



HAL
open science

Étude de la limite de détection et des fausses alarmes émises par les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique dans les chantiers de démantèlement

Gwenaël Hoarau

► **To cite this version:**

Gwenaël Hoarau. Étude de la limite de détection et des fausses alarmes émises par les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique dans les chantiers de démantèlement. Analyse de données, Statistiques et Probabilités [physics.data-an]. Université Paris-Saclay, 2020. Français. NNT : 2020UPASP055 . tel-03033575

HAL Id: tel-03033575

<https://theses.hal.science/tel-03033575>

Submitted on 1 Dec 2020

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.

Étude de la limite de détection et des
fausses alarmes émises par les moniteurs
de mesure de la contamination radioactive
atmosphérique dans les chantiers de
démantèlement

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 576, particules hadrons énergie et noyau :
instrumentation, image, cosmos et simulation (Pheniics)
Spécialité de doctorat : aval du cycle nucléaire, radioprotection et radiochimie
Unité de recherche : Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), PSN-
RES/SCA/LPMA, Gif-sur-Yvette, 91192, France
Référent : Faculté des sciences d'Orsay

**Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 9
novembre 2020, par**

Gwenaël HOARAU

Composition du Jury

Bruno ESPAGNON , Professeur, Université Paris-Saclay	Président
Evelyne GEHIN , Professeure, Université Paris Est Créteil	Rapporteuse & examinatrice
Pascal FICHET , Docteur, CEA Saclay - Sorbonne Université	Rapporteur & examinateur
Marie-Pierre VERAN VIGUIE , Docteur, IRSN	Examinatrice
Laurence LE COQ , Professeure, École des Mines de Nantes	Examinatrice
Abdel-Mjid NOURREDDINE , Professeur, Université de Strasbourg	Examinateur
Fabrice PETITOT , Docteur, CEA Marcoule	Examinateur
Philippe CASSETTE , Docteur, CEA - Université Paris-Saclay	Directeur de thèse
Grégoire DOUGNIAUX , Docteur, IRSN	Invité
Gilles RANCHOUX , Docteur, EDF	Invité

Remerciements

Pour figer cette période dans le papier (à défaut du marbre), je vais maintenant m'affairer à un exercice très difficile, l'écriture des remerciements en oubliant personne (j'espère...).

Ces trois dernières années (et demi, puisque j'ai aussi réalisé mon stage de fin d'étude), je les ai passées dans le Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA), lequel fait partie du Service du Confinement et de l'Aérodispersion des polluants (SCA). Dans ce service, j'ai évolué dans un environnement de travail vraiment exceptionnel. Une ambiance bienveillante sincère de la part de l'ensemble des collègues et un cadre scientifique défiant tous laboratoires. Cette ambiance unique amicale dans ce service ne peut être possible, selon moi, sans l'intervention du chef de service **Laurent BOUILLOUX**. Ainsi, je te remercie Laurent d'avoir permis une telle cohésion dans ce service où je me suis toujours senti très bien.

Pour le cadre scientifique, je voudrais remercier **François GENSDARMES**, chef du LPMA, de m'avoir accueilli dans son laboratoire d'une part et de m'avoir permis d'utiliser de manière approfondie de nombreux instruments/techniques de mesures, d'autre part. Grâce à cela, j'ai pu non seulement acquérir des compétences en métrologie des aérosols mais encore mieux avoir un regard critique et scientifique sur les mesures de ces divers instruments. Alors, un grand merci pour tout ça François mais également pour les nombreux conseils que tu as pu me donner durant ma thèse et qui m'ont fait progresser.

Ce paragraphe est dédié à mon encadrant **Grégoire DOUGNIAUX**, ingénieur-chercheur au LPMA. Je te remercie Grégoire pour la confiance totale que tu m'as accordée durant ces trois années, mais également et surtout pour ta disponibilité qui défie toute concurrence. Merci aussi de m'avoir donné moult conseils pour l'analyse des résultats et même pour m'avoir aidé à en faire quelque. J'ai appris moult façon de valoriser les données grâce à toi, ainsi je te remercie encore Grégoire (ou doudoune que je n'ai jamais utilisé pour te nicknamer). Je suis content d'avoir été ton premier, il faut bien un commencer quelque part.

Un grand merci à **Philippe Casette**, mon directeur de thèse, qui m'a encadré durant ces trois années et qui a su me transmettre des informations très pertinentes avec une manière d'expliquer exceptionnelle. Je vous remercie Philippe.

Cette thèse fut le fruit d'une collaboration entre le groupe Électricité De France (EDF) et l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). En conséquence, je tiens aussi à remercier sincèrement EDF, notamment les collaborateurs qui m'ont accompagné, permis d'aller sur un site en démantèlement durant la thèse et avec qui les échanges étaient faciles et enrichissants. Pour ne plus faire durer le suspense, un très grand merci à **Gilles RANCHOUX**, chargé de mission Radioprotection, à **Clément BOCQUIER**, chargé d'affaires et à **Jérôme LAURENT**, coordinateur de site.

Dans cette période plus que mémorable grâce à (ou « à cause de » en fonction du sens qu'on souhaite donner à la phrase) une bestiole à picots, je voudrais remercier les membres du jury qui ont accepté de rapporter et d'examiner mes travaux. Un grand Merci aux rapporteurs, **Evelyne GEHIN** et **Pascal FICHET**, qui ont consacré une partie importante de leur temps à la lecture approfondie de mon manuscrit. Je remercie également **Marie-Pierre VERAN VIGUIE**, **Laurence LE COQ**, **Fabrice PETITOT** et **Abdel-Mjid NOURREDDINE** d'avoir pris le temps d'examiner ma thèse. Merci à **Bruno ESPAGNON**, professeur à l'Université Paris-Saclay, pour avoir accepté de présider mon jury de thèse.

Cette partie est spécialement dédiée aux personnes mentionnées qui ont fait des moments difficiles de cette thèse, des instants plus joyeux. Je ne peux commencer la loooongue liste des personnes que par toi **Amel**, thésarde (très bientôt chercheuse), co-bureau, tunisienne et maintenant amie. Trois ans dans le même bureau, avec plus d'un certain nombre d'heure par jour, et ça, qu'il pleuve, vente, neige... Trois ans à se dire « bonjour quoi de neuf », « tu as dormi ici ? », « j'en ai marre », à s'aider et à parler des suies mais pas que ..., ça a laissé des traces et je suis très content d'avoir partagé la P14 avec toi. **Mouheb**, je t'ai connu à l'IRSN, il y a deux ans, tu n'étais que post-doc (comme si c'était un sous statut). Puis, tu es parti et tu es revenu en tant qu'ingénieur-chercheur. Depuis, on est compère. Pour ne pas faire trop long, je te remercie sincèrement d'avoir été présent, encourageant et tout simplement toi à mon égard. Tu es vraiment le meilleur mon Ami Moudur Tuniso-français. **Lina**, dit Linaki, je te remercie d'avoir été présente pour me motiver et m'encourager dans les moments de stress avant les présentations orales. Je te souhaite le meilleur Lina. **Hantao**, dit Hantao, je suis content de t'avoir connu et d'avoir passé des moments de thèse avec toi, aux journées des thèses IRSN, AG SCA et au labo. Courage pour la

dernière année de thèse, mais je ne me fais pas de soucis, tu vas gérer ! **Modou**, le grand et sportif thésard, j'ai réellement apprécié nos échanges, sur le travail ou sur autre chose, alors merci d'être souvent venu dans le bureau pour discuter. **Samuel**, le papa thésard, merci de m'avoir montré la voix ahahah. Non, sans rire, tu étais pour moi comme un exemple à suivre, confiant (même dans la difficulté), calme et toujours de bons conseils, alors merci pour ça.

Bien entendu, je n'oublie pas les thésards du SCA des autres bâtiments, **Jonathan**, qui m'a fait peur lors de la prise d'une photo aux JDT IRSN à Annecy, **Delphine**, référente du comité local d'organisation des journées du CFA et avec qui on échange très facilement, **Marie**, ne t'en fait tu vas gérer la présentation orale au CFA et même bien mieux que si c'est Soleiman qui le fait à ta place ! et **Zeinab**, merci à vous pour ces nombreuses discussions et moments partagés. Je n'oublie pas non plus les anciens doctorants qui volent maintenant de leurs propres ailes, **Laura**, la joggeuse de l'extrême, **Alexis**, le culturiste de l'extrême qui perd son satellite...mes condoléances, **Benjamin**, l'interviewer scientifique en visio-conférence.

Place maintenant à la longue liste des permanents exceptionnels : **Bernadette** et **Grégoire**, team EPICEA, merci beaucoup de m'avoir accueilli dans l'équipe, laquelle m'a permis d'atteindre le graal avec l'obtention du diplôme ; **François-Xavier**, dit FXO, toujours de très bons conseils, de plein de références et d'un dynamisme communicatif ; **Audrey** et **Benoit**, team PERSEE, je me souviens des premiers instants dans le labo où vous étiez venus travailler dans une ambiance à laquelle j'ai tout de suite adhéré, merci beaucoup à vous pour ces moments géniaux qui ont durés et qui durent encore ! ; **Emmanuel G.**, j'espère que ta trottinette a pu être réparée depuis le temps et que tu prends les précautions nécessaires pour éviter toutes traces d'eau qui endommagent la bécane ; **Sylvain F.**, merci pour tes conseils, notamment sur les préleveurs d'aérosols, mais aussi sur la course à pieds, ils ont été précieux. Merci aussi de m'avoir prêté ta maison de famille sans laquelle j'aurais dû loger dehors pour effectuer ma formation en Normandie ; **Hortense** et **Stéphane**, team IRMA, qui fonctionne à flux tendu dans la réalisation des prestations, mais toujours dans la joie et la bonne humeur, vous formez une équipe de choc. **Mamadou**, merci pour ces discussions intéressantes, j'ai apprécié avoir ton point de vue sur certains sujets. **Pauline** et **Matheus**, team FIGARO, j'ai apprécié échanger avec vous, notamment sur la manière d'interpréter les résultats de mesure.

Pascal, pas tendre au premier abord (et même au second, ni au troisième) mais tellement compétent qu'on ne peut qu'écouter et prendre pour exemple. Alors, merci Pascal pour toutes tes remarques ; **Soleiman**, le chercheur le plus chercheur en filtration de l'IRSN, merci pour TOUS tes conseils, idées et recommandations, mais également pour ta disponibilité qui peut éventuellement concurrencer celle de Grégoire. Sincèrement, tu m'as beaucoup aidé et j'ai énormément appris grâce à toi mon bon vieux So élevé à la puissance 2. Je tiens également à remercier **Céline** et **Cécile**, parce que vous avez fait en sorte, malgré vous, que je réfléchisse avant de vous dire bonjour (pour ne pas me tromper car oui Céline et Cécile, moi j'ai du mal ahah) d'une part, et d'autre part pour ces discussions intéressantes dans les couloirs, soit au café ou au bureau.

Sylvain B., tu es parti de l'IRSN, mais je te fais une dédicace quand même, car on ne peut pas oublier quelqu'un comme toi, qui vient dire au revoir avec une séance de blagues tous les jours. Merci Sylvain pour ces moments de rigolade. **Jean-VOMICH**, avec le départ de Sylvain B, tu as fini par aller t'installer à FAR mais je te remercie pour ces moments marrants, surtout le jour de notre course en allant à la cantine 2 AHAAAAH. **Anne-Laure**, dit Miss-Tep, merci pour ces moments de covoit, courses à pieds et discussions que nous avons eues. On aura l'occasion d'aller courir ensemble dans la brrrrresse un de ces quatre. **Carina**, dit Carinouch, merci d'avoir partagé, avec Amel et moi, la P14 dans la très bonne humeur et la rigolade, dommage que tu sois partie dans un pays pas génial.

Pour celles et ceux qui ne sont pas cités ici, je vous prie de ne pas m'en tenir rigueur, car bien entendu je vous remercie sincèrement aussi toutes et tous d'avoir partagé, de près ou de loin, mes instants de doctorant au SCA.

Yohan L., tu t'es peut-être cherché dans ces remerciements et bien voilà, je tenais à te remercier personnellement pour avoir été là au 389, à mon arrivée en tant que stagiaire en 2017, et pour m'avoir montré TOUS les recoins du laboratoire afin que je puisse par la suite voler de mes propres ailes. Alors, merci Yohan, car je pense que mes débuts auraient été bien plus chaotiques sinon.

Une pensée sincère et particulière va à **Alice** qui m'a supporté malgré mon humeur quelques fois (souvent ?) désagréable et qui surtout m'a motivé et qui continue à me motiver tous les jours. Également, un grand merci à Jean et Nathalie, mes beaux-parents, qui m'ont aidé à penser à autres choses les (très souvent) week-end où j'étais chez eux. Enfin, je remercie ma maman, **Elisabeth**, ma sœur **Karole**, mon frère, **Cédric** et mes belles sœurs, **Sabrina** et **Amandine** qui ont toujours été là pour moi. Je dédicace ma réussite à ma famille et à ma belle-famille.

TABLE DES MATIÈRES CONTENTS

NOMENCLATURE	2
INTRODUCTION GÉNÉRALE	5
CHAPITRE I : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES CONDITIONS ATMOSPHÉRIQUES MESURÉES EN MILIEUX NUCLÉAIRES	8
I.1 Propriétés physiques des aérosols ambiants	9
I.1.1 Notion de base sur les aérosols	9
I.1.2 Distribution granulométrique des aérosols	10
I.1.3 Diamètres équivalents des aérosols	11
I.1.4 Comportement des aérosols	13
I.2 Propriétés physiques des aérosols radioactifs naturels et artificiels émetteurs de particules α	15
I.2.1 Notions importantes de la radioactivité appliquées aux particules	16
I.2.1.a Période radioactive	16
I.2.1.b Désintégration spontanée α	17
I.2.2 Aérosols radioactifs naturels émetteurs de particules α	19
I.2.2.a Origine des gaz radioactifs naturels : le radon et le thoron	20
I.2.2.b Produits de filiation du radon et du thoron	25
I.2.2.c Facteur d'équilibre	27
I.2.3 Aérosols radioactifs artificiels émetteurs de particules α	28
I.2.3.a Aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement	28
I.2.3.b Aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement direct de travail	30
I.2.4 Aérosols mesurés en chantier de démantèlement nucléaire	31
I.2.5 Conclusion intermédiaire	32
I.3 Approche expérimentale pour la reproduction d'atmosphères représentatives de celles mesurées en chantiers de démantèlement nucléaire	33
I.3.1 Chambre de génération d'aérosols non-radioactifs	33
I.3.1.a Caractéristiques des aérosols non-radioactifs	34
I.3.1.b Génération des aérosols non-radioactifs	36
I.3.2 Banc d'essais ICARE pour la génération d'aérosols radioactifs naturels	38
I.3.2.a Génération des aérosols radioactifs naturels	38
I.3.2.a.1 Production du gaz radioactif, le radon (^{222}Rn)	39
I.3.2.a.2 Production des aérosols non-radioactifs de chlorure de césium (CsCl)	39
I.3.2.b Caractéristiques des aérosols radioactifs naturels	40
I.3.3 Couplage du banc d'essais ICARE avec la chambre de génération des aérosols non-radioactifs	42
CHAPITRE II : MESURE EN TEMPS RÉEL ET EN CONTINU DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE ATMOSPHÉRIQUE PAR LES CAM	43
II.1 Mécanismes régissant l'efficacité d'échantillonnage et de collecte par filtration des aérosols	45
II.1.1 Prélèvement et échantillonnage des aérosols de l'ambiance	45
II.1.2 Collecte des aérosols par filtration sur filtre du CAM	49

II.2 Spectrométrie α en continu et en temps réel.....	61
II.2.1 Interaction des particules α avec la matière.....	61
II.2.1.a Pouvoir d'arrêt d'un matériau	62
II.2.1.b Parcours d'une particule α	64
II.2.2 Caractéristiques du spectre en énergie α	66
II.2.2.a Auto-absorption de l'énergie des particules α dans les particules d'aérosol	67
II.2.2.b Absorption de l'énergie des particules α -naturels dans les aérosols non-radioactifs	69
II.2.2.c Absorption de l'énergie des particules α -naturels dans l'épaisseur d'air et dans la fenêtre d'entrée du détecteur	72
II.2.2.c.1 Efficacité de détection - angle solide.....	72
II.2.2.c.2 Full Width at Half Maximum (FWHM).....	73
II.2.2.c.3 Position du pic d'intensité maximale	74
II.3 Traitement en temps réel et en continu des comptages nucléaires	79
II.3.1 Discrimination en énergies par sélection de régions d'intérêts et compensation dynamique du bruit de fond	80
II.3.2 Caractérisation de l'évolution de la contribution des traînes en énergies α -naturels.....	83

CHAPITRE III : CARACTÉRISATION DU COMPORTEMENT DU CAM EN CONDITIONS ATYPIQUES & PROPOSITION D'UN SYSTÈME INNOVANT PERMETTANT L'AMÉLIORATION DES MESURES DU CAM..... 85

III.1 Matériels et méthodes	86
III.1.1 Banc d'essais et protocole de génération d'atmosphères atypiques	86
III.1.2 Description du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques	89
III.1.2.a Évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3.....	89
III.1.2.b Description des spectres en énergies mesurés par le CAM.....	89
III.1.3 Interprétation des évolutions des comptages	89
III.1.4 Caractérisation de l'évolution de la limite de détection du CAM : interprétation.....	90
III.1.5 Caractérisation de l'évolution des traînes en énergies et de leur contribution au bruit de fond	90
III.1.6 Utilisation du paramètre de traîne K_{12} calculé permettant l'amélioration de l'estimation du bruit de fond.....	93
III.2 Résultats expérimentaux	93
III.2.1 Description du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques	93
III.2.1.a Comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3	93
III.2.1.b Spectres en énergies α mesurés par le CAM.....	97
III.2.2 Interprétation du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques	99
III.2.2.a Structure du dépôt.....	99
III.2.2.b Confrontation structure du dépôt - mesures nucléaires en temps réel du CAM.....	103
III.2.3 Évolution de la limite de détection du CAM : interprétation	110
III.2.4 Caractérisation de l'évolution des paramètres de traîne des pics ^{214}Po et ^{218}Po	115
III.2.5 Amélioration de l'estimation du bruit de fond.....	117
III.3 Prise en compte des caractéristiques des aérosols non-radioactifs pour améliorer les mesures en temps réel et en continu du CAM.....	121
III.3.1 Présentation du système innovant	121
III.3.2 Résultats de l'étude de faisabilité.....	122

CONCLUSION GÉNÉRALE	125
PERSPECTIVES.....	128
RÉFÉRENCES.....	129
ANNEXES	136
Annexe 1 : Calcul théorique de l'accumulation des descendants solides du radon sur le filtre du CAM & calculs des incertitudes	136
Annexe 2 : Paramètres de position en énergie et de FWHM calculés, conditions normatives IEC.....	138
Annexe 3 : Mise en place des critères de seuil de décision (SD) et de limite de détection (LD)	141
Annexe 4 : Évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3	144
Annexe 5 : Spectres en énergies alpha mesurés par le CAM.....	157
Annexe 6 : Comparaison entre K_{vrai} et K_{12} calculé à partir des spectres mesurés sur deux heures	166

LISTE DES TABLEAUX ET DES FIGURES

Tableaux

Tableau 1 : Synthèses des caractéristiques des atmosphères couvertes par les conditions normatives IEC 61578 (1997) pour évaluer les performances des CAM	8
Tableau 2 : Valeurs empiriques des paramètres nécessaires pour déterminer le facteur de correction de Cunningham. Ces coefficients ont été déterminés en utilisant des billes de latex dont la gamme de taille est précisée	14
Tableau 3 : Vitesses terminales de chute calculées pour différents diamètres aérodynamiques dans des conditions TPN et en utilisant les paramètres de Kim et al. (2005)	15
Tableau 4 : Diamètres aérodynamiques médians en activité des aérosols radioactifs artificiels mesurés dans différents environnements de travail et pour différentes activités réalisées (Dorrian & Bailey, 1995)	30
Tableau 5 : Caractéristiques des aérosols (A, B, C et D) utilisés dans notre étude. La seconde et troisième ligne correspondent respectivement aux valeurs corrigées du biais de mesure qui est de 32 % pour ce type d'aérosol et à l'écart-type géométrique. Dans la quatrième ligne sont reportées les valeurs du facteur dynamique de forme déterminées par Mark et al. (1985) ainsi que Witschger et al. (2002, 2004) permettant de calculer le DE_{VMM} reporté à la cinquième ligne	36
Tableau 6 : Caractéristiques de l'atmosphère radioactive naturelle générée dans la veine ICARE et prélevé dans le dispositif expérimental	41
Tableau 7 : Valeurs des paramètres empiriques pour les deux configurations d'essais menées par Yu et al. (1997)	53
Tableau 8 : Efficacités de collecte des aérosols radioactifs naturels ($DAMA = 0,2 \mu m$) dans la structure granulaire formée par les quatre aérosols non-radioactifs.....	59
Tableau 9 : Conditions normatives IEC d'obtention du spectre en énergies en tirets noir présenté à la figure 57	76
Tableau 10 : Écart-relatif calculés sur la position et la FWHM entre les pics ^{218}Po et ^{214}Po simulés et ceux mesurés par le CAM	76
Tableau 11 : Écart-relatifs calculés sur la position en énergie (E) et la FWHM entre les pics ^{218}Po et ^{214}Po mesurés par le CAM et ceux simulés (introduits précédemment).....	78
Tableau 12 : Les radionucléides d'intérêt mesurés dans les ROI1, ROI2 et ROI3 de l'ABPM203M sont tabulés avec leur période radioactive ($T_{1/2}$) et l'énergie des particules α (E_{α}) qu'ils émettent lors de la désintégration (Laboratoire National Henri Becquerel, 2015).....	80
Tableau 13 : Les deux premières lignes correspondent aux caractéristiques des aérosols radioactifs naturels générées. Les deux dernières lignes correspondent aux caractéristiques principales des aérosols non-radioactifs dénommés A, B, C et D	87
Tableau 14 : Valeurs moyennes des positions et des FWHM des pics ^{218}Po et ^{214}Po , accompagnées de leurs incertitudes absolues à 95 %.....	88
Tableau 15 : Valeurs moyennes des positions en énergie (E) et des FWHM des pics ^{218}Po et ^{214}Po , accompagnées de leurs incertitudes absolues à 95 %	97
Tableau 16 : Écart-relatifs (ER) calculés entre les valeurs de position des pics ^{218}Po et ^{214}Po et de leur FWHM respectives mesurées en phase deux et les valeurs calculées de ces mêmes paramètres mais mesurés en phase une (valeurs reportées au tableau 14)	98
Tableau 17 : Comparaison entre l'épaisseur moyenne équivalente calculée du dépôt (E_{moy}), pour les différentes masses d'aérosols accumulées sur le filtre, et la granulométrie de ces aérosols non-radioactifs (DE_{VMM})	100

Tableau 18 : Nombre moyen de couches équivalentes en fonction de la masse d'aérosol non-radioactifs accumulée et pour les quatre granulométries utilisées. Mise en avant de trois configurations, à savoir N_{moy} inférieur ou égal à un, supérieur à un mais inférieur ou égal à deux (zone de transition) et enfin supérieur à deux.	102
Tableau 19 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans le dépôt constitué de particules non-radioactives A ou B en configuration $N_{moy} \leq 1$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM	105
Tableau 20 : Énergies α moyennes transférées par les particules α issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules A et B en configuration $1 \leq N_{moy} < 2$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM	105
Tableau 21 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules A et B en configuration $N_{moy} > 2$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM	106
Tableau 22 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules C et D en configuration $N_{moy} \leq 1$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM	108
Tableau 23 : Base de données où des valeurs de paramètre K sont disponibles en fonction de la distribution granulométrique et de la concentration de l'aérosol non-radioactif mesuré par le COP	117
Tableau 24 : Valeurs des positions des pics ^{218}Po et ^{214}Po et de leur FWHM calculées sur chaque spectre enregistré en phase une	138
Tableau 25 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol A sont reporté, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise	145
Tableau 26 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol B sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise	148
Tableau 27 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol C sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise	151
Tableau 28 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol D sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise	154
Tableau 29 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol A.....	159
Tableau 30 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol B	161
Tableau 31 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol C	163
Tableau 32 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol D.....	165

Figures

Figure 1 : Représentation des trois modes de l'aérosol atmosphérique en fonction de la taille des particules les constituants selon Hervé-Bazin (2007). Les trois courbes représentent les distributions granulométriques des aérosols en nombre (trait en pointillés), en surface (trait plein épais) et en volume ou masse (trait plein fin)	10
Figure 2 : Diamètres équivalents à des sphères définis par Hinds (1999). Les masses volumiques repérées ρ_p et ρ_0 correspondent respectivement à la masse volumique de la particule et standard. Le facteur de forme dynamique est noté χ et v_s est la vitesse terminale de chute de la particule	12
Figure 3 : Évolution exponentielle du nombre d'un radionucléide donné en fonction de sa période radioactive ($T_{1/2}$) dans un échantillon (Vaissière et al., 2001)	17
Figure 4 : Sources de radioactivité naturelles et anthropiques auxquelles est confrontée la population selon la CIPR 66 (1994)	19
Figure 5 : Chaînes de désintégrations radioactives de l'uranium (^{238}U) et du thorium (^{232}Th) qui engendrent respectivement le radon (^{222}Rn) et le thoron (^{220}Rn). Les périodes radioactives ($T_{1/2}$) sont également reportées sous chaque radionucléide. La figure est issue de Nguyen (2012).....	20
Figure 6 : Schéma des mécanismes qui engendrent l'exhalaison des gaz de radon et de thoron hors des sols. La figure est traduite et issue de Wicke (1979).....	21
Figure 7 : Taux d'exhalation du thoron en fonction de la teneur en eau d'un sol simulé à partir de grains de granite. Les disques pleins représentent les résultats obtenus pour un sol simulé avec des grains de diamètre moyen (d_{moy}) de 20 μm et de 230 μm pour les cercles. Figure traduite issue de Megumi & Mamuro (1974)	21
Figure 8 : Illustration du mécanisme de recul présent dans l'émanation d'après Tanner (1964)	22
Figure 9 : Dépendance du taux d'émanation du radon à l'humidité relative et à la température mesurée expérimentalement par Meslin (2008)	22
Figure 10 : Distribution spatiale des activités en radon et thoron dans une chambre de mesure modèle. La figure est traduite et est issue d'Hosoda et al. (2017)	24
Figure 11 : Évolution de l'activité volumique en thoron en fonction de la distance du mur d'où il est émis. La figure est traduite et extraite de Urosevic et al. (2008)	24
Figure 12 : Chaînes de décroissances radioactives du radon en haut et du thoron en bas issues respectivement de Chisté et al. (2008) et de Bé et al. (2013). Les énergies E_α (en keV) sont reportées en rouge et les périodes radioactives en violet. Les flèches en rouge pour la décroissance du radon tracent les chaînes de désintégrations radioactives majoritaires.	25
Figure 13 : Figure traduite de Porstendörfer (1994) schématisant les différentes étapes de « vie » d'un produit de filiation (^{218}Po) du radon, lequel est émis dans l'air	26
Figure 14 : Évolution de la fraction libre du radon (noté $f_{p,\text{Rn}}$) en fonction de la concentration numérique en particules (part.cm^{-3}). La figure est traduite et issue de Papastefanou (2008)	27
Figure 15 : Distribution cumulée d'aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement sans avoir connaissance de leur origine et du mécanisme de production (Dorrian, 1997)	28
Figure 16 : Distributions cumulées (à gauche) des aérosols radioactifs émis dans l'atmosphère à la suite de l'accident survenu à la centrale nucléaire de Tchernobyl et retombés dans l'environnement, (à droite) des aérosols radioactifs provenant de diverses sources (Tchernobyl, essais nucléaires, etc.) et remis en suspension dans l'environnement. Le DAMA et l'écart-type géométrique sont respectivement de 0,64 μm et 1,5 pour les aérosols retombés et de 6 μm et 1,9 pour les aérosols remis en suspension dans l'environnement. Figure extraire de Dorrian (1997).....	29
Figure 17 : Distributions cumulatives des aérosols radioactifs artificiels mesurés en zone de travail (centrales nucléaires, usines de traitement de l'uranium, centre de stockage du combustible) pour différentes opérations réalisées (Dorrian & Bailey, 1995).....	30

Figure 18 : Distribution granulométrique de l'aérosol de plutonium rejeté accidentellement hors de la boîte à gants où la production par nébulisation avait lieu. Une loi log-normale de paramètre DAMA ($4,7 \mu\text{m}$) et σ_g (1,4) est ajustée sur la distribution granulométrique (Cheng et al., 2004)	31
Figure 19 : Image obtenue au Microscope Électronique à Balayage (MEB) d'un morceau de filtre suite à un prélèvement de 4 heures en chantier de démantèlement nucléaire (Dougnaux et al., 2015)	32
Figure 20 : Schéma de la chambre de génération d'aérosols non-radioactifs. La génération d'aérosols est possible à l'aide du générateur à brosse rotative (Rotative Brush Generator, RBG). Le contrôle en temps réel de la concentration et de la granulométrie des aérosols injectés est assuré par un compteur optique de particules (COP) de type Grimm. Dimensions du volume : largeur = 0,505 m, profondeur = 0,400 m et hauteur = 0,605 m	34
Figure 21 : Aérosol d'alumine (Al_2O_3), échantillonné et collecté sur un filtre à membranes microporeuses, observé au Microscope Électronique à Balayage (MEB)	35
Figure 22 : Exemple de l'évolution de la concentration en aérosol avant et pendant la génération de l'aérosol D mesurée par le COP de type Grimm	36
Figure 23 : Exemple de la génération d'un pic en concentration en aérosol D dans la chambre mesuré par le COP de type Grimm	37
Figure 24 : Vue schématique du banc d'essais ICARE. (En bleu, à gauche) la partie dédiée à la production d'aérosols radioactifs naturels. (En orange, au milieu) la partie dédiée à la production d'aérosols radioactifs artificiels. (En vert, à droite) la partie dédiée aux systèmes de mesures des aérosols radioactifs naturels ou artificiels ou encore des deux en même temps. Figure issue de Monsanglant-Louvet et al. (2008)	38
Figure 25 : Schéma d'un générateur d'aérosols à ultrasons	39
Figure 26 : Illustration schématique du couplage ICARE (voie aérosols radioactifs naturels) - chambre aérosols non-radioactifs. La tête de prélèvement du CAM est disposée dans la chambre pour y être soumise à des atmosphères simulées de chantier de démantèlement nucléaire	42
Figure 27 : Principe de fonctionnement général d'un CAM sous forme de logigramme	44
Figure 28 : (à gauche) Géométrie de la tête de prélèvement d'un moniteur de la contamination radioactive atmosphérique de type ABPM203M. (à droite) Schéma du processus d'échantillonnage de l'aérosol ambiant avec les aérosols en disques bleus et les lignes de courant du fluide en traits pointillés	45
Figure 29 : Fractions conventionnelles définies par la CEN EN 481 (1993) pour l'air en mouvement (vitesses d'air comprises entre 1 et 4 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) et fraction inhalable proposée par Aitken et al. (1999) pour l'air calme	46
Figure 30 : A gauche : évolution de l'efficacité d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique en condition d'air calme (vitesse d'air à 0,3 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) pour trois débits de prélèvement d'air différents, soit 113 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ (carrés), 57 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ (triangles) et 28 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ (ronds) et une distance h filtre - détecteur de 7 mm. À droite : évolution de l'efficacité d'échantillonnage pour des particules de d_{ae} de 10 μm en fonction de la distance filtre - détecteur pour un prélèvement à 57 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$ dans des conditions d'air calme. Résultats issus de McFarland et al. (1991)	47
Figure 31 : Efficacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement d'un CAM de type ABPM203M en fonction du diamètre aérodynamique des aérosols	48
Figure 32 : Illustration de la résolution en énergie des descendants solides du radon obtenue pour différents types de filtres à membranes. Figure extraite de Hoover (2011)	49
Figure 33 : Images d'un filtre à membranes microporeuses vierge (type Fluoropore FSLW) obtenues à l'aide d'un Microscope Électronique à Balayage (MEB) par Marcillaud de l'IRSN sous deux grossissements, x40 à gauche et x370 à droite	50
Figure 34 : Évolution de l'efficacité d'un filtre en fonction du temps et de la masse de particules prélevées	51

Figure 35 : (À gauche) illustration schématique des trois principaux mécanismes de collecte, d'une particule transportée par un flux d'air, sur un collecteur (Bulejko, 2018). (À droite) évolution de l'intensité des différents mécanismes de collecte en fonction de la taille des particules (Lindsley, 2016).....	52
Figure 36 : Porosité initiale en fonction du diamètre équivalent en volume, d_{ev} , issue de Yu et al. (1997).....	53
Figure 37 : Observation au MEB de la structure granulaire formée au-dessus d'un filtre à membranes après prélèvement effectué avec le CAM ABPM203M d'aérosols (type C).....	53
Figure 38 : Illustration de l'image permettant le calcul de la porosité du dépôt	54
Figure 39 : Graphique de gauche : accumulation de la masse d'aérosols radioactifs naturels en fonction du temps sur le filtre de prélèvement du CAM qui aspire l'air à 35 L.min ⁻¹ . Graphique de droite : évolution du nombre moyen de couches équivalentes en fonction du temps. Les caractéristiques de l'atmosphère utilisé pour les calculs sont : une concentration en aérosols radioactifs naturels de 10 ⁷ particules.m ⁻³ et un DAMA à 0,2 µm pour un écart-type géométrique de 1,5 (condition préconisée par l'IEC 61578 (1997) pour évaluer les performances des CAM)	55
Figure 40 : Évolution du nombre moyen de couche équivalente en fonction de la masse de particule prélevée et pour les quatre granulométries d'aérosols mises en jeu dans l'étude, soit en carrés noirs, losanges verts, triangles rouges et cercles violets respectivement pour l'aérosol A, B, C et D. Les courbes de tendance linéaire sont également tracées, les équations associées reportées en légende	56
Figure 41 : Profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels (DAMA = 0,2 µm) en fonction du nombre de couche d'une structure granulaire formée par les aérosols A, B, C et D respectivement représentés par les losanges bleus, carrés noirs, triangles verts et cercles violets.....	60
Figure 42 : Représentation schématique d'une chaîne de mesure de spectrométrie α issue de CETAMA et al. (2012).....	61
Figure 43 : Pouvoir d'arrêt massique du silicium pour des particules α de différentes énergies calculé à l'aide du programme du NIST (2009). Pour une énergie de 0,5 MeV, le pouvoir d'arrêt présente un maxima vis-à-vis des particules α (repéré par la flèche noire). La courbe en rouge correspond à l'ajustement du modèle énoncé à la relation 43 sur la gamme en énergie entre accolades, soit 2 à 8 MeV	63
Figure 44 : Illustration du pic de Bragg (calculé à partir de la relation 43) pour une particule α de 4000 keV (courbe noire) et 8000 keV (courbe rouge) traversant du silicium	64
Figure 45 : Parcours des particules α dans l'air (en rouge) et dans le silicium (en noir) en fonction de l'énergie initiale. Courbes tracées à partir des données du NIST (2009)	65
Figure 46 : Illustration d'un spectre en énergies α avec la position du pic d'intensité maximale, la FWHM et sa traîne en énergie. La figure est issue de CETAMA et al. (2012).....	66
Figure 47 : Illustration d'aérosols non-radioactifs (disques bleus) et radioactifs (disques rouges) collectés en surface du filtre à membranes microporeuses d'un CAM. Les flèches rouges indiquent quelques directions de particules α vers le détecteur nucléaire.....	67
Figure 48 : Illustration de l'auto-absorption de l'énergie d'une particule α (Geryes, 2009).....	67
Figure 49 : Spectres en énergie alpha (aérosol radioactifs d'(U,Pu)O ₂) calculés par méthode Monte Carlo pour des formes de particules différentes et des angles d'émissions différents (Pickering, 1984)	68
Figure 50 : Évolution de la FWHM en fonction du diamètre des particules radioactives sphériques qui émettent des particules α d'énergie $E_{\alpha} = 5,15$ MeV (Pickering, 1984). La ligne discontinue repère la tendance linéaire de l'évolution de la FWHM en fonction du diamètre des particules.....	69
Figure 51 : Dégradation théorique du spectre en énergies des particules α émises par le ²¹⁴ Po pour différentes masses de sel (NaCl) (Seiler et al., 1988)	70

Figure 52 : Dégradation du spectre en énergie lors d'une accumulation en masse de particules sur un filtre à membranes (Huang et al., 2002). ΔE repère le décalage en énergie lié à l'absorption de l'énergie dans l'épaisseur de sel que traversent les particules α	71
Figure 53 : Distributions de probabilité des angles d'émissions possibles avec une source de 15 mm de rayon et un détecteur de 25 mm de rayon situé de manière coaxiale à une distance de 15,5 mm (à gauche) et de 25,5 mm (à droite). Résultats extraits de Pommé et al. (1995)	72
Figure 54 : Distributions de probabilité des angles d'émissions possibles pour le cas du CAM de type ABPM203M, soit avec une distance filtre - détecteur de 12 mm, un diamètre de filtre de 25 mm, une surface de détection de 12 mm (en tirets) et des ailettes de collimation de 9 mm (en trait plein).....	73
Figure 55 : Évolution de la FWHM en fonction de la distance source-détecteur, Résultats obtenus par Moore et al. (1993) avec une source circulaire et homogène de ^{239}Pu d'un diamètre de 25,65 mm coaxiale avec un détecteur circulaire de 450 mm ² de surface.....	74
Figure 56 : Décalage en énergie ΔE calculé pour les particules α issues de la désintégration du ^{218}Po (disques rouges) et ^{214}Po (losanges noirs) en fonction de la distance source - détecteur.....	75
Figure 57 : Spectre en énergies α mesuré pendant deux heures en conditions normative IEC (voir caractéristiques dans le tableau 9. Les décalages et les FWHM des deux pics (^{218}Po et ^{214}Po) sont mentionnés sur le spectre en énergies mesuré (en noir) et calculé (en rouge)	77
Figure 58 : Quatre exemples de spectre en énergies α mesurés par le CAM. Chacun correspond à une mesure de deux heures mais dans des conditions différentes, notamment en termes de granulométrie d'aérosols non-radioactifs, soit avec l'aérosol A, l'aérosol B, l'aérosol C et l'aérosol D respectivement pour le graphique en haut à gauche, en haut à droite, en bas à gauche et en bas à droite	79
Figure 59 : Spectres en énergies α divisés en trois ROI, lesquelles permettent de discriminer en énergie un ou plusieurs radionucléides. Le spectre en noir est mesuré en conditions normatives IEC. Le spectre en rouge est mesuré dans la même condition d'activité α -naturels à laquelle est ajoutée une brève génération d'aérosols non-radioactifs de type D (conditions atypiques).....	81
Figure 60 : Schéma du banc d'essais utilisé pour l'étude du comportement du CAM dans des conditions atypiques.....	86
Figure 61 : Présentation de l'ajustement de la traîne en énergies du pic ^{214}Po . Le spectre en trait interrompu noir correspond à la mesure du CAM. La courbe en trait continu rouge correspond au modèle (relation 51 du chapitre II) ajusté aux données expérimentales sur une gamme en énergie de [5200 - 6200] keV, laquelle est repérée par les crochets sur le spectre	91
Figure 62 : Spectre mesuré par le CAM soustrait de la contribution de la traîne en énergie du pic ^{214}Po au comptage dans ROI2 et ROI1	92
Figure 63 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés A (trait rouge) en fonction du temps	94
Figure 64 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés B (trait rouge) en fonction du temps	95
Figure 65 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés C (trait rouge) en fonction du temps	96
Figure 66 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés D (trait rouge) en fonction du temps	96

Figure 67 : Évolution de l'épaisseur moyenne équivalente de la structure formée au-dessus du filtre en fonction de la masse de particules prélevées au cours de nos essais et pour les quatre granulométries d'aérosol, soient A en carrés noirs, B en losange verts, C en triangle rouges et D en cercles violets. Les masses volumiques apparentes (ρ_{app}) calculées des épaisseurs de matières formées au-dessus du filtre de surface effective (S_{eff}) égale à $4,91 \text{ cm}^2$ sont également reportées	100
Figure 68 : Évolution du nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy}) fonction de la masse de particules accumulées sur le filtre du CAM pour les quatre granulométries d'aérosol. La légende est la même que celle indiquée à la figure 67(.....	101
Figure 69 : Profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels ($DAMA = 0,2 \text{ }\mu\text{m}$) en fonction de l'épaisseur moyenne de couche équivalente (à gauche) et du nombre moyen de couche équivalente (à droite) d'une structure granulaire formée par les aérosols A, B, C et D respectivement représentés par les carrés noirs, losanges verts, triangles rouges et cercles violets.....	103
Figure 70 : Configuration du dépôt d'aérosol non-radioactifs de $DE_{vMM} < 10 \text{ }\mu\text{m}$ lorsque $N_{moy} \leq 1$. Les disques et flèche oranges représentent respectivement les aérosols radioactifs naturels accumulés en phase une et l'émission de quelque particules α issues de ces derniers en direction du détecteur nucléaire du CAM. Les disques noirs représentent les aérosols non-radioactifs rapidement accumulés en phase deux	104
Figure 71 : Même légende qu'à la figure 70 mais pour une configuration où $1 < N_{moy} \leq 2$	105
Figure 72 : Même légende qu'à la figure 70 mais pour une configuration où $N_{moy} > 2$	106
Figure 73 : Configuration du dépôt d'aérosol non-radioactifs de $DE_{vMM} < 10 \text{ }\mu\text{m}$ lorsque $N_{moy} \leq 1$. Les disques et flèche oranges représentent respectivement les aérosols radioactifs naturels accumulés en phase une mais qui sont devenus moins radioactifs, due à la période radioactive courte de 184,3 secondes pour le ^{218}Po et de 162,3 μs pour le ^{214}Po . Les disques noirs représentent les aérosols non-radioactifs rapidement accumulés en phase deux. Les disques rouges représentent les nouveaux aérosols radioactifs naturels accumulés en phase deux.	107
Figure 74 : Même légende qu'à la figure 73 mais pour les configurations $1 < N_{moy} \leq 2$ (à gauche) et $N_{moy} > 2$ (à droite)	107
Figure 75 : Légende identique à celle de la figure 70. En revanche ici les aérosols non-radioactifs ont un DE_{vMM} supérieur à $10 \text{ }\mu\text{m}$	108
Figure 76 : Légende identique à celle de la figure 70 avec un dépôt d'aérosols non-radioactifs de $DE_{vMM} > 10 \text{ }\mu\text{m}$ et de configuration $1 < N_{moy} \leq 2$	109
Figure 77 : Même légende qu'à la figure 73 mais pour des aérosols non-radioactifs de DE_{vMM} supérieur à $10 \text{ }\mu\text{m}$ et pour une configuration $N_{moy} < 1$ (à gauche) et $1 < N_{moy} \leq 2$ (à droite)	109
Figure 78 : Graphiques illustrant d'une part, l'évolution de la LD calculée avec K_{12} (triangles verts), de la LD vraie (carrés bleus), calculée avec le comptage brut mesuré dans ROI1 (uniquement lié au bruit de fond) et du comptage brut dans ROI1 (croix noires) en fonction de temps et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge). La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $N_{moy} \leq 1$	111
Figure 79 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $1 < N_{moy} \leq 2$	112
Figure 80 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $N_{moy} > 2$	113
Figure 81 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, C et D, est pour ces essais de $N_{moy} \leq 1$	114
Figure 82 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, C, est pour ces essais de $1 < N_{moy} \leq 2$	115
Figure 83 : Évolutions des paramètres de traînes K_{12} calculé (carrés noirs), K_{23} calculé (triangles bleus) et K_{13} calculé (disques rouges) en fonction de la masse de particules prélevée pour l'aérosol A (graphique en haut à gauche), l'aérosol B (graphique en haut à droite), l'aérosol C (graphique en bas à gauche) et l'aérosol D (graphique en bas à droite)	116

Figure 84 : Évolution des LD calculées avec K_{12} égal à 0,09 (triangles rouges) et K adapté à la situation d'exposition (disques bleus) en fonction de la LD vraie. La ligne discontinue représente une droite de pente 1 et permet de visualiser rapidement une surestimation ou sous-estimation de la LD estimée lorsque les points lui sont respectivement au-dessus ou en-dessous. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $N_{\text{moy}} \leq 1$	118
Figure 85 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$	119
Figure 86 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $N_{\text{moy}} > 2$	119
Figure 87 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $N_{\text{moy}} \leq 1$	120
Figure 88 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$	120
Figure 89 : Principe général de fonctionnement du couplage d'un analyseur en temps réel et en continu de particules non-radioactives et du CAM	122
Figure 90 : Évolutions d'une part, de la LD calculée avec K_{12} actuel (égal à 0,09) et avec K_{12} adapté (respectivement en disques noirs et croix violettes), du comptage net dans ROI1 déterminé avec K_{12} actuel et avec K_{12} adapté (respectivement en triangles verts et en carrés bleus) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge) en fonction du temps. Les résultats présentés sont obtenus avec les aérosols inactifs de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et pour une configuration de $N_{\text{moy}} > 2$	123
Figure 91 : Légende similaire à celle de la figure 90. Les résultats présentés sont obtenus avec les aérosols inactifs de $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$ et pour une configuration de $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ pour l'aérosol C et $1 \leq N_{\text{moy}}$ pour l'aérosol D	124
Figure 92 : Évolutions des comptages théoriques normalisés du ^{218}Po et de ^{214}Po pour des activités respectives de 15 et 5 $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ et un prélèvement sur filtre à 35 $\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$	136
Figure 93 : Exemple d'une distribution de comptage de bruit de fond mesuré de moyenne nulle et d'écart-type (σ) égal à 1. Les coefficients $k_{1-\alpha}$ correspondent à un nombre de fractile du risque α de la loi normale centrée réduite. À $k_{1-\alpha}$ égal à 3,01, 1,96, ou 1,64 est respectivement associé un risque α de 0,1 %, 2,5 % ou 5 %.....	141
Figure 94 : Illustration du seuil de décision (SD) et de la limite de détection (LD) avec respectivement les risques d'erreur de première espèce (risque α) et de seconde espèce (risque β) qui sont égaux. Figure issue de CETAMA et al. (2012).....	142
Figure 95 : Évolution de la limite de détection en fonction du bruit de fond. La flèche rouge indique la limite à partir de laquelle le bruit de fond dépasse toujours la LD	143
Figure 96 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs A (trait rouge) en fonction du temps.....	147
Figure 97 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs B (trait rouge) en fonction du temps.....	150
Figure 98 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs C (trait rouge) en fonction du temps.....	153
Figure 99 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs D (trait rouge) en fonction du temps.....	156
Figure 100 : Ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol A.....	158

Figure 101 : Ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol B.....	160
Figure 102 : Ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol C.....	162
Figure 103 : Ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol D.....	164
Figure 104 : Comparaison pour l'aérosol A entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes.....	166
Figure 105 : Comparaison pour l'aérosol B entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes.....	167
Figure 106 : Comparaison pour l'aérosol C entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes.....	168
Figure 107 : Comparaison pour l'aérosol D entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes.....	169

NOMENCLATURE

Lettres latines :

a_B	Activité spécifique	[Bq.kg ⁻¹]
A_0 et $A(t)$	Activité à l'instant 0 et à l'instant t	[Bq]
A_v	Activité volumique	[Bq.m ⁻³]
C	Concentration numérique de l'aérosol	[part.m ⁻³]
$C_{\text{équilibre}}$	Concentration de l'aérosol à l'équilibre	[mg.m ⁻³]
C_m	Concentration massique	[mg.m ⁻³]
C_u	Facteur de correction de Cunningham	[-]
D	Coefficient de diffusion	[m ² .s ⁻¹]
$dN, dS, dV,$ dM, dA	Distribution granulométrique en Nombre, Surface, Volume, Masse, Activité	[-]
dE_{eq}	Distribution de l'épaisseur équivalente du dépôt	[-]
dN_{eq}	Distribution du nombre de couches équivalentes du dépôt	[-]
d_{50}	Diamètre médian	[μm]
d_p	Diamètre de particule	[μm]
d_{ev}	Diamètre équivalent en volume	[μm]
d_{ae}	Diamètre aérodynamique	[μm]
d_{St}	Diamètre de Stokes	[μm]
$d_{\mu\text{g}}$	Diamètre d'une gouttelette	[μm]
E_α	Energie d'une particule alpha	[keV]
E_{couche}	Efficacité de filtration d'une couche du dépôt	[-]
E_{dif}	Efficacité de collecte unitaire par diffusion	[-]
E_γ	Energie d'un photon gamma	[keV]
E_{grain}	Efficacité de collecte totale d'un grain ($E_{\text{dif}} + E_{\text{imp}} + E_{\text{int}}$)	[-]
E_{imp}	Efficacité de collecte unitaire par impaction	[-]
E_{int}	Efficacité de collecte unitaire par interception	[-]
E_{moy}	Epaisseur moyenne équivalente du dépôt	[μm]
E_{recul}	Energie cinétique de recul	[keV]
f	Fréquence	[Hz]
$f_{p,Rn}$	Fraction libre des aérosols radioactifs naturels	[-]
$F_{\text{éq}}$	Facteur d'équilibre	[-]
g	Accélération de la pesanteur	[m.s ⁻²]
h	Distance entre le détecteur nucléaire et le filtre	[mm]
K	Facteur hydrodynamique de Kuwabara	[-]
K_{12}, K_{12} calculé	Paramètre de traîne du pic ²¹⁸ Po	[-]
K_{13} calculé	Paramètre de traîne du pic ²¹⁴ Po	[-]
K_{23} calculé	Paramètre de traîne du pic ²¹⁴ Po	[-]
k_B	Constante de Boltzmann	[m ² .kg.s ⁻² .K ⁻¹]

Kn	Nombre de Knudsen	[-]
L	Hauteur du dépôt d'aérosol sur le filtre	[μm]
m_{acc}	Masse de particule accumulée sur le filtre du CAM	[mg]
m_p	Masse d'une particule	[mg]
$N_0, N(t)$	Nombre de radionucléides à l'instant initial et à l'instant t	[-]
N_{moy}	Nombre moyen de couches équivalentes du dépôt	[-]
Pe	Nombre de Peclet	[-]
P_T	Pénétration totale	[-]
Q_α	Energie libérée lors d'une désintégration	[keV]
Q_V	Débit volumique d'aspiration de l'instrument	[$\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$]
R	Rapport des vitesses	[-]
R_α	Parcours d'une particule α	[cm]
R_B	Longueur de diffusion	[cm]
R_{int}	Paramètre qui caractérise le mécanisme de collecte par interception	[-]
r_p	Rayon d'une particule	[μm]
S	Pouvoir d'arrêt d'un matériau	[MeV.cm ⁻¹]
S_{eff}	Surface effective de prélèvement	[cm ²]
Stk	Nombre de Stokes	[-]
T	Température	[K]
$T_{1/2}$	Période radioactive d'un radionucléide	[s]
U_{air}	Vitesse de l'air	[m.s ⁻¹]
V_{air}	Volume occupé par les interstices (remplis d'air)	[m ³]
V_e	Volume de la chambre expérimentale	[m ³]
V_{int}	Vitesse d'air interstitielle	[m.s ⁻¹]
v_s	Vitesse terminale de chute d'une particule	[m.s ⁻¹]
V_{total}	Volume totale	[m ³]

Lettres grecques :

α	Particules ionisantes alpha	[-]
β	Particules ionisantes béta	[-]
γ	Rayonnements ionisants gamma	[-]
ΔE	Décalage en énergie	[keV]
ε	Porosité de structure	[-]
ε_0	Porosité limite de structure	[-]
$\varepsilon_{\text{absolue}}$	Efficacité de détection absolue	[-]
ε_e	Taux d'émanation	[-]

$\epsilon_{\text{intrinsèque}}$	Efficacité de détection intrinsèque	[-]
λ	Constante radioactive d'un radionucléide	[s ⁻¹]
λ_g	Libre parcours moyen	[μm]
μ_f	Viscosité dynamique de l'air	[kg.m ⁻¹ .s ⁻¹]
ρ_0	Masse volumique standard	[g.cm ⁻³]
ρ_g	Masse volumique du gaz (air)	[g.cm ⁻³]
ρ_m	Masse volumique du matériau	[g.cm ⁻³]
ρ_p	Masse volumique de la particule	[g.cm ⁻³]
σ	Écart-type	[μm] ou [keV]
σ_g	Écart-type géométrique	[-]
$\tau(d_p)$	Constante de temps de l'épuration d'aérosols	[s]
χ	Facteur de forme dynamique	[-]
Ω	Angle solide	[°]

Abréviations :

CAM	Continuous Air Monitor
COP	Compteur Optique de Particules
CPC	Condensation Particle Counter
BDF	Bruit De Fond
DAMA	Diamètre Aérodynamique Médian en Activité
DAMM	Diamètre Aérodynamique Médian en Masse
DAMM _{biais}	Diamètre Aérodynamique Médian en Masse corrigé d'un biais de mesure
DE _v MM	Diamètre Équivalent en volume Médian en Masse
ER	Écart-relatif
FA	Fraction Attachée des aérosols radioactifs naturels
FL	Fraction libre des aérosols radioactifs naturels
FSLW	Filtre membranes Fluoropore de référence FSLW
FWHM	Full Width at Half Maximum
LD	Limite de Détection
MEB	Microscope Électronique à Balayage
RBG	Rotative Brush Generator
ROI	Region Of Interest
SD	Seuil de Décision
THE	Filtre à Très Haute Efficacité
TPN	Température et Pression Normales

INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'augmentation simultanée des travaux de maintenance liés à l'allongement de la durée d'exploitation des centrales nucléaires et des opérations de démantèlement nucléaire a fait émerger une nouvelle problématique. Celle-ci concerne la surveillance de la contamination radioactive atmosphérique relative aux ambiances spécifiques de ces travaux et opérations. En effet, le retour d'expérience actuel des exploitants du nucléaire, sur les incidents de radioprotection liés à la métrologie, montre que leur nombre est en augmentation. Ainsi, dans le cadre de l'intensification des interventions, une conséquence potentielle est que ces incidents de radioprotection vont à l'avenir concerner un nombre plus important de travailleurs.

Pour l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), il est alors important d'approfondir la métrologie des aérosols radioactifs et notamment à travers la mesure liée au bruit de fond effectuée par les systèmes de mesure qui assurent la radioprotection des travailleurs. Que ce soit pour les unités d'expertise de sûreté ou de radioprotection de l'IRSN, il est nécessaire de pouvoir évaluer l'adéquation des moyens de surveillance radioactive atmosphérique au regard de toutes les situations actuelles ou futures. Ceci dans l'intérêt de pouvoir juger des dispositions techniques à mettre en place pour le suivi de la contamination radioactive atmosphérique dans le cadre d'une évolution des activités prévues par les exploitants.

Le groupe EDF, qui voit son nombre d'opérations en chantier de démantèlement augmenter, subit une augmentation du nombre d'évènements impliquant la radioprotection des travailleurs. Ces évènements de radioprotection concernent le déclenchement intempestif d'alarmes (fausse alerte que l'on qualifie de faux positifs) des systèmes qui assurent la radioprotection des travailleurs. Ces faux positifs engendrent une perte de temps non négligeable dans l'avancement du chantier mais conduisent également à banaliser le risque de contamination radioactive atmosphérique. Effectivement, les travailleurs finissent par s'y habituer et deviennent de fait moins attentifs vis-à-vis de ces alarmes. Ces évènements font ressortir d'une part la nécessité d'améliorer la compréhension des mécanismes qui engendrent les faux positifs et d'autre part de définir les conditions ambiantes qui les engendrent. Ceci permettra alors de fait d'assurer de manière plus adaptée la radioprotection des travailleurs en situation de chantier de démantèlement.

Ces intérêts communs ont donc conduit l'IRSN et EDF à engager un projet de recherche appliqué aux moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique. L'objectif est de comprendre le comportement d'un moniteur dans des conditions atypiques¹. De cette compréhension, nous serons ensuite en mesure de déceler les situations qui induisent un biais dans la mesure du moniteur et *in fine* de les prévenir tout en gardant le meilleur niveau de radioprotection des travailleurs et ce quelle que soit la situation d'exposition.

Les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique (que l'on appellera par la suite CAM pour *Continuous Air Monitor*) permettent de mesurer en continu et en temps réel les activités volumiques α et β , par prélèvement de l'aérosol ambiant sur filtre. La décision statistique de relier un évènement de comptage à la présence d'un radionucléide artificiel, et donc d'émettre une alarme sonore et visuelle pour alerter le travailleur, est influencée par un grand nombre de paramètres, lesquels seront présentés en détail dans le corps du manuscrit.

Par ailleurs, les référentiels normatifs internationaux (International Electrotechnical Commission, IEC), concernant l'évaluation des performances des CAM, ne traitent pas les situations atypiques

¹ Par conditions atypiques on regroupe toutes conditions qui sortent du cadre des conditions IEC qui sont présentées plus loin. Ainsi, dans ces conditions atypiques, on retrouve bien entendu les conditions mesurées en chantier de démantèlement nucléaire.

pourtant génériques liées aux opérations de démantèlement, notamment en termes de présence d'aérosols non-radioactifs.

Au cours de la thèse de Geryes (2009) l'atténuation de l'énergie des particules α a été reliée à la pénétration des aérosols radioactifs en profondeur dans les filtres à fibres et au colmatage de ces derniers, résultats en accord avec ceux obtenus par Higby (1984). Ces travaux ont ainsi permis d'améliorer les connaissances sur la mesure de la contamination par analyse différée de prélèvements atmosphériques sur filtres à fibres.

Les travaux de Dougniaux *et al.* (2015) et de Jonneaux (2015) ont montré que dans certains chantiers de démantèlement les CAM émettent un taux de faux positifs anormalement élevé. De par leur conception, les CAM ont un cycle de prélèvement qui permet à la fois une collecte des aérosols en surface du filtre (utilisation de filtres à membranes) et d'éviter le colmatage du filtre (déroulement du filtre lorsque la perte de charge liée au colmatage dépasse un seuil). Ainsi, l'atténuation de l'énergie des particules α liée d'une part, à la collecte des aérosols radioactifs en profondeur et d'autre part, au colmatage est limitée.

Toutefois, les travaux de Dougniaux *et al.* (2015) ont montré que les caractéristiques des aérosols ambiants sur un type de chantier de démantèlement ne provoquent pas de colmatage spécifique sur les filtres du moniteur testé. En revanche, les observations ont révélé la présence d'une couverture significative, sur les filtres de prélèvement, de particules de tailles importantes ($> 5 \mu\text{m}$) et de formes très variées (allant de la fibre à la sphère). Ces particules, compte tenu d'une part, de leur diamètre pouvant dépasser la dizaine de micromètre et d'autre part, de leur masse volumique, ont un pouvoir d'atténuation de l'énergie des particules α important pouvant expliquer la détérioration de la mesure nucléaire conduisant aux émissions de faux positifs.

Pour étudier la limite de détection et les fausses alarmes émises par les CAM dans des conditions atypiques, nous avons procédé en trois étapes, à savoir l'étude des conditions d'ambiance, l'étude du fonctionnement générique d'un CAM et enfin l'étude à proprement parler du comportement d'un CAM de type ABPM203M lorsqu'il est soumis à des conditions atypiques. Ces trois étapes représentent les trois grands chapitres de ce manuscrit.

Le premier chapitre est dédié à une présentation exhaustive des conditions atmosphériques qui sont rencontrées dans divers milieux nucléarisés et dans lesquels les CAM sont soumis. Ces conditions atmosphériques, qui font suite à une analyse poussée de la bibliographie, tiennent essentiellement compte des caractéristiques physiques des aérosols ambiants, des aérosols radioactifs α -naturels et des aérosols radioactifs α -artificiels. Ces caractéristiques physiques concernent les distributions granulométriques et les diamètres équivalents qui sont utilisés pour caractériser les aérosols. Finalement, la considération de l'ensemble de ces paramètres issus de divers milieux nucléaires a permis l'élaboration d'un dispositif expérimental dans lequel des conditions atypiques peuvent maintenant être reproduite de manière contrôlée et maîtrisée. Celui-ci a rendu possible l'étude, en laboratoire, du comportement d'un CAM en conditions atypiques.

Le second chapitre est consacré à la présentation du fonctionnement général d'un CAM, lequel peut être scindé en trois parties. La première partie concerne l'échantillonnage et la collecte par filtration des aérosols en continu par l'organe d'aspiration du CAM. Dans celle-ci, ces deux processus complexes distincts, mais qui fonctionnent en série, sont présentés en détail à l'appui de la tête de prélèvement du CAM de type ABPM203M étudié. Ainsi, nous connaissons d'une part, la granulométrie des aérosols qui peuvent réellement être échantillonnés par le CAM et d'autre part, l'effet pénalisant qu'engendre l'accumulation d'aérosols non-radioactifs en surface du filtre d'un CAM, notamment sur la collecte des aérosols radioactifs α -naturels. Dans la seconde partie, nous présenterons tout d'abord le principe utilisé pour la détection de particules ionisantes, à savoir l'interaction des particules α avec la matière. Par la suite, une attention particulière sera portée sur la dégradation de la radioactivité dans les différents atténuateurs pouvant être entre le filtre de

prélèvement et le détecteur nucléaire du CAM. La conséquence directe de cette dégradation de la radioactivité dans les conditions IEC et en conditions atypiques (hors IEC) est alors mise en avant, à savoir l'augmentation du bruit de fond conduisant à une discrimination des radionucléides α -artificiels (en cas d'incident) et α -naturels (omniprésents) biaisée. La troisième partie est alors dédiée au traitement systématique achevé par le CAM sur la mesure nucléaire qu'il effectue en temps réel et en continu pour toujours discriminer au mieux en énergies ces α -artificiels des α -naturels. Dans celle-ci, on présente alors le calcul général effectué par l'algorithme de calcul du CAM, duquel on met en avant les limites, notamment dans la considération du bruit de fond lorsque le CAM est soumis à des conditions atypiques. A la connaissance de cette limite, on présente une méthode permettant dans un premier temps de mieux caractériser a posteriori le bruit de fond pour *in fine* utiliser les résultats obtenus afin de considérer en temps réel et en continu le réel bruit de fond.

Dans le troisième et dernier chapitre, on présente alors l'ensemble des résultats obtenus lors de la caractérisation du comportement d'un CAM de type ABPM203M soumis à diverses situations d'expositions atypiques. Cette caractérisation exhaustive a permis d'une part, de mettre en avant les limites actuelles dans la compensation du bruit de fond du CAM et d'autre part, de proposer la mise en place d'un système innovant permettant d'améliorer la mesure du CAM en continu et en temps réel et *in fine* de garantir la radioprotection des travailleurs dans toutes situations.

CHAPITRE I : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES CONDITIONS ATMOSPHÉRIQUES MESURÉES EN MILIEUX NUCLÉAIRES

La surveillance en continu et en temps réel de la radioactivité α dans les installations nucléaires est assurée, entre autres, par des moniteurs qui échantillonnent l'air ambiant et collectent sur un filtre les aérosols en présence. Parmi ces aérosols, ceux radioactifs naturels (omniprésents) et artificiels (en cas d'incident) sont mesurés au moyen d'un détecteur nucléaire situé en face et à proximité du filtre. Ces moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique (CAM) sont surtout utilisés pour détecter la présence d'aérosols radioactifs α -artificiels, dans un bruit de fond que constituent les aérosols radioactifs naturels, en émettant une alarme sonore et visuelle dès lors que l'activité mesurée en α -artificiel dépasse un seuil.

Les performances des CAM, notamment vis-à-vis de la compensation du bruit de fond, dû aux aérosols radioactifs naturels, rendant *in fine* possible la détection de faible quantité de radioactivité α -artificielle en temps réel et en continu, sont évaluées dans des conditions bien établies. Celles-ci sont stipulées par les normes internationales IEC 60761 (2002), IEC 61172 (1992) et IEC 61578 (1997). Les conditions de radioactivité naturelle préconisées par ces normes couvrent de manière générale une large gamme d'atmosphères de travail en milieu nucléaire. Dans le tableau 1, on synthétise les caractéristiques des atmosphères qui sont couvertes par les conditions normatives. Toutefois, elles ne considèrent pas les aérosols non-radioactifs qui peuvent être remis en suspension dans ces mêmes milieux.

Tableau 1 : Synthèses des caractéristiques des atmosphères couvertes par les conditions normatives IEC 61578 (1997) pour évaluer les performances des CAM

Type d'atmosphère d'exposition	Diamètre Aérodynamique Médian en Activité, DAMA (μm)	Concentration de l'aérosol porteur ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	Fraction attachée/libre (%)	Facteur d'équilibre	Activité volumique ($\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$)	
					Radon	Descendants
Calme	0,1 à 0,5	Quelque centaine	~ 80/20	~ 0,4	1 à 10^3	1 à 10^3
Ventilée et filtrée	Environ 0,1	Environ 30	~ 50/50	~ 0,15	1 à 10^3	0,1 à 10^2

En effet, dans certaines situations comme par exemple lors de la réalisation d'opérations basiques de découpe de métaux, de nettoyage de surface, etc., un comportement inattendu et récurrent des CAM est observé. Celui-ci est associé à l'émission d'une alarme sonore et visuelle avertissant de la présence d'aérosols radioactifs α -artificiels alors qu'elle n'est pas avérée après contrôle complémentaire. L'alarme est qualifiée de faux positif.

Le comportement des CAM exposés à ce type de situations n'est jusqu'à maintenant pas encore caractérisé ; c'est l'objectif ambitieux de ce projet de recherche. Pour ce faire, nous avons tout d'abord choisi de mener l'étude de manière à définir le plus exhaustivement possible les différentes conditions atmosphériques auxquelles les CAM peuvent être soumis en milieux nucléaires. Ceci dans l'intérêt d'être ensuite en capacité de reproduire en laboratoire des atmosphères comparables à la réalité rendant l'étude d'un CAM possible. C'est l'objet de ce premier chapitre, lequel est conçu en trois parties :

Dans la première partie, les notions de base qui permettent de caractériser les aérosols, à savoir les distributions granulométriques et les diamètres équivalents sont présentées. Ces notions sont essentielles à la fois pour appréhender le comportement des aérosols dans l'air, et donc expliquer les raisons pour lesquelles un aérosol peut être mesuré en un lieu donné, mais également lorsqu'on parle de prélèvement, d'échantillonnage et de collecte par filtration des aérosols. Ces notions seront présentées lors du prochain chapitre mais il est d'ores et déjà clair que les propriétés physiques des aérosols seront utilisées tout au long du manuscrit.

La seconde partie est consacrée à l'état de l'art sur les caractéristiques physiques des aérosols radioactifs naturels et artificiels émetteurs de particules α mesurées respectivement en conditions normales et incidentelles/accidentelles dans les milieux nucléaires. Ces aérosols radioactifs se comportent dans l'air exactement de la même manière que les aérosols ambiants, ainsi les mêmes paramètres introduits en partie une sont utilisés. Les conditions atmosphériques, en termes de caractéristiques des aérosols (taille, concentration, variation), mesurées sur un chantier de démantèlement nucléaire seront également présentées, lesquelles ont souvent conduit à des alarmes de type faux positifs.

À partir de la synthèse des conditions atmosphériques mesurées dans les milieux nucléaires, une approche expérimentale a été élaborée. Celle-ci est présentée dans la troisième partie et permet maintenant de reproduire de manière contrôlée et reproductible en laboratoire des situations atmosphériques atypiques. Une atmosphère atypique doit être comprise comme dépassant le cadre des conditions IEC stipulées dans les normes mais qui représente toutefois la réalité. Dans cette partie, le banc d'essais ICARE (Installation de Calibration à l'aide d'Aérosols Radioactifs Étalons) est décrit, auquel a été couplée une chambre de génération d'aérosols non-radioactifs.

I.1 Propriétés physiques des aérosols ambiants

I.1.1 Notion de base sur les aérosols

Un aérosol est de manière générale défini comme un ensemble de particules solides ou liquides en suspension dans un milieu gazeux. Il présente une vitesse de chute dans ce milieu qui est négligeable conduisant à ce que son comportement soit en très grande partie dépendant des mouvements et des caractéristiques du gaz constituant le milieu (Renoux & Boulaud, 1998).

Les aérosols sont considérés comme les vecteurs principaux de la pollution de l'air et de la radioactivité, constituant ainsi la radioactivité ambiante. Ils peuvent être d'origines naturelles (volcans, embruns marin, feux de forêts, érosion des sables par les vents, etc.) ou anthropiques (activités industrielles, trafics routiers/aériens/ferroviaires, etc.). La gamme de dimension des aérosols s'étend sur plusieurs ordres de grandeur, généralement de 10^{-4} μm à 100 μm , divisés en trois modes distincts en fonction de leur origine comme représentés sur la figure 1 selon Hervé-Bazin (2007).

- Le **mode de nucléation** : est un mode de création de l'aérosol, par croissance et/ou agrégation, il prend en compte les particules dont le diamètre est inférieur à $0,08 \mu\text{m}$. Le comportement de ces aérosols est décrit par la théorie cinétique des gaz se caractérisant par des mouvements erratiques.
- Le **mode d'accumulation** : il prend en compte les particules dont le diamètre est compris entre $0,08 \mu\text{m}$ et $2 \mu\text{m}$. C'est le mode le plus « stable » dans le temps, les particules de ce mode peuvent être mesurées (très) loin de la source.
- Le **mode des grosses particules** : contient les particules dont le diamètre est supérieur à $2 \mu\text{m}$. Les particules appartenant à ce mode sont principalement issues de processus mécaniques (Madelaine, 1979). Ces processus mécaniques peuvent être naturels, comme par exemple l'érosion des sables par les vents, mais également artificiels comme par exemple la découpe d'un matériau. Le comportement de ces aérosols est principalement régi par l'inertie et la loi de Stokes.

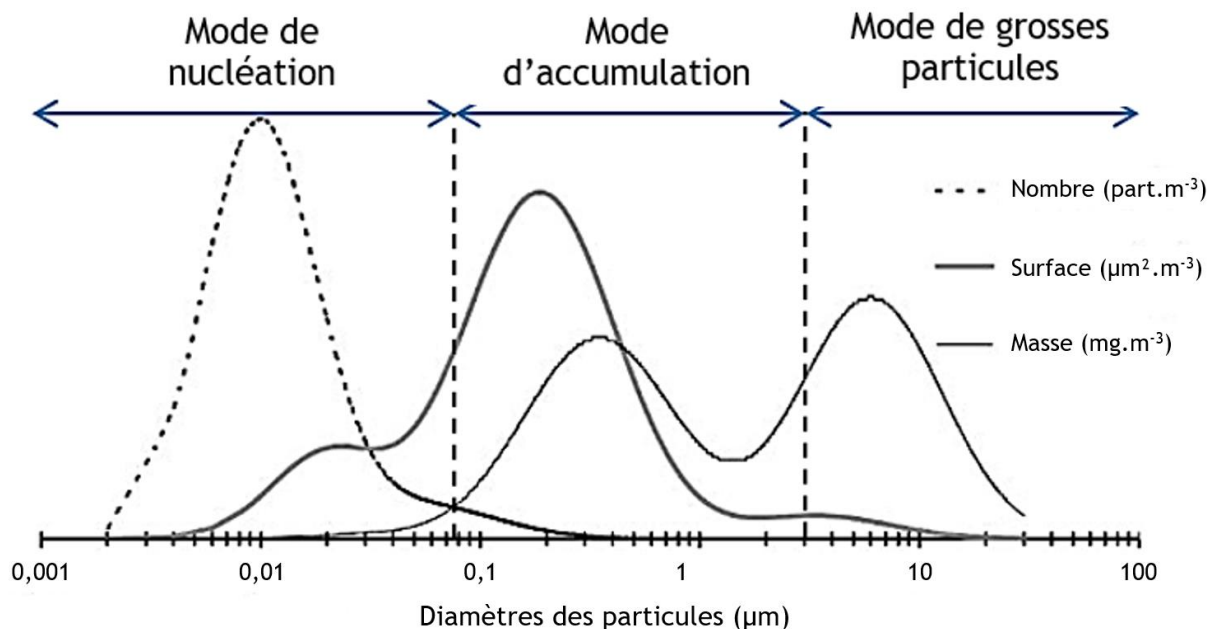


Figure 1 : Représentation des trois modes de l'aérosol atmosphérique en fonction de la taille des particules les constituants selon Hervé-Bazin (2007). Les trois courbes représentent les distributions granulométriques des aérosols en nombre (trait en pointillés), en surface (trait plein épais) et en volume ou masse (trait plein fin)

I.1.2 Distribution granulométrique des aérosols

Les aérosols, qu'ils soient d'origines naturelles ou anthropiques (hors processus contrôlés), présentent de manière générale des tailles variant sur six ordres de grandeur. Étant donné la complexité que serait d'étudier le comportement de chaque particule indépendamment, il est nécessaire d'utiliser une description statistique, c'est-à-dire un moyen d'étudier le comportement global. Cette description statistique est définie par la distribution granulométrique des particules qui peut être, soit en nombre (dN), soit en surface (dS), ou bien encore en volume ou masse ou activité (dV, dM, dA). Ainsi, un ensemble d'aérosols est réduit à quelques grandeurs descriptives, deux en général, le diamètre médian et la dispersion autour de ce diamètre médian, encore appelée l'écart-type géométrique. En physique des aérosols, on considère généralement que la

distribution granulométrique est de forme log-normale et est décrite par la relation 1 issue de Baron & Willeke (2001).

$$f(d_p) = \frac{1}{\ln(\sigma_g) \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{(\ln(d_p) - \ln(d_{50}))^2}{2(\ln(\sigma_g))^2}\right), \quad (1)$$

avec :

- d_{50} : le diamètre médian qui correspond au diamètre qui partage la distribution granulométrique en deux parties égales (μm),
- d_p : diamètre des particules (μm),
- σ_g : l'écart-type géométrique qui quantifie la dispersion des diamètres de l'ensemble des particules mesurées autour du diamètre médian. En pratique, pour σ_g inférieur à 1,2 on peut considérer la distribution de l'aérosol comme mono-dispersée. Cependant, il n'y a pas de valeur seuil pour dire qu'un aérosol est mono ou polydispersé, cela dépend de l'utilisation souhaitée.

I.1.3 Diamètres équivalents des aérosols

L'étude des trajectoires et du transport des aérosols dans l'environnement ou dans un milieu plus restreint (local, voies respiratoires, etc.) est basée sur les théories de la physique des aérosols. Toutefois, ces théories sont le plus souvent établies pour des particules sphériques (Bricard, 1977), malgré des particules d'origines diverses, naturelles ou anthropiques (hors processus contrôlés), et donc de formes diverses. Pour contourner cette difficulté et dans l'intérêt de pouvoir toujours utiliser les théories de la physique des aérosols, les modèles sont réduits à des domaines d'application spécifiques basés sur des dimensions caractéristiques comparables : les diamètres équivalents. Ces derniers sont définis selon les caractéristiques géométriques et aérodynamiques des aérosols afin de rendre équivalent le modèle sphérique et l'aérosol réel dans un domaine particulier. Souvent, le point d'équivalence est la vitesse terminale de chute (Baron & Willeke, 2001), laquelle est définie plus loin. Les diamètres équivalents présentés à la figure 2 traduite et issue de Hinds (1999) sont les plus souvent utilisés dans la littérature, à savoir :

- le **diamètre équivalent en volume**, d_{ev} : diamètre d'une sphère ayant la même masse, m_p , que la particule réelle (non sphérique) et une masse volumique, ρ_p , égale à celle du matériau constituant la particule. Il est défini par l'équation 2 proposée par Vanhee (1985). Lorsque la particule est constituée d'un seul matériau non poreux, alors $\rho_p = \rho_m$, on a une équivalence entre le d_{ev} et le diamètre équivalent en masse (d_{em}).

$$d_{ev} = \left(\frac{6 m_p}{\pi \rho_p}\right)^{1/3}. \quad (2)$$

- le **diamètre aérodynamique**, d_{ae} : diamètre d'une sphère composée d'un matériau non poreux de masse volumique ρ_0 égale à 1000 kg.m^{-3} et ayant la même vitesse terminale de chute que la particule réelle (non sphérique). Il décrit le comportement aérodynamique d'un aérosol et est défini par la relation 3 proposée par Fermandjan (1982).

$$d_{ae} = d_{ev} \sqrt{\frac{\rho_m \text{Cu}(d_{ev})}{\rho_0 \chi \text{Cu}(d_{ae})}}, \quad (3)$$

avec χ et Cu respectivement le facteur de forme dynamique et le coefficient de Cunningham, lesquels sont définis dessous à la relation 5 et 10.

- le **diamètre de Stokes**, d_{St} : diamètre d'une sphère ayant la même vitesse terminale de chute que la particule réelle (non sphérique) et une masse volumique, ρ_m , égale à celle du matériau non poreux (relation 4).

$$d_{St} = d_{ae} \sqrt{\frac{\rho_0 \text{Cu}(d_{ae})}{\rho_m \text{Cu}(d_{St})}}. \quad (4)$$

Le facteur de forme dynamique permet, à partir des diamètres équivalents définis ci-dessus, de ramener le comportement d'une particule de forme quelconque à celui d'une particule sphérique. Il est défini à l'équation 5 comme le rapport entre la force de traînée qui s'applique sur une particule non sphérique et celle qui s'applique sur une particule sphérique ayant un même volume et une vitesse terminale de chute identique (Renoux & Boulaud, 1998). Il est égal à l'unité pour une sphère et est supérieur sinon. Quelques valeurs de facteur de forme dynamique pour différentes particules sont disponibles dans les livres de Baron & Willeke (2001) et de Hinds (1999). Pour l'aérosol nucléaire, le facteur de forme dynamique peut prendre des valeurs entre 1 et 1,5 selon Fermandjan (1982).

$$\chi = \frac{\rho_m \text{Cu}(d_{ev})}{\rho_0 \text{Cu}(d_{ae})} \left(\frac{d_{ev}}{d_{ae}} \right)^2. \quad (5)$$

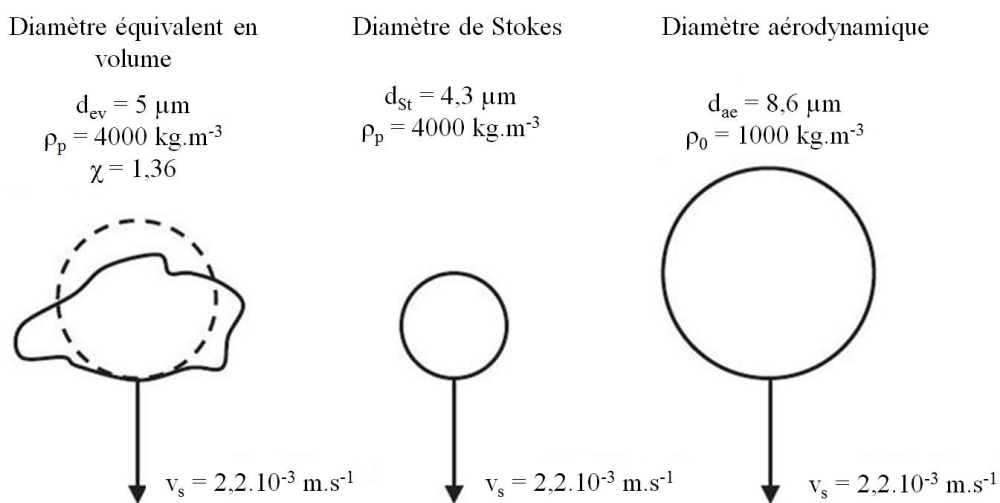


Figure 2 : Diamètres équivalents à des sphères définis par Hinds (1999). Les masses volumiques repérées ρ_p et ρ_0 correspondent respectivement à la masse volumique de la particule et standard. Le facteur de forme dynamique est noté χ et v_s est la vitesse terminale de chute de la particule

I.1.4 Comportement des aérosols

Le comportement des aérosols dans l'air est dépendant des caractéristiques du milieu en lui-même. On caractérise le milieu, notamment sa continuité par rapport à la particule en mouvement dans celui-ci, au travers d'un nombre sans dimension, le nombre de Knudsen, lequel est défini par la relation 6. La valeur de ce nombre permet de distinguer deux types fondamentaux de comportement des aérosols qui correspondent au domaine continu, lorsque $Kn \ll 1$ (loi de Stokes qui s'applique) et au domaine moléculaire pour $Kn \gg 1$ (théorie cinétique des gaz qui s'applique). Lorsque $Kn \approx 1$, le domaine n'est ni continu ni moléculaire, il est qualifié d'intermédiaire. Toutefois, la loi de Stokes s'applique toujours, comme pour le domaine continu, mais il faut y apporter un facteur de correction, le coefficient de Cunningham (défini à l'équation 10). Dans notre étude, seules les particules dont les diamètres sont dans une gamme comprise entre 0,1 et 60 μm sont considérées. Ainsi, nous présentons uniquement les relations générales qui s'appliquent au domaine intermédiaire et au domaine continu.

$$Kn = \frac{\lambda_g}{r_p}, \quad (6)$$

avec :

- λ_g : le libre parcours moyen¹,
- r_p : le rayon des particules.

