comptage de ^{220}Rn avec la correction appliquée est de 0,5 %. La moyenne du comptage est de 43 662 avec un écart-type de mesure de 251, soit 0,58 % en relatif. L'ensemble des résultats étant compatibles, l'émanation de la source en ^{220}Rn peut être considérée comme constante, compte-tenu de la faible variation du débit tout au long de l'exposition. Dans le cas présent la correction due au ^{212}Bi est petite, le temps d'exposition étant court, l'activité en ^{212}Bi reste faible même, pour les dernières mesures où l'activité en ^{212}Bi correspond à 4 % du comptage en ^{222}Rn .

5.5. Paramètres d'influence sur la mesure

Nous avons déjà étudié les paramètres d'influence sur la mesure du radon dans l'air. Comme nous l'avons présenté au Chapitre 2 et au Chapitre 3, les descendants du radon et du thoron sont immédiatement capturés après leur création dans le dispositif. Leur temps de séjour étant très bref, ils n'ont pas le temps de se neutraliser. Nous avons montré qu'avec le ^{222}Rn , une variation d'humidité ou de pression n'avait pas d'impact sur le taux de capture des descendants. Sachant que ces paramètres ont été bien étudiés dans le dispositif pour le ^{222}Rn (Sabot, *et al.*, 2015b), il n'est pas nécessaire de réaliser à nouveau ces études pour le ^{220}Rn .

Le seul paramètre pouvant influencer la mesure du thoron est le débit de circulation dans le dispositif. En effet, du fait de la très courte période du thoron (55,8 (3) s), le débit peut avoir une influence sur la quantité de ce gaz arrivant dans le système de mesure et sur sa distribution dans le volume de mesure. Nous avons vu dans le Chapitre 3 que le débit choisi de 1 L.min⁻¹ est suffisant pour obtenir une concentration homogène en ^{220}Rn dans le dispositif, il est cependant nécessaire de vérifier expérimentalement ce résultat.

Nous utilisons ici le montage présenté en Figure 5-1. Une circulation d'air sec constante de 1 L.min⁻¹ dans la source de ^{228}Th permet de produire une atmosphère d'activité volumique en ^{220}Rn constante (cf. § 5.4) dans le volume de dilution de 400 mL. Cette atmosphère est prélevée par une seconde boucle indépendante qui circule dans le dispositif de mesure. Le débit de circulation dans le dispositif de mesure peut ainsi varier de 0 à 2 L.min⁻¹. Une régulation, assurée par un débitmètre massique, permet d'assurer un débit stable avec une grande précision tout au long de la mesure du ^{220}Rn .

Cette expérience est réalisée pour plusieurs débits de circulation dans le dispositif de mesure. Les paramètres expérimentaux sont enregistrés au cours du temps ; l'ensemble des données sont présentées dans le Tableau 5-2.

Tableau 5-2 : Synthèse des conditions expérimentales.

Débit (L.min-1)	Pression (hPa)	Humidité relative (% RH)	Température (°C)
0,401 (5)	995,8 (3)	1 (1)	23 (1)
0,600 (5)	1 002,2 (6)	1 (1)	25 (1)
0,800 (5)	1 004,9 (4)	1 (1)	23 (1)
1,001 (5)	1 003,2 (5)	3 (1)	22 (1)
2,000 (5)	997,3 (6)	1 (1)	23 (1)

Note : les valeurs correspondent ici à la moyenne des mesures pendant la durée de l'exposition, l'incertitude correspond à l'écart-type des résultats si celui-ci est plus grand que l'incertitude sur l'étalonnage de l'appareil de mesure.

L'analyse des spectres obtenus est réalisée en utilisant les régions d'intérêt présentées en Figure 5-12. L'équation (5.5) est utilisée pour déterminer le comptage lié au pic du ^{220}Rn en le corrigeant de la présence du ^{212}Bi .

Dans le dispositif expérimental, la distance de 50 cm entre le volume de prélèvement et le dispositif de mesure n'est pas négligeable. En effet, suivant le débit utilisé, l'activité volumique thoron peut décroître avant d'atteindre le volume de mesure, ce qui provoquerait un biais dans la mesure.

L'activité volumique mesurée doit donc être corrigée en tenant compte de la décroissance du ^{220}Rn , du volume du tube entre le point de prélèvement et le volume de mesure ainsi que le débit de circulation. La décroissance du thoron dans le tube se traduit par l'équation (5.7).

$$N_{220\text{Rn}} = N_{220\text{Rn}}(0) e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)} = N_{220\text{Rn}}(0) \times F_{tube} \quad (5.7)$$

où $N_{220\text{Rn}}$ représente le comptage lié à la région d'intérêt du pic du ^{220}Rn dans le dispositif de mesure, $N_{220\text{Rn}}(0)$ est le comptage lié à la région d'intérêt du pic du ^{220}Rn au point de prélèvement, V_t correspond au volume du tube entre le point de prélèvement et le volume de mesure, Q correspond au débit de circulation dans le tube et F_{tube} le facteur de correction lié à la décroissance du thoron entre le point de prélèvement et le point de mesure.

Les variables étant indépendantes, l'équation (4.10) permet de calculer l'incertitude associée à F_{tube} soit :

$$u^2(F_{tube}) = \left(-\frac{V_t}{Q} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}\right)^2 u^2(\lambda_{220\text{Rn}}) + \left(\frac{-\lambda_{220\text{Rn}}}{Q} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}\right)^2 u^2(V_t) + \left(\frac{\lambda_{220\text{Rn}} V_t}{Q^2} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}\right)^2 u^2(Q), \quad (5.8)$$

où $u(X)$ représente l'incertitude absolue de la valeur X .

L'incertitude-type relative s'écrit aussi :

$$\frac{u(F_{tube})}{F_{tube}} = \sqrt{\left(-\frac{V_t}{Q}\right)^2 u^2(\lambda_{220\text{Rn}}) + \left(\frac{-\lambda_{220\text{Rn}}}{Q}\right)^2 u^2(V_t) + \left(\frac{\lambda_{220\text{Rn}} V_t}{Q^2}\right)^2 u^2(Q)}. \quad (5.9)$$

Les mesures ont été réalisées avec des temps d'acquisition différents ; afin de comparer les résultats, les comptages sont divisés par leur temps d'acquisition t_m soit :

$$\tau_{220\text{Rn}} = \frac{N_{220\text{Rn}}}{t_m F_{tube}}, \quad (5.10)$$

avec $\tau_{220\text{Rn}}$ le taux de comptage corrigé du ^{220}Rn , prenant en compte les corrections de décroissance dans le tube et le comptage provenant du pic du ^{212}Bi .

L'incertitude-type relative associée au taux de comptage provenant du ^{220}Rn est calculée en utilisant la racine carrée de la somme quadratique des incertitudes-type relatives de chacune des variables :

$$\frac{u(\tau_{220Rn})}{\tau_{220Rn}} = \sqrt{\left(\frac{u(N_{220Rn})}{N_{220Rn}}\right)^2 + \left(\frac{u(t_m)}{t_m}\right)^2 + \left(\frac{u(F_{tube})}{F_{tube}}\right)^2}. \quad (5.11)$$

Dans le cas du pic du ^{216}Po , le taux de comptage est calculé comme suit :

$$\tau_{216Po} = \frac{N_{216Po}}{t_m F_{tube}}, \quad (5.12)$$

avec N_{216Po} le comptage provenant de la région d'intérêt du pic du ^{216}Po .

Dans nos conditions expérimentales, le volume séparant le point de prélèvement et la chambre de mesure est évalué à 25 (1) cm^3 ; les taux de comptage sont calculés en tenant compte des données du ^{220}Rn présentés en Annexe A. Le facteur de correction dû à la décroissance du thoron entre le point de prélèvement et le point de mesure varie de 0,954 pour un débit de 0,4 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ à 0,991 pour un débit de 2 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$. L'ensemble des résultats avec leurs incertitudes élargies à $k = 2$ sont synthétisés en Figure 5-16.

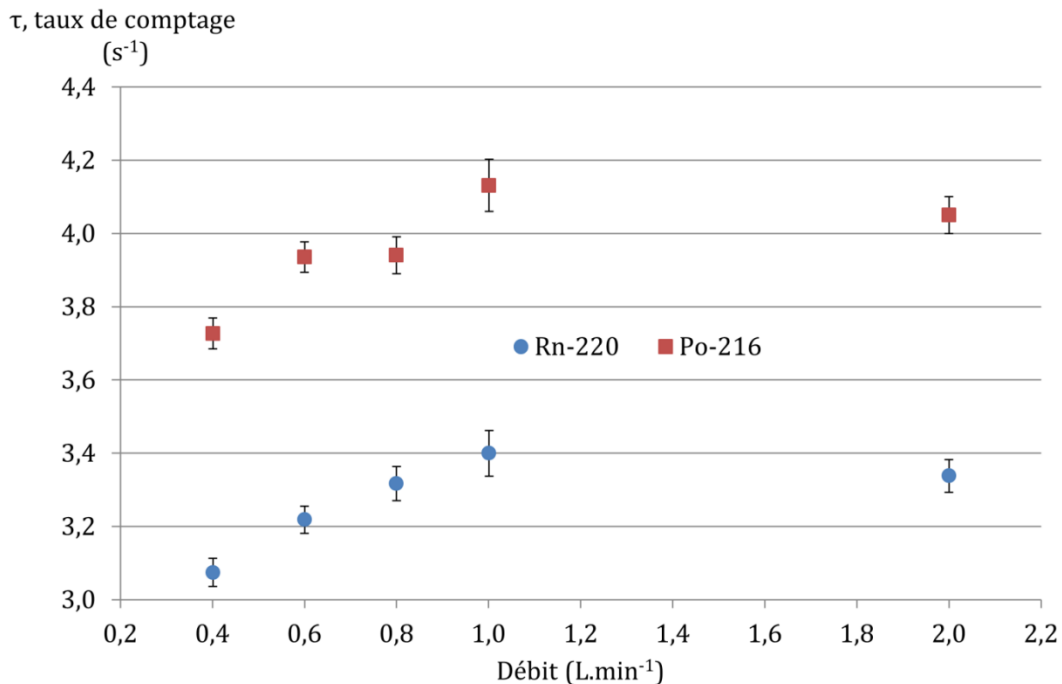


Figure 5-16 : Représentation des taux de comptage du ^{220}Rn et du ^{216}Po corrigés en fonction du débit de circulation dans le dispositif de mesure.

L'incertitude-type relative sur les résultats varie de 0,5 % à 0,9 % pour le taux de comptage provenant du pic du ^{220}Rn et de 0,5 % à 0,8 % pour le taux de comptage provenant du pic du ^{216}Po .

Dans le cas du ^{220}Rn et du ^{216}Po , le taux de comptage augmente avec le débit même avec la correction due à la décroissance du thoron dans le tube. Les résultats sont compatibles pour des débits supérieurs à 0,8 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$. Ceci montre qu'au-dessus de ce débit, le taux de renouvellement dans le dispositif est assez grand pour réaliser une mesure dans les meilleures conditions, comme nous l'avons montré en Chapitre 3. La distribution du ^{220}Rn dans le dispositif devient homogène et la période du ^{220}Rn n'influence plus la réponse du système de mesure.

Le ^{216}Po suit le même comportement que le ^{220}Rn en fonction du débit. En effet, en calculant le rapport de comptage, en tenant compte de leur incertitude élargie à $k = 2$, l'ensemble des résultats sont compatibles comme le montre la Figure 5-17.

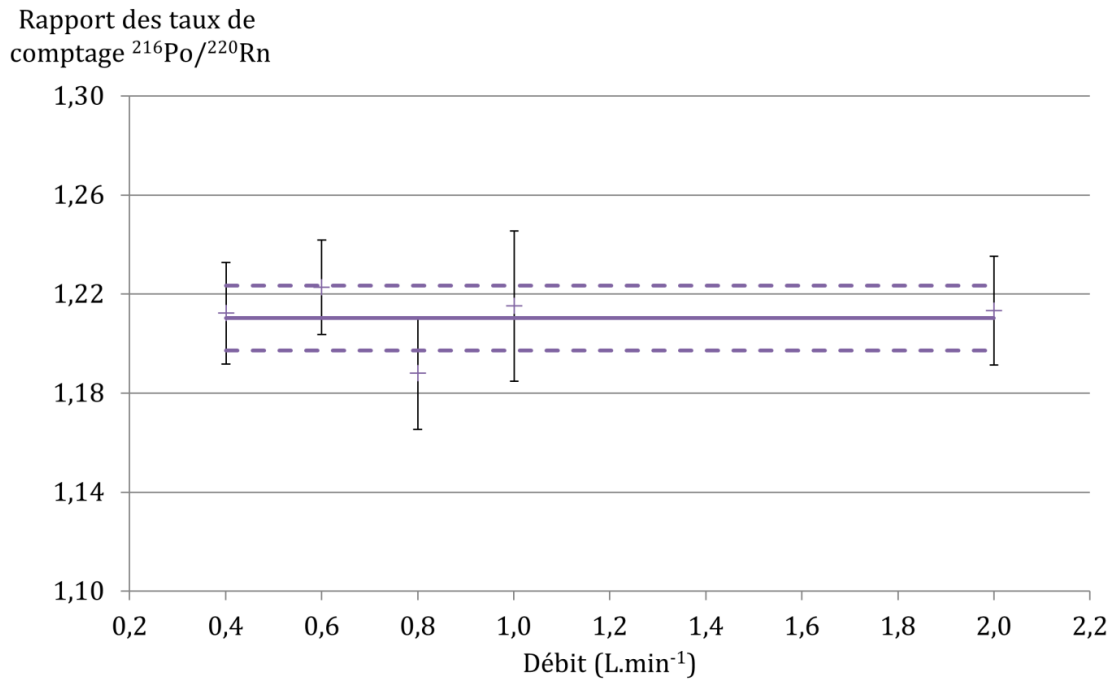


Figure 5-17 : Résultats du rapport des taux de comptage entre le ^{216}Po et le ^{220}Rn .

Le choix du débit de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ est donc tout à fait justifié dans le cas des mesures du ^{220}Rn , ce débit étant suffisant pour assurer l'homogénéité du ^{220}Rn dans le dispositif de mesure. Ce débit peut être augmenté jusqu'à $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, ce qui permet de limiter la décroissance du ^{220}Rn entre le volume de prélèvement et le volume de sortie. La Figure 5-18 représente l'évolution de F_{tube} en fonction de la longueur du tube séparant le point de prélèvement du volume de mesure.

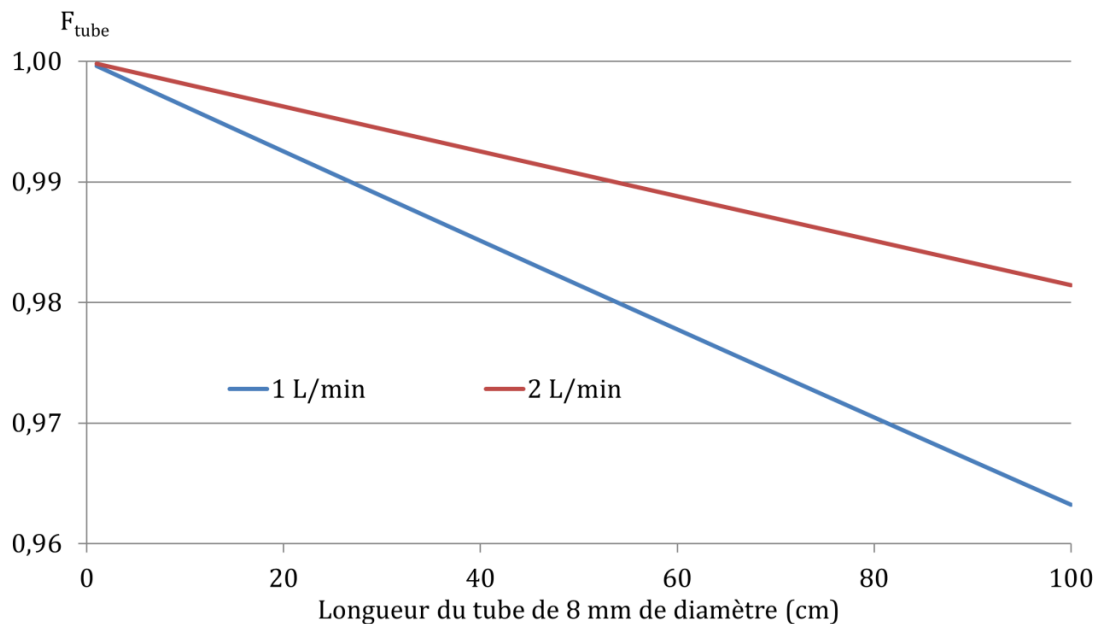


Figure 5-18 : Représentation du facteur de correction F_{tube} en fonction de la longueur d'un tube de 8 mm de diamètre intérieur.

