



# THÈSE

En vue de l'obtention du  
**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

---

Présentée et soutenue par

**JULIEN AMESTOY**

Le 19 mars 2021

**Etude de l'influence des facteurs environnementaux sur la spectrométrie gamma aéroportée et application à la surveillance environnementale de sites**

---

Ecole doctorale : **SDU2E - Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace**

Spécialité : **Surfaces et interfaces continentales, Hydrologie**

Unité de recherche :

**IRAP - Institut de Recherche en Astrophysique et Planetologie**

Thèse dirigée par

**Pierre-Yves MESLIN et David BARATOUX**

Jury

M. Michel CUNEY, Rapporteur

M. Abdel-Mjid NOURREDDINE, Rapporteur

M. Guillaume MARTELET, Rapporteur

Mme Géraldine IELSCH, Examinatrice

M. Pierre-Yves MESLIN, Directeur de thèse

M. David BARATOUX, Co-directeur de thèse

M. Pieter VAN BEEK, Président



---

*"Dans la nature, tout a toujours une raison.  
Si tu comprends cette raison, tu n'as plus besoin de l'expérience."*

*Léonard de Vinci*

---





## Remerciements

Ces travaux de thèse ont été réalisés au travers d'une convention de collaboration entre le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives et l'Université Paul Sabatier. Je tiens à remercier le CEA pour son engagement financier et l'opportunité de participer à un projet rassemblant autant de thématiques centrées sur les études environnementales.

Et voilà, comme toute aventure, ces trois années de thèse, cinq si l'on compte toutes mes années IRAP, se termine et elle se doit de rendre hommage à toutes les personnes qui y ont contribué que ce soit au travers de leur collaboration scientifique, leur soutien, les conseils toujours avisés et interrogations qui en découlent, leurs encouragements, leur passion. Grâce à vous, j'ai pu évoluer au sein d'un environnement toujours en ébullition qui m'a permis d'enrichir ma réflexion et mes connaissances.

En premier lieu, j'aimerais remercier les membres du jury qui ont accepté de porter leur regard constructif et bienveillant à l'égard de ce travail : Pieter Van Beek, en sa qualité de président ; Michel Cuney, Abdel-Mjid Nourreddine, Guillaume Martelet, Géraldine Ielsch pour avoir accepté d'être rapporteur et examinateur d'un si volumineux manuscrit. Ce fut un honneur de présenter ce travail à un tel jury d'experts et vos commentaires sur la richesse et la qualité du manuscrit m'ont touché.

Pierre-Yves (ou monsieur "radon"!), je tiens à t'exprimer toute ma gratitude pour m'avoir fait confiance pour mener à bien ce projet qui je sais te tenait particulièrement à cœur. Tu m'as offert une opportunité incroyable, moi qui n'étais pas un fervent partisan de la thèse, et j'ai été ravi de faire ce voyage "terrestre" avec toi. Je te remercie pour ton soutien, ton aide à toute heure du jour (et de la nuit), nos discussions scientifiques et d'autres plus frivoles, nos idées un peu folles pour "faire avancer la science", nos campagnes de terrain à Lannemezan avec des missions de prélèvements nocturnes cachés dans les champs de maïs dont nous seuls avons le secret. Tu me laisses avec plein de souvenirs dans la tête où coïncident des moments de joies, de doutes, de réussites, de réflexion, de science, de franche rigolade, et des exercices pour ma mémoire dont toi seul connaît les ingrédients. Une thèse, c'est avant tout un binôme qui se cherche et qui s'exprime et je crois qu'au travers de ce manuscrit, nous avons montré notre connexion, notre convergence et la richesse des discussions scientifiques qui nous ont orientées vers les bonnes problématiques. Je te remercie également de m'avoir entraîné dans l'euphorie martienne et lunaire au travers de plusieurs études, c'était captivant ! J'attends maintenant les résultats de DORN avec impatience !

David, je te remercie d'avoir accepté de co-encadrer cette thèse. Tu as toujours montré un grand enthousiasme sur l'orientation donnée à ce travail. Tes nombreux conseils m'ont toujours permis de me poser les bonnes questions au bon moment. Merci de m'avoir initié à la spectrométrie  $\gamma$  *in situ* avec le BGO et de m'avoir fait partager ton investissement pour développer les sciences de la Terre et la planétologie

en Afrique. Je suis convaincu que nous verrons un jour des vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée au-dessus de Rochechouart !