Lorsque la particule chute dans l'air, sous l'effet de son propre poids (force de pesanteur), une force s'oppose à la chute, force de traînée, laquelle est définie par la loi de Stokes à l'équation 7.

$$F = \frac{6 \pi \mu_f r_p v}{Cu(d_p)}, \quad (7)$$

avec :

- μ_f : viscosité dynamique de l'air,
- v : vitesse des particules.
- $Cu(d_p)$: coefficient de Cunningham de la particule de diamètre d_p

La vitesse terminale de chute d'une particule sphérique est atteinte lorsque la force de traînée (équation 7) s'équilibre avec la force de pesanteur de la particule considérée sphérique. Cet équilibre est décrit sous forme d'équation à la relation 8.

$$\frac{6 \pi \mu_f r_p v_s}{Cu(d_p)} = \frac{4}{3} \pi r_p^3 g (\rho_p - \rho_g), \quad (8)$$

¹ Libre parcours moyen, $\lambda_g = 0,0664 \mu\text{m}$ à Température et Pression normales (TPN : $T = 0^\circ\text{C}$ et $P = 1013 \text{ hPa}$) (Baron & Willeke, 2001).

avec :

- g : accélération de la pesanteur,
- ρ_g : masse volumique de l'air, laquelle est $\ll \rho_p$. Ainsi, on peut la négliger.

La vitesse terminale de chute d'une particule de diamètre d_p dans un fluide considéré comme intermédiaire ou continu ($Kn \approx 1$ ou $Kn \ll 1$) s'exprime sous sa forme générale par la relation 9.

$$v_s = \frac{d_p^2 \rho_p g Cu(d_p)}{18 \mu_f}. \quad (9)$$

Lorsque d_p est inférieur à $1 \mu\text{m}$, en l'occurrence $0,1 \mu\text{m}$ (gamme basse de notre étude), $Kn \approx 1$. Le facteur de correction de Cunningham, défini à l'équation 10 selon Allen & Raabe (1985), permet de tenir compte du glissement des molécules de gaz à la surface des particules fines.

$$Cu(d_p) = 1 + Kn \left[A + B \exp\left(\frac{-C}{Kn}\right) \right], \quad (10)$$

avec :

- A, B et C : paramètres empiriques qui sont sensiblement différents en fonction des auteurs et des particules étudiées. Dans le tableau 2 sont reportées des valeurs de ces paramètres déterminés par Kim *et al.* (2005) et par Allen & Raabe (1985) en utilisant des billes de latex respectivement dans une gamme en taille allant de $0,02$ à $0,27 \mu\text{m}$ et de $0,8$ à $5 \mu\text{m}$.

Tableau 2 : Valeurs empiriques des paramètres nécessaires pour déterminer le facteur de correction de Cunningham. Ces coefficients ont été déterminés en utilisant des billes de latex dont la gamme de taille est précisée

Références	A	B	C	Diamètre des particules d'essais (μm)
(Kim <i>et al.</i> , 2005)	1,165	0,483	0,997	0,02 - 0,27
(Allen, & Raabe, 1985)	1,142	0,558	0,999	0,8 - 5,0

Dans le tableau 3, on reporte quelques exemples de vitesses terminales de chute calculées pour différents diamètres aérodynamiques de particules dans des conditions TPN et en utilisant les paramètres de Kim *et al.* (2005) pour les particules dont le diamètre est inférieur à $1 \mu\text{m}$.

Tableau 3 : Vitesses terminales de chute calculées pour différents diamètres aérodynamiques dans des conditions TPN et en utilisant les paramètres de Kim et al. (2005)

Diamètre aérodynamique (μm)	0,2	9	12,8	17,8
v_s ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	$2,2\cdot 10^{-6}$	$2,5\cdot 10^{-3}$	$5\cdot 10^{-3}$	$9,7\cdot 10^{-3}$

Les aérosols ont des temps de séjour dans l'air très variables qui dépendent de plusieurs paramètres, tels que le diamètre des aérosols et les conditions météorologiques (pluie, vent, etc.), (Jaenicke, 1984; Renoux & Boulaud, 1998; Roupsard, 2013). Dans la basse atmosphère et près de la surface des sols, les aérosols dont la taille est comprise entre 0,1 et 1 μm , soit ceux du mode accumulation, ont un temps de séjour dans l'air de l'ordre de la dizaine de jours (Esmen & Corn, 1971; Jaenicke, 1984; Marley, 2000; Papastefanou, 2006). En revanche, ceux des modes nucléation et grosses particules ont un temps de séjour dans l'air court, allant de quelques minutes à quelques heures. Harrison (1996) indique des temps de séjour d'environ 15 minutes pour des particules du mode de nucléation avant de se déposer sur des surfaces par diffusion brownienne (théorie cinétique des gaz) ou de grossir par agrégation et condensation. Esmen & Corn (1971) indiquent des temps de séjour, pour les grosses particules, entre 10 h et 4 jours avant de sédimenter.

Au regard de ces études, on comprend aisément qu'en fonction de la distance entre la source et le lieu de mesure, les particules mesurées feront préférentiellement partie de l'une des trois classes précédemment introduites. Par exemple, à proximité de la source, les particules mesurées représenteront logiquement les trois modes granulométriques. En revanche, à longue distance par rapport à la source, les gros aérosols seront moins nombreux pour laisser place aux aérosols du mode d'accumulation.

Dans le cadre de la thèse, les deux diamètres équivalents utilisés pour caractériser les particules seules sont le diamètre aérodynamique (d_{ae}) et le diamètre équivalent en volume (d_{ev}). Le premier est utilisé pour caractériser le diamètre d'une particule mise en suspension dans l'air tandis que le second l'est pour caractériser la particule une fois prélevée.

Étant donné l'utilisation d'aérosols (ensemble de particules), on rencontrera alors au cours du manuscrit les diamètres équivalents précédents plutôt sous les formes suivantes : le Diamètre Aérodynamique Médian en Masse ou Activité (DAMM ou DAMA) et le Diamètre Équivalent volume Médian en Masse (DE_{vMM}), accompagnés de l'écart-type géométrique (σ_g).

1.2 Propriétés physiques des aérosols radioactifs naturels et artificiels émetteurs de particules α

La matière qui nous entoure (échelle macroscopique) est constituée de molécules (échelle microscopique), elles-mêmes constituées d'atomes qui sont eux constitués de protons (Z) et de neutrons (N) formant ainsi le noyau. Dans le noyau chaque proton est porteur d'une charge positive alors que les neutrons sont neutres. Étant donné la neutralité de l'atome, il y a en plus de cet ensemble de nucléons ($A = Z + N$) autant de charges négatives (électron, e^-) que de charges positives, formant ainsi le cortège électronique du noyau.

Sur Terre la majorité des noyaux sont stables. Toutefois certains qui subsistent toujours dans l'environnement naturel sont instables, tels que l'uranium, le thorium et leur descendance. La stabilité d'un noyau est due à la neutralité dans la compétition entre les forces attractives (interaction forte qui assure la cohésion des constituants du noyau) et les forces répulsives (répulsion coulombienne). Cette neutralité est le résultat d'une répartition « adaptée » entre le

nombre de proton et de neutron qui constitue le noyau. À l'inverse, quand la répartition n'est pas « adaptée » le noyau est instable.

Les noyaux instables sont dits des radionucléides, ils se désintègrent spontanément soit directement vers un noyau stable soit vers un autre radionucléide qui lui-même se désintègre à son tour et ainsi de suite jusqu'au noyau stable. Cette désintégration spontanée modifie la configuration du noyau (nombre de nucléon) lui permettant *in fine* d'équilibrer la compétition des forces et de rendre le noyau stable. Elle est accompagnée d'une expulsion d'énergie sous la forme de rayonnements, c'est la radioactivité. Trois principaux types de rayonnements existent en fonction de la configuration interne du radionucléide qui se désintègre à savoir, le rayonnement γ (qui résulte d'une désexcitation du noyau), β (+ et -) ou bien encore α . La désintégration spontanée avec émission de particules α est celle qui retient notre attention.

1.2.1 Notions importantes de la radioactivité appliquées aux particules

1.2.1.a Période radioactive

La radioactivité est caractérisée par une loi fondamentale qui concerne la période radioactive. La période radioactive, notée $T_{1/2}$, correspond à une durée, propre au radionucléide, au bout de laquelle la population initiale de noyaux du radionucléide est diminuée de moitié. La période radioactive peut être inférieure à la microseconde pour le radionucléide ^{214}Po ou bien encore supérieure à des milliards d'années pour les radionucléides constituant la croûte terrestre (uranium, thorium).

Dans le cas d'une décroissance radioactive d'un radionucléide vers un noyau stable, la relation 11 permet de calculer l'évolution du nombre de désintégration de ce radionucléide au cours du temps. Cette équation différentielle exprime simplement le fait que le nombre de désintégrations par unité de temps est proportionnel au nombre de noyaux du radionucléide. Le signe moins (-) signifie effectivement la diminution du nombre de radionucléides au cours du temps.

$$\frac{dN(t)}{dt} = -\lambda N(t), \quad (11)$$

avec :

- $N(t)$: nombre de radionucléides présents à l'instant t ,
- λ : constante radioactive caractéristique du radionucléide défini comme $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$.

En considérant un nombre initial N_0 de radionucléides à l'instant $t = 0$ dans un échantillon, la solution de l'équation différentielle 11 est donnée par la relation 12. Celle-ci permet de tracer l'évolution telle que présentée à la figure 3 de l'évolution du nombre de noyaux d'un radionucléide au cours du temps.

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t}. \quad (12)$$

La figure 3 issue de Vaissière *et al.* (2001) illustre l'évolution exponentielle du nombre de radionucléides dans un échantillon en fonction de sa période radioactive. Pour un radionucléide se désintégrant par transition α , chaque désintégration spontanée est accompagnée d'une émission de

particule α , ainsi le nombre d'émission de particule α évolue de la même manière que le nombre de radionucléides dans l'échantillon.

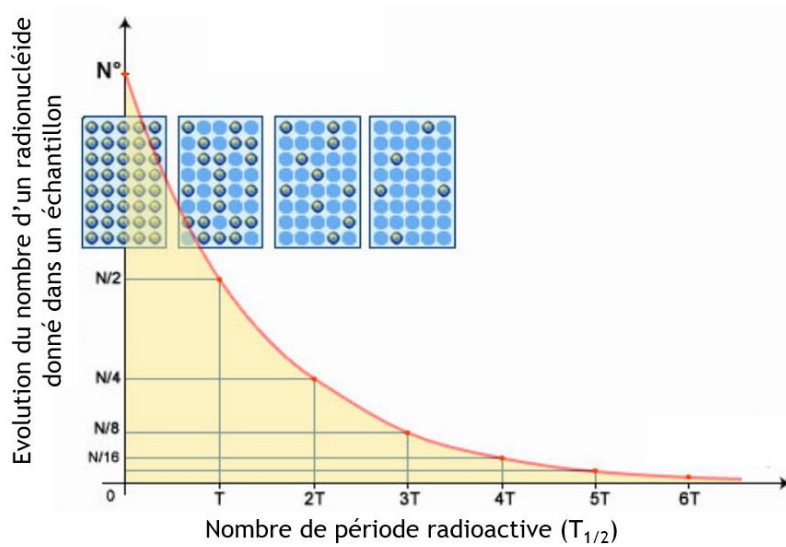


Figure 3 : Évolution exponentielle du nombre d'un radionucléide donné en fonction de sa période radioactive ($T_{1/2}$) dans un échantillon (Vaissière et al., 2001)

Ainsi, l'évolution de l'activité d'un échantillon de radionucléide au cours du temps se calcule à l'aide de la relation 13. Celle-ci quantifie le nombre de désintégration et donc le nombre d'émission de particule α par unité de temps.

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t}, \quad (13)$$

avec :

- A_0 : activité initiale de l'échantillon qui se calcule comme suit : $A_0 = \lambda N_0$.

Le problème se complexifie dès lors que le radionucléide est lui-même issu d'un radionucléide. Dans ce cas, on parle de produit de filiation et de chaîne de désintégration. Un modèle mathématique, formulé par Bateman (1910), permet cependant de décrire l'évolution du nombre, ou de l'activité d'un produit de filiation au cours du temps.

1.2.1.b Désintégration spontanée α

La désintégration spontanée α est un processus durant lequel un radionucléide, sous l'effet d'une répulsion coulombienne devenue trop importante, se désintègre en émettant une particule α . La particule α correspond à un noyau d'hélium, noté ${}^4\text{He}^{2+}$.

La désintégration spontanée α est principalement présente chez les noyaux lourds dont le nombre de nucléon (noté $A = Z+N$) (CETAMA, 2012), elle s'écrit selon la relation 14 où X et Y correspondent respectivement à l'atome initial et final

$${}^A_ZX = {}^{A-4}_{Z-2}Y^{2-} + {}^4_2\text{He}^{2+} + Q_\alpha, \quad (14)$$

avec Q_α le bilan énergétique de la désintégration spontanée α . Les valeurs de bilan énergétique sont disponibles dans la table des radionucléides du Laboratoire National Henri Becquerel (2015).

Lors de la désintégration α de l'énergie est libérée (Q_α). Celle-ci est partagée entre l'atome fils, correspondant à Y dans la relation 14, (sous forme d'énergie cinétique de recul, notée E_{recul}), la particule α (E_α) et l'émission de photons gamma (E_γ) dans le cas où le noyau fils se retrouve dans un état excité après la désintégration. Il faut noter que l'énergie de désexcitation du noyau fils (désexcitation γ) peut également se traduire par l'éjection d'électrons de conversion, processus en compétition avec celui de l'émission de photons gamma. Ce partage est décrit par la relation 15.

$$Q_\alpha = E_\alpha + E_{\text{recul}} + E_\gamma. \quad (15)$$

Étant donné une masse significativement plus importante pour l'atome fils que pour la particule α , la plupart de l'énergie libérée au moment de la désintégration est emportée par la particule α , mais l'énergie de recul n'est pas négligeable. La relation 16 permet de calculer l'énergie cinétique emportée par la particule α pour une désintégration spontanée donnée (CETAMA, 2012). Dans le cas où l'atome fils reste dans son état fondamental, alors $E_\gamma^* = 0$. L'énergie cinétique emportée par les particules α , émises à la suite des désintégrations spontanées α , est généralement comprise entre 4 et 8 MeV.

$$E_\alpha = \frac{m_y}{m_y + m_\alpha} (Q_\alpha - E_\gamma^*), \quad (16)$$

avec :

- m_y : masse du noyau fils,
- m_α : masse de la particule α ,
- E_γ^* : énergie de transition gamma.

Dès les débuts des études sur les particules α , Geiger & Nutall (1911) ont remarqué une corrélation entre le parcours² (R_α) et la période radioactive ($T_{1/2}$) des radionucléides. Cette corrélation est formulée à la relation 17. On constate alors que plus la période radioactive est grande, plus $\ln \lambda$ est petit et conduit alors le parcours R_α à de petites valeurs.

¹ Les énergies de transitions gamma sont disponibles dans des tables renseignées par un groupe de travail international nommé Decay Data Evaluation Project (DDEP). Ces tables sont mises à jour et trouvables sur le site du LNHb à l'adresse suivante : <http://www.lnhb.fr/donnees-nucleaires/donnees-nucleaires-tableau/>. Le site du National Nuclear Data Center (adresse : <https://www.nndc.bnl.gov/ensdf/ensdf/ensdf.jsp>) dispose également de ces énergies.

² Correspond à la distance parcourue par la particule α durant son trajet. Cette notion est détaillée au cours du chapitre II.

$$\ln R_\alpha = \frac{1}{a} (\ln \lambda - b), \quad (17)$$

avec :

- a et b des coefficients constants dont la valeur est déterminée expérimentalement de sorte à ajuster le modèle aux données expérimentales.

Durant leurs expériences, Geiger & Nutall (1911) ont aussi constaté que le parcours des particules α était aussi corrélé avec l'énergie de ces dernières par une relation de type $R_\alpha = k E_\alpha^{1,5}$ (dans l'air), avec k un paramètre empirique. Finalement, en remplaçant dans la relation 17, la formulation de R_α , on obtient la relation 18. Sous cette forme, on constate que plus la période radioactive du radionucléide (émetteur de particules α) est grande et moins l'énergie cinétique de la particule α , emportée au moment de la désintégration, est élevée. Cette corrélation est une caractéristique unique de la désintégration spontanée α (Knoll, 2010; L'Annunziata, 2016).

$$\ln E_\alpha = \frac{2}{3} (\ln k + a + b \ln \lambda), \quad (18)$$

I.2.2 Aérosols radioactifs naturels émetteurs de particules α

La figure 4 d'après la CIPR 66 (1994) illustre en proportion les sources de radioactivité naturelles et anthropiques auxquelles la population est exposée au cours d'une vie. On constate alors que la population est en grande majorité exposée à la radioactivité naturelle, qui comprend le radon (55 %), les rayons cosmiques (8 %) et telluriques (19 %).

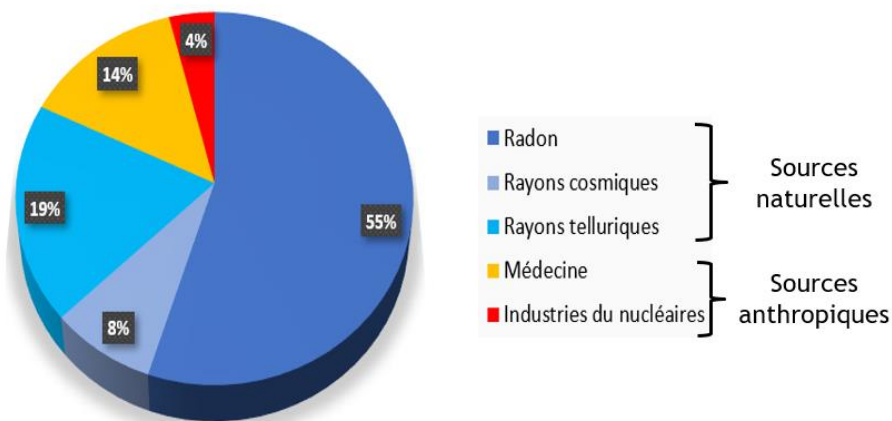


Figure 4 : Sources de radioactivité naturelles et anthropiques auxquelles est confrontée la population selon la CIPR 66 (1994)

Dans l'environnement, les habitations, les locaux de travail, etc., la majorité de la radioactivité α mesurée est aussi d'origine naturelle. Elle provient de deux radionucléides à l'état gazeux, à savoir le radon (^{222}Rn) et le thoron (^{220}Rn). Ces radionucléides se désintègrent selon leur période radioactive produisant de nouveaux radionucléides mais à l'état solide. Ces radionucléides solides peuvent se fixer aux aérosols présents dans l'air formant ainsi les aérosols radioactifs naturels. Ces derniers ont les mêmes propriétés physiques que les aérosols ambiants présentés au cours de la

première partie, par conséquent leur comportement dans l'air est identique (Hoover, 2011). Pour ces raisons, les aérosols radioactifs naturels émetteurs de particules α constituent le bruit de fond radioactif de l'atmosphère et représentent dans de nombreux pays la seconde cause du cancer des poumons derrière le tabagisme (IARC 1998; NAS/NRC 1999; WHO 2009; ICRP 2010, 2014).

I.2.2.a Origine des gaz radioactifs naturels : le radon et le thoron

À l'origine de la production des gaz radioactifs naturels se trouvent les éléments primordiaux qui constituent la croûte terrestre, à savoir l'uranium (^{238}U) et le thorium (^{232}Th). À la figure 5 les chaînes de désintégrations radioactives successives de l'uranium (à gauche) et du thorium (à droite) en quête d'un noyau stable sont schématisées. Sous chaque radionucléide est reportée la période radioactive, allant de quelques milliards d'années à quelques secondes.

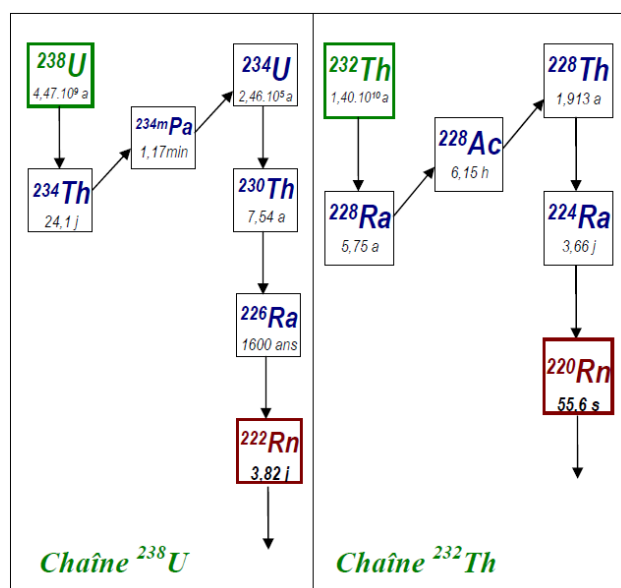


Figure 5 : Chaînes de désintégrations radioactives de l'uranium (^{238}U) et du thorium (^{232}Th) qui engendrent respectivement le radon (^{222}Rn) et le thoron (^{220}Rn). Les périodes radioactives ($T_{1/2}$) sont également reportées sous chaque radionucléide. La figure est issue de Nguyen (2012)

Les isotopes ^{222}Rn et ^{220}Rn sont alors produits après un certain temps de désintégration radioactive issus respectivement de l'uranium et du thorium. Contrairement à leurs parents qui sont des radionucléides solides et qui de fait restent emprisonnés dans la croûte terrestre (sans action mécanique extérieure), le ^{222}Rn et le ^{220}Rn sont eux à l'état gazeux. L'exhalaison de ces derniers hors de la croûte terrestre devient possible sous certaines conditions qui régissent les divers mécanismes en amont de l'exhalaison, à savoir l'émanation et la diffusion/convection. L'émanation correspond à la production des noyaux de radon/thoron dans les pores du milieu (ils sont alors mobilisables) alors que la diffusion/convection transporte ces noyaux ainsi mobilisables conduisant *in fine* à leur exhalaison à l'air libre. Les trois mécanismes sont représentés à la figure 6 traduite de Wicke (1979).

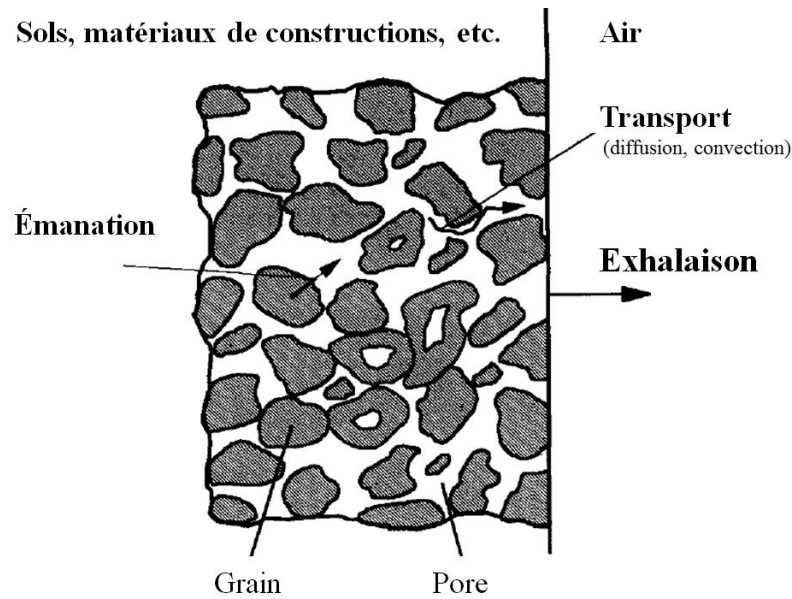


Figure 6 : Schéma des mécanismes qui engendrent l'exhalaison des gaz de radon et de thoron hors des sols. La figure est traduite et issue de Wicke (1979)

Megumi & Mamuro (1974) ont d'abord mis en évidence, à la figure 7, la dépendance de l'exhalaison du radon et du thoron à teneur en eau dans le matériau en utilisant des grains de granite de différentes tailles. On constate que le taux d'exhalaison est positivement corrélé avec la teneur en eau jusqu'à une valeur limite puis décroît. Par contre, la valeur limite est dépendante de la taille des grains qui constituent le sol. Effectivement, dans le cas où les grains ont un diamètre moyen de 20 μm , la valeur limite est atteinte pour une teneur en eau d'environ 5 - 10 % alors qu'elle l'est à moins de 5 % lorsque les grains sont de 230 μm de diamètre. Bien que l'évolution du taux d'exhalaison semble suivre une tendance similaire quelle que soit la taille des grains, il est en revanche plus important, d'un facteur supérieur à deux, lorsque les grains sont plus petits d'un facteur environ dix.

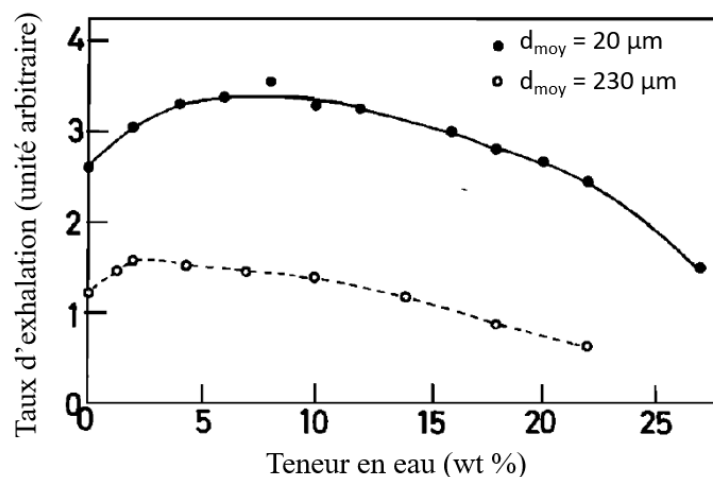


Figure 7 : Taux d'exhalation du thoron en fonction de la teneur en eau d'un sol simulé à partir de grains de granite. Les disques pleins représentent les résultats obtenus pour un sol simulé avec des grains de diamètre moyen (d_{moy}) de 20 μm et de 230 μm pour les cercles. Figure traduite issue de Megumi & Mamuro (1974)

L'émanation seule est le couplage de deux mécanismes, à savoir le mécanisme de recul et le mécanisme de diffusion. Le mécanisme de recul (lié à l'énergie de recul emportée par le noyau fils discutée à la section I.2.1.b) est illustré à la figure 8 d'après Tanner (1964). Il permet au noyau de radon/thoron, initialement piégé dans un grain de roche, d'être « éjecté » dans un interstice où le mécanisme de diffusion prend le relai pour le transporter hors du sol. Nous ne discuterons toutefois pas en détails de ces mécanismes ici, seule l'émanation dans sa globalité est présentée.

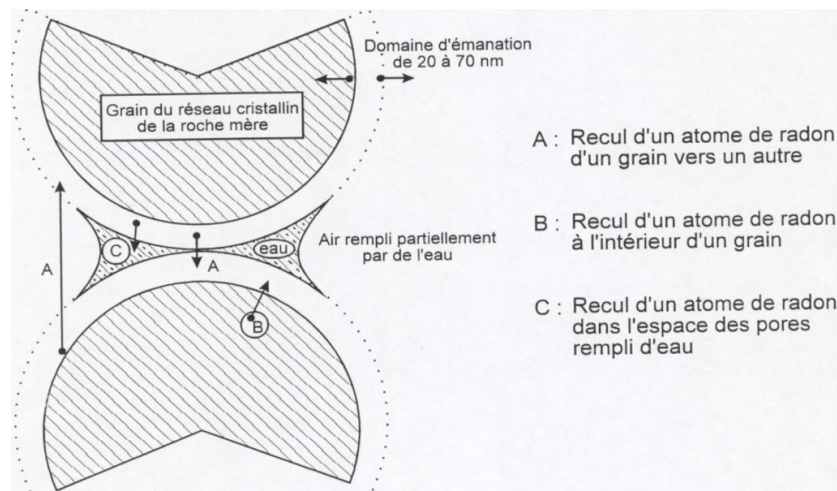


Figure 8 : Illustration du mécanisme de recul présent dans l'émanation d'après Tanner (1964)

Celui-ci a été étudié par de nombreux auteurs, tels que (Baretto, 1973; Bossew, 2003; Megumi & Mamuro, 1974; Meslin, 2008; Shashkin & Prutkina, 1970; Stranden *et al.*, 1984; Strong & Levins, 1982), qui s'accordent tous à montrer l'importance de la teneur en eau (par unité de masse) dans le sol sur le taux d'émanation. Les mesures expérimentales menées par Strong & Levins (1982) et Folkerts (1983) respectivement sur des déchets d'une mine d'uranium et les matières primaires pour la construction de bâtiment ont montré un taux d'émanation très faible lorsque la teneur en eau est inférieure à 5 %. Meslin (2008) montre lui aussi à la figure 9 un taux d'émanation du radon qui décroît significativement pour des teneurs en eau inférieure à 10 %. Au-delà, le taux d'émanation augmente jusqu'à une valeur limite qui correspond à une teneur en eau environ égale à 10 %.

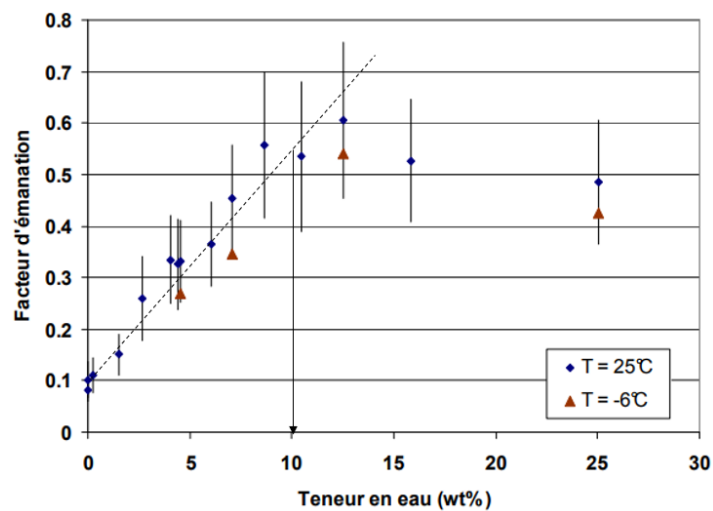


Figure 9 : Dépendance du taux d'émanation du radon à l'humidité relative et à la température mesurée expérimentalement par Meslin (2008)

Suite à l'émanation des noyaux de radon/thoron, le mécanisme de diffusion, selon la loi de Fick, contrôlé par les gradients de concentrations du mélange et le mécanisme de convection induit par les différences de pressions (loi de Darcy) transportent les noyaux mobilisables hors des sols. Étant donné que ces différents mécanismes ne constituent pas en tant que tel le point fort de l'étude menée au cours de la thèse de doctorat, nous nous limitons ici à leur simple présentation. Par contre, pour le lecteur intéressé, Porstendörfer (1994) présente un nombre important et détaillé d'informations à ce sujet. Finalement, le taux d'exhalaison (en $\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$), qui dépend de l'ensemble des mécanismes présentés précédemment, peut être décrit par la relation 19 (Porstendörfer, 1994). La constante radioactive λ , plus grande pour le thoron que le radon, engendre *in fine* un taux d'exhalaison d'un facteur environ 100 fois plus grand en faveur des noyaux de thoron. Les études expérimentales menées entre autres par Folkerts (1983) et de Wicke *et al.* (1978) et synthétisés par Porstendörfer (1994) sont en accord avec cet écart. Toutefois, il faut garder à l'esprit que le taux d'exhalaison est dépendant de nombreux mécanismes qui eux-mêmes sont dépendants de paramètres liés aux sols mais aussi aux conditions atmosphériques.

$$e = \epsilon_e a_B \rho_m \lambda R_B, \quad (19)$$

avec :

- ϵ_e : taux d'émanation,
- ρ_m : masse volumique du matériau,
- a_B : activité spécifique,
- λ : constante radioactive du radionucléide,
- R_B : longueur de diffusion.

Une fois les noyaux de radon et de thoron hors des sols ces derniers n'ont pas pour autant fini leur périple puisque le mécanisme de diffusion s'applique toujours et tend naturellement à homogénéiser les concentrations. Dans l'air la concentration moyenne en radon est plus élevée que celle en thoron et ce bien que d'une part l'abondance, dans la croûte terrestre, du thorium soit environ trois à quatre fois supérieure à celle de l'uranium (Tchorz-Trzeciakiewicz & Kłos, 2017) et que d'autre part le taux d'exhalaison lui soit environ 100 fois défavorisant. Ceci s'explique toutefois très bien encore une fois en tenant compte des périodes radioactives des deux radionucléides. Le radon est alors plus longuement affecté par le mécanisme de diffusion ce qui engendre une meilleure homogénéisation de ce gaz dans le milieu. Hosoda *et al.* (2017) a étudié l'évolution spatiale de la concentration en radon et en thoron en fonction de la distance d'une paroi dans une chambre de mesure modèle. Les résultats reportés à la figure 10 mettent en évidence une décroissance rapide de l'activité volumique en thoron dès lors qu'on s'éloigne de la paroi, alors que l'activité volumique en radon est stable (concentration homogène).

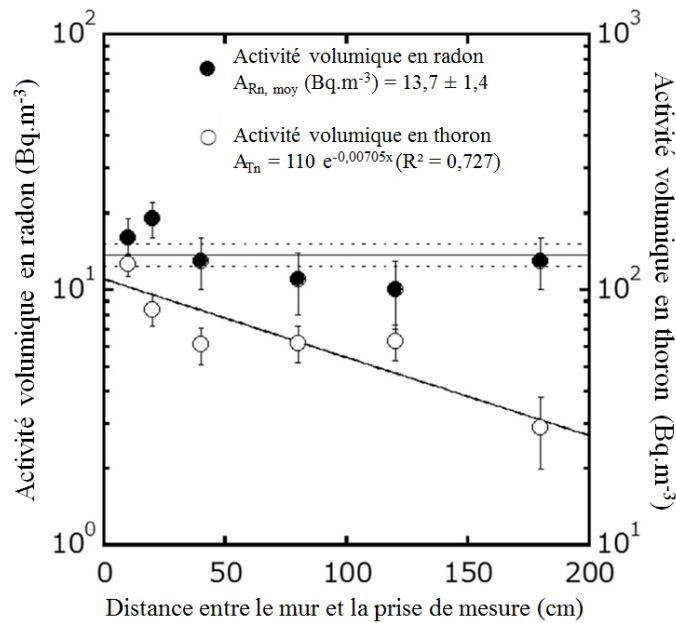


Figure 10 : Distribution spatiale des activités en radon et thoron dans une chambre de mesure modèle. La figure est traduite et est issue d'Hosoda et al. (2017)

Urosevic et al. (2008) montrent eux aussi mais de manière théorique, à travers la figure 11, une décroissance exponentielle de la concentration en thoron lorsqu'on s'éloigne de la paroi. Ces résultats sont obtenus dans une condition de ventilation à flux laminaire.

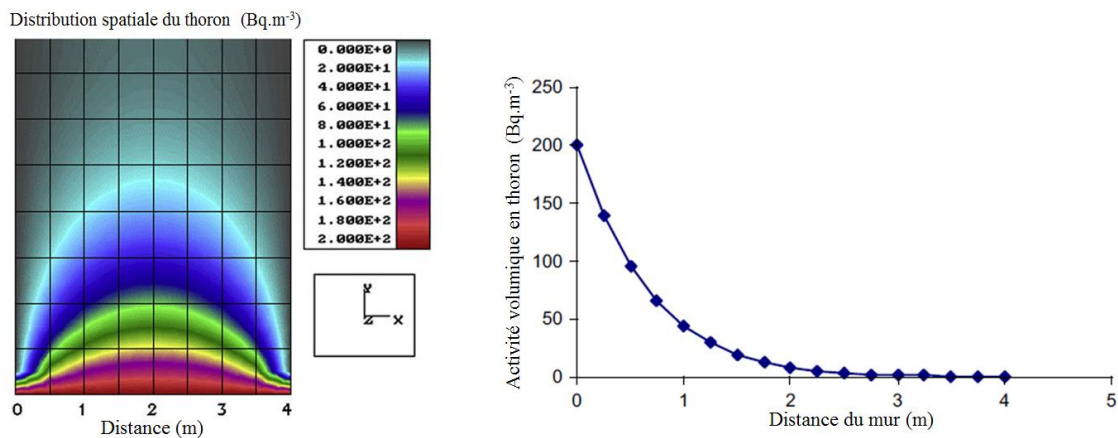


Figure 11 : Évolution de l'activité volumique en thoron en fonction de la distance du mur d'où il est émis. La figure est traduite et extraite de Urosevic et al. (2008)

Dans les milieux nucléarisés la concentration en radon est très variable en fonction des conditions extérieures et de la nature des sols et des murs. En air calme¹ mais filtré, comme on peut typiquement le retrouver dans les installations nucléaires, elle varie généralement entre 0,1 et 100 Bq.m⁻³ (IEC 61578, 1997). Dans la littérature, il est considéré une concentration moyenne pour le radon comprise entre 10 et 40 Bq.m⁻³ et pour le thoron environ égale à 10 Bq.m⁻³ (UNSCEAR, 1993, 2000).

¹ Des études de terrain menées dans différents environnements de travail par Baldwin & Maynard (1998) et Berry & Froude (1989) ont révélées que les vitesses d'air dans les atmosphères de travail sont en majorité relativement faibles, comprises entre 0,05 et 0,5 m.s⁻¹. Ces faibles vitesses permettent de qualifier l'air comme étant calme.

I.2.2.b Produits de filiation du radon et du thoron

Des gaz diffusés dans l'air s'en suivent de nouvelles désintégrations produisant des radionucléides mais qui sont cette fois à l'état de solide. Ces radionucléides sont issus des chaînes radioactives présentées à la figure 12 issue de Chisté *et al.* (2008) et de Bé *et al.* (2013), respectivement pour le radon (^{222}Rn) et le thoron (^{220}Rn). Sur cette même figure sont aussi reportées les périodes radioactives des radionucléides (en violet), le type de désintégration (α ou β) et l'énergie α emportée par la particule au moment de la désintégration α (en rouge). Les flèches en rouge pour la décroissance du radon tracent les chaînes de désintégrations radioactives majoritaires.

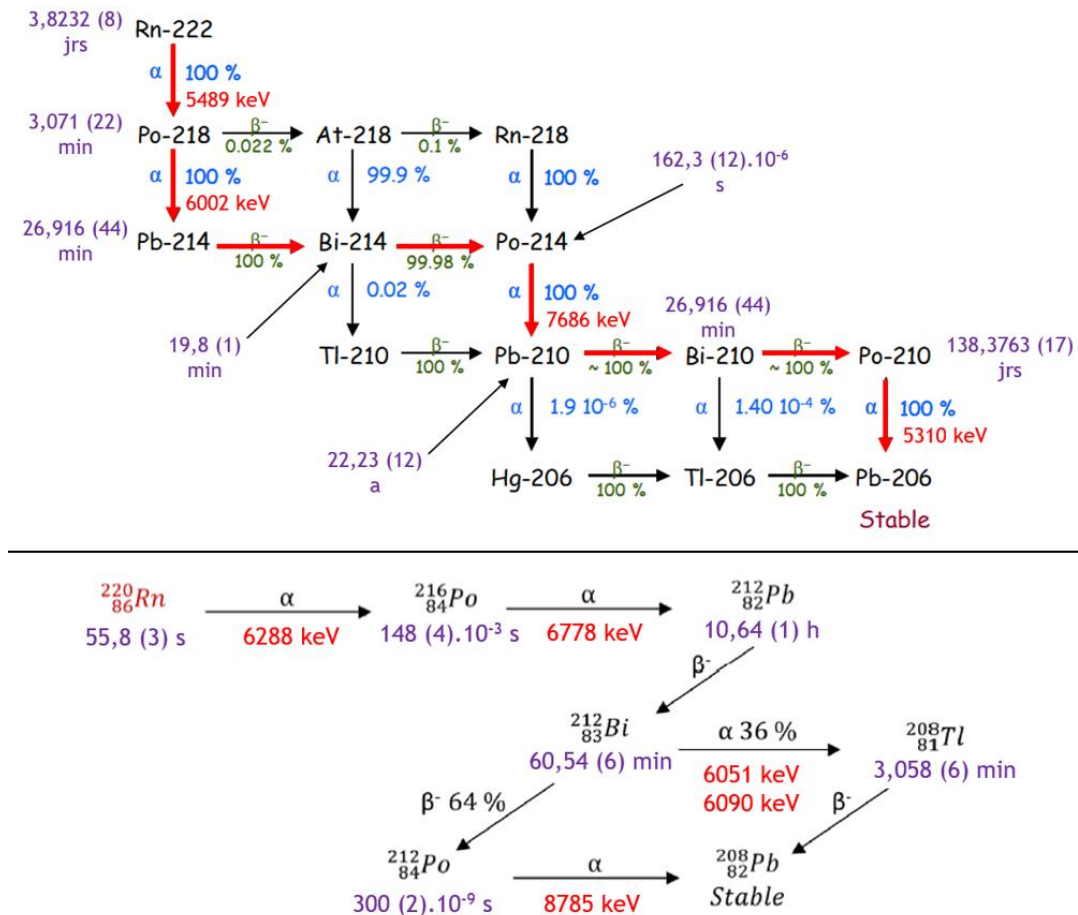


Figure 12 : Chaînes de décroissances radioactives du radon en haut et du thoron en bas issues respectivement de Chisté *et al.* (2008) et de Bé *et al.* (2013). Les énergies E_α (en keV) sont reportées en rouge et les périodes radioactives en violet. Les flèches en rouge pour la décroissance du radon tracent les chaînes de désintégrations radioactives majoritaires.

Ces produits de filiation sont mesurables sous deux configurations distinctes qui, soit restent en suspension dans l'air, soit se déposent sur une surface (sols, murs), via différents mécanismes (diffusion, lessivage, sédimentation, etc.). Ces deux configurations correspondent à :

- la **fraction libre** : composée de produits de filiation récemment émis et qui réagissent rapidement (< 1 seconde) avec les traces de gaz et vapeurs dans l'air formant ainsi des *clusters* de molécules (figure 13). Il s'agit d'un ensemble radioactif de taille nanométrique caractérisé par un Diamètre Aérodynamique Médian en Activité (DAMA) allant de 0,5 à 5 nm (El-Hussein & Ahmed, 1995; Huet, Tymen, & Boulaud, 1998; Malet, 1997; Michielsen & Tymen, 2007; Porstendörfer, 1994; Porstendörfer, Pagelkopf, & Gründel, 2005).

- la **fraction attachée** : composée de clusters radioactifs qui se sont attachés (dans un laps de temps allant de 1 à 100 secondes) à des particules en suspension déjà existantes dans l'air (figure 13), formant ainsi des aérosols radioactifs ayant un DAMA généralement compris entre 0,08 μm et 1 μm en fonction des conditions météorologiques (El-Hussein & Mohammed, 1998; Grundel & Porstendörfer, 2004; Mohammed, El-Hussein, & Ali, 2000; Paatero, Ioannidou, Ikonen, & Lehto, 2017; Papastefanou & Bondietti, 1987; Robé, Rannou, Le Bronec, & Tymen, 1990).

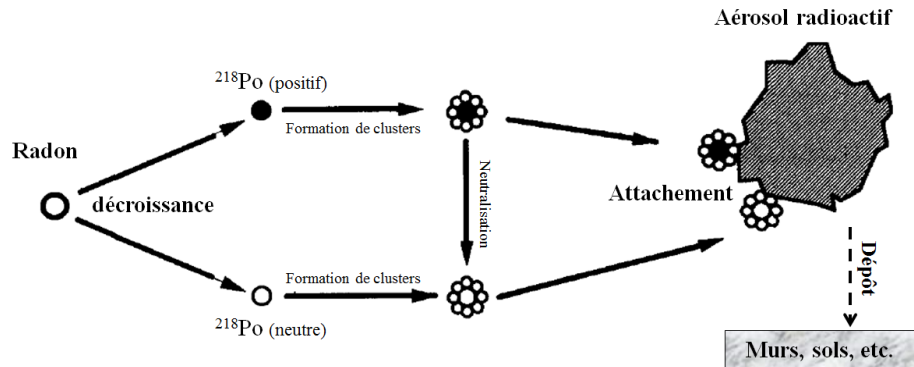


Figure 13 : Figure traduite de Porstendörfer (1994) schématisant les différentes étapes de « vie » d'un produit de filiation (^{218}Po) du radon, lequel est émis dans l'air

Ces deux fractions distinctes en taille le sont aussi en termes de pourcentage entre elles. Le paramètre qui influe sur le ratio fraction libre/attachée est le taux d'attachement, souvent noté λ_a (Papastefanou, 2008). Ce paramètre est positivement corrélé avec la concentration numérique des particules (cm^{-3}) présentes dans l'air (Kruger & Andrews, 1976; Kruger & Nöthling, 1979; Porstendörfer & Mercer, 1978; Porstendörfer & Reineking, 2000). Plus la concentration numérique en particules dans l'air est grande, plus le taux d'attachement l'est et par effet inverse plus la fraction libre (notée f_p) diminue (figure 14). Celle-ci peut être estimée pour les descendants du radon par la relation empirique 20. Vargas *et al.* (2015) montrent eux une augmentation de la fraction attachée d'environ 20 % (donc une diminution d'autant de la fraction libre) corrélée avec la fumée de cigarettes faisant passer la concentration en particules de 10^4 à $5 \cdot 10^4 \text{ part.cm}^{-3}$ avec un mode à 30 nm.

$$f_{p,Rn} = \frac{414}{C}, \quad (20)$$

avec C la concentration numérique en particules.

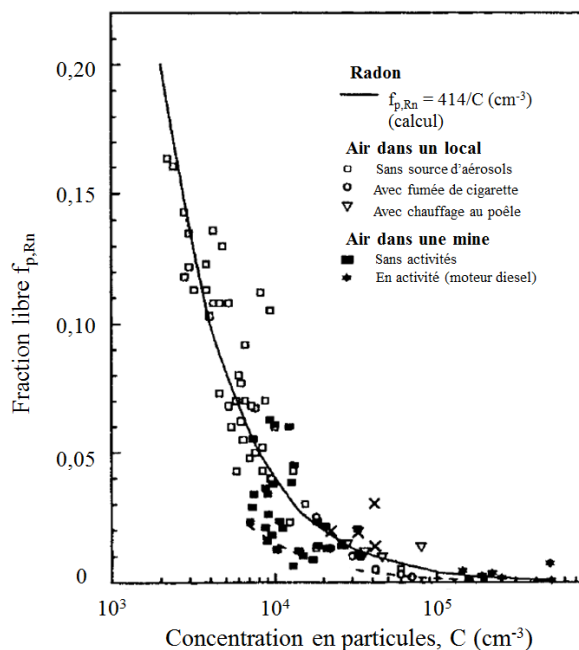


Figure 14 : Évolution de la fraction libre du radon (noté $f_{p,Rn}$) en fonction de la concentration numérique en particules (part.cm^{-3}). La figure est traduite et issue de Papastefanou (2008)

Ainsi, on peut par exemple s'attendre à un taux de fraction attachée élevé (supérieur à 80 %) dans un local où une opération basique (découpe, nettoyage, etc.) conduit à mettre en suspension une concentration importante en fine particules.

1.2.2.c Facteur d'équilibre

Le facteur d'équilibre (noté F_{eq}) sert à définir la qualité de l'équilibre de la concentration des produits de filiation du radon émetteurs de particules α (^{218}Po , ^{214}Po , etc.) par rapport à la concentration du gaz radioactif lui-même. Ce paramètre est nécessaire dès lors que l'on souhaite estimer les doses absorbées par le système respiratoire liées au radon. Effectivement, le fait d'inspirer puis d'expirer un gaz radioactif influe très peu sur la dose délivrée au système respiratoire. Par contre, les aérosols radioactifs (fraction attachée) une fois inhalés, peuvent se déposer plus ou moins profondément dans le système respiratoire et de ce fait contribuer à délivrer la majeure partie de la dose (Harley, 2018). De nombreuses études ont été menées par (Hou *et al.*, 2015; Jasaitis & Girgzdys, 2013; Khan *et al.*, 2012) dans des environnements très variées en extérieurs et en intérieurs et ont montré l'influence qu'ont les conditions atmosphériques sur la valeur du facteur d'équilibre. Par exemple, Jasaitis & Girgzdys (2013) a mesuré une corrélation positive de F_{eq} avec la concentration numérique de particules dans l'air, passant de 0,35 à 0,72 pour une concentration numérique d'environ 10^3 particules. cm^{-3} à 10^4 particules. cm^{-3} respectivement. Soit une augmentation d'un facteur deux du paramètre F_{eq} pour une augmentation de la concentration numérique d'un facteur 10. Swedjemark (1983) a mesuré des valeurs moyennes de F_{eq} égales à 0,51 et 0,33 dans des locaux où les taux de renouvellement (ventilation) sont respectivement faibles ($< 0,3 \text{ h}^{-1}$) et plus importants ($> 0,6 \text{ h}^{-1}$). Ainsi, de l'ensemble des études menées par divers auteurs et qui sont synthétisées par Jing & Harly (2018), il ressort que le facteur d'équilibre évolue positivement avec l'augmentation de la concentration numérique de particules dans l'air et négativement avec l'augmentation du taux de renouvellement d'air (ventilation) dans les locaux. L'UNSCEAR (2008) donne des valeurs de F_{eq} pour l'intérieur et l'extérieur respectivement égales à 0,4 et 0,6. Pour l'évaluation des performances d'un instrument qui mesure la contamination radioactive atmosphérique, le F_{eq} est conventionnellement fixé à 0,15 pour reproduire une condition d'un local fortement ventilé et où l'air est filtré.

1.2.3 Aérosols radioactifs artificiels émetteurs de particules α

Dans l'environnement, les aérosols radioactifs artificiels ne sont présents qu'en très petites quantités, sous forme de traces. Ils font, entre autres, suite aux accidents nucléaires tels que Tchernobyl, Fukushima (IRSN, 2011), etc. ainsi qu'aux retombées radioactives des essais nucléaires. En outre, la production contrôlée d'aérosols radioactifs artificiels est possible selon des procédés établis comme par exemple la nébulisation d'une solution contenant un radionucléide artificiel. La remise en suspension accidentelle d'aérosols radioactifs artificiels, lors par exemple de la réalisation d'opérations basiques (découpe, nettoyage, etc.) sur des matériaux contaminés en amont, est aussi possible. Finalement, on comprend bien ici que le risque d'être confronté à un aérosol radioactif artificiel, bien que minime, est très localisé aux zones de travail qui sont nucléarisées.

1.2.3.a Aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement

Dorrian (1997) en synthétisant 181 mesures de 21 publications a tracé à la figure 15 une distribution cumulée qui regroupe tous les aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement sans avoir connaissance de l'origine ou du mécanisme de production de ces derniers. Cette distribution met en avant une valeur « par défaut » du DAMA et de l'écart-type géométrique respectivement de $1,5 \mu\text{m}$ et de 2,9. Cet écart-type géométrique très important met en avant une possibilité que la distribution ne soit pas monomodale.

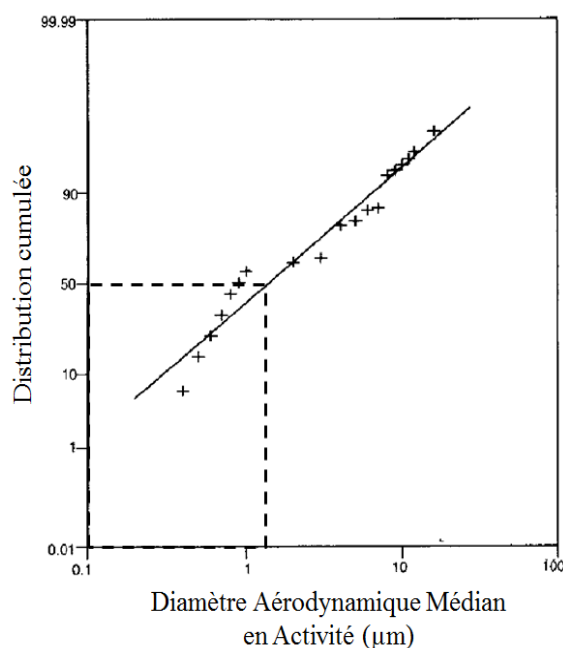


Figure 15 : Distribution cumulée d'aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement sans avoir connaissance de leur origine et du mécanisme de production (Dorrian, 1997)

Effectivement, en distinguant d'une part les aérosols radioactifs artificiels issus des retombées dans l'environnement et d'autre part ceux remis en suspension, Dorrian (1997) en utilisant les mesures des 21 publications, trace deux distributions cumulées reportées à la figure 16. La distribution cumulée des aérosols radioactifs artificiels, provenant essentiellement de Tchernobyl, retombés dans l'environnement présente un DAMA de $0,64 \mu\text{m}$ pour un écart-type géométrique de 1,5. La distribution cumulée des aérosols radioactifs artificiels issus de diverses sources (Tchernobyl, essais nucléaires, etc.) et remis en suspension dans l'environnement présente un DAMA de $6 \mu\text{m}$ pour un écart-type géométrique de 1,9.

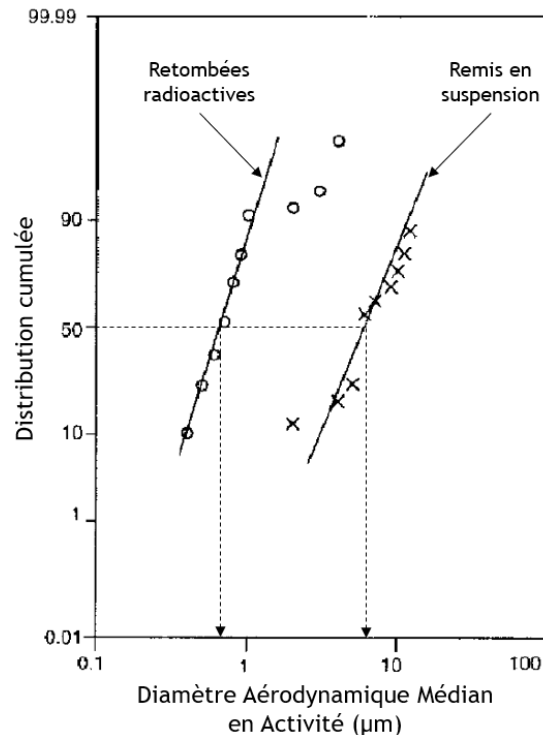


Figure 16 : Distributions cumulées (à gauche) des aérosols radioactifs émis dans l'atmosphère à la suite de l'accident survenu à la centrale nucléaire de Tchernobyl et retombés dans l'environnement, (à droite) des aérosols radioactifs provenant de diverses sources (Tchernobyl, essais nucléaires, etc.) et remis en suspension dans l'environnement. Le DAMA et l'écart-type géométrique sont respectivement de 0,64 μm et 1,5 pour les aérosols retombés et de 6 μm et 1,9 pour les aérosols remis en suspension dans l'environnement. Figure extraire de Dorrian (1997)

Garger *et al.* (2006) ont mené une campagne de mesures durant la période de 1996 à 1999 pour caractériser les aérosols radioactifs remis en suspension proche de la centrale nucléaire de Tchernobyl. Les aérosols radioactifs mesurés, marqués au plutonium, présentent un DAMA variant entre 3,5 et 11 μm . Les résultats obtenus sont en accord avec ceux présentés précédemment en ce qui concerne les aérosols remis en suspension dans l'environnement.

En revanche, les différences significatives de DAMA entre les aérosols radioactifs artificiels remis en suspension dans l'environnement et ceux issus des retombés dans l'environnement s'expliquent notamment par la distance à laquelle sont effectuées les mesures par rapport au lieu d'émission. Ces distances sont à l'échelle de pays pour les mesures des retombées alors que les remis en suspension sont mesurés à distances « réduites » des sources. Effectivement, dans la première partie de ce chapitre nous l'avons vu, les particules de diamètres entre 0,1 et 1,5 μm peuvent rester jusqu'à 10 jours en basse atmosphère et par la même occasion être transportées sur de longues distances. A l'inverse celles dont le diamètre est supérieur à 2 μm sédimentent en quelque heure maximum ce qui ne leur permet pas d'être transporté à longue distance.

L'ICRP Publication 66 (1994) qui évalue le transport des aérosols radioactifs dans le système respiratoire utilise un DAMA de 1 μm pour les aérosols radioactifs artificiels provenant de l'environnement.

I.2.3.b Aérosols radioactifs artificiels mesurés dans l'environnement direct de travail

En effectuant une synthèse de résultats provenant de 52 publications Dorrian & Bailey (1995) ont tracé à la figure 17 trois distributions cumulatives d'aérosols radioactifs artificiels dont les valeurs de DAMA et d'écart-types géométriques associées sont reportées dans le tableau 4. Ces aérosols ont été mesurés sur trois lieux de travail différents, en usines de traitement de l'uranium, en centrales nucléaires et en centres de stockage du combustible et pour différentes activités réalisées telles que la découpe de matériaux, la décontamination, le forage, des opérations diverses en boîte à gants, etc. À chacun de ces milieux sont associés des radionucléides artificiels qui correspondent respectivement aux uranifères (^{238}U , ^{232}Th , etc.), aux transuraniens (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu et ^{241}Am) et à un mélange des deux.

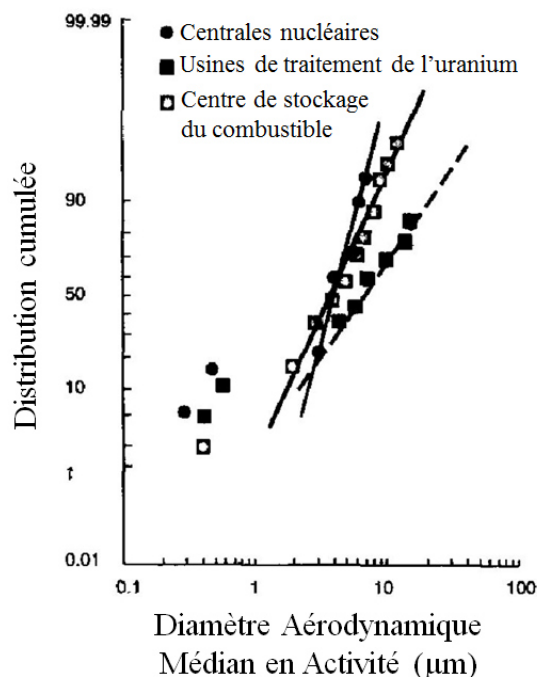


Figure 17 : Distributions cumulatives des aérosols radioactifs artificiels mesurés en zone de travail (centrales nucléaires, usines de traitement de l'uranium, centre de stockage du combustible) pour différentes opérations réalisées (Dorrian & Bailey, 1995).

Tableau 4 : Diamètres aérodynamiques médians en activité des aérosols radioactifs artificiels mesurés dans différents environnements de travail et pour différentes activités réalisées (Dorrian & Bailey, 1995)

Environnement de travail	DAMA (μm)	Écart-type géométrique (σ_g)
Usines de traitement de l'uranium	6,8	2,4
Centrales nucléaires	3,9	1,4
Centre de stockage (déchets/combustibles)	3,8	1,8

Cheng *et al.* (2004) ont caractérisé les aérosols de plutonium rejeté accidentellement hors d'une boîte à gants où avait lieu leur production par nébulisation d'une solution contenant le radionucléide. La distribution granulométrique à la figure 18 a été tracée à partir de laquelle un DAMA de $4,7 \mu\text{m}$ pour un écart-type géométrique (σ_g) de 1,4 est déduit. Ces derniers caractérisent

l'aérosol radioactif artificiel rejeté en zone proche de travail qui correspond finalement à ce que le procédé de nébulisation génère.

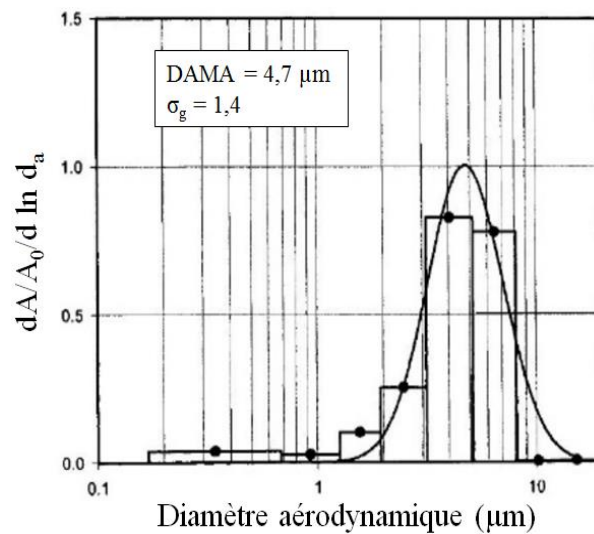


Figure 18 : Distribution granulométrique de l'aérosol de plutonium rejeté accidentellement hors de la boîte à gants où la production par nébulisation avait lieu. Une loi log-normale de paramètre DAMA (4,7 µm) et σ_g (1,4) est ajustée sur la distribution granulométrique (Cheng et al., 2004)

L'ensemble des mesures sur les aérosols radioactifs artificiels produits dans les environnements directs de travail met en avant des valeurs de DAMA élevés, supérieurs à 3 µm. La granulométrie des aérosols est très dépendante de l'opération réalisée et de l'outil utilisé. Les valeurs de granulométries élevées ne sont ainsi pas étonnantes au regard de la proximité du lieu d'émission à laquelle les mesures ont été menées.

L'ICRP Publication 66 (1994) utilise un DAMA de 5 µm pour évaluer les trajectoires et *in fine* les zones de dépôts des aérosols radioactifs artificiels pour les travailleurs susceptibles d'être confrontés à ce type d'atmosphère. Le choix de cette valeur tient effectivement compte de l'ensemble des études menées dans les environnements directs de travail nucléarisés.

1.2.4 Aérosols mesurés en chantier de démantèlement nucléaire

Une campagne de mesures a été réalisée par Dogniaux *et al.* (2015) sur un chantier de démantèlement de la centrale nucléaire de Brennilis du groupe EDF. Des opérations ponctuelles de découpe ont été réalisées durant la campagne de mesure. Les résultats obtenus ont mis en lumière des informations importantes à la fois sur les caractéristiques physiques des aérosols (> 5 µm) et sur les variations en concentration (< 30 minutes) de ces derniers.

Des filtres sur lequel ont été prélevés des aérosols pendant 4 heures sont observés au Microscope Électronique à Balayage (MEB). Sur l'image obtenue et reportée à la figure 19, on constate d'une part, la grande diversité dans la forme des particules prélevées et d'autre part, un nombre significatif de particules dont la taille mesurée au MEB est supérieure à 5 µm en diamètre équivalent de Stokes, d_{st} . Une analyse chimique complémentaire à l'image MEB a aussi mis en évidence la composition des particules prélevées. La majorité correspond à des oxydes de fer ou de silice ayant des masses volumiques comprises entre 2 et 6 g.cm⁻³. Celles-ci sont brusquement remises en suspension à la suite des opérations basiques, telles que la découpe, le nettoyage, etc. A noter qu'aucune présence de particules radioactives artificielles n'a été décelée lors des mesures réalisées sur ce chantier de démantèlement nucléaire.

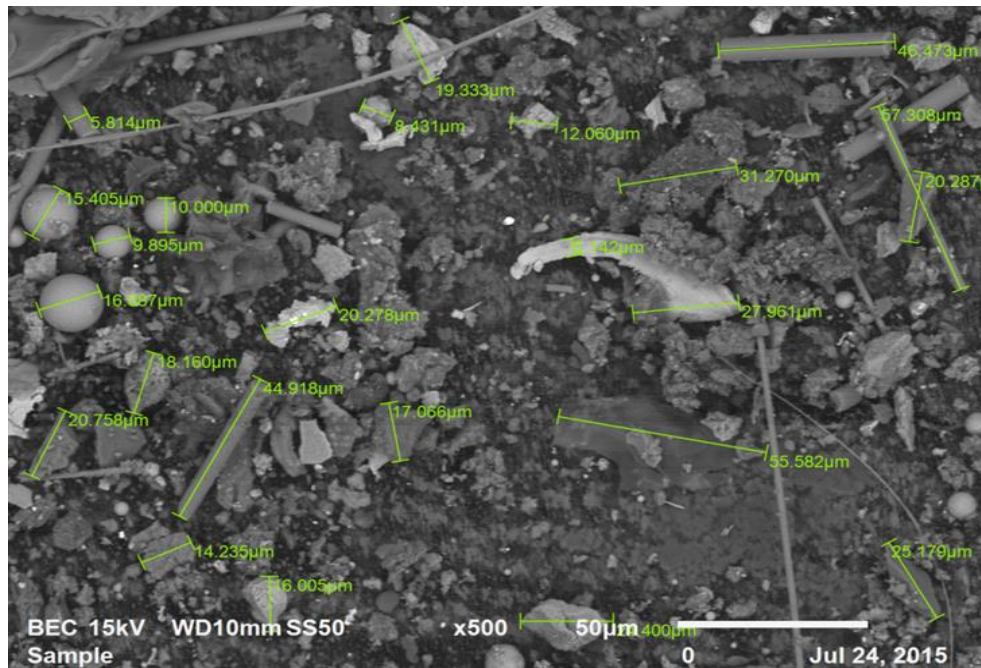


Figure 19 : Image obtenue au Microscope Électronique à Balayage (MEB) d'un morceau de filtre suite à un prélèvement de 4 heures en chantier de démantèlement nucléaire (Dougnaux et al., 2015)

Ce résultat issu d'un chantier de démantèlement EDF vient compléter d'autres résultats de mesures obtenus auparavant notamment par (Elder, Gonzales, & Ettinger, 1974; Marchal, 2014; Newton, Hoover, Barr, Wong, & Ritter, 1987; Perrin, 1987). Par exemple, Newton *et al.* (1987), ont caractérisé les aérosols produits lors de la découpe de métal en utilisant divers outils sur chantier de démantèlement. L'ensemble de ces résultats de mesure mettent en avant une production d'aérosols encore une fois très variée tant en taille, essentiellement inférieure à 10 μm , qu'en concentration, en fonction des outils utilisés. Marchal (2014) au cours de sa thèse montre qu'en fonction des outils de découpe utilisés, la taille des particules produites peut varier entre 0,5 et 500 μm . Finalement, l'ensemble de ces résultats vont dans le sens où de gros aérosols en concentrations variées sont produits de manière dépendante des opérations réalisées en chantier de démantèlement et surtout des outils utilisés.

1.2.5 Conclusion intermédiaire

Au cours de la première partie nous avons présenté les grandeurs physiques fondamentales qui caractérisent un aérosol, à savoir un premier paramètre sur la granulométrie de celui-ci et un second qui permet de caractériser la dispersion des diamètres des particules qui constituent l'aérosol. Ces paramètres sont essentiels et utilisés tout au long du manuscrit de thèse.

En deuxième partie, nous avons présenté les caractéristiques physiques des aérosols radioactifs naturels et artificiels émetteurs de particules α ainsi que celles des aérosols pouvant être remis en suspension en chantier de démantèlement nucléaire. Les éléments importants suivants ont alors été mis en évidence :

- Les aérosols radioactifs naturels sont omniprésents mais en concentration variées et fonction des conditions de renouvellement d'air et du niveau d'empoussièrement aux fines particules de l'ambiance. Ces aérosols radioactifs naturels présentent un DAMA compris entre 0,1 et 0,5 μm .
- Les aérosols radioactifs artificiels ne sont eux présents qu'en très faible quantité et qu'en cas d'incident. L'ensemble des études menées par différents auteurs s'accordent à

caractériser les aérosols radioactifs artificiels en zones nucléarisées par un DAMA de 5 µm. Le DAMA est toutefois corrélé au processus de production ou de remise en suspension de l'aérosol.

- Les aérosols remis en suspension en chantier de démantèlement nucléaire présentent des tailles (0,1 à 500 µm selon l'étude de Marchal (2014)) et des formes très variées (voir figure 19). À nouveau, la granulométrie des aérosols remis en suspension est corrélée avec l'opération réalisée et l'outil utilisé.

Sur la base de l'ensemble de ces éléments, une approche expérimentale a été élaborée. Ainsi, la reproduction, en laboratoire, d'une atmosphère typique de chantier de démantèlement nucléaire a permis la caractérisation du comportement d'un moniteur de mesure de la contamination radioactive atmosphérique.

I.3 Approche expérimentale pour la reproduction d'atmosphères représentatives de celles mesurées en chantiers de démantèlement nucléaire

La reproduction d'atmosphères représentatives de celles mesurées en chantier de démantèlement nucléaire passe par la mise en place d'un couplage de dispositifs. Un premier dispositif est utilisé pour la production maîtrisée et contrôlée en temps réel et continu d'aérosols non-radioactifs en concentrations et en granulométries variées. Un second est quant à lui utilisé pour la production également maîtrisée et contrôlée des aérosols radioactifs naturels qui sont omniprésents.

I.3.1 Chambre de génération d'aérosols non-radioactifs

Pour simuler la remise en suspension des aérosols exclusivement non-radioactifs, nous avons spécifiquement conçu au laboratoire une chambre de génération d'aérosols non-radioactifs, laquelle est schématisée à la figure 20. Ce dispositif est constitué de deux parties :

- La **partie supérieure** est constituée de plusieurs éléments, à savoir un générateur de particules, le *Rotative Brush Generator* (RBG), d'une vanne reliée à un filtre Très Haute Efficacité (THE) et d'un orifice d'injection de l'aérosol dans la chambre.
- La **partie inférieure**, que constitue la chambre (largeur = 0,505 m, profondeur = 0,400 m et hauteur = 0,605 m) dans laquelle l'atmosphère en aérosols est simulée, est pourvue d'un ensemble filtre THE-débitmètre-pompe et d'un compteur optique de particules (COP) de type Grimm modèle 1.109.

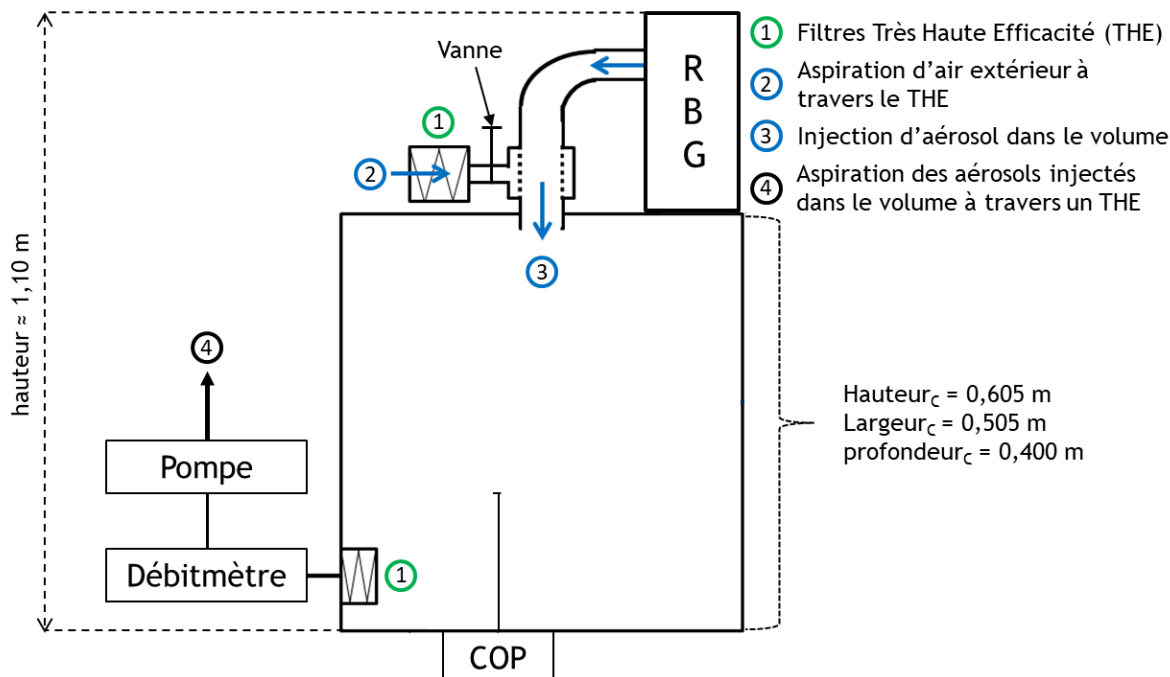


Figure 20 : Schéma de la chambre de génération d'aérosols non-radioactifs. La génération d'aérosols est possible à l'aide du générateur à brosse rotative (Rotative Brush Generator, RBG). Le contrôle en temps réel de la concentration et de la granulométrie des aérosols injectés est assuré par un compteur optique de particules (COP) de type Grimm. Dimensions de la chambre : $largeur_c = 0,505\text{ m}$, $profondeur_c = 0,400\text{ m}$ et $hauteur_c = 0,605\text{ m}$

Le dispositif expérimental a été qualifié au cours d'une étude préliminaire. La qualification a permis d'assurer que les conditions reproduites dans la chambre expérimentale soient bien représentatives de celles mesurées en chantier de démantèlement nucléaire. La procédure de qualification spécifique a reposé sur trois paramètres : la granulométrie des aérosols injectés et prélevés, la variabilité en concentration d'aérosols produits et injectés et enfin l'homogénéité de la concentration en aérosols dans l'enceinte. Finalement, la validation expérimentale du dispositif vis-à-vis de ces trois paramètres a été présentée lors du Congrès Français sur les Aérosols 2019 (CFA 2019) par Hoarau *et al.* (2019), consultable pour plus d'informations.

I.3.1.a Caractéristiques des aérosols non-radioactifs

De nombreuses particules mesurées en chantier de démantèlement nucléaire (voir figure 19) présentent des diamètres aérodynamiques dans une gamme allant de $7\ \mu\text{m}$ à $120\ \mu\text{m}$. Ainsi, le choix des aérosols à injecter dans la chambre expérimentale pour simuler ceux des chantiers de démantèlement nucléaire s'est fait en considérant trois critères :

- large gamme en taille de particules permettant de simuler une diversité tout aussi large de conditions atmosphériques,
- forme irrégulière des particules,
- masse volumique proche de celles des particules mesurées en chantier.

La poudre d'alumine (Al_2O_3), regroupant ces trois critères avec une masse volumique de $3,95\ \text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$, est choisie. A la figure 21 est reportée une photographie prise au Microscope Électronique à

Balayage (MEB) de l'aérosol d'alumine échantillonné et collecté sur un filtre à membranes microporeuses. Les particules photographiées ont comme caractéristiques celles de l'aérosol C dans le tableau 5.

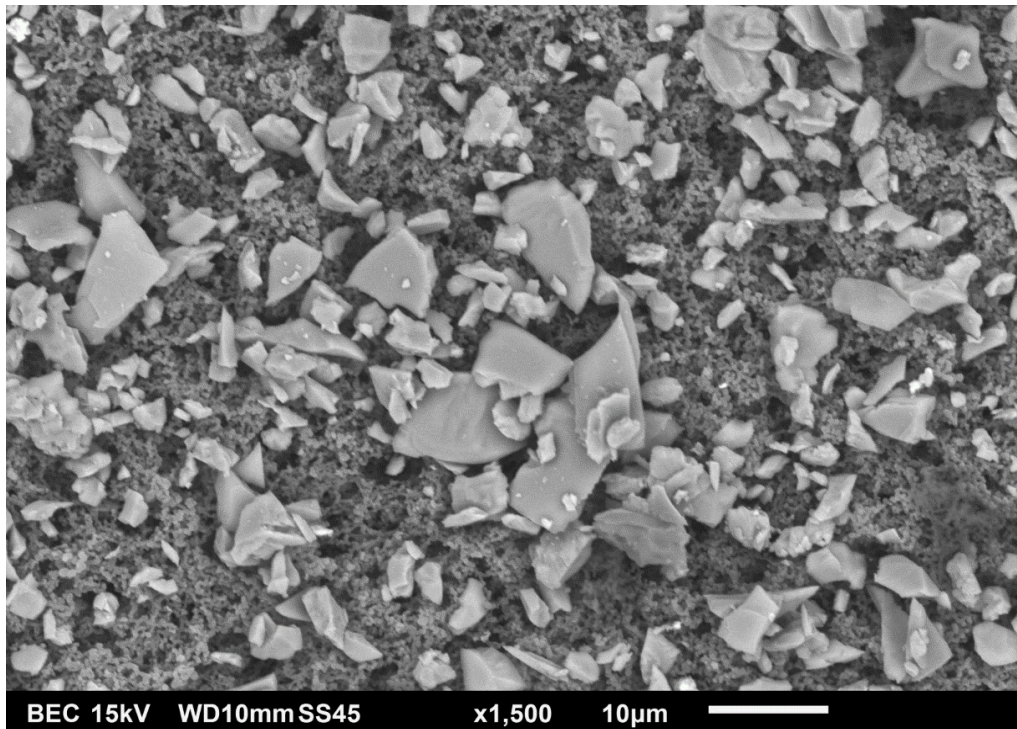


Figure 21 : Aérosol d'alumine (Al_2O_3), échantillonné et collecté sur un filtre à membranes microporeuses, observé au Microscopie Électronique à Balayage (MEB)

Quatre granulométries (dénommées A, B, C et D) de cette poudre ont été sélectionnées pour l'étude afin de couvrir une large gamme de conditions atmosphériques. Dans le tableau 5 sont reportées les caractéristiques des quatre aérosols mis en œuvre dans l'étude. Ils sont mesurés après aérosolisation de la poudre dans la chambre à l'aide d'un Particule Size Distribution (PSD) de type *Aerosizer*. Les résultats bruts obtenus sont ensuite corrigés du biais de mesure engendré par l'*Aerosizer* qui sous-estime la granulométrie des particules lorsqu'elles sont non sphériques. En effet, les études menées par Cheng *et al.* (1993) mettent en avant une sous-estimation allant de 20 à 50 %. Peillon *et al.* (2011) ont réalisé une étude spécifique afin de quantifier le biais de mesure pour des aérosols d'alumine en comparant les résultats de mesures obtenus avec l'*Aerosizer* avec ceux obtenus en utilisant une autre technique, soit le *Coulter*. La sous-estimation est alors de 32 % pour les aérosols d'alumine. Ainsi, $DAMM_{\text{biais}}$ représente les valeurs corrigées de la granulométrie des aérosols générés dans la chambre. Ce dernier paramètre est adapté et utilisé pour décrire le mouvement de la particule dans l'air. Dès lors que la particule est collectée, le DE_{VMM} caractérise mieux sa géométrie. Il est calculé en utilisant l'équation 3 et les valeurs de facteur de forme déterminées par Mark *et al.* (1985) et Witschger *et al.* (2002, 2004).

Tableau 5 : Caractéristiques des aérosols (A, B, C et D) utilisés dans notre étude. La seconde et troisième ligne correspondent respectivement aux valeurs corrigées du biais de mesure qui est de 32 % pour ce type d'aérosol et à l'écart-type géométrique. Dans la quatrième ligne sont reportées les valeurs du facteur dynamique de forme déterminées par Mark et al. (1985) ainsi que Witschger et al. (2002, 2004) permettant de calculer le DE_{vMM} reporté à la cinquième ligne

Type	A	B	C	D
$DAMM_{\text{biais}}$ (μm)	9,0	12,8	17,8	56,9
σ_g	1,86	1,76	1,30	1,39
χ	1,55	1,50	1,60	1,20
DE_{vMM} (μm)	5,7	7,9	11,3	31,4

I.3.1.b Génération des aérosols non-radioactifs

Les poudres à générer sous forme d'aérosols dans la chambre sont disposées dans le RBG, lequel se situe en partie supérieure. La concentration en aérosols injectée dans la chambre est gérée à partir des paramètres sélectionnés sur le RBG, à travers une vitesse de montée de piston, une vitesse de rotation de la brosse et un débit d'air. Au cours de l'étude, ces paramètres sont fixés aux valeurs respectives suivantes : 1 mm.h⁻¹, 1200 tr.min⁻¹ et un débit d'injection d'air de 50 L.min⁻¹. De manière à ne pas mettre en surpression la chambre, la vanne supérieure est ouverte, donnant accès au filtre THE, et l'ensemble filtre THE-débitmètre-pompe en partie inférieure est activé et fixé à un débit d'aspiration de 60 L.min⁻¹. Ce débit d'aspiration est choisi environ 10 L.min⁻¹ plus élevé que le débit d'injection d'aérosols de manière à diluer légèrement la concentration en aérosols injecté dans la chambre.