Cette correction est proche de 1, mais n'est pas négligeable dans le cas où la longueur du tube est de quelques dizaines de centimètres. En utilisant un autre type de débitmètre, il serait possible d'étendre l'étude pour voir jusqu'à quel débit cette mesure est possible. Pour des débits très élevés, la limite serait principalement liée à la capture du ^{216}Po ; dans le cas où le débit est trop important, les descendants ne seraient pas captés à la surface du détecteur.

5.6. Rendement de détection, calcul d'activité volumique et incertitudes

5.6.1. Dispositif et condition expérimentales

Le banc présenté en Figure 5-1 est utilisé pour produire une atmosphère de référence en ^{220}Rn . L'objectif est de réaliser plusieurs mesures consécutives pour avoir une évolution de la concentration en ^{212}Po . Comme l'activité produite par la source seule est trop importante, nous utilisons le contournement de la source pour diluer celle-ci. L'activité volumique ainsi produite dans le volume de dilution est divisée par un facteur 25 ; elle est cependant moins stable au cours du temps que lors d'une circulation exclusive à travers la source.

Environ 140 points de mesures sont réalisés au cours du temps pour une durée d'acquisition de 3 000 s chacune. Les données expérimentales sont suivies tout au long de l'expérience et présentées en Tableau 5-3.

Tableau 5-3 : Relevé des données expérimentales tout au long des mesures (Plus de 5 jours d'exposition).

Débit d'air sec en entrée du banc de dilution (L.min-1)	Débit dans le dispositif de mesure (L.min-1)	Pression (hPa)	Humidité relative (% RH)	Température (°C)
1,00 (2)	1,000 (1)	990 (8)	1 (1)	26,5 (9)

Note : les valeurs correspondent à la moyenne des mesures pendant la durée de l'exposition, l'incertitude correspond à l'écart-type des résultats si celui-ci est plus grand que l'incertitude sur l'étalonnage de l'appareil de mesure.

Les paramètres ainsi suivis sont stables au cours du temps avec une variation plus importante pour la pression. Le débit en entrée du dispositif de mesure, réglé par un débitmètre massique, est très stable pendant les 5 jours de mesure.

5.6.2. Méthode d'analyse des résultats

La Figure 5-19 est un exemple de spectre obtenu après 13 h d'exposition à l'atmosphère de ^{220}Rn . Le logiciel Colegram permet de déterminer les caractéristiques de la traîne du pic du ^{212}Po en utilisant la fonction ALPHA(X) (cf. Chapitre 4) ; elles sont ainsi directement utilisées pour l'évaluation de la surface du pic du ^{216}Po .

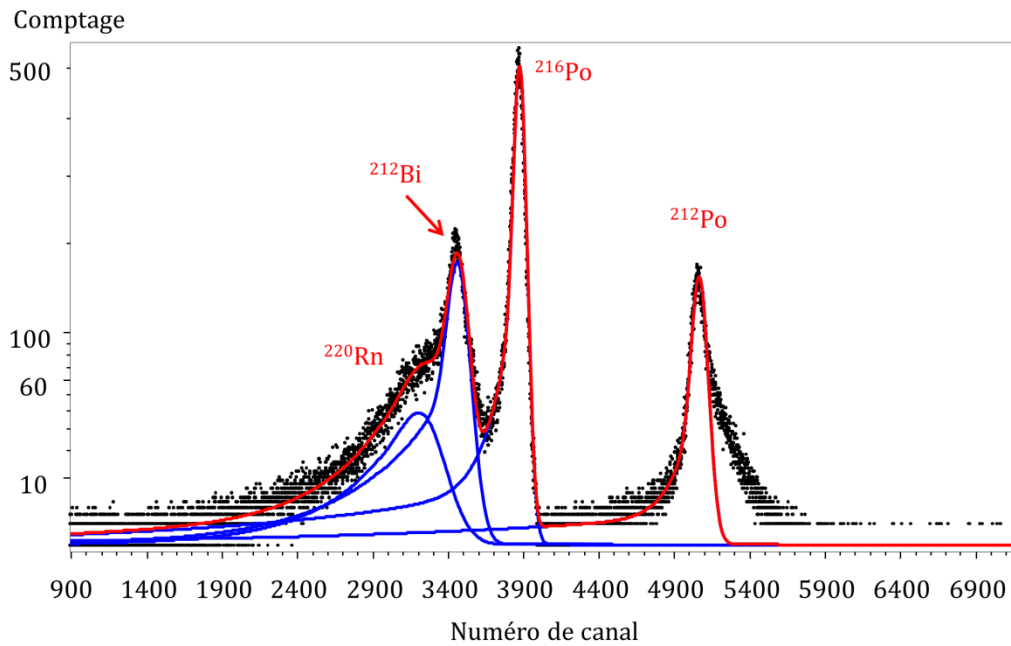


Figure 5-19 : Exemple de spectre pour une acquisition de 3 000 secondes après 13 h d'exposition à une atmosphère en ^{220}Rn .

Cet ajustement mathématique ne permet pas de déterminer le comptage lié au pic du ^{212}Po du fait de la traîne à droite correspondant à la coïncidence des transitions α du ^{212}Po avec les transitions β du ^{212}Bi . Comme ce pic est bien séparé des autres, le comptage lié au ^{212}Po est réalisé en évaluant le comptage net du pic.

La soustraction des comptages liés au ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn est réalisée en utilisant les comptages du ^{212}Po (méthode présentée en § 5.4).

La Figure 5-20 représente le résidu après l'ajustement mathématique de la fonction ALPHA(X) sur les pics de ^{216}Po , ^{212}Bi et ^{220}Rn .

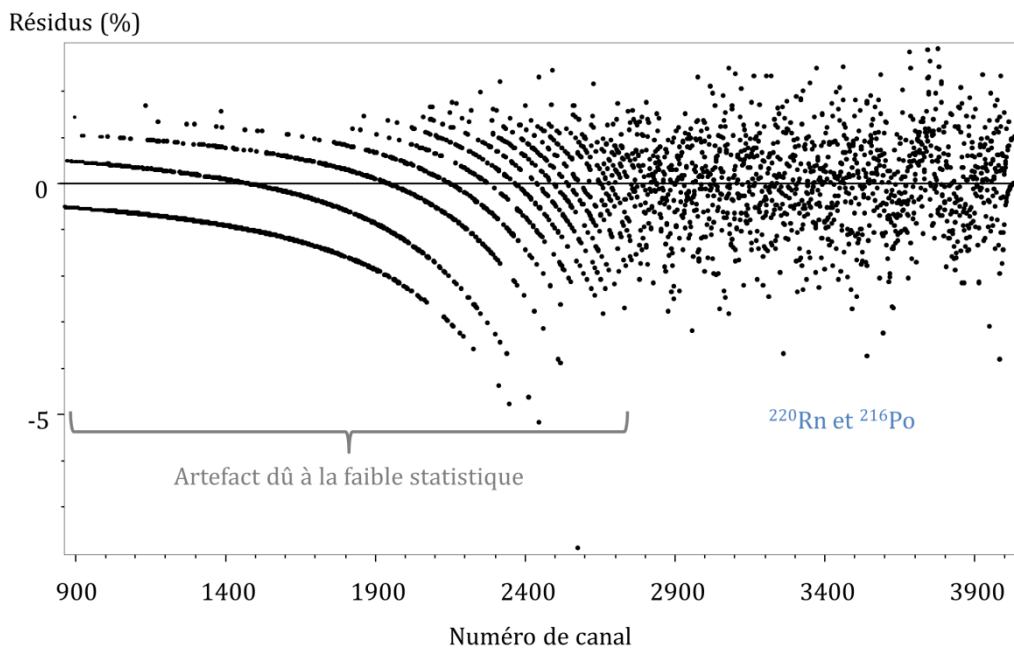


Figure 5-20 : Résultat des résidus de comptage entre l'ajustement mathématique et les comptages bruts.

Nous retrouvons ainsi le même type de résidus que ceux obtenus avec l'ajustement du pic du ^{222}Rn dans le chapitre précédent. L'ajustement semble ainsi acceptable. Comme précédemment la partie gauche du spectre présente une statistique trop faible faisant apparaître des artefacts.

Les comptages évalués pour chaque fenêtre sont présentés en Figure 5-21 ; chaque mesure correspond à un temps d'acquisition de 3 000 s.

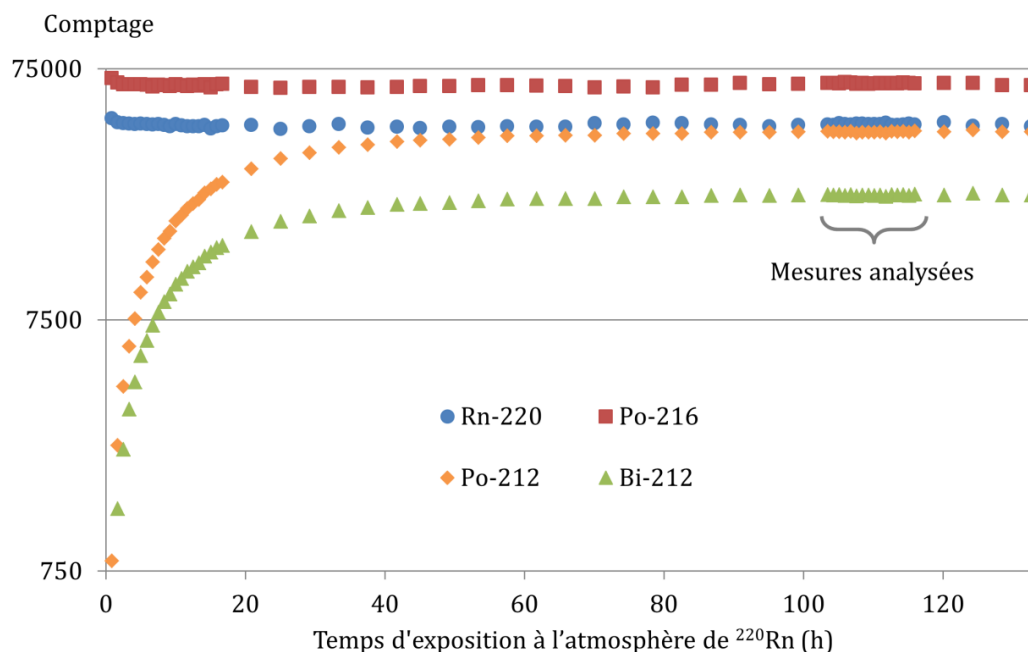


Figure 5-21 : Évolution du comptage pour chaque pic alpha du spectre.

Les résultats de comptage nous montrent que l'équilibre avec les descendants est atteint après 4 jours d'exposition comme calculé en § 1.2.1. Le comptage du ^{220}Rn est plus faible que le ^{216}Po car le rendement est plus faible.

La Figure 5-21 montre que le comptage des ^{220}Rn et ^{216}Po est plus élevé au tout début de l'expérience. Ceci est normal compte tenu des conditions de manipulation. La première mesure est effectuée alors que la source vient d'être ouverte. Il y a ainsi une forte concentration en ^{220}Rn qui a été accumulée dans la source et libérée en un instant. Puis le comptage se stabilise au cours du temps compte tenu du taux de renouvellement de la source de ^{228}Th . Il faut environ 3 h pour que l'activité volumique se stabilise.

L'analyse de ces spectres étant assez longue avec le logiciel Colegram, nous choisissons d'analyser une partie des résultats après que l'équilibre soit atteint comme indiqué sur la Figure 5-21. L'analyse des résultats après l'équilibre est présentée dans la suite du document.

5.6.3. Résultats de comptage

Nous analysons les comptages dans la zone après l'équilibre du ^{220}Rn avec ses descendants comme présenté en Figure 5-21. Le rapport des comptages entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po est présenté en Figure 5-22. Ces comptages sont toujours évalués à l'aide de Colegram et de la méthode présentée en Figure 5-19. Le rapport moyen entre les comptages du ^{220}Rn et du ^{216}Po est évalué à 0,688 (5), soit avec une incertitude-type relative de 0,6 %.

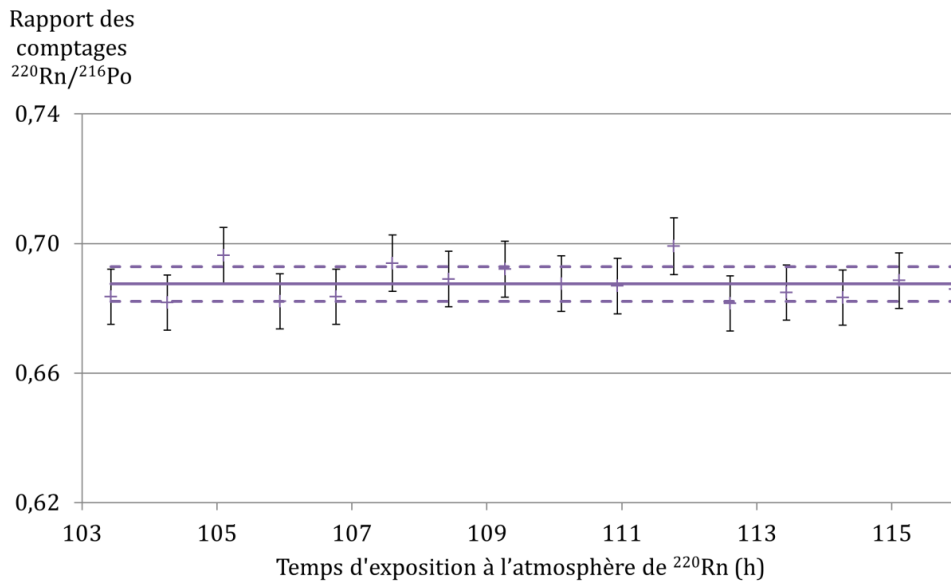


Figure 5-22 : Expression du rapport du comptage entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po en fonction du temps d'exposition.

L'intérêt de ce rapport est qu'il permet de déterminer expérimentalement le rendement de détection du ^{216}Po appelé $R_d^{216\text{Po}}$. Ce rendement est calculé en utilisant l'équation (5.13) :

$$R_d^{216\text{Po}} = \frac{R_d^{220\text{Rn}}}{N_{220\text{Rn}}/N_{216\text{Po}}} = \frac{0,320}{0,688} = 0,465 \text{ (10)}. \quad (5.13)$$

L'incertitude-type relative sur le rendement de détection du ^{216}Po est ainsi de 2 %. Ce rendement est valable à tout instant de la mesure, car l'équilibre entre le ^{220}Rn et le ^{216}Po est immédiat.

Sachant que par simulation Monte-Carlo, le rendement de détection à la surface du détecteur est évalué à 0,495 (2), nous pouvons en déduire que le taux de descendants capturés est de 93,9 (20) %. Nous retrouvons un résultat compatible avec celui du ^{222}Rn qui a été évalué à 93,9 (4) %.