J'éprouve également une immense reconnaissance envers Aude Delpuech et Patrick Richon, mes deux co-encadrants du CEA sans qui ce projet n'aurait pu voir le jour. Cette thèse est née de vos réflexions et de votre investissement à toute épreuve. Je vous remercie pour vos conseils, vos idées et votre optimisme communicatif ! Patrick, merci de m'avoir transmis une petite partie de ton ample savoir-faire technique et scientifique sur le radon ainsi que d'avoir partagé une grande partie de tes anecdotes sur tes expériences de terrain. Aude, merci pour ton dynamisme et soutien inconditionnel sur cette fin de thèse et pour avoir toujours trouvé les moyens de répondre à nos besoins farfelus. Je ne vous remercierai jamais assez de me permettre de continuer ce que nous avons initié au sein de votre laboratoire au CEA et de me faire confiance sur de nouveaux projets !

Je tiens également à remercier très chaleureusement l'ensemble de l'équipe du Centre de Recherches Atmosphériques ! Merci à Solène, Éric et Antoine pour nous avoir aidés à l'installation de nos instruments et d'en assurer la maintenance, encore aujourd'hui. Sans vous et vos interventions rapides, le jeu de données n'aurait pas été aussi complet ! Ce fut un réel plaisir de venir régulièrement sur site grâce à votre joie de vivre et votre bonne humeur. Il est facile d'être emporté par le charme de la nature sur le site avec une telle vue imprenable sur les Pyrénées et le Pic du Midi de Bigorre. Merci à Pierre, Marie, Fabienne et Yannick d'avoir accepté que ce projet vienne s'installer à Campistrous et pour les discussions scientifiques sur les thématiques atmosphériques. Jean-Bernard, merci pour la logistique ! Je veux aussi remercier François Gheusi du Laboratoire d'Aérodynamique sans qui le choix du site pilote n'aurait pu être plus judicieux. Je te remercie également pour nos échanges sur l'étude de la dynamique du radon entre le P2OA-CRA et le Pic du Midi.

Je remercie Pieter Van Beek, Marc Souhaut et Thomas Zambardi du laboratoire LEGOS/LAFARA pour leur accueil chaleureux au sein de cette structure et pour leur enthousiasme. Je vous remercie pour votre assistance technique, pour la visite du laboratoire et pour avoir réalisé toutes les analyses sur les sols de Lannemezan. Marc, Thomas, merci pour nos échanges sur l'analyse spectrale ! J'ai également été ravi de contribuer avec vous à l'élaboration d'un conditionnement hermétique au radon pour les mesures de radioactivité gamma ! Vous donnez vie à toutes vos expériences toujours dans la bonne humeur !

Je veux remercier également toutes les personnes de l'IRAP qui ont contribué de près ou de loin à cette thèse et notamment sur le volet expérimental. Merci à Romain et Thierry pour leur assistance technique sur le support mécanique de calibration et de l'avoir rendu possible. Olivier, merci pour tes conseils et ta contribution sur les connexions électriques et électroniques des instruments ! Eric, merci pour le prêt du four ! Merci à Dorine, Josette et Nicole pour avoir toujours trouvé des solutions pour faciliter le projet. Je tiens à adresser mes remerciements à Vincent qui m'a initié au code GEANT-4, et dont les discussions techniques ou relatives au monde du nucléaire, parfois jusqu'à des heures tardives m'ont beaucoup intéressé. Comprendre les spécificités de la géométrie spatiale par GEANT-4 fut un grand moment que nous

avons réussi à surmonter ensemble ! Place maintenant au "Basil Smash" et aux bières en terrasse.

Je souhaite remercier l'équipe Hélinuc® du CEA et notamment Stéphanie Ménard, Dominique Apt et Nicolas Conte pour avoir accepté de réaliser un vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur le P2OA-CRA. Un grand merci pour m'avoir permis de faire mon baptême de l'air en hélicoptère sur ce projet et pour m'avoir montré le fonctionnement de votre système en conditions opérationnelles réelles. Ce fut un moment intense et inoubliable et je vous remercie d'y avoir contribué. Un grand merci à Pascal Chotard pour m'avoir formé à l'utilisation de son système de cartographie  $\gamma$  pédestre CREMP : un nom prémonitoire une fois réalisées les longues heures de marche au grand air. Merci également à Olivier Araspin pour m'avoir initié aux mesures par fluorescence X et pour ton implication dans ces analyses. Merci à Lionel Schaper pour le prêt de la centrale d'acquisition et des sondes de suivi de l'humidité du sol.