Une fois l'ensemble de ces paramètres fixés, la génération d'aérosols dans la chambre est stable en concentration et ce sur toute la durée de génération et pour les quatre granulométries d'aérosols. La figure 22, illustre un exemple de la stabilité en concentration de l'aérosol D (à $C_{\text{équilibre}}$) injecté dans la chambre durant une génération et mesurée par pas de temps de 6 secondes par le compteur optique de particules disposé dans la chambre.

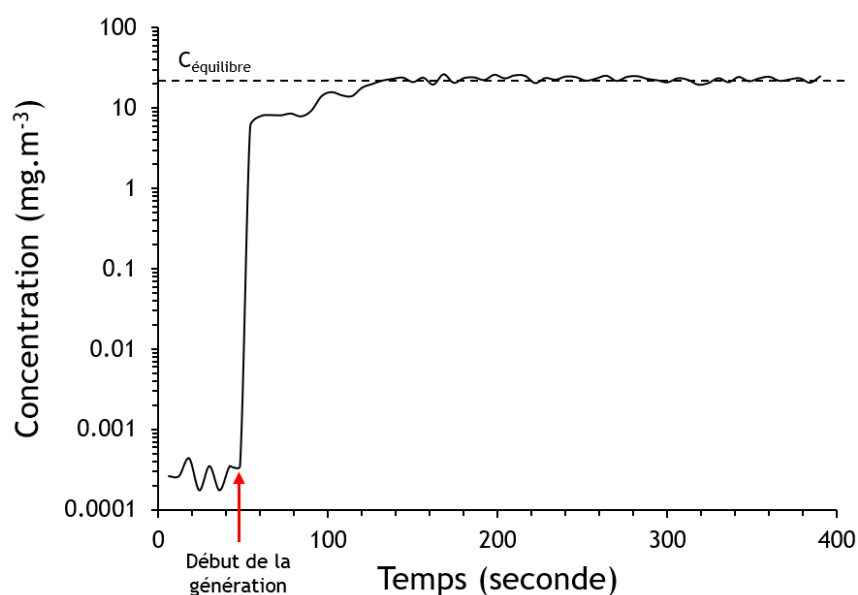


Figure 22 : Exemple de l'évolution de la concentration en aérosol avant et pendant la génération de l'aérosol D mesurée par le COP de type Grimm

La génération de pic en concentration d'aérosols est également possible à l'aide de ce dispositif. Pour ce faire, l'aérosol est dans un premier temps généré, comme indiqué précédemment, pendant une durée variable. La réduction rapide de la concentration en aérosols injectée dans la chambre se fait dans un second temps en coupant la génération d'aérosols (en partie supérieure) et en augmentant le débit d'aspiration de l'ensemble filtre THE-débitmètre-pompe de la partie inférieure. Le débit d'aspiration peut être fixé jusqu'à une valeur d'environ 170 L.min⁻¹.

La figure 23, illustre un exemple de génération d'un pic d'aérosols dans le volume de la chambre, mesuré par le compteur optique de particules. C'est-à-dire la génération de l'aérosol D sur une durée (ici) de 90 secondes, laquelle est suivie d'une purge visant à réduire la concentration d'aérosols. Cette réduction d'aérosols en absence de terme source est décrite par l'équation 21, issue de Gensdarmes (2003). Celle-ci a pour solution la relation 22, en considérant que la concentration initiale est la concentration à l'équilibre.

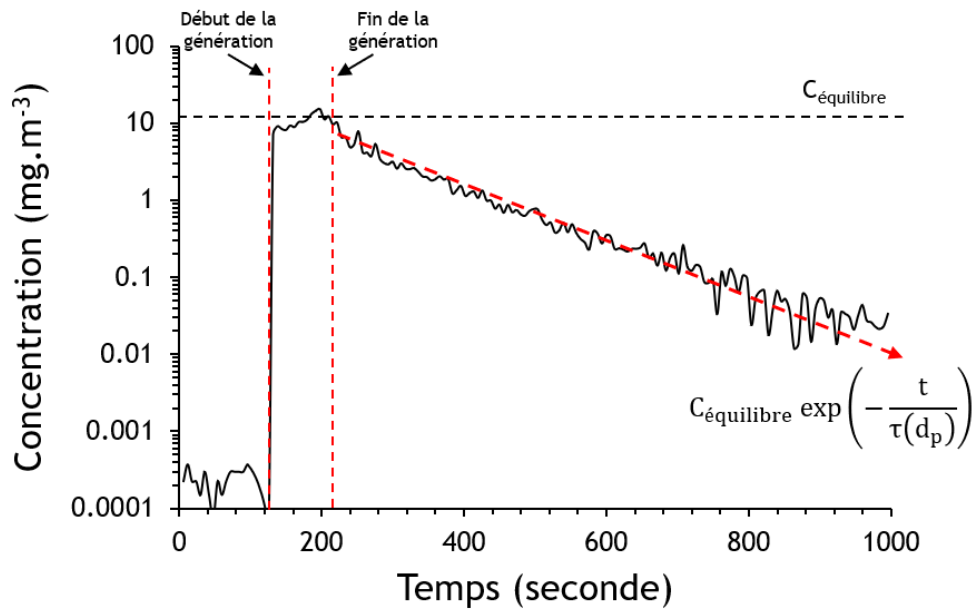


Figure 23 : Exemple de la génération d'un pic en concentration en aérosol D dans la chambre mesuré par le COP de type Grimm

$$\frac{dC(t, d_p)}{dt} = -\frac{Q_p}{V_e} C(t, d_p) - \frac{v_s S_{eff}}{V_e} C(t, d_p), \quad (21)$$

$$C(t, d_p) = C_{équilibre}(d_p) \exp\left(-\frac{t}{\tau(d_p)}\right), \quad (22)$$

avec :

- S_{eff} : surface de filtration,
- Q_v : débit des systèmes d'aspiration, soit de l'ABPM203M, du COP et de la pompe en partie inférieure de la chambre,
- v_s : vitesse terminale de chute,
- $C_{équilibre}(d_p)$: concentration d'aérosols à l'équilibre,
- V_e : volume de l'enceinte,
- $\tau(d_p) = \frac{V_e}{Q_v + v_s(d_p) S_{eff}}$: constante de temps de l'épuration d'aérosols.

I.3.2 Banc d'essais ICARE pour la génération d'aérosols radioactifs naturels

La production des aérosols radioactifs naturels essentiels pour simuler une atmosphère réelle est possible grâce au banc d'essais ICARE. Celui-ci a été conçu dans les années 1980 par Ammerich (1989) pour justement évaluer les performances des moniteurs de mesures de la contamination radioactive atmosphérique (CAM) dans des conditions représentatives de fonctionnement, lesquelles sont maintenant stipulées dans les normes IEC (IEC 60761:2002, IEC 61171:1992, IEC 61578:1997). Ce banc d'essais unique en Europe, représenté à la figure 24 issue de Monsanglant-Louvet *et al.* (2008), permet de générer des aérosols radioactifs naturels (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po) et artificiels (tel ^{239}Pu , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{90}Sr) calibrés en taille et en activité. Ces aérosols radioactifs après production (dans la partie basse de la figure) sont transportés en amont (partie haute) de la veine aéraulique dont le débit est régulé à environ $56 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$. En aval de la veine (en vert, à droite) sont disposées des cannes de prélèvements isocinétiques (pour des débits de prélèvement compris entre 1 et $1000 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$) permettant la mesure des aérosols radioactifs produits et injectés dans la veine. Dans notre étude, seule la partie dédiée à la génération d'aérosols radioactifs naturels (en bleu, à gauche sur la figure 24) est utilisée et présentée ci-après.

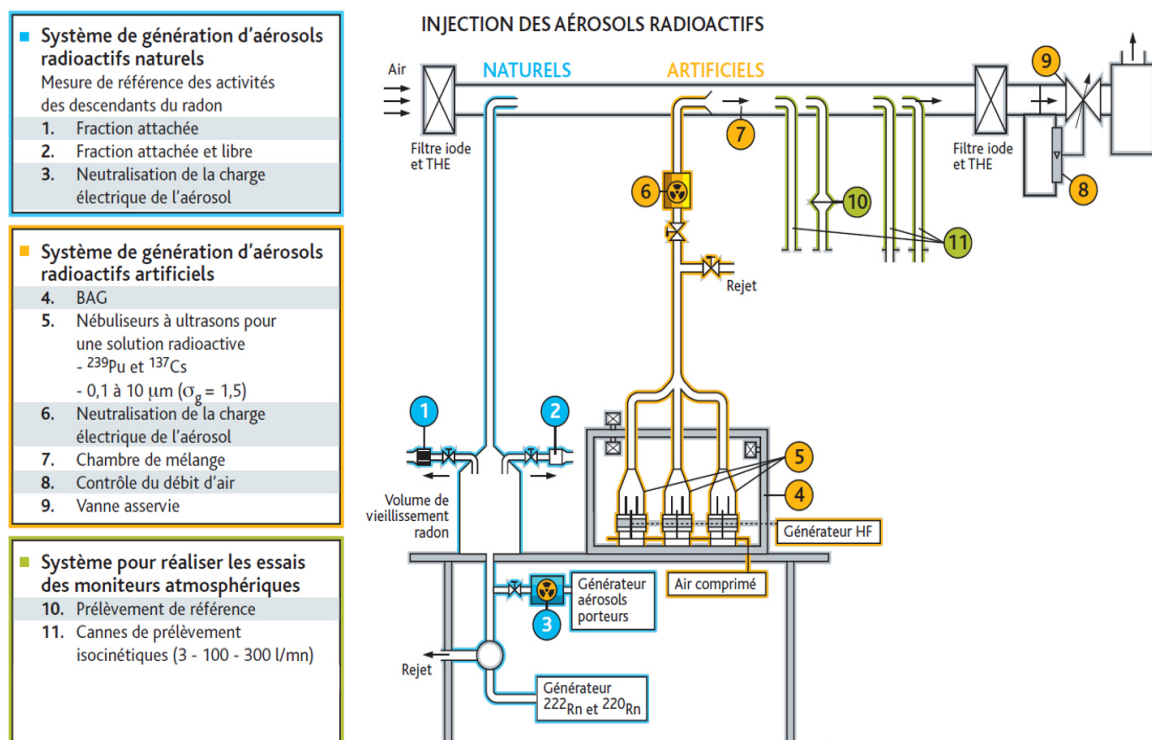


Figure 24 : Vue schématique du banc d'essais ICARE. (En bleu, à gauche) la partie dédiée à la production d'aérosols radioactifs naturels. (En orange, au milieu) la partie dédiée à la production d'aérosols radioactifs artificiels. (En vert, à droite) la partie dédiée aux systèmes de mesures des aérosols radioactifs naturels ou artificiels ou encore des deux en même temps. Figure issue de Monsanglant-Louvet *et al.* (2008)

I.3.2.a Génération des aérosols radioactifs naturels

Le banc d'essais ICARE permet de générer une atmosphère contrôlée en radioactivité naturelle. Celle-ci est composée du gaz radioactif (radon : ^{222}Rn) et de ses descendants solides. Toutefois, étant donné les périodes radioactives et le temps de séjour dans la veine, seuls les quatre premiers descendants à vie courte (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po) sont mesurables. Le banc d'essais ICARE permet de générer une activité volumique en radon et descendants entre $1 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ et $300 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$.

I.3.2.a.1 Production du gaz radioactif, le radon (^{222}Rn)

Le radon est produit par trois sources de radium (^{226}Ra), imprégnées dans des feutres (Guélin, 1993). Ces dernières sont placées dans des compartiments distincts dans lesquels il est possible de faire circuler un débit d'air de $1 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ afin de transporter le radon qui exhale de la source de ^{226}Ra . Un système de vannes permet de choisir la source de radium en fonction de l'activité en radon que l'on veut mettre en œuvre dans la veine aéraulique. Avant l'arrivée du gaz radioactif naturel dans la veine aéraulique, il est introduit dans un volume de vieillissement de $0,1 \text{ m}^3$. Dans ce volume, le gaz est mélangé à des aérosols non-radioactifs qui sont produits en périphérie.

I.3.2.a.2 Production des aérosols non-radioactifs de chlorure de césium (CsCl)

Les aérosols non-radioactifs sont produits par un générateur à ultrasons, lequel est schématisé à la figure 25. Une solution d'eau, à laquelle est ajouté du sel de chlorure de césium (CsCl), est nébulisée par une surface vibrante conduisant à la production de microgouttelettes. Ces dernières sont dispersées et entraînées par un premier flux d'air sec, puis elles sont séchées par un second flux d'air sec produisant ainsi les aérosols solides de CsCl . Les débits d'air pour la dispersion et le séchage sont respectivement de $20 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ et de $180 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Ils sont fixés à ces valeurs de manière d'une part à réduire la dispersion du diamètre des aérosols produits (écart-type géométrique), compris entre 1,3 et 1,5 (Bémer & Tierce, 1996), d'autre part à avoir dans le temps une stabilité certaine de la granulométrie et de la concentration des aérosols produits (Ammerich, 1989).

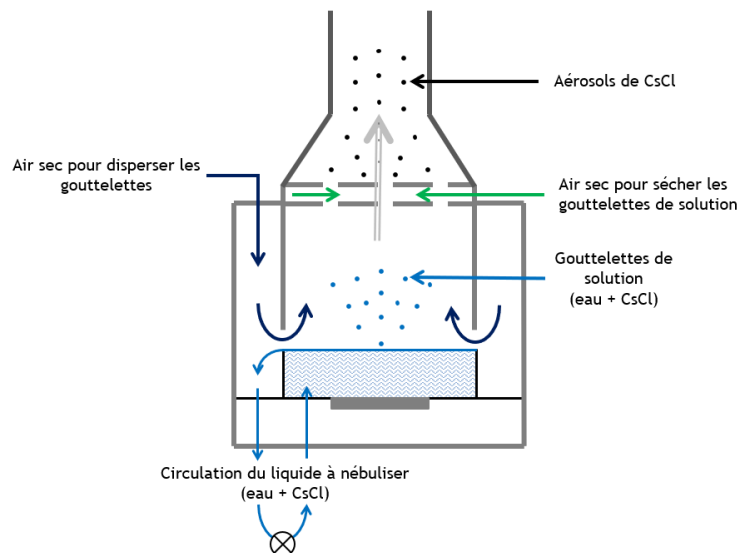


Figure 25 : Schéma d'un générateur d'aérosols à ultrasons

Le diamètre des microgouttelettes ($d_{\mu\text{g}}$) produites est fonction de la fréquence de vibration (f en Hz) de la surface vibrante, de la tension superficielle de la solution (γ) et de la masse volumique du sel (ρ_{CsCl}). Il est déterminé à l'aide de la relation 23 issue de Charuau (1991) où k est une constante expérimentale liée au générateur d'aérosols à ultrasons.

$$d_{\mu\text{g}} = k \left(8\pi \frac{\gamma}{\rho_{\text{CsCl}}} \right)^{1/3} f^{2/3} . \quad (23)$$

Tandis que le diamètre équivalent en volume (d_{ev}) de la particule solide produite après séchage de la microgouttelette se calcule à l'aide de la relation 24 (en faisant l'hypothèse d'un aérosol plein et homogène).

$$d_{ev} = d_{\mu g} \left(\frac{C_m}{\rho_{CsCl}} \right)^{1/3}, \quad (24)$$

avec :

- C_m : concentration massique du sel en solution (kg.m^{-3}),
- ρ_{CsCl} : masse volumique du sel ($3,99 \text{ g.cm}^{-3}$).

On a vu que le comportement de l'aérosol dans le domaine qui nous intéresse est principalement caractérisé par le diamètre aérodynamique. De ce fait, à l'aide des équations 2 (pour d_{ev}), 3 (pour d_{ae}) et 10 (pour $Cu(d_p)$), nous pouvons déterminer (relation 25) le diamètre aérodynamique de l'aérosol sec en fonction du diamètre des gouttelettes d'eau salée.

$$d_{ae} = d_{\mu g} \left(\frac{C_m}{\rho_{CsCl}} \right)^{1/3} \sqrt{\frac{\rho_{CsCl}}{\rho_0 \chi} \cdot \frac{Cu(d_{ev})}{Cu(d_{ae})}}, \quad (25)$$

avec :

- χ : facteur de forme égal à 1,07 pour des particules de forme cubique telle que présentée par les particules de CsCl (Baron & Willeke, 2001; Hinds, 1999).

Les conditions de fréquence de vibration, de concentration massique du sel en solution, de débit d'air de dispersion et de débit d'air de séchage des gouttelettes sont fixées de manière à générer des aérosols de CsCl non radioactifs de d_{ae} de $0,2 \mu\text{m}$ pour une concentration de l'ordre de 10^8 à 10^{10} particules. m^{-3} . Ces aérosols sont ensuite injectés à un débit de 1 L.min^{-1} dans le volume de vieillissement. Ces valeurs sont celles préconisées par la norme IEC 61578:1997 pour représenter les conditions atmosphériques radioactives naturelles d'une installation. Ainsi dans le volume de vieillissement, le mélange du radon et des aérosols non-radioactifs conduit à la production de la fraction attachée. Celle-ci présente alors un DAMA de $0,2 \mu\text{m}$.

I.3.2.b Caractéristiques des aérosols radioactifs naturels

Avant l'utilisation de l'atmosphère radioactive naturelle produite, l'activité du radon, de ses descendants ainsi que la proportion en fraction libre et fraction attachée sont mesurées. Pour cela, deux systèmes de prélèvement sur filtre sont disponibles à la sortie du volume de vieillissement (repérés aux numéros 1 et 2 sur la figure 24). Le système numéroté 1 permet de ne prélever que la fraction attachée car est équipé d'une grille métallique qui collecte la fraction libre. Le système numéroté 2 prélève quant à lui la fraction totale (fraction libre et fraction attachée) des descendants du radon.

Un prélèvement sur filtre est effectué simultanément sur les deux voies, lequel est suivi de la méthode des trois temps de comptage global initialement développé par Tsvolgov (1953) et améliorée par Thomas (1972). Les trois temps de comptage sont effectués sur un détecteur nucléaire et ont pour but de discriminer les quatre descendants à vie courte du radon, à partir de la période radioactive ($T_{1/2}$). Puis à l'aide d'un jeu d'équations Thomas (1972), il est possible de

déterminer l'activité du gaz radon, de ses quatre premiers descendants, la proportion en fraction attachée/libre ainsi que le facteur d'équilibre.

L'ensemble de nos essais sont réalisés selon une configuration d'aérosols radioactifs naturels telle que présentée dans le tableau 6. La concentration numérique en aérosols radioactifs naturels est suivie en temps réel et en continu à l'aide d'un Condensation Particle Counter (CPC) situé entre le générateur d'aérosols à ultrasons et le volume de vieillissement. Une dilution d'un facteur environ 1000 est appliquée sur la concentration en nombre mesurée par le CPC pour obtenir la concentration en nombre dans la veine. Effectivement, le débit de soufflage dans la veine est, pour rappel, d'environ $56 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$.

Tableau 6 : Caractéristiques de l'atmosphère radioactive naturelle générée dans la veine ICARE et prélevé dans le dispositif expérimental

DAMA (μm)	Concentration ($\text{part} \cdot \text{cm}^{-3}$)	Fraction attachée/libre (FA/FL)	Activité ^{222}Rn ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	Activité ^{218}Po (FA+FL) ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)	Activité ^{214}Po (FA+FL) ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)
0,2	5 à 20	0,6 / 0,4	~ 30	~ 15	~ 5

I.3.3 Couplage du banc d'essais ICARE avec la chambre de génération des aérosols non-radioactifs

Le couplage de la voie de génération des aérosols radioactifs naturels du banc ICARE avec la chambre de génération d'aérosols non radioactifs est schématisé à la figure 26. C'est grâce à celui-ci que la caractérisation du comportement d'un CAM dans des situations typiques de chantier de démantèlement nucléaire a été possible au cours du travail de thèse de doctorat. Dans la chambre de génération des aérosols non-radioactifs, la tête de prélèvement d'un CAM est exposée à des situations maîtrisées et contrôlées en temps réel et en continu.

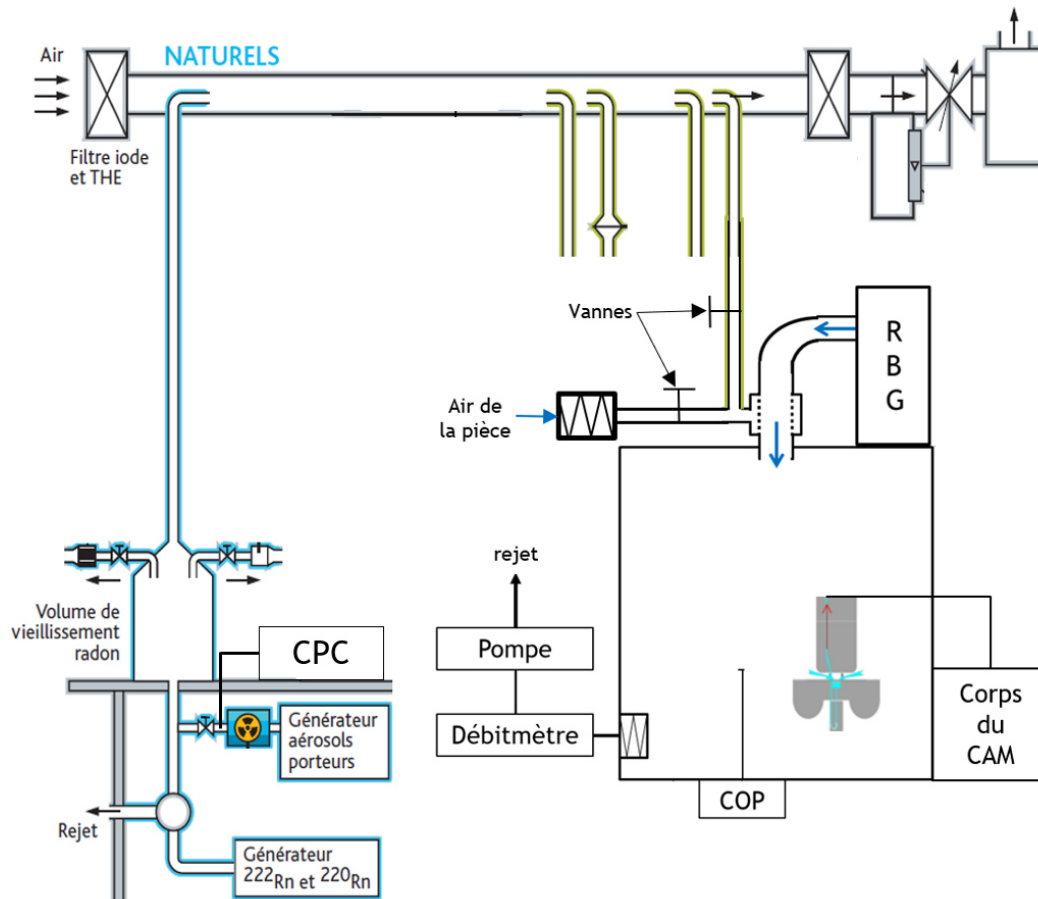


Figure 26 : Illustration schématique du couplage ICARE (voie aérosols radioactifs naturels) - chambre aérosols non-radioactifs. La tête de prélèvement du CAM est disposée dans la chambre pour y être soumise à des atmosphères simulées de chantier de démantèlement nucléaire

Ce couplage permet d'élargir les capacités du banc d'essais ICARE en lui offrant la possibilité de reproduire en laboratoire des situations atmosphériques telles que mesurées dans des milieux où des opérations basiques sont réalisés. Ainsi, à termes les performances des instruments de mesures de la contamination radioactive, qui sont dédiées à ces types d'environnements, pourront être évaluées à l'aide de ce couplage. Les normes internationales qui stipulent des conditions atmosphériques pour évaluer ces instruments de mesures pourront également évoluer en prenant en compte les nouvelles capacités du banc ICARE.

CHAPITRE II : MESURE EN TEMPS RÉEL ET EN CONTINU DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE ATMOSPHÉRIQUE PAR LES CAM

La caractérisation des conditions atmosphériques auxquelles peuvent être soumis les CAM en milieux nucléaires, a permis l'élaboration d'un dispositif expérimental. Celui-ci, présenté au chapitre précédent, permet maintenant de reproduire des atmosphères atypiques, lesquelles sont souvent observées lors des émissions de faux positifs. La caractérisation du comportement d'un CAM exposé à des situations atypiques est désormais possible. Il est avant tout nécessaire de comprendre le fonctionnement général d'un CAM, lequel est présenté sous forme de logigramme à la figure 27. Pour l'expliquer, nous avons conçu ce chapitre selon trois parties majeures, qui suivent le déroulement logique des mesures effectuées en temps réel et en continu par le CAM. Ces parties permettent également de mettre en avant et de discuter des paramètres qui influencent *in fine* la mesure nucléaire effectuée par le CAM.

La première partie est consacrée au système de prélèvement d'air du CAM. Celui-ci échantillonne et collecte les aérosols par filtration sur filtre. Ces deux processus distincts font appel à diverses notions, l'efficacité d'échantillonnage et les différents mécanismes de collecte des aérosols. Leurs présentations nous permettront de connaître respectivement la granulométrie des aérosols qu'est réellement capable d'échantillonner la tête de prélèvement du CAM et le comportement des aérosols radioactifs naturels dans une structure granulaire formée, en surface du filtre du CAM, à la suite d'échantillonnage d'aérosols non-radioactifs. Ainsi, nous serons plus à même d'aborder la seconde partie consacrée à la mesure nucléaire en connaissant ceux à quoi peuvent être confrontés les aérosols radioactifs naturels.

Dans la seconde partie, nous présenterons tout d'abord le principe utilisé pour la détection de particules ionisantes, soit l'interaction des particules α avec la matière. Dans un second temps viendra la présentation de la dégradation de la radioactivité dans les différents atténuateurs pouvant se trouver entre le filtre de prélèvement et le détecteur nucléaire du CAM. Ainsi, nous mettrons en avant deux situations distinctes auxquelles les CAM peuvent être soumis, à savoir celles rencontrées en conditions normatives IEC et celles hors des conditions normatives IEC. Dans ces dernières conditions, un biais dans la mesure de la radioactivité est mesuré. Nous verrons alors la conséquence directe sur l'évolution du bruit de fond mesuré aux basses énergies, lesquelles sont associées pour la mesure des aérosols radioactifs α -artificiels.

L'objet de la troisième partie sera finalement de présenter le traitement systématique réalisé par le CAM quelle que soit la situation d'exposition. À l'appui des différences de dégradation de la radioactivité mesurée en conditions IEC et hors conditions IEC, nous mettrons en avant les limites actuelles du CAM, notamment dans la compensation du bruit de fond. De ces limites, est introduite une méthode permettant de caractériser a posteriori les contributions réelles des traînes en énergies des pics α -naturels au bruit de fond mesuré aux basses énergies. Ces méthodes permettent de définir la valeur réelle du paramètre de traîne à utiliser par l'algorithme de calcul du CAM pour estimer le bruit de fond et *in fine* le compenser.

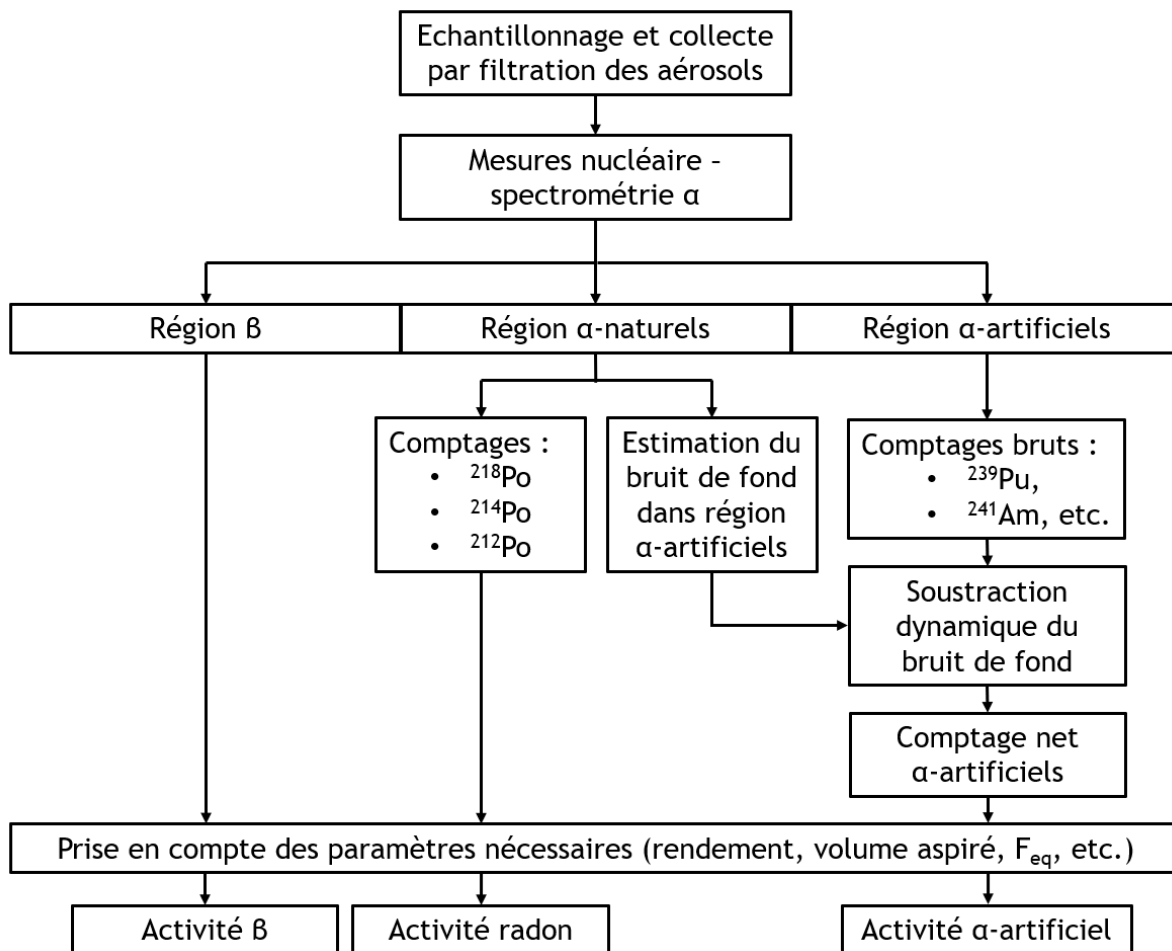


Figure 27 : Principe de fonctionnement général d'un CAM sous forme de logigramme

II.1 Mécanismes régissant l'efficacité d'échantillonnage et de collecte par filtration des aérosols

II.1.1 Prélèvement et échantillonnage des aérosols de l'ambiance

Le moniteur de mesure de la contamination radioactive atmosphérique (CAM) dispose d'un système de prélèvement d'air omnidirectionnel, lequel est schématisé à la figure 28 (à gauche). Les aérosols échantillonnés par ce système sont directement collectés par filtration en surface d'un filtre. Ce processus d'échantillonnage est schématisé sur la même figure 28 (à droite), avec les disques bleus qui représentent les aérosols et les traits pointillés représentent les lignes de courant du fluide qui portent l'aérosol. L'aérosol collecté par le filtre est qualifié comme étant l'aérosol échantillonné.

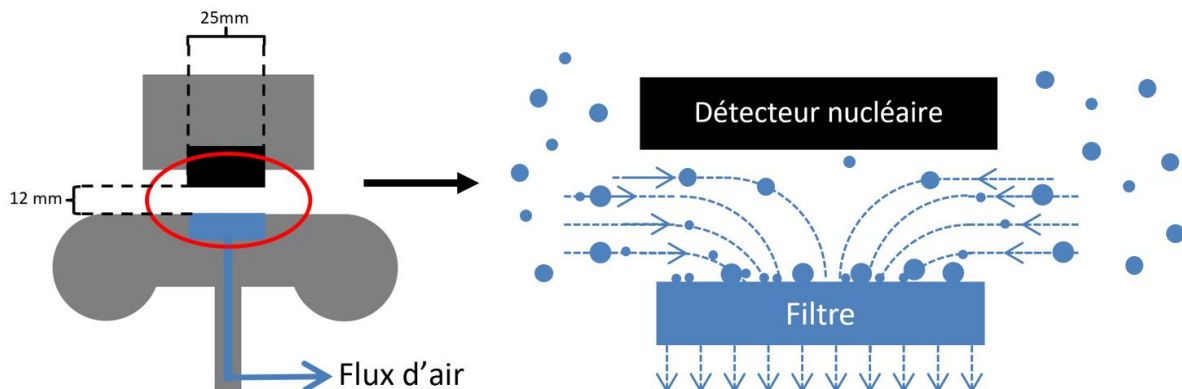


Figure 28 : (à gauche) Géométrie de la tête de prélèvement d'un moniteur de la contamination radioactive atmosphérique de type ABPM203M. (à droite) Schéma du processus d'échantillonnage de l'aérosol ambiant avec les aérosols en disques bleus et les lignes de courant du fluide en traits pointillés

L'échantillonnage d'aérosols ambiants correspond à la proportion des aérosols qui est collecté par rapport à ceux qui sont réellement présents dans l'air. C'est un processus physique complexe qui dépend de nombreux paramètres liés à la fois à l'aérosol, de par ses propriétés physiques (section I.1), à l'écoulement d'air à proximité du dispositif de prélèvement et au dispositif de prélèvement lui-même (Renoux & Boulaud, 1998).

Une question essentielle se pose toutefois sur la représentativité de l'aérosol échantillonné par rapport à l'aérosol ambiant. Afin de prévenir le risque d'exposition interne aux rayonnements ionisants, il est nécessaire que les aérosols échantillonnés soient ceux que les travailleurs sont susceptibles de réellement respirer. Trois fractions conventionnelles sont définies par la CEN (1993) et représentées à la figure 29. Les fractions définies par la CEN (1993) le sont pour un air en mouvement, soit avec des vitesses d'air comprises entre 1 et 4 m.s⁻¹. En revanche, dans les atmosphères de travail l'air est considéré comme calme (section I.2.2). Une nouvelle convention de la fraction inhalable pour l'air calme a alors été proposée par Aitken *et al.* (1999), laquelle est représentée en trait épais sur la même figure 29 et concerne le cadre de l'étude.

- La **fraction inhalable** qui correspond à la probabilité moyenne d'inhalation par le nez et par la bouche de l'aérosol.
- La **fraction thoracique** qui correspond à la probabilité moyenne qu'ont les particules inhalées de pénétrer au-delà du larynx.
- La **fraction alvéolaire** qui correspond à la probabilité moyenne qu'ont les particules inhalées de pénétrer dans les alvéoles pulmonaires.

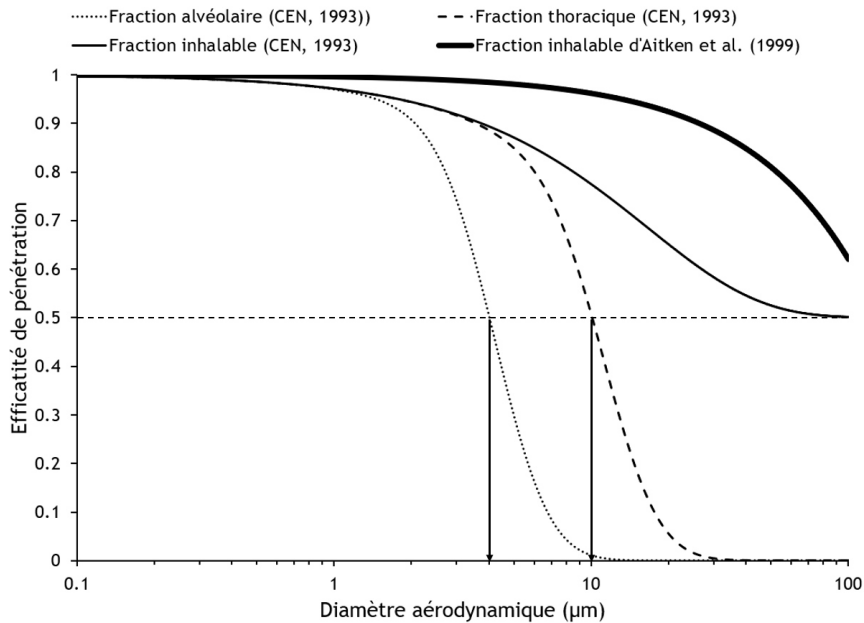


Figure 29 : Fractions conventionnelles définies par la CEN EN 481 (1993) pour l'air en mouvement (vitesses d'air comprises entre 1 et 4 m.s⁻¹) et fraction inhalable proposée par Aitken et al. (1999) pour l'air calme

Le choix de la fraction à échantillonner pour caractériser le risque sur la santé se fait en liaison avec la toxicité des polluants présents dans l'air. De manière générale et légitime la fraction inhalable est considérée dès lors qu'il est question de particules radioactives. Effectivement, de manière à limiter le risque face à l'exposition aux rayonnements ionisants, il est courant de choisir la voie la plus pénalisante. Ainsi, les CAM qui assurent la radioprotection des travailleurs devraient normalement être conçus de manière à être capable de prélever dans l'air ambiant des aérosols de la fraction inhalable définie par Aitken *et al.* (1999).

Deux paramètres importants sont à considérer pour l'échantillonnage représentatif de l'aérosol en condition d'air calme (Agarwal & Liu, 1980; Armbruster, 1985; Davies, 1968; Görner, Witschger, Roger, Wrobel, & Fabriès, 2008; Roger, Fabriès, Görner, Wrobel, & Renoux, 1998; Witschger, 1996). Ces paramètres sont :

- le nombre de Stokes (défini à l'équation 26), qui caractérise l'inertie de l'aérosol et donc sa faculté à suivre les lignes de courant du fluide. Plus l'inertie est grande, moins l'aérosol suit les changements brusques de direction des lignes de courant du fluide.
- le rapport de la vitesse de sédimentation de la particule (v_s) à la vitesse d'air au niveau de la fente annulaire (U_{air}) induit par l'aspiration du dispositif de prélèvement (équation 27). Plus ce rapport est petit et moins l'influence de la vitesse de sédimentation est importante.

$$Stk = \frac{\rho_0 d_{ae}^2 C_u(d_{ae}) U_{air}}{18 \mu_f h}, \quad (26)$$

$$R = \frac{v_s}{U_{air}}, \quad (27)$$

avec h la grandeur qui caractérise l'ouverture de la fente annulaire, soit pour nous la distance filtre - détecteur.

McFarland *et al.* (1991) ont mené une étude pour caractériser, entre autres, l'efficacité d'échantillonnage d'un CAM, lequel a une géométrie très proche de celle de l'ABPM203M. Avec leur système de prélèvement, le réglage de la distance source - détecteur (h) et du débit de prélèvement est possible ce qui permet de mettre en évidence l'effet du nombre de Stokes et du paramètre R sur l'efficacité d'échantillonnage d'aérosols. Les résultats obtenus sont reportés à la figure 30 avec :

- à gauche : l'évolution de l'efficacité d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique en condition d'air calme (vitesse d'air égale à $0,3 \text{ m.s}^{-1}$) pour trois débits de prélèvement d'air différents, soit 113 L.min^{-1} (carrés), 57 L.min^{-1} (triangles) et 28 L.min^{-1} (ronds) et une distance h filtre - détecteur de 7 mm . Le fait d'augmenter le débit d'aspiration d'air sans modifier h , conduit à la fois à augmenter le nombre de Stokes et à diminuer le rapport R . Ainsi, l'inertie des particules à échantillonner augmente et provoque une diminution de l'efficacité d'échantillonnage.
- à droite : l'évolution de l'efficacité d'échantillonnage pour des particules de diamètre aérodynamique égal à $10 \mu\text{m}$ fonction de la distance filtre - détecteur pour un prélèvement constant à 57 L.min^{-1} dans des conditions d'air calme. L'augmentation de la distance h tout en gardant un débit constant conduit cette fois à diminuer le nombre de Stokes et à augmenter le rapport R . L'inertie des particules diminue et l'effet de la vitesse de sédimentation pour des particules de $10 \mu\text{m}$ n'est pas significatif. Ainsi, l'efficacité d'échantillonnage augmente.

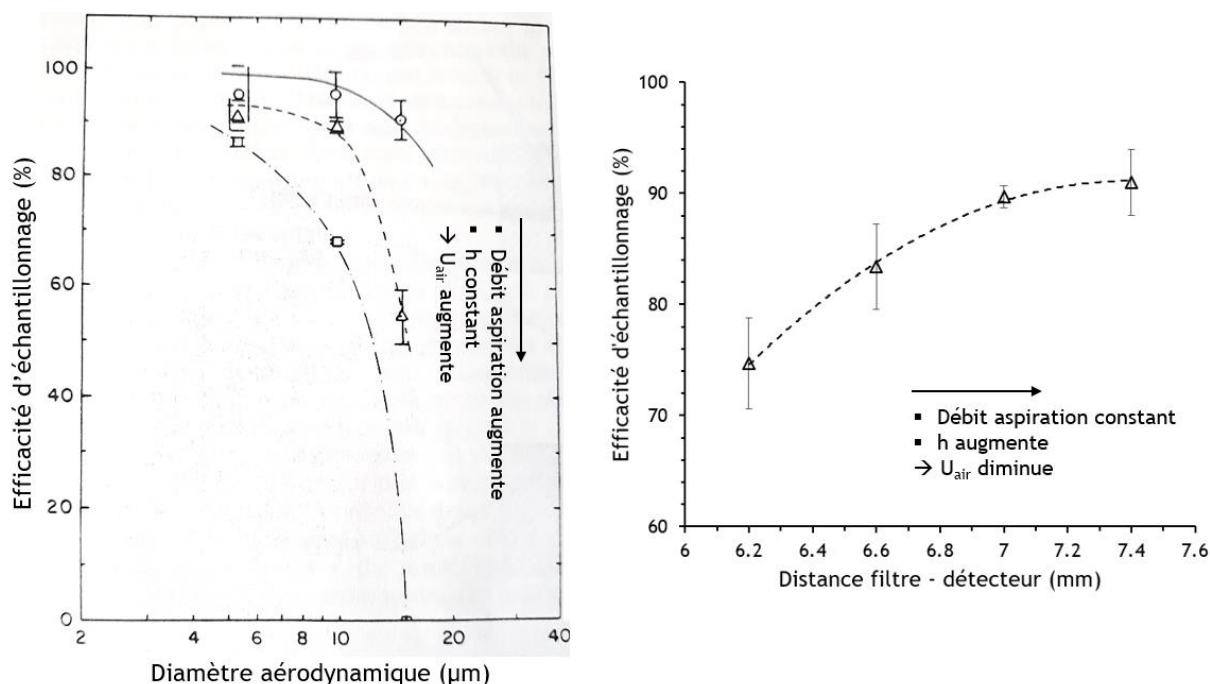


Figure 30 : A gauche : évolution de l'efficacité d'échantillonnage en fonction du diamètre aérodynamique en condition d'air calme (vitesse d'air à $0,3 \text{ m.s}^{-1}$) pour trois débits de prélèvement d'air différents, soit 113 L.min^{-1} (carrés), 57 L.min^{-1} (triangles) et 28 L.min^{-1} (ronds) et une distance h filtre - détecteur de 7 mm . À droite : évolution de l'efficacité d'échantillonnage pour des particules de d_{ae} de $10 \mu\text{m}$ en fonction de la distance filtre - détecteur pour un prélèvement à 57 L.min^{-1} dans des conditions d'air calme. Résultats issus de McFarland *et al.* (1991).

Ainsi, on comprend qu'un compromis entre le nombre de Stokes et le paramètre R est à « respecter » pour obtenir un échantillonnage d'aérosols représentatif. Sur la tête de prélèvement du CAM ABPM203M une distance de 12 mm sépare le filtre du détecteur (voir figure 28). Le débit de prélèvement nominal est de 35 L.min⁻¹. Ce qui fait, que l'échantillonnage de l'ABPM203M se situe au moins au même niveau que la courbe en trait plein du graphique de gauche à la figure 30.

Une étude a toutefois été menée à l'IRSN par Fauvel *et al.* (2009), à la demande d'EDF, pour caractériser l'efficacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement d'un CAM type ABPM203M. Ces essais ont été réalisés dans la Chambre d'Essais pour les Préleveurs Individuels et d'Ambiance (CEPIA). Les résultats obtenus pour les deux granulométries d'aérosols mise en œuvre, soit $d_{ae} = 1,9 \mu\text{m}$ (cercle) et $6,5 \mu\text{m}$ (carré vide) pour un écart-type géométrique respectif de 2,10 et 1,80, sont présentés à la figure 31. La fraction inhalable d'Aitken *et al.* (1999) est également reportée avec laquelle il est facile de comparer la capacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement à la fraction inhalable d'un travailleur.

Il a été nécessaire de compléter significativement ces données afin de déterminer un diamètre de coupure de la tête de prélèvement du CAM type ABPM203M. Trois points supplémentaires sont alors reportés sur la même figure 31, lesquels ont été mesurés dans le cadre de la thèse et dans des conditions identiques à celles utilisées par Fauvel *et al.* (2009). Par extrapolation de ces données expérimentales, un diamètre de coupure dans une gamme de 50 μm à 60 μm a été déduit. Ainsi, l'efficacité d'échantillonnage du CAM est comparable (au moins jusqu'à d_{ae} égal à 24,3 μm) à la fraction inhalable d'Aitken *et al.* (1999) et va dans le sens de la radioprotection des travailleurs car le moniteur peut échantillonner les aérosols inhalables.

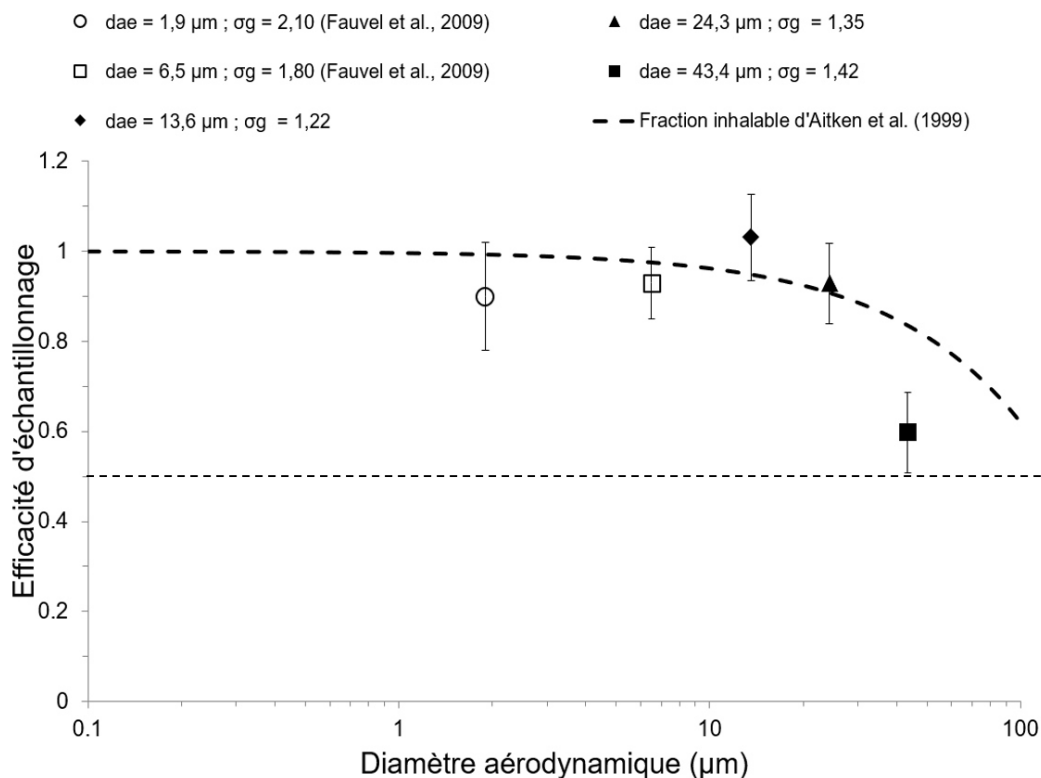


Figure 31 : Efficacité d'échantillonnage de la tête de prélèvement d'un CAM de type ABPM203M en fonction du diamètre aérodynamique des aérosols

La capacité à pouvoir échantillonner une large gamme en taille d'aérosols est importante puisque la radioactivité aéroportée, notamment les radionucléides d'origine artificielle, peut se trouver sur toute taille de particules. En revanche, le fait d'échantillonner des aérosols non-radioactifs

présentant une granulométrie importante conduit à des inconvénients dans le cas de la spectrométrie α en temps réel et en continu, lesquels engendrent *in fine* une dégradation de la résolution du spectre.

II.1.2 Collecte des aérosols par filtration sur filtre du CAM

Les aérosols échantillonnés par le CAM sont ensuite directement collectés par filtration sur filtre. Les filtres utilisés par les CAM sont préférentiellement (mais pas exclusivement) des filtres à membranes (Charreau & Letourneau, 1993). Effectivement, ils permettent de collecter les aérosols majoritairement en surface, ce qui est essentiel pour mesurer les particules α en temps réel avec une bonne résolution en énergie (Grivaud *et al.*, 2004 ; Hoover, 2011), d'autant plus nécessaire pour la détection de petites quantités de radioactivité α -artificiels qui sera discutée plus loin.

Une étude comparative a été menée par Hoover *et al.* (1992) montrant de meilleures performances, en termes de résolution en énergies des spectres, obtenues avec l'utilisation de filtres à membranes de type FSLW (figure 32). Ces types de filtres sont couramment utilisés par les CAM.

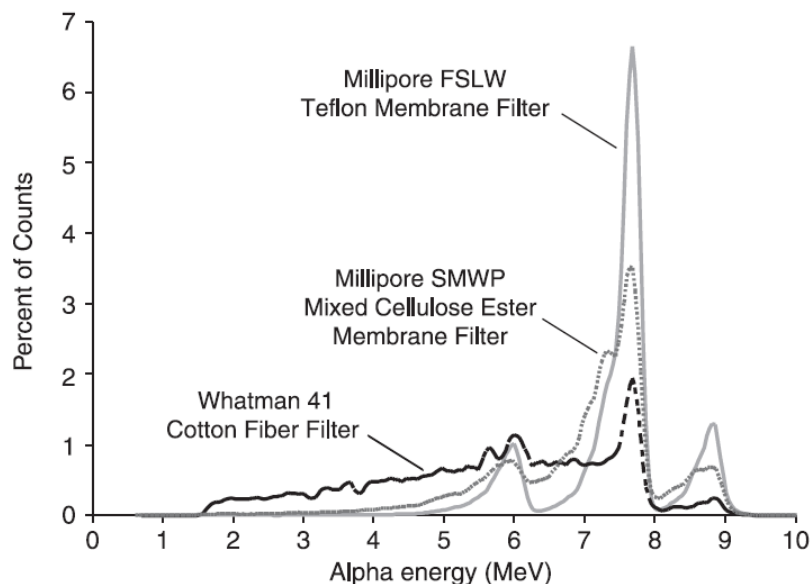


Figure 32 : Illustration de la résolution en énergie des descendants solides du radon obtenue pour différents types de filtres à membranes. Figure extraite de Hoover (2011)

Deux photographies d'un filtre vierge à membranes microporeuses de type FSLW, prises à l'aide d'un Microscope Électronique à Balayage (MEB), sont reportées à la figure 33. Celle de gauche est prise sous un grossissement x40 et celle de droite sous un grossissement x370. Il est intéressant de noter la trame de la membrane de téflon qui se distingue, claire et rectiligne, avec quelques motifs en téflon, clairs et erratiques. Les petits points blancs visibles sur l'image de gauche correspondent à des poussières.

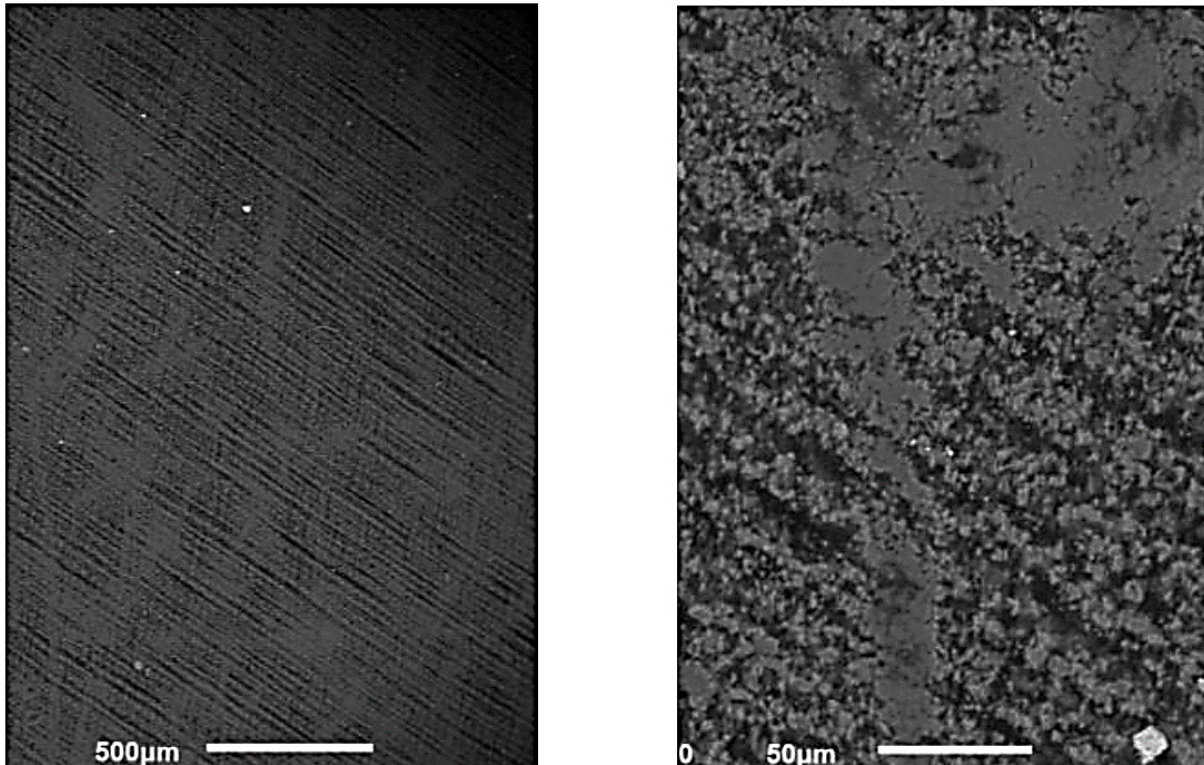


Figure 33 : Images d'un filtre à membranes microporeuses vierge (type Fluoropore FSLW) obtenues à l'aide d'un Microscope Électronique à Balayage (MEB) par Marcillaud de l'IRSN sous deux grossissements, x40 à gauche et x370 à droite

Quel que soit le type de filtre, son comportement dans le temps (sans action de régénération éventuelle) peut se décomposer en deux phases principales. Celles-ci sont schématisées à la figure 34, laquelle illustre l'évolution de l'efficacité du filtre en fonction de la masse de particules accumulée.

- La **filtration en « profondeur »** durant laquelle les divers mécanismes de collecte, propres au filtre, interviennent sans modification de l'efficacité intrinsèque de celui-ci. Seules les caractéristiques du médium filtrant et des aérosols échantillonnés entrent en ligne de compte dans cette phase.
- La **filtration en surface** modifie le comportement intrinsèque du filtre. Les particules s'accumulent en surface et forment une structure, type lit granulaire. Celle-ci se substitue en quelque sorte aux performances du filtre et modifie l'efficacité de l'ensemble. Seules les caractéristiques des particules (granulométrie), qui constituent la structure, et des aérosols échantillonnés sont considérées pour la filtration en surface.

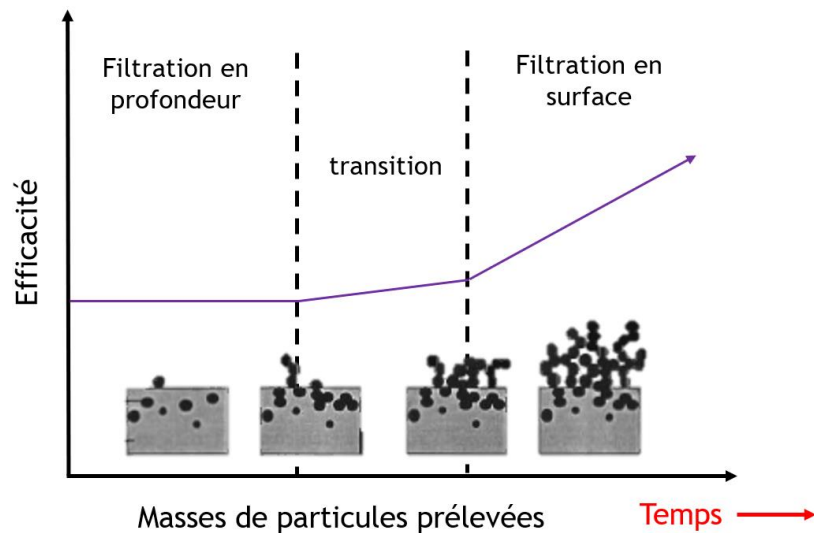


Figure 34 : Évolution de l'efficacité d'un filtre en fonction du temps et de la masse de particules prélevées

Toutefois, quelle que soit la phase de filtration, les mêmes mécanismes de collecte interviennent lorsqu'un air chargé en particules est aspiré au travers du médium filtrant. Les principaux mécanismes de collecte qui entrent en ligne de compte sont illustrés à la figure 35 (à gauche). Leur prépondérance vis à vis du diamètre des particules est aussi illustrée sur la même figure 35 (à droite).

- **Diffusion** : les petites particules ne suivent pas les lignes de courant du fluide mais au contraire sont animées d'un mouvement aléatoire appelé le mouvement Brownien. Celui-ci est d'autant plus intense que les particules sont petites. Les particules qui subissent ce mouvement brownien en passant à proximité d'un collecteur ont une probabilité de s'adhérer à lui due à la force de Van der Waals. En conséquence, plus les particules sont petites et plus la collecte par diffusion brownienne est importante et prépondérante devant les autres mécanismes.
- **Impaction** : au passage à proximité d'un obstacle les lignes de courant du fluide sont plus ou moins rapidement déviées en fonction de la vitesse de l'air. L'impaction intervient alors sur les particules portées par ces lignes de courant mais qui contrairement à ces dernières ont une inertie ne leur permettant pas de changer rapidement leur direction afin d'éviter l'obstacle. Le mécanisme de collecte par impaction devient important, pour une vitesse donnée, lorsque la taille des particules est de l'ordre du micromètre. Toutefois, plus la vitesse d'air est importante et plus le mécanisme de collecte par impaction intervient aussi pour les particules inférieures au micromètre.
- **Interception** : les particules collectées par interception ont une taille intermédiaire qui fait qu'elles subissent peu de mouvement brownien et qu'elles soient en capacités de suivre les changements, mêmes brutaux, des lignes de courant du fluide lors d'un passage à proximité d'un obstacle. En revanche, lorsque ces particules touchent un collecteur ou bien encore sont bloquées par un passage dont le diamètre est plus petit que celui de la particule elle-même, la collecte par interception intervient. Ce mécanisme est indépendant de la vitesse d'air mais tient compte des caractéristiques géométriques du médium filtrant.

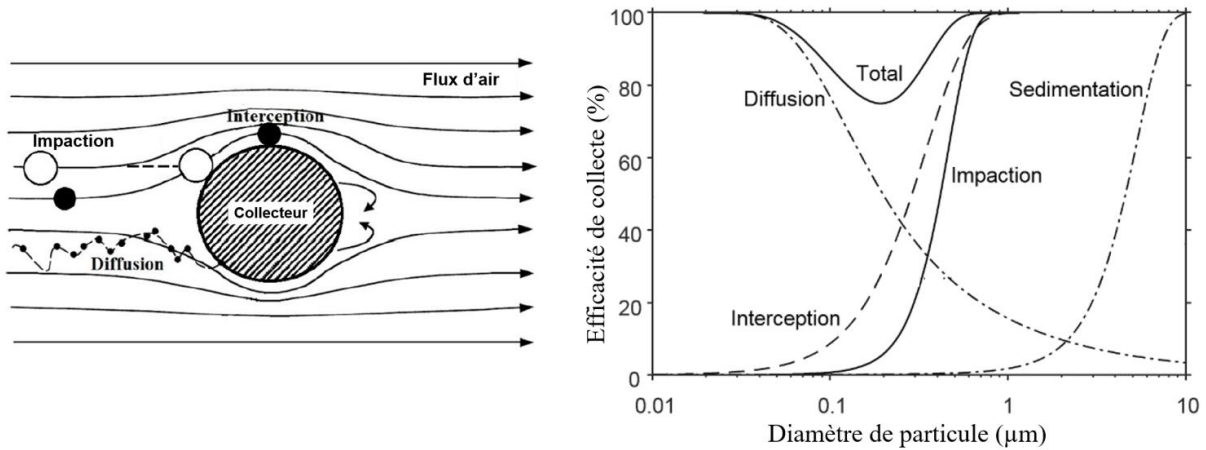


Figure 35 : (À gauche) illustration schématique des trois principaux mécanismes de collecte, d'une particule transportée par un flux d'air, sur un collecteur (Bulejko, 2018). (À droite) évolution de l'intensité des différents mécanismes de collecte en fonction de la taille des particules (Lindsley, 2016)

La filtration en profondeur est quasi inexistante avec l'utilisation de filtre à membranes de type FSLW pour la gamme en taille des particules considérées dans notre étude (Zikova *et al.*, 2015). Toutefois, la collecte d'aérosols en surface du filtre a pour conséquence l'accumulation en masse et peut conduire à la formation d'une structure granulaire. Cette structure granulaire, caractérisée par sa porosité, se substitue ensuite aux mécanismes de filtration du filtre à membranes.

La porosité a été étudiée par plusieurs auteurs (Hoffmann & Finkers, 1995; Kasper *et al.*, 2010; Schmidt, 1995; Yu *et al.*, 1997). Elle quantifie le ratio du volume d'air au volume de matière (particules) dans un volume donné (relation 28).

$$\epsilon = \frac{V_{\text{air}}}{V_{\text{total}}} = 1 - \frac{m_{\text{acc}}}{\rho_p V_{\text{total}}}, \quad (28)$$

avec :

- V_{air} : volume d'air laissé dans les interstices,
- V_{total} : volume d'air plus volume occupé par la matière ($V_{\text{air}} + V_p$)
- m_{acc} : masse de particules prélevée.

La porosité est dépendante de nombreux paramètres tels que la taille, forme, masse volumique des particules qui constituent la structure. Sur la figure 36, issue de Yu *et al.* (1997), on constate que la porosité du dépôt diminue à mesure que le diamètre équivalent en volume des particules augmente. Yu *et al.* (1997) proposent une relation (équation 29) empirique pour caractériser la porosité d'un dépôt de particules polydispersées en taille.

$$\epsilon(d_{\text{ev}}) = \epsilon_0 + (1 - \epsilon_0) \exp(-ad_{\text{ev}}^b), \quad (29)$$

avec ϵ_0 , a et b des paramètres empiriques dont les valeurs, déterminées expérimentalement et reportées dans le tableau 7, dépendent de la manière dont le dépôt est conçu.

Tableau 7 : Valeurs des paramètres empiriques pour les deux configurations d'essais menées par Yu et al. (1997)

Paramètres	ϵ_0	a	b
Particules versées sur une surface	0,567	0,247	0,749
Particules comprimées sur une surface	0,433	0,446	0,579

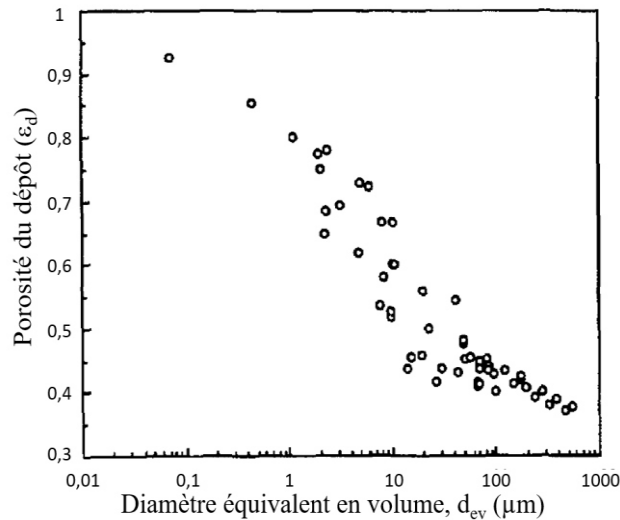


Figure 36 : Porosité initiale en fonction du diamètre équivalent en volume, d_{ev} , issue de Yu et al. (1997)

Avant d'utiliser la relation empirique de Yu *et al.* (1997) pour caractériser la porosité de nos dépôts, il a été nécessaire d'estimer expérimentalement la porosité d'une structure granulaire formée par le prélèvement, effectué par le CAM, d'aérosol de type C (pour rappel : $DE_{vMM} = 11,3 \mu m$). Après prélèvement, il a tout d'abord été nécessaire de figer la structure sur le médium. Pour ce faire, une méthode décrite par Schmidt & Löffler (1990), reprise par Bourrous (2014) a été utilisée. L'échantillon final est ensuite observé au MEB. L'image obtenue est reportée à la figure 37, sur laquelle on observe une structure homogène formée par les aérosols (formes irrégulières blanches).

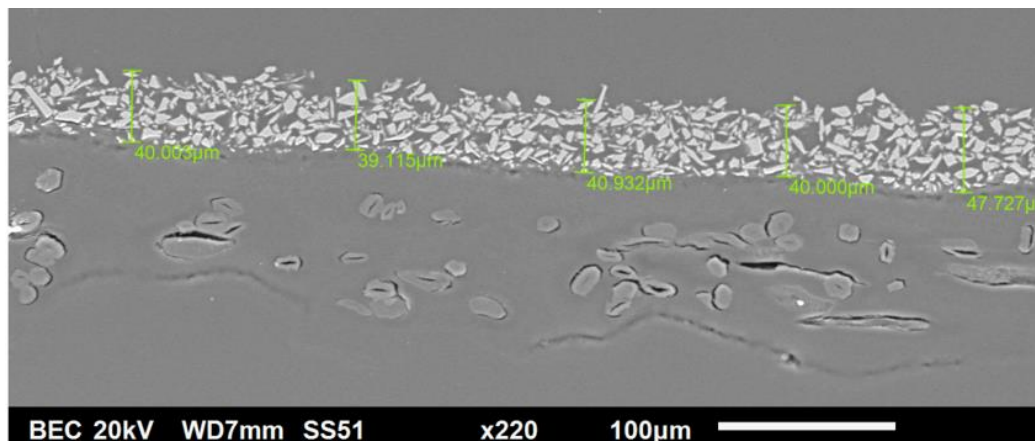


Figure 37 : Observation au MEB de la structure granulaire formée au-dessus d'un filtre à membranes après prélèvement effectué avec le CAM ABPM203M d'aérosols (type C)

Sur cette image, on applique un effet de contraste afin de faire ressortir les zones qui correspondent aux particules (formes blanches) de celles qui correspondent aux interstices (zones noires). L'image contrastée obtenue est reportée à la figure 38. À partir de celle-ci, la porosité est estimée en faisant un rapport de niveaux de gris. Elle est égale à 60 %¹. Celle-ci est comprise entre 53 % et 66 %, lesquelles sont calculées à l'aide de la relation de Yu *et al.* (1997) pour une même taille de particules et pour les deux configurations de dépôt, soit respectivement lorsque les particules sont comprimées et simplement versées sur une surface. Ainsi, ce résultat permet de confirmer la bonne utilisation de la relation pour caractériser la porosité des dépôts dans notre étude.



Figure 38 : Illustration de l'image permettant le calcul de la porosité du dépôt

De manière à évaluer si le dépôt des aérosols collectés en surface du filtre du CAM forme une structure granulaire ou non, on calcule le nombre de couche moyen équivalente (N_{moy}) à partir de la distribution du nombre de couche équivalente (relation 30). Lorsque N_{moy} est inférieur à deux alors on considère que le dépôt ne forme pas de structure granulaire et forme une structure granulaire lorsque N_{moy} est supérieur à deux. Dans cette dernière configuration, les mécanismes de filtration de la structure granulaire s'ajoutent (en amont) à ceux du filtre à membranes et sont donc à considérer.

$$dN_{\text{eq}} = \frac{m_{\text{acc}}}{\rho_p S_{\text{eff}} f(d_p) (1 - h(\epsilon))} dd_p d\epsilon, \quad (30)$$

avec :

- $h(\epsilon)$: fonction de porosité du dépôt présentée à la relation 29,
- $f(d_p)$: fonction qui caractérise la distribution granulométrique des particules, présentée à la relation 1,
- ρ_p : masse volumique des particules prélevées,
- S_{eff} : surface effective du prélèvement des aérosols sur le filtre qu'on considère égale à 4,91 cm².

Deux situations sont à distinguer, à savoir celles où le CAM est exposé à des conditions IEC et celles où le CAM est exposé à des conditions hors IEC.

Conditions normatives IEC

En condition normatives IEC, où seuls des aérosols radioactifs naturels sont prélevés, la filtration en surface du filtre n'engendre qu'une très faible accumulation en masse sur le filtre du CAM. Effectivement, en considérant une concentration de 10^7 particules.m⁻³ d'aérosols radioactifs naturels de DAMA de 0,2 µm et un débit de prélèvement du CAM de 35 L.min⁻¹, la masse accumulée en fonction du temps est calculée et reportée à la figure 39 (graphique de gauche). À partir des

¹ Une seule mesure a été effectuée, ainsi nous ne pouvons pas, ici, juger de la variabilité de la porosité.

masses prélevées et à l'aide de la relation 30, nous avons déterminé le nombre moyen de couche équivalente correspondant en fonction du temps de prélèvement. Le résultat est reporté à la même figure 39 (graphique de droite). On constate donc que la faible accumulation de masse d'aérosols radioactifs naturels n'engendre pas de structure granulaire puisque le N_{moy} reste toujours inférieur à deux, et ce jusqu'à un temps d'environ 2900 minutes (dans les mêmes conditions). En conséquence, aucune modification des mécanismes de collectes n'est attendue.

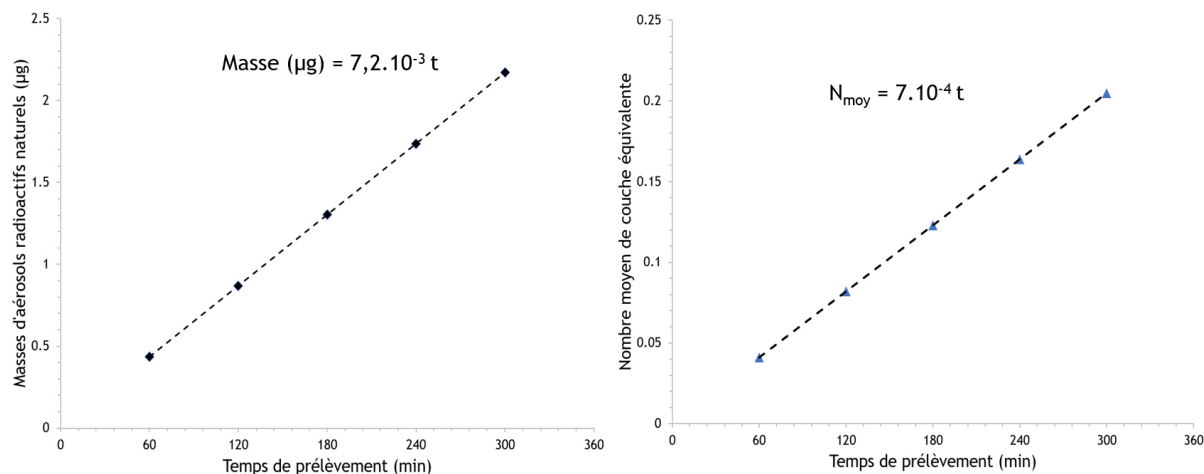


Figure 39 : Graphique de gauche : accumulation de la masse d'aérosols radioactifs naturels en fonction du temps sur le filtre de prélèvement du CAM qui aspire l'air à 35 L.min⁻¹. Graphique de droite : évolution du nombre moyen de couches équivalentes en fonction du temps. Les caractéristiques de l'atmosphère utilisé pour les calculs sont : une concentration en aérosols radioactifs naturels de 10⁷ particules.m⁻³ et un DAMA à 0,2 µm pour un écart-type géométrique de 1,5 (condition préconisée par l'IEC 61578 (1997) pour évaluer les performances des CAM)

Hors conditions normatives IEC

Hors conditions normatives IEC, en plus des aérosols radioactifs naturels, des aérosols non-radioactifs en concentrations variées et présentant une granulométrie importante, notamment supérieure à 5 µm en d_{ae} (figure 19), peuvent être échantillonnés et collectés par le CAM. Dans ce cas, la collecte d'aérosols non-radioactifs en surface du filtre a pour conséquence une accumulation non négligeable en masse d'aérosols. On peut légitimement s'attendre après l'accumulation d'une certaine masse à la formation d'une structure granulaire. Le calcul du nombre moyen de couche équivalente est effectué pour les quatre granulométries mises en œuvre dans l'étude et pour différentes masses de particules prélevées. Les résultats sont reportés à la figure 40, lesquelles mettent en avant la possibilité de former une structure granulaire en surface du filtre à partir de masses accumulées d'environ 4 mg, 6 mg, 18 mg et 50 mg respectivement lors de prélèvement d'aérosols dont les caractéristiques sont celles (ou proches) des types A, B, C et D. Ces masses accumulées peuvent être atteinte plus ou moins rapidement en fonction de la concentration d'aérosol remis en suspension dans l'air.

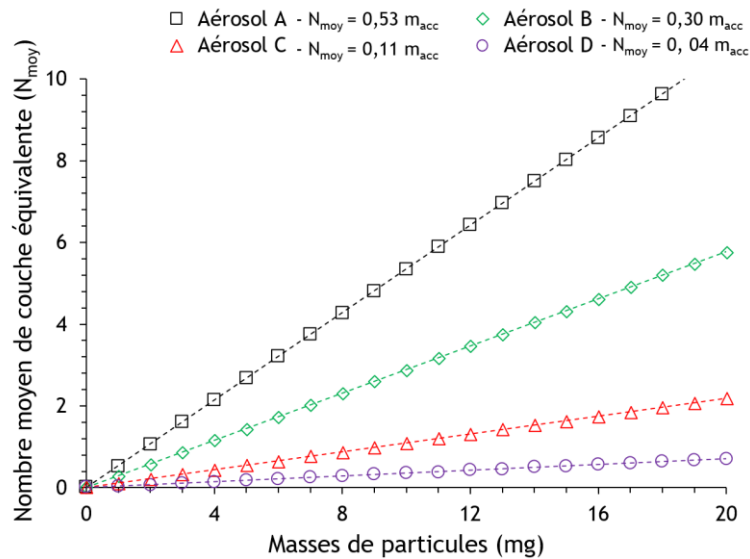


Figure 40 : Évolution du nombre moyen de couche équivalente en fonction de la masse de particule prélevée et pour les quatre granulométries d'aérosols mises en jeu dans l'étude, soit en carrés noirs, losanges verts, triangles rouges et cercles violets respectivement pour l'aérosol A, B, C et D. Les courbes de tendance linéaire sont également tracées, les équations associées reportées en légende

Dans ces conditions hors IEC, l'effet de la structure granulaire, constituée d'aérosols non-radioactifs, sur l'efficacité de filtration des aérosols radioactifs naturels, notamment sur le profil de pénétration de ces derniers est alors à considérer. En connaissant les caractéristiques de la structure granulaire formée, il est possible de calculer les efficacités de collecte unitaire dues aux différents mécanismes. Ainsi, le profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans la structure granulaire peut-être caractérisé. Les efficacités unitaires sont calculées à partir des équations issues de Gutfinger & Tardos (1979) et Diouri (1987) qui traitent spécifiquement de l'efficacité d'un filtre à billes (similaire à une structure granulaire).

Efficacité de collecte unitaire - diffusion brownienne

L'efficacité de collecte par diffusion brownienne est caractérisée par un paramètre sans dimension, le nombre de Peclet (Pe) défini par la relation 31. Celui-ci est fonction à la fois des caractéristiques des particules qui constituent la structure (d_{ev}), de la vitesse d'air interstitielle (V_{int}) et des caractéristiques des aérosols qui sont filtrés, à travers le coefficient de diffusion (D). Individuellement, plus le nombre de Peclet est grand, plus la probabilité de captation des aérosols filtrés est faible.

$$Pe = \frac{d_{ev} V_{int}}{D}, \quad (31)$$

avec :

- d_{ev} : longueur caractéristique du collecteur, soit le diamètre équivalent volume,
- V_{int} : vitesse d'air interstitielle transportant les aérosols, définie à la relation 32,
- D : coefficient de diffusion moléculaire défini à la relation 33.

$$V_{\text{int}} = \frac{U_{\text{air}}}{1 - \epsilon}, \quad (32)$$

$$D = \frac{k_B T \text{Cu}(d_p)}{3 \pi \mu_f d_p}, \quad (33)$$

avec :

- $\text{Cu}(d_p)$: coefficient de Cunningham tel que défini à l'équation 10,
- d_p : diamètre de la particule filtrée,
- k_B : constante de Boltzmann,
- T : température de l'air.

L'efficacité unitaire de collecte due à la seule diffusion brownienne des particules peut être décrite par la relation 34.

$$E_{\text{dif}} = 3,15 (2K)^{1/3} \text{Pe}^{-2/3}, \quad (34)$$

avec :

- K : facteur hydrodynamique de Kuwabara (1959) qui dépend de la porosité de la structure et du nombre de Reynolds de l'écoulement à l'intérieur. Il est défini comme $K = -\frac{1}{2} \ln(1 - \epsilon) - \frac{3}{4} + (1 - \epsilon) - \frac{(1 - \epsilon)^2}{4}$, pour $d_{\text{ev}} \geq 2 \mu\text{m}$.

Efficacité de collecte unitaire - impaction

Le mécanisme de collecte des particules par impaction est une fonction du nombre de Stokes (Stk) qui caractérise l'inertie des particules. Ce nombre est défini par l'équation 35. Une forte inertie de la particule, caractérisée par un grand nombre de Stokes, signifie par équivalence une grande probabilité de collecte par impaction. L'efficacité de collecte unitaire par impaction peut être définie par la relation 36.

$$\text{Stk} = \frac{\rho_p d_p^2 \text{Cu}(d_p) V_{\text{int}}}{18 \mu_f d_{\text{ev}}}. \quad (35)$$

$$E_{\text{imp}} = \frac{(K \text{Stk})^{3,55}}{1,67 + (K \text{Stk})^{3,55}}. \quad (36)$$

Efficacité de collecte unitaire - interception

Le paramètre qui caractérise le mécanisme de collecte par interception est noté R_{int} (relation 37). Il correspond au ratio de la grandeur qui caractérise la particule transportée par l'air à celle qui caractérise le médium filtrant. Plus la valeur de R_{int} est grande et plus l'efficacité de collecte par interception est importante.

$$R_{int} = \frac{d_p}{d_{ev}}. \quad (37)$$

L'efficacité unitaire de collecte de particules par interception est définie par la relation 38.

$$E_{int} = 3,3 \frac{R_{int}^2}{\epsilon^3}. \quad (38)$$

Efficacité de collecte totale - diffusion, impaction, interception

L'efficacité totale de la structure granulaire s'exprime à l'aide de la relation 39. Celle-ci regroupe les divers mécanismes de collecte (diffusion, interception et impaction) pour une hauteur de médium donnée ($L = N_{moy} * d_{ev}$).

$$E_{couche} = 1 - P_T = 1 - \exp\left(-\frac{3(1-\epsilon)}{4} \frac{2E_{grain}}{\epsilon} \frac{L}{d_{ev}}\right), \quad (39)$$

avec :

- P_T : pénétration totale des particules portées par l'air et piégées à l'intérieur du médium filtrant,
- E_{grain} : efficacité de collecte d'un grain due à la diffusion brownienne, à l'interception et à l'impaction ($E_{grain} = E_{dif} + E_{int} + E_{imp}$),

Dans le tableau 8, les efficacités de collecte unitaire calculées pour les quatre granulométries d'aérosols (A, B, C et D) vis-à-vis des aérosols radioactifs naturels (DAMA = 0,2 μ m) sont reportées. La somme de ces efficacités donne l'efficacité de collecte d'un grain, qui constitue la structure et dont les valeurs sont aussi reportées dans le tableau 8. L'efficacité de collecte d'une couche est calculée pour les quatre granulométries d'aérosols à partir de E_{grain} et de l'équation 39. Une couche représente ici un N_{moy} présenté précédemment.