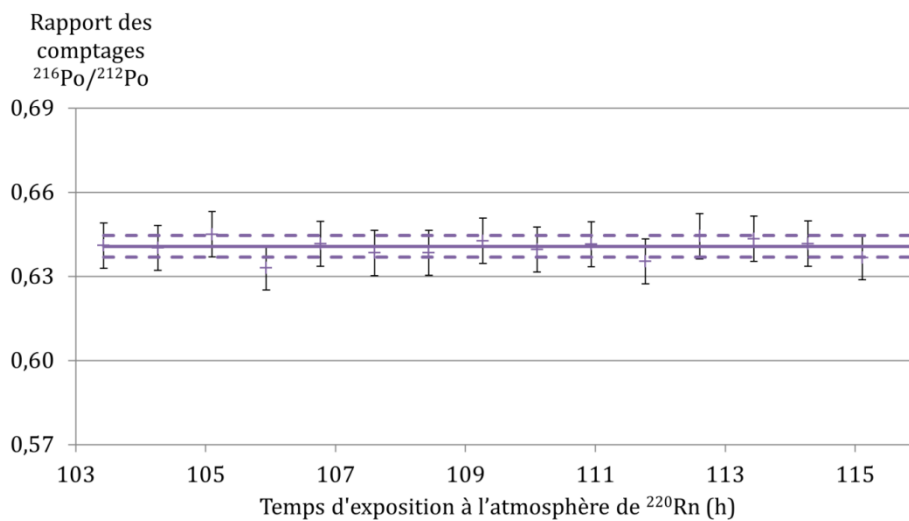


Figure 5-23 : Expression du rapport du comptage entre le ^{216}Po et le ^{212}Po pour différentes mesures.

Le rapport moyen entre le comptage du pic du ^{216}Po et du ^{212}Po est ainsi estimé expérimentalement à 0,641 (4). Sachant que ces mesures sont réalisées à l'équilibre, ce résultat peut être directement comparé aux résultats des rapports d'embranchement provenant des données nucléaires qui est de 0,640 9 (14) (Bé, *et al.*, 2013). Ces deux résultats étant compatibles, nous avons ainsi une bonne estimation du comptage lié à chaque pic. De manière analogue au ^{216}Po , nous pouvons ainsi déterminer le rendement de détection lié au pic du ^{212}Po soit :

$$R_d^{212\text{Po}} = \frac{R_d^{220\text{Rn}}}{\beta(^{212}\text{Bi}) \times N_{220\text{Rn}}/N_{212\text{Po}}} = \frac{0,320}{0,6409 \times 1,073} = 0,465 (30). \quad (5.14)$$

Ce rendement de détection est compatible avec celui calculé en (5.13) pour le ^{216}Po . L'activité volumique de ^{220}Rn peut être aussi calculée en utilisant le pic du ^{212}Po après 4 jours d'exposition à une atmosphère constante de ^{220}Rn .

5.6.4. Calcul de l'activité volumique en ^{220}Rn et incertitudes associées.

L'activité volumique en ^{220}Rn mesurée est calculée en utilisant l'équation suivante :

$$A_v^{220\text{Rn}} = \frac{N_{220\text{Rn}}}{t_m} \frac{1}{V_{det} R_d^{220\text{Rn}}}, \quad (5.15)$$

avec :

↳ $A_v^{220\text{Rn}}$: l'activité volumique en thoron dans le dispositif de mesure ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$) ;

↳ $N_{220\text{Rn}}$: le comptage lié au pic du thoron corrigé ;

↳ $R_d^{220\text{Rn}}$: le rendement de détection du thoron, ici de 32,0 (2) % ;

↳ $V_{det} = \pi(h_c + h_d) \left(\frac{d}{2}\right)^2$: le volume de détection du système de mesure thoron 12,44 (4) cm^3 ;

↳ t_m : le temps d'acquisition pour la mesure du thoron (s).

En utilisant l'équation (5.5) l'activité volumique en ^{220}Rn se définit par :

$$A_v^{220\text{Rn}} = \frac{N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}} - N_{212\text{Po}} \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})}}{t_m V_{det} R_d^{220\text{Rn}}}. \quad (5.16)$$

Cette activité mesurée est corrigée de la décroissance du thoron dans le tube entre le point de prélèvement et le dispositif de mesure du thoron (cf. équation (5.7)). L'activité volumique devient :

$$A_v^{220\text{Rn}}(0) = \frac{N_{220\text{Rn} + ^{212}\text{Bi}} - N_{212\text{Po}} \frac{\alpha(^{212}\text{Bi})}{\beta(^{212}\text{Bi})}}{t_m V_{det} R_d^{220\text{Rn}} e^{\left(-\lambda_{220\text{Rn}} \frac{V_t}{Q}\right)}}, \quad (5.17)$$

avec :

- ↳ $A_{v\ 220Rn}(0)$: l'activité volumique en thoron au point de prélèvement ($Bq.m^{-3}$) ;
- ↳ N_{212Po} : le comptage provenant du pic du ^{212}Po ;
- ↳ $\frac{\alpha(^{212}Bi)}{\beta(^{212}Bi)} = 0,560 (6)$: le rapport d'embranchement entre les émissions alpha et bêta du ^{212}Bi ;
- ↳ $N_{220Rn + 212Bi}$: le comptage provenant du pic du ^{220}Rn et du ^{212}Bi obtenu par ajustement mathématique avec Colegram et suppression de la traîne du ^{216}Po ;
- ↳ λ_{220Rn} : la constante radioactive du ^{220}Rn ;
- ↳ Q : le débit de circulation pour le prélèvement du ^{220}Rn ;
- ↳ V_t : le volume du tube séparant le volume de prélèvement et le dispositif de mesure.

L'équation (5.17) s'écrit de façon simplifiée par :

$$A_{v\ 220Rn}(0) = \frac{N_{220Rn}}{t_m V_{det} R_d\ 220Rn F_{tube}}. \quad (5.18)$$

L'incertitude-type relative sur l'activité volumique est calculée à l'aide de l'équation suivante :

$$\frac{u(A_{v\ 220Rn})}{A_{v\ 220Rn}} = \sqrt{\left(\frac{u(N_{220Rn})}{N_{220Rn}}\right)^2 + \left(\frac{u(t_m)}{t_m}\right)^2 + \left(\frac{u(R_d\ 220Rn)}{R_d\ 220Rn}\right)^2 + \left(\frac{u(F_{tube})}{F_{tube}}\right)^2 + \left(\frac{u(V_{det})}{V_{det}}\right)^2}, \quad (5.19)$$

avec :

$$\left(\frac{u(F_{tube})}{F_{tube}}\right)^2 = \left(-\frac{V_t}{Q}\right)^2 u^2(\lambda_{220Rn}) + \left(\frac{-\lambda_{220Rn}}{Q}\right)^2 u^2(V_t) + \left(\frac{\lambda_{220Rn} V_t}{Q^2}\right)^2 u^2(Q), \quad (5.20)$$

et :

$$u^2(N_{220Rn}) = u^2(N_{220Rn + 212Bi}) + \left(\frac{\alpha(^{212}Bi)}{\beta(^{212}Bi)}\right)^2 u^2(N_{212Po}) + \left(\frac{N_{212Po}}{\beta(^{212}Bi)}\right)^2 u^2(\alpha(^{212}Bi)) + \left(\frac{N_{212Po} \alpha(^{212}Bi)}{(\beta(^{212}Bi))^2}\right)^2 u^2(\beta(^{212}Bi)), \quad (5.21)$$

où l'incertitude sur le comptage, $u(N_{220Rn + 212Bi})$, correspond à la combinaison de l'incertitude sur le comptage et de l'incertitude liée à l'ajustement mathématique de Colegram :

$$u(N_{220Rn + 212Bi}) = \sqrt{\left(\frac{\sqrt{N_{220Rn + 212Bi}}}{N_{220Rn + 212Bi}}\right)^2 + (\text{incertitude} - \text{type relative Colegram})^2} \quad (5.22)$$

L'incertitude-type relative estimée par l'ajustement mathématique par Colegram sur le spectre du ^{220}Rn est de 0,1 %, elle est négligeable comparée à l'incertitude liée au comptage. L'incertitude est aussi calculée par méthode Monte Carlo (JCGM, 2008b) (Lafarge, *et al.*, 2015). Un exemple de résultat est présenté en Tableau 5-4.

Tableau 5-4 : Bilan des incertitudes et résultats selon deux méthodes.

Grandeur	Valeur et incertitude- type associée	Incertitude-type relative (%)	Contribution (%)	Distribution
$N_{220Rn + 212Bi}$	68 783 ± 271	0,4	27,6	Gamma
N_{212Po}	42 289 ± 206	0,5	5,1	Gamma
$\frac{\alpha(^{212Bi})}{\beta(^{212Bi})}$	0,560 (6)	0,1	24,5	Gaussienne
t_m	3 003 (1) s	0,03	0,1	Rectangulaire
V_{det}	12,444 (40) · 10 ⁻⁶ m ³	0,3	8,0	Rectangulaire
R_d^{220Rn}	0,320 (2)	0,6	30,4	Gaussienne
λ_{220Rn}	12,42 (7) · 10 ⁻³ s ⁻¹	0,5	0,0	Gaussienne
V_t	2,5 (3) · 10 ⁻⁵ m ³	12	3,9	Rectangulaire
Q	1,667 (2) · 10 ⁻⁵ m ³ .s ⁻¹	0,1	0,0	Gaussienne
A_v^{220Rn} Méthode classique	3,843 (40) MBq.m ⁻³	1		
A_v^{220Rn} Méthode Monte-Carlo	3,843 (43) MBq.m ⁻³	1		

Les résultats ainsi obtenus pour chaque point de mesure de la zone analysée sont présentés en Figure 5-24.

Dans la zone étudiée, les résultats d'activité volumique en ^{220}Rn sont compatibles en tenant compte de leur incertitude. La moyenne est de 3,81 MBq.m⁻³ avec un écart-type de 0,02 MBq.m⁻³, l'activité volumique en ^{220}Rn est donc constante au cours du temps sur l'ensemble de ces résultats.

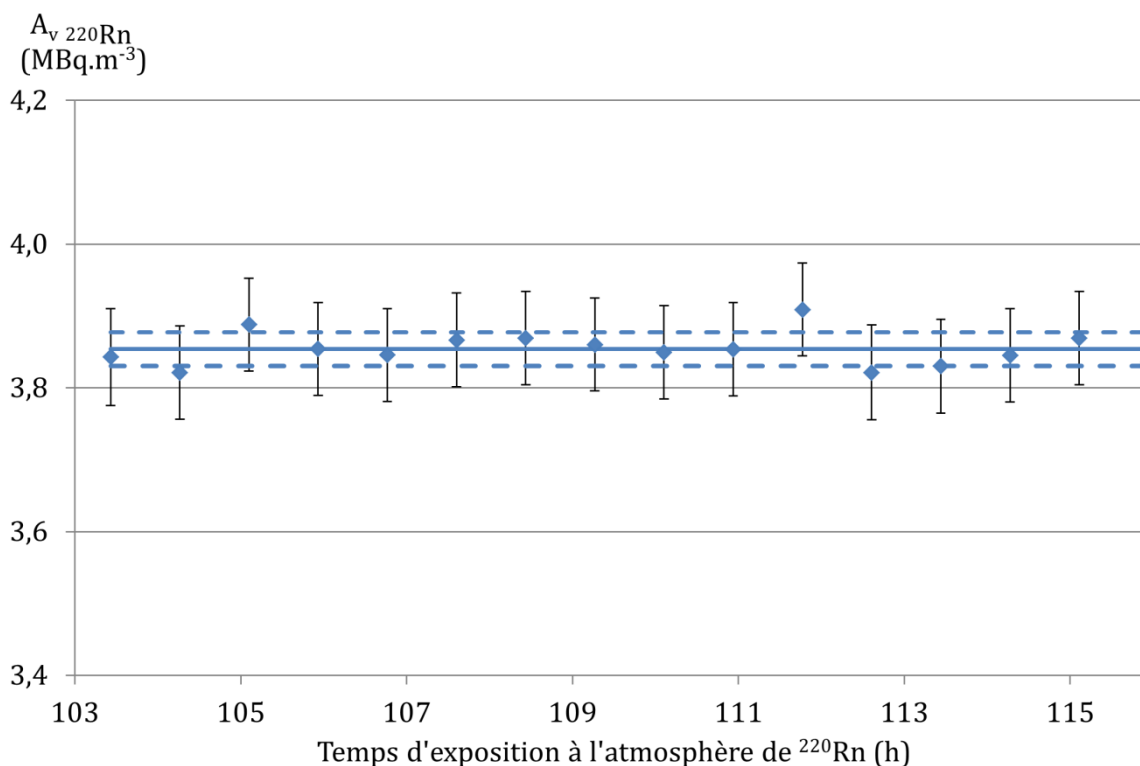


Figure 5-24 : Calcul de l'activité volumique en ²²⁰Rn pour chaque point de mesure de la zone d'analyse.

L'activité volumique en ²²⁰Rn peut aussi être déterminée à l'aide du pic de ²¹⁶Po en utilisant la formule suivante :

$$A_v^{220Rn} = \frac{N_{216Po}}{t_m V_{det} R_d^{216Po} e^{\left(-\lambda_{220Rn} \frac{V_t}{Q}\right)}} = \frac{N_{216Po}}{t_m V_{det} R_d^{216Po} F_{tube}}, \quad (5.23)$$

avec :

- ↳ N_{216Po} : le comptage provenant du pic de ²¹⁶Po ;
- ↳ R_d^{216Po} : le rendement de détection du dispositif pour le ²¹⁶Po déterminé expérimentalement en § 5.6.3, égal à 0,465 (10) (5.13) ;
- ↳ $V_{det} = \pi(h_c + h_d) \left(\frac{d}{2}\right)^2$: le volume de détection du système de mesure thoron égal à 12,44 (4) cm³ ;
- ↳ t_m : le temps d'acquisition pour la mesure du thoron (s) ;
- ↳ F_{tube} : le facteur de correction de la décroissance du thoron dans le tube entre le point de prélèvement et le dispositif de mesure.

L'incertitude-type associée au résultat est calculée en utilisant le même type d'équation que celle présentée en (5.19), le bilan des incertitudes est présenté en Tableau 5-5.

Tableau 5-5 : Bilan des incertitudes et résultats selon deux méthodes en utilisant le pic de ^{216}Po .

Grandeur	Valeur et incertitude- type associée	Incertitude-type relative (%)	Contribution (%)	Distribution
$N_{^{216}\text{Po}}$	$65\,978 \pm 257$	0,4	3,0	Gamma
t_m	$3\,003 (1) \text{ s}$	0,03	0,0	Rectangulaire
V_{det}	$12,444 (40) \cdot 10^{-6} \text{ m}^3$	0,3	2,1	Rectangulaire
$R_d^{^{216}\text{Po}}$	$0,465 (10)$	2,1	93,7	Gaussienne
$\lambda_{^{220}\text{Rn}}$	$12,42 (7) \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$	0,5	0,0	Gaussienne
V_t	$2,5 (3) \cdot 10^{-5} \text{ m}^3$	12	1,0	Rectangulaire
Q	$1,667 (2) \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	0,1	0,0	Gaussienne
$A_v^{^{220}\text{Rn}}$ Méthode classique	$3,865 (86) \text{ MBq} \cdot \text{m}^{-3}$	2,2		
$A_v^{^{220}\text{Rn}}$ Méthode Monte-Carlo	$3,871 (86) \text{ MBq} \cdot \text{m}^{-3}$	2,2		

Les résultats pour l'ensemble des points de mesure suivant les deux méthodes sont présentés en Figure 5-25.