Je tiens à remercier Frédéric Perrier et Frédéric Girault de l'Institut de Physique du Globe de Paris pour avoir effectué les mesures de concentration effective en radium et d'en assurer les explications techniques et scientifiques. Nos discussions furent très enrichissantes et nous avons désormais investi dans des sachets zippés dignes de ce nom !

Je remercie Nicolas Martin-Burtart de la société Radiations Solutions, à l'origine du spectromètre NaI(Tl) utilisé dans cette thèse, pour toutes ses explications techniques.

Un merci à Hugo, Gabriela et Sarah pour ces différents stages et alternance réalisés avec Pierre-Yves et moi qui furent pour ma part riche d'enseignements. Votre soutien et votre contribution au projet a été indispensable.

Plus largement, j'aimerais remercier toute l'équipe du Carré Mars qui m'a accueilli au sein de l'IRAP : merci Sylvestre pour toutes ces discussions passionnantes sur Mars et m'avoir fait vivre l'euphorie d'un projet martien, merci à Olivier pour ton implication considérable sur les missions martiennes et sur la coordination de toute l'équipe et pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur le projet d'amélioration du système de pointage de ChemCam, Olivier pour tes conseils et pour être toujours toi-même, Agnès pour tes conseils en enseignement et ton implication dans tous les projets, Jérémie et Gaëtan pour la richesse des discussions sur la planétologie et enfin Paolo pour avoir été un super co-bureau avec ta bonne humeur communicative. Je voudrai aussi remercier Gaël, Baptiste, Kristin et Amaury mes collègues thésards et post-doctorants dont un avenir radieux les attend ! Un merci à Étienne et Dimitri pour leur soutien dans la colorisation des images RMI de ChemCam ! Cette équipe est un mélange de Curiosité et de Persévérance : Go ChemCam, Go SuperCam !

Maman, Papa, ces quelques lignes ne suffisent pas à vous dire combien je suis reconnaissant. Je vous remercie d'avoir fait de moi ce que je suis aujourd'hui, de m'avoir toujours soutenu (même si vous pensiez que j'avais tort), de m'avoir laissé grandir tout en me guidant et faire mes propres choix. Merci de m'avoir rendu curieux et ouvert d'esprit, de m'avoir écouté, encouragé, réprimandé quand il le fallait, de m'avoir responsabilisé ou remonté le moral quand il n'était plus là ! Ce parcours atypique a finalement débouché sur la réussite de ce doctorat, tout est possible. Je remercie aussi mon frère, Cédric, et ma soeur, Maëva, pour leur soutien

indéfectible toutes ces années. Hélène, tu sais tout le bien que je pense de toi et la fierté que j'éprouve à être ton beau-frère.

Enfin, je souhaite remercier tout particulièrement cette jeune demoiselle qui riait aux éclats depuis le troisième étage de ce bâtiment un peu lugubre de l'université d'Orsay, malgré son rhume et habillé de son pull un peu large gris et orange. Huit années se sont écoulées depuis ce jour agrémentées de quelques expériences notables, de changement de parcours, et tu es toujours fidèle à toi-même. Pour moi, ces années étaient les plus belles de toutes car je les ai vécues avec toi. Merci pour ta confiance absolue, ton sourire, tous ces mangas japonais que tu me fais regarder malgré mes réticences, nos projets ensemble. Tout simplement, je te remercie d'être là et d'illuminer mon quotidien. Ne change pas, tu es parfaite ma Cindy. Une pensée également pour nos trois félins un peu gloutons, parfois machiavéliques mais toujours emplis d'amour avec qui j'ai partagé l'écriture de ce manuscrit en plein milieu d'un confinement de l'année 2020 et dont l'un d'entre eux a inspiré le nom d'un protocole : Anakine, Grelot et Pastel.