Tableau 8 : Efficacités de collecte des aérosols radioactifs naturels (DAMA = 0,2 µm) dans la structure granulaire formée par les quatre aérosols non-radioactifs

DE _v MM (µm)	Efficacité de collecte unitaire (%)			Efficacité de collecte d'un grain E _{grain} (%)	Efficacité de collecte d'une couche E _{couche} (%)
	Diffusion E _{dif}	Interception E _{int}	Impaction E _{imp}		
5,6	1,19	0,48	96,25	97,92	62,10
7,9	1,08	0,30	91,88	93,25	66,29
11,3	0,96	0,18	83,27	84,41	68,16
31,4	0,62	0,04	30,16	30,82	42,59

L'efficacité d'une structure granulaire formée de n couches ($n * N_{moy}$) est déterminée à l'aide de la relation 40, avec l'indice i qui correspond au « numéro » de la couche. La couche numéro une est attribuée à la dernière couche formée alors que la n^{ième} constitue la couche la plus profonde (formée en première).

$$E_i = 1 - (1 - E_1)(1 - E_2) \dots (1 - E_n) = 1 - \prod_{i=1}^n (1 - E_{couche}) \quad (40)$$

À partir de cette relation 40, le profil de pénétration ($P_i = 1 - E_i$) des aérosols radioactifs naturels en fonction du nombre moyen de couche équivalente qui constitue la structure granulaire est calculé pour les quatre granulométries d'aérosols. Les différents profils de pénétration sont reportés à la figure 41 avec les carrés noirs, les losanges verts, les triangles rouges et les cercles violets qui correspondent respectivement aux aérosols A, B, C et D.

Ces résultats montrent des profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels (de la fraction attachée, soit DAMA = 0,2 µm) proches lorsque les dépôts en surface du filtre à membranes sont constitués d'aérosols non-radioactifs de type A, B et C, soit ayant un diamètre équivalent en volume respectif de 5,6 µm, 7,9 µm et 11,3 µm. Dans des dépôts constitués de ces aérosols non-radioactifs, la pénétration des aérosols radioactifs naturels est relativement faible. Effectivement, environ 60 à 70 % sont collectés à la première couche, environ 20 à 25 % sur la deuxième couche et ainsi de suite. En revanche, lorsque le dépôt en surface est constitué d'aérosols non-radioactifs de type D, soit un diamètre équivalent en volume de 31,4 µm, la pénétration des aérosols radioactifs naturels est plus importante. Effectivement, seule une fraction d'environ 45 % est collectée sur la première couche et les 55 % restants, collectés sur les couches suivantes.

Ainsi, plus le dépôt est constitué de particules non-radioactives de taille importante, notamment ici $d_{ev} = 31,4 \mu\text{m}$, plus grande est la fraction des aérosols radioactifs naturels (fraction attachée) qui pénètre dans profondément dans le dépôt.

Remarque : Nous n'avons pas discuté de l'efficacité de collecte de la fraction libre des aérosols radioactifs naturels, qui représente environ 40 % de l'activité naturelle, caractérisée par un diamètre nanométrique compris entre 0,5 et 50 nm. Dans ce domaine de taille nanométrique, le mécanisme essentiel de collecte correspond à la diffusion, pour laquelle de nombreuses expressions empiriques et théoriques existent. On peut les trouver dans le livre de Thomas *et al.* (2017). Elles montrent toutes une efficacité de collecte unitaire par diffusion élevée et qui augmente avec une diminution du diamètre de la particule filtrée (proche de l'unité pour ces tailles de particules). Ainsi, on considérera que la fraction libre des aérosols radioactifs naturels est majoritairement

collectée en surface du dépôt et ce quel que soit le diamètre des particules non-radioactives qui constituent le dépôt.

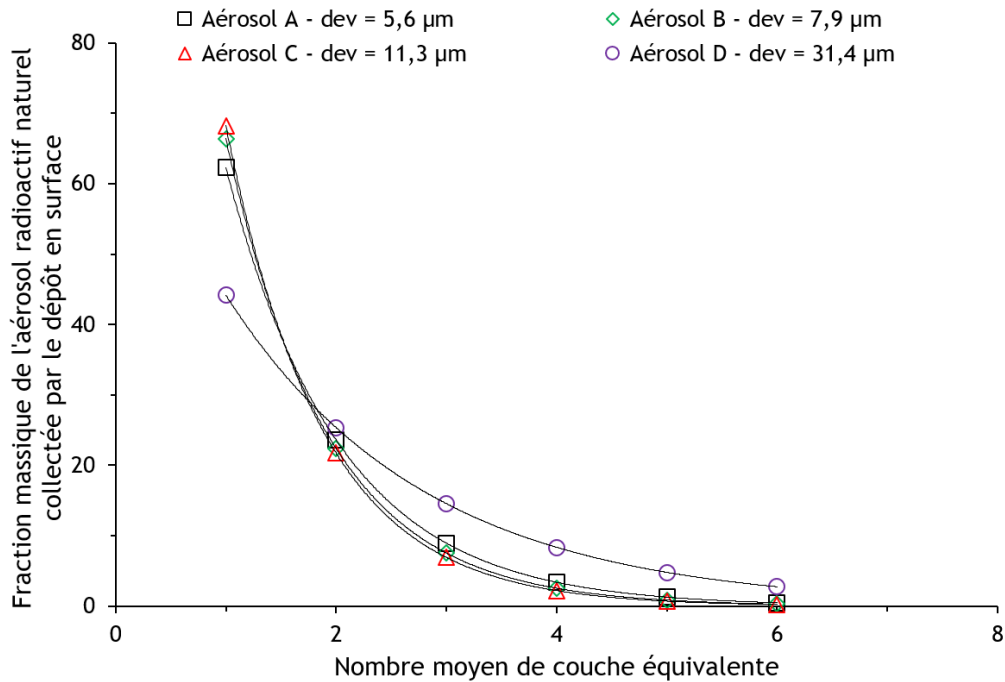
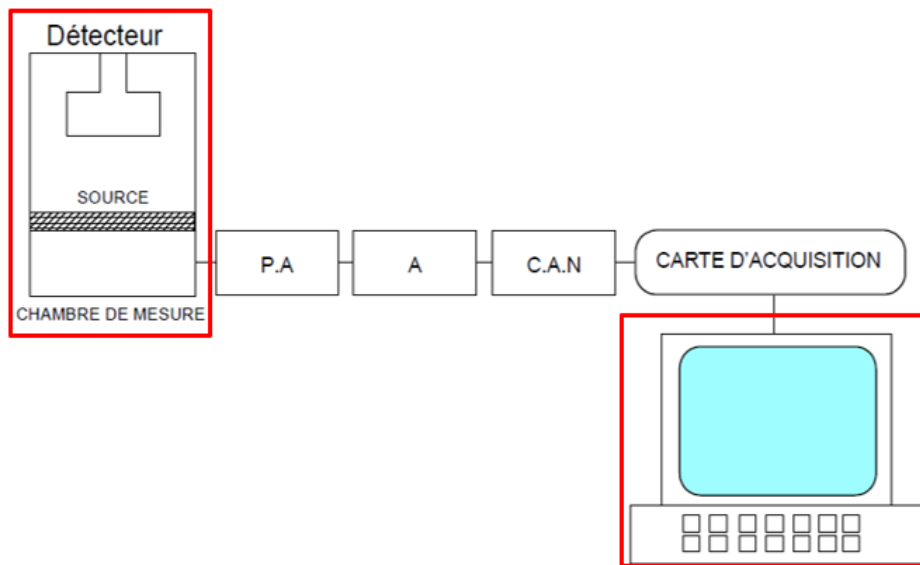


Figure 41 : Profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels (DAMA = 0,2 μm) en fonction du nombre de couche d'une structure granulaire formée par les aérosols A, B, C et D respectivement représentés par les losanges bleus, carrés noirs, triangles verts et cercles violets

Finalement, hors condition IEC la formation d'une structure granulaire est très probable. Celle-ci se substitue aux performances du filtre à membranes et un effet significatif sur le profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels a lieu. Cet effet est d'autant plus important que la granulométrie des aérosols constituant la structure granulaire est importante. En conséquence, la mesure nucléaire est affectée et ce de manière corrélée à l'absorption de l'énergie des particules α dans la structure granulaire. C'est ce dont il est question dans la partie suivante, le transfert de l'énergie des particules α dans la matière (les aérosols).

II.2 Spectrométrie α en continu et en temps réel

La figure 42 issue de CETAMA *et al.* (2012) présente sous forme schématique la composition d'une chaîne de mesure de spectrométrie α . Le détecteur est la partie dans laquelle les interactions entre les particules α , émises par les aérosols radioactifs (source), et la matière, constituant le détecteur, ont lieu. Ces interactions engendrent un échange d'énergie qui se traduit par la production de charges électriques qui sont ensuite collectées, amplifiées et converties par la chaîne d'acquisition (P.A, A, CAN et carte d'acquisition). En sortie, un spectre, qui représente le nombre de désintégration (coups ou comptage) en fonction d'un numéro de canal qui correspond à une énergie, est obtenu.



P.A. : préamplificateur, A. : amplificateur, C.A.N. : convertisseur analogique numérique

Figure 42 : Représentation schématique d'une chaîne de mesure de spectrométrie α issue de CETAMA *et al.* (2012)

Dans ce qui suit, seules les parties encadrées en rouge à la figure 42 et qui concernent la « chambre » de mesure (aérosols radioactifs - air - détecteur), à travers l'interaction des particules α avec la matière, et le spectre en énergies α obtenue en fin de chaîne, sont détaillées.

II.2.1 Interaction des particules α avec la matière

Les particules α interagissent avec la matière traversée selon deux principaux mécanismes par l'intermédiaire des forces coulombiennes :

- **l'excitation** : se produit lorsque l'énergie transférée par la particule α à la matière est faible et inférieure à l'énergie de liaison d'un électron du cortège électronique de l'atome qui constitue la matière. L'électron excité passe d'une orbitale à une autre, tout en restant lié au cortège électronique de l'atome.
- **l'ionisation** : se produit lorsque l'énergie transférée par la particule α à la matière est supérieure à l'énergie de liaison des électrons du cortège électronique de l'atome. L'électron est alors éjecté hors du cortège électronique.

Toutefois, la particule α est dite directement ionisante car elle interagit avec la matière en lui transférant de son énergie essentiellement par le biais du mécanisme d'ionisation. Dans le cas d'un

semi-conducteur tel que le silicium, l'ionisation de la matière engendre la formation de paires électrons-trous. Ainsi, durant tout le trajet de la particule α dans la matière, jusqu'à ce qu'elle soit stoppée, un nombre important de paires électron-trou (N) sont formées selon l'équation 41.

$$N = \frac{E_{\alpha}}{W}, \quad (41)$$

avec :

- E_{α} : énergie de la particule α une fois dans la zone sensible du détecteur,
- W : énergie nécessaire pour former une paire électron-trou dans la matière. Pour le silicium à une température de 300 K, une énergie de seulement 3,62 eV est nécessaire contre 35 eV pour l'air (Knoll, 2010).

Un moyen de quantifier le transfert d'énergie consiste à définir le pouvoir d'arrêt du matériau (S). À partir de celui-ci, il est aussi possible de quantifier la distance que peut parcourir une particule α , ayant une énergie initiale donnée, dans un matériau donné. Cette distance est appelée le parcours (R_{α}).

II.2.1.a Pouvoir d'arrêt d'un matériau

Le pouvoir d'arrêt d'un matériau, ou la perte d'énergie linéique (exprimé en $\text{MeV}\cdot\text{cm}^{-1}$), caractérise la perte d'énergie d'une particule par unité de longueur. Il est défini par la relation 42 issue de Tsoulfanidis (1995) qui fait suite aux travaux initialement menés par Bethe et Bloch. On constate que le pouvoir d'arrêt (S) dépend à la fois des caractéristiques du matériau par le produit NZ et des caractéristiques de la particule avec sa charge Z et son énergie à travers le paramètre β . Plus l'énergie de la particule est petite, plus la valeur de β tend vers 0. Le paramètre β étant situé à la fois au dénominateur du terme devant les accolades et à l'intérieur du logarithme népérien engendre des évolutions contraires des termes. Ceci conduit à une évolution du pouvoir d'arrêt présentant un maxima pour un matériau donné à une énergie donnée de la particule α .

$$S = -\frac{dE}{dx} = 4 \pi r_0^2 z^2 \frac{mc^2}{\beta^2} NZ \left[\ln \left(\frac{2 mc^2}{I} \beta^2 \gamma^2 \right) - \beta^2 \right], \quad (42)$$

avec :

- r_0 : rayon classique de l'électron, soit $2,818 \cdot 10^{-15}$ m,
- z : charge de la particule, soit 2 pour les particules α ,
- mc^2 : énergie de masse d'un électron au repos, soit 0,511 MeV,
- N : densité atomique du matériau traversé (nombre d'atome par unité de volume), soit $N = \rho \left(\frac{N_A}{A} \right)$ avec ρ la masse volumique du matériau ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$), N_A le nombre d'Avogadro ($6,022 \cdot 10^{23}$ atomes par mole) et A le nombre de nucléons,
- Z : numéro atomique moyen du matériau absorbant,
- β : vitesse réduite de la particule α (v_{α}) par rapport à la célérité de la lumière dans le vide (c), soit $\beta = v_{\alpha}/c$,
- γ : facteur de Lorentz, soit $\gamma = \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}}$,
- I : potentiel moyen d'excitation du matériau (eV) dont la valeur est fonction de la composition du matériau, notamment du nombre Z . Pour calculer le potentiel moyen d'excitation d'un matériau composé de divers éléments, on peut se référer à la méthode décrite dans le livre de Turner (2007).

Le pouvoir d'arrêt d'un matériau, tel que défini ci-dessus tient compte à la fois de l'état (liquide, gaz, solide) et de la nature du matériau. De manière à s'affranchir de ces derniers et de ne tenir compte que de la composition atomique du matériau, il est usuel d'exprimer non pas le pouvoir d'arrêt du matériau mais son pouvoir d'arrêt massique (exprimé en $\text{MeV}\cdot\text{cm}^2\cdot\text{g}^{-1}$). Effectivement, deux matériaux de composition atomique proche ont un pouvoir d'arrêt massique proche. Ceci se fait simplement en divisant le pouvoir d'arrêt du matériau par la masse volumique (ρ) du matériau. Le programme ASTAR développé par le NIST (2009) permet de calculer le pouvoir d'arrêt massique de différents matériaux purs ou composés pour des particules α de différentes énergies.

A la figure 43 est illustrée l'évolution du pouvoir d'arrêt massique du silicium pour différentes énergies de particules α avec un maxima qui est situé pour une particule α d'énergie 500 keV (repéré par la flèche noire).

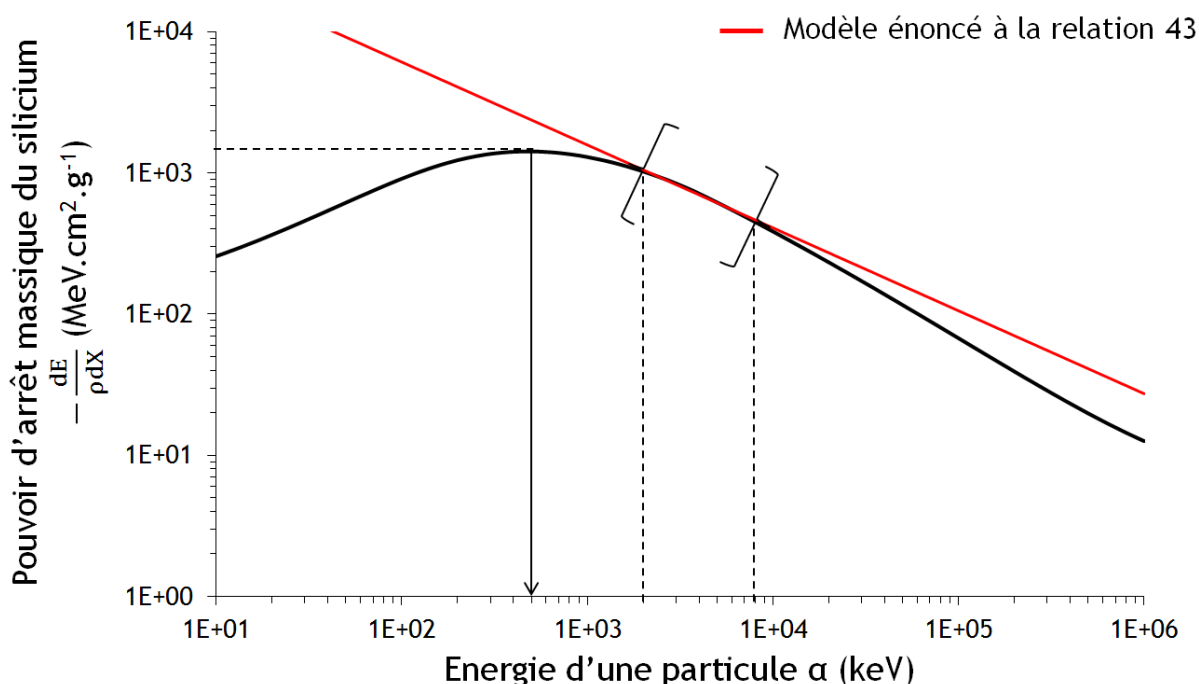


Figure 43 : Pouvoir d'arrêt massique du silicium pour des particules α de différentes énergies calculé à l'aide du programme du NIST (2009). Pour une énergie de 0,5 MeV, le pouvoir d'arrêt présente un maxima vis-à-vis des particules α (repéré par la flèche noire). La courbe en rouge correspond à l'ajustement du modèle énoncé à la relation 43 sur la gamme en énergie entre accolades, soit 2 à 8 MeV

Des relations empiriques sont existantes dans la littérature et permettent plus facilement de représenter une partie de la courbe du pouvoir d'arrêt massique d'un matériau. Par exemple la relation 43 issue de Pommé *et al.* (1995) permet de calculer le pouvoir d'arrêt massique, avec une très bonne approximation, pour la gamme en énergie allant de 2 à 8 MeV. Cette gamme correspond bien à la gamme des énergies emportées par les particules α dans notre étude (issues du ^{218}Po et du ^{214}Po). Ainsi, nous avons calculé à l'aide de cette relation empirique le pouvoir d'arrêt massique du silicium sur cette gamme en énergie, lequel est reporté à la figure 43 (ligne rouge). L'écart-relatif des pouvoirs d'arrêt massique du silicium entre le modèle empirique, relation 43, et celui donné par le NIST (2009) est inférieur à 3 % pour cette gamme d'énergie. Cette relation permettant d'approcher, avec un biais négligeable dans notre étude, le transfert en énergie des particules α dans la matière, est très largement utilisée dans ce qui suit.

$$-\frac{dE}{\rho dx} = aE^{-b}, \quad (43)$$

avec a et b des paramètres empiriques respectivement égaux à 21225,56 et 0,59 pour ajuster l'équation 43, sur la gamme en énergie allant de 2 à 8 MeV, au pouvoir d'arrêt massique du silicium donné par le NIST (2009).

Au regard de la figure 43, on comprend bien que le transfert d'énergie de la particule α à la matière n'est pas constant au fur et à mesure que la particule perd de son énergie. La figure 44 illustre deux exemples, calculés à partir de la relation 43, de l'évolution du transfert d'énergie d'une particule α de 4000 et 8000 keV en fonction de la distance parcourue dans du silicium. Plus la particule traverse la matière, plus l'énergie transférée est importante et ce jusqu'à ce que la particule atteigne une énergie telle que les interactions soient maximales. Ceci conduit à un transfert important et brusque de la totalité de son énergie restante, formant ainsi les pics sur la figure 44, mieux connus sous le nom de pic de Bragg. Le pic de Bragg, où le transfert en énergie de la particule à la matière est maximum, a lieu à une distance très courte de la fin du parcours de la particule α dans la matière.

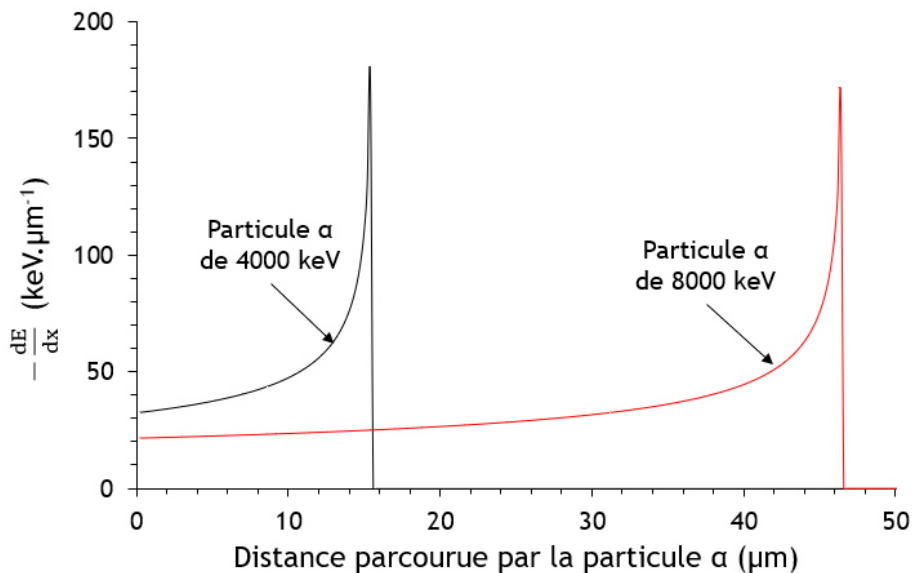


Figure 44 : Illustration du pic de Bragg (calculé à partir de la relation 43) pour une particule α de 4000 keV (courbe noire) et 8000 keV (courbe rouge) traversant du silicium

II.2.1.b Parcours d'une particule α

Le parcours R_α , défini à la relation 44, caractérise les interactions des particules α avec la matière. Celui-ci dépend à la fois de l'énergie de la particule et des caractéristiques du milieu traversé à travers le pouvoir d'arrêt. En d'autres termes, le parcours définit la distance au-delà de laquelle « aucune » particule α ayant une énergie initiale donnée ne sera détectée.

$$R_\alpha = \int_{E_0}^0 \frac{-dE}{S}. \quad (44)$$

Compte tenu de l'importante masse des particules α par rapport aux électrons du cortège électronique de la matière traversée, le parcours est considéré comme étant rectiligne. Nous avons

vu que les particules α , du fait de leur double charges positives, interagissent fortement avec la matière et que le transfert en énergie est de plus en plus important au cours du parcours. Pour ces raisons, la distance que parcourt une particule α dans la matière est petite (7,5 cm dans l'air à la pression atmosphérique pour une particule α de 8 MeV), voire même très petite (49 μm dans le silicium pour une particule α de 8 MeV). En utilisant la relation 43, on calcule des distances respectivement de 7,2 cm et 46,5 μm , soit avec un écart relatif respectif de 4 et 6 % avec celles calculées par le NIST (2009). A la figure 45, à partir des données du NIST (2009), les parcours des particules α de différentes énergies dans l'air (rouge) et dans le silicium (noir) sont tracés.

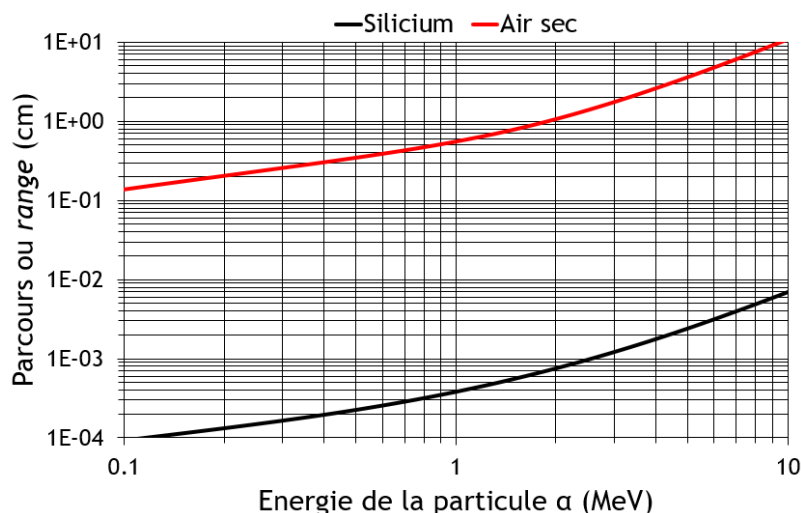


Figure 45 : Parcours des particules α dans l'air (en rouge) et dans le silicium (en noir) en fonction de l'énergie initiale. Courbes tracées à partir des données du NIST (2009)

Le faible parcours des particules α dans la matière (jusqu'à quelques centimètres dans l'air et micromètre dans le silicium) engendre des contraintes importantes sur le moyen de les mesurer. Effectivement, il faut à la fois que les particules α puissent atteindre le volume sensible de l'instrument de détection et qu'elles soient entièrement stoppées à l'intérieur de ce volume. Alors que la première condition est bien entendue sine qua non pour une détection, la deuxième est extrêmement importante pour une mesure résolue en énergie. En effet, en fin de parcours les particules α transfèrent une quantité importante d'énergie (pic de Bragg). Par conséquent, si la particule n'est pas stoppée dans le volume sensible, une grande partie de l'information est perdue.

Dans le cas du CAM, l'épaisseur sensible de détection (en silicium) est environ de 300 μm . Ainsi, les deux conditions sont réunies pour une mesure résolue en énergie. Cependant, l'interaction des particules α avec les électrons du cortège électronique étant un processus statistique, toutes les particules ne sont pas arrêtées par une même épaisseur et ce même si l'énergie initiale est identique. Il y a alors une certaine distribution des parcours induite par le processus statistique du transfert en énergie. Celle-ci est usuellement appelée *energy straggling* et est responsable de la résolution en énergie qui est caractérisée en spectrométrie α par la Full Width at Half Maximum (FWHM). Ainsi, la mesure de particules α , bien qu'initialement mono-énergétique, présentera toujours un pic plus ou moins large traduisant la dispersion en énergie des particules α le long de leur parcours dans la matière.

II.2.2 Caractéristiques du spectre en énergie α

La forme caractéristique d'un spectre en énergies α est illustrée à la figure 46, issue de CETAMA *et al.* (2012). Le spectre α présente une asymétrie vers les basses énergies et peut être caractérisé par trois paramètres, à savoir la **position du pic**, la **Full Width at Half Maximum (FWHM)** et la **traîne en énergie** à gauche du pic α vers les basses énergies.

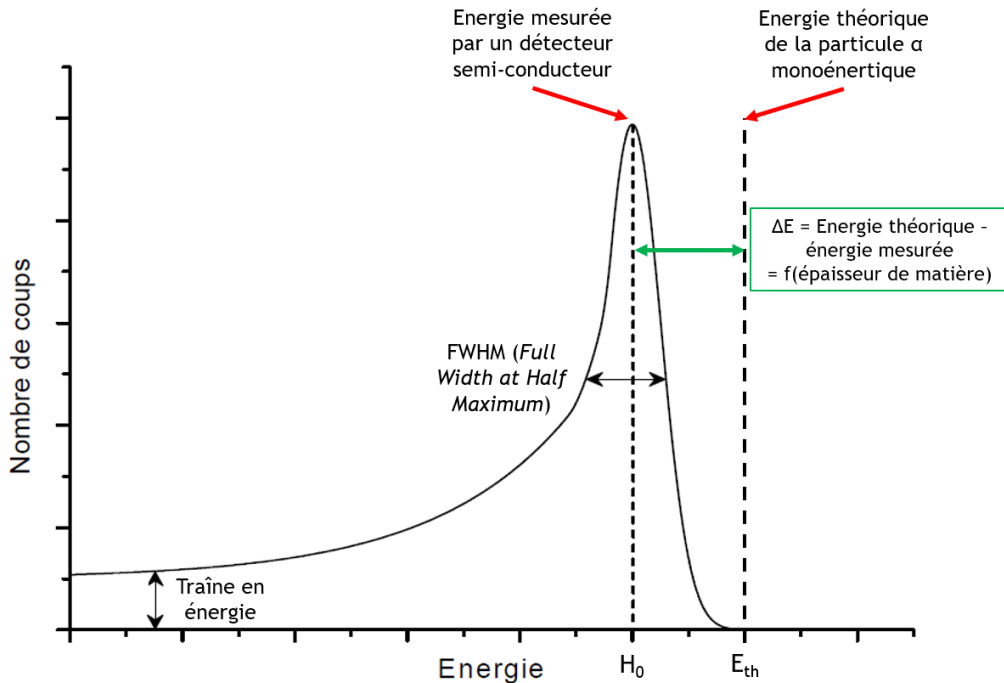


Figure 46 : Illustration d'un spectre en énergies α avec la position du pic d'intensité maximale, la FWHM et sa traîne en énergie. La figure est issue de CETAMA *et al.* (2012)

Ces trois paramètres dépendent de la dispersion de l'énergie des particules α dans la matière. A la figure 47, sont recensés les différents atténuateurs qui, cumulés, conduisent à dégrader en plus ou moins grande proportion la mesure nucléaire effectuée par un CAM, soit de bas en haut :

- l'aérosol radioactif : auto-absorption de l'énergie des particules α dans les particules d'aérosol,
- la structure granulaire constituée d'aérosols non-radioactifs formée au-dessus du filtre à membranes : absorption de l'énergie des particules α ,
- l'épaisseur d'air à laquelle est ajoutée l'épaisseur de la fenêtre d'entrée du détecteur nucléaire : absorption de l'énergie des particules α .

Ici, (dans le cas d'un filtre à membranes) l'éventuelle pénétration des aérosols radioactifs dans le filtre est négligeable.

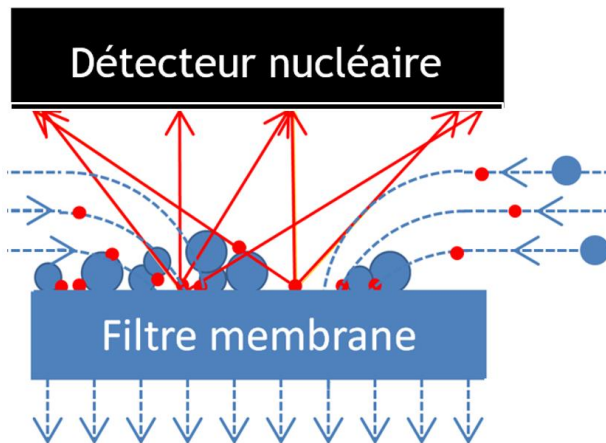


Figure 47 : Illustration d'aérosols non-radioactifs (disques bleus) et radioactifs (disques rouges) collectés en surface du filtre à membranes microporeuses d'un CAM. Les flèches rouges indiquent quelques directions de particules a vers le détecteur nucléaire.

On présente ci-après les études qui ont été menées pour caractériser l'auto-absorption et l'absorption de l'énergie des particules α respectivement dans les aérosols radioactifs et la matière non-radioactive traversée en se focalisant sur des aérosols représentatifs de notre situation d'étude.

II.2.2.a Auto-absorption de l'énergie des particules α dans les particules d'aérosol

L'auto-absorption dans les aérosols radioactifs, comme schématisé à la figure 48 issue de Geryes (2009) a été étudiée par quelques auteurs, tels que (Moore *et al.*, 1993; Pickering, 1984; Pöllänen *et al.*, 2007; Siiskonen & Pöllänen, 2004; Stevens & Toureau, 1963).

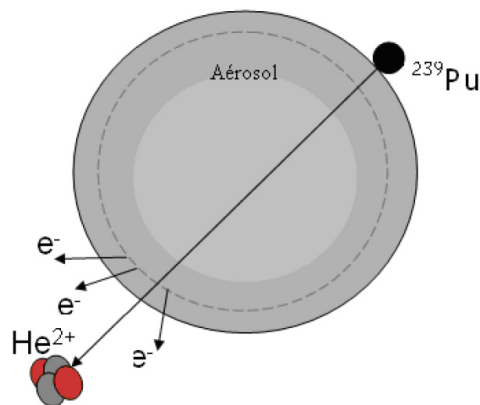


Figure 48 : Illustration de l'auto-absorption de l'énergie d'une particule α (Geryes, 2009)

Pickering (1984) a étudié l'auto-absorption de l'énergie des particules α ($E_\alpha = 5,15$ MeV) émises d'aérosols radioactifs d'(U,Pu) O_2 (masse volumique 11 g.cm^{-3}) de différentes tailles et formes (sphères, sphères aplaties « oblate », sphères allongées « prolate »). Quelques exemples de résultats obtenus sont reportés à la figure 49, lesquels mettent en avant un élargissement de la FWHM corrélé avec la distance parcourue par les particules α dans l'aérosol radioactif. Effectivement, lorsque l'angle d'émission de la particule α est tel que le trajet dans l'aérosol radioactif est maximum, alors la largeur du pic est de la même façon maximale. Toutefois, pour des aérosols radioactifs de petites tailles, similaires aux aérosols radioactifs naturels dans notre étude, il montre à la figure 49 dans l'encadré rouge une dégradation de la radioactivité minimale liée à l'auto-absorption.

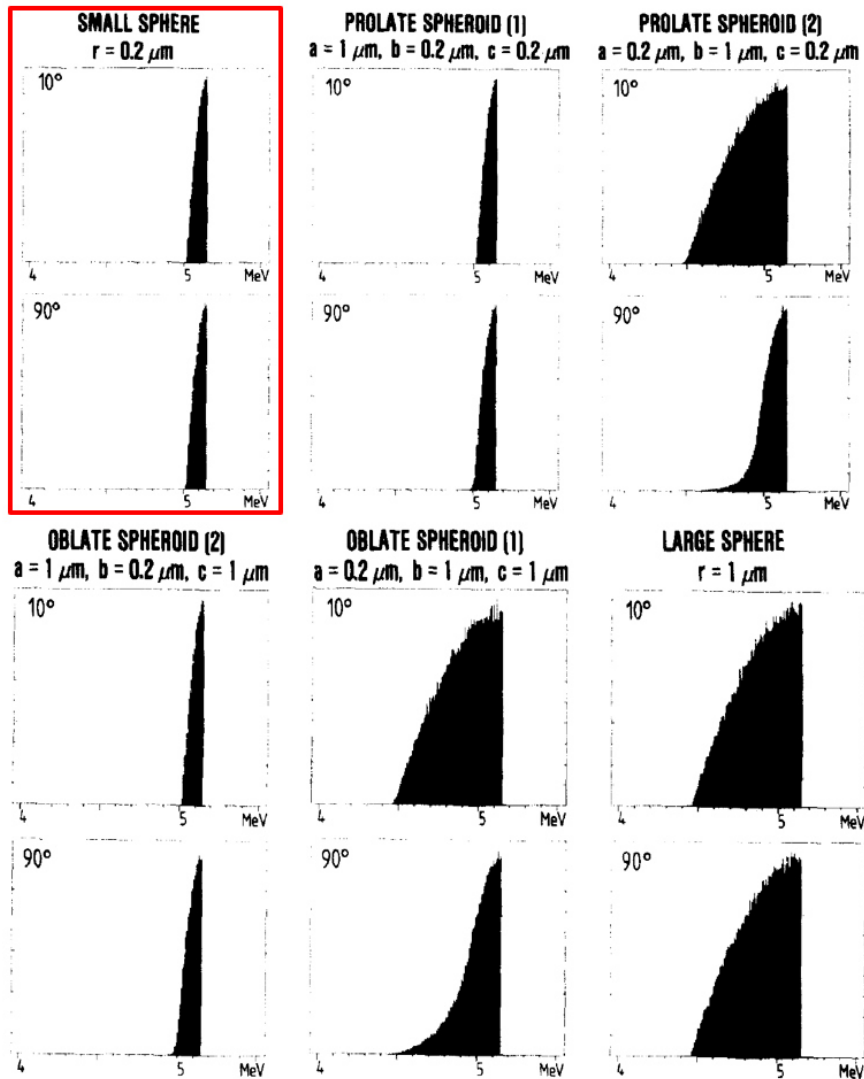


Figure 49 : Spectres en énergie alpha (aérosol radioactifs d'(U,Pu)O₂) calculés par méthode Monte Carlo pour des formes de particules différentes et des angles d'émissions différents (Pickering, 1984)

Pickering (1984) montre aussi à la figure 50 l'évolution de la FWHM en fonction du diamètre d'aérosols radioactifs sphériques d'(U,Pu)O₂ émetteurs de particules α d'énergie $E_{\alpha} = 5,15$ MeV. La FWHM est linéairement corrélée avec le diamètre de l'aérosol radioactif sphérique d'(U,Pu)O₂, soit $FWHM(d_p) = 230 \cdot d_p$.

De manière à s'affranchir de la masse volumique de la particule et ainsi estimer le coefficient directeur de la fonction affine, on utilise la relation 4, laquelle a été présentée au cours du premier chapitre. Celle-ci nous permet de calculer le diamètre aérodynamique à partir du diamètre de la particule sphérique. Finalement, la fonction devient $FWHM(d_{ae}) = 70 \cdot d_{ae}$, laquelle nous permet d'estimer de manière approximative la FWHM induite par l'auto-absorption.

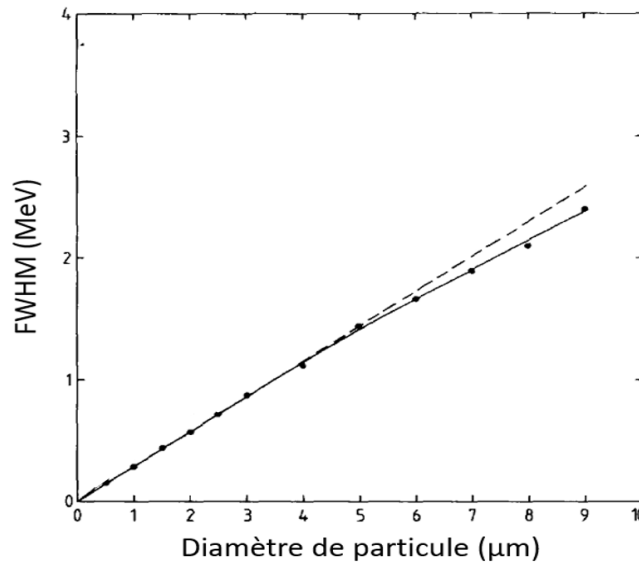


Figure 50 : Évolution de la FWHM en fonction du diamètre des particules radioactives sphériques qui émettent des particules α d'énergie $E_\alpha = 5,15$ MeV (Pickering, 1984). La ligne discontinue repère la tendance linéaire de l'évolution de la FWHM en fonction du diamètre des particules

L'estimation de la FWHM qu'induit l'aérosol radioactif par auto-absorption est possible quelle que soit la masse volumique de l'aérosol à partir de la fonction $FWHM(d_{ae}) = 70 \cdot d_{ae}$. Toutefois, il faut tenir compte de l'énergie qu'emporte les particules α au moment de la désintégration du radionucléide. Effectivement, plus l'énergie est petite et plus le transfert d'énergie à la matière est grand et inversement. Dans notre cas d'étude, on considère des aérosols radioactifs naturels, lesquels émettent des particules α dont l'énergie est supérieure à 6 MeV. Ainsi, on peut raisonnablement s'attendre à ce que le coefficient directeur de la fonction affine soit au plus égal à $70 \text{ keV} \cdot \mu\text{m}^{-1}$

On estime ainsi que la FWHM induit par l'auto-absorption des particules α dans les aérosols radioactifs naturels, soit à un maximum de 35 keV (pour un DAMA de $0,5 \mu\text{m}$). Autrement dit, l'effet est négligeable au vu de la résolution en énergie intrinsèque du détecteur nucléaire, laquelle est de l'ordre de la trentaine de keV (MIRION Technologies, 2011).

II.2.2.b Absorption de l'énergie des particules α -naturels dans les aérosols non-radioactifs

Ici, on peut distinguer deux cas de figure, l'absorption de l'énergie des particules α émises sous une épaisseur d'aérosols non-radioactifs et l'absorption de l'énergie des particules α émises à différents niveaux de profondeur dans une structure granulaire formée d'aérosols non-radioactifs. Le premier cas peut être observé lorsqu'une bouffée importante d'aérosols est remise en suspension (après la réalisation d'une opération de découpe ponctuelle par exemple), laquelle est échantillonnée et collectée au-dessus des aérosols radioactifs naturels collectés. Le second cas est observé à la suite de la formation de la structure granulaire (lié aux aérosols non-radioactifs collectés lors de la bouffée) dans laquelle les aérosols radioactifs naturels omniprésents sont filtrés et collectés selon un profil de pénétration (vu à la section II.1.2).

Effet de la masse d'aérosols non-radioactifs accumulée en surface du filtre

La dégradation de la radioactivité dans la masse d'aérosols prélevée sur filtre a été étudiée par quelques auteurs, (Huang *et al.*, 2002; Seiler *et al.*, 1988). Seiler *et al.* (1988) ont numériquement étudié l'effet de différentes masses de sel (NaCl) au-dessus d'une source homogène de ^{214}Po ($E_\alpha = 7,686$ MeV). Les résultats sont reportés à la figure 51, lesquels montrent un élargissement significatif de la FWHM pouvant atteindre 1,8 MeV pour une masse surfacique de sel de $1,8 \text{ mg} \cdot \text{cm}^{-2}$.

L'augmentation de la FWHM est également accompagnée d'une intensification de la traîne en énergie du pic. Cette dernière engendre l'augmentation significative du comptage mesuré aux énergies inférieures et induit l'augmentation du bruit de fond sur une très large gamme d'énergies. Ce dernier point pose des problèmes lorsqu'une discrimination en énergies d'un radionucléide est justement effectuée à ces plus basses énergies. En conséquence, des biais de mesures peuvent être subis lors d'accumulation rapide de quantités importantes d'aérosols non-radioactifs au-dessus d'aérosols radioactifs déjà prélevés.

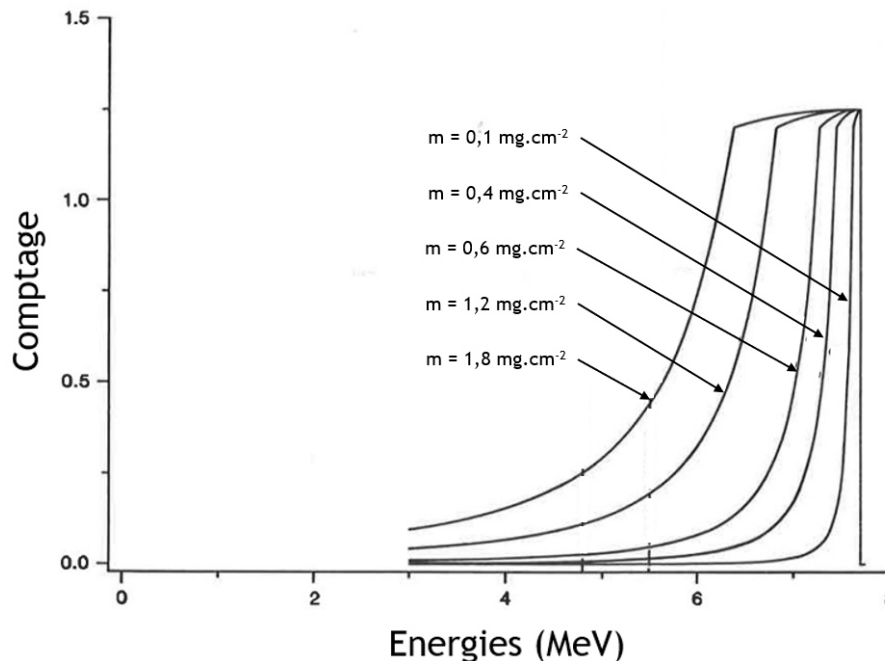


Figure 51 : Dégradation théorique du spectre en énergies des particules α émises par le ^{214}Po pour différentes masses de sel (NaCl) (Seiler et al., 1988)

Ici la dégradation de la mesure nucléaire est étudiée pour des masses volumiques d'aérosols non-radioactifs de $2,17 \text{ g.cm}^{-3}$. Par ailleurs, pour l'auto-absorption, nous avons vu que la dégradation en énergie est d'autant plus grande que la masse volumique du matériau l'est. Ce précédent résultat est transposable ici. Ainsi une dégradation plus importante de la mesure nucléaire sera logiquement mesurée pour des masses similaires d'aérosols non-radioactifs mais de masse volumique plus grande, soit jusqu'à 6 g.cm^{-3} (voir résultat de campagnes de mesures en chantier de démantèlement nucléaire figure 19).

Huang *et al.* (2002) ont, eux, évalué l'effet de trois configurations de dépôt d'aérosols, sur un filtre à membranes microporeuses (type FSLW), sur la dégradation en énergies des particules α émises par le radionucléide ^{214}Po , lequel est fixé sur des aérosols sphériques d'or dont la taille est comprise entre $1,5$ et $3 \mu\text{m}$. Les spectres en énergies α mesurés sont reportés à la figure 52, lesquels mettent en avant deux informations intéressantes :

- Lorsque les aérosols radioactifs se trouvent être collectés au-dessus d'une épaisseur quelconque de particules non-radioactives (spectre du milieu), la FWHM n'est quasiment pas affectée. Cette configuration est similaire à celle où seuls les aérosols radioactifs sont collectés (spectre du bas) avec un « bruit de fond » supplémentaire détectable.
- Lorsque les aérosols radioactifs sont collectés à différentes profondeurs d'une couche épaisse d'aérosols non-radioactifs alors à la fois la FWHM et l'intensité de la traîne en énergie sont significativement augmentées. De plus, un décalage ΔE en énergie supplémentaire apparaît, celui-ci est lié à l'épaisseur de matière (sel) que les particules α

traversent. Cette situation est observée dans le cas des CAM d'une part, lorsqu'ils prélèvent des aérosols non-radioactifs (remis en suspension) en même temps que les aérosols radioactifs naturels et d'autre part, lorsqu'ils prélèvent des aérosols radioactifs naturels au travers d'une structure granulaire déjà formée au-dessus du filtre. Effectivement, dans ces deux cas, les aérosols radioactifs naturels se retrouvent être collectés à différentes profondeurs d'un dépôt d'aérosols non-radioactifs. Ceci induit alors une dégradation de la radioactivité dans la masse d'aérosols non-radioactifs accumulée.

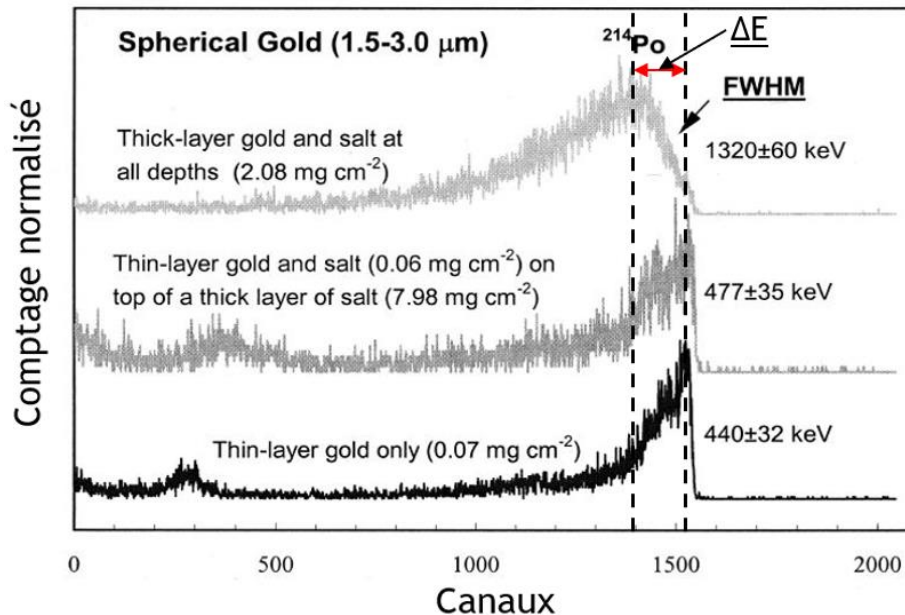


Figure 52 : Dégradation du spectre en énergie lors d'une accumulation en masse de particules sur un filtre à membranes (Huang et al., 2002). ΔE repère le décalage en énergie lié à l'absorption de l'énergie dans l'épaisseur de sel que traversent les particules a

Ces résultats, où la masse d'aérosols non-radioactifs (de sel) est accumulée en surface du filtre, mettent en avant deux effets, l'augmentation de la FWHM et la traîne en énergie du pic. Cette dernière engendre l'augmentation du comptage mesuré aux plus basses énergies et donc induit une augmentation du bruit de fond. Ce bruit de fond augmenté rend inévitablement plus complexe la discrimination en énergie des aérosols radioactifs artificiels.

Effet de la collecte d'aérosols radioactifs à différentes profondeurs d'un dépôt d'aérosols non-radioactifs

Les études qui traitent de la dégradation de la mesure nucléaire liée aux mécanismes de collecte des aérosols radioactifs sont essentiellement menées sur des filtres à fibres (Geryes, 2009; Higby, 1984; Pöllänen & Siiskonen, 2006). Toutefois, les résultats peuvent être extrapolés aux structures granulaires étant donné que les mécanismes de collecte mis en jeu sont les mêmes. De manière générale, la mesure nucléaire est d'autant plus dégradée que les mécanismes de collecte des aérosols radioactifs filtrés favorisent un dépôt en profondeur.

Nous avons calculés les profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans une structure granulaire constituée des quatre granulométries d'aérosols non-radioactifs mis en jeu dans notre étude. Les résultats théoriques sont reportés à la figure 41. À partir de ces derniers, on s'attend à mesurer une dégradation en énergie d'autant plus grande pour les structures granulaires constituées de gros aérosols non-radioactifs. Effectivement, les aérosols radioactifs seront collectés plus profondément, ainsi l'absorption de l'énergie des particules α dans l'épaisseur de matière sera plus importante. La considération de la structure granulaire, notamment de ses caractéristiques, est donc essentielle pour appréhender le biais variable de la mesure nucléaire.

II.2.2.c Absorption de l'énergie des particules α -naturels dans l'épaisseur d'air et dans la fenêtre d'entrée du détecteur

L'épaisseur constante d'air qui sépare la source du détecteur ainsi que l'épaisseur de la fenêtre d'entrée du détecteur nucléaire induisent de la même manière une dégradation de l'énergie des particules α . Cette dégradation a pour conséquence directe à la fois de décaler de ΔE le pic d'intensité maximale et d'élargir la FWHM à une valeur minimale (en l'absence d'autres atténuateurs).

II.2.2.c.1 Efficacité de détection - angle solide

L'efficacité de détection est séparée en deux classes, une correspondant à l'efficacité absolue et une autre à l'efficacité intrinsèque. La première est définie comme le rapport du nombre de coups enregistrés sur le nombre de particules émises par la source qui se désintègre. La seconde représente le nombre de coups enregistrés sur le nombre de particules qui atteignent le détecteur. L'efficacité absolue dépend à la fois des propriétés du détecteur et de la géométrie de détection alors que l'efficacité intrinsèque ne dépend que des propriétés du détecteur, elle est considérée égale à 100 % en spectrométrie α .

Pour une source isotrope, on exprime l'efficacité intrinsèque en fonction de l'efficacité absolue par l'équation 45 (Knoll, 2010). Cette équation met en avant la dépendance de la géométrie et de la position de la source via l'angle solide Ω .

$$\epsilon_{\text{absolue}} = \frac{\Omega}{4\pi} \epsilon_{\text{intrinsèque}}, \quad (45)$$

L'angle solide correspond à l'angle sous lequel la source « voit » le détecteur. Il est affecté, entre autres, par la distance qui sépare la source du détecteur comme l'illustrent les deux distributions d'angles possibles à la figure 53, lesquelles ont été déterminées de manière analytique par Pommé *et al.* (1995). Plus la distance est grande, moins la distribution des angles est large et inversement. Effectivement, la distribution A, pour une distance source - détecteur de 15,5 mm, présente un angle d'émission moyen de 35,7 ° pour un écart-type de 15,7 ° alors que la distribution B, pour une distance de 25,5 mm, présente un angle d'émission moyen de 29,9 ° pour un écart-type de 12,1 °.

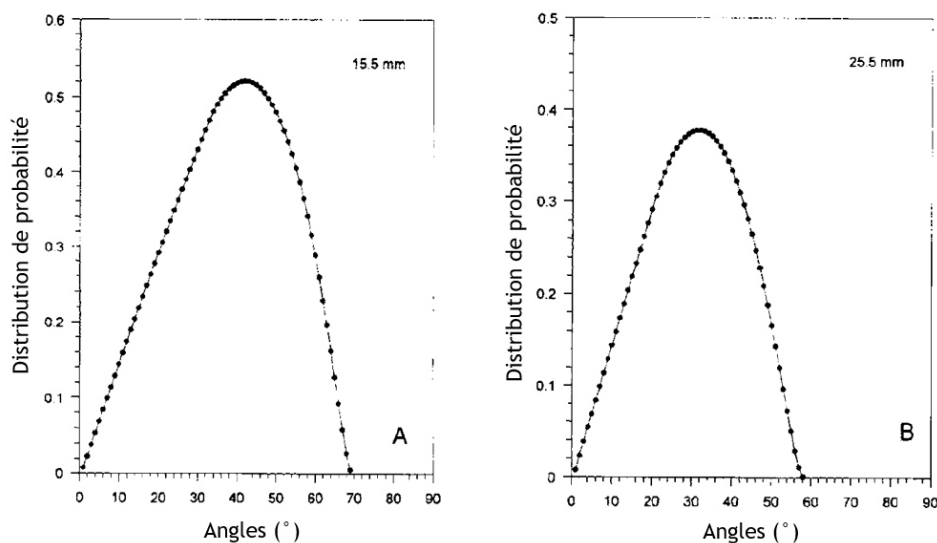


Figure 53 : Distributions de probabilité des angles d'émissions possibles avec une source de 15 mm de rayon et un détecteur de 25 mm de rayon situé de manière coaxiale à une distance de 15,5 mm (à gauche) et de 25,5 mm (à droite). Résultats extraits de Pommé *et al.* (1995)

Dans le cas du CAM de type ABPM203M, la distance qui sépare la source du détecteur est de 12 mm, le diamètre du filtre est de 25 mm et la surface du détecteur est de 450 mm². De manière à réduire la distribution des angles sans éloigner de trop la source du détecteur, des ailettes de collimation sont présentes entre la source et le détecteur. Celles-ci ont une hauteur de 9 mm et permettent de ne comptabiliser que les particules α qui sont émises du filtre avec un angle limite, lequel a été calculé de manière géométrique à environ 53 ° par rapport à la normale du filtre.

Pour calculer la distribution des angles possibles pour une telle géométrie, un calcul analytique est impossible. Pour ce faire, une méthode Monte Carlo a été utilisée, laquelle a dans un premier temps été validée à l'appui des résultats obtenus par Pommé *et al.* (1995). A la figure 54, on reporte les résultats obtenus des distributions d'angles possibles avec ailettes (trait plein) et sans ailettes (tirets). L'angle limite calculé avec la méthode Monte Carlo est situé à environ 53 ° ce qui permet également d'appuyer le résultat obtenu avec les ailettes. On constate la réduction significative de la distribution possible des angles avec les ailettes de collimation.

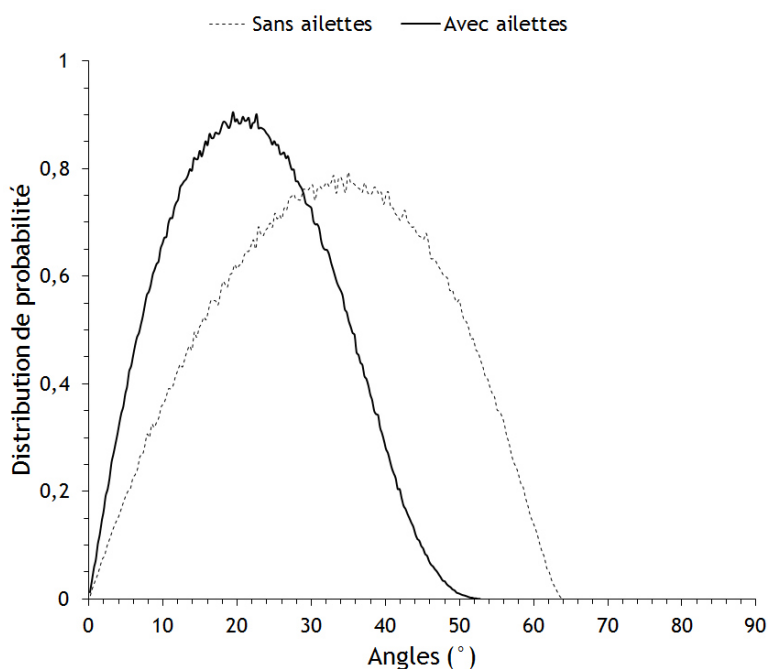


Figure 54 : Distributions de probabilité des angles d'émissions possibles pour le cas du CAM de type ABPM203M, soit avec une distance filtre - détecteur de 12 mm, un diamètre de filtre de 25 mm, une surface de détection de 12 mm (en tirets) et des ailettes de collimation de 9 mm (en trait plein)

La distribution d'angles engendre de fait une distribution des distances parcourues par les particules α qui atteignent le détecteur. Cette distribution de distances conduit ainsi à une distribution de l'énergie transférée. Au regard uniquement de la distance source - détecteur, on pourrait extrapoler en supposant que celle-ci tend à réduire la FWHM puisqu'elle réduit la distribution des angles possibles. Toutefois, d'autres effets entrent en ligne de compte dans la FWHM, tels que la qualité de la source, la qualité du détecteur, le processus statistique dû à l'interaction des particules α avec la matière le long de son parcours, les fluctuations statistiques sur la formation du nombre de porteur suite à l'énergie déposée dans le détecteur, etc. En conséquence, la FWHM ne diminue pas à mesure que l'épaisseur d'air augmente.

II.2.2.c.2 Full Width at Half Maximum (FWHM)

Moore *et al.* (1993) montrent expérimentalement à la figure 55 l'évolution de la FWHM en fonction de la distance en utilisant une source circulaire et homogène (source idéale) de ²³⁹Pu ($E_{\alpha} = 5,15$ MeV) d'un diamètre de 25,65 mm coaxiale avec un détecteur circulaire de 450 mm² de

surface. La FWHM est positivement corrélée avec la distance d'air qui sépare la source du détecteur. Pour cette configuration géométrique (diamètre) source-détecteur, on décrit l'évolution de la FWHM en fonction de l'épaisseur d'air (h) selon la fonction affine $FWHM(h) = 15.h + 225$. Par ailleurs, pour des énergies de particules α plus élevées, l'évolution de la FWHM du pic sera réduite.

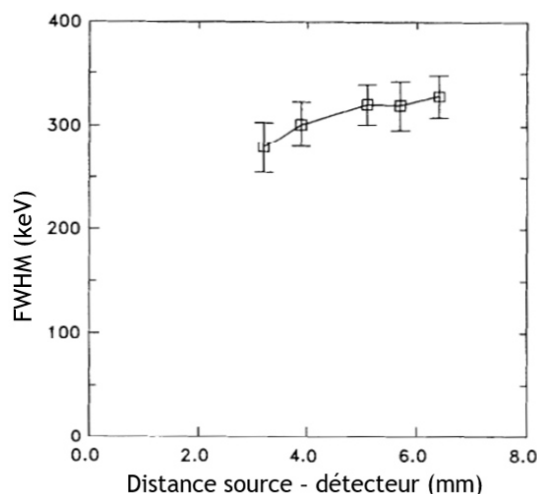


Figure 55 : Évolution de la FWHM en fonction de la distance source-détecteur, Résultats obtenus par Moore et al. (1993) avec une source circulaire et homogène de ^{239}Pu d'un diamètre de 25,65 mm coaxiale avec un détecteur circulaire de 450 mm² de surface

De manière générale, plus la distance d'air est grande entre la source et le détecteur, plus la FWHM du pic α mesuré est grande. Dans le cas du CAM, la FWHM induite par le transfert en énergie des particules α dans l'air est constante et est réduite grâce aux ailettes de collimation. *In fine* la mesure nucléaire est mieux résolue en énergies grâce aux ailettes de collimation (Degrelle et al., 2020).

II.2.2.c.3 Position du pic d'intensité maximale

La position du pic d'intensité maximale, décalée d'une énergie ΔE par rapport à l'énergie emportée par la particule α au moment de la désintégration du radionucléide, est directement reliée à l'épaisseur d'air qui sépare la source du détecteur. Plus elle est importante, plus le transfert d'énergie l'est aussi et conduit à un décalage en énergie ΔE d'autant plus grand. L'épaisseur étant considérée, sans faire d'hypothèse, comme homogène, on peut calculer ce décalage en énergie en intégrant l'équation empirique 43 sur une gamme en énergie allant de E_0 à E et sur une épaisseur d'air, h . On obtient l'équation 46 (Pommé et al., 1995).

$$\Delta E = E_0 - E = E_0 - \sqrt[b+1]{E^{b+1} - h [a(b+1)]}, \quad (46)$$

avec :

- a et b : paramètres empiriques dont les valeurs sont respectivement de 26,52 et 0,66 pour l'air sec. Ils sont déterminés en ajustant la relation empirique 43 sur le pouvoir d'arrêt massique de l'air sec donné par le NIST (2009) sur une gamme en énergie allant de 2 à 8 MeV,
- h : épaisseur d'air, égale à 12 mm pour le CAM étudié,
- E_0 : énergie de la particule α à l'émission,
- E : énergie de la particule α juste avant de pénétrer dans le détecteur nucléaire.

A la figure 56, sont reportées les évolutions calculées à partir de 46 des décalages en énergies pour le ^{218}Po (disques rouges) et le ^{214}Po (losanges noirs) en fonction de la distance d'air source - détecteur. Dans le calcul, une épaisseur de fenêtre d'entrée du détecteur de $0,5\ \mu\text{m}$ en équivalent silicium (MIRION Technologies, 2011) est considérée. Le décalage en énergie ΔE croît linéairement avec l'épaisseur d'air qui sépare le détecteur de la source, avec une pente plus forte pour les particules de plus faibles énergies.

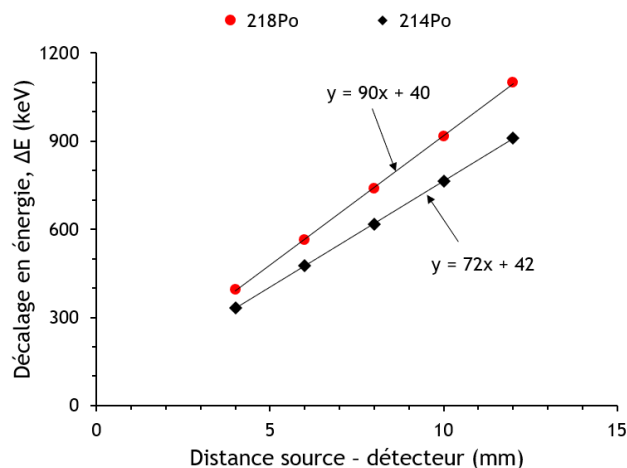


Figure 56 : Décalage en énergie ΔE calculé pour les particules issues de la désintégration du ^{218}Po (disques rouges) et ^{214}Po (losanges noirs) en fonction de la distance source - détecteur

Ces résultats sont extrapolables à d'autres matériaux, en supposant toutefois qu'ils sont homogènes. En effet, une épaisseur homogène disposée au-dessus d'aérosols radioactifs conduira également à décaler le spectre vers les plus basses énergies. La quantité ΔE induite est alors directement proportionnelle à l'épaisseur de matière traversée de masse volumique donnée.

En revanche, c'est une situation assez peu probable dans le cas des CAM qui échantillonnent des aérosols ambiants dont les caractéristiques granulométriques sont variables selon la situation d'exposition. Effectivement, la présence ou non de ces différents atténuateurs sur le filtre du CAM dépend de la situation d'exposition à laquelle celui-ci est soumis. Ainsi, on peut distinguer deux cas possibles, à savoir les situations d'exposition telles que stipulées par les normes IEC et les situations d'expositions qui sont hors cadre des normes IEC.

Conditions normatives IEC

Le CAM échantillonne dans l'air des aérosols radioactifs naturels de DAMA compris entre $0,1$ et $0,5\ \mu\text{m}$, lesquels sont collectés en surface du filtre. La dégradation de la radioactivité mesurée est majoritairement due à l'absorption de l'énergie des particules α dans l'épaisseur d'air et de la fenêtre d'entrée du détecteur. Effectivement, l'auto-absorption de l'énergie des particules α dans ces aérosols radioactifs naturels de taille submicronique est négligeable. Dans cette situation d'exposition, la dégradation de la radioactivité est minimale et est constante puisque les deux atténuateurs qui induisent un effet sont eux-mêmes constants. A la figure 57, en tirets noirs est reporté un spectre en énergies α mesuré par le CAM pendant deux heures en conditions normatives IEC. Les conditions normatives IEC d'obtention de ce spectre sont rappelées dans le tableau 9 ci-dessous.

Tableau 9 : Conditions normatives IEC d'obtention du spectre en énergies en tirets noir présenté à la figure 57

DAMA (μm)	Concentration (part.cm^{-3})	Fraction attachée/libre (FA/FL)	Activité ^{222}Rn (Bq.m^{-3})	Activité ^{218}Po (FA+FL) (Bq.m^{-3})	Activité ^{214}Po (FA+FL) (Bq.m^{-3})
0,2	5 à 20	0,6 / 0,4	~ 30	~ 15	~ 5

Le spectre en énergies obtenu présente les pics caractéristiques des aérosols radioactifs naturels, descendants solides du radon (^{218}Po et ^{214}Po), lesquels sont omniprésents dans l'air. Ils sont mesurés avec les caractéristiques reportées sur la figure 57, soit un décalage en énergie ΔE et une FWHM d'environ 1170 keV et 200 keV pour ^{218}Po et d'environ 1000 keV et 130 keV pour ^{214}Po .

Ces pics caractéristiques sont simulés à l'aide à la fois de la relation empirique 46 et de la distribution de probabilité des angles possibles pour la géométrie du CAM type ABPM203M (présentée en trait plein à la figure 54). Pour ce faire, trois étapes sont nécessaires :

- Étape 1 : Déterminer la distribution du transfert d'énergie des particules α , issues du ^{214}Po et du ^{218}Po , dans l'épaisseur d'air séparant la source du détecteur, soit 12 mm. Puis, déduire la distribution de l'énergie restante des particules α juste avant l'entrée de la fenêtre du détecteur nucléaire.
- Étape 2 : A partir de la distribution des énergies restantes des particules α , déterminer la distribution du transfert d'énergie de ces particules dans l'épaisseur de la fenêtre d'entrée du détecteur, soit 0,5 μm en équivalent silicium.
- Étape 3 : Déduire la distribution de l'énergie restante des particules α juste après la fenêtre du détecteur nucléaire. Celle-ci correspond alors à la distribution des énergies transférées dans le silicium et conduit à la forme du pic caractéristique.

Les résultats des pics simulés sont reportés sur la même figure 57 en trait plein rouge avec les valeurs de ΔE et de FWHM associées. Les écart-relatifs de ces dernières valeurs par rapport à celles calculées à partir du spectre en énergies mesuré par le CAM sont calculés et reportés dans le tableau 10. On constate un biais, ici, pour la FWHM du pic ^{214}Po mais qui pourrait logiquement être constaté sur le pic du ^{218}Po , bien que fortuitement ça ne soit pas le cas ici. Effectivement, on a vu précédemment que de nombreux effets entrent en ligne de compte dans la FWHM, soient liés aux fluctuations statistiques, qualité du détecteur, etc. L'utilisation de la relation empirique, 46, et de la distribution des angles possibles (selon les trois étapes ci-dessus) pour simuler les pics ne considère pas ces effets qui affectent la FWHM. Le biais sur la FWHM est alors expliqué par ces propos. Par contre, les valeurs des autres paramètres simulés, soient les positions des pics, sont proches de celles calculées sur le spectre mesuré. Ainsi, on peut utiliser ces pics simulés pour caractériser la position du ^{218}Po et du ^{214}Po , notamment lorsque la mesure nucléaire est effectuée en conditions normatives IEC.

Tableau 10 : Écart-relatif calculés sur la position et la FWHM entre les pics ^{218}Po et ^{214}Po simulés et ceux mesurés par le CAM

	^{218}Po		^{214}Po	
	ΔE	FWHM	ΔE	FWHM
Écart-relatif (%)	0,5	2	1	44,5

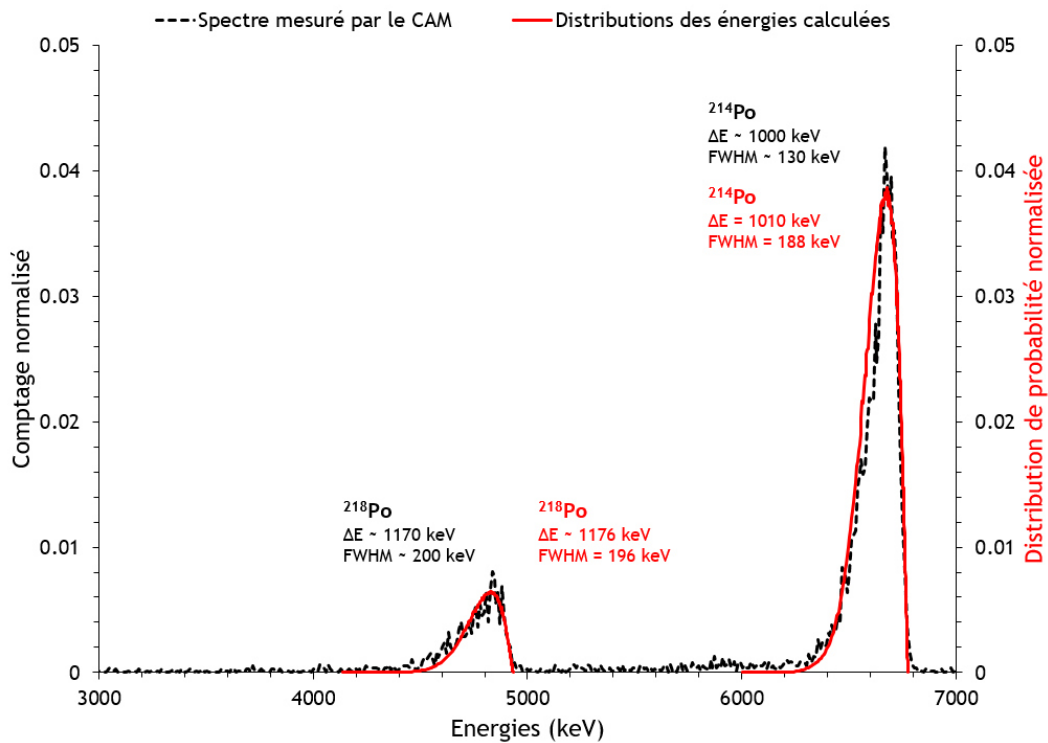


Figure 57 : Spectre en énergies α mesuré pendant deux heures en conditions normative IEC (voir caractéristiques dans le tableau 9. Les décalages et les FWHM des deux pics (^{218}Po et ^{214}Po) sont mentionnés sur le spectre en énergies mesuré (en noir) et calculé (en rouge)

Hors conditions normatives IEC

En plus des aérosols radioactifs naturels dans l'air, des aérosols non-radioactifs en concentration et granulométrie variées sont présents. Le CAM échantillonne ainsi ce mélange d'aérosols radioactifs naturels et non-radioactifs, lesquels sont collectés et conduisent à former une structure granulaire à la surface du filtre. La dégradation du spectre d'énergie mesuré est de ce fait, dans cette situation, un cumul de l'absorption d'énergie dans l'air et la fenêtre d'entrée du détecteur (dégradation constante) et de l'absorption d'énergie dans la structure granulaire formée en surface du filtre (dégradation variable). Due à la structure granulaire et au profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans la structure granulaire, la mesure nucléaire s'en retrouve plus ou moins affectée.

A la figure 58 sont reportés quatre spectres en énergies α mesurés par le CAM pendant deux heures chacun dans des conditions différentes, conduisant à des accumulations surfaciques de masse de $0,55 \text{ mg.cm}^{-2}$ (graphique en haut à gauche), de $1,03 \text{ mg.cm}^{-2}$ (graphique en haut à droite), de $1,48 \text{ mg.cm}^{-2}$ (graphique en bas à gauche) et de $0,73 \text{ mg.cm}^{-2}$ (graphique en bas à droite). Sur chaque graphique sont également reportés en trait rouge, les pics simulés pour comparaison.

Dans le tableau 11, on reporte les écart-relatifs calculés sur le décalage ΔE et la FWHM entre les pics ^{218}Po et ^{214}Po mesurés par le CAM et ceux simulés. Les résultats ne permettent pas d'identifier une corrélation entre ces paramètres de pics et les conditions d'expositions du CAM. Par contre, on peut déduire que le dépôt d'aérosol non-radioactif n'engendre pas d'effet significatif sur les positions des pics. Effectivement, elles sont inchangées. La FWHM ne peut pas directement être corrélée à la présence du dépôt étant donné la non prise en compte des fluctuations statistiques, par le modèle empirique utilisé, qui induisent des effets sur la FWHM. Ainsi, ils ne sont pas les paramètres pertinents à considérer pour étudier le comportement du CAM en condition hors IEC.

En revanche, une intensification de la traîne en énergie des pics est mesurée. Avec ces quatre exemples de spectres en énergies, on montre que la traîne est essentiellement affectée par la granulométrie des aérosols non-radioactifs et donc les caractéristiques de la structure granulaire

formée au-dessus du filtre. Effectivement, en comparant le spectre mesuré avec l'aérosol A et celui mesuré avec l'aérosol D, où les masses surfaciques accumulées sont proches, on constate une différence significative dans la forme de la traîne en énergie du pic. De la même façon pour le spectre mesuré avec l'aérosol B et le spectre mesuré avec l'aérosol C.

Tableau 11 : Écart-relatifs calculés sur la position en énergie (E) et la FWHM entre les pics ^{218}Po et ^{214}Po mesurés par le CAM et ceux simulés (introduits précédemment)

Paramètres		Position		FWHM	
		^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
Écart-relatif (%)	A $m = 0,55 \text{ mg.cm}^{-2}$	0,9	0,9	22,4	22,3
	B $m = 1,03 \text{ mg.cm}^{-2}$	0,9	0	2,6	2,1
	C $m = 1,48 \text{ mg.cm}^{-2}$	1,8	0,9	21,9	12,2
	D $m = 0,73 \text{ mg.cm}^{-2}$	0,2	1,8	12,2	27,1

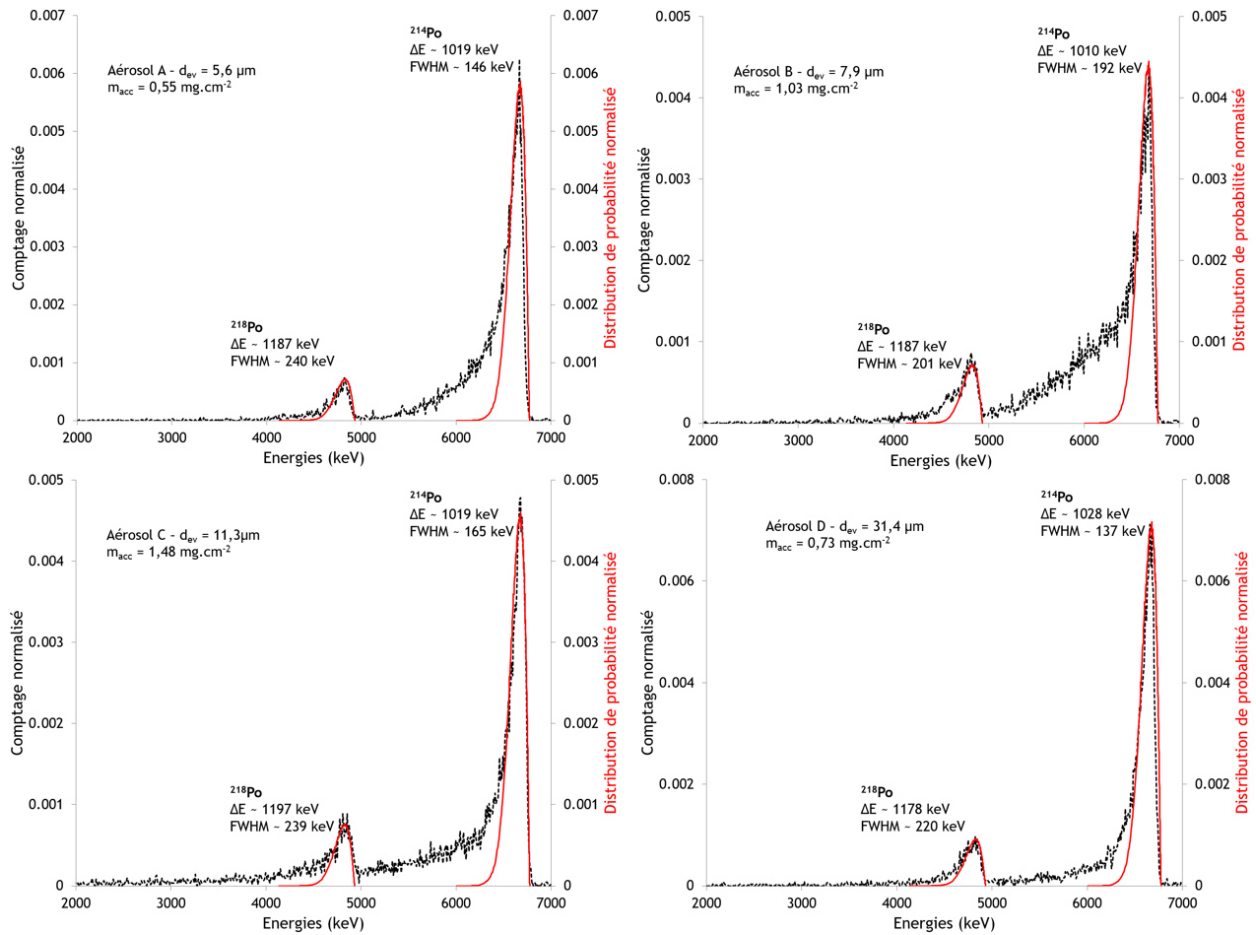


Figure 58 : Quatre exemples de spectre en énergies α mesurés par le CAM. Chacun correspond à une mesure de deux heures mais dans des conditions différentes, notamment en termes de granulométrie d'aérosols non-radioactifs, soit avec l'aérosol A, l'aérosol B, l'aérosol C et l'aérosol D respectivement pour le graphique en haut à gauche, en haut à droite, en bas à gauche et en bas à droite

Finalement, lorsque les CAM échantillonnent des aérosols non-radioactifs au même titre que les aérosols radioactifs naturels, la traîne en énergie des pics α naturels est plus ou moins affectée et la forme est a priori corrélée aux caractéristiques des aérosols non-radioactifs. La caractérisation de l'évolution de la traîne en énergies est ainsi essentielle pour étudier le comportement du CAM. Celle-ci est présentée en détails au cours de la partie qui suit.

II.3 Traitement en temps réel et en continu des comptages nucléaires

L'intérêt premier des CAM est de détecter dans les installations nucléaires de petite quantité (en cas d'incident/accident) d'aérosols radioactifs α -artificiels et ce en temps réel et en continu. Les particules α émises par les aérosols radioactifs artificiels, au vu de leur (très) longue période radioactive (section I.2.1.b et équation 18), sont de plus faibles énergies que celles émises par les aérosols radioactifs naturels. Toutefois, on l'a vu, les pics α -naturels mesurés avec le CAM présentent une traîne minimale en énergie, laquelle est due au transfert d'énergie des particules α dans la matière traversée (air, fenêtre de détecteur). Ces traînes en énergie des pics α -naturels induisent la principale source d'interférence spectrale aux plus basses énergies. En conséquence, la mesure des aérosols radioactifs α -artificiels est influencée par un bruit fond causé par les aérosols radioactifs α -naturels.

Le point clé de la mesure pour les CAM est alors d'être capable de compenser ce bruit de fond en temps réel et en continu et ainsi de toujours discriminer les activités α -naturels des α -artificiels. Cette discrimination est généralement effectuée par le traitement du taux de comptage à l'aide d'un algorithme de traitement spécifique. La fonction principale de cet algorithme est de conserver les comptages dus à l'aérosol radioactif α -artificiel et de soustraire du mieux possible ceux dus aux aérosols radioactifs α -naturels.

II.3.1 Discrimination en énergies par sélection de régions d'intérêts et compensation dynamique du bruit de fond

L'objectif de cette méthode consiste à délimiter en énergies plusieurs régions d'intérêt (ou en anglais Region Of Interest, ROI). Ces ROI sont définies de façon à discriminer en énergie un ou plusieurs radionucléides. Les bornes des ROI sont fixées de manière dépendante de la géométrie source - détecteur. De la même façon, le nombre de ROI définie est dépendant des conditions de fonctionnement du CAM. Ainsi, à la fois le nombre de ROI et les bornes en énergies de ces dernières varient d'un CAM à l'autre (Hayes *et al.*, 2003 ; Huibin *et al.*, 2012). Dans le cas du CAM type ABPM203M, les ROI sont au nombre de trois et leurs bornes en énergie, ainsi que les radionucléides qui y sont majoritairement mesurés, sont mentionnés dans le tableau 12. Ces ROI sont situées à des plus basses énergies que celles qu'emportent les particules α au moment de leur désintégration afin de tenir compte de l'absorption en énergie (ΔE) dans l'épaisseur d'air et de la fenêtre d'entrée du détecteur nucléaire (présentée à la section II.2.2.c.3).