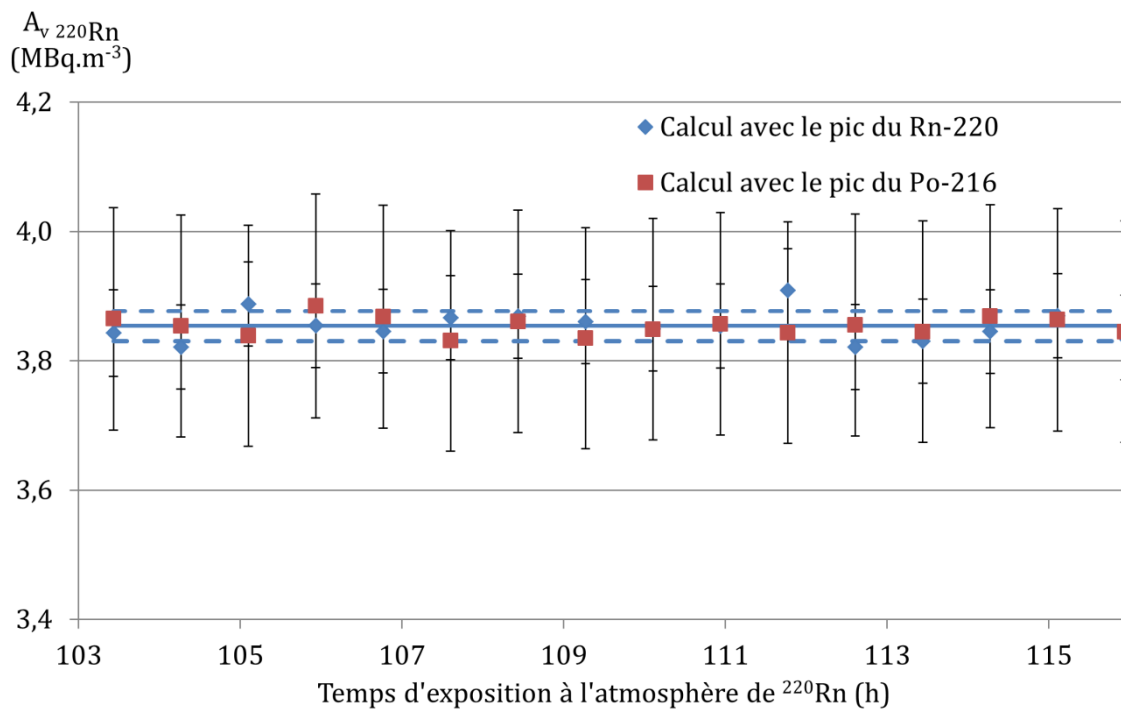


Figure 5-25 : Comparaison des résultats de l'activité volumique mesurée au point de prélèvement en utilisant soit le pic du ^{216}Po , soit le pic du ^{220}Rn .

Les résultats obtenus avec le pic du ^{220}Rn et le pic du ^{216}Po sont compatibles, l'incertitude-type relative est cependant de 2 % pour l'activité volumique calculée à partir du pic du ^{216}Po . Malgré son incertitude-type relative plus grande, cette seconde méthode peut être utilisée en cas de faible taux de comptage.

De manière analogue, il est aussi possible d'utiliser le pic du ^{212}Po pour déterminer l'activité volumique en ^{220}Rn en utilisant le rendement calculé avec l'équation (5.14).

5.7. Comparaison avec d'autres dispositifs de mesure

5.7.1. Comparaison avec un RAD7 étalonné

Une première comparaison de résultats est mise en place à l'IRSN en utilisant un appareil commercial, le RAD7 (DURRIDGE Inc., 2015). Le RAD7 permet de mesurer l'activité volumique de ^{220}Rn . L'appareil utilisé a été étalonné par le PTB (Röttger, *et al.*, 2014) avec une incertitude-type relative de 4 %. Le facteur d'étalonnage a été déterminé avec un tube et un sécheur permettant de prélever l'atmosphère à mesurer. Nous utilisons ainsi ces mêmes tube et sécheur. Deux facteurs d'étalonnage sont donnés par le PTB : $k_1 = 1,17$ (5) pour une activité volumique en ^{220}Rn de $1,42$ (5) $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ et $k_2 = 1,25$ (4) pour une activité de $5,4$ (2) $\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}$.

Le Rad7 est placé à l'intérieur de BACCARA comme présenté en Figure 5-26.

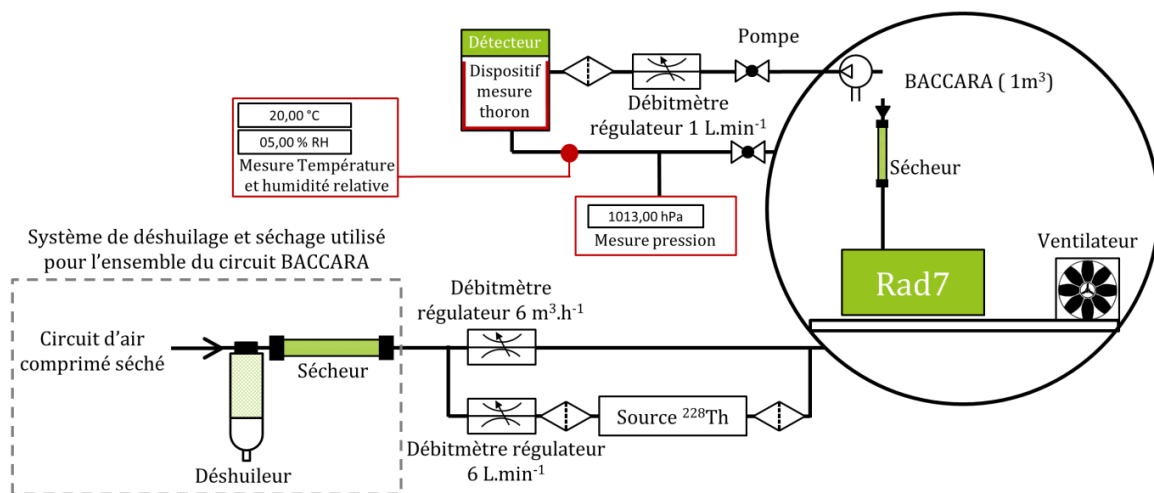


Figure 5-26 : Montage utilisé pour la comparaison entre un Rad7 étalonné par le PTB et le dispositif de mesure thoron.

Les points de prélèvement entre le Rad7 et le dispositif de mesure thoron sont espacés de 2 cm. Ceci permet d'éviter des problèmes d'homogénéité. L'atmosphère de ^{220}Rn est créée à l'aide d'une circulation constante d'air à travers une source de ^{228}Th diluée en continu par de l'air propre et sec. Cette atmosphère circule en continu dans BACCARA et est homogénéisée à l'aide d'un ventilateur interne.

La distance séparant le point de prélèvement et le dispositif de mesure du thoron est de 50 cm avec un diamètre interne de tube de 4 mm. La correction de décroissance est appliquée au résultat pour ramener l'activité volumique en thoron à la valeur au point de prélèvement. Deux mesures sont réalisées pour deux activités volumiques différentes en utilisant chacune des sources disponibles à l'IRSN. Les résultats sont présentés dans le Tableau 5-6.

Tableau 5-6 : Résultats de la comparaison entre le Rad7 étalonné et le dispositif de mesure du thoron.

Appareil	Dispositif de mesure thoron	Rad7 avec k_1	Rad7 avec k_2
Petite activité volumique	2,08 (6) kBq.m ⁻³	1,76 (15) kBq.m ⁻³	1,88 (14) kBq.m ⁻³
Grande activité volumique	163 (5) kBq.m ⁻³	160 (7) kBq.m ⁻³	150 (8) kBq.m ⁻³

Dans le cas de l'activité volumique élevée, les résultats sont compatibles pour les deux facteurs à $k = 1$; notre incertitude est cependant élevée car la mesure a été effectuée avec un temps d'acquisition très court, le comptage étant ainsi faible.

Dans le cas de la faible activité volumique, les résultats sont compatibles en tenant compte de l'incertitude-type entre les deux dispositifs avec le facteur d'étalonnage k_2 . Pour le facteur k_1 , les résultats sont compatibles pour une incertitude élargie à $k = 2$.

Notons que, dans le cas de notre système, une correction supplémentaire a été nécessaire pour cette mesure. En effet, le dispositif utilisé a subi beaucoup d'expositions à de fortes activités volumique en ²²²Rn suite à notre étude ; il est donc contaminé par les descendants à vie longue de ²²²Rn et le pic alpha de ²¹⁰Po apparaît sur le spectre (cf. Figure 5-27).

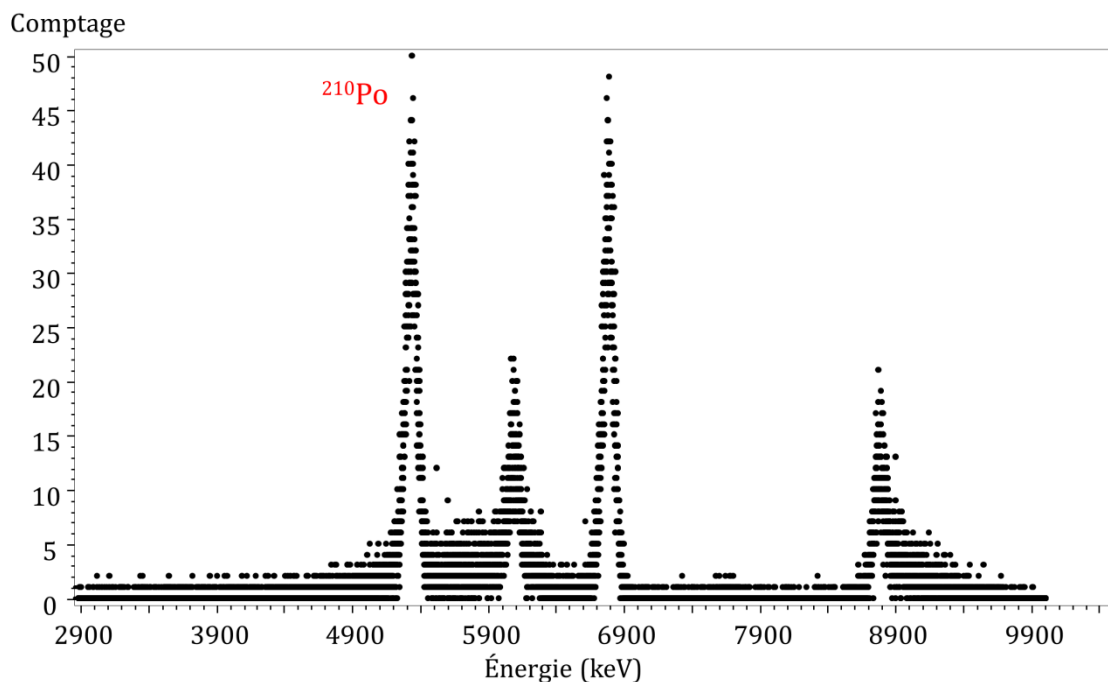


Figure 5-27 : Spectre obtenu pour la mesure de 2,08 (6) kBq.m⁻³ de ²²⁰Rn dans BACCARA. Acquisition de 7 jours.

Cette correction est très simple à réaliser : une détermination du mouvement propre effectuée avant la mesure permet d'obtenir le comptage de ²¹⁰Po seul. Ce comptage est soustrait du pic de ²²⁰Rn lors de l'exploitation du spectre.

Nous disposons d'un second dispositif identique qui n'a pas subi toutes les études présentées en Chapitre 4. Non contaminé en ²¹⁰Po, il sera plus adapté lors de la mesure de faibles activités volumiques.

5.7.2. Comparaison avec les dispositifs de mesure de l'ENEA.

L'ENEA¹⁴ est l'homologue italien du LNE-LNHB. Ce laboratoire de métrologie participe aussi au projet de recherche européen MetroNORM (*Metrology for Naturally Occurring Radioactive Materials*). L'ENEA développe aussi un système de référence pour l'étalonnage des appareils de mesure du thoron. Ce laboratoire a sélectionné deux dispositifs :

- ↳ le premier est une fiole de Lucas comme celle utilisée par (Tokonami, *et al.*, 2002) ;
- ↳ le deuxième est un dispositif appelé Ramona (Pugliese, *et al.*, 2000). Il s'agit d'un dispositif à collection électrostatique des descendants du radon et du thoron produits dans l'air. Le radon ou le thoron diffuse à travers une grille en forme de demi-sphère sur laquelle est déposé un filtre. Cette grille est reliée à un potentiel de 2 kV, ce qui permet de capturer les descendants chargés présents dans le volume à la surface d'un détecteur silicium. Le volume de la demi-sphère est d'environ 0,5 L.

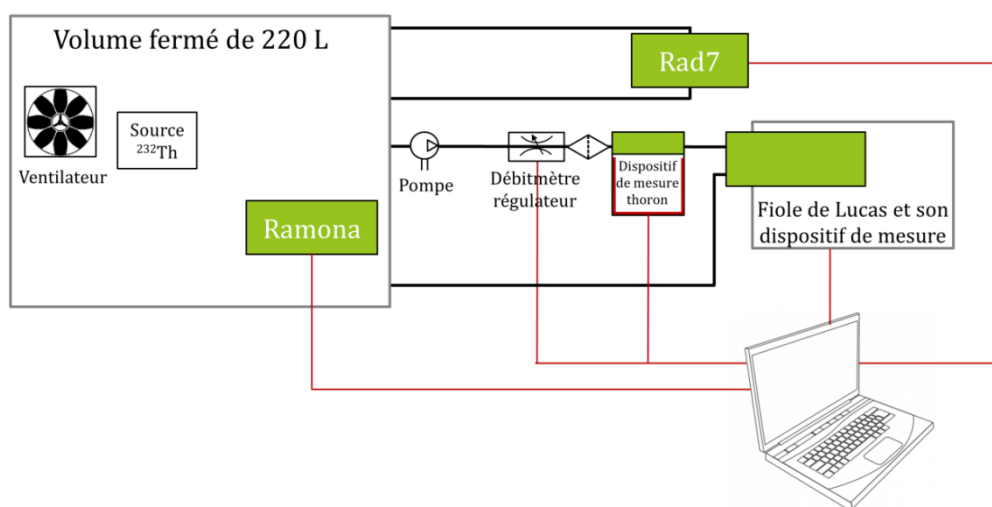


Figure 5-28 : Montage utilisé pour la comparaison avec le dispositif de mesure thoron développé par l'ENEA.

Le dispositif de mesure Ramona est placé à l'intérieur d'une chambre de 220 L étanche de l'ENEA. Le dispositif de mesure du thoron est connecté à la chambre au plus près du dispositif Ramona. La fiole de Lucas est quant à elle connectée derrière le dispositif de mesure du thoron. Le débit de circulation dans la fiole est donc le même que celui du dispositif, soit 1,000 (2) L.min⁻¹.

Une vieille source de ²³²Th permet de produire une atmosphère en ²²⁰Rn à l'intérieur de la chambre de 220 L, un ventilateur assurant le mélange interne. Lors des mesures, la pression à l'intérieur de la chambre de mesure était de 1 010 hPa avec une température de 20 °C.

Nous utilisons notre deuxième dispositif de mesure du thoron non contaminé par du ²¹⁰Po. Les mesures ont été réalisées en présence d'un bruit électronique conséquent, avec un temps mort de 1 % et une résolution dégradée. Un exemple de spectre obtenu est présenté en Figure 5-29.

¹⁴ ENEA : Energia Nucleare ed Energie Alternative : Agence nationale italienne pour les nouvelles technologies, l'énergie et le développement durable.