## Résumé

La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est une technique de mesure efficace pour établir le bilan radiologique ponctuel d'un site de grande étendue. Son application à la surveillance environnementale et au suivi de la radioactivité naturelle nécessite une répétabilité temporelle des cartes de concentration des radionucléides dans le sol. Le caractère innovant de cette étude repose sur l'acquisition couplée de spectres  $\gamma$  issus d'un vol stationnaire simulé à 50 mètres et de mesures de facteurs environnementaux sur une chronique temporelle continue de 14 mois, entre Avril 2019 et Juin 2020, qui a permis de caractériser les facteurs d'influence. Le site d'application, le P2OA-CRA de Lannemezan, a été choisi pour la présence d'un mât météorologique de 60 mètres permettant d'installer un spectromètre NaI(Tl), de type RSX-5 de même composition que celui utilisé lors des campagnes de mesures du CEA. L'objectif principal de cette thèse est de s'affranchir des différents biais de mesures pour isoler le signal  $\gamma$  émis depuis le sol. Ainsi, les chroniques temporelles ont permis d'observer et de quantifier les effets environnementaux associés à la variation de l'humidité du sol, de la pression atmosphérique, du rayonnement cosmique, des précipitations et du radon-222 atmosphérique. Chaque paramètre a fait l'objet d'une étude dédiée qui a débouché sur la mise en place d'une correction de cet effet sur le signal  $\gamma$  mesuré. La prise en compte de l'atténuation des rayons  $\gamma$  en fonction de l'humidité, couplée à des simulations Geant-4, ont validé la correction des effets de l'humidité du sol. Elles permettent d'exprimer les concentrations des radionucléides en sol sec et ne sont donc plus fonction de l'humidité du sol à l'instant de la mesure, qui représente une importante source de variabilité. Cette procédure a d'abord été validée pour le  $^{40}\text{K}$ , le  $^{232}\text{Th}$  ainsi que le  $^{137}\text{Cs}$ , puis pour le  $^{238}\text{U}$ , une fois l'influence du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique soustraite du signal. Cette correction est également applicable en utilisant les humidités du sol acquises par télédétection satellitaire, notamment les produits L4 de SMAP. Une étude complémentaire sur le suivi du profil de l'humidité du sol par des rayonnements  $\gamma$  d'un même radionucléide à différentes énergies ouvre des perspectives d'application en agriculture de précision. La caractérisation d'une fenêtre d'énergie centrée sur le rayonnement cosmique a permis d'éliminer leur influence sur le signal  $\gamma$  mesuré. Si l'effet du cycle semi-diurne de la pression atmosphérique sur les taux de comptage a pu être mis en évidence pour tous les radionucléides, son influence limitée n'a pas fait l'objet d'une correction dédiée. L'effet des précipitations centré uniquement sur le  $^{238}\text{U}$  a pu être étudié sur des profils d'événements de pluie uniques d'intensité variable. L'augmentation du taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  associée à ces événements de pluie présente une relation linéaire avec l'intensité des épisodes pluvieux. L'étude couplée des chroniques temporelles du  $^{222}\text{Rn}$  et du  $^{238}\text{U}$  a permis de quantifier l'influence du radon atmosphérique sur le signal  $\gamma$  de l'uranium. Une composante spectrale associée au radon atmosphérique a été établie en ce sens. Suite à cette nouvelle quantification de l'influence du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique sur le signal du  $^{238}\text{U}$ , une méthode pionnière d'estimation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée a été développée. Le  $^{222}\text{Rn}$  ainsi estimé peut à la fois entrer dans le protocole de correction du signal du  $^{238}\text{U}$  et faire l'objet d'études dédiées. Des mesures de son évolution temporelle à partir de la spectrométrie  $\gamma$  peuvent ainsi être réalisées. Une procédure globale de correction (PASTHEL) a ensuite été mise en œuvre, et appliquée aux spectres acquis lors d'une campagne de survol aéroporté effectuée sur le site pilote. Les cartes produites à partir du protocole de correction montrent une très bonne répétabilité diurne et semi-diurne, absente des cartes initiales, ce qui valide le protocole mis en place.