Tableau 12 : Les radionucléides d'intérêt mesurés dans les ROI1, ROI2 et ROI3 de l'ABPM203M sont tabulés avec leur période radioactive ($T_{1/2}$) et l'énergie des particules α (E_α) qu'ils émettent lors de la désintégration (Laboratoire National Henri Becquerel, 2015)

Region of Interest (ROI)	Gamme en énergies (keV)	Radionucléides d'intérêt	
1	2000 - 4400	Artificiels	^{239}Pu ($T_{1/2} = 24,1,10^3$ a et $E_\alpha = 5156$ keV) ^{241}Am ($T_{1/2} = 432,6$ a et $E_\alpha = 5485$ keV)
2	4400 - 5300	Naturels	^{218}Po ($T_{1/2} = 3,071$ min et $E_\alpha = 6002$ keV) ^{212}Bi ($T_{1/2} = 60,54$ min et $E_\alpha = 6051$ keV)
3	5300 - 7200		^{214}Po ($T_{1/2} = 162,3$ μs et $E_\alpha = 7686$ keV)

A la figure 59, sont reportés deux spectres en énergies α mesurés en taux de comptage par le CAM ABPM203M, sur lesquels figurent les trois ROIs, soit la ROI1 dédiée à la mesure des α -artificiels et la ROI2 et ROI3 pour la mesure des descendants solides du radon ^{218}Po et ^{214}Po respectivement. Le spectre en noir est mesuré dans des conditions normatives IEC dont les caractéristiques ont été rappelées dans le tableau 9. Le spectre en rouge est, lui, mesuré dans la même condition d'activité α -naturels à laquelle est ajoutée une brève génération d'aérosols non-radioactifs, laquelle a conduit à l'accumulation d'une masse d'aérosol de type D de 3,59 mg sur le filtre du CAM. Dans les deux cas, la position et la FWHM des pics sont comparables. Effectivement, on l'a vu ce ne sont pas les critères pertinents pour caractériser la dégradation des spectres dans le cas des CAM. En revanche, la traîne des pics est significativement différente, elle est plus intense dans le cas où le CAM effectue sa mesure en conditions atypiques.

Remarque : étant donné un taux de comptage plus faible pour le ^{218}Po , on a l'impression que sa traîne en énergie est moins intense, ce n'est cependant pas le cas. En revanche, la résolution de la traîne est effectivement plus faible due au faible taux de comptage pour ce radionucléide.

Dans les deux cas de figure, la traîne en énergie constitue un bruit de fond dans ROI1 qui contribue au comptage. Ainsi, elle est considérée en temps réel et en continu afin de conserver les comptages dus à l'aérosol radioactif α -artificiel et de soustraire du mieux possible ceux dus à l'aérosol radioactif α -naturel.

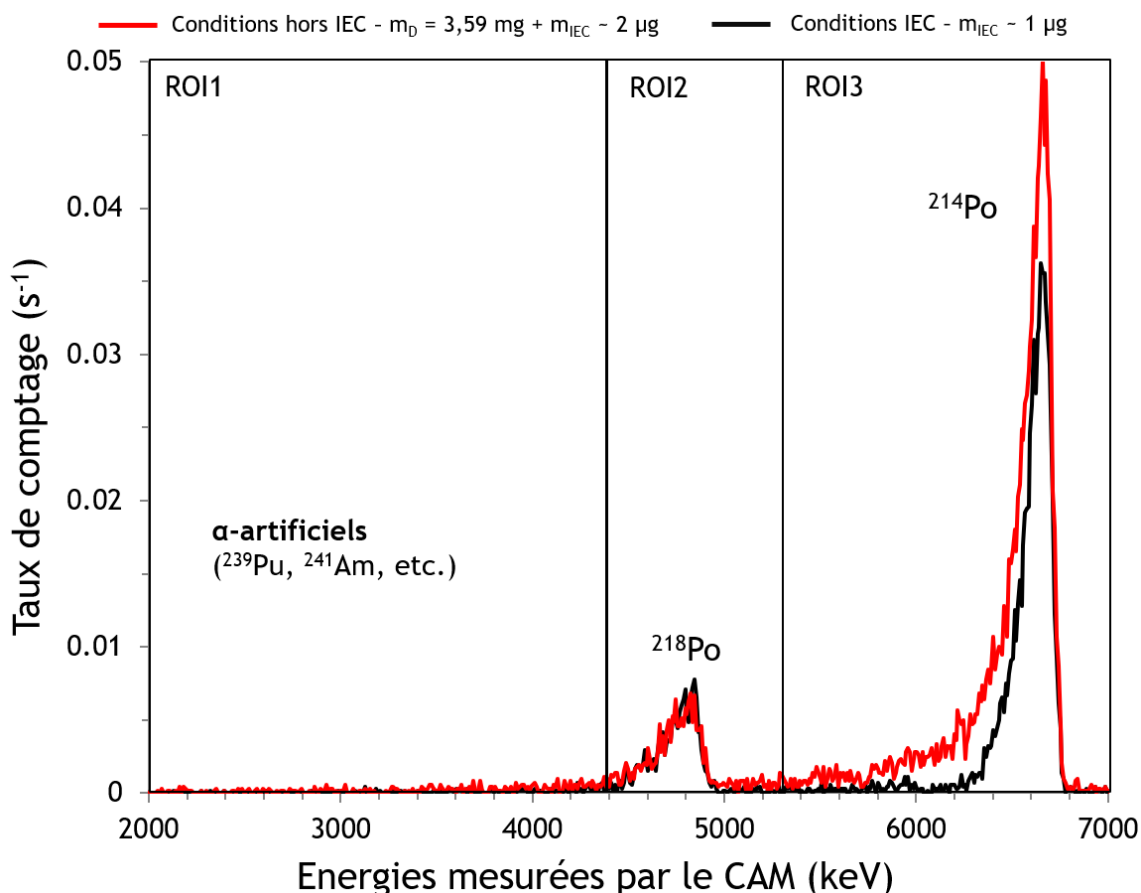


Figure 59 : Spectres en énergies α divisés en trois ROI, lesquelles permettent de discriminer en énergie un ou plusieurs radionucléides. Le spectre en noir est mesuré en conditions normales IEC. Le spectre en rouge est mesuré dans la même condition d'activité α -naturels à laquelle est ajoutée une brève génération d'aérosols non-radioactifs de type D (conditions atypiques)

En fonction des CAM, différentes méthodes de soustraction ou compensation du bruit de fond sont existantes. Deux principales méthodes sortent toutefois de l'ensemble :

- l'ajustement de pic et/ou traîne par modélisation dynamique pour ensuite déconvoluer le signal, dû à la radioactivité naturelle, et n'obtenir que celui dû à la radioactivité artificielle. Cette méthode est très efficace mais nécessite en revanche un comptage significatif, soit au moins 2000 coups pour ajuster un modèle de pic ou traîne aux données mesurées. Elle convient bien aux environnements où une forte activité en α -naturels est présente. Dans le cas des installations nucléaires, le taux de comptage est très faible (voir figure 59) et rend donc cette méthode inexploitable en temps réel et en continu.
- la soustraction dynamique et systématique de bruit de fond avec utilisation d'un ou plusieurs paramètres K. Ils sont caractéristiques des traînes en énergies des pics qui contribuent au bruit de fond. Cette méthode est utilisable quel que soit le taux comptage

et c'est elle qui est généralement mise en œuvre dans les CAM dédiés à la mesure de faible taux de comptage.

Dans le cas des CAM de type ABM203M le bruit de fond dans la fenêtre des α -artificiels est considéré être essentiellement due à la traîne en énergies du ^{218}Po . Ainsi, seul un paramètre de traîne est utilisé permettant de déterminer la valeur du bruit de fond dans la fenêtre des α -artificiels à partir des mesures effectuées dans la région dédiée au seul ^{218}Po , soit ROI2. L'algorithme de calcul du CAM fonctionne en temps réel et en continu pour calculer à chaque pas de temps (3 secondes) la contribution de la traîne du pic ^{218}Po au comptage dans ROI1. Cette contribution est calculée à l'aide de la relation 47.

$$\text{BDF} = K_{12}N_2, \quad (47)$$

avec :

- K_{12} : paramètre qui caractérise la traîne en énergie du pic ^{218}Po dans la ROI1. Il correspond au ratio du comptage mesuré dans ROI1 à celui mesuré dans ROI2. La valeur du paramètre K_{12} est généralement déterminée sur de longues périodes de mesure (environ 8 heures) dans des conditions normatives (IEC 61578, 1997), il est ensuite fixé,
- N_2 : comptage brut mesuré dans la ROI2.

Le comptage net (ROI1_{net}) attribué aux aérosols radioactifs émetteurs d' α -artificiels dans ROI1 est ainsi déduit à l'aide de la relation 48, laquelle est une forme simplifiée de celle proposée par Huibin *et al.* (2012).

$$\text{ROI1}_{\text{net}} = N_1 - \text{BDF}, \quad (48)$$

avec N_1 le comptage brut mesuré dans la ROI1.

L'activité volumique α -artificiel est ensuite calculée à l'aide de la relation 49 en utilisant le résultat obtenu à la relation 48.

$$A_{\text{artificiel}} = \frac{\text{ROI1}_{\text{net}}}{\epsilon_{\text{absolue}} Q_V t_1 t_2} = \frac{\text{ROI1}_{\text{net}}}{\epsilon_{\text{absolue}} Q_V t^2}, \quad (49)$$

avec :

- $\epsilon_{\text{absolue}}$: efficacité de détection absolue,
- Q_V : débit de prélèvement du CAM,
- t_1 et t_2 : respectivement le temps de prélèvement et le temps de mesure. On considère ici un temps identique pour la mesure et le prélèvement ($t_1 = t_2 = t$),

En dernière étape, l'activité volumique α -artificiel est comparée à une valeur seuil, telle que définie à l'équation 50 issue de Huibin *et al.* (2012). Ainsi, si $A_{\text{artificiel}}$ est supérieure à A_{seuil} , une alarme alertant de la présence de radioactivité artificielle est déclenchée.

$$A_{\text{seuil}} = k_{\alpha} \frac{\sqrt{\text{ROI1}_{\text{net}}}}{\epsilon_{\text{absolue}} Q_V t^2}, \quad (50)$$

avec k_{α} le nombre de fois l'écart-type d'une distribution normale. En fonction de sa valeur, une confiance en la mesure est accordée. Par exemple pour k_{α} égal à 1,96, la confiance dans le résultat est de 95 %.

L'application de la méthode de compensation de bruit de fond, telle qu'elle a été introduite ci-dessus, prend toutefois une hypothèse forte qui concerne d'une part, une forme du spectre qui est fixe (c'est-à-dire constante dans le temps) et d'autre part, un comptage mesuré dans ROI2 qui est uniquement dû au pic ^{218}Po . Cette hypothèse est entièrement justifiée dans des conditions normatives IEC, mais est fortement limitée dès lors que ces conditions ne sont plus représentées par celles des IEC. Effectivement, la mesure nucléaire en conditions atypiques est inévitablement plus dégradée due aux différents atténuateurs supplémentaires qui engendrent une absorption de l'énergie variable et corrélée avec les caractéristiques des aérosols non-radioactifs prélevés au même titre que les aérosols radioactifs naturels.

L'absorption conduit essentiellement à intensifier les traînes en énergies, qui de fait augmente d'une part, le bruit de fond dans la ROI1 due à la traîne du pic ^{218}Po et d'autre part, le bruit de fond dans ROI2 et ROI1 (en faible proportion) due à la traîne en énergie du pic ^{214}Po . Ces propos sont illustrés par le spectre en rouge à la figure 59, l'effet du ^{214}Po dans la ROI1 n'est pas réellement visible sur la figure telle que représentée mais est mesurable.

En conséquence, l'utilisation du seul facteur K_{12} tel qu'il est actuellement défini conduit inévitablement à des mesures non attendues et donc des déclenchements d'alarme de type faux positif. Ainsi, il est nécessaire de définir à minima plusieurs valeurs de K qui puissent considérer le bruit de fond global dans ROI1 pour différentes conditions atypiques et/ou de définir trois valeurs de paramètre de traîne qui caractérisent les différentes contributions des pics ^{218}Po et ^{214}Po pour différentes conditions atypiques.

II.3.2 Caractérisation de l'évolution de la contribution des traînes en énergies α -naturels

Tout comme est défini le paramètre K_{12} dans des conditions IEC sur des périodes de mesures longues, il est nécessaire de définir d'autres valeurs de paramètres de traîne en énergies des pics ^{218}Po et ^{214}Po qui permettent *in fine* de compenser le bruit de fond dans ROI1 pour des situations atypiques.

La description de la traîne en énergies des pics ^{218}Po et ^{214}Po peut se faire à l'aide d'une méthode mathématique standardisée (ISO 11483, 2005), soit la décroissance exponentielle, donnée par l'équation 51. Celle-ci est utilisable a posteriori sur des spectres expérimentaux mesurés dans des conditions définies et sur des temps plus ou moins longs, permettant d'obtenir un comptage suffisant dans la ROI considérée.

$$f(x_i) = A \exp(B x_i), \quad (51)$$

avec :

- A et B : paramètres empiriques déterminés numériquement qui permettent d'ajuster au mieux le modèle mathématique aux données expérimentales,
- x_i : position du canal (keV).

Afin d'adapter le modèle mathématique aux données expérimentales la minimisation du critère du χ^2 est usuellement utilisée. La bonne utilisation de ce dernier suppose implicitement que les données expérimentales, nombre d'évènements de comptage dans les différents canaux considérés, suivent une distribution gaussienne. Cependant, dans la condition où le comptage reste faible (inférieur à 20 évènements de comptage par canal), les fluctuations statistiques des données ne peuvent pas rigoureusement être modélisées par une distribution gaussienne, ainsi, l'utilisation du critère du χ^2 n'est pas adaptée. Les données sont modélisables par une distribution de Poisson, donc une nouvelle fonction de probabilité adaptée est définie par l'équation 52 (Cassette, 2007). Cette fonction de probabilité correspond à la probabilité que le modèle mathématique, présenté à l'équation 51, soit égal aux données expérimentales (y_i).

$$P(y_i, f(x_i)) = \frac{f(x_i)^{y_i} e^{-f(x_i)}}{y_i!}, \quad (52)$$

avec :

- y_i : nombre d'évènements mesurés expérimentalement dans le canal i ,
- $f(x_i)$: nombre de coups calculés à l'aide de 51 dans le canal x_i .

À partir de là, pour adapter au mieux le modèle mathématique aux données expérimentales, il est nécessaire de maximiser le coefficient de vraisemblance défini par l'équation 53. Ce coefficient de vraisemblance L est le produit de probabilité que les données expérimentales y_i soient une fluctuation statistique (distribution de Poisson) du modèle mathématique.

$$L = \prod_{i=1}^n \frac{f(x_i)^{y_i} e^{-f(x_i)}}{y_i!}. \quad (53)$$

Comme il s'agit du même résultat que de maximiser L ou de minimiser $-\ln(L)$, qui change la formulation de l'équation 53 précédente en l'équation 54, on choisit cette dernière formulation car il est plus facile de concevoir un processus itératif pour la minimisation.

$$-\ln(L) = \sum_{i=1}^n f(x_i) - y_i \ln(f(x_i)) + \ln(y_i!). \quad (54)$$

Ainsi, l'ajustement du modèle mathématique (équation 51), en utilisant la minimisation du critère de vraisemblance tels que défini par l'équation 54, est appliqué a posteriori sur les spectres enregistrés sur des temps plus ou moins longs et dans des conditions bien caractérisées. Ceci permet alors de définir des valeurs de paramètres de traîne à considérer en fonction des situations auxquelles sont confrontés les CAM. *In fine*, l'utilisation dynamique de paramètres de traîne adaptés pourrait permettre de mieux estimer et donc compenser le bruit de fond dans ROI1 et ce de manière continue et en temps réel.

CHAPITRE III : CARACTÉRISATION DU COMPORTEMENT DU CAM EN CONDITIONS ATYPIQUES & PROPOSITION D'UN SYSTÈME INNOVANT PERMETTANT L'AMÉLIORATION DES MESURES DU CAM

La présentation du fonctionnement général des CAM, laquelle a été faite au chapitre précédent, nous a permis d'identifier les limites actuelles de ces derniers, notamment lorsqu'ils sont confrontés à des situations d'empoussièrement non représentées par celles des normes IEC. Effectivement, à la fois le fait que les CAM soient en mesure d'échantillonner des aérosols de tailles importantes ($> 10 \mu\text{m}$) et que l'accumulation en masse de ces aérosols en surface du filtre puissent engendrer la formation d'une structure granulaire sont des facteurs critiques qui conduisent à un comportement inattendu¹ des CAM, lié à une compensation inadaptée du bruit de fond.

Dans ce dernier chapitre, scindé en trois parties, on présente l'étude approfondie qui a été menée pour caractériser le comportement du CAM de type ABPM203M lorsqu'il est soumis à des bouffées d'aérosols non-radioactifs de quatre granulométries différentes (A, B, C et D). Ces bouffées représentent dans la réalité la remise en suspension brève d'aérosols non-radioactifs, de granulométries variées, à la suite d'opérations basiques, telles que la découpe de matériaux, le nettoyage de surface, l'intensification d'une activité quelconque dans une zone déjà empoussiérée, etc.

La première partie est dédiée d'une part, à la présentation du protocole expérimental de génération des aérosols radioactifs naturels et des aérosols non-radioactifs, à l'aide du banc d'essais couplé présenté en détail au chapitre I, et d'autre part, à la présentation des méthodes mises en place pour caractériser pas à pas le comportement du CAM lorsqu'il est soumis à des atmosphères atypiques variées.

La seconde partie est consacrée à la présentation détaillée de l'ensemble des résultats obtenus. Ces derniers mettent en évidence sans ambiguïté les limites du CAM face aux situations atypiques, notamment sa capacité à compenser en temps réel et en continu le bruit de fond pour discriminer en énergie les α -artificiels. Toutefois, ces limites sont corrélées à la fois à la masse et à la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulés sur le filtre du CAM. Ainsi, les résultats ont permis la création d'une base de données conséquentes, laquelle regroupe plusieurs valeurs de paramètre de traîne à considérer par le CAM pour mieux estimer le bruit de fond et *in fine* le compenser.

Dans la troisième partie, on propose la mise en place d'un système innovant lequel considère en temps réel et en continu d'une part, les caractéristiques de l'atmosphère (granulométrie et concentration) et d'autre part, la mesure de la radioactivité. Les résultats de faisabilité de ce système sont alors présentés et montrent une amélioration significative de la mesure du CAM. Ce système, qui utilise la base de données présentée en partie précédente, permet *in fine* d'assurer la radioprotection des travailleurs quelle que soit la situation d'exposition.

¹ Comportement inattendu notamment parce que les CAMs et l'ABPM203M sont équipés d'un système de changement automatique de filtre (sur critère de perte de charge) pour éviter les problèmes de débit de prélèvement et d'effet d'encrassement des filtres qui conduisent à la dégradation d'énergie.

III.1 Matériels et méthodes

III.1.1 Banc d'essais et protocole de génération d'atmosphères atypiques

L'étude du comportement d'un CAM de type ABPM203M a été réalisée avec le couplage du banc ICARE et du dispositif de génération des aérosols non-radioactifs, lesquels ont été présentés en détail au premier chapitre et sont rappelés à la figure 60 ci-dessous.

La démarche expérimentale est élaborée de manière à étudier :

- d'une part, l'évolution en temps réel du comptage effectué par le CAM dans les trois voies de mesures d'intérêt : ROI1 (α -artificiels, tels le ^{239}Pu , le ^{241}Am , etc.) et ROI2 et 3 (α -naturels, principalement ^{218}Po et ^{214}Po),
- d'autre part, le spectre en énergies α mesuré mis en relation avec la masse et la granulométrie des aérosols non-radioactifs collectés sur le filtre par le CAM.

Pour ce faire, la tête de prélèvement du CAM a été exposée à diverses configurations d'atmosphères reproduites dans la chambre expérimentale.

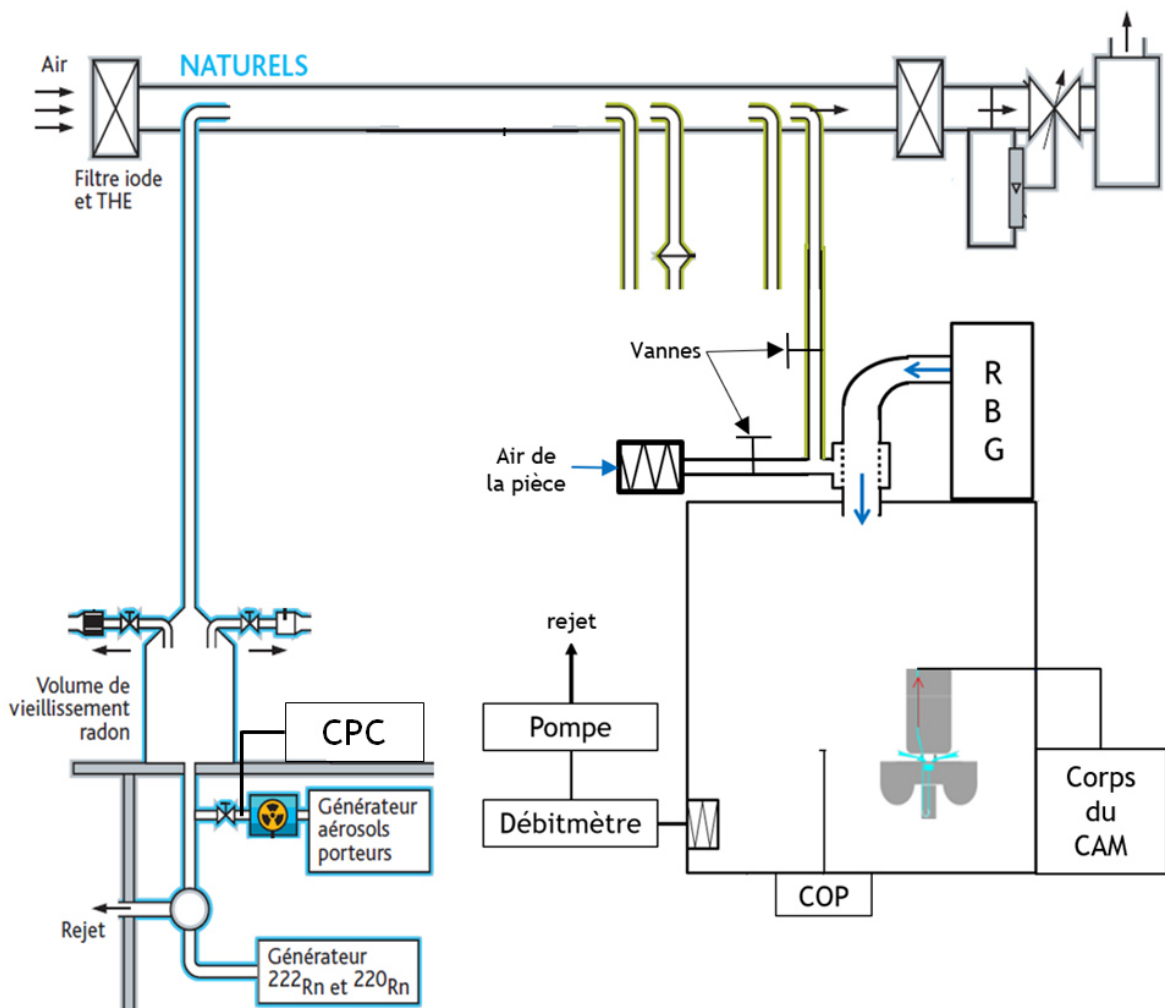


Figure 60 : Schéma du banc d'essais utilisé pour l'étude du comportement du CAM dans des conditions atypiques

À une expérience est attribuée une atmosphère, laquelle est caractérisée d'une part, par une concentration stable en aérosols radioactifs naturels et d'autre part, par une brève génération, inférieure à 10 minutes, d'aérosols d'alumine non-radioactive, dénommés A, B, C et D en concentrations variées. Dans le tableau 13 ci-dessous sont rappelées les caractéristiques des aérosols radioactifs naturels (deux premières lignes) et les caractéristiques des aérosols non-radioactifs (deux dernières lignes).

La stabilité en concentration d'aérosols radioactifs naturels (pour l'ensemble des mesures) est contrôlée à l'aide du Condensation Particle Counter (CPC), disposé sur le banc d'essais ICARE, tandis que la concentration en aérosol non-radioactif est, elle, mesurée à l'aide du Compteur Optique de Particules (COP), lequel est placé à l'intérieur de la chambre expérimentale.

Tableau 13 : Les deux premières lignes correspondent aux caractéristiques des aérosols radioactifs naturels générées. Les deux dernières lignes correspondent aux caractéristiques principales des aérosols non-radioactifs dénommés A, B, C et D

DAMA ¹ (μm)	Concentration (part.cm ⁻³)	Fraction attachée/libre (FA/FL)	Activité ²¹⁸ Po (FA+FL) (Bq.m ⁻³)	Activité ²¹⁴ Po (FA+FL) (Bq.m ⁻³)
0,2	5 à 20	0,6 / 0,4	~ 15	~ 5
Dénomination de l'aérosol non- radioactif	A	B	C	D
DE _v MM ² (μm)	5,7	7,9	11,3	31,4

Une expérience se décompose en deux phases distinctes qui dure chacune deux heures :

- **Première phase** : la vanne reliée au filtre THE en partie supérieure de la chambre expérimentale est fermée et le générateur d'aérosol non-radioactif (RBG) est arrêté. Seule la vanne reliée à la veine ICARE est ouverte. En partie inférieure de la chambre expérimentale, le COP et le CAM sont activés.
Au cours de cette première phase, seuls les aérosols radioactifs naturels sont prélevés dans la chambre expérimentale par le CAM à 35 L.min⁻¹ et par le COP à 1,2 L.min⁻¹. Cette première phase est essentielle d'une part, pour homogénéiser, dans la chambre expérimentale, la concentration en aérosols radioactifs naturels, soit un temps environ égal à 10 minutes³ et d'autre part, pour stabiliser les mesures effectuées par le CAM⁴ dans une condition atmosphérique d'aérosols radioactifs naturels.
- **Seconde phase** : la vanne reliée au filtre THE en partie supérieure de la chambre expérimentale et la vanne reliée à la veine ICARE sont toujours respectivement fermée et ouverte. Durant cette phase, le RBG est activé pendant des durées variables (allant de 10 secondes à 10 minutes) pour reproduire des bouffées d'aérosols non-radioactifs mélangés aux

¹ DAMA : Diamètre Aérodynamique Médian en Activité.

² DE_vMM : Diamètre Équivalent en volume Médian en Masse.

³ Trois renouvellements d'air sont nécessaires pour atteindre une concentration à 95 % de l'équilibre. L'enceinte a un volume de 0,122 m³, le prélèvement se fait à un débit de (35 + 1,2) L.min⁻¹, ce qui fait un renouvellement d'air en 3 minutes et 22 secondes. Soit une concentration à 95 % de l'équilibre après environ 10 minutes de prélèvement.

⁴ En annexe 1, on présente l'évolution de l'accumulation théorique des descendants solides du radon sur le filtre du CAM dans les conditions d'expositions à l'activité naturelle et de prélèvement du CAM.

aérosols radioactifs naturels prélevés dans la chambre expérimentale. En partie inférieure de celle-ci, seuls le COP et le CAM sont activés.

Au cours de cette seconde phase, le COP et le CAM prélèvent l'air à des débits respectifs de 1,2 l.min⁻¹ et de 35 l.min⁻¹. Après un temps de génération donné, le RBG est arrêté et la vanne reliée au filtre THE en partie supérieure de la chambre expérimentale est ouverte. En partie inférieure, l'ensemble filtre THE-débitmètre-pompe est activé durant quelques minutes de manière à réduire rapidement la concentration en aérosols non-radioactifs dans la chambre expérimentale. Le prélèvement effectué par le CAM et le COP se poursuit et ce jusqu'à la fin de l'expérience.

Pour chaque expérience un filtre vierge de type FSLW est placé sur le fritté de la tête de prélèvement du CAM. Ce filtre est pesé en début (m_{initiale}) et fin (m_{finale}) d'expérience avec une balance de précision METTLER AT250. La masse de particules accumulée au cours d'une expérience est alors simplement déduite (relation 55). L'incertitude élargie ($k = 2$) sur la masse se calcule avec la relation 61 présentée en annexe 1.

$$m_{\text{acc}} = m_{\text{finale}} - m_{\text{initiale}}, \quad (55)$$

Remarque : les aérosols radioactifs naturels prélevés durant les quatre heures ne contribuent pas de manière significative à la masse d'aérosol prélevée. Effectivement, la masse calculée d'aérosols radioactifs naturels prélevée par le CAM est de l'ordre du microgramme. Une si faible masse n'est pas mesurable avec la balance de précision utilisée et est surtout négligeable au vu des masses d'aérosols non-radioactifs pesées, lesquelles sont toujours supérieures au milligramme).

Le comportement du CAM durant les deux premières heures de prélèvement d'aérosols radioactifs naturels est déjà bien caractérisé. Effectivement, la condition d'exposition est standardisée, ainsi l'évolution du comptage en temps réel et en continu est constant et stable après environ 1h30 (IEC 61578, 1997). En annexe 2 sont présentés l'ensemble des résultats, de position en énergie (E) et de FWHM, individuels obtenus à partir des spectres mesurés en phase une. Dans cette même annexe 2, on présente le calcul utilisé (relation 64) pour déterminer, à partir des 58 spectres enregistrés en phase une, l'incertitude absolue à 95 % sur les valeurs moyennes des positions en énergie et de leur FWHM. Les résultats sont reportés dans le tableau 14 ci-dessous. Ils mettent bien en avant le côté stable de la mesure des spectres en énergies des descendants solides du radon seuls, avec des incertitudes absolues à 95 % qui sont faibles.

Tableau 14 : Valeurs moyennes des positions et des FWHM des pics ²¹⁸Po et ²¹⁴Po, accompagnées de leurs incertitudes absolues à 95 %

Paramètres	E (keV)	U(E) (keV)	FWHM (keV)	U(FWHM) (keV)
²¹⁸ Po	4835	7	176	10
²¹⁴ Po	6679	4	132	3

Pour l'ensemble des spectres, la contribution de la traîne du pic ²¹⁸Po, au comptage dans la ROI1, a également été calculée, laquelle est de 12 ± 1 %. Cette contribution correspond au paramètre K₁₂, lequel est fixé dans l'ABPM203M à 9 % (0,09). On constate un léger écart qui peut toutefois être expliqué par les différences de temps de mesure pour déterminer la valeur du paramètre K₁₂ en conditions normatives IEC. Effectivement, dans notre cas, la mesure ne dure que 2 heures alors que pour la détermination du paramètre K₁₂ (utilisé dans l'ABPM203M), la mesure moyenne se fait sur une durée d'environ 8 heures.

Dans la suite, nous ne caractérisons que d'une part, les comptages mesurés par le CAM dans les différentes ROI au cours de la phase deux et d'autre part, les spectres en énergies enregistrés à la fin de cette phase.

III.1.2 Description du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques

III.1.2.a Évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3

Le CAM mesure et enregistre en continu par pas de temps de trois secondes les comptages dans les trois ROI définies, soit pour rappel ROI1 dédiée aux α -artificiels, ROI2 et ROI3 dédiées aux α -naturels, respectivement issues du ^{218}Po et du ^{214}Po . Au vu des niveaux d'activités auxquelles le CAM est exposé, qui sont faibles mais qui représentent la réalité des conditions auxquelles les CAM sont soumis, les comptages mesurés à ces pas de temps sont extrêmement bas, proches de zéro. De ce fait, pour caractériser l'évolution des comptages dans ces trois ROI, il a été nécessaire de les analyser sur des durées longues, lesquelles ont été arbitrairement définies à cinq minutes. C'est un compromis acceptable pour avoir un comptage expérimentalement exploitable sans pour autant être trop long. Effectivement, un comptage trop long conduirait à masquer les variations brusques, ce qui n'est pas souhaitable pour l'étude.

En parallèle, le COP mesure en temps réel et en continu, sur des pas de temps d'une minute, l'évolution de la concentration en aérosols non-radioactifs. Afin d'être en capacité de relier toutes variations de l'évolution des comptages, mesurés dans les trois ROI par le CAM, à une variation de concentration de l'aérosol non-radioactif, les mesures du COP ont également été analysées sur des pas de temps de cinq minutes.

Finalement, à partir des résultats analysés on présente d'une part, l'évolution des comptages nucléaires mesurés par le CAM et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosols non-radioactifs mesurée par le COP en fonction du temps. Ces résultats permettent de décrire l'évolution du comportement du CAM lorsqu'il est soumis à des générations brèves d'aérosols non-radioactifs en concentrations et granulométries variées.

III.1.2.b Description des spectres en énergies mesurés par le CAM

Les spectres en énergies sont enregistrés après deux heures de mesures effectuées par le CAM. Ce temps long est nécessaire, pour les mêmes considérations de faibles niveaux d'activités qu'introduites précédemment, afin d'obtenir un spectre de résolution suffisante pour être exploitable expérimentalement.

Pour décrire le comportement du CAM et identifier des corrélations entre l'absorption d'énergie des particules α et la masse et la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulées sur le filtre du CAM, on a caractérisé la position des deux pics, soit ^{214}Po et ^{218}Po et leur FWHM. Les valeurs moyennes des positions et des FWHM des pics ont ensuite été déterminées avec leurs incertitudes absolues à 95 % associées (relation 64 en annexe 2). Ces valeurs moyennes ont ensuite été comparées à celles obtenues à partir des spectres mesurés en conditions normatives IEC, dont les caractéristiques sont reportées au tableau 14. Cette comparaison a porté sur les écarts-relatifs qui ont été calculés.

III.1.3 Interprétation des évolutions des comptages

L'interprétation des évolutions de comptages a été menée à l'appui de la considération de la configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs au-dessus du filtre du CAM. La caractérisation

théorique des configurations des dépôts, qui font suite à l'accumulation de masse d'aérosols non-radioactifs, a porté sur la quantification d'une part, de l'épaisseur moyenne équivalente (E_{moy}) et d'autre part, du nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy}). L'hypothèse d'un dépôt homogène a été retenue pour ces quantifications. Effectivement, on suppose que le dépôt, sur l'ensemble de la surface effective de prélèvement du filtre du CAM, est tel que celui présenté à la figure 37.

Les deux paramètres, soit E_{moy} et N_{moy} , sont déterminés à partir des distributions respectives calculées à l'aide de la relation 56, ci-dessous, et celle présentée en détail au chapitre II (relation 30).

$$dE_{eq} = \frac{m_{acc}}{\rho_p S_{eff} (1 - h(\epsilon))} d\epsilon. \quad (56)$$

Les aérosols radioactifs naturels sont, tout au long de la phase deux, échantillonnés par le CAM. Nous avons alors calculé les profils de pénétration de ces derniers dans les différentes configurations de dépôt formés en fonction de la masse et de la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulée sur le filtre du CAM. Les profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels ont été calculés à l'aide des relations 39 et 40 présentées en détail au chapitre II.

III.1.4 Caractérisation de l'évolution de la limite de détection du CAM : interprétation

Étant donné une absence certaine de radioactivité α -artificiel au cours de nos essais, le comptage mesuré dans ROI1 (pour rappel : fenêtre dédiée à la mesure des α -artificiels) constitue uniquement le bruit de fond. En utilisant ce comptage, on a caractérisé l'évolution de la limite de détection réelle (qu'on appelle LD vraie), laquelle est calculée à l'aide de la relation 66 annexe 3.

En parallèle on a calculé le bruit de fond dans ROI1, lequel est estimé en temps réel et en continu par le CAM. Ce bruit de fond est calculé en utilisant le paramètre de traîne K_{12} (égal à 0,09) et le comptage mesuré dans ROI2 (relation 47). Puis, à partir de ce bruit de fond, on a calculé la LD correspondante dans ROI1.

Remarque : Les résultats sont traités sur des pas de temps de cinq minutes pour les mêmes considérations de faibles niveaux d'activités qu'exprimées précédemment.

Finalement, on a reporté sur un même graphique d'une part, les évolutions de la LD estimée par le CAM dans ROI1, de la LD vraie et du comptage brut dans ROI, (noté ROI1_{brut}, correspond uniquement au bruit de fond) et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosol non-radioactif en fonction du temps.

III.1.5 Caractérisation de l'évolution des traînes en énergies et de leur contribution au bruit de fond

On a déterminé les contributions individuelles des deux traînes en énergies dans les ROI qui ne leur sont pas dédiées, soient celle du pic ^{218}Po dans ROI1 et celle du pic ^{214}Po dans ROI2 et ROI1. Cette détermination a été effectuée à partir des spectres en énergies mesurés par le CAM et enregistrés sur deux heures. Sur ces spectres, un ajustement mathématique de traîne a postériori a été effectué.

La procédure mise en place pour déterminer ces contributions individuelles, en fonction à la fois de la granulométrie et de la masse d'aérosol accumulée, est la suivante en deux étapes :

- 1^{ère} étape : Ajustement de traîne en énergies du pic ^{214}Po sur la gamme [5200 - 6200] keV

La traîne en énergies du pic ^{214}Po est ajustée à l'aide du modèle mathématique de décroissance exponentielle (relation 51 présentée en détail au chapitre II) sur la gamme en énergie allant de 5200 keV à 6200 keV. Cette gamme en énergies a été choisie en considérant l'ensemble des spectres en énergies enregistrés en phase deux. Effectivement, dans cette gamme la traîne en énergie du pic ^{214}Po varie le plus. Ainsi, on a souhaité ajuster au mieux le modèle mathématique dans cette zone de mesure.

À la figure 61 est reporté un exemple d'ajustement à partir d'un spectre expérimental mesuré par le CAM en conditions atypiques. À partir de l'ajustement de traîne, la contribution de celle-ci, à la fois dans la ROI2 et la ROI1, est calculée. Le paramètre K_{13} calculé, défini à la relation 57, caractérise la contribution de la traîne du pic ^{214}Po au comptage dans ROI1. Le paramètre K_{23} calculé, défini à la relation 58, caractérise la contribution de la traîne du pic ^{214}Po au comptage dans ROI2. Le calcul d'incertitude associée à ces paramètres de traîne est présenté en détail en annexe 1 (relation 63).

$$K_{13} \text{ calculé} = \frac{N_{1,\text{traîne}}}{N_{3,\text{CAM}}}, \quad (57)$$

$$K_{23} \text{ calculé} = \frac{N_{2,\text{traîne}}}{N_{3,\text{CAM}}}, \quad (58)$$

avec :

- $N_{1,\text{traîne}}$ et $N_{2,\text{traîne}}$: comptages calculés respectivement dans ROI1 et ROI2, comme étant dû à la traîne du pic ^{214}Po ,
- $N_{3,\text{CAM}}$: comptage brut mesuré par le CAM dans ROI3.

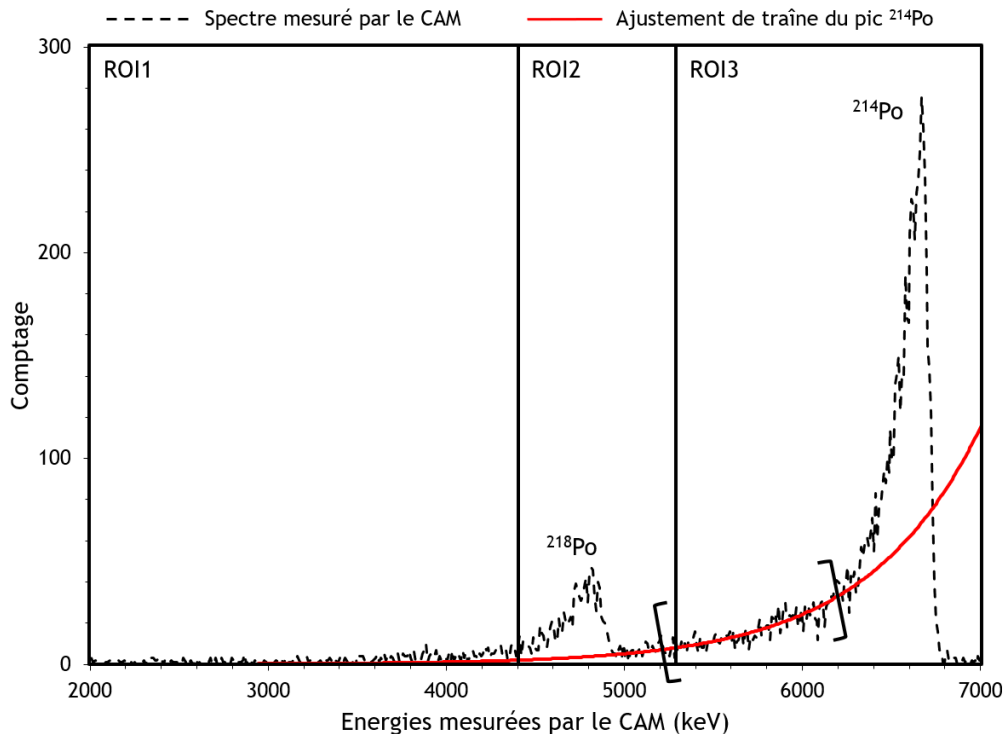


Figure 61 : Présentation de l'ajustement de la traîne en énergies du pic ^{214}Po . Le spectre en trait interrompu noir correspond à la mesure du CAM. La courbe en trait continu rouge correspond au modèle (relation 51 du chapitre II) ajusté aux données expérimentales sur une gamme en énergie de [5200 - 6200] keV, laquelle est repérée par les crochets sur le spectre

- 2^{ème} étape : Soustraction de la contribution de la traîne du pic ^{214}Po

La contribution de la traîne du pic ^{214}Po calculée est alors soustraite au spectre en énergies α . À la figure 62 est représenté le spectre mesuré par le CAM, lequel est soustrait de la contribution de la traîne du pic ^{214}Po au comptage dans ROI1 et ROI2. Après soustraction, la contribution de la traîne en énergie du seul pic ^{218}Po dans ROI1 est calculée. Cette contribution est caractérisée par le paramètre K_{12} calculé, lequel est défini par la relation 59. Celui-ci correspond au ratio du comptage mesuré par le CAM dans ROI1 ($N_{1,\text{CAM}}$) à celui mesuré par le CAM dans ROI2 ($N_{2,\text{CAM}}$).

$$K_{12} \text{ calculé} = \frac{N_{1,\text{CAM}}}{N_{2,\text{CAM}}} \quad (59)$$

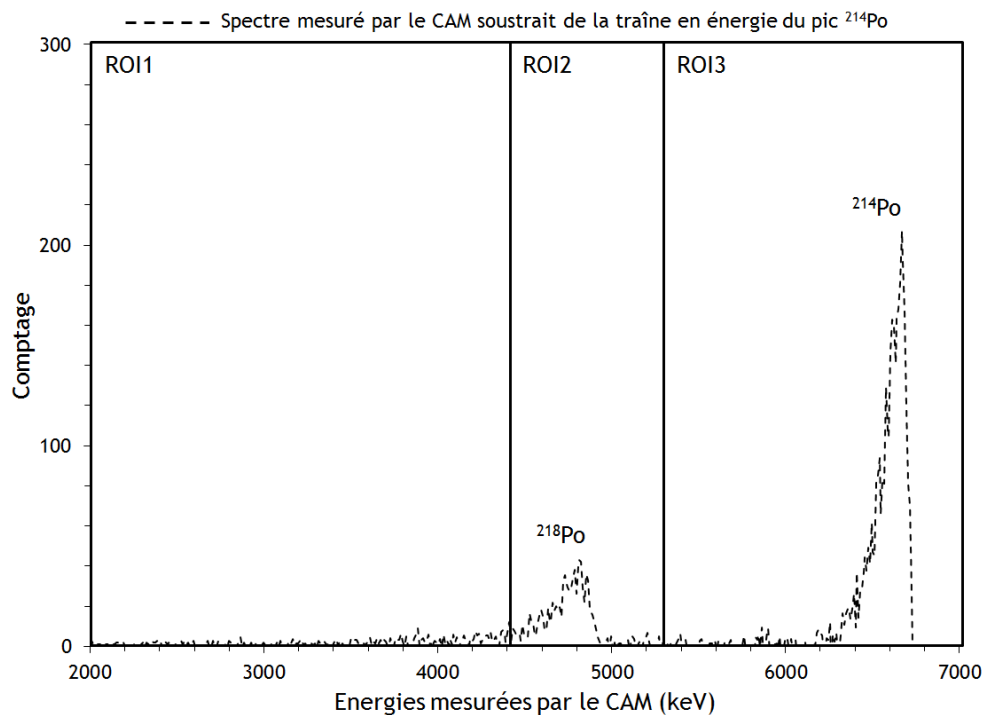


Figure 62 : Spectre mesuré par le CAM soustrait de la contribution de la traîne en énergie du pic ^{214}Po au comptage dans ROI2 et ROI1

Cette procédure en deux étapes a été appliquée aux 42 spectres en énergies exploitables répartis comme suit : 9 spectres obtenus pour les essais avec l'aérosol A, 5 avec l'aérosol B, 14 avec l'aérosol C et également 14 avec l'aérosol D. Les raisons pour lesquelles le nombre de spectre ajusté est différent, pour les quatre granulométries, sont explicitées dans la section des résultats ci-après (section III.2.4).

Une base de données conséquentes a pu être créée et alimentée à partir des paramètres de traînes calculés, lesquels sont corrélés d'une part, à la masse d'aérosols non-radioactifs prélevés sur le filtre du CAM et d'autre part, à la granulométrie de ces aérosols non-radioactifs.

III.1.6 Utilisation du paramètre de traîne K_{12} calculé permettant l'amélioration de l'estimation du bruit de fond

Le bruit de fond dans ROI1 est estimé en temps réel et en continu, pour chaque configuration d'exposition du CAM, en utilisant le paramètre K_{12} calculé (avec la relation 59). Celui-ci est sélectionné dans la base de données de manière adaptée à la situation réelle d'exposition du CAM. À partir de ce bruit de fond mieux estimé, on calcule la LD correspondante, laquelle est ensuite comparée à la LD vraie.

Finalement, sur un même graphique on confronte d'une part, la LD calculée à partir du K_{12} sélectionné dans la base de données, la LD calculée à partir du K_{12} actuel (égal à 0,09) en fonction de la LD vraie. Afin de juger de la surestimation ou sous-estimation des LD calculées, à partir de K_{12} adapté et de K_{12} actuel, par rapport à la LD vraie, on a tracé sur les graphiques une droite de pente égale à 1. Les valeurs de LD au-dessus de cette droite signifient une surestimation, à l'inverse une sous-estimation pour des valeurs de LD en-dessous.

III.2 Résultats expérimentaux

III.2.1 Description du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques

III.2.1.a Comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3

L'ensemble des résultats expérimentaux sont reportés en annexe 4. Ils sont présentés par type d'aérosols A, B, C et D (dont les caractéristiques ont été rappelées au tableau 13) et classés par ordre croissant de masse de particules prélevées durant la phase deux. Ils sont repérés par une numérotation comme suit¹ : dénomination de l'aérosol - numéro de la phase - numéro de l'essai. Pour chaque aérosol il y a alors en annexe 4 :

- un tableau regroupant l'ensemble des masses prélevées au cours des différentes expériences. Dans ce tableau, on repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été observée.
- un ensemble de graphiques qui présentent d'une part, l'évolution des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosols non-radioactifs mesurée par le COP en fonction du temps. Sur ces graphiques, les cent vingt premières minutes correspondent à la phase une alors que la phase deux débute au même moment que l'injection d'aérosol non-radioactif, repéré par l'augmentation brusque de la concentration mesurée par le COP, et se termine cent vingt minutes après.

De manière générale et quelle que soit la granulométrie de l'aérosol non-radioactif collecté par le CAM, le comportement de celui-ci n'est affecté qu'au-delà d'une certaine masse accumulée sur le filtre de prélèvement. En deçà, les comptages mesurés dans ROI1, ROI2 et ROI3 restent stables après la brève génération d'aérosol non-radioactif et ce jusqu'à la fin de l'expérience. En d'autres termes, le CAM se comporte de la même manière qu'en conditions normatives IEC. Au-delà, une augmentation du comptage dans ROI1 est tout d'abord mesurée. Puis, pour des masses accumulées encore plus grande, le CAM mesure à la fois une diminution du comptage dans ROI3, une augmentation du comptage dans ROI2 et une intensification de l'augmentation du comptage dans ROI1. Ces variations ont lieu au cours des 20 à 30 minutes qui suivent la brève génération d'aérosols non-radioactifs. Puis, au cours des 90 à 100 minutes suivantes (jusqu'à la fin de l'expérience), les

¹ Par exemple l'essai numéro 1 avec l'aérosol A en phase 2 est noté : A - P2 - 1

variations s'inversent, soit un comptage qui augmente dans ROI3, diminue dans ROI2 et ROI1, et retournent vers une valeur à l'équilibre ou proche.

Remarque : ce n'est pas toujours mentionné que les masses accumulées sur le filtre du CAM le sont au cours des dix premières minutes qui suivent la brève génération d'aérosol.

Pour l'ensemble des descriptions qui suivent, nous avons reportés quelques exemples à proximité des zones de textes mais pour l'ensemble des résultats il faut se référer à l'annexe 4.

Essais avec l'aérosol A :

Aucune variation des comptages n'est mesurée jusqu'à au moins une masse accumulée de 1,5 mg (A - P2 - E3) comme on peut le constater en exemple sur le graphique en haut à gauche à la figure 63. À partir d'une masse accumulée de 2,27 mg (A - P2 - E4) et jusqu'à au moins une masse de 3,27 mg (E - P2 - E8), seule une faible augmentation du comptage dans ROI1 est mesurée (graphique en haut à droite à la figure 63). Toutefois, celui-ci revient rapidement, en environ 5 à 10 minutes, à sa valeur d'avant la brève génération d'aérosols non-radioactifs, soit proche de 0. Au-delà, de ces masses d'aérosols non-radioactifs accumulées, soit de l'essai (A - P2 - E9) à (A - P2 - E18), les variations de comptages dans ROI1, ROI2 et ROI3 sont brusques et intenses mais reviennent toutefois à une valeur à l'équilibre selon une dynamique rapide (graphique du bas à la figure 63).

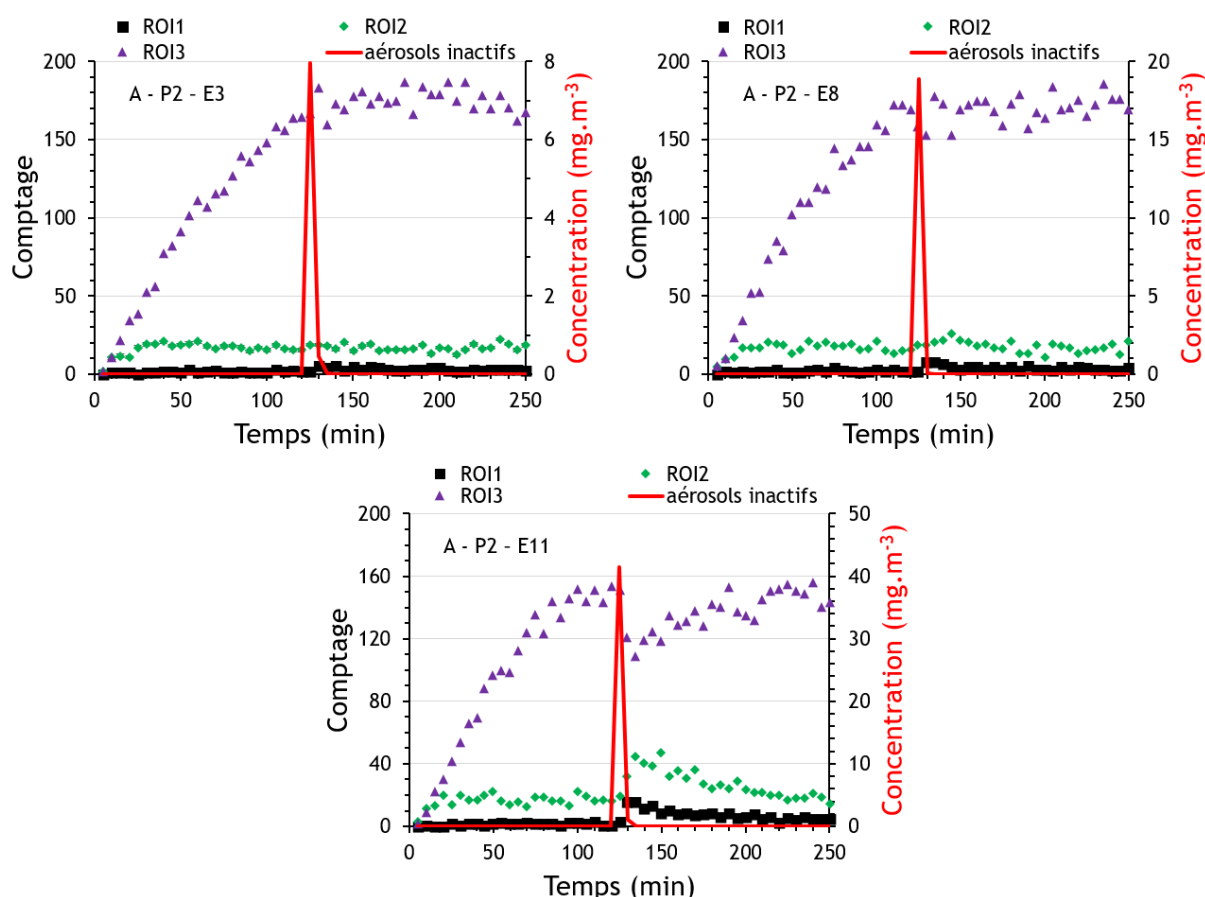


Figure 63 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés A (trait rouge) en fonction du temps

Essais avec l'aérosol B :

Jusqu'à une masse au moins égale à 1,25 mg (B - P2 - E2) le comptage dans ROI1 n'augmente pas (graphique en haut à gauche à la figure 64). À partir d'une masse de 3,08 mg (B - P2 - E3) et jusqu'à une masse au moins de 3,64 mg (B - P2 - E5), le comptage mesuré dans ROI1 augmente sensiblement et retourne à une valeur proche de zéro en moins de 15 minutes (graphique en haut à droite à la figure 64). Au-delà, les mesures effectuées par le CAM sont comparables à celles discutées pour le cas précédent (graphique du bas à la figure 64).

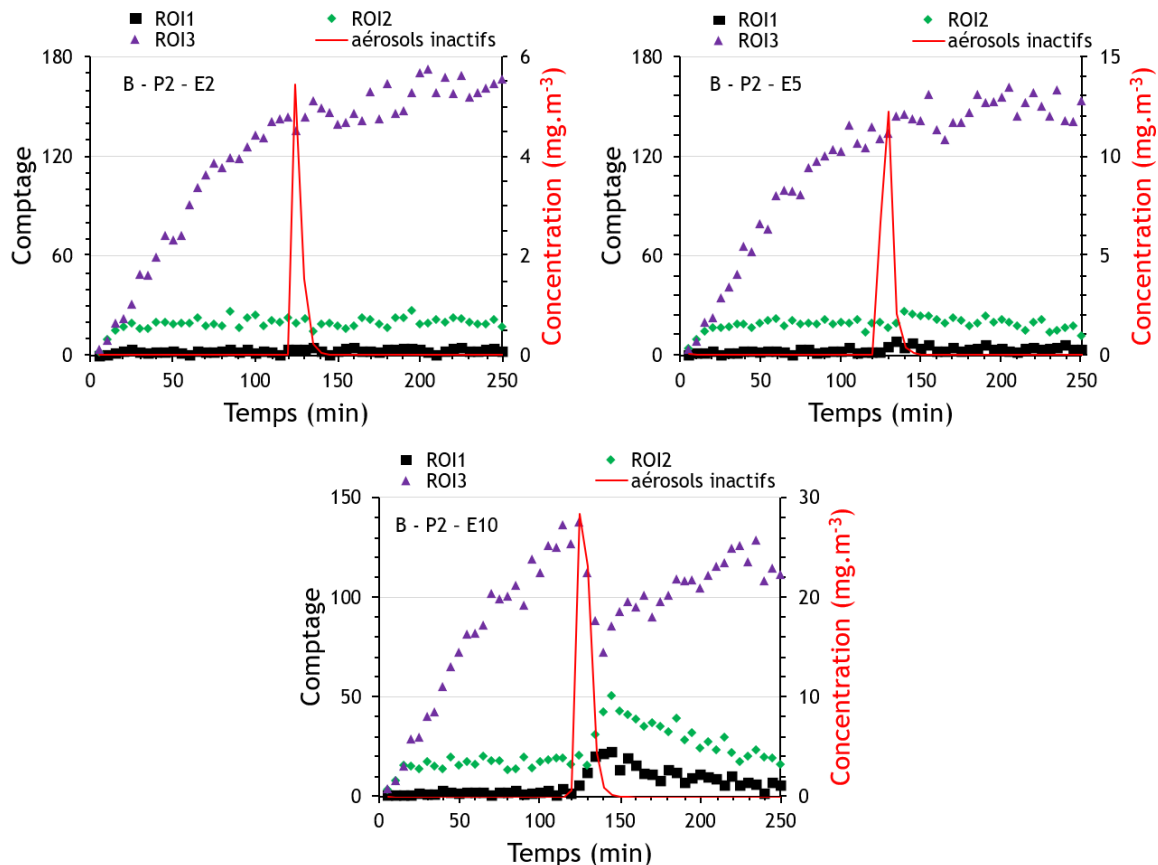


Figure 64 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés B (trait rouge) en fonction du temps

Essais avec l'aérosol C :

Seul le comptage mesuré dans ROI1 augmente pour des masses accumulées jusqu'à au moins 3 mg (C - P2 - E1) à (C - P2 - E2). À la différence des deux cas précédents, où DE_{VMM} est inférieur à 10 μm , le comptage mesuré dans ROI1 ne décroît que très peu jusqu'à la fin de l'expérience (dynamique lente). Un exemple de ce comportement est reporté sur le graphique de gauche à la figure 65. À partir d'une masse accumulée de 4,35 mg (C - P2 - E3) et au-delà, le comptage dans ROI1 s'intensifie et ceux dans ROI2 et ROI3 augmentent et diminuent respectivement. Les cinétiques de retour à une valeur d'équilibre, après l'accumulation de masse, sont plus longues que pour les deux cas précédents (A et B). Un exemple de ce comportement est présenté sur le graphique de droite à la figure 65.

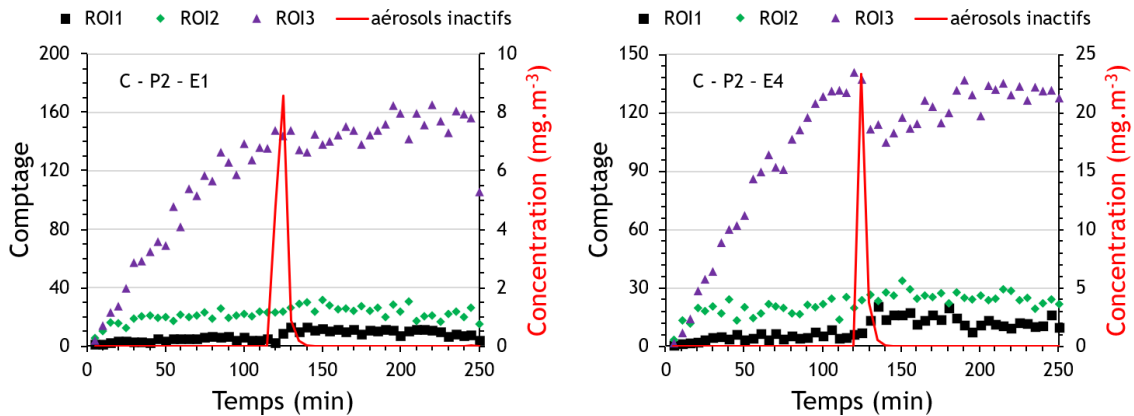


Figure 65 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés C (trait rouge) en fonction du temps

Essais avec l'aérosol D :

Les évolutions des comptages dans ROI1, ROI2 et ROI3 mesurés par le CAM sont comparables à celles qui sont décrites pour l'aérosol C. Effectivement, le comptage dans ROI1 augmente pour de faibles masses accumulées (inférieures à 4 mg), puis décroît selon une dynamique lente. Ce comportement est observé pour les essais (D - P2 - E1) à (D - P2 - E7) et un exemple est reporté sur le graphique de gauche à la figure 66. Pour des masses plus grandes, soit environ 5 mg (D - P2 - E8) et au-delà, le comptage dans ROI1 s'intensifie et ceux dans ROI2 et ROI3 augmentent et diminuent respectivement. Comme précédemment (avec l'aérosol C), les cinétiques de retour à un comptage à l'équilibre sont lentes, un exemple est reporté sur le graphique de droite à la figure 66.

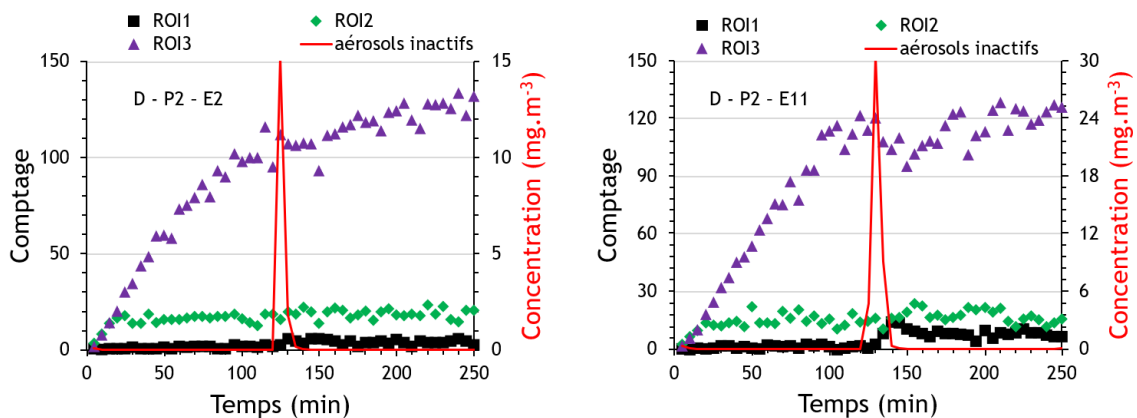


Figure 66 : Exemples d'évolutions d'une part, des comptages nucléaires mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs dénommés D (trait rouge) en fonction du temps

Finalement de cette description des évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3 pour l'ensemble des essais menés avec les quatre granulométries d'aérosols, les éléments suivants sont mis en avant :

- Le CAM se comporte de manière comparable lorsqu'il est soumis à des aérosols A ou B et de même pour les aérosols C ou D. Ainsi, on identifie deux gammes, celle où $DE_{\gamma MM}$ est inférieur à $10 \mu m$ et celle où il est supérieur à $10 \mu m$, lesquelles affectent la mesure

nucléaire du CAM différemment. Effectivement, la mesure nucléaire effectuée par le CAM est plus longuement dégradée après une brève génération d'aérosols non-radioactifs de DE_{VMM} supérieur à 10 μm , que lorsque le DE_{VMM} est inférieur à 10 μm .

- Lorsque le CAM est soumis à de brèves générations d'aérosols non-radioactifs, conduisant à l'accumulation rapide de masse d'aérosol, les comptages mesurés présentent deux évolutions. Une première a lieu au cours des 20 à 30 minutes qui suivent la brève remise en suspension d'aérosols non-radioactifs. La seconde évolution des comptages a lieu après, avec une cinétique rapide de retour à une valeur d'équilibre lorsque DE_{VMM} est inférieur à 10 μm et lente lorsque DE_{VMM} est supérieur à 10 μm .
- Les mesures nucléaires effectuées par le CAM sont d'autant plus dégradées que le DE_{VMM} est important et ce pour des masses d'aérosols non-radioactifs accumulées sur le filtre du CAM identiques.

III.2.1.b Spectres en énergies α mesurés par le CAM

L'ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures sont reportés en annexe 5. Les résultats sont présentés par type d'aérosols (A, B, C et D) et classés par ordre croissant de masse de particules prélevées durant la phase deux. Ils sont repérés par la même numérotation, laquelle a été introduite précédemment. Ainsi en annexe 5, il y a pour chaque type aérosol :

- un ensemble de spectres en énergies α enregistrés après les deux heures de prélèvement du CAM en phase deux. Sur chaque spectre sont indiquées les trois ROIs,
- un tableau avec les valeurs calculées de la position et de la FWHM des deux pics (^{218}Po et ^{214}Po).

À partir de l'ensemble des valeurs obtenues pour chaque aérosol, soit 18 avec l'aérosol A, 12 avec l'aérosol B, 14 avec l'aérosol C et 14 également avec l'aérosol D, nous avons calculé les positions moyennes des pics (^{218}Po et ^{214}Po) et leur FWHM moyennes, accompagnées de l'incertitude absolue à 95 %. Les résultats sont reportés dans le tableau 15 pour les quatre granulométries d'aérosol. Aucune corrélation de ces paramètres avec la masse et la granulométrie d'aérosol prélevée n'est identifiée.

Tableau 15 : Valeurs moyennes des positions en énergie (E) et des FWHM des pics ^{218}Po et ^{214}Po , accompagnées de leurs incertitudes absolues à 95 %

Paramètres		E (keV)	U(E)	FWHM (keV)	U(FWHM)
A	^{218}Po	4825	17	259	61
	^{214}Po	6668	7	161	13
B	^{218}Po	4840	13	215	17
	^{214}Po	6678	9	169	11
C	^{218}Po	4837	13	259	33
	^{214}Po	6678	7	160	13
D	^{218}Po	4832	11	210	16
	^{214}Po	6680	7	157	10

On a calculé l'écart-relatif (ER) de ces paramètres par rapport à ceux calculés des spectres en énergies α obtenus en phase une, soit sans présence d'aérosol non-radioactif (valeurs dans le tableau 14). Les résultats des ER sont reportés dans le tableau 16, à partir desquels on met en avant deux informations :

- la position des pics n'est pas affectée par la présence des aérosols non-radioactifs sur le filtre du CAM et ce pour les quatre granulométries d'aérosols mises en jeu dans l'étude. Ceci signifie donc que l'ensemble des particules α émises ne traversent une même épaisseur homogène dans laquelle l'énergie est transférée. Auquel cas, un décalage serait en énergie serait mesuré comme c'est le cas pour le décalage en énergie lié à l'épaisseur homogène d'air entre le filtre et le détecteur.
- la FWHM des pics ^{218}Po et ^{214}Po mesurée en présence d'aérosols non-radioactifs est jusqu'à environ 50 % et 30 % respectivement plus large. Cette FWHM globalement plus grande s'explique par la distance parcourue par les particules α dans les aérosols non-radioactifs qui est plus grande. Toutefois, aucune corrélation n'est identifiée entre ce paramètre et la masse ou la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulés sur le filtre du CAM. Ceci est a priori dû aux ailettes de collimation sous le détecteur nucléaire qui permettent de réduire significativement la FWHM et rend « impossible » l'étude de l'évolution de la FWHM avec l'ABPM203M. Ainsi, ce paramètre n'est, dans le cas de l'ABPM203M, pas pertinent à étudier puisqu'il est « bloqué » par la présence des ailettes de collimation.

Tableau 16 : Écart-relatifs (ER) calculés entre les valeurs de position des pics ^{218}Po et ^{214}Po et de leur FWHM respectives mesurées en phase deux et les valeurs calculées de ces mêmes paramètres mais mesurés en phase une (valeurs reportées au tableau 14)

Paramètres		Position		FWHM	
		^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
Écart-relatif (%)	A	0,2	0,2	47	22
	B	0,1	0	22	28
	C	0	0	47	21
	D	0	0	19	19

Ainsi, comme on le constate d'une part, sur l'ensemble des spectres reportés en annexe 5 et d'autre part, avec les résultats présentés ci-dessus, à la fois la position des pics et leur FWHM ne varient pas de manière corrélée avec la masse ou la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulés sur le filtre du CAM. Ces paramètres ne sont donc pas pertinents pour caractériser le comportement du CAM ABPM203M. En revanche, les traînes en énergies des pics montrent elles une évolution corrélée à la fois avec la masse et la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulés. Ces évolutions sont également comparables par paires de granulométrie d'aérosol non-radioactif, soit A - B ($DE_{\gamma MM} < 10 \mu\text{m}$) et C - D ($DE_{\gamma MM} > 10 \mu\text{m}$).

- $DE_{\gamma MM} < 10 \mu\text{m}$:

Pour les essais numérotés (A - P2 - E1) à (A - P2 - E8) (inclus) et (B - P2 - E1) à (B - P2 - E5), les traînes en énergies présentent une forme exponentielle décroissante. Puis, un élargissement significatif de la base du pic (visible sur ^{214}Po) apparaît jusqu'aux essais (A - P2 - E10) et (B - P2 - E9). Au-delà de ces derniers essais, l'élargissement de la traîne en énergie n'est plus visible mais la traîne est surmontée d'une ligne de base. La traîne présente alors une particularité certaine. Celle-ci correspond à la somme d'un spectre très dégradé, lequel est mesuré durant la première variation des comptages, et d'un spectre de moins en moins dégradé mesuré, lui, durant la seconde variation où les comptages retournent à une valeur à l'équilibre.

- $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$:

Quelle que soient les masses accumulées dans notre étude, les traînes en énergies des pics présentent toujours une forme exponentielle décroissante typique, comme observée pour les premiers essais avec DE_{VMM} inférieur à $10 \mu\text{m}$. En revanche, l'intensité de la traîne croît à mesure que la masse d'aérosol accumulée sur le filtre du CAM croît.

Finalement, la description de l'ensemble des spectres met en avant une différence significative dans la forme des traînes en énergies mesurées par le CAM lorsque celui-ci est soumis à des aérosols non-radioactifs dont le DE_{VMM} est inférieur à $10 \mu\text{m}$ ou supérieur à $10 \mu\text{m}$. Cette différence devient d'autant plus significative, et marquée par une particularité pour $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$, que la masse accumulée sur le filtre du CAM est grande. Ceci, soulève alors la nécessité d'expliquer cette différence en tenant compte de la structure du dépôt qui peut être formée au-dessus du filtre en fonction de la masse et de la granulométrie des aérosols non-radioactifs prélevés.

III.2.2 Interprétation du comportement du CAM soumis à des conditions atypiques

III.2.2.a Structure du dépôt

Épaisseur moyenne équivalente

Le calcul de la distribution de l'épaisseur de structure en fonction de la masse et pour les quatre granulométries d'aérosol (A, B, C et D) est effectué en utilisant la relation 56. L'évolution de l'épaisseur moyenne équivalente (E_{moy}) est ensuite déterminée à partir des distributions calculées.

À la figure 67, sont présentés les résultats pour les quatre granulométries d'aérosols non-radioactifs et pour l'ensemble des masses accumulées, soient en carrés noirs (A), losanges verts (B), triangles rouges (C) et cercles violet (D). Plus les particules sont petites et plus elles peuvent former une structure épaisse pour une masse de particules prélevée donnée. L'épaisseur moyenne équivalente représente en fait une épaisseur de matière qu'on suppose homogène. Ainsi, à partir de ces épaisseurs et de la surface effective de prélèvement du filtre ($S_{eff} = 4,91 \text{ cm}^2$), on a calculé pour chaque granulométrie la masse volumique apparente (ρ_{app}) de l'épaisseur de matière. Ces masses volumiques apparentes calculées sont reportées à la même figure 67. Elles prennent en considération la porosité de l'épaisseur de matière, qui est plus grande pour les petits aérosols, d'où des masses volumiques apparentes plus faibles. Soient $1,42 \text{ g.cm}^{-3}$, $1,61 \text{ g.cm}^{-3}$, $1,85 \text{ g.cm}^{-3}$ et $2,14 \text{ g.cm}^{-3}$ respectivement pour les structures formées de particules dénommées A, B, C et D.

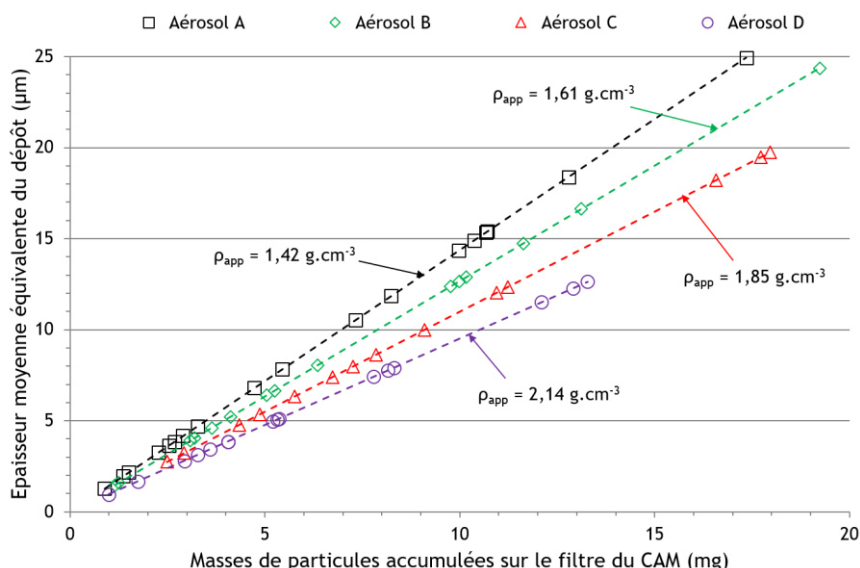


Figure 67 : Évolution de l'épaisseur moyenne équivalente de la structure formée au-dessus du filtre en fonction de la masse de particules prélevées au cours de nos essais et pour les quatre granulométries d'aérosol, soient A en carrés noirs, B en losange verts, C en triangle rouges et D en cercles violets. Les masses volumiques apparentes (ρ_{app}) calculées des épaisseurs de matières formées au-dessus du filtre de surface effective (S_{eff}) égale à $4,91 \text{ cm}^2$ sont également reportées

Dans le tableau 17, on compare l'épaisseur formée par l'accumulation de masse d'aérosol non-radioactif sur le filtre du CAM à la granulométrie de l'aérosol. Trois cas, sont identifiées en fonction de la masse prélevée et de la granulométrie d'aérosol, soit $E_{moy} < DE_{VMM}$, $E_{moy} \approx DE_{VMM}$ et $E_{moy} > DE_{VMM}$. Ainsi, au vu des valeurs, l'idée d'un dépôt homogène, qui présente une masse volumique apparente donnée, est quelque peu limitée notamment pour les aérosols C et D. Effectivement, les masses accumulées dans l'étude ne sont a priori pas suffisantes pour former une couche pleine en supposant le dépôt homogène.

Tableau 17 : Comparaison entre l'épaisseur moyenne équivalente calculée du dépôt (E_{moy}), pour les différentes masses d'aérosols accumulées sur le filtre, et la granulométrie de ces aérosols non-radioactifs (DE_{VMM})

Comparaison entre E_{moy} et DE_{VMM}	Masse aérosol (mg)			
	A	B	C	D
$E_{moy} < DE_{VMM}$	0 à 4	0 à 6	0 à 10	Pour l'ensemble des masses accumulées dans l'étude
$E_{moy} \approx DE_{VMM}$	4 à 5	6 à 7	10 à 12	
$E_{moy} > DE_{VMM}$	> 5	> 7	> 12	

Nombre moyen de couches équivalentes

L'évolution du nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy}) est déterminée pour les quatre granulométries d'aérosol et pour l'ensemble des masses accumulées à partir des distributions calculées à l'aide de la relation 30 du chapitre II. Les évolutions de ce N_{moy} en fonction de la masse de particules prélevée sont reportées à la figure 68. Pour une masse donnée, le nombre de couches équivalentes est d'autant plus grand que la granulométrie de l'aérosol est petite.

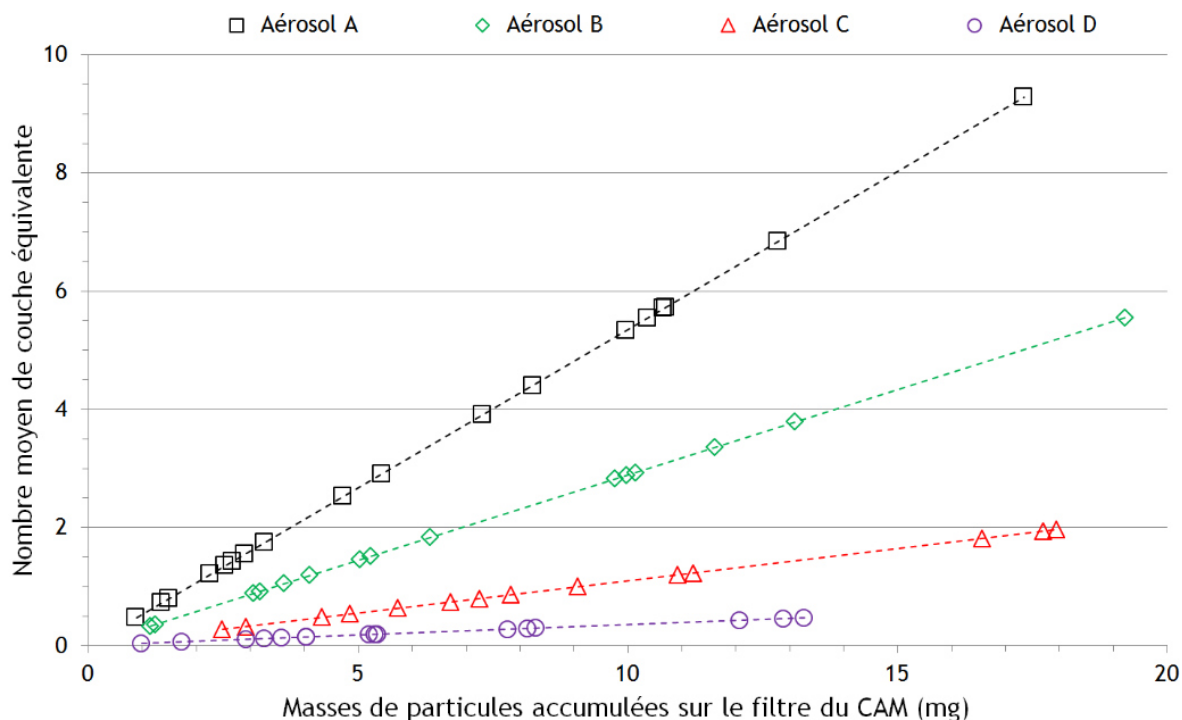


Figure 68 : Évolution du nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy}) fonction de la masse de particules accumulées sur le filtre du CAM pour les quatre granulométries d'aérosol. La légende est la même que celle indiquée à la figure 67(

Trois cas sont identifiés et reportés dans le tableau 18 en fonction de la masse prélevée et de la granulométrie d'aérosol, soit lorsque N_{moy} est inférieur ou égal à un, N_{moy} est supérieur à un mais inférieur ou égale à deux (zone de transition) et enfin N_{moy} est supérieur à deux. Au vu de ces résultats, un dépôt homogène et multicouches est formé pour des masses accumulées supérieures à 4 mg et 7 mg respectivement pour les aérosols non-radioactifs A et B. Ainsi, on considère une structure granulaire au-dessus du filtre du CAM. Pour les aérosols C et D dont le DE_{vMM} est supérieur à 10 μm , les dépôts pour les masses accumulées dans l'étude ne présentent pas un nombre de couches supérieur à 2. La structure granulaire, n'est pas réellement envisagée mais on considère toute de même le cas de la zone de transition qui tend vers la formation d'un dépôt multicouches et donc homogène.

Tableau 18 : Nombre moyen de couches équivalentes en fonction de la masse d'aérosol non-radioactifs accumulée et pour les quatre granulométries utilisées. Mise en avant de trois configurations, à savoir N_{moy} inférieur ou égal à un, supérieur à un mais inférieur ou égal à deux (zone de transition) et enfin supérieur à deux.

Nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy})	Masse aérosol (mg)			
	A	B	C	D
≤ 1	0 à 2	0 à 3	0 à 9	Pour l'ensemble des masses accumulées dans l'étude
$1 < N_{moy} \leq 2$	2 à 4	3 à 7	9 à 18	Non atteint dans l'étude
> 2	> 4	> 7	> 18	

Finalement, dans un dépôt multicouches formé par les aérosols non-radioactifs, les aérosols radioactifs naturels sont filtrés et collectés selon un profil de pénétration exponentielle.

Profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans la structure granulaire

Les différents profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans les structures granulaires formées de particules A, B, C et D sont calculés. Ces profils de pénétration sont reportés à la figure 69. Le graphique de gauche représente le profil de pénétration en fonction de E_{moy} et celui de droite en fonction de N_{moy} de la structure formée en surface du filtre.

Remarque : De manière à mieux appréhender l'évolution du profil de pénétration, nous les avons volontairement tracés en considérant une structure à plusieurs couches, bien que ça ne soit a priori pas forcément le cas, notamment pour les aérosols C et D.

Plus la granulométrie des aérosols constituant la structure granulaire est importante ($D > C > B > A$) moins l'efficacité de collecte, vis-à-vis des aérosols radioactifs naturels ($DAMA = 0,2 \mu m$) est grande. Ceci, conduit alors à collecter les aérosols radioactifs naturels essentiellement en profondeur. Par contre, pour les structures constituées d'aérosol A ou B, les aérosols radioactifs naturels sont essentiellement collectés en surface.

La fraction libre des aérosols radioactifs naturels qui représente environ 40 % de l'activité naturelle est supposée être collectée principalement en surface du dépôt et ce que ce soit pour un dépôt d'aérosol A, B, C ou D (voir remarque détaillée à la section II.1.2 du chapitre II).

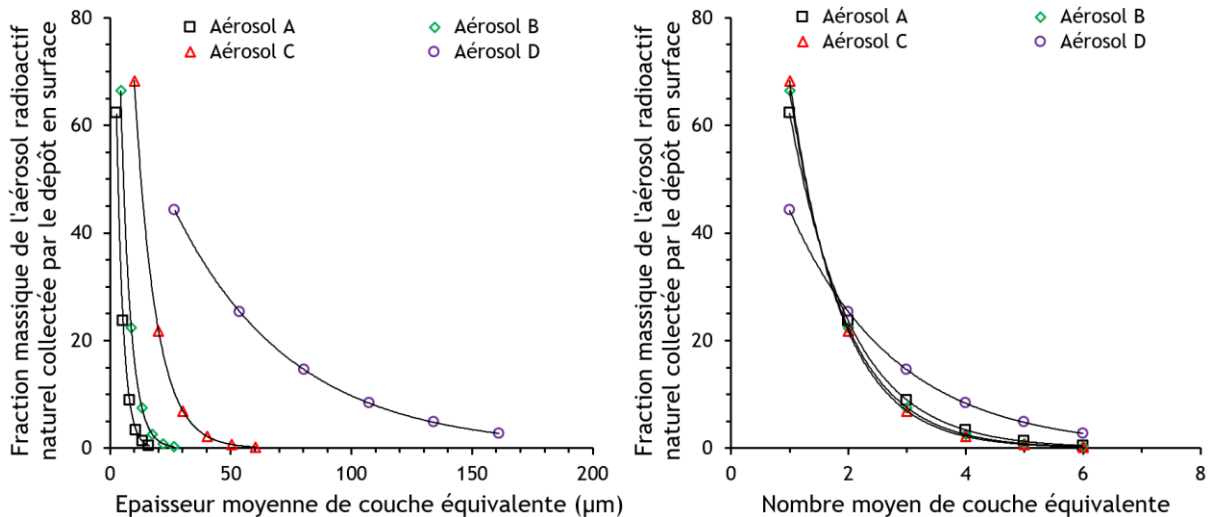


Figure 69 : Profils de pénétration des aérosols radioactifs naturels ($DAMA = 0,2 \mu m$) en fonction de l'épaisseur moyenne de couche équivalente (à gauche) et du nombre moyen de couche équivalente (à droite) d'une structure granulaire formée par les aérosols A, B, C et D respectivement représentés par les carrés noirs, losanges verts, triangles rouges et cercles violets

Finalement de ces résultats deux informations ressortent :

- Une structure multicouche se forme avec l'accumulation des aérosols non-radioactifs A et B à partir d'une masse d'environ 4 mg et 7 mg respectivement. Avec les aérosols C et D, le dépôt n'est pas considéré comme une structure granulaire, au vu des faibles masses accumulées.
- Les aérosols radioactifs naturels (fraction attachée) sont essentiellement collectés en surface de la structure granulaire formée par les aérosols A et B. En revanche, dans le cas des aérosols C et D, bien que la structure granulaire ne soit pas envisagée dans notre cas au vu des faibles masses accumulées, on peut d'ores et déjà dire, au vu des profils de pénétration, que les aérosols radioactifs naturels seraient essentiellement collectés en profondeur, soit en surface du filtre du CAM. En ce qui concerne la fraction libre de l'activité naturelle, on suppose qu'elle est en continu collectée en surface et ce quel que soit le type de dépôt.

III.2.2.b Confrontation structure du dépôt - mesures nucléaires en temps réel du CAM

On a vu précédemment qu'à la suite d'une brève génération d'aérosols non-radioactifs, deux variations des comptages nucléaires mesurées par le CAM se suivent. Une première variation a lieu juste après la génération d'aérosols non-radioactifs, laquelle conduit à l'accumulation rapide de masse sur le filtre du CAM. Cette première variation se produit jusqu'à environ trente minutes après le début de la brève génération d'aérosols non-radioactifs. On repère cette période par $t_0 + 30$. La seconde variation se poursuit, elle, jusqu'à la fin de la phase deux, laquelle est repérée par la période notée $t_{30} + 90$.

La variation rapide des comptages mesurés par le CAM au cours de la période $t_0 + 30$ est attribuée à l'absorption de l'énergie des particules α -naturels dans le dépôt formé par les aérosols non-radioactifs rapidement accumulés. La variation des comptages mesurés par le CAM au cours de la période $t_{30} + 90$, laquelle présente toutefois une cinétique plus rapide pour les aérosols dont le $DE_{\gamma MM}$ est inférieur à $10 \mu m$ que ceux dont le $DE_{\gamma MM}$ est supérieure à $10 \mu m$, est attribuée à deux effets. Le premier est lié à la diminution du nombre d'aérosols radioactifs naturels présents sous le dépôt formé par les aérosols non-radioactifs. Le second est lié à la collecte, selon un profil de pénétration exponentielle, des nouveaux aérosols radioactifs naturels échantillonnés et filtrés dans la structure granulaire.

On interprète ces variations à l'aide de schémas en deux dimensions, lesquels illustrent les configurations possibles des structures en considérant l'étude sur le profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels. Ils sont reportés :

- de la figure 70 à la figure 74 pour les structures constituées de particules dont le DE_{VMM} est inférieur $10\ \mu\text{m}$,
- de la figure 75 à la figure 77 pour les structures constituées de particules dont le DE_{VMM} est supérieur à $10\ \mu\text{m}$.

Sur l'ensemble des figures à $t_0 + 30$, les disques et flèches oranges illustrent respectivement les aérosols radioactifs naturels prélevés lors de la phase une et la direction de quelques particules α émises de ces aérosols radioactifs naturels vers le détecteur nucléaire. Les disques noirs représentent les particules non-radioactives accumulées après la brève génération et qui constituent le dépôt de matière au-dessus des aérosols radioactifs naturels.

Sur l'ensemble des figures à $t_{30} + 90$, les disques oranges, les flèches oranges et les disques noir représentent les mêmes éléments que pour la période à $t_0 + 30$. Toutefois, en phase deux, la couche d'aérosols radioactifs naturels, accumulée en phase une (disques orange), est de moins en moins radioactive (due aux périodes radioactives courtes) et donc moins d'émission de particules α . Les disques rouges représentent les aérosols radioactifs naturels prélevés au cours de la phase deux, selon les profils de pénétrations exponentielles présentées à la figure 69.

Évolution de la mesure nucléaire avec les aérosols non-radioactifs A et B : $DE_{VMM} < 10\ \mu\text{m}$

Temps $t_0 + 30$:

- ❖ $N_{\text{moy}} \leq 1$ - figure 70 : associé aux expériences numérotées : A-P2-(E1 à E3) et B-P2-(E1 à E4)

Dans ROI3, ROI2 et ROI1, les comptages mesurés par le CAM sont stables. La structure granulaire n'affecte pas de manière significative la mesure nucléaire. Effectivement, l'épaisseur moyenne équivalente de la structure varie sur une gamme allant de 0 à $3\ \mu\text{m}$ pour l'aérosol A (avec $\rho_{\text{app}} = 1,42\ \text{g.cm}^{-3}$) et de 0 à $4\ \mu\text{m}$ pour l'aérosol B (avec $\rho_{\text{app}} = 1,61\ \text{g.cm}^{-3}$). Les énergies moyennes transférées par les particules α , issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po , à la structure sont calculées et reportées dans le tableau 19. Les énergies transférées sont faibles et n'engendrent pas d'effet significatif sur la mesure nucléaire. D'autant plus, la structure n'étant a priori pas homogène pour un tel N_{moy} , une certaine proportion des particules α ne « voit » pas l'aérosol non-radioactif et ne transfèrent donc de l'énergie qu'à l'air (configuration idéale). Les α issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po sont mesurées dans les fenêtres en énergies qui leur sont dédiées, soit respectivement ROI2 et ROI3. Le comptage α -artificiel reste stable, proche de zéro.

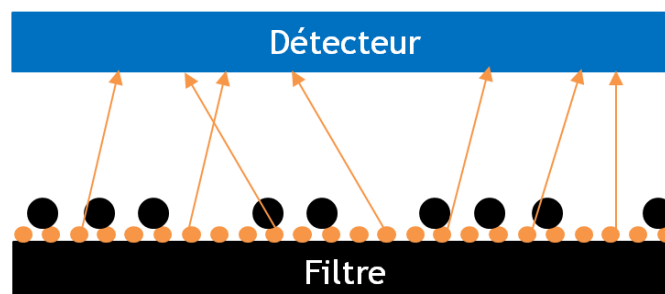


Figure 70 : Configuration du dépôt d'aérosol non-radioactifs de $DE_{VMM} < 10\ \mu\text{m}$ lorsque $N_{\text{moy}} \leq 1$. Les disques et flèche oranges représentent respectivement les aérosols radioactifs naturels accumulés en phase une et l'émission de quelque particules α issues de ces derniers en direction du détecteur nucléaire du CAM. Les disques noirs représentent les aérosols non-radioactifs rapidement accumulés en phase deux

Tableau 19 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans le dépôt constitué de particules non-radioactives A ou B en configuration $N_{\text{moy}} \leq 1$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM

	Énergie α moyenne transférée (keV)	
	Dépôt de particules A ($E_{\text{moy}} = 3 \mu\text{m}$)	Dépôt de particules B ($E_{\text{moy}} = 4 \mu\text{m}$)
^{218}Po	272 [4563]	424 [4411]
^{214}Po	232 [6438]	365 [6305]

❖ $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ - figure 71 : associé aux expériences numérotées : A-P2-(E4 à E8), B-P2-(E5 à E9)

Les dépôts de particules sont de plus en plus fournis avec des épaisseurs moyennes équivalentes comprises entre 3 et 6 μm pour l'aérosol A et entre 4 et 9 μm pour l'aérosol B. Une plus grande proportion des particules α « voit » l'aérosol non-radioactif. Dans le tableau 20, on reporte les énergies moyennes que les particules α -naturels peuvent transférer dans les épaisseurs moyennes équivalentes de structure. Ainsi est mesurée, au fur et à mesure de l'accumulation de masse, une diminution du comptage dans ROI3 accompagnée d'une augmentation du comptage dans ROI2 et ROI1. Effectivement, les énergies transférées sont relativement élevées, notamment pour l'aérosol B. Ceci explique l'augmentation des comptages mesurés à la fois dans la ROI2 et la ROI1. En effet, les particules α , issues du ^{214}Po , qui transfèrent une quantité élevée d'énergie à la matière avant d'atteindre le détecteur nucléaire sont mesurées dans la ROI2 (à la place de l'être normalement dans la ROI3). La même remarque est transposable aux particules α issues du ^{218}Po et mesurées dans ROI1.

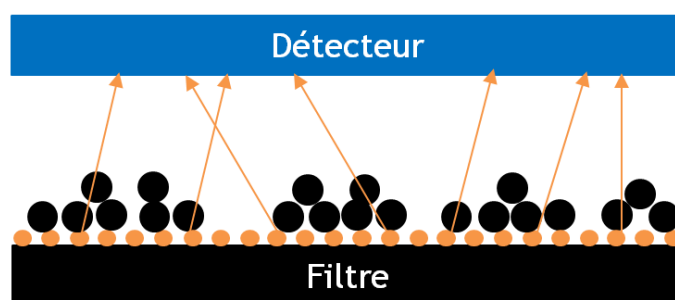


Figure 71 : Même légende qu'à la figure 70 mais pour une configuration où $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$

Tableau 20 : Énergies α moyennes transférées par les particules α issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules A et B en configuration $1 \leq N_{\text{moy}} < 2$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM

	Énergie α moyenne transférée (keV)	
	Dépôt de particules A ($E_{\text{moy}} = 6 \mu\text{m}$)	Dépôt de particules B ($E_{\text{moy}} = 9 \mu\text{m}$)
^{218}Po	553 [4282]	983 [3852]
^{214}Po	469 [6201]	831 [5839]

❖ $N_{moy} > 2$ - figure 72 : associé aux expériences numérotées : A-P2-(E9 à E18), B-P2-(E10 à E15)

Les structures sont telles que l'ensemble des particules α « voit » l'aérosol non-radioactif et traverse une épaisseur moyenne équivalente supérieure à 6 μm et 9 μm respectivement pour l'aérosol A et B. Le transfert d'énergie est alors important pour la majorité des particules α . Les particules α qui atteignent le détecteur sont mesurées avec des énergies significativement diminuées de sorte qu'elles sont alors comptabilisées à des énergies plus basses et donc des ROIs qui ne correspondent pas. Ceci explique à la fois la diminution importante du comptage mesuré dans ROI3 et les augmentations importantes des comptages mesurés dans ROI2 et ROI1. Dans tableau 21 le sont reportées les énergies moyennes que les particules α -naturelles peuvent transférer dans les épaisseurs moyennes équivalente de structure.

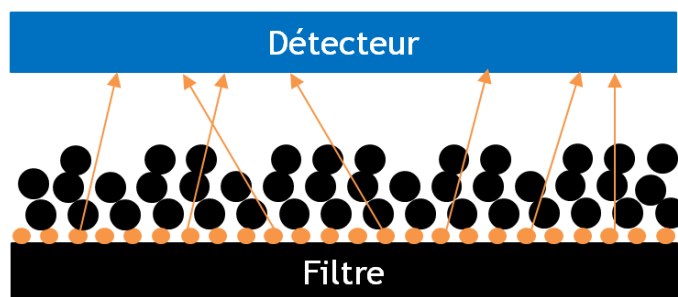


Figure 72 : Même légende qu'à la figure 70 mais pour une configuration où $N_{moy} > 2$

Tableau 21 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules A et B en configuration $N_{moy} > 2$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM

	Énergies α moyennes transférées (keV)	
	Structure de particules A ($E_{moy} > 6 \mu\text{m}$)	Structure de particules B ($E_{moy} > 9 \mu\text{m}$)
^{218}Po	> 553 [$<$ à 4282]	> 983 [$<$ à 3852]
^{214}Po	> 469 [$<$ à 6201]	> 831 [$<$ à 5839]

Les importantes énergies transférées par les particules α à la structure granulaire multicouche permettent d'expliquer la raison pour laquelle une alarme de type faux positif a systématiquement été observée pour les essais repérés A-P2-(E9 à E18) et B-P2-(E10 à E15).

Effectivement, la formation rapide d'une structure granulaire multicouche ($N_{moy} > 2$) conduit à une absorption importante de l'énergie des particules α émises sous la structure et *in fine* à un déclenchement d'alarme de type faux positif. Ce type de situation se retrouve lors d'opérations basiques en chantier de démantèlement, lesquelles remettent en suspension une concentration importante d'aérosols non-radioactifs.

Temps $t_{30} + 90$:

❖ $N_{\text{moy}} \leq 1$ - figure 73 :

Le faible dépôt d'aérosols non-radioactifs n'affecte pas la collecte des aérosols radioactifs naturels qui sont continuellement prélevés. Tout comme la première période, l'énergie transférée est minimale et ne conduit pas à faire modifier les comptages mesurés par le CAM dans les trois ROIs.

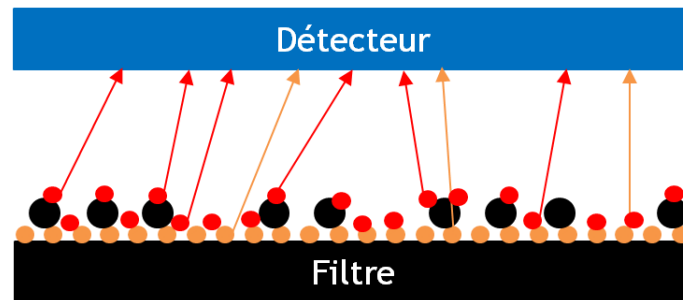


Figure 73 : Configuration du dépôt d'aérosol non-radioactifs de $DE_{vMM} < 10 \mu\text{m}$ lorsque $N_{\text{moy}} \leq 1$. Les disques et flèche oranges représentent respectivement les aérosols radioactifs naturels accumulés en phase une mais qui sont devenus moins radioactifs, due à la période radioactive courte de 184,3 secondes pour le ^{218}Po et de 162,3 μs pour le ^{214}Po . Les disques noirs représentent les aérosols non-radioactifs rapidement accumulés en phase deux. Les disques rouges représentent les nouveaux aérosols radioactifs naturels accumulés en phase deux.

❖ $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ et $N_{\text{moy}} > 2$ - figure 74 :

D'une part, les nouveaux aérosols radioactifs sont essentiellement collectés en surface du dépôt formé par les aérosols non-radioactifs, d'autre part, les aérosols radioactifs sous la structure sont de moins en moins radioactifs. Effectivement, ils décroissent selon une exponentielle de période 184,3 secondes et donc contribuent de moins en moins au comptage mesuré par le CAM. Ces deux effets cumulés expliquent à la fois la ré-augmentation du comptage dans ROI3 et la diminution des comptages dans ROI2 et ROI1. Effectivement, l'absorption en énergie est moindre et donc les particules α , issues du ^{218}Po et ^{214}Po , sont mesurées à nouveau dans les ROI dédiées. La mesure nucléaire est *in fine* moins dégradée.

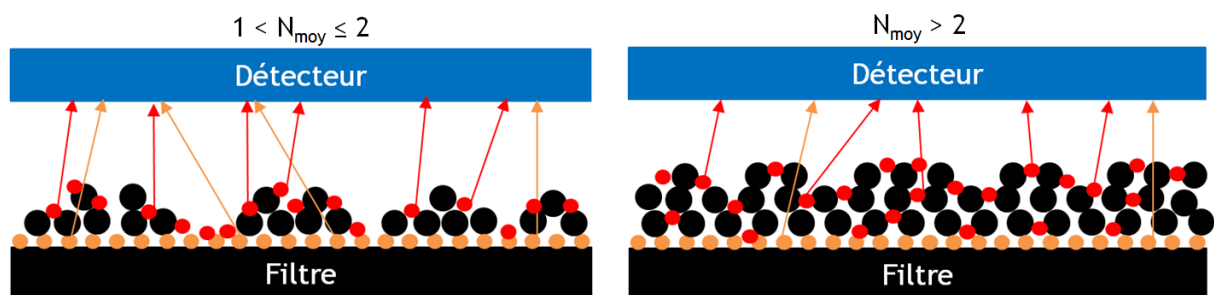


Figure 74 : Même légende qu'à la figure 73 mais pour les configurations $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ (à gauche) et $N_{\text{moy}} > 2$ (à droite)

Finalement, un dépôt d'aérosols non-radioactifs sur le filtre du CAM dont le DE_{vMM} est inférieur à $10 \mu\text{m}$ ne conduit, à termes, pas à une mesure nucléaire biaisée. Les aérosols radioactifs naturels sont certes collectés selon un profil de pénétration exponentielle dans la structure mais ils sont essentiellement collectés en surface de celle-ci (voir profil de pénétration à la figure 69). Ainsi, l'absorption en énergie reste peu significative et les particules α , issues du ^{218}Po et ^{214}Po , sont

mesurées par le CAM dans la ROI2 et ROI3 respectivement. Le comptage dans ROI1 n'est, de ce fait, pas affecté, le bruit de fond reste constant et faible, proche de zéro.

Évolution de la mesure nucléaire avec les aérosols non-radioactifs C et D : $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$

Temps $t_0 + 30$:

- ❖ $N_{\text{moy}} \leq 1$ - **figure 75** : associés aux expériences numérotées : C-P2-(E1 à E8) et D-P2-(E1 à E16)

Au vu de la granulométrie des aérosols, qui est importante, le volume occupé par les particules collectées est supérieur à celui qu'occupe des particules de plus petites tailles pour une même masse. De ce fait, une proportion plus importante de particules α peut traverser la matière sur une épaisseur moyenne équivalente, également plus grande, avant d'atteindre le détecteur. Dans le tableau 22, sont reportées les énergies moyennes transférées par les particules α , issues du ^{214}Po et du ^{218}Po , dans une épaisseur moyenne équivalente d'un maximum de $10 \mu\text{m}$ pour l'aérosol C ($\rho_{\text{app}} = 1,85 \text{ g.cm}^{-3}$) et de $13 \mu\text{m}$ pour l'aérosol D ($\rho_{\text{app}} = 2,14 \text{ g.cm}^{-3}$) dans cette configuration $N_{\text{moy}} \leq 1$. L'énergie transférée est importante ce qui explique à la fois la diminution du comptage dans ROI3 et l'augmentation dans ROI2 et ROI1 bien que la structure ne soit pas à plusieurs niveaux. Toutefois, la supposition d'une structure homogène dans cette situation est limitée. Effectivement, d'une part, l'ensemble des particules α ne traverse pas de telles épaisseurs et d'autre part, une proportion des particules α ne traverse pas du tout le dépôt d'aérosols non-radioactifs. Ainsi, seule une proportion des particules α est mesurée avec une énergie dégradée. Mais cette proportion aussi faible soit-elle est suffisante pour conduire à une émission d'alarme de type faux positif.

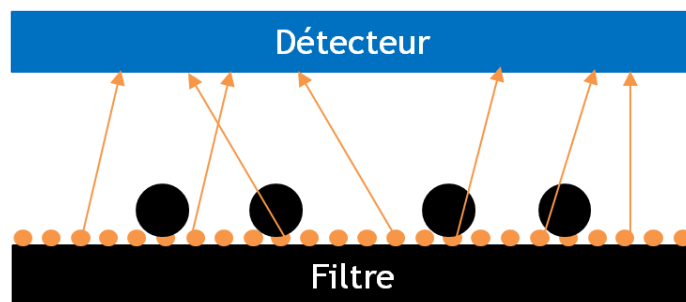


Figure 75 : Légende identique à celle de la figure 70. En revanche ici les aérosols non-radioactifs ont un DE_{VMM} supérieur à $10 \mu\text{m}$

Tableau 22 : Énergies α moyennes transférées par les particules issues des désintégrations ^{218}Po et ^{214}Po dans les structures granulaires constituées de particules C et D en configuration $N_{\text{moy}} \leq 1$. Les valeurs entre crochets correspondent aux énergies moyennes de ces particules α qui seraient mesurées par le CAM

	Énergie α moyenne transférée (keV)	
	Dépôt de particules C ($E_{\text{moy}} = 10 \mu\text{m}$)	Dépôt de particules D ($E_{\text{moy}} = 13 \mu\text{m}$)
^{218}Po	1260 [3575]	1990 [2845]
^{214}Po	1051 [5619]	1627 [5043]

- ❖ $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ - **figure 76** : associé aux expériences numérotées : C - P2 - (E9 à E14)

Étant donné une structure plus « complète », la diminution des comptages dans ROI3 et l'augmentation de ceux mesurés dans ROI2 et ROI1 s'interprètent comme précédemment mais avec une intensité plus grande. Cette intensité plus grande est directement corrélée à la

proportion des particules α qui traverse la matière qui est d'autant plus grande dans cette configuration.

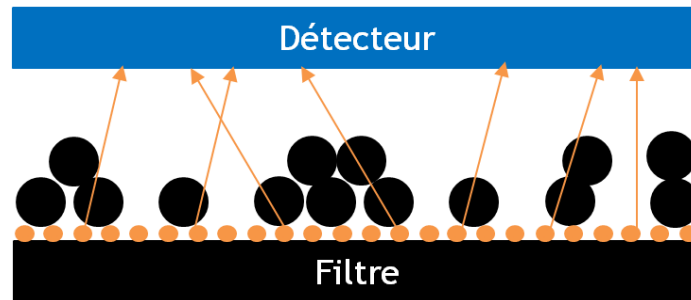


Figure 76 : Légende identique à celle de la figure 70 avec un dépôt d'aérosols non-radioactifs de $DE_{\nu MM} > 10 \mu m$ et de configuration $1 < N_{moy} \leq 2$

Finalement, une accumulation rapide d'une faible masse d'aérosols non-radioactifs, environ 2 mg, de $DE_{\nu MM}$ supérieur à $10 \mu m$ est suffisante pour conduire à une dégradation importante de l'énergie des particules α qui traversent le dépôt, lequel est éparse sur le filtre du CAM. Cette dégradation importante d'énergie, d'une faible proportion de particules α qui traverse le dépôt, engendre l'augmentation du comptage mesuré dans ROI1 lequel conduit à une émission d'alarme de type faux positif.

Temps $t_0 + 90$:

❖ $1 < N_{moy} \leq 2$ et $N_{moy} > 2$ - figure 77 :

Des tendances similaires, au cas où $DE_{\nu MM} < 10 \mu m$, de retours aux comptages à l'équilibre sont mesurées. Toutefois, ces retours à l'équilibre ont des cinétiques plus lentes. Effectivement, d'une part, les dépôts pour les masses accumulées ne sont pas constitués de plusieurs couches et d'autre part, le profil de pénétration pour des structures constituées de particules dont le $DE_{\nu MM}$ est supérieur à $10 \mu m$ est favorable à une pénétration en profondeur vis-à-vis des aérosols radioactifs naturels. Ces deux composantes réunies font que les nouveaux aérosols radioactifs sont majoritairement collectés au même niveau que les aérosols radioactifs naturels, lesquels étaient déjà présents avant l'accumulation de la masse d'aérosols non-radioactifs. Ainsi, la dégradation de l'énergie des particules α de ces nouveaux aérosols radioactifs naturels est toujours importante mais moindre toutefois. Effectivement, ceci s'interprète par la décroissance radioactive des aérosols radioactifs naturels qui sont directement sous les aérosols non-radioactifs, bien que le dépôt soit essentiellement épars. Ainsi, la mesure des particules α issues du ^{214}Po et ^{218}Po dans les ROI dédiées est de plus en plus favorable.

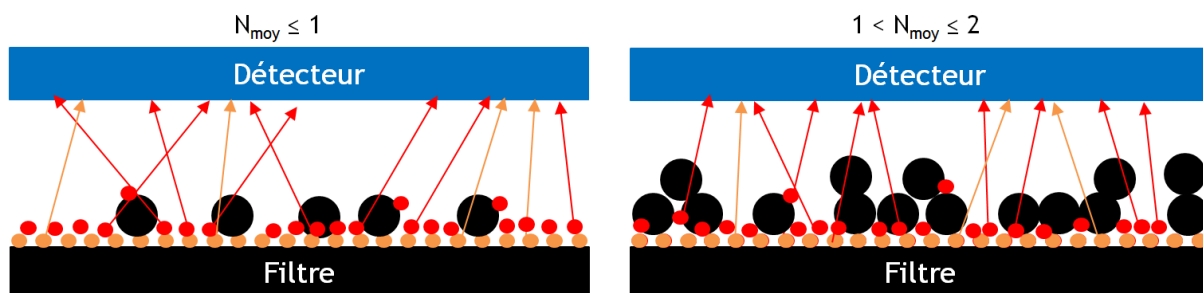


Figure 77 : Même légende qu'à la figure 73 mais pour des aérosols non-radioactifs de $DE_{\nu MM}$ supérieur à $10 \mu m$ et pour une configuration $N_{moy} < 1$ (à gauche) et $1 < N_{moy} \leq 2$ (à droite)

En conséquence, l'accumulation en masse d'aérosols non-radioactifs dont le $DE_{\gamma MM}$ est supérieur à $10 \mu m$ conduit à dégrader significativement la mesure nucléaire effectuée par le CAM et ce même pour des masses faibles. Le profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels dans une structure formée de particules non radioactives présentant un $DE_{\gamma MM} > 10 \mu m$, est défavorable pour la mesure nucléaire. Ainsi, la mesure nucléaire est toujours dégradée lorsque le CAM est soumis à des aérosols non-radioactifs de cette importante granulométrie. De plus, la dégradation de la mesure est persistante tant que le dépôt formé par ces aérosols non-radioactifs est présent sur le filtre du CAM contrairement au cas où $DE_{\gamma MM} < 10 \mu m$.

III.2.3 Évolution de la limite de détection du CAM : interprétation

On montre dans cette section ce qu'implique la présence d'aérosols non-radioactifs, sur le filtre du CAM, sur la mesure nucléaire. Sur un même graphique (présenté ci-après) sont confrontés d'une part, l'évolution de la LD calculée avec K_{12} actuel égal à 0,09 (triangles verts), la LD vraie (carrés bleus), le comptage brut mesuré par le CAM dans ROI1 (croix noires) et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge).

Précédemment, nous avons mis en évidence que le comportement du CAM est corrélé à la fois à la masse et à la granulométrie des aérosols non-radioactifs accumulés sur le filtre. Ainsi, on présente les résultats par $DE_{\gamma MM}$, inférieur à $10 \mu m$ (A et B) et supérieur à $10 \mu m$ (C et D) et par configuration de dépôt, soit $N_{moy} \leq 1$, $1 < N_{moy} \leq 2$, $N_{moy} > 2$.

Évolution de la LD et du comptage brut lorsque le CAM est soumis à des aérosols non-radioactifs de $DE_{\gamma MM}$ inférieur à $10 \mu m$

❖ $N_{moy} \leq 1$ - figure 78 :

La masse d'aérosols non-radioactifs de $DE_{\gamma MM} < 10 \mu m$ accumulée sur le filtre du CAM ne conduit pas à une dégradation de la mesure nucléaire effectuée par le CAM. Effectivement, le comptage brut dans ROI1 (étant uniquement le bruit de fond) n'est pas augmenté. La LD estimée par le CAM (LD calculée avec K_{12} égal à 0,09) est d'une part, toujours au-dessus de ce bruit de fond et d'autre part, n'augmente pas entre avant et après la brève génération d'aérosols non-radioactifs. Qui plus est, la LD estimée est proche de la LD vraie ce qui démontre que dans cette condition le paramètre de traîne en énergie K_{12} est adapté pour estimer le bruit de fond dans ROI1 et ce sur toute la durée de la mesure. L'ensemble de ces éléments cumulés démontre également que dans cette condition, le CAM est capable d'assurer la radioprotection des travailleurs.

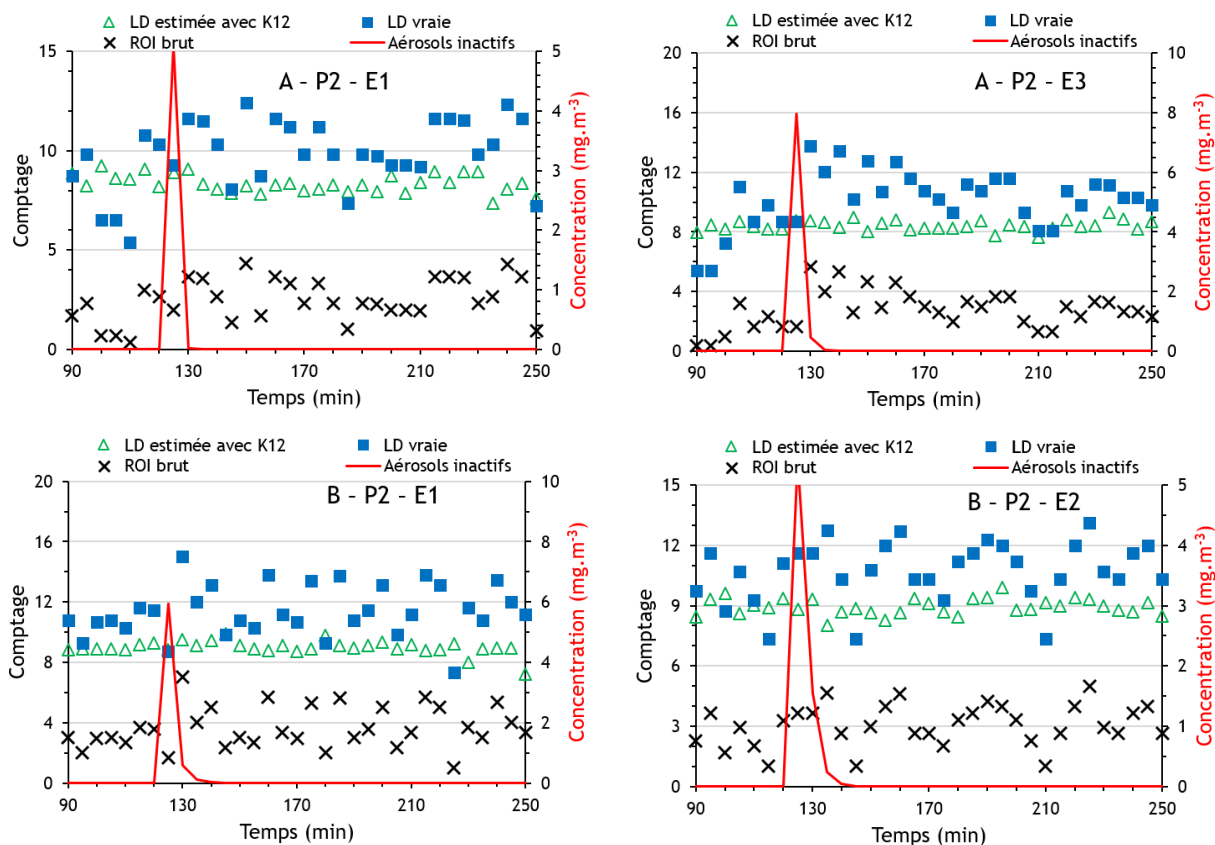


Figure 78 : Graphiques illustrant d'une part, l'évolution de la LD calculée avec K_{12} (triangles verts), de la LD vraie (carrés bleus), calculée avec le comptage brut mesuré dans ROI1 (uniquement lié au bruit de fond) et du comptage brut dans ROI1 (croix noires) en fonction de temps et d'autre part, l'évolution de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge). La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $N_{moy} \leq 1$

❖ **1 < $N_{moy} \leq 2$ - figure 79 :**

Cette configuration, on l'a vu précédemment, commence à engendrer un effet sur la mesure nucléaire effectuée par le CAM. Le bruit de fond dans ROI1 augmente rapidement juste après la brève génération d'aérosols non-radioactifs puis diminue également rapidement. En revanche, la LD estimée par le CAM, elle, n'augmente pas. D'après ce résultat, on déduit que le CAM assure dans ces conditions, où le bruit de fond dans ROI1 est pourtant augmenté, la radioprotection des travailleurs à un même niveau que dans le cas précédent où l'accumulation en masse d'aérosol non-radioactifs conduit à une configuration $N_{moy} \leq 1$. Ceci n'est physiquement pas possible, étant donné la corrélation qu'il y a entre la LD et le bruit de fond. Une augmentation de bruit de fond doit nécessairement conduire à une augmentation de LD (relation 66 en annexe 3). C'est ce que montre d'ailleurs l'évolution de la LD vraie.

On constate alors un écart, notamment juste après la brève génération d'aérosols non-radioactifs, entre la LD calculée avec K_{12} et la LD vraie. Cet écart met en avant que le paramètre de traîne K_{12} n'est pas adapté à des situations où une masse d'aérosols non-radioactifs de $DE_{vMM} < 10 \mu m$ est rapidement accumulée sur le filtre du CAM, laquelle forme une configuration où $1 < N_{moy} \leq 2$. Effectivement, le bruit de fond dans ROI1 n'est pas correctement estimé ce qui n'engendre aucune évolution de la LD du CAM, laquelle est même inférieure au bruit de fond réel dans ROI1. Ceci a conduit à l'émission d'alarme de type faux positif par le CAM pour les essais numéroté B - P2 - E6 et B - P2 - E8.

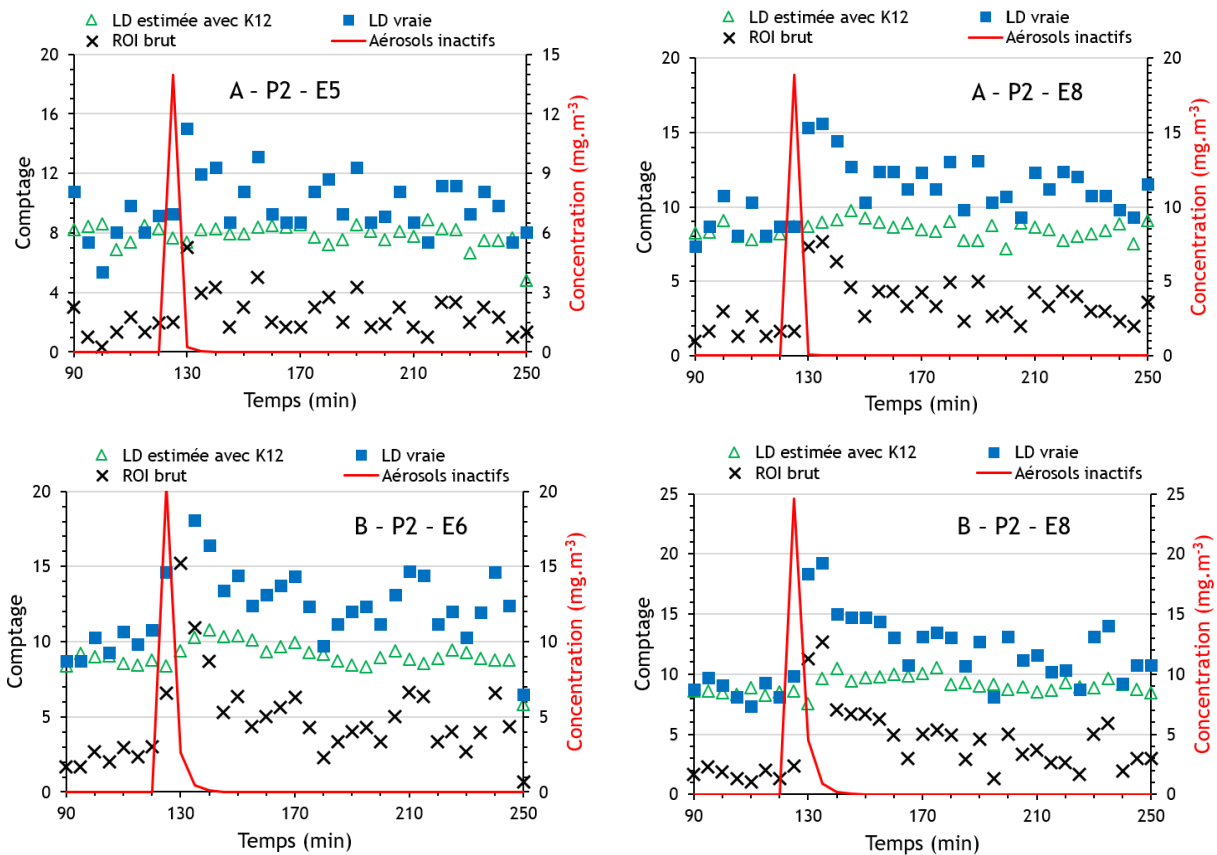


Figure 79 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $1 < N_{moy} \leq 2$

❖ **$N_{moy} > 2$ - figure 80 :**

Dans cette configuration, où la dégradation de la mesure nucléaire est plus importante, la LD estimée avec K_{12} augmente après la génération brève d'aérosols non-radioactifs. Toutefois, cette augmentation est très peu significative et le bruit de fond réel dans ROI1 est toujours supérieur à la LD estimée. À nouveau le résultat, notamment l'écart entre la LD vraie et estimée, qui est supérieur au cas précédent, montre que le paramètre K_{12} n'est pas adapté à la situation où cette fois-ci la configuration du dépôt conduit rapidement à $N_{moy} > 2$. Une alarme de type faux positif a été émise à chacun de ces essais.

Remarque : sur le résultat reporté au graphique en bas à droite, on constate que la LD vraie est en-dessous de la valeur du bruit de fond dans ROI1 juste après la génération brève d'aérosols non-radioactifs. Ceci met en avant une difficulté supplémentaire. Effectivement, la masse d'aérosols non-radioactifs rapidement accumulée sur le filtre du CAM est telle que la mesure nucléaire est significativement dégradée. Ceci, conduit à une augmentation importante du bruit de fond dans ROI1, lequel est toujours supérieur à la LD (pour le paramètre $k_{1-\alpha} = 1,645$) dès lors que le comptage est supérieur à 27 (voir détail en annexe 3).

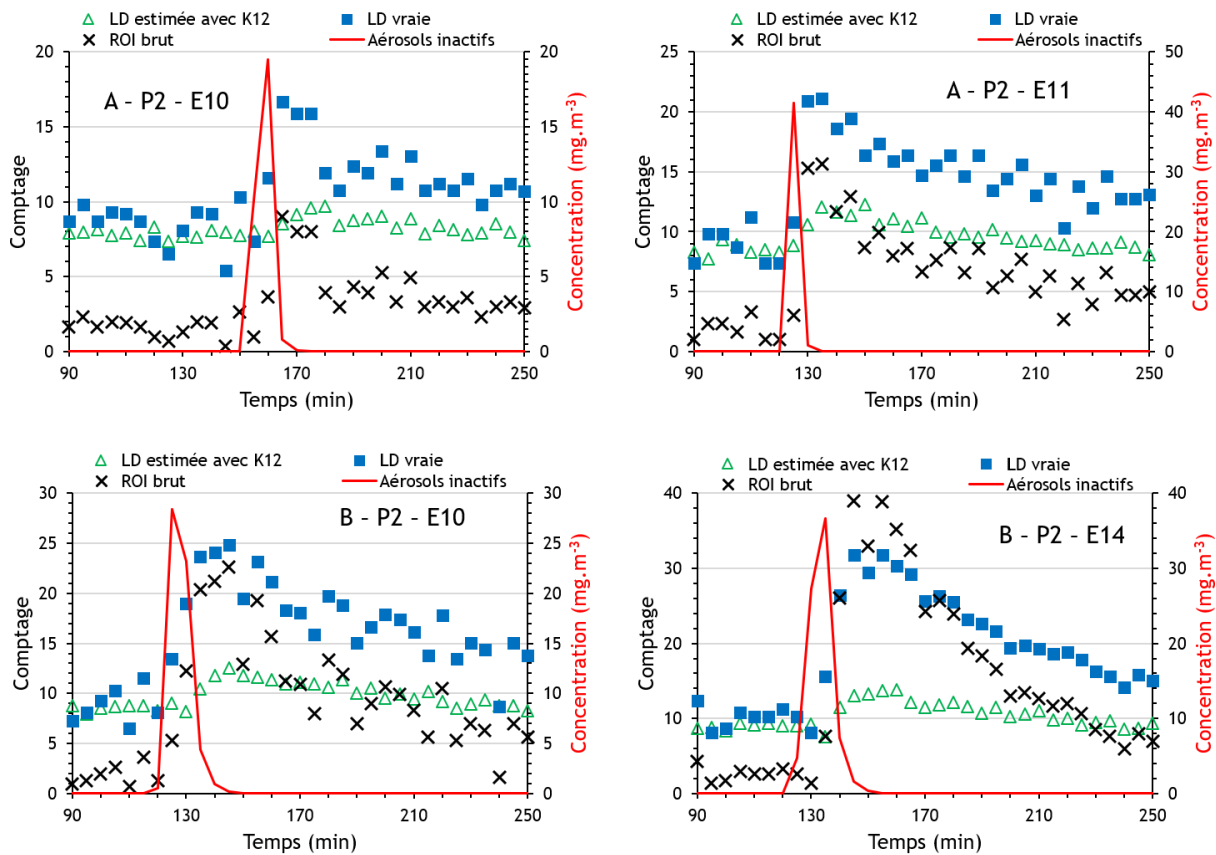


Figure 80 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, A et B, est pour ces essais de $N_{moy} > 2$

De ces résultats, les éléments suivants sont mis en évidence et permettent d'expliquer la raison pour laquelle le CAM déclenche une alarme de type faux positif dans certaines situations.

- Le paramètre de traîne K_{12} permet une estimation adaptée du bruit de fond dans ROI1 lorsque le dépôt formé sur le filtre du CAM est épars, soit $N_{moy} \leq 1$. Dans cette configuration, la LD estimée (en utilisant K_{12}) par le CAM est stable et constante, ainsi la radioprotection des travailleurs est assurée à un niveau identique à celui en conditions normatives IEC.
- Le paramètre K_{12} ne permet plus une estimation adaptée du bruit de fond lorsque la configuration du dépôt rapidement accumulé tend vers une structure multicouche, soit pour $1 < N_{moy} \leq 2$ et $N_{moy} > 2$. Effectivement, la LD estimée par le CAM reste basse alors que le bruit de fond réel dans ROI1 augmente car l'absorption en énergie des particules α est significative pour ces configurations de dépôt d'aérosols non-radioactifs. Ceci, signifie que le CAM garde une sensibilité aussi basse que celle atteignable en absence d'aérosols non-radioactifs. Toutefois, le bruit de fond étant réellement plus élevé, une émission d'alarme de type faux positif est inévitable dans cette condition.
- Au-delà d'une certaine masse rapide accumulée, soit environ 13 mg en dix minutes, l'augmentation du bruit de fond est telle que le dépassement de la limite de détection vraie est inévitable (avec $k_{1-\alpha} = 1,645$). Une autre solution doit être mise en place pour ces cas d'accumulation importante de masse d'aérosols non-radioactifs, comme par exemple la diminution du risque de se tromper dans la décision, soit augmenter la valeur de $k_{1-\alpha}$.

Évolution de la LD et du comptage brut lorsque le CAM est soumis à des aérosols non-radioactifs de DE_{VM} supérieur à $10 \mu m$

❖ $N_{moy} \leq 1$ - figure 81 :

La masse d'aérosols non-radioactifs de $DE_{VM} > 10 \mu m$ accumulée sur le filtre du CAM conduit à dégrader la mesure nucléaire effectuée par le CAM. Le comptage brut dans ROI1, qui correspond au bruit de fond, est augmenté après la génération d'aérosol et ce jusqu'à la fin de l'expérience. La LD estimée par le CAM n'est, elle, pas augmentée comme elle le devrait au regard de la LD vraie. Ainsi, le bruit de fond dépasse la LD estimée et conduit à un déclenchement d'alarme de type faux positif. Ce résultat démontre que le paramètre de traîne K_{12} n'est pas adaptée pour estimer le réel bruit de fond dans ROI1 lorsque le CAM est confronté à une génération brève d'aérosols non-radioactifs de $DE_{VM} > 10 \mu m$, laquelle engendre une configuration de dépôt épars, soit $N_{moy} \leq 1$.

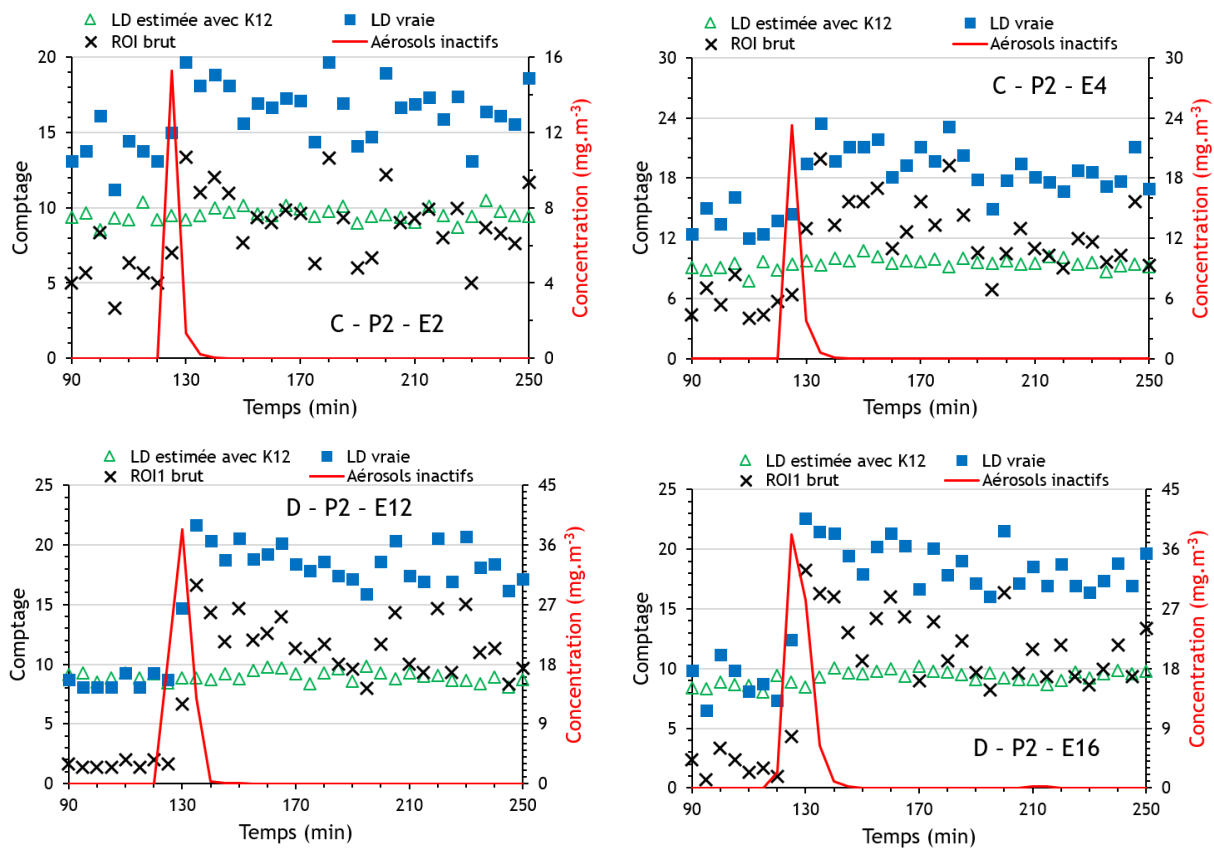


Figure 81 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, C et D, est pour ces essais de $N_{moy} \leq 1$

❖ $1 < N_{moy} \leq 2$ - figure 82 :

La dégradation de la mesure nucléaire est telle que le bruit de fond dans ROI1 est fortement augmenté, lequel conduit à dépasser d'une part, la LD estimée par le CAM qui reste constante et d'autre part la LD vraie qui tient pourtant compte du réel bruit de fond. Effectivement, la limite de l'utilisation de la LD, laquelle a été mise en avant précédemment, est à nouveau constatée ici mais pour une configuration de dépôt moins fournie que le cas où DE_{VM} est inférieur à $10 \mu m$

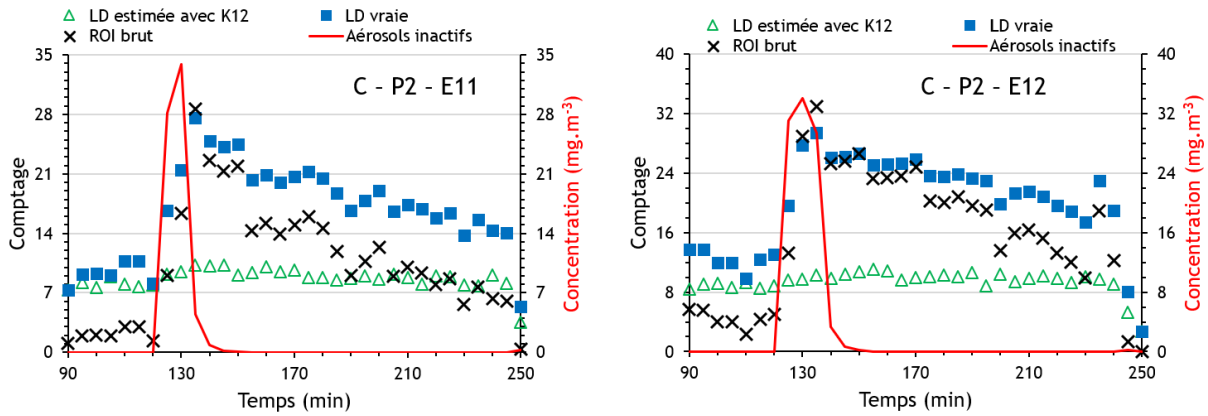


Figure 82 : La légende est la même qu'à la figure 78. La configuration des dépôts d'aérosols non-radioactifs, C, est pour ces essais de $1 < N_{moy} \leq 2$

Lorsque le CAM échantillonne des aérosols non-radioactifs de DE_{VM} supérieur à $10 \mu\text{m}$, l'augmentation du bruit de fond dans ROI1 est quasiment systématique et ce même pour des faibles masses accumulées, soit au moins à partir de 2 mg.

Finalement, l'ensemble de ces résultats mettent en avant la nécessité de déterminer un paramètre de traîne permettant de mieux estimer le bruit de fond dans ROI1, afin qu'au moins la LD estimée par le CAM suivent les variations de bruit de fond. Toutefois, une augmentation de LD estimée par le CAM signifie nécessairement une baisse du niveau dans la radioprotection des travailleurs. Effectivement, si le bruit de fond augmente il est tout à fait logique que le CAM ne puisse plus détecter d'aussi bas niveau de radioactivité artificielle que lorsque le bruit de fond est bas.

III.2.4 Caractérisation de l'évolution des paramètres de traîne des pics ^{214}Po et ^{218}Po

Les traînes en énergies des pics ^{214}Po et ^{218}Po sont caractérisées, plus spécifiquement leur contribution au comptage dans les ROI (de plus basses énergies) qui ne leur sont pas dédiées. Toutefois, la caractérisation n'a pu être effectuée que sur une certaine partie des spectres en énergies, soit pour l'aérosol A jusqu'à l'essai A - P2 - E9, pour l'aérosol B jusqu'à B - P2 - E6, et l'ensemble des spectres pour les aérosols C et D.

Effectivement, le modèle mathématique utilisé pour décrire les traînes en énergies des pics α est conçu pour des spectres bien résolus avec une traîne descriptible par une exponentielle décroissante. Or, certains spectres en énergies α mesurés présentent des spécificités en fonction de la masse et de la granulométrie des aérosols non-radioactifs collectés, lesquelles ont été discutées à la section III.2.1. Ces spécificités ne peuvent pas être décrites par le modèle mathématique utilisé (les autres disponibles dans la littérature ne le permettent pas non plus pour les mêmes raisons).

En appliquant la démarche présentée à la section III.1.5, on détermine d'une part, la contribution de la traîne en énergies du seul pic ^{214}Po au comptage à la fois dans ROI2 et ROI1 et d'autre part, la contribution de la traîne en énergies du seul pic ^{218}Po au comptage dans ROI1. Ces contributions sont respectivement caractérisées par les paramètres K_{23} calculé (triangles bleus), K_{13} calculé (disques rouges) et K_{12} calculé (carrés noirs). Les résultats obtenus pour les aérosols non-radioactifs dénommés A, B, C et D sont reportés à la figure 83, soient pour l'aérosol A sur le graphique en haut à gauche, pour l'aérosol B sur le graphique en haut à droite, pour l'aérosol C sur le graphique en bas à gauche et pour l'aérosol D sur le graphique en bas à droite. Sur chaque graphique, les barres horizontales et verticales correspondent respectivement aux incertitudes calculées sur la masse de particules pesée avec la balance de précision et aux incertitudes propagées sur la valeur du paramètre de traîne.

L'ensemble des résultats montrent des corrélations positives des paramètres K_{12} calculé, K_{23} calculé et K_{13} calculé avec la masse de l'aérosol non-radioactif accumulé sur le filtre du CAM. Ainsi, on constate que le bruit de fond dans ROI1 n'est pas uniquement dû à la traîne en énergie du pic ^{218}Po . En effet, en fonction de la masse et de la granulométrie des aérosols non-radioactifs prélevés, la traîne en énergie du pic ^{214}Po contribue non seulement à augmenter le bruit de fond dans ROI2 mais également dans ROI1 en plus faible proportion. Pour une granulométrie de DE_{VMM} supérieur à $10\ \mu\text{m}$ ces dernières contributions sont d'environ un ordre de grandeur plus grand que lorsque la granulométrie est inférieure à $10\ \mu\text{m}$. Toutefois, dans les deux cas ces contributions restent faibles. Ceci nous amène à penser que les paramètres de traîne K_{23} et K_{13} peuvent être négligés dans un premier temps et que seul le paramètre K_{12} calculé doit être considéré pour estimer correctement le bruit de fond dans ROI1.

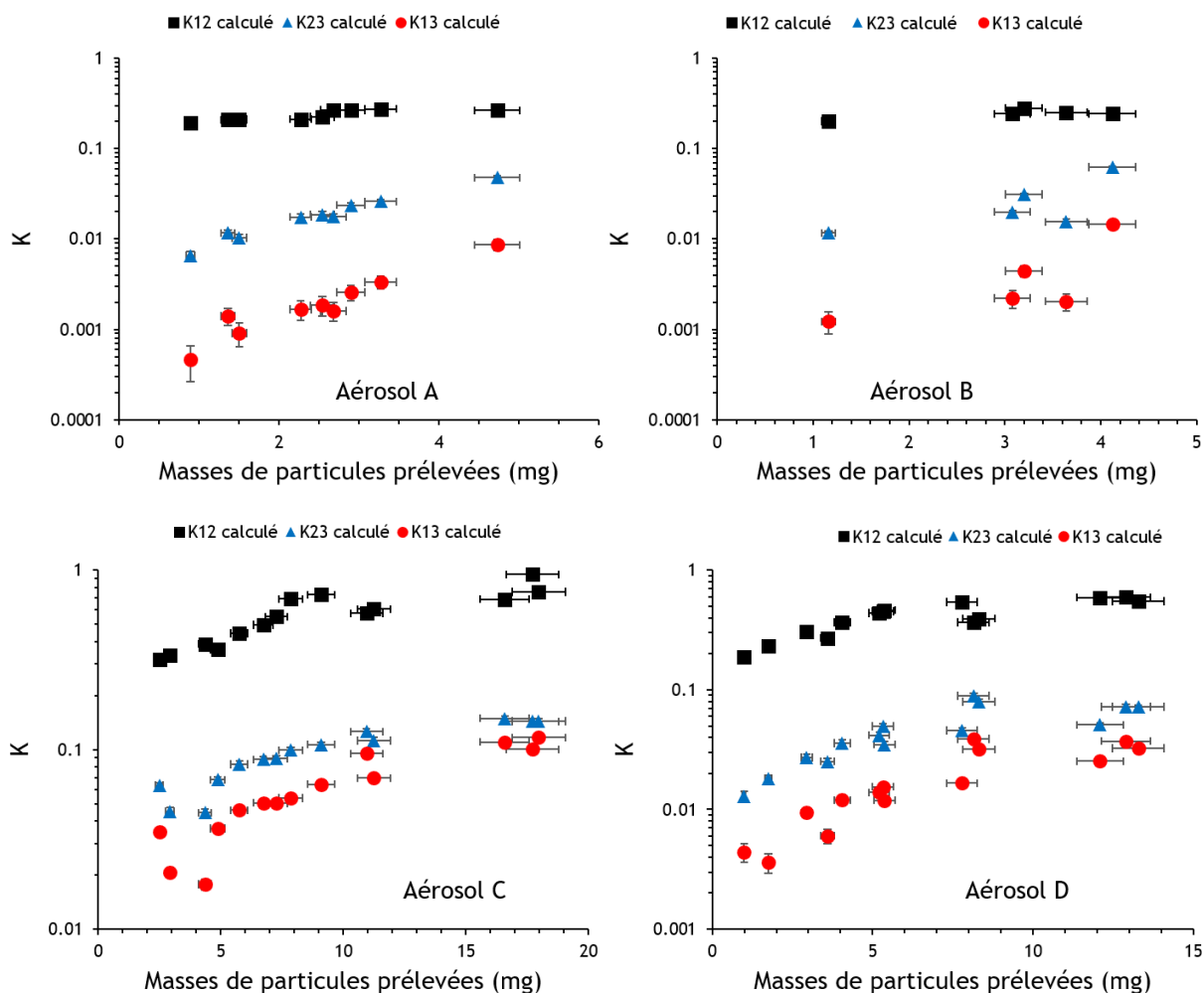


Figure 83 : Évolutions des paramètres de traînes K_{12} calculé (carrés noirs), K_{23} calculé (triangles bleus) et K_{13} calculé (disques rouges) en fonction de la masse de particules prélevée pour l'aérosol A (graphique en haut à gauche), l'aérosol B (graphique en haut à droite), l'aérosol C (graphique en bas à gauche) et l'aérosol D (graphique en bas à droite)

Toutefois, ces paramètres ont été calculés à partir de spectres en énergies α mesurés sur deux heures. Les valeurs déterminées sont alors logiquement quelque peu atténuées car moyennées sur deux heures. Ainsi, les variations « rapides » que nous avons décrites précédemment, lesquelles ont lieu pour rappel d'une part, lors de la période $t_0 + 30$ et d'autre part, sur la période $t_{30} + 90$, peuvent être « masquées ».

Afin de nous assurer que seul le paramètre K_{12} calculé à partir d'un spectre mesuré sur deux heures de prélèvement peut être utilisé pour estimer le bruit de fond dans ROI1, nous l'avons comparé à l'évolution du paramètre K vrai. Ce dernier est calculé sur des pas de temps de 30 minutes en utilisant les mesures brutes du CAM dans ROI1 et ROI2. L'ensemble des résultats de comparaison sont reportés en annexe 6.

Les résultats confirment d'une part, l'effet non significatif des traînes K_{23} calculés et K_{13} calculés et d'autre part, la bonne utilisation du seul paramètre K_{12} calculé (moyenné sur deux heures) pour estimer le réel bruit de fond dans ROI1. Ainsi, ces résultats expérimentaux ont permis de créer et d'alimenter de manière conséquente une base de données, laquelle regroupe les paramètres d'entrées du CAM, soient la granulométrie des aérosols non-radioactifs et leur concentration et le paramètre de traîne à utiliser pour estimer le bruit de fond dans ROI1 (tableau 23).

Tableau 23 : Base de données où des valeurs de paramètre K sont disponibles en fonction de la distribution granulométrique et de la concentration de l'aérosol non-radioactif mesuré par le COP

		Distribution granulométrique de l'aérosol non-radioactif			
		$d_1 \leq d_{50,A} < d_2$	$d_2 \leq d_{50,B} < d_3$...	$d_{N-1} \leq d_{50,N} < d_N$
Concentration	$C_1 \leq C < C_2$	K_{1A}	K_{1B}	...	K_{1N}
	$C_2 \leq C < C_3$	K_{2A}	K_{2B}	...	K_{2N}

	$C_{n-1} \leq C < C_n$	K_{nA}	K_{nB}	...	K_{nN}

Dans la partie qui suit, on présente une amélioration possible de la mesure du CAM en condition atypiques, laquelle utilise la base de données créée.

III.2.5 Amélioration de l'estimation du bruit de fond

Nous avons calculé le bruit de fond dans ROI1 pour chaque expérience en utilisant le paramètre de traîne K_{12} calculé et adapté à la situation à laquelle le CAM est confronté. À partir de ce bruit de fond mieux estimé, nous avons calculé la LD correspondante. Finalement, sur un même graphique on confronte d'une part, l'évolution de la LD calculée avec le paramètre K_{12} adapté (disques bleu) en fonction de la LD vraie et d'autre part, la LD actuellement estimée par le CAM avec K_{12} égal à 0,09 (triangles rouge) en fonction de la LD vraie.

Les résultats obtenus d'une part, pour les configurations de dépôt $N_{moy} \leq 1$ (figure 84), $1 < N_{moy} \leq 2$ (figure 85) et $N_{moy} > 2$ (figure 86) pour DE_{VMM} inférieur à $10 \mu m$ et d'autre part, pour les configurations $N_{moy} \leq 1$ (figure 87) et $1 < N_{moy} \leq 2$ (figure 88) pour DE_{VMM} supérieur à $10 \mu m$ sont présentés ci-dessous. La ligne discontinue sur les graphiques représente une droite de pente 1 et permet de visualiser rapidement une surestimation ou sous-estimation de la LD estimée lorsque les points lui sont respectivement au-dessus ou en-dessous.

Sur l'ensemble des résultats on met en évidence deux informations :

- la LD calculée avec K_{12} fixe (égal à 0,09) est sous-estimée dès lors que l'accumulation rapide en masse d'aérosols non-radioactifs de $DE_{VMM} < 10 \mu m$ tend à former un dépôt de configuration $1 < N_{moy} \leq 2$ au-dessus d'aérosols radioactifs naturels. Cette sous-estimation va en s'intensifiant à mesure que la masse accumulée d'aérosols non-radioactifs augmente. Pour les aérosols non-radioactifs de $DE_{VMM} > 10 \mu m$, la LD est également sous-estimée et ce même lorsque le dépôt est épars.
- l'amélioration significative de l'estimation de la LD lorsque celle-ci est calculée à partir du paramètre K adapté à la situation à laquelle le CAM est exposée. Effectivement, quelle que

soit la situation d'exposition, la LD estimée en temps réel et en continu par le CAM, avec le paramètre K adapté, est toujours proche de la LD vraie que devrait avoir le CAM.

Évolution de la LD (calculée avec K_{12} actuel et K_{12} adapté) en fonction de la LD vraie du CAM lorsque celui-ci est soumis à des aérosols non-radioactifs de $DE_{\gamma MM}$ inférieur à $10 \mu m$

❖ **$N_{moy} \leq 1$ - figure 84 :**

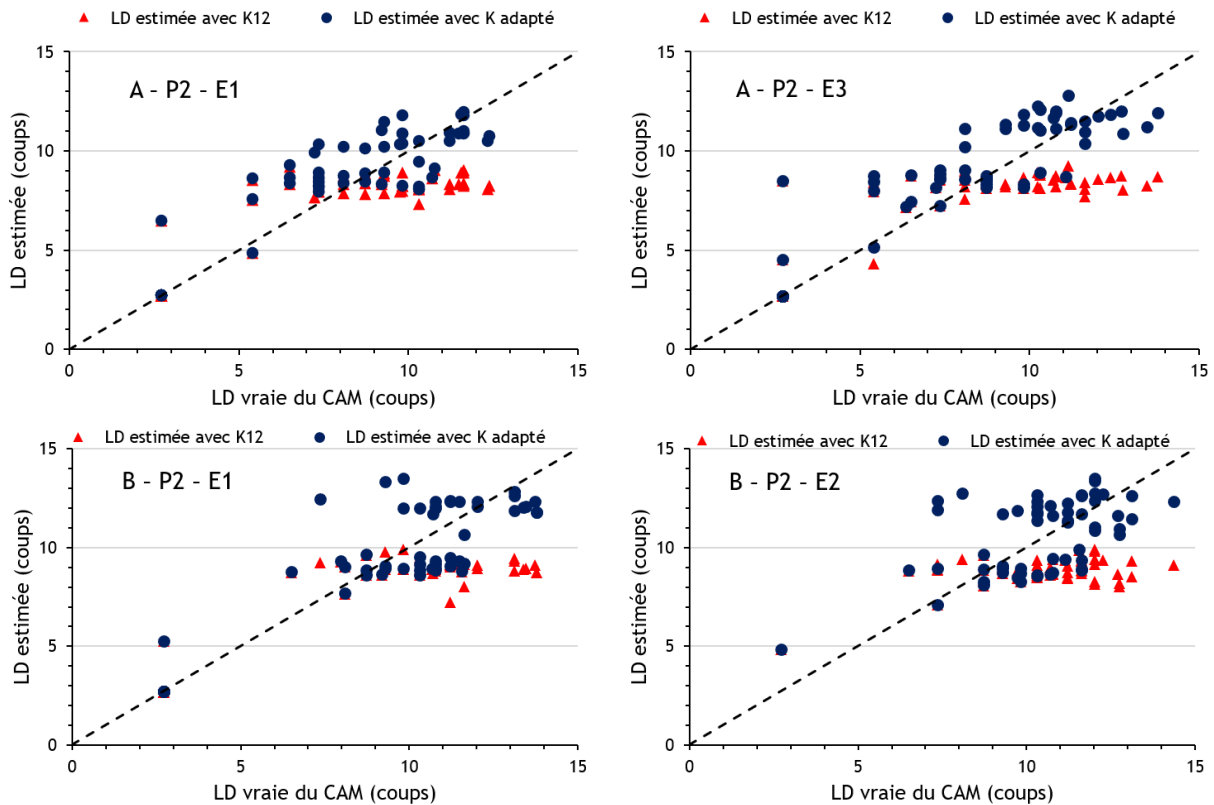


Figure 84 : Évolution des LD calculées avec K_{12} égal à 0,09 (triangles rouges) et K adapté à la situation d'exposition (disques bleus) en fonction de la LD vraie. La ligne discontinue représente une droite de pente 1 et permet de visualiser rapidement une surestimation ou sous-estimation de la LD estimée lorsque les points lui sont respectivement au-dessus ou en-dessous. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{\gamma MM} < 10 \mu m$ et une configuration de dépôt $N_{moy} \leq 1$

❖ $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ - figure 85 :

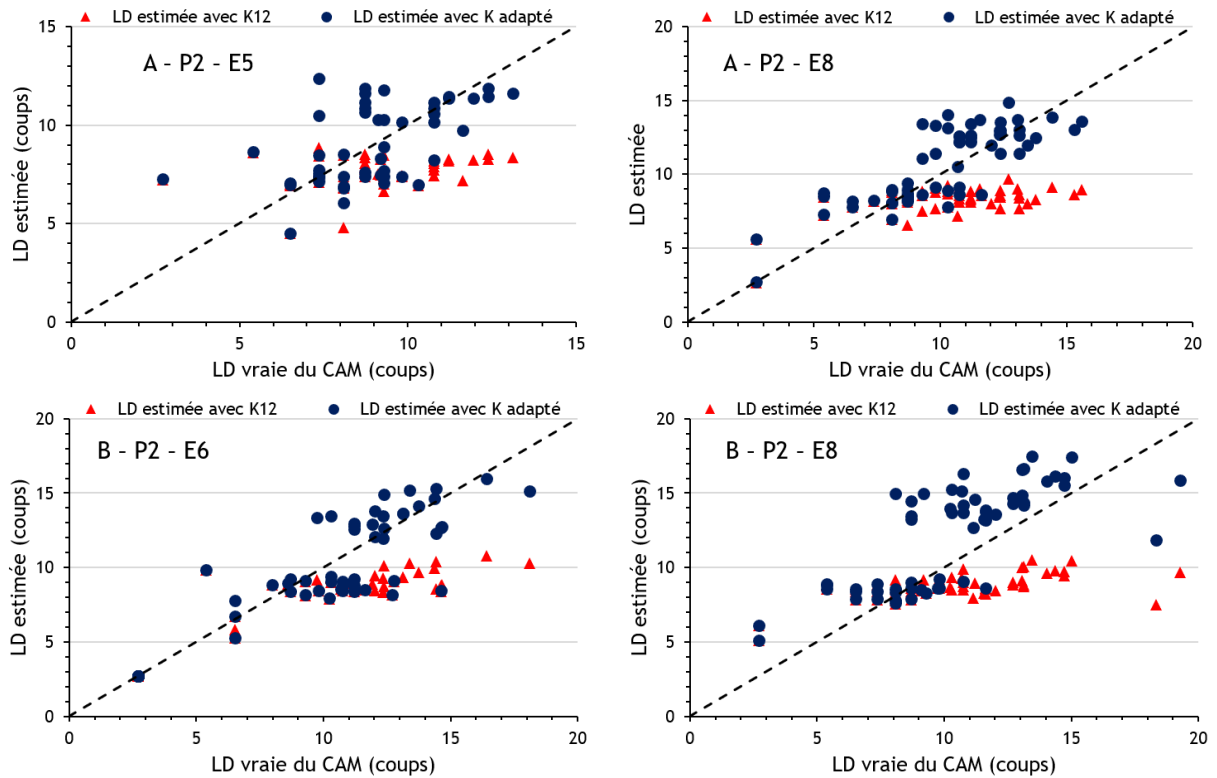


Figure 85 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$

❖ $N_{\text{moy}} > 2$ - figure 86 :

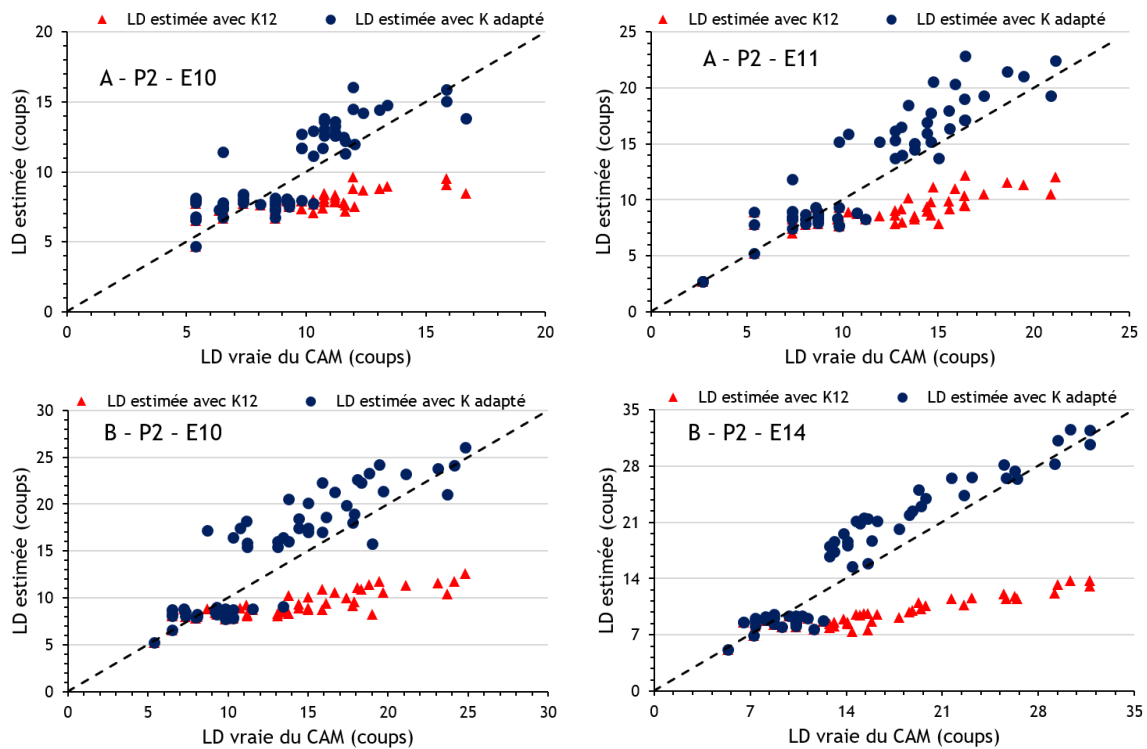


Figure 86 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $N_{\text{moy}} > 2$

Évolution de la LD en fonction de la LD vraie du CAM lorsque celui-ci est soumis à des aérosols non-radioactifs de DE_{VMM} supérieur à $10 \mu\text{m}$

❖ **$N_{\text{moy}} \leq 1$ - figure 87 :**

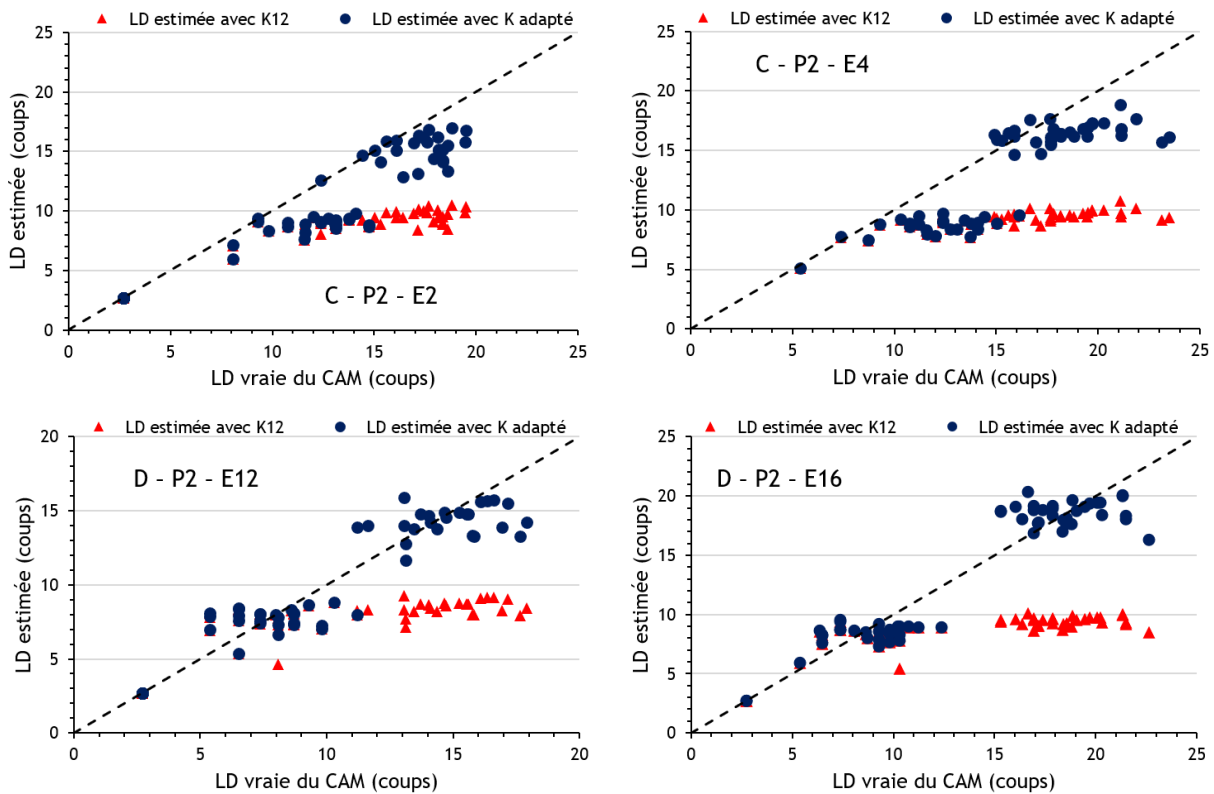


Figure 87 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $N_{\text{moy}} \leq 1$

❖ **$1 < N_{\text{moy}} \leq 2$ - figure 88 :**

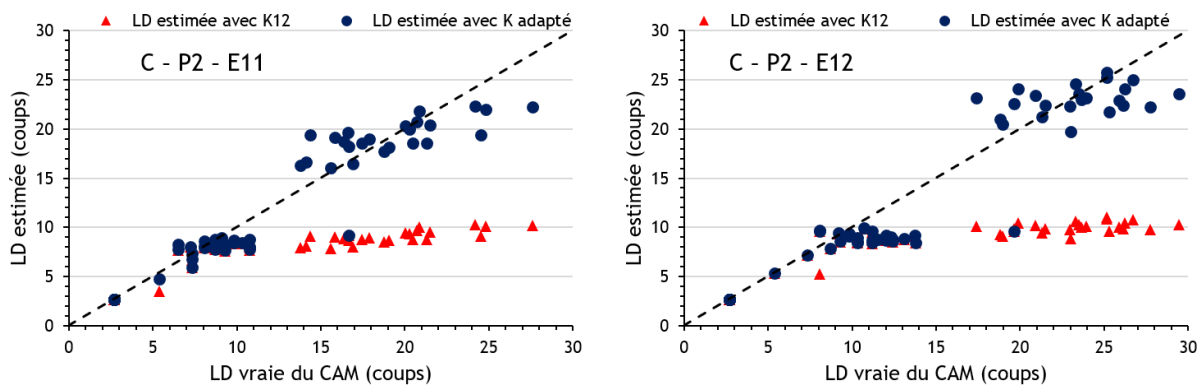


Figure 88 : Légende identique à celle de la figure 84. Résultats obtenus pour les aérosols de $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$ et une configuration de dépôt $1 < N_{\text{moy}} \leq 2$

Finalement, l'ensemble des résultats soulignent la nécessité de considérer à la fois la masse et la granulométrie des aérosols non-radioactifs, lesquels sont échantillonnés comme les aérosols radioactifs naturels mais induisent une absorption significative de l'énergie des particules α . Celle-ci conduit à une augmentation du bruit de fond dans ROI1 qui n'est pas considérée avec le paramètre K_{12} actuellement utilisé. Pour ce faire, nous avons proposé la mise en place d'un système innovant pour améliorer en temps réel et en continu l'estimation du bruit de fond dans ROI1 par le

CAM. Ce système consiste en un analyseur de particules couplé au CAM, permettant alors de considérer en temps réel et en continu les informations liées aux caractéristiques des aérosols non-radioactifs (par l'analyseur de particules) et celles liées aux aérosols radioactifs naturels (par le CAM).