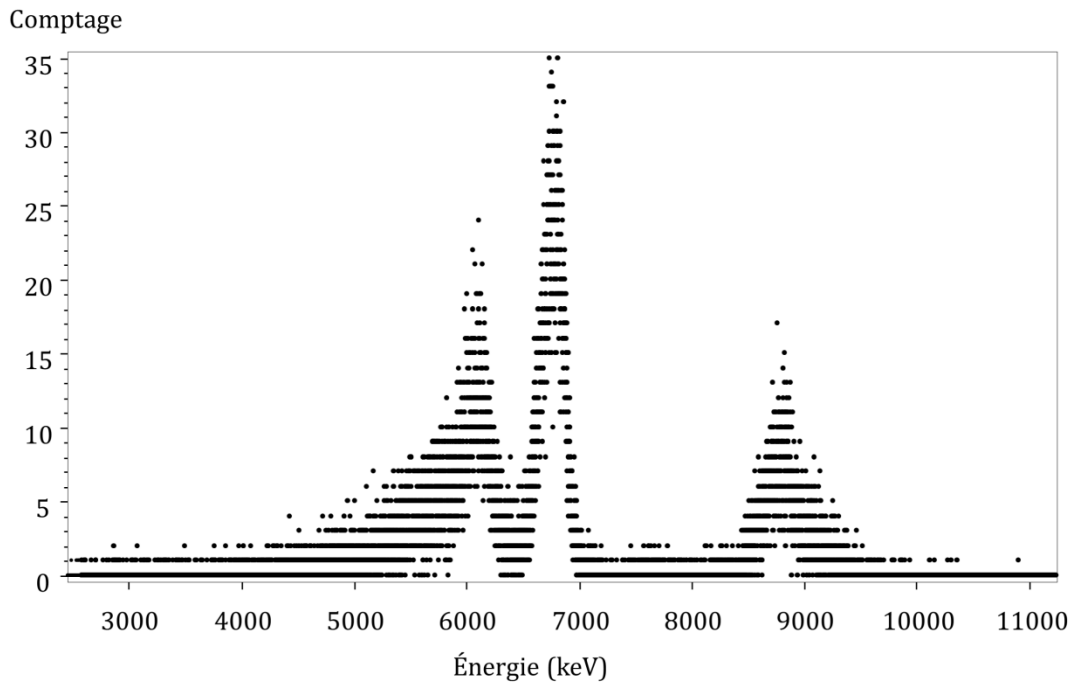


Figure 5-29 : Spectre obtenu lors de la comparaison après une mesure de 16 h.

Nos homologues italiens nous ont fourni uniquement les résultats obtenus avec la fiole de Lucas. Ceux-ci sont présentés et comparés à nos résultats dans le Tableau 5-7.

Tableau 5-7 : Résultats de la comparaison entre la fiole de Lucas de l'ENEA et le dispositif de mesure du thoron. L'activité volumique calculée correspond à l'activité volumique en sortie du dispositif de mesure thoron.

Appareil	Mesure 1	Mesure 2
Dispositif de mesure thoron	22,2 (4) kBq.m ⁻³	22,0 (3) kBq.m ⁻³
Lucas - ENEA	22,1 (8) kBq.m ⁻³	21,7 (8) kBq.m ⁻³

Les résultats obtenus par la fiole de Lucas sont corrigés de la décroissance du ²²⁰Rn dans le tube séparant les deux dispositifs de mesure. Nos résultats sont tous compatibles. La composante d'incertitude prédominante reste, pour notre dispositif, le comptage. Dans le cas de la méthode utilisant la fiole de Lucas, c'est l'homogénéité du thoron dans la fiole.

5.8. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté le banc créé pour la production d'atmosphère en ²²⁰Rn avec une forte activité volumique (quelques MBq.m⁻³). Ce dispositif nous a permis de réaliser des expériences rapides sur des atmosphères en ²²⁰Rn.

Nous avons tout d'abord prouvé l'efficacité de notre champ électrique mais aussi montré la limite haute de détection du dispositif qui reste très élevée, quelques dizaines de MBq.m⁻³.

Les premiers spectres nous ont aussi permis de montrer qu'il est possible d'identifier la présence éventuelle de ²²²Rn dans l'atmosphère de ²²⁰Rn. Le pic du ²¹⁴Po sera bien visible sur le

spectre car il est séparé des autres pics du ^{220}Rn et de ses descendants. Dans le cas de la présence des deux gaz, il sera possible d'estimer l'activité volumique du ^{222}Rn et du ^{220}Rn en utilisant respectivement le pic du ^{214}Po et le pic du ^{212}Po . Cette méthode n'a cependant pas été encore étudiée expérimentalement.

Une analyse complète des comptages et du spectre nous a permis de valider notre évaluation du comptage lié à chaque pic présent dans la mesure.

L'analyse du reste des descendants déposés à la surface du détecteur après une exposition à une atmosphère de ^{220}Rn nous a permis de déterminer le rapport des comptages entre le pic alpha du ^{212}Bi et le pic alpha du ^{212}Po soit 0,561 (7). Ce résultat est compatible avec les données de la littérature qui est de 0,560 (6) (Bé, *et al.*, 2013). Nous sommes donc capable de mettre en place une méthode afin de déduire le comptage provenant du ^{212}Bi dans le pic du ^{220}Rn en utilisant le comptage du ^{212}Po .

Le pic du ^{212}Po a aussi été utilisé pour déterminer la traîne liée au pic du ^{216}Po avec le logiciel Colegram. En utilisant les caractéristiques de la traîne du ^{212}Po sur le pic du ^{216}Po , il a été possible de soustraire le comptage lié au ^{216}Po dans le pic du ^{220}Rn . Cette méthode a été vérifiée après une longue exposition du dispositif de mesure à une atmosphère constante en ^{220}Rn : l'équilibre entre le ^{216}Po et le ^{212}Po étant atteint après 4 jours d'exposition, nous avons comparé le rapport de comptage du ^{216}Po par rapport au comptage du ^{212}Po . Le résultat obtenu est égal à 0,641 (4), compatible avec la valeur publiée de 0,640 9 (14) (Bé, *et al.*, 2013). L'évaluation de la surface du pic du ^{216}Po est donc correcte.

Sachant que les estimations des surfaces des pics sont validées, nous avons pu en déduire le rendement de détection lié à chaque pic à l'équilibre en utilisant le rendement de détection du gaz de 0,320 (2). Le rendement de détection du ^{216}Po est ainsi de 0,465 (10) et le rendement de détection du ^{212}Po est identique. Dans le cas du ^{212}Po , ce rendement est valable uniquement après 4 jours d'exposition.

Connaissant le rendement de détection pour chaque pic, nous avons pu calculer l'activité volumique en ^{220}Rn mesurée lors de l'exposition avec son incertitude associée.

Enfin, deux comparaisons ont été mises en place avec un appareil commercial étalonné par le PTB et le dispositif utilisé par l'ENEA pour qualifier leur atmosphère de référence en ^{220}Rn . Les deux comparaisons donnent des résultats compatibles, celles réalisées avec l'ENEA donnant de meilleurs résultats du fait d'un comptage plus important.

Le dispositif permet ainsi une qualification d'une atmosphère en ^{220}Rn avec une activité volumique constante. Le dispositif peut aussi servir à qualifier des sources produisant du ^{220}Rn , et permettre de vérifier la constance de l'émanation au cours du temps. Il peut être utilisé dans une large gamme de pression, de taux d'humidité et de température. Si le comptage est suffisamment élevé, l'incertitude-type relative sur le résultat sera de 1 %.

Conclusion générale

Notre objectif était de concevoir un étalon de référence pour l'étalonnage des instruments de mesure de l'activité volumique du thoron (^{220}Rn) dans l'air. Après avoir remis en place et amélioré au cours de nos travaux l'étalon primaire de ^{222}Rn ($T_{1/2}=3,8$ jours) du LNE-LNHB, nous avons montré que celle-ci n'était pas applicable au ^{220}Rn , compte-tenu de sa très courte période ($T_{1/2} = 55,8$ s).

Nous avons ainsi étudié les propriétés de la chaîne de désintégration de ces deux éléments et de leurs descendants pour montrer que les émissions principales sont produites par transition alpha. Nous avons décidé d'utiliser la spectrométrie alpha pour la mesure du gaz et de ses descendants, dont le rendement de détection serait évalué par méthode Monte-Carlo. Ces calculs seraient validés avec un étalon de ^{222}Rn .

Le problème rencontré était lié aux descendants solides du ^{220}Rn et du ^{222}Rn . Contrairement aux gaz, ceux-ci ont un comportement différent dans l'air et ainsi un rendement de détection différent dans un volume de mesure avec un détecteur alpha. L'utilisation d'un filtre de très haute efficacité en entrée du volume de mesure nous permet de mesurer uniquement le gaz et la « fraction libre » des descendants.

Connaissant les dimensions de ces descendants, nous avons calculé de façon analytique les différentes constantes et dimensions physiques définissant leur transport. Nous avons conclu que ces aérosols sont principalement soumis à la vitesse du fluide pour des débits importants et qu'il est possible de les capturer à la surface du détecteur si ces particules sont chargées et que le champ électrique est assez intense. Les autres propriétés de transport des descendants telles que la sédimentation, la diffusion, ou les phénomènes de thermophorèse sont négligeables.

Sachant qu'il est possible de capturer les descendants à l'aide d'un champ électrique, nous avons par la suite étudié les phénomènes produisant les descendants chargés du radon et du thoron. Nous avons vu que plusieurs phénomènes complexes étaient mis en jeu, mais que les transitions alpha, et notamment le recul de l'atome produit par cette transition sont les principales causes de la charge des descendants. Nous avons donc par la suite discuté des différentes études réalisées sur la neutralisation des descendants chargés. Nous avons vu que leur neutralisation est liée à plusieurs paramètres :

- ↳ le taux d'humidité de l'air qui produit des radicaux libres $\cdot\text{OH}$;
- ↳ la recombinaison des petits ions présents dans l'air ;
- ↳ le transfert de charges avec les molécules présentes dans l'air ;
- ↳ le temps de séjour dans le dispositif de mesure.

Ces études ont ainsi donné des limites à notre dispositif de mesure, mais elles ont aussi montré qu'il n'est pas possible de définir un taux de neutralisation applicable à un dispositif expérimental. Cette limite est principalement liée au trop grand nombre de phénomènes mis en jeu et à l'influence des caractéristiques de la géométrie du dispositif dans la mesure.

Des résultats expérimentaux disponibles dans la littérature montrent que la majeure partie des descendants, soit plus de 90 %, sont chargés après leur création dans le cas des deux gaz. Ces résultats ne sont cependant pas tous compatibles et révèlent une différence significative montrant que la proportion de descendants du thoron chargés semble plus importante que ceux du radon. Les résultats ont aussi montré que les mêmes phénomènes que ceux cités précédemment sont à l'origine de la neutralisation des descendants. Il a cependant été montré que, même pour un taux d'humidité élevé et proche de 90 %, il est possible de capturer tous les

descendants chargés avant leur neutralisation si le champ électrique utilisé est assez intense. Enfin le facteur prédominant dans la neutralisation des descendants reste leur temps de séjour, il est ainsi primordial que leur capture soit la plus rapide possible afin de limiter leur perte de charge.

Ces premières études bibliographiques ainsi que nos calculs analytiques nous ont permis de définir les caractéristiques principales du dispositif :

- ↳ un filtre de très haute efficacité doit être placé en entrée du volume afin d'éliminer tous les descendants produits en amont du volume ;
- ↳ le dispositif doit être de petite dimension afin de minimiser le temps de séjour du gaz et de ses descendants dans le volume de mesure ;
- ↳ le débit de circulation dans le dispositif doit être assez important pour que le transport des aérosols soit principalement dû à la vitesse du fluide ;
- ↳ le champ électrique doit être le plus intense possible pour capturer les descendants produits à l'intérieur et soumis à la vitesse du fluide, mais aussi afin de limiter les effets de neutralisation ;
- ↳ le dispositif doit permettre la détection des deux gaz ^{222}Rn et ^{220}Rn avec un rendement assez important, devant être idéalement identique pour les deux gaz, qui nous permettra de valider les calculs par transfert d'étalon de ^{222}Rn ;
- ↳ le rendement de détection du gaz et des descendants doit être peu dépendant des conditions expérimentales, ce qui limitera le nombre de corrections à appliquer lors des mesures.

En tenant compte de ces caractéristiques, des calculs Monte-Carlo (MCNPX 2.7) et par code déterministe à éléments finis (COMSOL Multiphysics 4.3b) nous ont permis de dimensionner et d'optimiser la forme de notre géométrie. La géométrie ainsi obtenue est un petit volume de détection de forme cylindrique dans lequel est disposé un détecteur silicium de grande surface. Ce dispositif permet de tenir compte des caractéristiques citées précédemment. Le rendement de détection pour le ^{222}Rn et le ^{220}Rn , évalué par MCNPX, est de à 0,3186 (3). Le rendement de détection provenant du dépôt des descendants sur le détecteur est quant à lui évalué à 0,495 (2). Ces calculs de rendement nous ont aussi permis de simuler la forme du spectre attendu.

Cette étude sur le rendement de détection a été enrichie par une étude qualitative sur le transport du gaz dans le volume et l'efficacité du champ électrique. En tenant compte des limites disruptives dans l'air, nous avons sélectionné le champ électrique le plus adapté à la forme du dispositif grâce aux simulations sous Comsol Multiphysics. Ce champ utilise une électrode reposant sur la surface interne du volume et reliée à une tension maximale de 2 kV. Connaissant le débit de circulation de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ dans le dispositif, nous nous sommes basés sur un modèle laminaire pour le calcul du champ de vitesse du fluide dans le volume.

Ces calculs ont été tout d'abord couplés à un calcul de transport du thoron dans le volume. En tenant compte du coefficient de diffusion du thoron et de sa décroissance au cours du temps. Nous avons montré que, compte tenu du taux de renouvellement très élevé, pour un débit de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$, la distribution de ^{222}Rn ou de ^{220}Rn dans le volume est la même car elle est indépendante de la période du gaz. Un calcul simple du transport de particules chargées dans le volume, en tenant compte du champ électrique et du débit de circulation, a permis de montrer qu'un temps de 80 ms est nécessaire pour capturer les descendants dans le cas le plus pénalisant. Cette valeur, inférieure à la période du ^{216}Po qui est de 150 ms, montre que notre dispositif permettra d'assurer un taux de capture maximal dans le volume de mesure.

Le dispositif ainsi conçu a été validé à l'aide d'un banc expérimental spécifiquement conçu pour la création d'atmosphère en ^{222}Rn dont l'activité volumique, connue avec une incertitude-type de 0,3 %, est raccordée à l'étalon primaire de ^{222}Rn .

Ce dispositif nous a permis d'évaluer le rendement de détection de ^{222}Rn estimé expérimentalement à 0,320 (2). Ce résultat est ainsi compatible avec le rendement calculé par méthode Monte-Carlo. L'analyse du spectre, couplée au calcul de rendement de détection du dépôt des descendants sur le détecteur silicium, nous a permis d'estimer que 93,9 (4) % des descendants sont capturés à la surface du détecteur et donc chargés. Ces résultats sont compatibles avec les résultats expérimentaux mentionnés dans la littérature.

Le rendement de détection reste le même quelle que soit l'activité volumique mesurée et reste stable au cours du temps, même après plusieurs jours de mesure. L'incertitude-type relative sur la mesure de l'activité volumique en ^{222}Rn dans le dispositif est ainsi de 0,6 % pour une statistique de comptage assez importante.

Les calculs de rendement de détection du gaz étant validés expérimentalement, nous avons ainsi utilisé un banc expérimental spécialement conçu pour la production d'atmosphère constante en ^{220}Rn , afin d'analyser les spectres obtenus et de calculer l'activité volumique mesurée. Nous avons tout d'abord montré que, à l'inverse du ^{222}Rn , le débit de circulation peut influencer la mesure du ^{220}Rn et que la mesure doit être effectuée pour un débit de circulation supérieur à 0,8 L.min⁻¹. Après avoir expliqué la méthode d'analyse des spectres à l'aide du logiciel Colegram, nous avons pu estimer l'activité volumique en ^{220}Rn à l'aide du pic alpha du gaz pour une incertitude-type relative de 1 % dans le cas où l'incertitude liée au comptage est négligeable. Cette analyse a par la suite été étendue aux pics des descendants qui permettent d'estimer l'activité volumique en ^{220}Rn avec une incertitude-type relative de 2 %. Notre méthode d'analyse a elle aussi été validée par l'analyse des autres pics des descendants. En effet les rapports entre les comptages liés à chaque pic sont compatibles avec le rapport d'embranchement des données de la littérature en tenant compte des incertitudes associées. Enfin plusieurs comparaisons de mesures ont été mises en œuvre, dont une avec un dispositif commercial étalonné par le laboratoire de métrologie allemand, et une avec le dispositif développé par le laboratoire de métrologie italien. Ces comparaisons ont donné des résultats compatibles en tenant compte des incertitudes.