III.3 Prise en compte des caractéristiques des aérosols non-radioactifs pour améliorer les mesures en temps réel et en continu du CAM

III.3.1 Présentation du système innovant

Au vu des corrélations expérimentales déterminées entre les paramètres qui caractérisent d'une part, l'atmosphère d'exposition et d'autre part, la contribution de la traîne en énergie du pic ^{218}Po dans la ROI1, le constat suivant a été mis en avant : il est nécessaire de considérer en temps réel et en continu les caractéristiques des aérosols non-radioactifs, lesquels sont échantillonnés au même titre que les aérosols radioactifs naturels.

Pour ce faire, nous avons proposé la mise en place d'un système innovant, lequel couple d'une part, les mesures d'un analyseur de particules pour obtenir les informations sur les caractéristiques des aérosols non-radioactifs et d'autre part, le CAM qui mesure la radioactivité provenant des aérosols radioactifs collectés sur le filtre. Le principe général de fonctionnement de cet ensemble est schématisé à la figure 89. Le CAM et l'analyseur de particules échantillonnent tous deux en temps réel et en continu l'aérosol ambiant. Le rôle de l'analyseur de particules est de quantifier en temps réel et en continu la granulométrie et la concentration des aérosols non-radioactifs en présence. Ces informations sont prises en compte pour récupérer en temps réel quand nécessaire, dans la base de données, la valeur de K_{12} adaptée à la situation d'exposition réelle. Cette valeur est alors remplacée de la précédente (qui ne correspond plus à la situation), via le microcontrôleur qui permet la communication entre l'analyseur de particules et le CAM, et est utilisée par l'algorithme de calcul du CAM pour estimer le bruit de fond dans ROI1. L'adaptation dynamique de la valeur de K_{12} , qui est fonction de la situation d'exposition réelle du CAM, permet donc, une estimation adaptée de la LD, une compensation adaptée du bruit de fond dans la fenêtre de mesure dédiée aux radionucléides α -artificiels et *in fine* une amélioration de la mesure du CAM en temps réel et en continu.

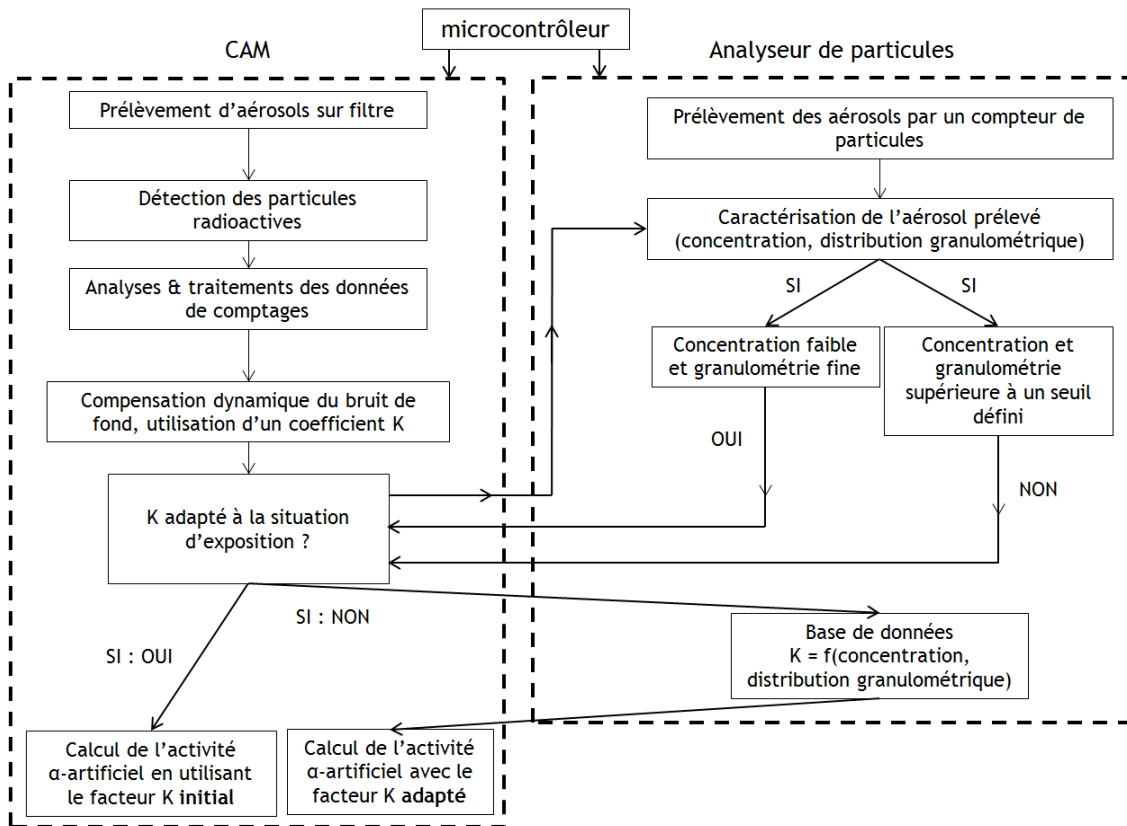


Figure 89 : Principe général de fonctionnement du couplage d'un analyseur en temps réel et en continu de particules non-radioactives et du CAM

Pour la faisabilité, nous avons utilisé un compteur optique de particules, de type Grimm, qui mesure en temps réel à la fois l'évolution de la concentration massique en aérosols et sa distribution granulométrique.

III.3.2 Résultats de l'étude de faisabilité

❖ $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m} : N_{moy} > 2$:

À la figure 90 sont reportés quatre exemples de résultats obtenus avec les aérosols de DE_{VMM} inférieur à $10 \mu\text{m}$ et pour des masses accumulées conduisant à la formation de structure granulaire de $N_{moy} > 2$. Sur chaque graphique sont présentées les évolutions d'une part, de la LD calculée avec K_{12} actuel (égal à 0,09) et avec K_{12} adapté (respectivement en disques noirs et croix violettes), du comptage net dans ROI1 déterminé en utilisant K_{12} actuel et K_{12} adapté (respectivement en triangles verts et en carrés bleus) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge) en fonction du temps.

Les résultats montrent, de manière générale, une l'amélioration significative de l'estimation à la fois de la LD et du comptage net dans ROI1 lorsque le CAM utilise le paramètre K_{12} adapté, lequel est sélectionné dans la base de données en relation avec les mesures effectuées par le COP. Effectivement, la génération d'aérosols non-radioactifs, ayant pour caractéristiques une concentration (et donc en connaissant le débit de prélèvement du CAM, une masse accumulée) et une granulométrie, est connue pour conduire à une élévation de bruit de fond dans ROI1. Ainsi, la LD augmente en conséquence et le comptage net dans ROI1 diminue car l'estimation du bruit de fond est meilleure (qu'avec l'utilisation du paramètre K_{12} actuel). Une émission d'alarme de type faux positif est ainsi évitée mais la radioprotection des travailleurs n'est plus assurée à un niveau identique à celui avant la génération d'aérosols non-radioactifs.

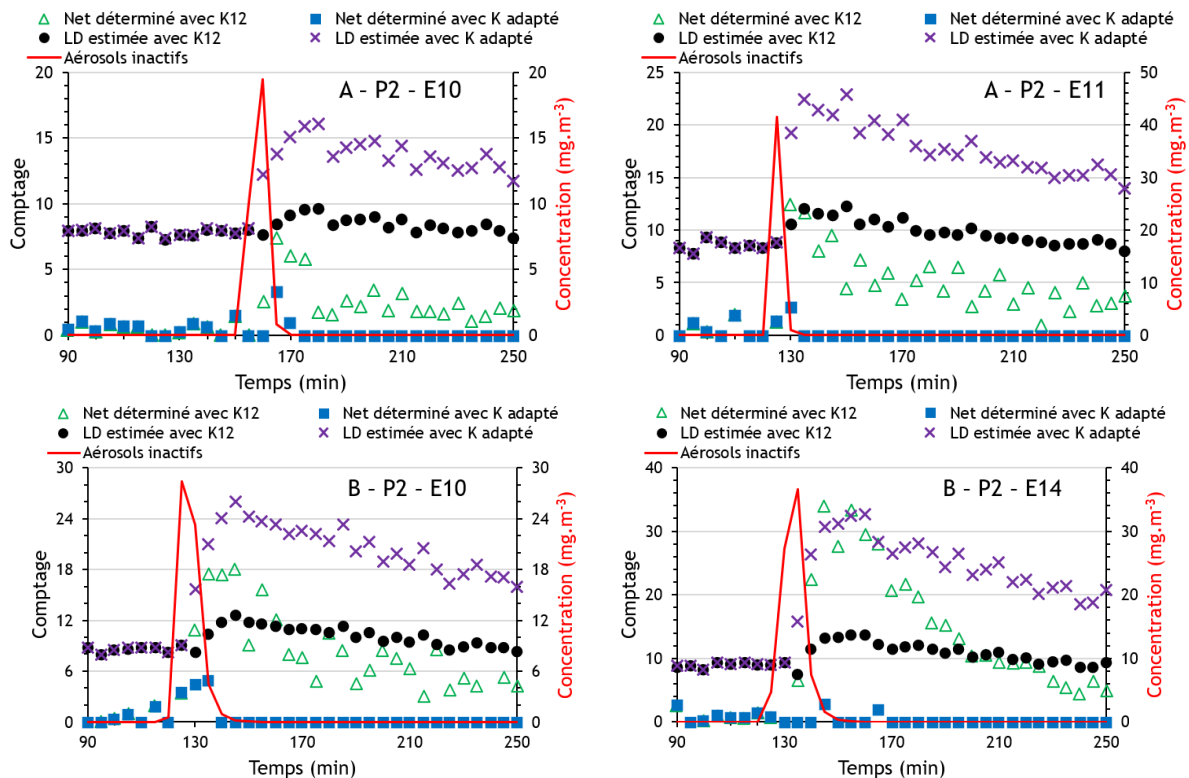


Figure 90 : Évolutions d'une part, de la LD calculée avec K_{12} actuel (égal à 0,09) et avec K_{12} adapté (respectivement en disques noirs et croix violettes), du comptage net dans ROI1 déterminé avec K_{12} actuel et avec K_{12} adapté (respectivement en triangles verts et en carrés bleus) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge) en fonction du temps. Les résultats présentés sont obtenus avec les aérosols inactifs de $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$ et pour une configuration de $N_{moy} > 2$

Sur l'ensemble des résultats avec $DE_{VMM} < 10 \mu\text{m}$, le comptage Net estimé avec K_{12} adapté est toujours inférieur à la LD estimée avec K_{12} actuel. Ainsi, pour garder un même niveau de radioprotection avant, pendant et après génération d'aérosols non-radioactifs, on propose la stratégie suivante : décorrélérer l'estimation de la LD du bruit de fond estimée avec le paramètre K_{12} adapté mais de toujours calculer et de compenser le bruit de fond estimé en utilisant le paramètre K_{12} adapté.

Cette stratégie, permet alors à la fois de garder une LD toujours basse, car estimée avec le paramètre K_{12} actuel (qui ne considère pas la présence des aérosols non-radioactifs), et donc d'assurer la radioprotection, et de compenser dans ROI1 le réel bruit de fond en utilisant le paramètre K_{12} adapté (qui lui tient compte de la présence des aérosols non-radioactifs).

❖ $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m} : 1 < N_{moy} \leq 2$:

À la figure 91 sont reportés quatre exemples de résultats obtenus avec les aérosols de DE_{VMM} supérieur à $10 \mu\text{m}$ et pour des masses accumulées conduisant à la formation d'un dépôt de configuration de $1 < N_{moy} \leq 2$ pour l'aérosol C et de $1 \leq N_{moy}$ pour l'aérosol D. La légende des graphiques est la même que celle à la figure 90 précédente.

De la même façon, on constate une amélioration significative avec l'utilisation du paramètre K_{12} adapté à la situation d'exposition du CAM. En tenant compte de la LD estimée avec le paramètre K_{12} adapté, l'émission d'alarme de type faux positif peut être évitée, mais à nouveau la radioprotection des travailleurs se trouve quelque peu affectée. Toutefois, à la différence du cas où DE_{VMM} est inférieur à $10 \mu\text{m}$, le comptage net dans ROI1 déterminé avec le paramètre K_{12} adapté n'est pas systématiquement en dessous de la LD calculée avec K_{12} adapté. De ce fait, la stratégie qui peut être utilisée dans le cas précédent ne peut pas l'être de la même façon pour les aérosols non-

radioactifs de DE_{MM} supérieur à $10 \mu\text{m}$. Effectivement, il est nécessaire d'ajouter des critères à la décision, tels que par exemple un nombre de dépassement consécutif de la LD estimée avec K_{12} adapté.

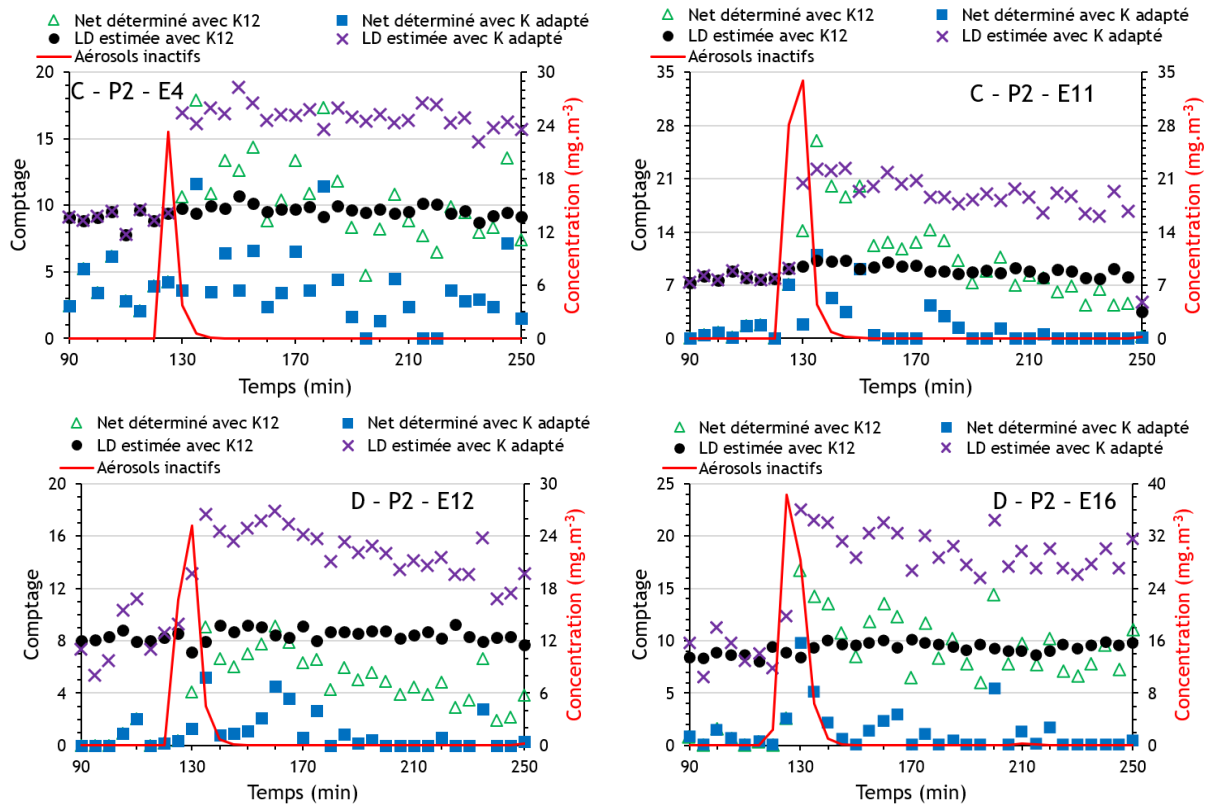


Figure 91 : Légende similaire à celle de la figure 90. Les résultats présentés sont obtenus avec les aérosols inactifs de $DE_{MM} > 10 \mu\text{m}$ et pour une configuration de $1 < N_{moy} \leq 2$ pour l'aérosol C et $1 \leq N_{moy}$ pour l'aérosol D

CONCLUSION GÉNÉRALE

Les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphériques (CAM), mis en place pour assurer la radioprotection des travailleurs, ont des comportements, notamment utilisés en chantier de démantèlement nucléaire, inattendus et récurrents. Effectivement, les travailleurs sont confrontés à des émissions d'alarme sonore et visuelle de type faux positif. Ces faux positifs induisent de la perte de temps et affectent la qualité de la radioprotection des travailleurs qui deviennent moins vigilants.

Dans ce contexte, l'objectif de ce travail de thèse a consisté à caractériser le comportement en temps réel et en continu d'un CAM dans des conditions typiques de chantier de démantèlement nucléaire. Ceci afin de comprendre les raisons des déclenchements d'alarmes de type faux positif et de proposer à terme une solution pour les éviter tout allant dans le sens de la radioprotection des travailleurs.

Dans l'étude, nous avons tout d'abord caractérisé les conditions atmosphériques mesurées en milieux nucléarisés. Ces conditions concernent notamment la granulométrie et la concentration des aérosols radioactifs naturels (omniprésents) et des aérosols non-radioactifs, auxquelles sont confrontés les CAM.

À l'issue de cette caractérisation, une approche expérimentale permettant l'étude en laboratoire du comportement d'un CAM de type ABPM203M a été mise au point. Celle-ci a mené à un couplage de dispositifs permettant de reproduire en laboratoire des atmosphères représentatives de celles mesurées dans des conditions de chantier de démantèlement nucléaire. Le premier dispositif expérimental spécifique a été conçu et qualifié, lequel permet la production maîtrisée et contrôlée en temps réel et en continu d'aérosols non-radioactifs en concentrations et en granulométries variées. Ces derniers sont mesurés par exemple lors de la réalisation d'opérations basiques de découpe, de nettoyage de surface, etc. Le second dispositif, le banc d'essais ICARE, a été, lui, utilisé pour la génération maîtrisée et contrôlée d'aérosols radioactifs naturels, lesquels sont omniprésents. Nous avons ensuite préparé une série d'expérience à réaliser mettant en œuvre d'une part, une condition stable en aérosols radioactifs naturels (type IEC) et d'autre part, des conditions variables en aérosols non-radioactifs, soit en termes de concentration et de granulométrie. A ces différentes conditions le CAM a été exposé. Ce couplage de dispositifs a aussi permis d'élargir les capacités du banc d'essais ICARE en rendant possible la mise en suspension d'aérosols non radioactifs de diamètre aérodynamique supérieur à 10 μm . Ainsi, à termes les performances des instruments de mesures de la contamination radioactive, qui sont dédiées à ces types d'environnements, pourront être évaluées à l'aide de ce couplage. Les normes internationales qui stipulent des conditions atmosphériques pour évaluer ces instruments de mesures pourront également évoluer en prenant en compte les nouvelles capacités du banc ICARE.

La caractérisation du comportement du CAM a été menée en trois parties, à savoir une première a concerné l'échantillonnage et la collecte sur filtre des aérosols, une deuxième a concerné l'absorption de l'énergie des particules α dans les aérosols et la dernière a concerné la mesure nucléaire en temps réel et en continu effectuée par le CAM.

À l'issue de la première partie il en est ressorti deux informations, lesquelles ont ensuite été considérées dans l'analyse des résultats :

- le CAM est capable d'échantillonner une large gamme en taille d'aérosol, avec un diamètre de coupure de la tête de prélèvement à environ 60 μm . Ainsi, l'efficacité d'échantillonnage du CAM est comparable à celle de la fraction inhalable d'Aitken *et al.* (1999) au moins jusqu'à un diamètre aérodynamique égal à 24,3 μm et va dans le sens de la radioprotection des travailleurs,

- La collecte en surface d'aérosol non-radioactifs, dont la granulométrie est de l'ordre (ou supérieure) à 5 μm , conduit à la formation d'une structure granulaire. Celle-ci interagit avec les performances du filtre du CAM. L'efficacité de filtration des aérosols radioactifs naturels est affectée et conduit à collecter ces derniers selon un profil de pénétration exponentielle. Celui-ci est caractérisable en connaissant les caractéristiques de la structure granulaire, notamment sa porosité, laquelle dépend entre autres des caractéristiques des particules non-radioactives qui constituent la structure granulaire. Le modèle empirique de Yu *et al.* (1997) a été utilisé pour caractériser la porosité de nos dépôts.

La seconde partie a permis d'identifier les différents atténuateurs de l'énergie des particules α à considérer dans le cas des CAM et de les hiérarchiser par rapport à leur effet sur la mesure nucléaire effectuée, soit :

- l'auto-absorption de l'énergie des particules α -naturels est négligeable et donc n'induit aucun biais sur la mesure nucléaire du CAM,
- l'absorption de l'énergie des particules α -naturels dans l'épaisseur d'air induit un effet à la fois sur le décalage en énergie des pics et sur la FWHM de ces derniers. Toutefois, les biais engendrés sur la mesure nucléaire du CAM sont constants,
- l'absorption de l'énergie des particules α -naturels d'une part, dans la masse d'aérosols non-radioactifs prélevée, lorsque les aérosols radioactifs naturels sont sous la structure granulaire, et d'autre part, dans la structure granulaire, lorsque les aérosols radioactifs naturels (fraction attachée, environ 60 % de l'activité) sont collectés selon un profil de pénétration exponentielle. Ce dernier point induit l'essentiel du biais de la mesure nucléaire effectuée par le CAM. Qui plus est, il est dépendant de l'aérosol non-radioactif collecté et est donc par définition variable. L'effet de cette absorption d'énergie est majoritairement mesuré par une intensification de la traîne en énergie des pics ^{218}Po et ^{214}Po . La fraction libre des descendants solides du radon, au vu de la taille nanométrique, a été supposée être collectée majoritairement en surface d'une part, du filtre à membranes du CAM et d'autre part du dépôt d'aérosols non-radioactifs A, B, C ou D. Cette supposition a été faite en tenant compte des études menées dans la littérature sur des tailles de particules nanométriques (Thomas *et al.*, 2017). Ainsi, l'absorption de l'énergie des particules α -naturels émises par la fraction libre a lieu « seulement » dans la masse d'aérosols non-radioactifs collectés au-dessus des aérosols radioactifs naturels (fraction libre). Puis, étant donné qu'ils sont collectés en surface, ils contribuent à améliorer la résolution du spectre en énergie mesuré. Effectivement, il y a peu ou pas d'absorption de l'énergie dans les aérosols non-radioactifs, lié au profil de pénétration exponentiel.

Concernant l'étude des comptages nucléaires mesurés en temps réel et en continu dans chacune des ROI ainsi que des spectres en énergies mesurés par le CAM, les travaux expérimentaux réalisés dans différentes conditions atmosphériques, toutes hors IEC, ont permis de :

- caractériser l'évolution du réel bruit de fond dans la ROI1 à la suite d'une génération brève d'aérosols non-radioactifs. Celui-ci peut être estimé à l'aide du coefficient K_{12} (égal à 0,09) lorsque le CAM est confronté à des aérosols non-radioactifs de DE_{VMM} inférieur à 10 μm sans que l'accumulation rapide en masse, sur le filtre du CAM, de ces aérosols engendre une configuration de dépôt où le nombre moyen de couche équivalente soit supérieur à 1. Pour une configuration de dépôt d'aérosols non-radioactifs rapidement formée, dont le N_{moy} est supérieur à 2 au-dessus d'aérosols radioactifs naturels, ce même coefficient K_{12} ne permet pas d'estimer l'évolution brusque du bruit de fond. Toutefois, on a vu que sur le long terme, les aérosols radioactifs naturels sont collectés essentiellement en surface de la structure granulaire, ainsi le coefficient K_{12} peut être conservé pour estimer le bruit de fond. Lorsque le CAM est soumis à des aérosols non-radioactifs de DE_{VMM} supérieur à 10 μm , alors le coefficient K_{12} ne permet pas, quelle que soit la configuration du dépôt, d'estimer le bruit de fond dans ROI1.

- caractériser l'évolution de la LD estimée par le CAM avec le paramètre K_{12} en fonction de la LD vraie, laquelle tient compte des conditions réelles d'exposition et devrait être celle du CAM. La LD estimée par le CAM avec le paramètre K_{12} est toujours basse et ce quelle que soit les conditions d'expositions du CAM. Effectivement, le bruit de fond n'étant pas correctement estimé avec ce dernier paramètre de traîne, la LD estimée s'en retrouve affectée. Avec une basse LD, la radioprotection des travailleurs est toujours « assurée » mais l'émission d'alarme de type faux positif est inévitable étant donné une mesure d'activité α -artificiel dans un bruit de fond dépassant souvent la LD estimée du CAM.
- déterminer des valeurs de paramètres de traînes réellement adaptés aux situations d'exposition du CAM. Ces dernières permettent d'améliorer significativement l'estimation du bruit de fond dans ROI1 et ce de manière corrélée à la fois à la masse des aérosols non-radioactifs accumulées sur le filtre du CAM et de leur granulométrie. Une base de données conséquente, laquelle classe les différentes valeurs de K déterminées en fonction de la granulométrie et de la concentration en aérosol a donc été créée.
- mettre en place un système innovant lequel permet en temps réel et en continu de caractériser les conditions auxquelles le CAM est confronté. En fonction de ces conditions, le système sélectionne dans la base de données le paramètre de traîne adapté à la situation. Le paramètre de traîne est alors toujours fourni en temps réel et en continu au CAM lequel l'utilise via son algorithme de calcul pour estimer le bruit de fond vrai dans ROI1. *In fine*, l'estimation du bruit de fond est meilleure dans toute les conditions et ce de manière dynamique.

PERSPECTIVES

De ce projet de recherche deux perspectives majeures ont été identifiées pour *in fine* mieux comprendre l'évolution du spectre en énergies mesuré par le CAM dans des conditions atypiques et donc améliorer sa mesure, notamment la détection de faible niveau d'activité α -artificiel.

- Nos résultats ont permis de déterminer des valeurs de K permettant d'estimer le bruit de fond dans ROI1 de manière adaptée à la situation réelle d'exposition. Cependant, ces valeurs ne tiennent compte que de la contribution de la traîne en énergie du pic ^{218}Po , lequel, nous l'avons montré, est a priori le seul qui affecte de manière significative le bruit de fond dans ROI1. En revanche, pour certaines conditions, notamment celles où le DE_{MM} est inférieur à $10\ \mu\text{m}$ et un dépôt de N_{moy} supérieur à 2 au-dessus d'aérosols radioactifs naturels est rapidement formé, le spectre en énergies présente des spécificités. Ces dernières n'ont pas pu être caractérisées dans l'étude, notamment l'effet du paramètre de traîne du pic ^{214}Po sur le comptage dans ROI2 (K_{23}) et ROI1 (K_{13}) dans cette situation. Il serait donc intéressant de caractériser l'évolution de ces paramètres de traînes afin de confirmer (ou non) leur non-significativité au comptage du bruit de fond, lequel pourrait engendrer un biais sur la mesure nucléaire du CAM.
Pour ce faire, il est nécessaire de réaliser le même type d'essais, menés dans cette étude, mais avec des activités α -naturels plus importantes. Cette activité plus importante permettra d'obtenir des spectres exploitables sur des temps plus courts et donc d'étudier l'évolution en temps réel de la dégradation en énergie de la traîne du pic ^{214}Po . Avec le banc d'essais ICARE, des activités environ 1000 fois supérieures à celles mises en œuvre dans l'étude peuvent être atteintes. Ainsi, le temps nécessaire pour obtenir un spectre expérimentalement exploitable serait divisé d'autant, soit de l'ordre de la dizaine de seconde.
- Nos résultats ont mis en avant une évolution du paramètre K en fonction du temps, notamment après la formation d'une structure granulaire. Cette évolution a, entre autres, été reliée aux aérosols radioactifs naturels qui sont collectées plus ou moins en profondeur dans la structure granulaire formée. Pour caractériser la dégradation de la mesure nucléaire effectuée par le CAM liée au seul effet du profil de pénétration des aérosols radioactifs naturels (fraction attachée) dans une structure granulaire formée sur le filtre, une étude expérimentale serait intéressante. Celle-ci serait complémentaire à l'étude menée par Geryes (2009) mais avec des structures granulaires constituées d'aérosols non-radioactifs de différentes granulométries (taille, forme et masse volumique).
Pour ce faire, il faudrait réaliser différentes structures granulaires en surface d'un filtre (avec un nombre de couche toujours supérieur à 2) constituées d'aérosols non-radioactifs de différentes granulométries ($> 3\ \mu\text{m}$ et de masses volumiques variées). Puis, utiliser ces filtres pour réaliser des prélèvements maîtrisés et contrôlés d'aérosols radioactifs naturels pour *in fine* effectuer des mesures de spectrométrie α . Ainsi, une corrélation entre les profils de pénétration dans les différentes structures granulaires, vis-à-vis des aérosols radioactifs naturels (fraction attachée), et la dégradation induite du spectre en énergie α mesuré pourrait être mise en avant.

Les résultats de ces études viendront alors compléter ceux déjà acquis et permettront d'améliorer à la fois la compréhension fine du comportement des CAM et la mesure nucléaire effectuée par lui.

Dans le cas où la proposition d'amélioration de la mesure du CAM, proposée dans ce travail, est amenée à être exploitée, il serait nécessaire de réaliser des essais en présence également de faible quantité d'aérosols radioactifs α -artificiels. Effectivement, ceci permettra de valider la capacité du CAM d'une part, à compenser de manière dynamique le réel bruit de fond dans ROI1 et d'autre part, à être capable de détecter de petite quantité de radioactivité α -artificiels. Ainsi, ces essais valideront la capacité générale du CAM à assurer la radioprotection des travailleurs et ce dans tous types de situations d'exposition.

RÉFÉRENCES

- Agarwal, J. K., & Liu, B. Y. H. (1980). A criterion for accurate aerosol sampling in calm air. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 41, 191-197.
- Aitken, R. J., Baldwin, P. E. J., Beaumont, G. C., Kenny, L. C., & Maynard, A. D. (1999). Aerosol inhalability in low air movement environments. *Journal of Aerosol Science*, 30, 613-626.
- Allen, M. D., & Raabe, O. G. (1985). Slip correction measurements of spherical solid aerosol particles in an improved Millikan apparatus. *Aerosol Science and Technology*, 4, 269-286.
- Ammerich, M. (1989). *Réalisation d'une installation d'étalonnage de moniteurs de contamination atmosphérique à l'aide d'aérosols radioactifs calibrés (ICARE)*.
- Armbruster, L. (1985). Theoretical and experimental studies for determining the aerosol sampling efficiency of annular slot probes. *Journal of Aerosol Science*, 16, 335-341.
- Baldwin, P. E. J., & Maynard, A. D. (1998). A survey of wind speed in indoor workplaces. *The Annals of Occupational Hygiene*, 20, 303-313.
- Baretto, P. M. C. (1973). Radon-222 emanation characteristics of rocks and minerals. In *IAEA-Panel Proceedings 565/1*. Wien.
- Baron, P. A., & Willeke, K. (2001). *Aerosol Measurement, Principles Techniques and Applications*. (Wiley 2001) (2nd ed.). New York.
- Bateman, H. (1910). Solution of a System of Differential Equations Occurring in the Theory of Radio-active Transformations. In *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society, Mathematical and physical Sciences*, 423-427.
- Bé, M.-M., Chisté, V., Dulieu, C., Mougeot, X., Chechev, V., Kondev, F., Wang, B. (2013). *Table of Radionuclides*. (Bureau international des Poids et Mesures, Éd.).
- Bémer, D., & Tierce, P. (1996). Ultrasonic generation of droplets for the production of fluorescein aerosol of mass median aerodynamic diameter between 1 and 10 μm and geometric standard deviation $<1,5$. *Journal of Aerosol Science*, 27, 393-394.
- Berry, R. D., & Froude, S. (1989). *An investigation of wind conditions in the workplace to assess their effect on the quantity of dust inhaled*. London.
- Bossew, P. (2003). The radon emanation power of building materials, soils and rocks. *Applied Radiation and Isotopes*, 59, 389-392.
- Bourrous, S. (2014). *Etude du colmatage des filtres THE plans et à petits plis par des agrégats de nanoparticules simulant un aérosol de combustion*. Thèse de l'Université de Lorraine.
- Bricard, J. (1977). *Physique des aérosols* (No. Rapport CEA R 4831 (1), R 4831 (2)).
- Bulejko, P. (2018). Numerical comparison of prediction models for aerosol filtration efficiency applied on a Hollow-Fiber Membrane pore structure. *Nanomaterials*, 8, 447.
- CEN EN 481. (1993). Workplaces atmospheres: Size fraction definitions for measurements of airborne particles in the workplace. Bruxelles.
- CETAMA, Ansoborlo, E., Aupiais, J., & Baglan, N. (2012). *Mesure du rayonnement alpha*.
- Charuau, J. (1991). Générateur d'aérosols calibrés « PLUS » (Pulvérisation Liquide UltraSonique). *Radioprotection*, 26, 405-409.
- Charuau, J., & Letourneau, P. (1993). *Choix des filtres de prélèvement d'aérosols. Performances des filtres sélectionnés par le CEA* (Rapport technique No. IPSN/DPEI/SERAC/5.3.6 (HP29)).
- Cheng, Y. S., Barr, E. B., Marshall, I. A., & Mitchell, J. P. (1993). Calibration and performance of an API Aerosizer. *Journal of Aerosol Science*, 24, 501-514.
- Cheng, Y. S., Guilmette, R. A., Zhou, Y., Gao, J., LaBone, T., Whicker, J. J., & Hoover, M. D. (2004). Characterization of plutonium aerosol collected during an accident. *Health Physics*, 87, 596-605.
- Chisté, V., Bé, M. M., & Dulieu, C. (2008). *Évaluation de la chaîne du radium 226* (No. LNHB 2008/59).
- CIPR. (1994). *Human respiratory tract model for radiological protection*.
- CIPR 66. (1994). Human respiratory tract model for radiological protection.
- Currie, L. A. (1968). Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Analytical*

- Chemistry*, 40, 586-593.
- Davies, C. N. (1968). The entry of aerosols into sampling tubes and heads. *British Journal of Applied Physics*, 21, 921-932.
- Degrelle, D., Venara, J., Ben Mosbah, M., Cuozzo, M., Mahé, C., & Serrano, R. (2020). Design by numerical simulation of an in situ alpha spectrometer operating at ambient air pressure. In *ANIMMA 2019* (Vol. 225).
- Diouri, M. (1987). *Contribution à l'étude du comportement aérodynamique des aérosols. Mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI 2000)*.
- Dorrian, M.-D. (1997). Particle size distributions of radioactive aerosols in the environment. *Radiation Physics and Chemistry*, 69, 117-132.
- Dorrian, M.-D., & Bailey, M. R. (1995). Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces. *Radiation Protection Dosimetry*, 60, 119-133.
- Dougniaux, G., Monsanglant-Louvet, C., Teppe, A.-L., Marcillaud, B., Dhieux Lestaevel, B., Gensdarmes, F., Bondiguel, S. (2015). *Comportement des moniteurs de mesure de la contamination en continu dans les chantiers de démantèlement* (Rapport IRSN No. PSN-RES/SCA/2015-55).
- El-Hussein, A., & Ahmed, A. A. (1995). Unattached fraction and size distribution of aerosol-attached radon progeny in the open air. *Applied Radiation and Isotopes*, 46, 1393-1399.
- El-Hussein, A., & Mohammed, A. (1998). A study on radon and radon progeny in surface air of El-Minia, Egypt. *Radiation Protection Dosimetry*, 78, 139-145.
- Elder, J. C., Gonzales, M., & Ettinger, H. J. (1974). Plutonium aerosol size characteristics. *Health Physics*, 27, 45-53.
- Esmen, N. A., & Corn, M. (1971). Residence time of particles in urban air. *Atmospheric Environment*, 5, 571-578.
- Fauvel, S., Gensdarmes, F., & Valendru, N. (2009). *Efficacité de collecte des balises aérosol utilisées en CNPE EDF* (Rapport No. DSU/SERAC/LPMA/07-27).
- Fernandjan, J. (1982). *Etude de la modélisation du comportement des aérosols solides dans une enceinte*.
- Folkerts, K. H. (1983). *Theoretische und experimentelle Untersuchungen fiber Diffusion und Exhalation der natiirlich radiaktiven Edelgase 222Rn (Radon) und 22°Rn (Thoron) aus Baustoffen und deren praktische Bedeutung ffor die Strahlenexposition in Wohnrilumen*.
- Garger, E. K., Kashpur, V. A., Li, W. B., & Tschiersch, J. (2006). Radioactive aerosols released from the Chernobyl Shelter into the immediate environment. *Radiation and Environmental Biophysics*, 45, 105-114.
- Geiger, H., & Nutall, J. M. (1911). The ranges of the a particles from various radioactive substances and a relation between range and period of transformation. *Phil. Mag.*, 22, 613-621.
- Gensdarmes, F. (2003). *Effet de la sédimentation sur l'épuration d'un aérosol polydispersé dans une enceinte, application à l'étude de la mise en suspension par chute de poudre* (Rapport IRSN No. DPEA/SERAC/LPMAC/03-14 Avril).
- Geryes, T. (2009). *Etude expérimentale et numérique de la dégradation de la mesure nucléaire d'aérosols radioactifs prélevés avec des filtres de surveillance*.
- Görner, P., Witschger, O., Roger, F., Wrobel, R., & Fabriès, J. F. (2008). Aerosol sampling by annular aspiration slots. *Journal of Environmental Monitoring*, 10, 1437-1447.
- Grivaud, L., & Pagliardini, F. (2004). *Mesure de la radioactivité alpha des aérosols prélevés sur filtre C357* (No. LPMA/SERAC/DSU/IRSN).
- Grundel, M., & Porstendörfer, J. (2004). Differences between the activity size distributions of the different natural radionuclide aerosols in outdoor air. *Atmospheric Environment*, 38, 3723-3728.
- Guélin, M. (1993). *Réalisation d'un système de référence pour la génération de radon 222*.
- Gutfinger, C., & Tardos, G. I. (1979). Theoretical and experimental investigation on granular bed dust filters. *Atmospheric Environment*, 13, 853-867.
- Harley, N. (2018). Effect of residential radon decay product dose factor variability on reporting of

- dose. *Health Physics*, 114, 398-407.
- Harrison, R. M. (1996). *Airborne particulate matter in the united kingdom. Third report of the quality of urban air review group.*
- Hayes, R. B., & Chiou, H. C. (2003). Preliminary evaluation of real time false CAM alarm prediction through continuous radon monitoring. *Health Phys*, 84, 89-92.
- Hervé-Bazin, B. (2007). *Les nanoparticules.* (EDP Sciences)
- Higby, D. P. (1984). *Effects of particle size and velocity on burial depth of airborne particles in glass fiber filters.*
- Hinds, W. C. (1999). *Aerosol technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles.* (John Wiley & Sons) (2nd éd.). New York.
- Hoarau, G., Dougniaux, G., Gensdarmes, F., Dhieux Lestaevel, B., Laurent, J., & Cassette, P. (2019). Qualification d'un dispositif expérimental permettant l'étude d'un moniteur de la contamination atmosphérique dans des conditions représentatives de chantiers de démantèlement. In *Congrès Français sur les Aérosols*. <https://doi.org/10.25576/ASFERA-CFA2019-16665>
- Hoffmann, A. C., & Finkers, H. J. (1995). A relation for the void fraction of randomly packed particle beds. *Powder Technology*, 82, 197-203.
- Hoover, M. D. (2011). Radioactive aerosols. In *Aerosol Measurement : Principles, Techniques, and Applications* (third, p. 635-650).
- Hoover, M. D., & Newton, G. J. (1992). *Update on selection and use of filter media in continuous air monitors for alpha-emitting radionuclides.* (Annual Report of the Inhalation Toxicology Research Institute).
- Hosoda, M., Kudo, H., Iwaoka, K., Yamada, R., Suzuki, T., Tamakuma, Y., & Tokonami, S. (2017). Characteristic of thoron (²²⁰Rn) in environment. *Applied Radiation and Isotopes*, 120, 7-10.
- Hou, C., Shang, B., Zhang, Q., Cui, H., Wu, Y., & Deng, J. (2015). Impact of hazefog days to radon progeny equilibrium factor and discussion of related factors. *Radiat. Environ. Biophys.*, 54, 475-480.
- Huang, S. L., Schery, S. D., Alcantara, R. E., Rodgers, J. C., & Wasiolek, P. T. (2002). Influence of dust loading on the alpha-particle energy resolution of continuous air monitors for thin deposits of radioactive aerosols. *Health Physics*, 83, 884-891.
- Huet, C., Tymen, G., & Boulaud, D. (1998). Etude des variations temporelles de la distribution en taille du Po-218 et du Pb-214 ultrafins de la fraction libre et du facteur d'équilibre des dérivés à vie courte du radon-222 dans une habitation. In *Actes du Congrès du 14ème CFA* (p. 55-60).
- Huibin, L., Mingyan, J., & Kailiang, W. (2012). Critical level setting of continuous air monitor. *Radiation Protection Dosimetry*, 154, 391-395.
- IEC 60761. (2002). Equipment for continuous monitoring of radioactivity in gaseous effluents.
- IEC 61172. (1992). Radiation Protection Instrumentation - Monitoring Equipment - Radioactive Aerosols in the Environment.
- IEC 61578. (1997). Radiation protection instrumentation - Calibration and verification of the effectiveness of radon compensation for alpha and/or beta aerosol measuring instruments - Test methods.
- International Agency for Research on Cancer. (1998). *Monographs on the evaluation of the carcinogenic risks to humans. Man-made Mineral Fibres and Radon.*
- International Commission on Radiological Protection. (2010). *Lung cancer risk from radon and progeny and statement on radon* (report No. Publication 115, Ann. ICRP 40(1)).
- International Commission on Radiological Protection. (2014). *Radiological Protection against radon exposure* (report No. Publication 126, Ann. ICRP 43(3)).
- IRSN. (2011). Impact à très grande distance des rejets radioactifs provoqués par l'accident de Fukushima. Consulté à l'adresse https://www.irsn.fr/FR/Actualites_presse/Actualites/Documents/IRSN_Impact-longue-distance-rejets-Fukushima_08042011.pdf
- Islam, G. S., & Haquet, A. K. F. (1994). Measurement of mixed radon and thoron daughter concentrations using alpha and beta activities filtered from air. *Radioation measurements*, 23,

737-742.

- ISO. (1993). Qualité de l'air. Définitions des fractions de taille des particules pour l'échantillonnage lié aux problèmes de santé.
- ISO 11483. (2005). Technologie du combustible nucléaire – Préparation des sources de plutonium et détermination du rapport isotopique $^{238}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ par spectrométrie alpha.
- Jaenicke, R. (1984). Our knowledge about the atmospheric aerosol. In *Proceedings of the 11 th int. conf. on atmospheric Aerosol, Condensation and ice nuclei, Budapest, Service Météorologique de Hongrie* (p. 99-107).
- Jasaitis, D., & Girgzdys, A. (2013). The investigation of tobacco smoke influence on the changes of indoor radon and its short-lived decay products volumetric activities. *J. Environ. Engin. Landscape. Manag.*, 21, 59-66.
- Jing, C., & Harly, N. H. (2018). A review of indoor and outdoor radon equilibrium factors - part I : ^{222}Rn . *Health Physics*, 115, 490-499.
- Jonneaux, M. (2015). *Comportement des moniteurs de mesure de la contamination en continu dans les chantiers de démantèlement*.
- Kasper, G., Schollmeier, S., & Meyer, J. (2010). Structure and density of deposits formed on filter fibers by inertial particle deposition and bounce. *Journal of Aerosol Science*, 41, 1167-1182.
- Khan, F., Ali, N., Khan, E., Khattak, N., Raja, I., Baloch, M., & Rajput, M. (2012). Study of indoor radon concentrations and associated health risks in the five districts of Hazara division. *Pakistan. J. Environ. Monit.*, 14, 3015-3023.
- Kim, J. H., Mulholland, G. W., & Kukuck, S. R. (2005). 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-national institute of standards and technology*, 110, 31-54.
- Knoll, G. F. (2010). *Radiation Detection and Measurement*. (John Wiley & Sons, Éd.) (4th éd.).
- Kruger, J., & Andrews, M. (1976). Measurement of the attachment coefficient of radon-220 decay products to monodispersed aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 7, 21-36.
- Kruger, J., & Nöthling, J. F. (1979). A comparison of the attachment of the decay products of radon-220 and radon-222 to monodispersed aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 10, 571-579.
- Kuwabara, S. (1959). The Forces experienced by Randomly Distributed Parallel Circular Cylinders or Spheres in a Viscous Flow at Small Reynolds Numbers. *Journal of the Physical Society of Japan*, 14, 527-532.
- L'Annunziata, M. F. (2016). *Radioactivity Introduction and history from the quantum to quarks*. (Elsevier Science, Éd.).
- Laboratoire National Henri Becquerel. (2015). *Mini Table de radionucléides*. (E. Sciences, Éd.).
- Lindsley, W. G. (2016). Filter Pore Size and Aerosol Sample Collection. In *NIOSH Manual of Analytical Methods (NMAM)*.
- Malet, J. (1997). *Transport et dépôts des aérosols nanométriques, application à la fraction libre des descendants à vie courte du radon*. Thèse de l'Université Paris XII.
- Marchal, P. (2014). *Caractérisation et impact des particules incandescentes dans les réseaux de ventilation lors d'opérations de démantèlement*. Thèse de l'Institut National des Sciences Appliquées de Rouen.
- Mark, D., Vincent, J. H., Gibson, H., & Witherspoon, W. A. (1985). Applications of closely graded powders of fused alumina as test dusts for aerosol studies. *Journal of Aerosol Science*, 16, 125-131.
- Marley, M. S. (2000). From giant planets to cool stars. In *ASP Conference series* (p. 152).
- McFarland, A. R., Bethel, E. L., Ortiz, C. A., & Stanke, J. G. (1991). A CAM sampler for collecting and assessing alpha emitting aerosol particles. *Health Physics*, 61, 97-103.
- Megumi, K., & Mamuro, T. (1974). Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. *Journal of Geophysical Research*, 79, 3357-3360.
- Meslin, P.-Y. (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 l'Université Pierre et Marie Curie.
- Michielsen, N., & Tymen, G. (2007). Semi-continuous measurement of the unattached radon decay products size distributions from 0.5 to 5 nm by an array of annular diffusion channels. *Journal of Aerosol Science*, 38, 1129-1139.
- MIRION Technologies. (2011). *The Continuous Air Monitoring (CAM) PIPS® Detector Properties and Applications*.
- Mohammed, A., El-Hussein, A., & Ali, A. E. (2000). Measurement of thorium-B, ^{212}Pb in the outdoor environment and evaluation of equivalent dose. *Journal of Environmental Radioactivity*, 49, 181-193.
- Monsanglant-Louvet, C., Gensdarmes, F., Liatimi, N., & Pontreau, S. (2008). *Évaluation des performances des moniteurs de contamination atmosphérique en conditions réelles de fonctionnement*.
- Moore, M. E., McFarland, A. R., & Rodgers, J. C. (1993). Factors that affect alpha particle detection in continuous air monitor applications. *Health Physics*, 65, 69-81.
- National Academy of Sciences/National Research Council. (1999). Health effects of exposure to radon.
- Newton, G. J., Hoover, M. D., Barr, E. B., Wong, B. A., & Ritter, P. D. (1987). Collection and characterization of aerosols from metal cutting techniques typically used in decommissioning nuclear facilities. *American Industrial Hygiene Association Journal*, 48, 922-932.
- NF ISO 11929. (2010). Détermination des limites caractéristiques (seuil de décision, limite de détection et extrémités de l'intervalle de confiance) pour mesurages de rayonnements ionisants.
- NF X 07 020. (1999). Guide pour l'expression de l'incertitude de mesure.
- Nguyen, T. C. H. (2012). *Etude du radon et du thoron par collection électrostatique et par spectrométrie gamma dans le cadre de l'expérience NEMO de décroissance double bêta*.
- NIST. (2009). ASTAR. Consulté à l'adresse <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/ASTAR.html>
- Paatero, J., Ioannidou, A., Ikonen, J., & Lehto, J. (2017). Aerosol particle size distribution of atmospheric lead-210 in northern Finland. *Journal of Environmental Radioactivity*, 172, 10-14.
- Papastefanou, C. (2006). Residence time of tropospheric aerosols in association with radioactive nuclides. *Applied Radiation and Isotopes*, 64, 93-100.
- Papastefanou, C. (2008). Radioactive Aerosols. In *Radioactivity in the environment*.
- Papastefanou, C., & Bondietti, E. A. (1987). Aerodynamic size associations of ^{212}Pb and ^{214}Pb in ambient aerosols. *Health Physics*, 53, 461-472.
- Peillon, S., Gensdarmes, F., & Roynette, A. (2011). *Etude de la mise en suspension aéroulique d'une poudre de carbone. Application à la problématique des poussières dans le futur réacteur ITER*.
- Perrin, M. L. (1987). *Plutonium aerosol size distributions in a reprocessing plant during decommissioning operations*. (Report No. PNL-SA-14255).
- Pickering, S. (1984). The interpretation of alpha energy spectra from particulate sources. *Journal of Aerosol Science*, 15, 533-543.
- Pöllänen, R., & Siiskonen, T. (2006). High-resolution alpha spectrometry under field conditions - Fast identification of alpha particle emitting radionuclides from air samples. *Journal of Environmental Radioactivity*, 87, 279-288.
- Pöllänen, R., Siiskonen, T., Moring, M., & Juhanoja, J. (2007). Direct alpha spectrometry for characterising hot particle properties. *Radiation Measurements*, 42, 1666-1673.
- Pommé, S., Wagemans, C., Verhaegen, F., Van Den Durpel, L., Van Gils, J., & Barthélémy, R. (1995). A double d(E)-E detection set-up for ternary fission. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A*, 359, 587-595.
- Porstendörfer, J. (1994). Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal of Aerosol Science*, 25, 219-263.
- Porstendörfer, J., & Mercer, T. T. (1978). Influence of nuclei concentration and humidity upon the

- attachment rate of atoms in the atmosphere. *Atmospheric Environment*, 12, 2223-2228.
- Porstendörfer, J., Pagelkopf, P., & Gründel, M. (2005). Fraction of the positive ²¹⁸Po and ²¹⁴Pb clusters in indoor air. *Radiation Protection Dosimetry*, 113, 342-351.
- Porstendörfer, J., & Reineking, A. (2000). Radon characteristics related to dose for different places of the human. In *Proceedings of 10th IRPA Congress*. Hiroshima, Japan.
- Renoux, A., & Boulaud, D. (1998). *Les aérosols : Physique et Métrologie*. (lavoisier TEC & DOC, Éd.). Paris.
- Robé, M. C., Rannou, A., Le Bronec, J., & Tymen, G. (1990). "Le radon dans les habitations : identification des sources et des voies de transfert, et caractérisation des aérosols radioactifs produits. In *Actes du Colloque International de Géochimie des Gaz (CIGG)* (p. 93-103).
- Roger, F., Fabriès, J. F., Görner, P., Wrobel, R., & Renoux, A. (1998). Détermination expérimentale de l'efficacité de captage en air calme d'un échantillonneur à fente annulaire. In *Congrès Français sur les Aérosols* (p. 161-168).
- Rouaud, M. (2013). *Calcul d'incertitudes*.
- Roupsard, P. (2013). *Etude phénoménologique du dépôt sec d'aérosols en milieu urbain : influence des propriétés des surfaces, de la turbulence et des conditions météorologiques*.
- Schmidt, E. (1995). Experimental investigations into the compression of dust cakes deposited on filter media. *Filtration & Separation*, 32, 789-793.
- Schmidt, E., & Löffler, F. (1990). Preparation of dust cakes for microscopic examination. *Powder Technology* 60, 173-177.
- Seiler, F. A., Newton, G. J., & Guilmette, R. A. (1988). Continuous monitoring for airborne alpha emitters in a dusty environment. *Health Physics*, 54, 503-515.
- Shashkin, V. L., & Prutkina, M. I. (1970). On the mechanisms of emanation of radioactive minerals and ores. *Atomnaya Energiya*, 29, 41.
- Siiskonen, T., & Pöllänen, R. (2004). Simulation of alpha particle spectra from aerosol samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 60, 947-953.
- Stevens, D. C., & Toureau, A. E. R. (1963). *The effect on particle size and dust loading on the shape of alpha pulse height spectra of air sample filters* (No. AERE-R 4249).
- Stranden, E., Kolstad, A. K., & Lind, B. (1984). The influence of moisture and temperature on radon exhalation. *Radiation Protection Dosimetry*, 7, 55.
- Strong, K. P., & Levins, D. M. (1982). Effect of moisture content on radon emanation from uranium ore and railings. *Health Physics*, 42, 27.
- Swedjemark, G. (1983). The equilibrium factor F. *Health Physics*, 45, 453-462.
- Tanner, A. B. (1964). Radon migration in the ground. *The Natural Radiation Environment*, 161-190.
- Tchorz-Trzeciakiewicz, D. E., & Kłos, M. (2017). Factors affecting atmospheric radon concentration, human health. *Science of The Total Environment*, 584, 911-920.
- Thomas, D., Charvet, A., Bardin-Monnier, N., & Appert-Collin, J.-C. (2017). *La filtration des aérosols*. (ISTE Editions Ltd, Éd.) (ISTE).
- Thomas, J. W. (1972). Measurements of radon daughters in air. *Health Physics*, 23, 783-789.
- Tsivolgou. (1953). *Quantitative description of successive transformations in atmospheric samples*. Ohio State University.
- Tsoufanidis, N. (1995). *Measurement and Detection of Radiation*. (Taylor and Francis, Éd.) (Second). Washington, DC.
- Turner, J. E. (2007). *Atoms, Radiation, and Radiation Protection*. (Wiley, Éd.) (Third). USA.
- UNSCEAR. (1993). *Sources and Effects of Ionizing Radiation*.
- UNSCEAR. (2000). *Sources and Effects of Ionizing Radiation*.
- UNSCEAR. (2008). *Sources-to-effects assessment for radon in homes and workplaces*. New York: United Nations.
- Urosevic, V., Nikezic, D., & Vulovic, S. (2008). A theoretical approach to indoor radon and thoron distribution. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99, 1829-1833.
- Vaissière, C., Laberrigüe-Frolow, J., Sacquin, Y., Audi, G., Dran, J. C., Perrot, F., ... Arbor, N.

- (2001). La radioactivité.com.
- Vanhee, J. M. (1985). *Contribution à l'étude des paramètres physiques gouvernant la production d'aérosols monodispersés par centrifugation de liquides. Application au générateur à toupie tournante de May.*
- Vargas Trassierra, C., Cardellini, F., Buonanno, G., & De Felice, P. (2015). On the interaction between radon progeny and particles generated by electronic and traditional cigarettes. *Atmospheric Environment*, 106, 442-450.
- Wicke, A. (1979). *Untersuchungen zur Frage der natürlichen Radioaktivität der Luft in Wohn- und Aufenthaltsräumen. Grundlagen zur Abschätzung der Strahlenexposition durch Inhalation von Radon- und Thoron- Zerfallsprodukten Dissertation.*
- Wicke, A., Porstendörfer, J., & Schraub, A. (1978). Der Einfluß unterschiedlicher Baumaterialien auf die Radonkonzentration in Wohnräumen. *Tagungsbericht « Radioaktivität und Umwelt ».*
- Witschger, O. (1996). *Etude théorique et expérimentale des facteurs physiques d'échantillonnage des polluants particulaires. Application aux capteurs à fente annulaire. Thèse de l'Université Paris XII.*
- Witschger, O., Grinshpun, S. A., Fauvel, S., & Basso, G. (2004). Performance of Personal Inhalable Samplers Operating in Very Slowly Moving Air and Near the Aerosol Source. *The annals of Occupational Hygiene*, 48, 351-368.
- Witschger, O., Wrotel, R., Basso, G., Fauvel, S., & Gensdarmes, F. (2002). Détermination expérimentale de facteurs de forme dynamique par comparaison des techniques Coulter et impacteur en cascade. In *Congrès Français sur les Aérosols.*
- World Health Organization. (2009). Who handbook on indoor radon. In *WHO.*
- Yu, A. B., Bridgwater, J., & Burbidge, A. (1997). On the modelling of the packing of fine particles. *Powder Technology*, 92, 185-194.
- Zhang, C., & Luo, D. (1983). Measurement of mixed radon and thoron daughter concentrations in air. *Nuclear Inst. and Methods*, 215, 481-488.
- Zikova, N., Ondráček, J., & Zdimal, V. (2015). Size-resolved penetration through high efficiency filter media typically used for aerosol sampling. *Aerosol Science and Technology*, 49, 239-249.

ANNEXES

Annexe 1 : Calcul théorique de l'accumulation des descendants solides du radon sur le filtre du CAM & calculs des incertitudes

L'accumulation théorique des descendants solides du radon sur le filtre du CAM au cours du prélèvement est décrite par les équations disponibles dans la littérature, notamment dans Zhang & Luo (1983) et Islam & Haquet (1994). Nous avons utilisé ces équations pour calculer dans nos conditions, à la fois d'activité naturelle et de débit de prélèvement du CAM, le temps nécessaire pour que les comptages dans mesurés par le CAM dans ROI2 et ROI3 atteignent un équilibre (équilibre séculaire). La figure 92 présente les évolutions des comptages théorique normalisée du ^{218}Po (courbe noire) et du ^{214}Po (courbe rouge) prélevés sur le filtre du CAM durant le prélèvement en phase une. Au bout d'environ 20 et 220 minutes respectivement pour le ^{218}Po et ^{214}Po , l'équilibre séculaire est atteint (repéré respectivement par la flèche en pointillés noir et rouge) ce qui signifie qu'il y a autant de noyaux qui sont prélevés (et engendrés) que de noyaux qui se désintègrent.

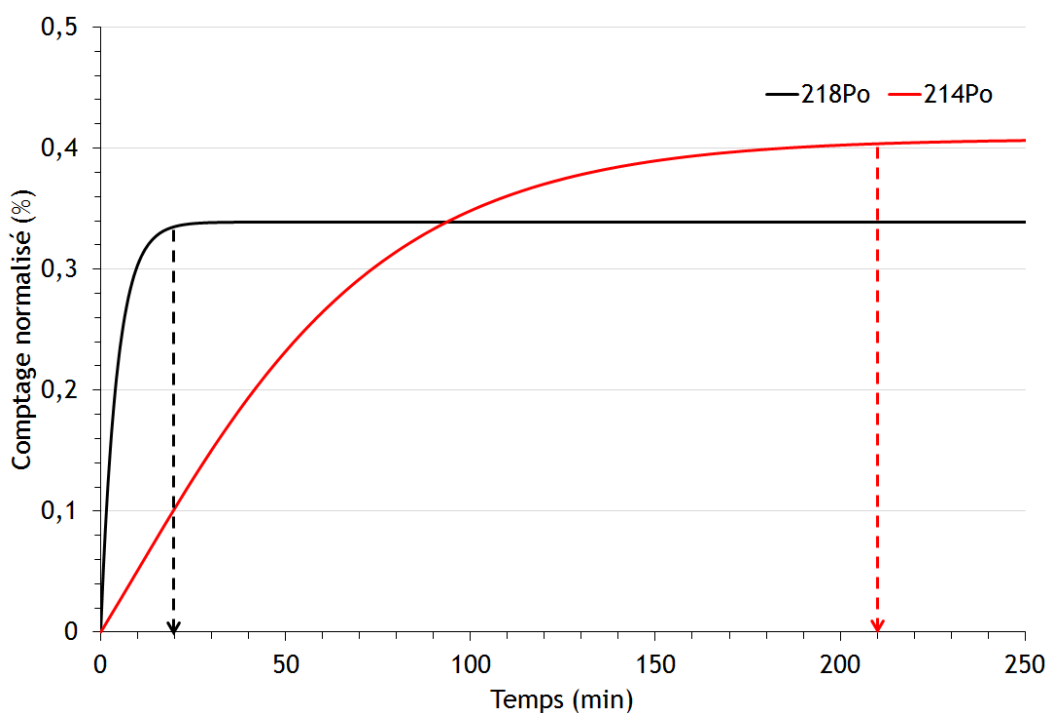


Figure 92 : Évolutions des comptages théoriques normalisés du ^{218}Po et de ^{214}Po pour des activités respectives de 15 et 5 Bq.m^{-3} et un prélèvement sur filtre à 35 L.min^{-1}

Incertitudes sur la masse des particules sur filtre

La masse des particules collectées sur le filtre étant une différence de masse entre le filtre chargé et le filtre vierge (relation 55), l'incertitude associée est calculée à l'aide de la relation 60.

$$u(m) = \sqrt{u^2(m_{\text{finale}}) + u^2(m_{\text{initiale}})}. \quad (60)$$

On suppose que $u(m_{\text{finale}}) = u(m_{\text{initiale}}) = u(\text{balance})$, où $u(\text{balance})$ correspond à l'incertitude-type liée à la balance sur une pesée de filtre, laquelle est constante et est égale à $\pm 0,03$ mg pour la balance de précision utilisée. Ainsi, l'incertitude élargie ($k = 2$) sur la masse s'exprime avec la relation 61.

$$U(m) = 2\sqrt{2} u(\text{balance}). \quad (61)$$

Incertitudes sur la valeur du paramètre K de traîne en énergie

Le paramètre K étant un rapport entre le comptage nucléaire total mesuré dans une première ROI A (on note alors ROI_a) et celui mesuré dans une seconde ROI B (on note ROI_b), l'incertitude associée se calcule à l'aide de la relation 62.

$$u(K) = K \sqrt{\frac{u^2(ROI_a)}{ROI_a^2} + \frac{u^2(ROI_b)}{ROI_b^2}}, \quad (62)$$

avec :

- $u(ROI_a)$ et $u(ROI_b)$: les incertitudes-types sur les comptages nucléaires totaux mesurés respectivement dans la fenêtre en énergies a et b. Ces dernières s'estiment grâce à l'hypothèse d'un comportement de type poissonien des comptages nucléaires bruts. On peut alors écrire $u(ROI_a) = \sqrt{ROI_a}$ et $u(ROI_b) = \sqrt{ROI_b}$.

L'incertitude sur le paramètre K s'exprime alors par l'équation 63.

$$u(K) = K \sqrt{\frac{ROI_a}{ROI_a^2} + \frac{ROI_b}{ROI_b^2}}. \quad (63)$$

Annexe 2 : Paramètres de position en énergie et de FWHM calculés, conditions normatives IEC

Dans cette annexe sont présentés :

- au tableau 24 l'ensemble des valeurs des positions des pics ^{218}Po et ^{214}Po et de leur FWHM calculées sur chaque spectre en énergies enregistré en phase une,
- le calcul effectué, à partir des 58 mesures, pour déterminer l'incertitude absolue à 95 % associée aux positions en énergie et FWHM moyennes des pics ^{214}Po et ^{218}Po .

Tableau 24 : Valeurs des positions des pics ^{218}Po et ^{214}Po et de leur FWHM calculées sur chaque spectre enregistré en phase une

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
A - P1 - E1	4748,21	6658,69	191,69	118,91
A - P1 - E2	4815,28	6631,26	124,56	128,07
A - P1 - E3	4824,85	6667,84	162,88	137,2
A - P1 - E4	4805,7	6667,84	172,44	128,04
A - P1 - E5	4834,42	6658,69	172,51	128,01
A - P1 - E6	4824,85	6667,84	191,73	155,53
A - P1 - E7	4776,97	6658,69	201,34	137,2
A - P1 - E8	4834,42	6649,55	143,65	155,49
A - P1 - E9	4815,28	6658,69	153,25	146,33
A - P1 - E10	4853,55	6667,84	153,17	127,98
A - P1 - E11	4796,13	6640,41	201,3	137,2
A - P1 - E12	4796,13	6667,84	182,04	128,04
A - P1 - E13	4834,42	6658,69	229,97	137,14
A - P1 - E14	4776,97	6686,11	182	118,82
A - P1 - E15	4815,28	6686,11	143,65	127,98
A - P1 - E16	4853,55	6695,24	134,03	127,98
A - P1 - E17	4853,55	6658,69	182	146,27
A - P1 - E18	4834,42	6676,97	210,86	137,17
B - P1 - E1	4843,99	6676,97	210,57	137,07
B - P1 - E2	4815,28	6686,11	258,87	118,82
B - P1 - E3	4834,42	6658,69	191,55	137,17
B - P1 - E4	4853,55	6695,24	181,87	127,92

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
B - P1 - E5	4796,13	6667,84	230,03	146,3
B - P1 - E6	4824,85	6686,11	153,28	137,2
B - P1 - E7	4834,42	6676,97	143,62	137,14
B - P1 - E8	4863,12	6667,84	162,81	128,01
B - P1 - E9	4805,7	6676,97	191,6	128,01
B - P1 - E10	4882,24	6695,24	220,21	118,77
B - P1 - E11	4853,55	6667,84	172,36	146,3
B - P1 - E12	4805,7	6686,11	191,51	137,11
B - P1 - E13	4882,24	6695,24	162,65	118,77
C - P1 - E1	4824,85	6667,84	182	127,95
C - P1 - E2	4834,42	6695,24	182,08	137,14
C - P1 - E3	4824,85	6695,24	172,44	127,98
C - P1 - E4	4834,42	6686,11	172,36	127,95
C - P1 - E5	4834,42	6686,11	201,15	137,11
C - P1 - E6	4834,42	6667,84	220,47	146,3
C - P1 - E7	4853,55	6658,69	124,47	118,85
C - P1 - E8	4843,99	6676,97	239,64	137,17
C - P1 - E9	4824,85	6658,69	191,6	118,85
C - P1 - E10	4824,85	6649,55	162,69	127,95
C - P1 - E11	4834,42	6676,97	162,81	127,95
C - P1 - E12	4834,42	6695,24	143,55	118,8
C - P1 - E13	4824,85	6695,24	181,92	137,11
D - P1 - E1	4863,12	6686,11	143,62	146,27
D - P1 - E2	4834,42	6676,97	162,73	146,27
D - P1 - E3	4834,42	6676,97	124,47	128,01
D - P1 - E4	4843,99	6649,55	210,86	146,33
D - P1 - E5	4776,97	6658,69	201,25	128,04
D - P1 - E6	4834,42	6667,84	134,09	118,88
D - P1 - E7	4834,42	6667,84	153,25	128,01
D - P1 - E8	4843,99	6676,97	143,65	137,17
D - P1 - E9	4834,42	6686,11	153,17	127,98
D - P1 - E10	4834,42	6686,11	153,21	127,98

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
D - P1 - E11	4824,85	6695,24	172,28	146,23
D - P1 - E12	4872,68	6695,24	172,28	127,95
D - P1 - E13	4815,28	6704,37	133,99	127,95
D - P1 - E14	4843,99	6667,84	191,55	118,82

Calcul de l'incertitude absolue à 95 % à l'aide du coefficient de Student t

L'incertitude absolue se calcule à l'aide de la relation 64 issue du livre de Rouaud (2013).

$$U = t \frac{\sigma_{\text{éch}}}{\sqrt{n_{\text{éch}}}}, \quad (64)$$

avec :

- t : coefficient de *Student* qui dépend de la taille de l'échantillon (n) et tient compte de la confiance dont il est souhaité donner au résultat. Dans notre cas, on a choisi une confiance à 95 % et l'échantillon total est constitué de 58 mesures. Ainsi, le coefficient de Student t est égal à 2 (voir table des coefficients de *Student*, disponible dans le livre de Rouaud (2013)).
- $\sigma_{\text{éch}}$: écart-type de l'échantillon de mesures,
- $n_{\text{éch}}$: taille de l'échantillon de mesures.

Annexe 3 : Mise en place des critères de seuil de décision (SD) et de limite de détection (LD)

Dans le contexte de faible comptage à détecter dans un bruit de fond omniprésent dû aux aérosols radioactifs naturels, le seuil de décision (SD) et la limite de détection (LD) aide à améliorer l'interprétation des résultats de mesures. Effectivement, le SD permet de décider, compte tenu des fluctuations statistiques du bruit de fond, si le résultat d'une mesure est dû à la présence (ou non) de radioactivité artificielle avérée et ce avec un risque de se tromper. Ce risque est qualifié de première espèce ou de risque α . Sur la figure 93 est illustré un exemple d'une distribution de comptage de bruit de fond, lequel est mesuré avec une valeur moyenne nulle et un écart-type (σ) égal à 1. Trois fractiles de risque α ($k_{1-\alpha}$) de la loi normale centrée réduite sont présentés, à savoir égal à 1,64, 1,96 et 3,01 correspondant respectivement à un risque α de 5 %, 2,5 % et 0,1 %. Ce risque α est choisi à la considération des conséquences que peuvent induire une mauvaise décision sur la mesure effectuée.

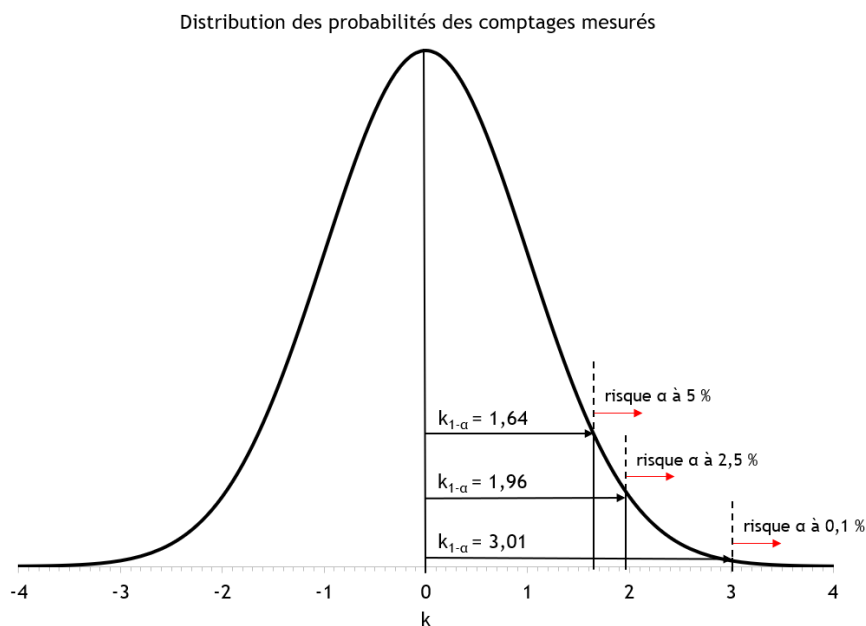


Figure 93 : Exemple d'une distribution de comptage de bruit de fond mesuré de moyenne nulle et d'écart-type (σ) égal à 1. Les coefficients $k_{1-\alpha}$ correspondent à un nombre de fractile du risque α de la loi normale centrée réduite. À $k_{1-\alpha}$ égal à 3,01, 1,96, ou 1,64 est respectivement associé un risque α de 0,1 %, 2,5 % ou 5 %

Pour un risque α donné, le SD est déterminé, à l'aide de la relation 65 issue de Currie (1968), à partir de la seule mesure du bruit de fond (BDF). L'approche fréquentielle de Currie (1968) est choisie, pour calculer le seuil de décision et la limite de détection (présentée ci-après), pour les trois considérations suivantes :

- le bruit de fond mesuré dans ROI1 (fenêtre dédiée aux α -artificiels) n'est pas nul, ce qui rendrait l'utilisation de cette méthode non valide et donc nécessité d'utiliser l'approche basée sur une statistique probabiliste de la norme ISO 11929: 2010,
- MIRION Technologies (2011) utilise l'approche de Currie (1968) pour calculer l'activité minimale détectable (Minimum Detectable Activity, MDA) du CAM ABPM203M,
- du fait de la mesure effectuée par le CAM et du bruit de fond dans ROI1, les deux approches, fréquentielle pour Currie (1968) et probabiliste pour la norme ISO 11929: 2010, conduisent au même résultat.

Ainsi, plus le bruit de fond est élevé et plus le SD aussi. La détection de faible quantité de radioactivité artificielle dans un bruit de fond plus important devient de la même façon plus compliquée.

$$SD = k_{1-\alpha} \sqrt{2 \text{BDF}}. \quad (65)$$

Une mesure au-dessus de SD aura alors une probabilité supérieure ou égale à $1 - \alpha$ % d'être réellement radioactif et à l'inverse une probabilité inférieure ou égale à α % de ne pas l'être. En revanche, une mesure sous le SD ne peut pas directement être reliée à une absence de radioactivité. En effet, la radioactivité peut être présente mais dont le comptage (faible) est « noyé » dans les fluctuations statistiques du bruit de fond. Ainsi, déclarer un échantillon, dont la mesure de comptage est inférieure à SD, comme étant non radioactif conduit à un risque de commettre une erreur dite de seconde espèce, ou risque β . Celui-ci nécessite la mise en place d'une nouvelle grandeur, à savoir la LD. La LD correspond alors à l'activité pour laquelle la probabilité que le comptage ne soit pas supérieur au seuil de décision est donnée par le risque β . Pour un risque β égal au risque α (ce qui est usuellement considéré), la limite de détection s'exprime par la relation 66 (Currie, 1968). Avec cette nouvelle grandeur, il est possible d'interpréter le cas où la mesure donne une valeur inférieure au SD. Effectivement, dans cette situation la probabilité pour que la valeur mesurée soit supérieure à LD est inférieure à β %. À l'inverse, la probabilité pour que la valeur mesurée soit inférieure à LD est supérieure à $1 - \beta$ %.

$$LD_{\alpha=\beta} = k_{\alpha=\beta}^2 + 2SD. \quad (66)$$

La figure 94 issue de CETAMA *et al.* (2012), illustre le SD et la LD avec respectivement les risques α et β (égaux, $k_\alpha = k_\beta$) associés.

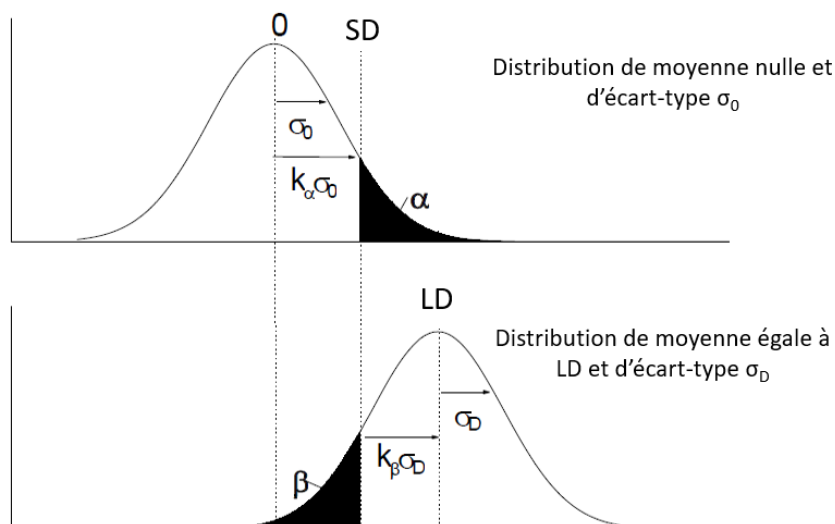


Figure 94 : Illustration du seuil de décision (SD) et de la limite de détection (LD) avec respectivement les risques d'erreur de première espèce (risque α) et de seconde espèce (risque β) qui sont égaux. Figure issue de CETAMA *et al.* (2012)

Le guide NF X 07 020 (1999) pour l'évaluation des incertitudes de mesures recommande de fixer les risques α et β égaux à 4,55 %. Toutefois, une valeur de risque à 5 % est usuellement choisie (CETAMA *et al.*, 2012).

Limite physique de la LD en fonction du bruit de fond

A la figure 95, on montre l'évolution de la LD calculée à partir de $k_\alpha = k_\beta = 1,645$ en fonction du bruit de fond, lequel est utilisé pour calculer la LD. A partir d'un bruit de fond correspondant à 27 coups, la LD telle qu'elle est calculée est toujours inférieure au bruit de fond. En appliquant ces propos à un procédé de mesure, ceci signifie qu'au-delà d'une valeur de bruit de fond, en l'occurrence ici 27, qu'il n'est plus capable de déterminer quoi que ce soit dans un tel bruit de fond.