Le dispositif ainsi conçu peut être utilisé soit comme un dispositif secondaire pour la mesure d'atmosphère en ^{222}Rn , soit comme un dispositif primaire pour la qualification d'atmosphère constante en activité volumique en ^{220}Rn . Il permet de mesurer le ^{220}Rn pour des activités volumiques de 100 Bq.m⁻³ à 100 MBq.m⁻³. Bien que ce dispositif soit très bien raccordé, son inconvénient reste son rendement de détection faible qui implique des mesures de plusieurs jours pour des faibles activités volumiques en ^{220}Rn . Il est cependant possible de l'utiliser directement sur des sources de ^{228}Th (ou tout autre isotope) produisant du ^{220}Rn (ou du ^{222}Rn) et ainsi de qualifier leur taux d'émanation suivant différents taux d'humidité, débits, pressions ou températures.

La mesure du mélange des deux gaz est possible avec ce dispositif à l'aide du pic du ^{214}Po pour le ^{222}Rn et du pic du ^{212}Po pour le ^{220}Rn ; les calculs d'activité volumique ne sont cependant pas présentés dans ce document. Nous avons aussi montré qu'il est préférable de ne pas exposer un des dispositifs conçus à une atmosphère en ^{222}Rn afin d'éviter la contamination en ^{210}Po .

Enfin cette étude nous a aussi permis de développer un autre dispositif utilisant un plus petit détecteur qui n'est pas présenté dans ce document. Ce dispositif permet d'acquérir des spectres avec une très bonne résolution et de mesurer de façon efficace le mélange des deux gaz, mais ne permet pas un aussi bon raccordement à cause de la faiblesse du rendement de détection du gaz. Il peut donc être adapté à la conception d'un dispositif commercial qui sera étalonné avec le

dispositif de référence et permettra la mesure du radon et du thoron dans les habitations ou les mines sachant que ses résultats seront eux aussi peu dépendants des conditions environnementales. Il pourra être aussi utilisé dans le banc BACCARA comme appareil de référence secondaire lors d'expériences utilisant un mélange des deux gaz.

Annexe A : Synthèse des données nucléaires du ^{222}Rn et ^{220}Rn

Radon, ^{222}Rn					
Nom	Période $T_{1/2}$	Principales émissions	Énergie émise (keV)	Intensité (%)	Dernière révision
^{226}Ra	1 600 (7) a	$\alpha_{0,0}$ $\alpha_{0,1}$	4 784,34 (25) 4 601 (1)	94,038 (40) 5,95 (4)	01/06/2007
^{222}Rn	3,823 2 (8) j	$\alpha_{0,0}$ $\alpha_{0,1}$ γ	5 590,3 (3) 5 080 (2) 510 (2)	99,92 (1) 0,078 0,076	07/12/2010
^{218}Po	3,071 (22) min	$\alpha_{0,0}$	6 002,35 (9)	99,976 9 (32)	07/12/2010
^{214}Pb	26,916 (44) min	$\beta_{0,0}^-$	1 019 (11)	9,2 (7)	15/12/2010
		$\beta_{0,4}^-$	724 (11)	41,09 (39)	
		$\beta_{0,3}^-$	667 (11)	46,52 (37)	
		$\beta_{0,7}^-$	485 (11)	1,047 (17)	
		$\beta_{0,9}^-$	180 (11)	2,762 (22)	
		$\gamma_{5,0}$	351,932 (2)	35,60 (7)	
		$\gamma_{4,0}$	295,224 (2)	18,414 (36)	
		$\gamma_{4,1}$	241,997 (3)	7,268 (22)	
^{214}Bi	19,8 (1) min	$\beta_{0,28}^-$	822 (11)	2,76 (6)	15/12/2010
		$\beta_{0,21}^-$	1 066 (11)	5,642 (43)	
		$\beta_{0,18}^-$	1 151 (11)	4,339 (18)	
		$\beta_{0,16}^-$	1 253 (11)	2,449 (10)	
		$\beta_{0,12}^-$	1 423 (11)	8,147 (28)	
		$\beta_{0,11}^-$	1 506 (11)	17,494 (36)	
		$\beta_{0,6}^-$	1 727 (11)	3,12 (4)	
		$\beta_{0,4}^-$	1 892 (11)	7,45 (5)	
		$\beta_{0,0}^-$	3 270 (11)	19,67 (20)	
		$\gamma_{1,0}$	609,312 (7)	45,49 (19)	
		$\gamma_{4,1}$	768,356 (10)	4,892 (16)	
		$\gamma_{6,1}$	934,061 (12)	3,10 (1)	
		$\gamma_{9,1}$	1 120,287 (10)	14,91 (3)	
		$\gamma_{12,1}$	1 238,111 (12)	5,831 (14)	
$\gamma_{4,0}$	1 377,669 (12)	3,968 (11)			
$\gamma_{11,0}$	1 764,494 (14)	15,31 (5)			
$\gamma_{21,0}$	2 260,3 (2)	4,913 (23)			
^{214}Po	162,3 (12) μs	$\alpha_{0,0}$	7 833,46 (6)	99,989 5 (7)	15/02/2011
^{210}Pb	22,23 (12) a	$\beta_{0,1}^-$	17,0 (5)	80,2 (13)	06/01/2012
		$\beta_{0,0}^-$	63,5 (5)	19,8 (13)	
^{210}Bi	5,012 (5) j	$\beta_{0,0}^-$	1 162,1 (8)	99,999 86 (2)	21/02/2008
^{210}Po	138,376 3 (17) j	$\alpha_{0,0}$	5 304,33 (7)	99,998 76 (4)	19/11/2008

Thoron ^{220}Rn					
Nom	Période $T_{1/2}$	Principales émissions	Énergie émise (keV)	Intensité (%)	Dernière révision
^{228}Th	1,9126 (9) a	$\alpha_{0,0}$	5 423,24 (22)	73,4 (5)	15/01/2013
		$\alpha_{0,1}$	5 340,35 (22)	26,0 (5)	
^{224}Ra	3,631 (2) j	$\alpha_{0,0}$	5 685,48 (15)	94,73 (5)	16/02/2011
		$\alpha_{0,1}$	5 448,80 (15)	5,25 (5)	
^{220}Rn	55,8 (3) s	$\alpha_{0,0}$	6 288,22 (10)	99,882 (15)	04/02/2011
		$\alpha_{0,1}$	5 748,46 (10)	0,118 (15)	
^{216}Po	148 (4) ms	$\alpha_{0,0}$	6 778,4 (5)	99,998 1 (3)	04/02/2011
^{212}Pb	10,64 (1) h	$\beta_{0,0}^-$	569,9 (19)	13,3 (11)	01/03/2011
		$\beta_{0,2}^-$	331,3 (19)	81,7 (11)	
		$\beta_{0,3}^-$	154,6 (19)	4,99 (21)	
		$\gamma_{1,0}$	115,183 (5)	0,624 (23)	
		$\gamma_{2,0}$	238,632 (2)	43,6 (5)	
		$\gamma_{3,1}$	300,272 (11)	3,18 (14)	
^{212}Bi	60,54 (6) min	$\alpha_{0,0}$ (^{208}Tl)	6 090,14 (3)	9,7 (1)	28/02/2011
		$\alpha_{0,1}$ (^{208}Tl)	6 051,04 (3)	25,1 (1)	
		$\alpha_{0,2}$ (^{208}Tl)	5 768,29 (6)	0,61 (3)	
		$\alpha_{0,3}$ (^{208}Tl)	5 625,7 (4)	0,060 (3)	
		$\alpha_{0,4}$ (^{208}Tl)	5 606,60 (5)	0,43 (3)	
		$\beta_{0,0}^-$ (^{212}Po)	2 252,1 (17)	55,31 (9)	
		$\beta_{0,1}^-$ (^{212}Po)	1 524,8 (17)	4,50 (6)	
		$\beta_{0,2}^-$ (^{212}Po)	739,4 (17)	1,44 (1)	
		$\beta_{0,3}^-$ (^{212}Po)	631,4 (17)	1,90 (3)	
		$\gamma_{1,0}$ (^{212}Po)	727,330 (9)	6,65 (4)	
$\gamma_{2,1}$ (^{212}Po)	785,37 (9)	1,11 (1)			
$\gamma_{3,0}$ (^{212}Po)	1 620,738 (10)	1,51 (3)			
^{212}Po	300 (2) ns	$\alpha_{0,0}$	8 785,17 (11)	100	15/02/2011
		$\beta_{0,2}^-$	1 801,3 (17)	49,2 (6)	
		$\beta_{0,3}^-$	1 823,9 (17)	22,1 (5)	
		$\beta_{0,4}^-$	1 290,5 (17)	24,1 (2)	
		$\beta_{0,5}^-$	1 079,0 (17)	0,63 (4)	
		$\beta_{0,7}^-$	1 037,8 (17)	3,17 (4)	
^{208}Tl	3,058 (6) min	$\gamma_{1,0}$	2 614,511 (10)	99,755 (4)	28/06/2011
		$\gamma_{3,1}$	860,53 (2)	12,4 (1)	
		$\gamma_{7,2}$	763,45 (2)	1,80 (2)	
		$\gamma_{2,1}$	583,187 (2)	85,0 (3)	
		$\gamma_{4,2}$	510,74 (2)	22,5 (2)	
		$\gamma_{3,2}$	277,37 (2)	6,6 (3)	

NOTE : L'ensemble des données provient de la Table des Radionucléides du LNE-LNHB (Bé, et al., 2013). Les énergies d'émission bêta correspondent à l'énergie maximale. 1 a = 365,242 198 78 j ou 31 556 925,26 s.

Annexe B : Jeu de données MCNPX du dispositif de mesure

```
C =====!  
C           Jeu de données MCNPX pour la chambre thoron.  
C           Volume à symétrie cylindrique.  
C =====!  
C  
C COMMENTAIRES :  
C  
C Détecteur PIPS PD-1200-25-300AM.  
C  
C DONNEES PHYSIQUES  
C  
C Energie et probabilité d'émission des alphas de la chaîne du radon :  
C - Rn222=5.48948 (30) MeV à 0.9992 (1)  
C - Po218=6.00235 (9) MeV à 0.999769 (32)  
C - Po214=7.68682 (6) MeV à 0.999895 (7)  
C  
C Energie et probabilité d'émission des alphas de la chaîne du thoron :  
C - Rn220=6.28822 (10) MeV à 0.99882 (15)  
C - Po216=6.7784 (5) MeV à 0.999981 (3)  
C - Bi212=5.60660 (5) MeV à 0.0043 (3)  
C - Bi212=5.76829 (6) MeV à 0.0061 (3)  
C - Bi212=6.09014 (3) MeV à 0.097 (1)  
C - Bi212=6.16740 (3) MeV à 0.251 (1)  
C - Po212=8.95412 (11) MeV à 1  
C  
C -----!  
C Cellules  
C -----!  
C  
1 1 -2.3212 (103 -104 -201) imp:a=1 $ Volume silicium.  
2 1 -2.3212 (102 -103 -201) imp:a=1 $ Volume de la fenêtre équivalent  
silice.  
3 3 -1.293e-3 (101 -102 -201) imp:a=1 $ Volume air.  
4 2 -8.96 (201 -202 100 -105):(-201 104 -105):(-201 -101 100) imp:a=1 $  
Structure du volume de mesure.  
5 0 105:-100:202 imp:a=0 $ Reste de l'espace.  
C -----!  
C Surfaces  
C -----!  
C  
C Plan pour la géométrie  
C  
100 PZ -0.50 $ Bas de la couche externe du volume.  
101 PZ 0. $ Bas du volume de détection.  
102 PZ 0.9575 $ 9.478(18) + 0.097 (3) cm, surface du détecteur.  
103 PZ 0.95755 $ 50 nm d'épaisseur de fenêtre.  
104 PZ 0.9875 $ 300 µm épaisseur du détecteur zone déplétion.  
105 PZ 1.5 $ Couche externe du volume.
```

```

201 CZ 1.948 $ Diamètre interne du volume 3.896 (5) cm.
202 CZ 2.5 $ Diamètre externe du volume.

C -----!
C Matériaux
C -----!
C
M1 14029 -1 $ Silicium PIPS.
M2 29063 -1 $ Cuivre de l'électrode.
M3 6000 -0.00014 7000 -0.75519 8000 -0.23179 18000 -0.01288 $ Air.
C
C -----!
C Source choisir un des SDEF en fonction du besoin :
C -----!
C
MODE a $
C
C -----!
C Source volumique :
C -----!
C
C Source volumique gaz en dessous détecteur :
C
SDEF:a CEL=3 PAR=34 ERG=D1 POS=0 0 0 AXS=0 0 1 RAD=D2 EXT=D3 $
SI1 L 6.28822 $ Énergie d'émission (MeV).
SP1 D 1 $ Probabilité d'émission normalisé à 1.
SI2 0 1.948 $ Variation de D2.
SI3 0.9575 $ Valeur de D3.
C
C -----!
C Source surfaciques :
C -----!
C
C Dépôt des descendants sur la surface cylindrique du volume :
C
C SDEF:a CEL=3 ERG=D1 POS=0 0 0 AXS=0 0 1 RAD=D2 EXT=D3 PAR=34 $
C SI1 L 6.7784 5.60660 5.76829 6.09014 6.16740 8.95412 $
C SP1 D 0.999981 0.0043 0.0061 0.097 0.251 0.639 $
C SI2 1.9479 1.94799 $
C SI3 0.9575 $
C
C Dépôt des descendants sur la surface du bas du volume :
C
C SDEF:a SUR=101 POS=0. 0. 0.000001 RAD=D2 PAR=34 ERG=D1 $
C SI1 L 6.7784 5.60660 5.76829 6.09014 6.16740 8.95412 $
C SP1 D 0.999981 0.043 0.061 0.097 0.251 0.639 $
C SI2 0 1.94799 $
C
C Dépôt des descendants sur la surface du détecteur uniquement :
C
C SDEF:a SUR=102 POS=0. 0. 0.95749 RAD=D2 PAR=34 ERG=D1 $
C SDEF:a CEL=3 POS=0. 0. 0.95749 RAD=D2 PAR=34 ERG=D1 AXS=0 0 -1 EXT=D3 $
C SI1 L 6.00235 7.68682 $
C SP1 D 0.999769 0.999895 $
C SI2 0 1.948 $
C SI3 0.000001 $

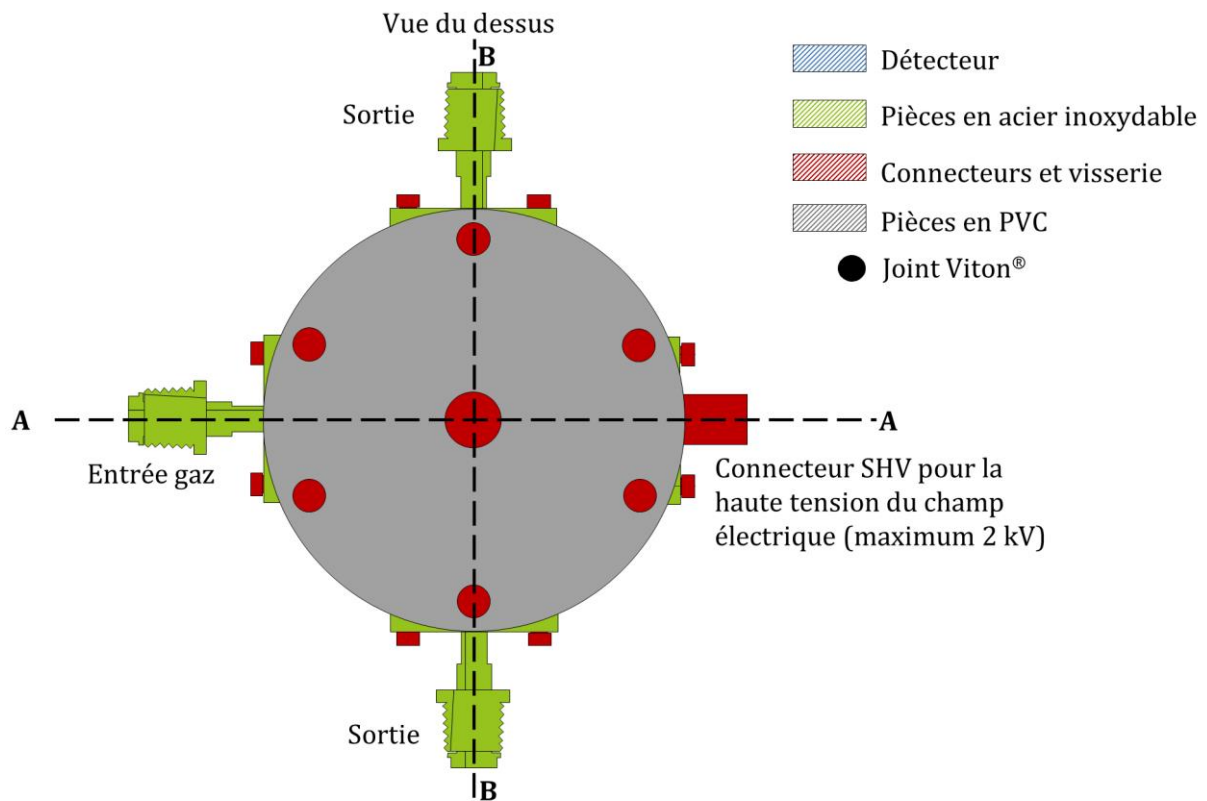
```

```

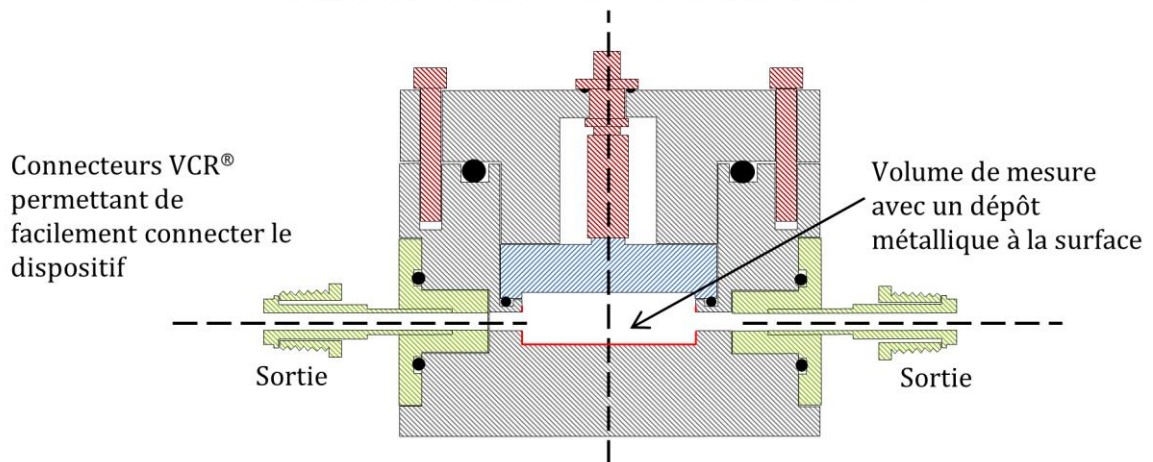
C
C -----!
c Tally et échantillon énergie
C -----!
C
F8:a 1 $ Distribution en énergie dans la cellule du détecteur, 1.
c E8:a 0. 10. $ Pas de découpage en énergie.
E8:a 0. 16384I 9.92256 $ découpage en énergie.
C
C -----!
c Physique (j pour paramètre par défaut, 3j = j j j)
C -----!
C
PHYS:a 9 3j 0 $ Emax = 9 MeV, 0 pour utiliser le modèle Vavilov.
C
CUT:a j 0.1 0. $ Seuil bas en énergie ici 0.1 MeV.
C
LCA 2j 2 0323 6j $ Modèle ISABEL.
C LCA 7j -2 $ Forcer la collision des particules.
LEA 4j 0 2j 0 $ Suppression de la fission.
C
C -----!
c Fonction d'affichage et conditions d'arrêt
C -----!
C
c PTRAC 10000 $ Trajectoire des 10000 première particules.
C
PRINT 10 30 62 85 87 110 126 161 162 170 $
c 10 Coefficient et distribution de la source.
c 30 Description du tally.
c 62 Collisions forcées et transformée exponentielle.
c 85 Stopping powers et straggling des particules charges avec flux pour
les distributions biaisées.
c 87 Secondary heavy-ion stopping powers and straggling.
c 110 Représentation des 50 premiers évènements.
c 126 Activité des particules dans chacune des cellules.
c 150 Diagnostique DXTRAN.
c 161 f(x) tracé de la densité du tally.
c 162 f(x) tracé de la densité du tally en cumulé.
c 170 Distribution de la source.
C
NPS 20000000 $
PRDMP 1000000 $

```

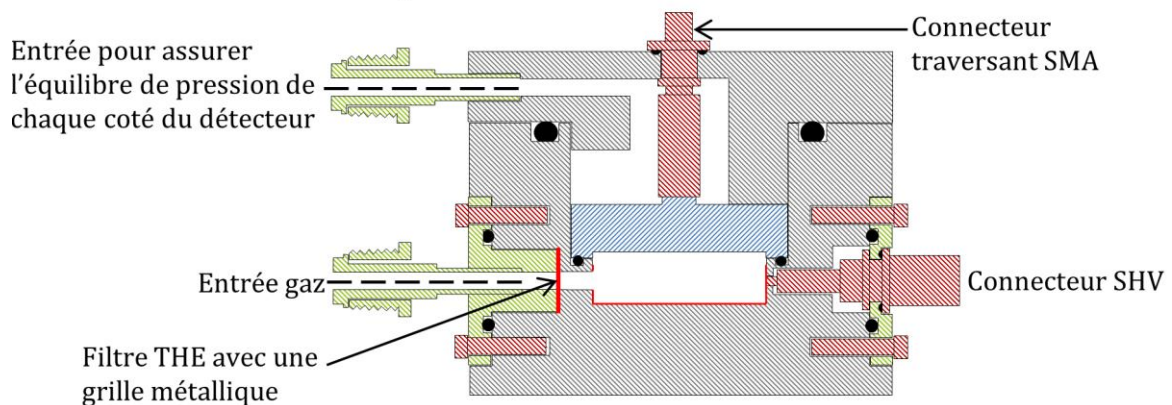
Annexe C : Plan du dispositif de mesure



Coupe en B avec détecteur PIPS PD-1200-25-300 AM



Coupe en A avec détecteur PIPS PD-1200-25-300 AM



Bibliographie

- Abou-Khalil, R. (2008). *Caractéristique de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel*. Thèse de doctorat, IRSN-2008-108.
- Abou-Khalil, R., Michielsen, N., Della-Negra, S., Nourreddine, A. & Baussan, E. (2009). *Electric charge spectrum of recoiling Po-218*. Radiation Measurement 44, 1055-1057.
- Agostinelli, S., Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Araujo, H., Arce, P., Asai, M., Axen, D., Banerjee, S., Barrand, G., Behner, F., Bellagamba, L., Boudreau, J., Broglia, L., Brunengo, A., Burkhardt, H., Chauvie, S., Chuma, J., Chytracsek, R., Cooperman, G., Cosmo, G., Degtyarenko, P., Dell'Acqua, A., Depaola, G., Dietrich, D., Enami, E., Feliciello, A., Ferguson, C., Fesefeldt, H., Folger, G., Foppiano, F., Forti, A., Garelli, S., Giani, S., Giannitrapani, R., Gibin, D., Cadenas, J.J.G., Gonzalez, I., Abril, G.G., Greeniaus, G., Greiner, W., Grichine, V., Grossheim, A., Guatelli, S., Gumplinger, P., Hamatsu, R., Hashimoto, K., Hasui, H., Heikkinen, A., Howard, A., Ivanchenko, V., Johnson, A., Jones, F.W., Kallenbach, J., Kanaya, N., Kawabata, M., Kawabata, Y., Kawaguti, M., Kelner, S., Kent, P., Kimura, A., Kodama, T., Kokoulin, R., Kossov, M., Kurashige, H., Lamanna, E., Lampén, T., Lara, V., Lefebure, V., Lei, F., Liendl, M., Lockman, W., Longo, F., Magni, S., Maire, M., Medernach, E., Minamimoto, K., Mora de Freitas, P., Morita, Y., Murakami, K., Nagamatu, M., Nartallo, R., Nieminen, P., Nishimura, T., Ohtsubo, K., Okamura, M., O'Neale, S., Oohata, Y., Paech, K., Perl, J., Pfeiffer, A., Pia, M.G., Ranjard, F., Rybin, A., Sadilov, S., Di Salvo, E., Santin, G., Sasaki, T., Savvas, N., Sawada, Y., Scherer, S., Sei, S., Sirotenko, V., Smith, D., Starkov, N., Stoecker, H., Sulkimo, J., Takahata, M., Tanaka, S., Tcherniaev, E., Safai Tehrani, E., Tropeano, M., Truscott, P., Uno, H., Urban, L., Urban, P., Verderi, M., Walkden, A., Wander, W., Weber, H., Wellisch, J.P., Wenaus, T., Williams, D.C., Wright, D., Yamada, T., Yoshida, H. & Zschesche, D. (2003). *GEANT4 - a simulation toolkit*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A 506, 250-303.
- Azari, L., Cooks, T., Schmidt, M., Keisari, Y. & Kelson, I. (2007). *Treatment of solid tumors by interstitial release of recoiling short-lived alpha emitters*. Physics in Medicine and Biology 52, 5025-5042.
- Baciu, A. (2005). *Radon and thoron progeny concentration variability in relation to meteorological conditions at Bucharest (Romania)*. Journal of Environmental Radioactivity 83, 171-189.
- Bateman, H. (1910). *Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radio-active Transformations*. Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, Mathematical and physical Sciences 15, 423-427.
- Bé, M.-M., Chisté, V., Duliéu, C., Mougeot, X., Chechev, V., Kondev, F., Nichols, A.L., Huang, X., Wang, B. (2013). *Table of Radionuclides (Vol.7 - A = 14 to 245)*. Bureau International des Poids et Mesures, ISBN 13 978-92-822-2248-5.
- Bigu, J. (1985). *Effect of Electric Fields on ²²⁰Rn Progeny Concentration*. Health Physics 49, 512-516.
- Bigu, J. (1989). *Electrical charge of thoron progeny*. Radiation Protection Dosimetry 28, 215-217.
- BIPM. (1901). *Comptes rendus des séances de la troisième conférence générale des poids et mesures*. Bureau International des Poids et Mesures.

- Bortels, G. & Collaers, P. (1987). *Analytical function for fitting peaks in alpha-particle spectra from Si detectors*. Applied Radiation and Isotopes 38, 831-837.
- Boyault, J. & Michielsen, N. (2008). *Mesure du radon et du thoron : calcul du rendement de détection par MCNPX*. Rapport IRSN/DSU/SERAC/LPMA/08-14.
- Bragg, W. (1904). *On the absorption of alpha rays and on the classification of alpha rays of radium*. Philosophical Magazine 8, 719-725.
- Bricard, J. (1977). *Physique des aérosols 1ère partie : Propriété générale - théorie cinétique - mécanique - diffusion - coagulation*. Rapport CEA-R-4831 (1).
- Brunelle, A., Della-Negra, S., Depauw, J., Joret, H., & Le Beyec, Y. (1989). *A simple way to study secondary ion emission by heavy multicharged ions at medium energy (115 keV). Application to hydrogen ion emission*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 43, 586-588.
- Busigin, A., Van Der Vooren, A. W., Babcock, J. C. & Phillips, C. R.. (1980). *The nature of unattached RaA (²¹⁸Po) particles*. Health Physics 40, 333-343.
- Canberra Ind. (2012). *Passivated Implanted Planar Silicon (PIPS®) Detectors*. Canberra Industries C39313-04/12.
- Canberra Ind. (2013). *Standard Electrode Coaxial Ge Detectors (SEGe)*. Canberra C40021-01/13.
- Chapmann, S. & Cowling, T. (1956). *The Mathematical Theory of Non-Uniform Gases*. Cambridge University Press.
- Chisté, V., Bé, M. & Dulieu, C. (2008). *Évaluation de la chaîne du radium 226*. Note Technique LNHB 2008/59.
- COMSOL Inc. (2013). *Introduction to Comsol Multiphysics Version 4.3b*. COMSOL Multiphysics, <https://www.comsol.fr/>.
- COMSOL Inc. (2014a). *Comsol Multiphysics 4.3b release highlights*. COMSOL Multiphysics, <https://www.comsol.fr/>.
- COMSOL Inc. (2014b). *Characterizing the Flow and Choosing the Right Interface*. COMSOL Multiphysics, Modeling Guide Version 4.3b.
- Curtis, M., Heyd, J., Olt, R. & Eichelberger, J. (1955). *Absolute alpha counting*. Nucleus 13(5), 38-41.
- Dakin, T., Luxa, G., Oppermann, G., Vigreux, G., Wind, J. & Winkelkemper, H. (1971). *Breakdown of gases in uniform fields Paschen curves for nitrogen, air and sulfur hexafluoride*. Electra 32, 61-82.
- Dankelmann, V., Reineking, A. & Porstendörfer, J. (2001). *Determination of neutralisation rates of ²¹⁸Po ions in air*. Radiation Protection Dosimetry 49, 353-357.
- Davis, R. (1991). *Formule pour la détermination de la masse volumique de l'air humide*. Procès verbaux du Bureau International des Poids et Mesures, Tome 59, 97-104.
- Dua, S., Kotrappa, P. & Gupta, P. (1983). *Influence of relative humidity on the charged fraction of decay products of radon and thoron*. Health Physics 45, 152-157.

- Dua, S. & Kotrappa, P. (1981). *Comment on the charge on decay products of thoron and radon*. Health Physics Division 42, 242-243.
- Dua, S., Kotrappa, P. & Bhanti, D. (1978). *Electrostatic charge on decay products of thoron*. Health Physics Division 39, 339-345.
- Dua, S., Kotrappa, P. & Gupta, P. (1983). *Influence of relative humidity on the charged fraction of the decay products of radon and thoron*. Health Physics 45, 152-157.
- DURRIDGE Inc. (2015). *RAD7 Radon Detector User Manual*. Revision 7.3.6.
- Eappen, K., Sapra, B. & Mayya, Y. (2007). *A novel methodology for online measurement of thoron using Lucas scintillation cell*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 572, 922-925.
- Ferrari, A., Sala, P., Fasso, A. & Ranft, J. (2005). *Fluka: a multi-particle transport code (Program version 2011)*. CERN-2005-010.
- Frey, G., Hopke, P. & Stukel, J. (1981). *Effect of Traces Gases and Water Vapor on the Diffusion Coefficient of Polonium 218*. Science 211, 480-481.
- Gargioni, E. & Arnold, D. (2005). *Reference fields and calibration techniques for Rn-220 measuring instruments*. International Congress Series 1276, 85-88.
- Gargioni, E., Honig, A. & Röttger, A. (2003). *Development of a calibration facility for measurements of the thoron activity concentration*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 506, 166-172.
- Geryes, T. (2009). *Étude expérimentale et numérique de la dégradation de la mesure nucléaire d'aérosols radioactifs prélevés avec des filtres de surveillance*. Thèse de doctorat, IRSN-2010-123.
- Gunter, K., Asaro, F. & Helmholtz, A. (1966). *Charge and energy distribution of recoils from Th-226 alpha decay*. Physical Review Letter 16, 362-364.
- Hayes, R. & Marianno, C. (2007). *Use of MCNPX for Alpha Spectrometry Simulations of a Continuous Air Monitor*. DOE/NV/25946--106.
- Haynes, W. (2014). *Handbook of Chemistry and Physics 96th Edition*. CRC Press, ISBN-13: 978-1482208672.
- Hendricks, J. & Schwarz, R. (2014). *MCNPC6 Intermediate Workshop*. LA-UR-09-05960.
- Hirst, W., Harrison, D. & Harrison, G. (1939). *The diffusion of radon gas mixtures*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences 169, 573-586.
- Hopke, P. & Chu, K. (1988). *Neutralization kinetics for polonium 218*. Environmental Science Technology 22, 711-717.
- Howard, A. & Strange, W. (1991). *Heavy ion migration through argon and helium in weak electric fields*. Journal of Applied Physics 69.
- Howard, A. & Strange, W. (1994). *Determination of ²¹⁸Po⁺ ionic neutralization rates in gases*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 349, 481-488.