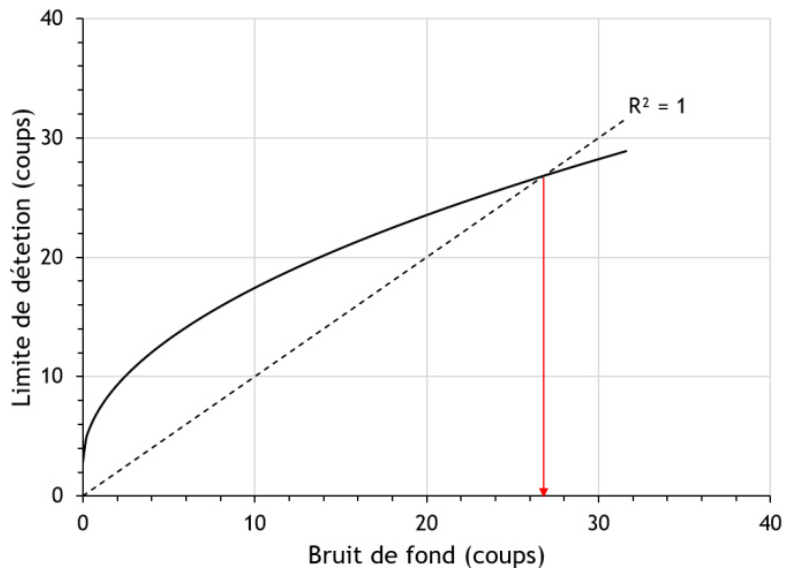


Figure 95 : Évolution de la limite de détection en fonction du bruit de fond. La flèche rouge indique la limite à partir de laquelle le bruit de fond dépasse toujours la LD

Annexe 4 : Évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1, ROI2 et ROI3

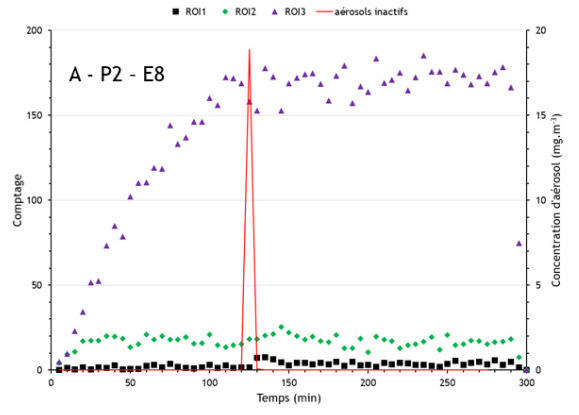
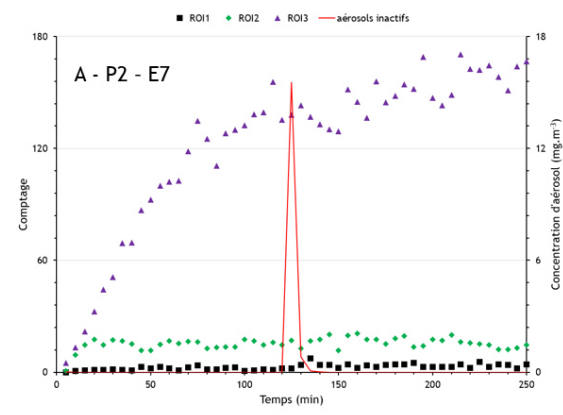
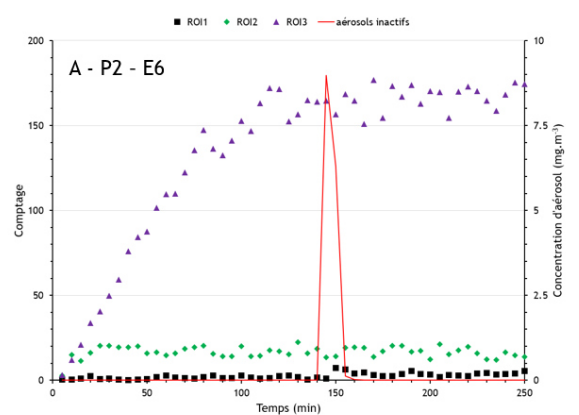
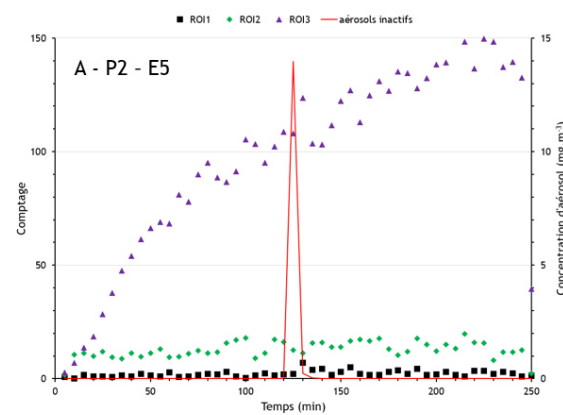
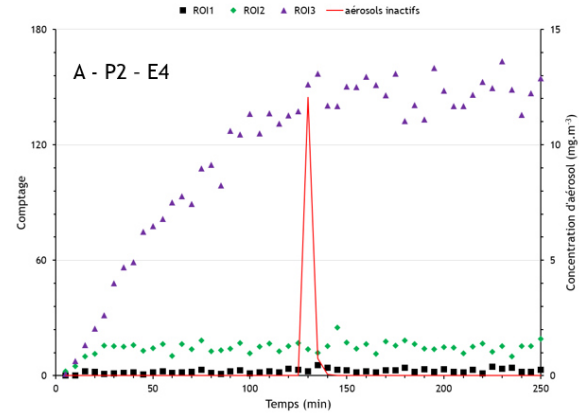
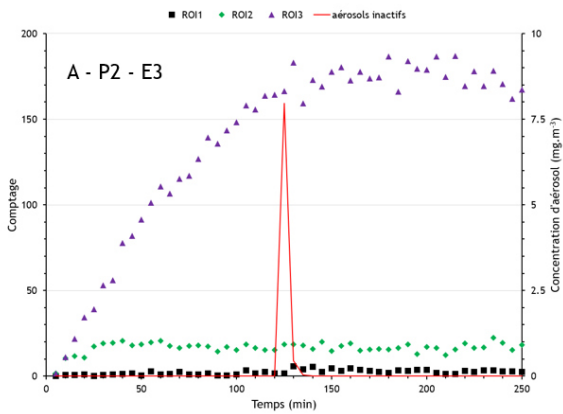
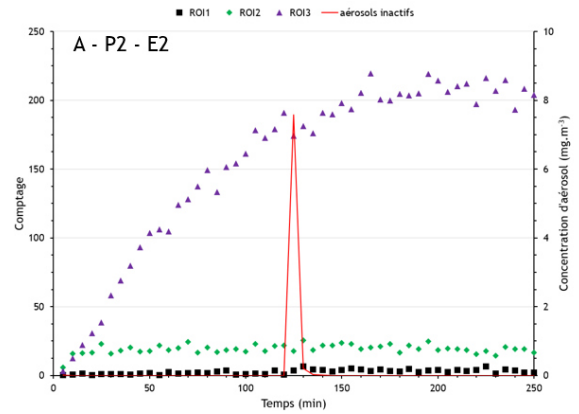
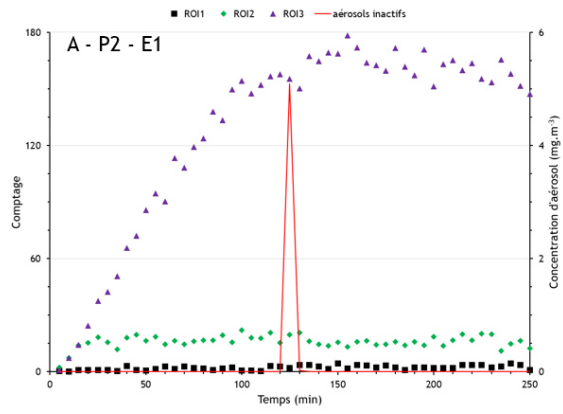
Dans cette annexe sont reportés pour chaque granulométrie d'aérosol (A, B, C et D) :

- dans les tableaux 25 - 26 - 27 et 28 : les valeurs des masses de particules prélevées, accompagnées de leur incertitude ($k=2$) liée à la balance de précision, pour chaque essai. Les valeurs calculées pour chaque masse prélevée du nombre moyen de couches équivalentes (N_{moy}) et de l'épaisseur moyenne équivalente (E_{moy})
- aux figures 96 - 97 - 98 et 99 : ordonnée de gauche : évolutions des comptages mesurés par le CAM dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps. Ordonnée de droite : évolution de la concentration en aérosols inactifs (ligne rouge) en fonction du temps, mesurée par le COP de type Grimm

Aérosol A

Tableau 25 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol A sont reporté, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise

Numérotation	M (mg)	U(m)	Alarme (O/N)	N_{moy}	E_{moy}
A - P2 - E1	0,89	0,05	N	0,48	1,28
A - P2 - E2	1,36	0,08	N	0,73	1,96
A - P2 - E3	1,5	0,09	N	0,80	2,16
A - P2 - E4	2,27	0,14	N	1,22	3,26
A - P2 - E5	2,54	0,15	N	1,36	3,65
A - P2 - E6	2,68	0,16	N	1,43	3,85
A - P2 - E7	2,9	0,17	N	1,55	4,17
A - P2 - E8	3,27	0,20	N	1,75	4,70
A - P2 - E9	4,73	0,28	N	2,53	6,80
A - P2 - E10	5,44	0,33	O	2,91	7,82
A - P2 - E11	7,32	0,44	O	3,92	10,52
A - P2 - E12	8,24	0,49	N	4,41	11,85
A - P2 - E13	9,98	0,60	O	5,34	14,35
A - P2 - E14	10,37	0,62	O	5,55	14,91
A - P2 - E15	10,67	0,64	O	5,71	15,34
A - P2 - E16	10,71	0,64	O	5,73	15,40
A - P2 - E17	12,79	0,77	O	6,85	18,39
A - P2 - E18	17,35	1,04	O	9,29	24,94



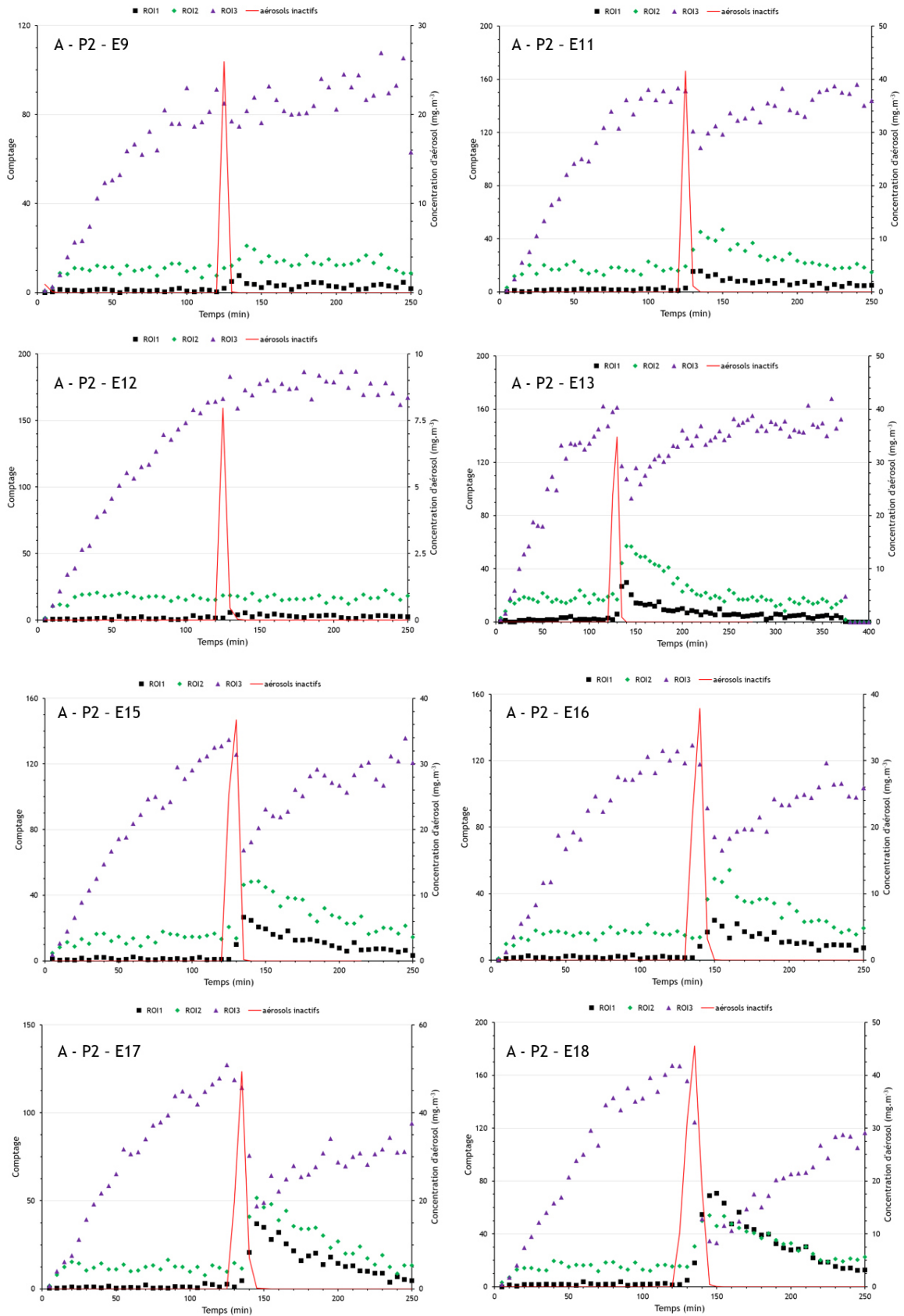
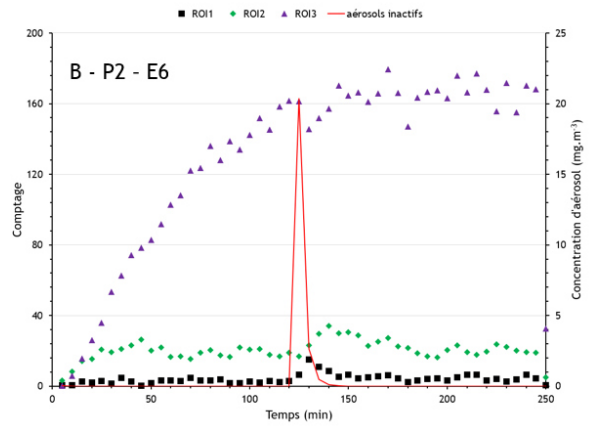
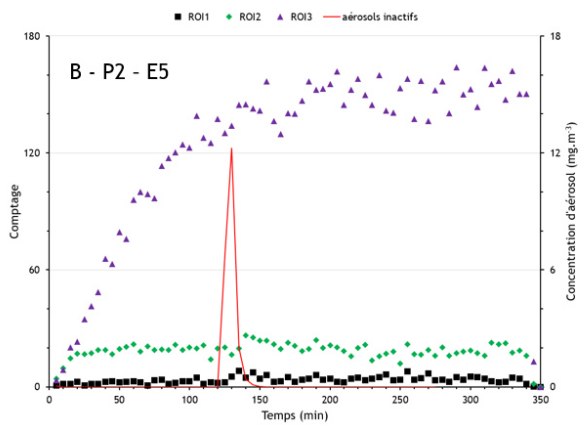
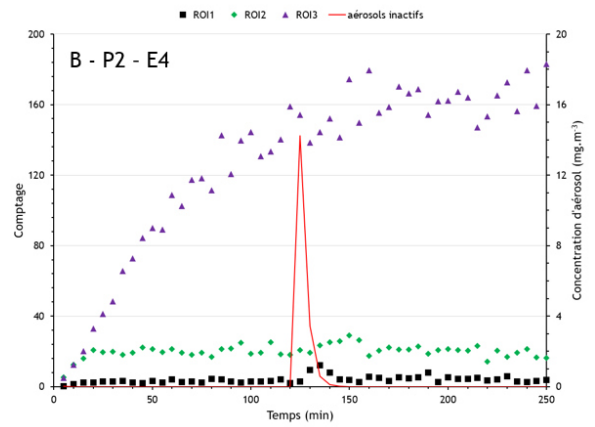
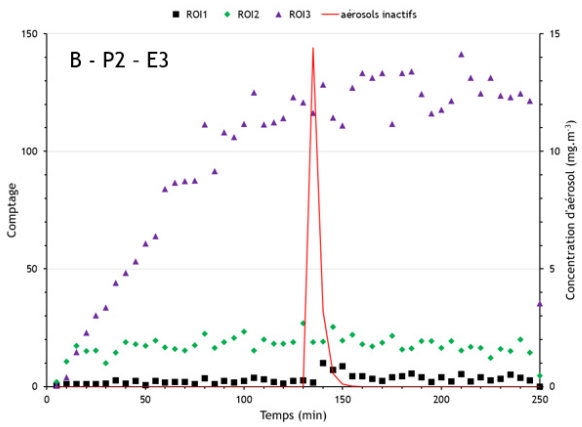
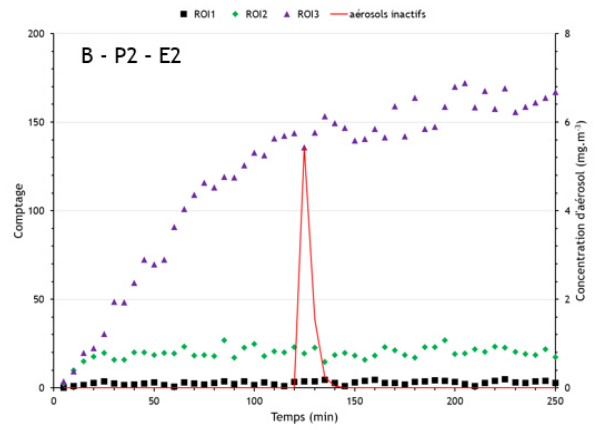
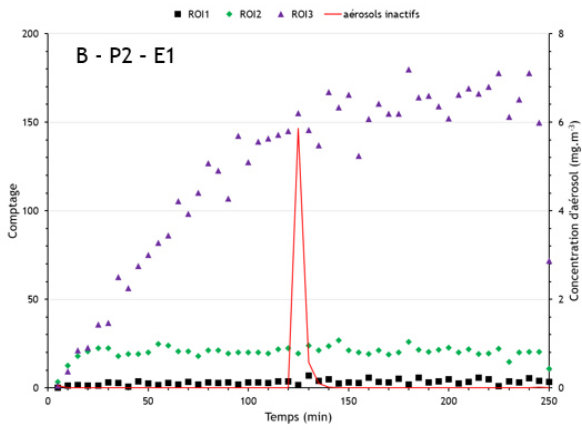


Figure 96 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs A (trait rouge) en fonction du temps

Aérosol B

Tableau 26 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol B sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise

B	M (mg)	U(m)	Alarme (O/N)	N_{moy}	E_{moy}
B - P2 - E1	1,16	0,07	N	0,33	1,47
B - P2 - E2	1,25	0,08	N	0,36	1,58
B - P2 - E3	3,08	0,18	N	0,89	3,90
B - P2 - E4	3,2	0,19	N	0,92	4,06
B - P2 - E5	3,64	0,22	N	1,05	4,61
B - P2 - E6	4,12	0,25	O	1,19	5,22
B - P2 - E7	5,05	0,30	O	1,46	6,40
B - P2 - E8	5,25	0,32	O	1,52	6,65
B - P2 - E9	6,35	0,38	N	1,83	8,05
B - P2 - E10	9,77	0,59	O	2,82	12,38
B - P2 - E11	9,99	0,60	O	2,88	12,66
B - P2 - E12	10,16	0,61	O	2,93	12,88
B - P2 - E13	11,63	0,70	N	3,36	14,74
B - P2 - E14	13,12	0,79	O	3,79	16,63
B - P2 - E15	19,23	1,15	O	5,55	24,37



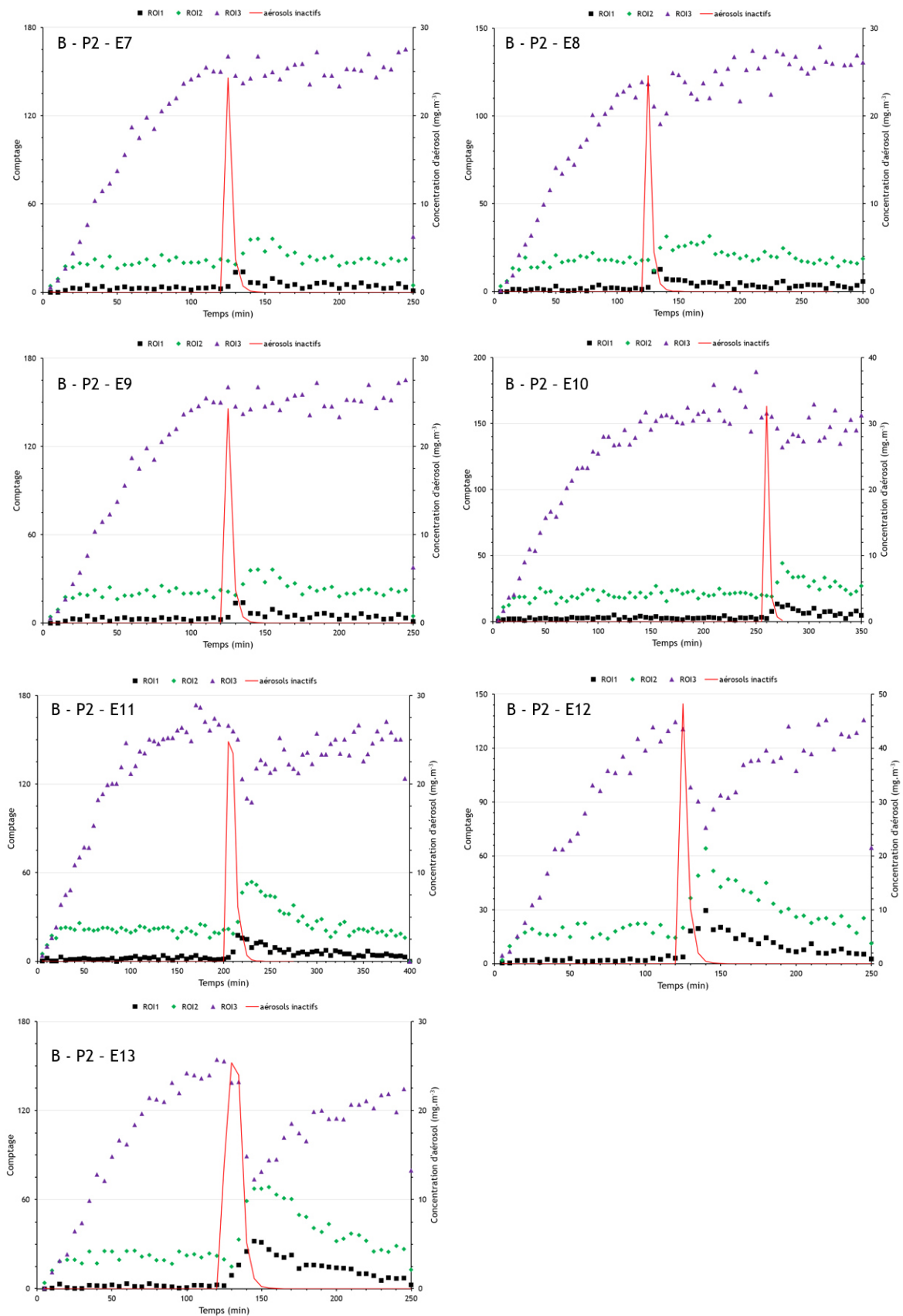
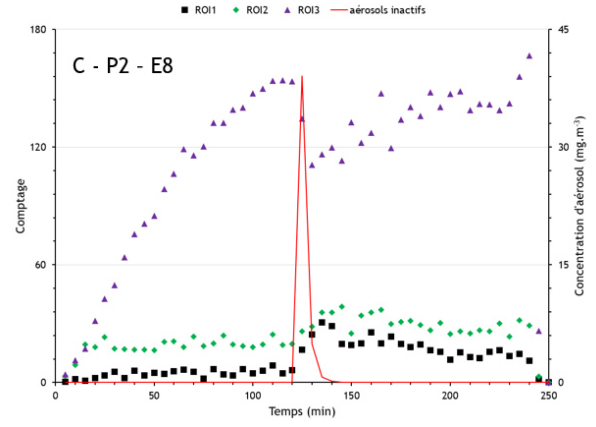
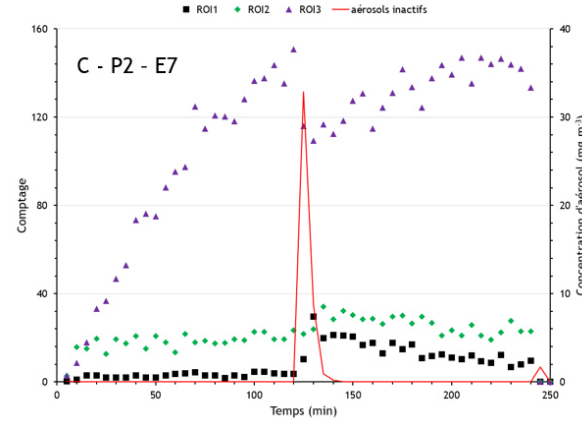
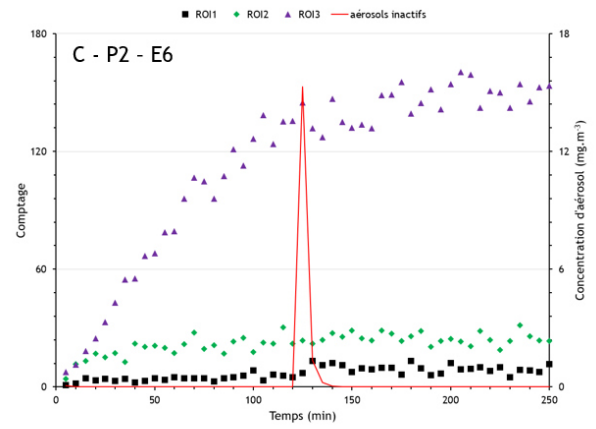
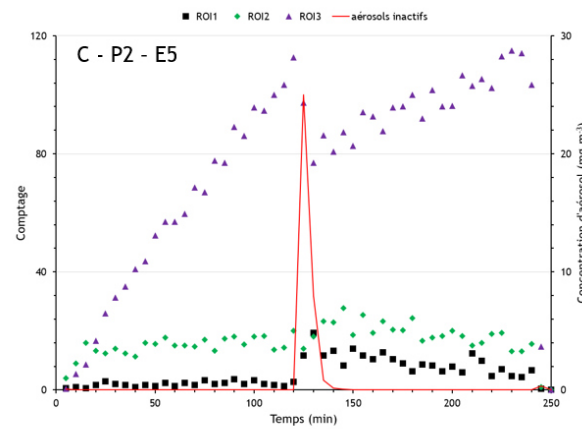
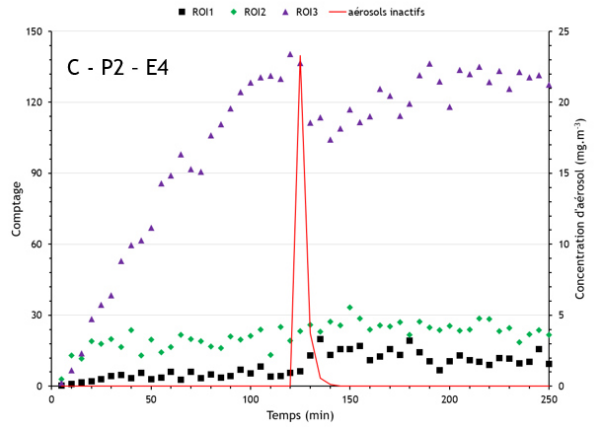
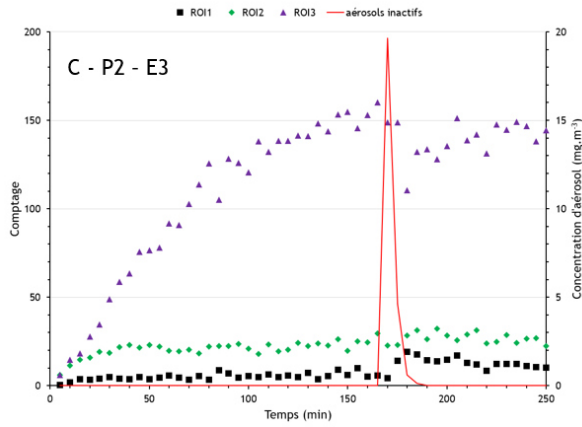
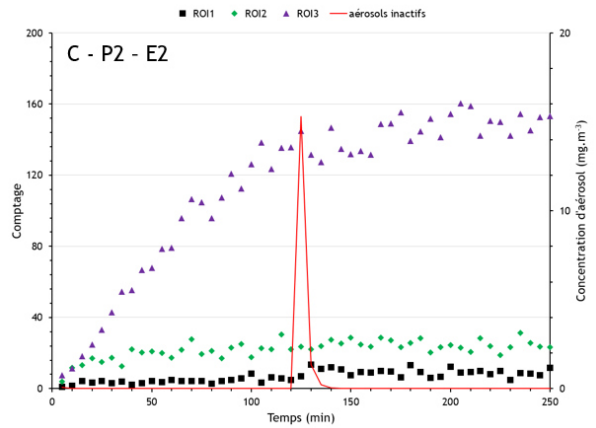
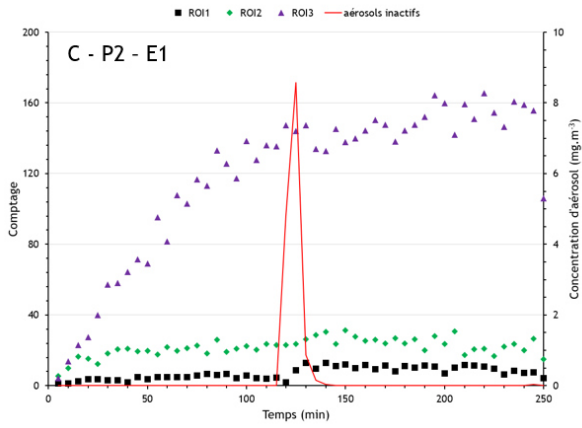


Figure 97 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans RO11 (carrés noirs), dans RO12 (losanges verts) et dans RO13 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs B (trait rouge) en fonction du temps

Aérosol C

Tableau 27 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol C sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise

Numérotation	M (mg)	U(m)	Alarme (O/N)	N_{moy}	E_{moy}
C - P2 - E1	2,49	0,15	O	0,27	2,74
C - P2 - E2	2,93	0,18	O	0,32	3,22
C - P2 - E3	4,35	0,26	O	0,48	4,78
C - P2 - E4	4,87	0,29	O	0,53	5,35
C - P2 - E5	5,76	0,35	O	0,63	6,33
C - P2 - E6	6,73	0,40	O	0,74	7,40
C - P2 - E7	7,26	0,44	O	0,79	7,98
C - P2 - E8	7,85	0,47	O	0,86	8,63
C - P2 - E9	9,09	0,55	O	0,99	9,99
C - P2 - E10	10,94	0,66	O	1,20	12,02
C - P2 - E11	11,23	0,67	O	1,23	12,34
C - P2 - E12	16,58	0,99	O	1,81	18,22
C - P2 - E13	17,72	1,06	O	1,94	19,48
C - P2 - E14	17,96	1,08	O	1,96	19,74



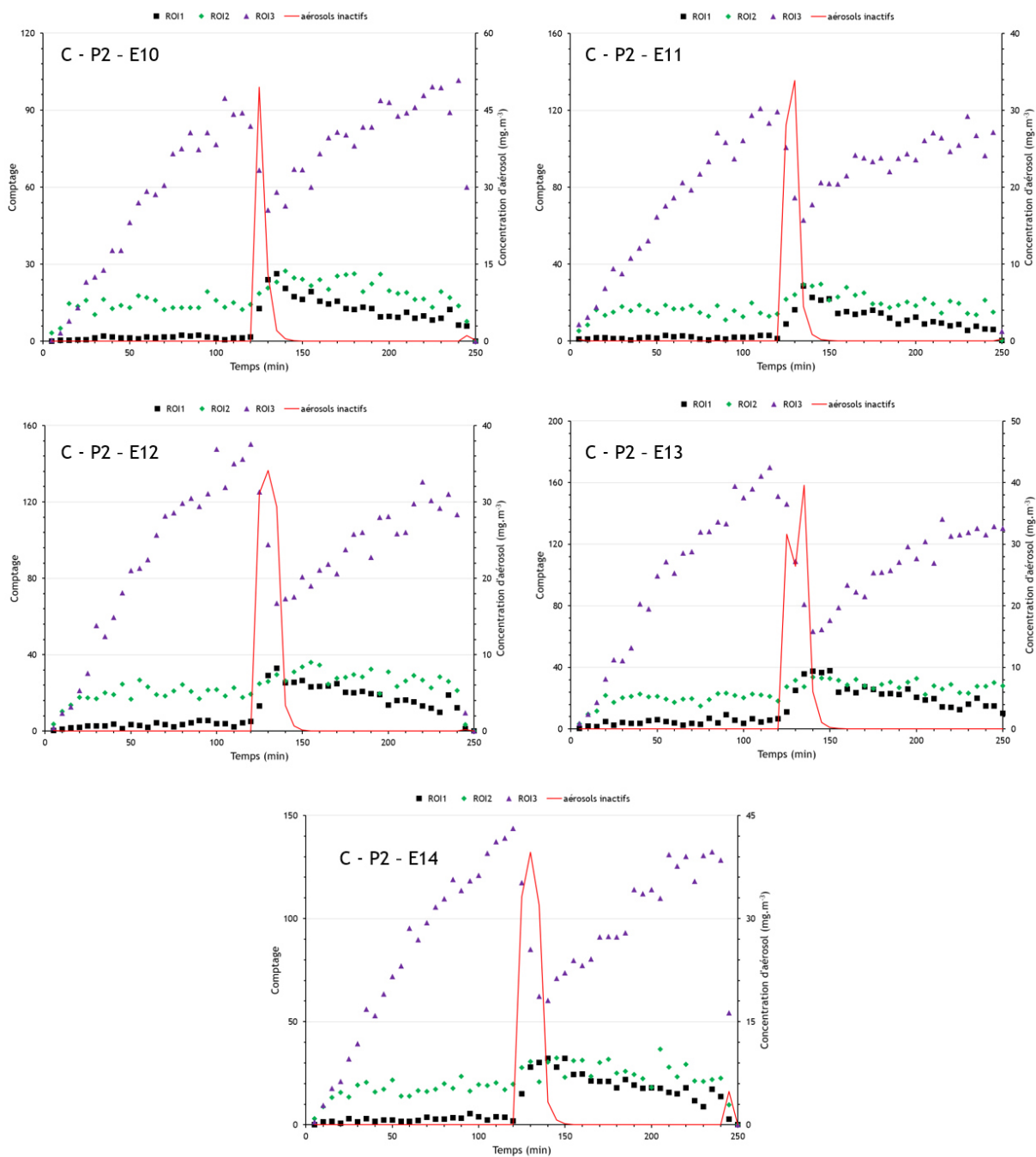
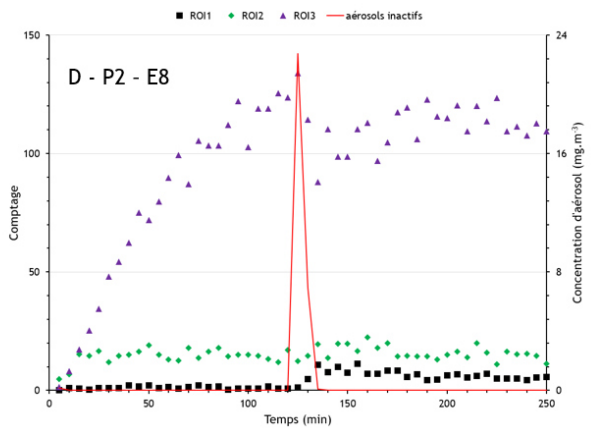
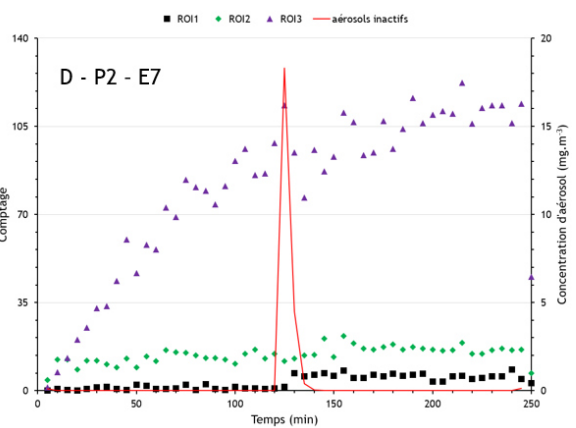
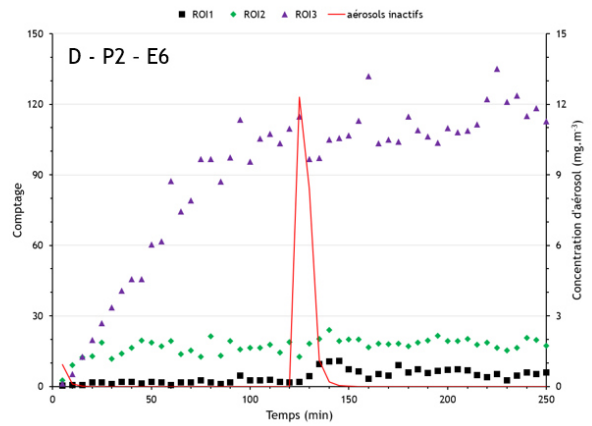
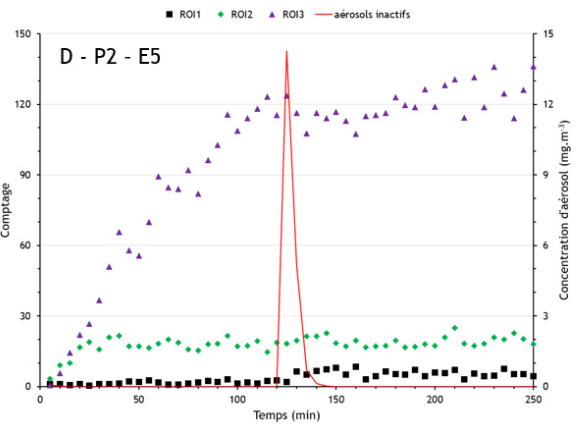
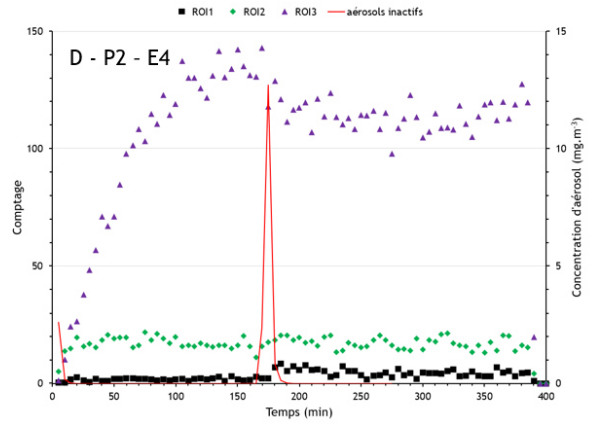
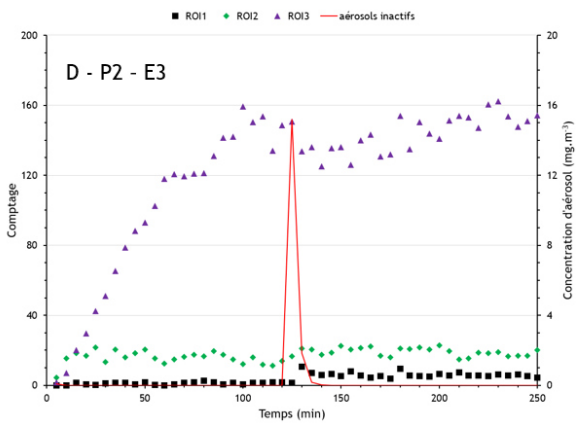
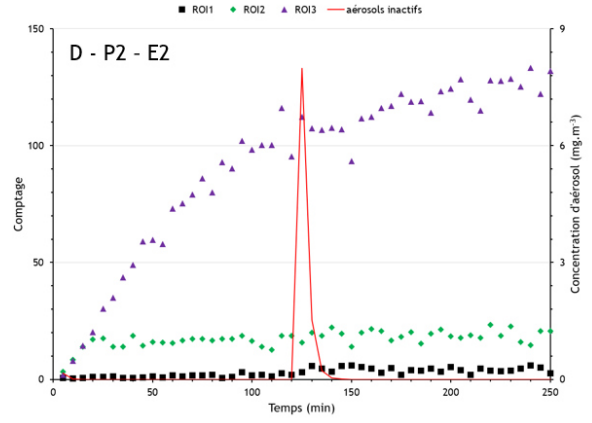
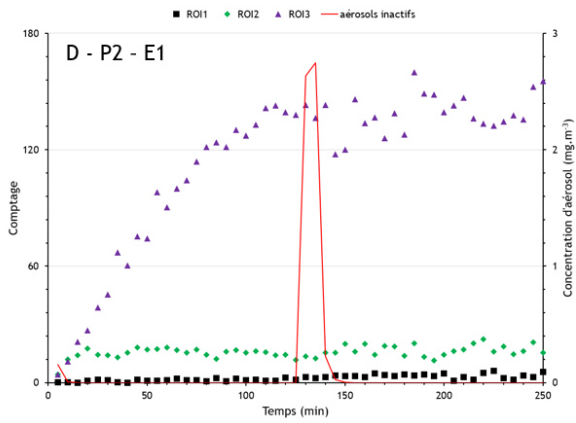


Figure 98 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs C (trait rouge) en fonction du temps

Aérosol D

Tableau 28 : Pour chaque essai mené avec l'aérosol D sont reportés, la masse prélevée accompagnée de son incertitude élargie ($k=2$), le N_{moy} et l' E_{moy} calculés correspondants. On repère également les essais pour lesquels une alarme de type faux positif a été émise

Numérotation	M(mg)	U(m)	Alarme (O/N)	N_{moy}	E_{moy}
D - P2 - E1	0,99	0,06	N	0,04	0,94
D - P2 - E2	1,75	0,11	O	0,06	1,67
D - P2 - E3	2,94	0,18	N	0,10	2,80
D - P2 - E4	3,28	0,20	O	0,12	3,12
D - P2 - E5	3,59	0,22	O	0,13	3,42
D - P2 - E6	4,05	0,24	O	0,14	3,86
D - P2 - E7	4,05	0,24	O	0,14	3,86
D - P2 - E8	5,21	0,31	O	0,18	4,96
D - P2 - E9	5,32	0,32	O	0,19	5,07
D - P2 - E10	5,37	0,32	O	0,19	5,11
D - P2 - E11	7,79	0,47	O	0,28	7,42
D - P2 - E12	8,15	0,49	O	0,29	7,76
D - P2 - E13	8,31	0,50	O	0,29	7,91
D - P2 - E14	12,09	0,73	O	0,43	11,51
D - P2 - E15	12,9	0,77	O	0,46	12,28
D - P2 - E16	13,28	0,80	O	0,47	12,65



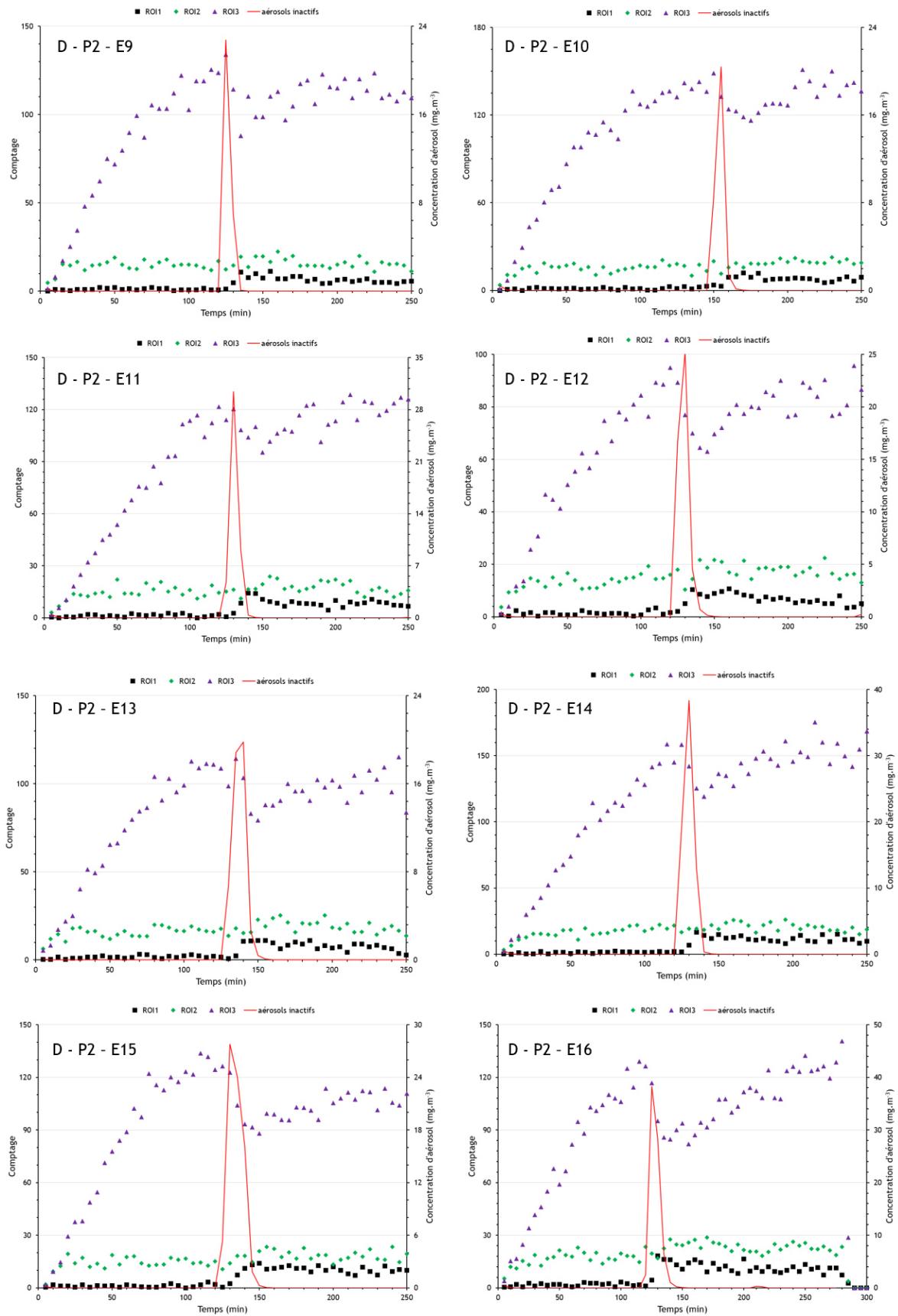


Figure 99 : Évolutions d'une part, des comptages mesurés dans ROI1 (carrés noirs), dans ROI2 (losanges verts) et dans ROI3 (triangles violets) en fonction du temps et d'autre part, de la concentration en aérosols non-radioactifs D (trait rouge) en fonction du temps

Annexe 5 : Spectres en énergies alpha mesurés par le CAM

Dans cette annexe sont reportés pour chaque granulométrie d'aérosol (A, B, C et D) :

- aux figures 100 - 101 - 102 et 103 : les spectres en énergies α mesurés pendant deux heures par le CAM pour chaque essai mené, soit respectivement avec l'aérosol A, B C et D,
- dans les tableaux 29 - 30 - 31 et 32 : les valeurs calculées des positions des pics ^{218}Po et ^{214}Po avec leur FWHM pour chaque essai menés avec respectivement l'aérosol A, B, C et D. Les cases avec le symbole « / » signifient une absence de spectre et donc de valeurs calculées.

Aérosol A

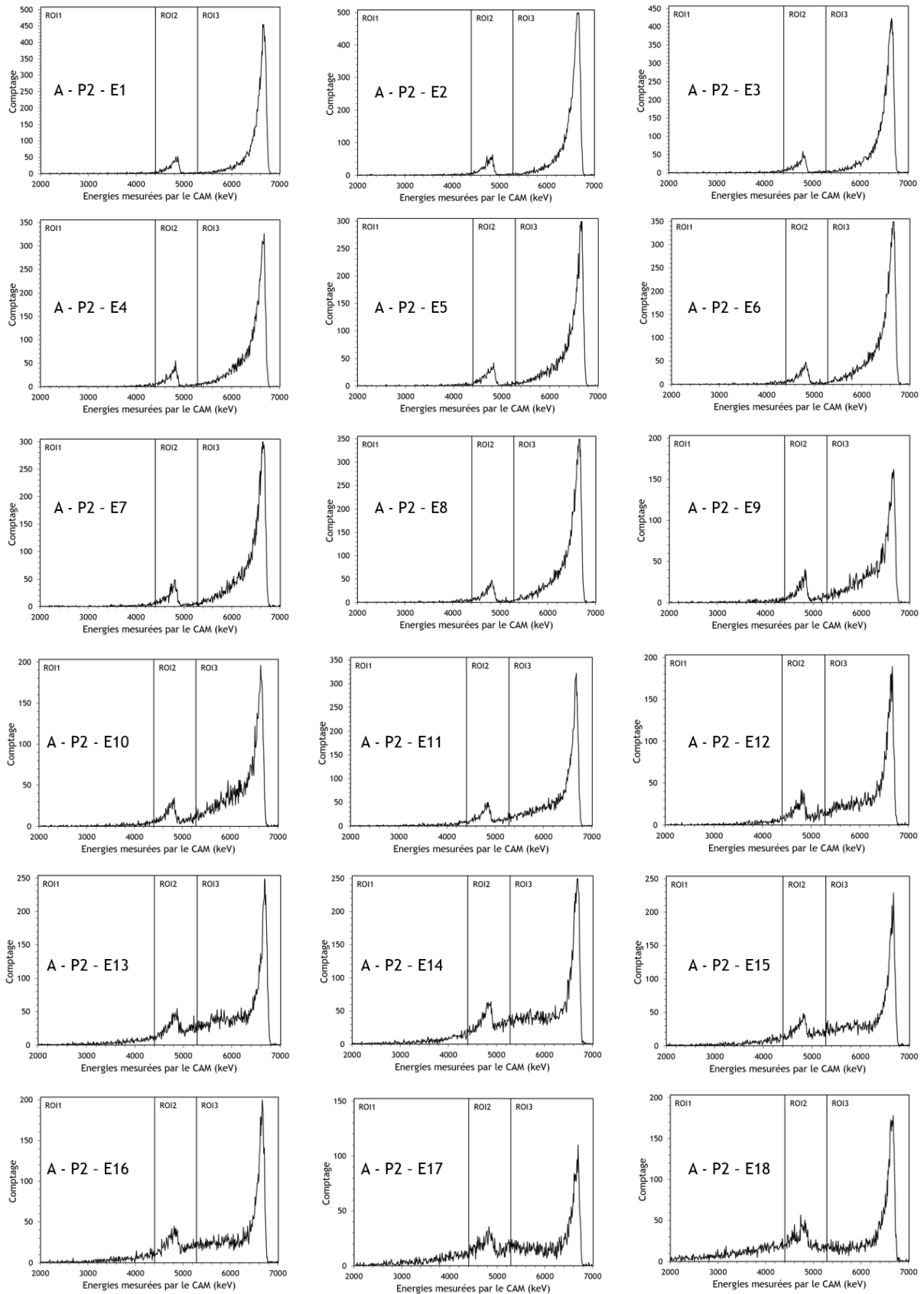


Figure 100 : Ensemble des spectres en énergies a enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol A

Tableau 29 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol A

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
A - P2 - E1	4872,68	6649,55	181,95	164,62
A - P2 - E2	4853,55	6667,84	172,4	164,66
A - P2 - E3	4805,7	6658,69	182,08	192,22
A - P2 - E4	4824,85	6676,97	114,93	183,04
A - P2 - E5	4834,42	6667,84	220,52	146,4
A - P2 - E6	4815,28	6667,84	239,69	146,36
A - P2 - E7	4805,7	6649,55	153,28	201,4
A - P2 - E8	4824,85	6667,84	162,81	146,33
A - P2 - E9	4824,85	6667,84	191,73	192,22
A - P2 - E10	4834,42	6640,41	210,91	183,04
A - P2 - E11	4834,42	6676,97	326,09	137,14
A - P2 - E12	4796,13	6667,84	316,46	146,4
A - P2 - E13	4824,87	6667,82	323,19	135,14
A - P2 - E14	4882,24	6686,11	354,34	155,43
A - P2 - E15	4824,85	6676,97	383,46	118,88
A - P2 - E16	4881,24	6686,15	313,46	144,4
A - P2 - E17	4824,85	6695,24	518,5	137,14
A - P2 - E18	4738,62	6676,97	422,68	155,53

Aérosol B

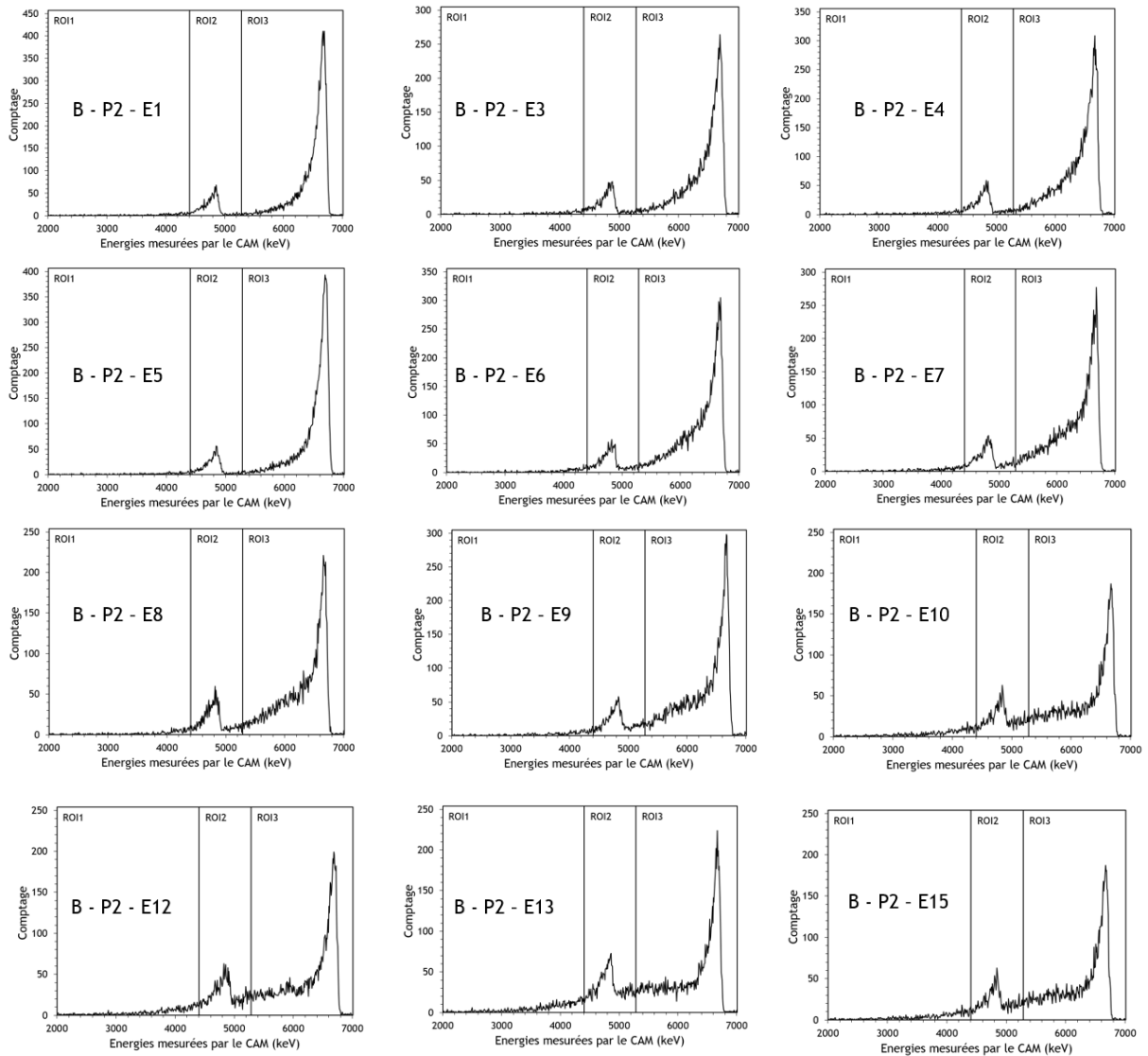


Figure 101 : Ensemble des spectres en énergies a enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol B

Tableau 30 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol B

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
B - P2 - E1	4853,55	6667,84	230,03	155,43
B - P2 - E2	/	/	/	/
B - P2 - E3	4882,24	6695,24	201,02	192,04
B - P2 - E4	4824,85	6667,84	182	164,66
B - P2 - E5	4843,99	6686,11	191,51	155,39
B - P2 - E6	4824,85	6686,11	210,81	201,3
B - P2 - E7	4815,28	6676,97	201,2	192,17
B - P2 - E8	4815,28	6658,69	210,81	155,49
B - P2 - E9	4834,42	6667,84	210,81	146,33
B - P2 - E10	4843,99	6667,84	249,14	164,66
B - P2 - E11	/	/	/	/
B - P2 - E12	4824,85	6686,11	258,57	146,27
B - P2 - E13	4863,12	6667,84	239,64	182,96
B - P2 - E14	/	/	/	/
B - P2 - E15	4864,12	6666,84	238,64	182,56

Aérosol C

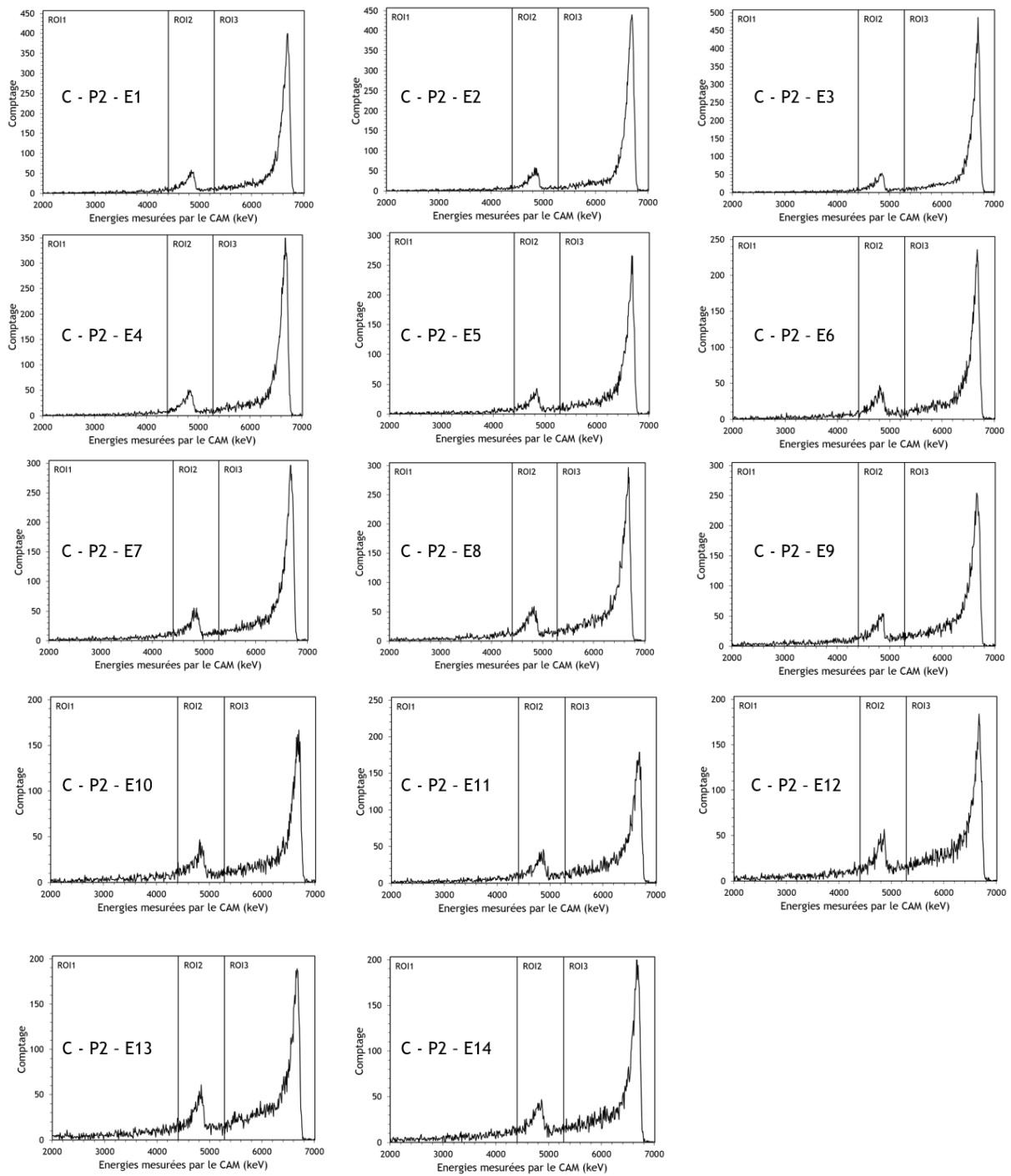


Figure 102 : Ensemble des spectres en énergies α enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol C

Tableau 31 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol C

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
C - P2 - E1	4843,99	6686,11	249,08	146,27
C - P2 - E2	4834,42	6695,24	210,61	155,39
C - P2 - E3	4853,55	6695,24	191,55	127,95
C - P2 - E4	4805,7	6676,97	201,11	137,11
C - P2 - E5	4834,42	6667,84	258,87	146,3
C - P2 - E6	4805,7	6667,84	249,19	146,33
C - P2 - E7	4805,7	6676,97	239,47	164,59
C - P2 - E8	4834,42	6676,97	287,6	146,33
C - P2 - E9	4853,55	6658,69	345,51	192,13
C - P2 - E10	4815,28	6695,24	210,75	182,92
C - P2 - E11	4872,68	6686,11	354,5	210,43
C - P2 - E12	4863,12	6667,84	220,36	155,46
C - P2 - E13	4843,99	6667,84	239,58	173,79
C - P2 - E14	4863,12	6667,84	364,54	155,43

Aérosol D

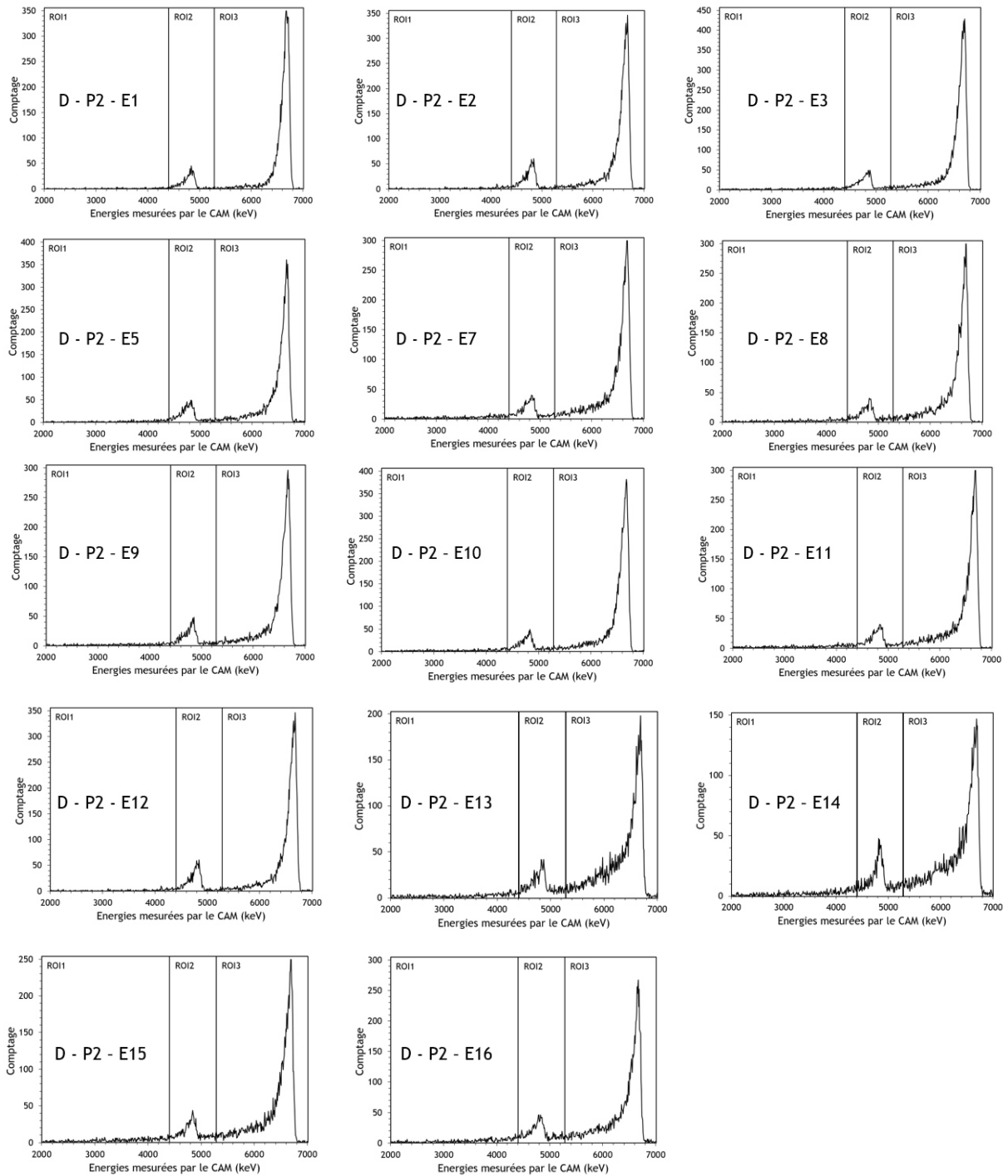


Figure 103 : Ensemble des spectres en énergies a enregistrés sur deux heures par le CAM lors des essais avec l'aérosol D

Tableau 32 : Ensemble des positions des pics, ^{218}Po et ^{214}Po , et de leur FWHM calculés à partir des spectres enregistrés à la fin de chaque essai mené avec l'aérosol D

Numérotation	Position (keV)		FWHM (keV)	
	^{218}Po	^{214}Po	^{218}Po	^{214}Po
D - P2 - E1	4843,99	6676,97	191,51	137,07
D - P2 - E2	4843,99	6676,97	182,04	155,49
D - P2 - E3	4853,55	6704,37	239,47	146,27
D - P2 - E4	/	/	/	/
D - P2 - E5	4824,85	6658,69	220,42	137,2
D - P2 - E6	/	/	/	/
D - P2 - E7	4853,55	6667,84	181,95	146,33
D - P2 - E8	4824,85	6686,11	220,31	173,79
D - P2 - E9	4815,28	6667,84	201,3	183
D - P2 - E10	4834,42	6676,97	230,03	146,3
D - P2 - E11	4843,99	6686,11	229,97	137,11
D - P2 - E12	4815,28	6686,11	153,1	182,96
D - P2 - E13	4824,85	6686,11	249,19	164,62
D - P2 - E14	4843,99	6686,11	229,86	164,55
D - P2 - E15	4843,99	6695,24	181,92	146,3
D - P2 - E16	4786,55	6667,84	229,92	173,83

Annexe 6 : Comparaison entre K_{vrai} et K_{12} calculé à partir des spectres mesurés sur deux heures

À la suite d'une brève remise en suspension d'aérosols non-radioactifs, lesquels se retrouvent être échantillonnés et collectés sur filtre par le CAM, la mesure nucléaire suit deux évolutions, une première durant la période $t_0 + 30$ et une seconde durant la période $t_{30} + 90$. Pour l'ensemble des situations d'exposition nous avons calculé l'évolution du ratio du comptage mesuré dans ROI1 ($\text{ROI1}_{\text{brut}}$) à celui mesuré dans ROI2 ($\text{ROI2}_{\text{brut}}$). Celui-ci correspond à la contribution réelle du bruit de fond dans ROI1. Les évolutions de ce ratio, qu'on caractérise par le paramètre K vrai, sont présentées ci-après en fonction de la masse de particules prélevée sur le filtre par le CAM et pour chaque granulométrie d'aérosols non-radioactifs mise en jeu dans l'étude. Pour chacune d'entre elle, quatre graphiques sont présentés. À chaque graphique, le paramètre K vrai (carrés rouge) a été calculé sur un pas de temps correspondant à trente minutes de mesure. Les graphiques en haut à gauche correspondent aux trente premières minutes qui suivent la brève remise en suspension d'aérosols non-radioactifs ($t_0 + 30$). Les graphiques en haut à droite aux trente minutes qui suivent ($t_{30} + 30$), ainsi de suite pour le graphique en bas à droite ($t_{60} + 30$) puis en bas à gauche ($t_{90} + 30$). Les barres d'erreurs verticales correspondent à la propagation des incertitudes calculées sur le paramètre K et celles horizontales à l'incertitude sur la masse pesée ($k=2$) avec la balance de précision. Sur ces mêmes graphiques, on confronte alors les valeurs calculées du paramètre de traîne, noté K_{12} calculé (disques noir).

Aérosol A (figure 104) et B (figure 105) : $DE_{\text{vMM}} < 10 \mu\text{m}$

Le paramètre de traîne K_{12} calculé représente bien la contribution du bruit de fond dans ROI1 et ce quelle que soit le moment de la mesure, sur une gamme en masse d'aérosol non-radioactifs accumulée allant jusqu'à au moins environ 5 mg. Au-delà, des mesures complémentaires sont à réaliser, dans l'étude nous utilisons une corrélation linéaire K_{12} calculée = f(masse accumulée) pour déterminer la valeur du paramètre adaptée.

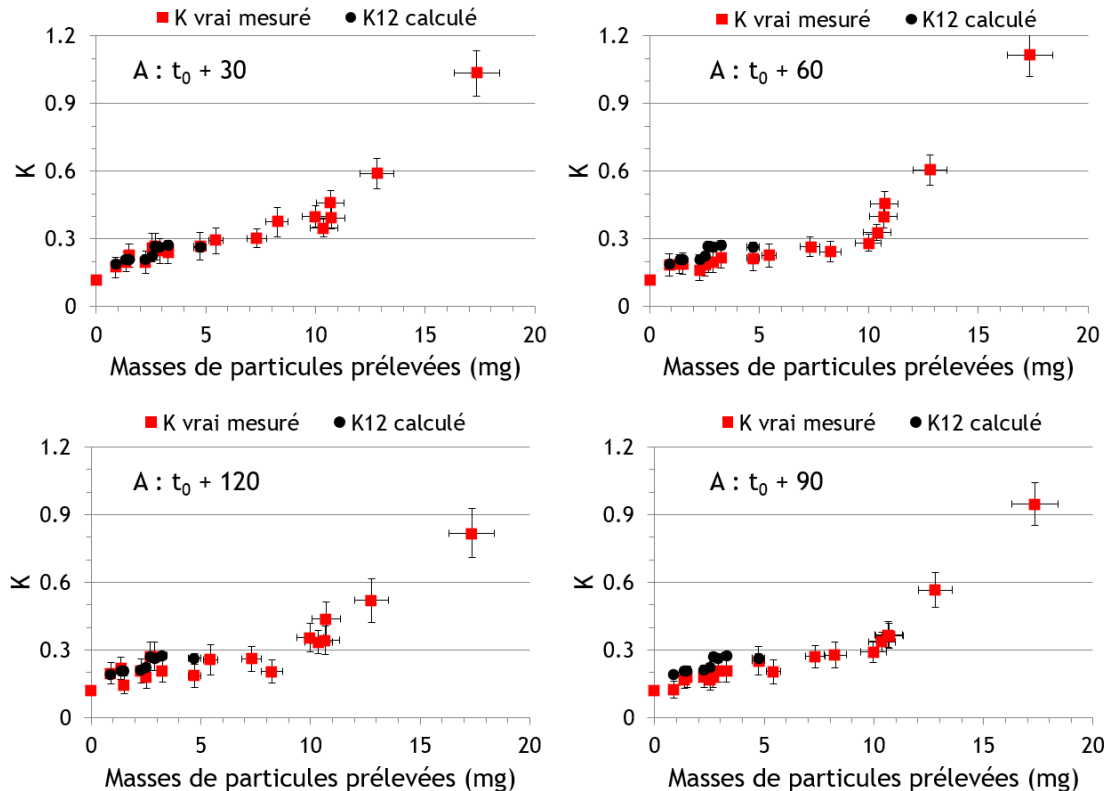


Figure 104 : Comparaison pour l'aérosol A entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes

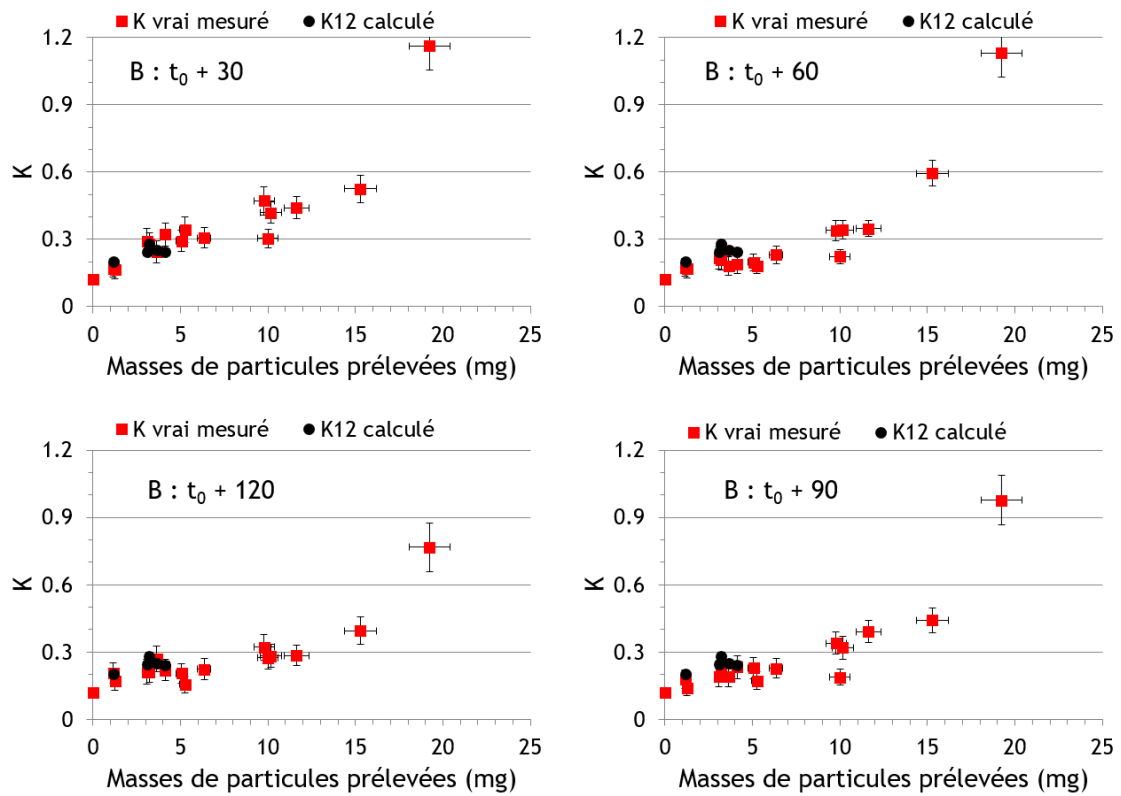


Figure 105 : Comparaison pour l'aérosol B entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes

Aérosol C (figure 106) et D (figure 107) : $DE_{VMM} > 10 \mu\text{m}$

Le paramètre de traîne K_{12} calculé représente de manière générale bien la contribution du bruit de fond dans ROI1 avec toutefois une légère sous-estimation de celui-ci à la suite d'une brève génération d'aérosol (visible sur la période $t_0 + 30$ avec l'aérosol C).

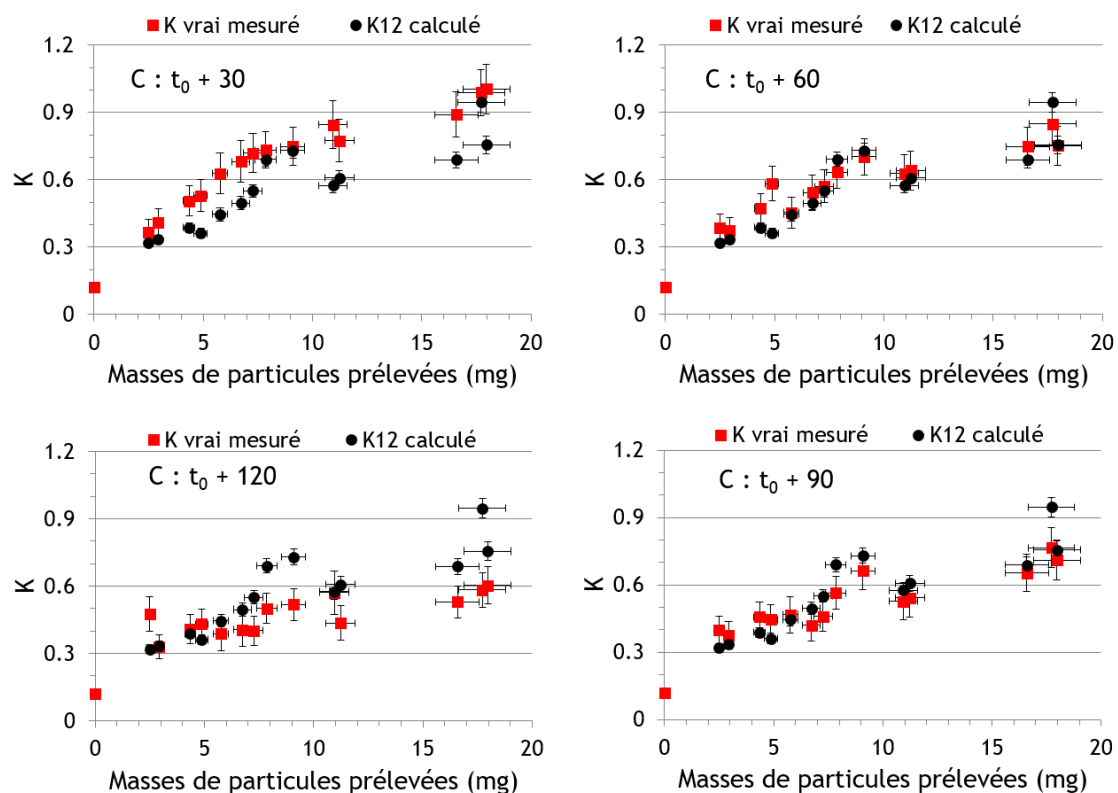


Figure 106 : Comparaison pour l'aérosol C entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes

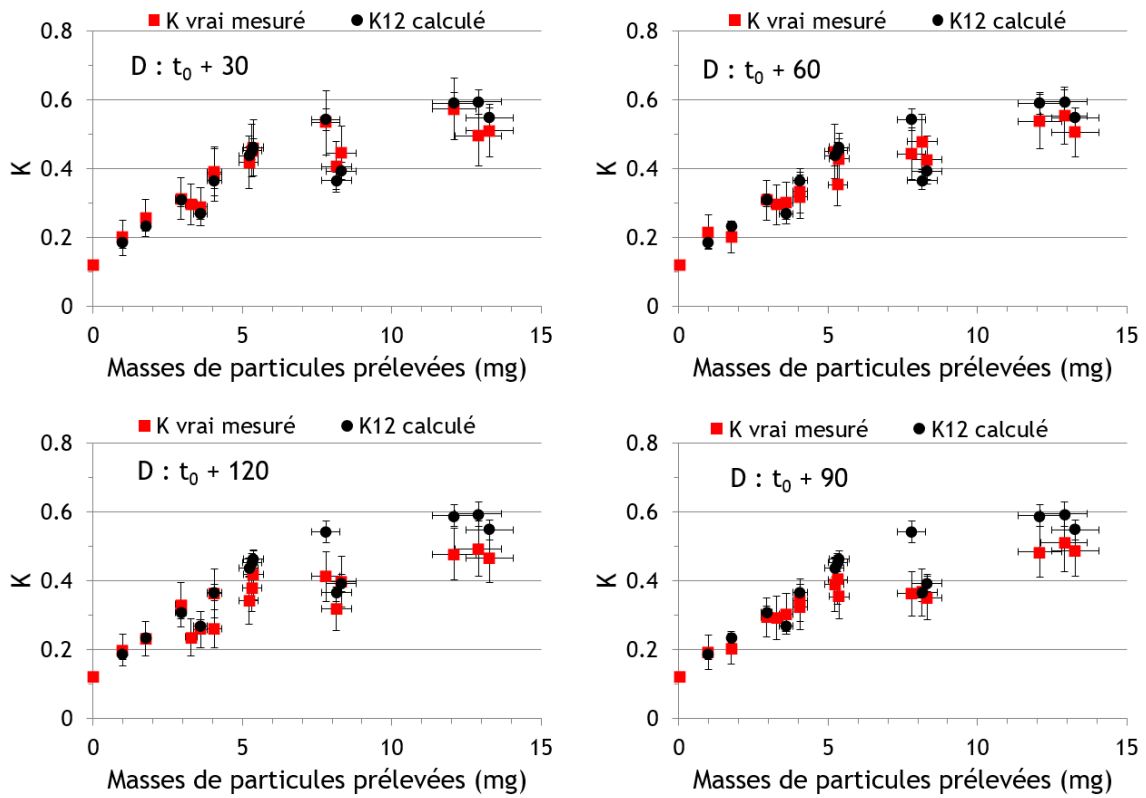


Figure 107 : Comparaison pour l'aérosol D entre la valeur K_{12} calculée à partir du spectre en énergie mesuré sur deux heures et la valeur de K vrai mesuré à partir des données enregistrées par le CAM sur des pas de temps correspondant à trente minutes

Titre : Étude de la limite de détection et des fausses alarmes émises par les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique dans les chantiers de démantèlement.

Mots clés : aérosols radioactifs, bruit de fond, compensation dynamique du bruit de fond, limite de détection, faux positifs

Résumé : Les moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique sont utilisés dans les installations nucléaires afin d'assurer la radioprotection des travailleurs vis-à-vis de l'exposition aux aérosols radioactifs. Les performances de ces moniteurs sont évaluées dans des conditions normatives IEC, lesquelles couvrent une large gamme d'atmosphères de travail. Dans des situations typiques de celles mesurées en chantier de démantèlement nucléaire, lesquelles sont d'ailleurs hors cadre IEC, un comportement inattendu des moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique est souvent observé. Celui-ci correspond à l'émission d'une alarme de type faux positif. L'objectif de ce travail de thèse est d'améliorer les connaissances sur le comportement des moniteurs de mesure de la contamination radioactive atmosphérique dans des situations hors conditions normative IEC. Pour ce faire, un dispositif expérimental spécifique a été

conçu, à l'intérieur duquel la reproduction d'atmosphères typiques de celles mesurées en chantier de démantèlement est possible. Ainsi, ce dispositif a rendu possible l'étude en laboratoire du comportement d'un moniteur de mesure de la contamination radioactive atmosphérique de type ABPM203M. Cette étude expérimentale a permis d'une part, de mettre en avant les conditions qui conduisent à un comportement inattendu du moniteur et d'autre part, de démontrer les raisons pour lesquelles une alarme de type faux positif est souvent émise dans ces conditions hors IEC. A la synthèse des résultats de l'étude, un procédé nouveau de mesure a été proposé, lequel permet d'une part, de considérer à la fois les caractéristiques des aérosols non-radioactifs et celles des aérosols radioactifs et d'autre part, d'améliorer la mesure effectuée par le moniteur permettant de toujours assurer la radioprotection des travailleurs.

Title: Study of the detection limit and false positives emitted by the Continuous Air Monitor in the decommissioning sites

Keywords: radioactive aerosols, background, dynamic background compensation, detection limit, false positives

Abstract: The Continuous Air monitors are used in the nuclear facilities for ensuring the radiation protection of workers who are likely to be confronted to radioactive aerosols. The CAM behavior are evaluated under IEC normative conditions. In atmospheric conditions as measured in decommissioning nuclear sites, outside of IEC, wrongs CAM behavior are observed. Which correspond to the false positives triggering. The aim of this thesis work is to enhance the knowledge about the CAM behavior when it is faced to outside IEC normative conditions. A specific experimental chamber has been designed, inside which the reproduction of the dismantling nuclear site atmosphere is achievable.

Thus, this experimental chamber made it possible, in the laboratory, the study of the behavior of a CAM type ABPM203M. With the results we have, on the one hand, highlighted the conditions which lead to unexpected behavior of the CAM and, on the other hand, demonstrated the reasons why a false positive alarm is often emitted under these conditions, outside IEC. At the synthesis of the results of the study, a new measurement process was proposed, which makes it possible, on the one hand, to consider both the characteristics of non-radioactive aerosols and those of radioactive aerosols and on the other hand, to improve the measurement achieved out by the CAM to always ensure the radiation protection of workers