- IAEA. (2002). *Thorium fuel utilization: options and trends. Proceeding of three IAEA meetings held in Vienna in 1997, 1998 and 1999*. ISBN 92-0-114202-1.
- IARC. (1988). *IARC monographs on the evaluation of the carcinogenic risk to humans: man-made mineral fibres and radon*. Volume 43. ISBN-92-832-1243-6.
- Ilić, D., Mostić, D., Dolićanin, E., Stanković, E. & Osmokrović, P. (2011). *Mechanisms of Electrical Breakdown in Low Vacuums*. Journal of Applied Mathematics and Mechanics 3, 85-99.
- IRSN. (2014). *Le radon, la réglementation*. <http://www.irsn.fr/>.
- Ivanov, V. & Kirichenko, V. (1970). *Spontaneous unipolar charging of beta-active "Hot" aerosol particles*. Soviet Physics - Doklady 14, 859-862.
- Ivanov, V., Kirichenko, V. & Petryanov, I. (1969). *Charging of alpha-active aerosols by secondary electron emission*. Soviet Physics -Doklady 13, 902-904.
- JCGM. (2008a). *Évaluation des données de mesure - Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure*. JCGM 100:2008(F).
- JCGM. (2008b). *Evaluation of measurement data - Supplement 1 to the "guide to the expression of uncertainty in measurement" - propagation of distribution using a Monte Carlo method*. JCGM 101:2008.
- JCGM. (2012). *International vocabulary of metrology - Basic and general concepts and associated terms (VIM) 3rd edition*. JCGM 200:2012.
- Joyes, P. (1969). *Étude théorique de l'émission ionique secondaire*. Journal de Physique 30, 365-375.
- Khokhar, M., Kher, R., Rathore, V., Pandey, S. & Ramachandran, T. (2008). *Comparison of indoor radon and thoron concentrations in the urban and rural dwellings of state of India*. Radiation Measurement 43, S405-S409.
- Kim, J., Mulholland, G., Kukuck, S. & Pui, D. (2005a). *Slip correction measurements of certified PSL nanoparticles using a nanometer differential mobility analyzer (Nano-DMA) for Knudsen number from 0,5 to 83*. Journal of Research of the National Institute of Standards and Technology 110, 31-54.
- Kim, Y. J., Lee, H. Y., Kim, C. S., Chang, B. U., Rho, B. H., Kim, C. K. & Tokonami, S. (2005b). *Indoor radon, thoron and thoron daughter concentrations in Korea*. International Congress Series 1276, 46-49.
- Kotrappa, P., Dua, S., Gupta, P. & Mayya, Y. (1980). *Electret - A new tool for measuring concentrations of radon and thoron in air*. Health Physics 41, 35-46.
- Lafarge, T. & Possolo, A. (2015). *NIST Uncertainty Machine - User's Manual*. NIST, <http://uncertainty.nist.gov/>.
- Lagoutine, F. (1978). *Problème de décroissance radioactive*. CEA-ORIS-DAMRI, ISSN 0150-231.
- Lépy, M-C. (2004). *Presentation of Colegram software*. Note Technique LNHB 2004/26.
- LNHB. (2015). *Laraweb, gamma and alpha spectrometry on-line library*. <http://laraweb.free.fr/>.

- Madelaine, G. (1966). *Comportement des descendants du radon et du thoron en atmosphère dépoussiérée*. Tellus 18, 593-596.
- Maiello, M., & Harley, N. (1988). *Determining the charged fractions of ^{218}Po and ^{214}Pb using an environmental gamma-ray and Rn detector*. Health Physics 57, 51-59.
- Malet, J. (1997). *Transport et dépôts des aérosols nanométriques, application à la fraction libre des descendants à vie courte du radon*. Thèse de doctorat, CEA-R-5776.
- McKinney, G., Durkee, J., Hendricks, J., James, M., Pelowitz, D., Waters, L. & Gallmeier, F. (2006). *MCNPX overview*. LA-UR-06-6206.
- Meslin, P. (2008). *Le radon, traceur géophysique de l'environnement martien : étude de son transport, première mise en évidence et développement d'une instrumentation pour sa mesure*. Thèse de doctorat, IRSN-2008-107.
- Michielsen, N. & Bondiguel, S. (2015). *The influence of thoron on instruments measuring radon activity concentration*. Radiation Protection Dosimetry, doi:10.1093/rpd/ncv264.
- Michielsen, N. & Mitifiot, F. (2010). *Contribution à l'étalonnage des instruments de mesures du thoron. Exploration d'une méthode par mesure gamma*. Rapport IRSN DSU/SERAC/LPMA/10-16.
- Michielsen, N. & Voisin, V. (1999). *Calibration of instruments measuring radon over a large activity range*. Radon in the Living Environment, 19-23 April 1999, Athens, Greece.
- Michielsen, N. & Voisin, V. (2003). *BACCARA et l'étalonnage des instruments mesurant l'activité volumique de ^{222}Rn dans l'air*. 19^{ème} Congrès Français sur des Aérosols (CFA).
- National Instruments. (2014). *Logiciel de conception de système : LabVIEW 2014*. <http://www.ni.com/labview/f/>.
- Nourreddine, A., Nachab, A., Husson, D., & Higuere, S. (2005). *MCNPX simulation for alpha particle detection by CMOS active pixel sensor*. Radiation Measurements 40, 275-278.
- Pelowitz, D. B. (2005). *MCNPX User's Manual Version 2.5.0*. LA-CP-05-0369.
- Pelowitz, D. B. (2011). *MCNPX User's Manual Version 2.7.0*. LA-CP-11-00438.
- Perrin, N. & Wieclawik, W. (1966). *Étude de la charge des atomes de recul du dépôt actif du thorium par une méthode de temps de vol*. Compte-Rendu de l'Académie des Sciences de Paris Série B 262, 511-514.
- Piccolo, J.-L. (1995). *Étude et réalisation d'un dispositif cryogénique permettant d'effectuer des mesures absolues d'activité de radon 222 en vue de l'élaboration d'un étalon primaire*. Rapport CEA-R-5696.
- Piccolo, J.-L. (1996). *Absolute measurement of radon 222 activity*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A 369, 452-457.
- Piccolo, J.-L., Pressyanov, D., Blanchis, P., Michielsen, N., Grassin, D., Voisin, V., Turek, K., (2000). *A radon 222 metrological chain. From primary standard to field detectors*. Applied Radiation and Isotopes 52, 427-434.

- Pleasanton, F. & Snell, A. (1957). *Ionization Following Internal Conversion in Xenon*. Proceedings of the Royal Society of London A 241, 141-152.
- Pommé, S. & Caro Marroyo, B. (2015). *Improved peak shape fitting in alpha spectra*. Applied Radiation and Isotopes 96, 148-153.
- Porstendörfer, J. & Mercer, T. (1979). *Influence of Electric Charge and Humidity upon of the Diffusion Coefficient of Radon Decay Products*. Health Physics 37, 191-199.
- Porstendörfer, J., Pagelkopf, P. & Gründel, M. (2005). *Fraction of the positive ^{218}Po and ^{214}Pb clusters in indoor air*. Radiation Protection Dosimetry 114, 342-351.
- Pradel, J. & Billard, F. (1959). *Le thoron et les risques associés dans la manipulation des composés du thorium*. Rapport CEA N°1165.
- Prinz, H. (1969). *Hochspannungsfelder*. R. Oldenbourg München, 169-209.
- Pugliese, M., Baiano, G., Boiano, A., D'Onofrio, A., Roca, V., Sabbarese, C. & Vollaro, P. (2000). *A compact multiparameter acquisition system for radon concentration studies*. Applied Radiation and Isotopes 53, 365-370.
- Pylon Electronics. (2008). *Lucas type cells, model 110A, 300A and 200A*. Pylon Electronics Inc., Detection Units, Datasheet 126 Rev 2.
- Pylon Electronics. (2015). *RN-1025/TH-1025/RNC Radioactive Source*. Pylon Electronics Inc., www.pylonelectronics.com.
- R Core Team. (2014). *R: A language and Environment for Statistical Computing*. R Fondation for Statistical Computing, <http://www.R-project.org/>.
- Raabe, O. (1968). *Measurements of the Diffusion Coefficient of Radium A.* Nature London 217, 1143-1145.
- Ramamurthi, M. (1989). *The detection and measurement of active size distributions ($dp > 0,5 \text{ nm}$) associated with radon decay products in indoor air*. Thesis, University of Illinois.
- Renoux, A. (1965). *Étude des ions radioactifs de l'atmosphère*. Thèse de doctorat, Rapport CEA R-2771.
- Renoux, A. & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols : physique et métrologie*. Lavoisier, ISBN : 2-7430-0231-X.
- Riou, M. (1955). *Étude expérimentale de l'ionisation interne en émission alpha*. Journal de Physique et le Radium 16, 583-588.
- ROCH France. (1995). *Colonne de Mesure ROCH, Colonne-pupitre standard 80610 Teach-IN(TI)*. Notice d'emploi V 3.12/9202-A.
- Röttger, A., Honig, A. & Linzmaier, D. (2014). *Calibration of commercial radon and thoron monitors at stable activity concentrations*. Applied Radiation and Isotopes 87, 44-47.
- Röttger, A., Honig, A., Dersch, R., Ott, O. & Dirk, A. (2010). *A primary standard for activity concentration of ^{220}Rn (thoron) in air*. Applied Radiation and Isotopes 68.

- Sabot, B. (2012). *Développement d'un étalon primaire de radon 222*. Note Technique LNHB 2012/28.
- Sabot, B. (2014a). *Développement du prototype de mesure du thoron*. Note Technique LNHB 2014/07.
- Sabot, B. (2014b). *L'étalon primaire de radon 222*. Note Technique LNHB 2014/37.
- Sabot, B., Pierre, S., Cassette, P., Michielsen, N., Bondiguel, S. (2015a). *Development of a primary thoron activity standard for the calibration of thoron measurement instruments*. Radiation Protection Dosimetry 167, 70-74.
- Sabot, B., Pierre, S., Michielsen, N., Bondiguel, S., Cassette, P. (2015b). *A new thoron atmosphere reference measurement system*. Applied Radiation and Isotopes, In Press.
- Schwarz, R., Schwarz, A., Carter, L., Hendricks, J. & Manke, R. (2015). *Visual Editor Consultants Vised22X*. <http://www.mcnpvised.com/>.
- Stella, S., Bortolussi, S., Bruschi, P., Portella, C. & Altieri, S. (2009). *Measurement of alpha energy loss in biological tissue below 2 MeV*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 267, 2938-2943.
- Szucs, S. & Delfosse, J. (1965). *Charge Spectrum of Recoiling ^{216}Po in the alpha decay of ^{220}Rn* . Physics Review Letters 15, 163-165.
- Tammet, H. (1995). *Size and mobility of nanometer particles, clusters and ions*. Journal Aerosol Science 26, 459-475.
- Tokonami, S., Yang, M., Yonehara, H. & Yamada, Y. (2002). *Simple discriminative measurement technique for radon and thoron concentrations with a single scintillation cell*. Review of Scientific Instruments 73, 69-72.
- Vavilov, P. (1957). *Ionization losses of high-energy heavy particles*. Soviet Physics JETP 5, 749-751.
- Wellisch, E. (1913). *The distribution of the active deposit of radium in an electric field*. Philosophical Magazine 26, 623-635.
- WHO. (2009). *WHO Handbook on indoor radon, a public health perspective*. ISBN 978 92 4 154767 3.
- Wieclawik, W. & Perrin, N. (1969). *Charge des atomes de recul après émission alpha*. Le Journal de Physique 30, 877-891.
- Yeh, H., Newton, G., Raabe, O., & Boor, D. (1978). *Charge distribution on plutonium containing aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory*. Health Physics 35, 500-503.
- Yonehara, H., Tokonami, S., Zhuo, W., Ishikawa, T., Fukutsu, K. & Yamada, Y. (2005). *Thoron in the living environments of Japan*. International Congress Series 1276, 58-61.

Titre : Étalonnage des instruments de mesure de l'activité volumique du thoron (^{220}Rn) dans l'air.

Mots clés : Radon, thoron, métrologie, Monte-Carlo, étalon primaire.

Résumé : L'objectif de cette thèse est de développer un système étalon de thoron afin de raccorder les instruments de mesure de l'activité volumique du thoron (^{220}Rn) dans l'air.

Le dispositif de mesure conçu est un volume composé d'un détecteur semi-conducteur silicium couplé à un champ électrique permettant la capture des descendants solides chargés du thoron à la surface du détecteur. Des simulations avec un code déterministe ont permis d'optimiser la forme et les dimensions du dispositif pour obtenir un champ électrique efficace pour la capture de ces descendants malgré un débit de circulation rapide à l'intérieur du volume de mesure. Des calculs Monte-Carlo ont aussi permis de définir le rendement de détection du dispositif, ainsi que la forme du spectre alpha.

Les rendements de détection calculés pour la mesure du ^{222}Rn et ^{220}Rn ont été validés expérimentalement avec une atmosphère étalon de radon (^{222}Rn) produite à l'aide d'un banc de dilution spécifiquement conçu. Une étude de sensibilité a montré que la réponse du dispositif est indépendante de la pression, de l'humidité et du débit de prélèvement dans la gamme de mesure considérée.

L'analyse des spectres alpha obtenus a permis de qualifier précisément l'activité volumique d'une atmosphère en thoron avec une incertitude-type associée de 1 %. Le dispositif, portable, a été transporté au laboratoire de métrologie de l'activité italien pour réaliser des comparaisons avec leur dispositif en développement. Les résultats sont compatibles en tenant compte des incertitudes associées.

Title : Calibration of thoron (^{220}Rn) activity concentration monitors.

Keywords : Radon, thoron, metrology, Monte-Carlo, primary standard.

Abstract: The goal of this PhD is to develop an activity standard for use in calibrating monitors used to measure the thoron (^{220}Rn) concentration in air. The device, which has been designed to be the standard, is a volume with a silicon semi-conductor detector and an electric field which allows the charged decay products of thoron to be trapped on the detector surface.

A finite element method has been used for the electric field simulations. This electric field is high enough to catch the decay products of thoron at the detector surface even with the high flow rate inside the volume. Monte-Carlo calculations were used to define the detection efficiency of the system and to optimize the geometry shape and size. The calculated detection efficiencies have been compared with the results obtained for a reference radon

(^{222}Rn) atmosphere produced with a new gas dilution setup. These experiments allowed the sensitivity of the system to be evaluated, as a function of the air properties. It has been demonstrated that the measurement system is independent of the pressure, the relative humidity and the flow rate for a large range of values. Through the analysis of measured alpha spectra the experimental gas detection efficiency was found to be consistent with the Monte-Carlo simulations.

This portable system can now be used to evaluate precisely the thoron activity concentration with a well-defined associated uncertainty. Comparison measurements have been performed at the Italian metrological institute. Both systems are consistent within their uncertainties.