## Abstract

Airborne  $\gamma$ -ray spectrometry is an efficient technique to carry out the radiological assessment of a site of large spatial extent. Its application to environmental and natural radioactivity monitoring requires temporal repeatability of radionuclide concentration maps in the soil. The innovative approach of this study is based on the coupled acquisition of  $\gamma$  spectra from a simulated airborne hover at 50 meters and measurements of environmental factors over a continuous 14 month time-series, between April 2019 and June 2020, which allows the characterization of environmental factors affecting  $\gamma$ -ray spectrometry. The study site (P2OA-CRA at Lannemezan) was selected for the presence of a 60 meter-tall meteorological mast capable of hosting a NaI(Tl) spectrometer, RSX-5, of the same kind as the one used during CEA  $\gamma$ -ray surveys. The main objective of the thesis is characterize and correct the different measurement biases to isolate the  $\gamma$  signal emitted from the ground. To this purpose, temporal chronicles were used to observe and quantify the environmental effects associated with the variation of soil moisture, atmospheric pressure, cosmic rays, precipitation, and atmospheric radon-222. Each parameter was the subject of a dedicated study, which led to the implementation of a correction on the measured  $\gamma$  signal. Theoretical fit curves of the radionuclides, coupled with Geant-4 simulations, validated the removal of soil moisture effects. These fits are used to express the radionuclides' concentration on a per dry soil mass basis, which is therefore no longer a function of soil moisture at the time of the  $\gamma$ -ray survey, an important source of variability. This corrective procedure was first validated for  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , and  $^{137}\text{Cs}$ , and then for  $^{238}\text{U}$  after the influence of atmospheric  $^{222}\text{Rn}$  was removed from the signal. This correction is also applicable using soil moisture acquired by remote sensing, in particular using SMAP L4 products. A complementary study on the monitoring of soil moisture profile by  $\gamma$  radiation of the same radionuclide at different energies has opened up prospects for applications in precision agriculture. The characterization of an energy window centered on cosmic rays has made it possible to eliminate their influence on the measured  $\gamma$ -ray signal. If the effect of the semi-diurnal cycle of atmospheric pressure on the  $\gamma$ -ray signal was evidenced for all radionuclides, its limited influence was not subject to a dedicated correction. The  $^{238}\text{U}$ -centric precipitation effect was studied on single rain event profiles of variable intensities. The increase in the  $^{238}\text{U}$  count rate associated with these events shows a linear relationship with the intensity of rainy episodes. The coupled  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{238}\text{U}$  time-series were used to characterize and quantify the influence of atmospheric radon on the uranium  $\gamma$  signal. A spectral component of atmospheric radon was extracted to that purpose. Following this new quantification of the influence of atmospheric  $^{222}\text{Rn}$  on the signal of  $^{238}\text{U}$ , a novel method for estimating the atmospheric  $^{222}\text{Rn}$  volume activity from airborne  $\gamma$  spectrometry was developed. The  $^{222}\text{Rn}$  estimated this way can both be used in the correction protocol for the  $^{238}\text{U}$  signal and be the subject of dedicated studies. Maps of its temporal evolution from  $\gamma$  spectrometry thus can thus be obtained. A global correction procedure was then implemented, PASTHEL, and applied to the spectra acquired during the airborne  $\gamma$ -ray spectrometry campaign carried out on the study site. Maps produced with this protocol show a very good diurnal and semi-diurnal repeatability, which is not the case of the uncorrected maps. This validates the protocol developed in this study.





# Table des matières

Dédicace . . . . .	3
Remerciements . . . . .	i
Résumé . . . . .	v
Abstract . . . . .	vii
Table des matières . . . . .	ix
<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 Contexte et intérêt de l'étude</b>	<b>5</b>
1.1 La radioactivité dans l'environnement . . . . .	7
1.1.1 Les émissions $\gamma$ . . . . .	7
1.1.2 Les sources de radioactivité naturelle . . . . .	9
1.1.3 Les sources de radioactivité artificielle . . . . .	14
1.2 La spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	17
1.2.1 Historique . . . . .	17
1.2.2 Présentation du dispositif de spectrométrie $\gamma$ aéroportée dé- veloppé par le CEA . . . . .	18
1.2.3 Le RSX-5, pierre angulaire de ces travaux . . . . .	20
1.2.4 La mesure en spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	21
1.3 Application de la spectrométrie $\gamma$ à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles . . . . .	25
1.3.1 Influence des paramètres de vol, instrumentaux et environne- mentaux sur les mesures . . . . .	26
1.3.2 Le bruit de fond en radioactivité environnementale . . . . .	29
1.3.3 Influence des paramètres environnementaux . . . . .	30
1.4 Objectifs détaillés de la thèse . . . . .	32
<b>A Instrumentation déployée : théorie et calibration</b>	<b>37</b>
<b>2 L'instrumentation liée au rayonnement <math>\gamma</math></b>	<b>39</b>
2.1 Simuler un vol stationnaire de spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	41
2.1.1 Le cahier des charges instrumental . . . . .	41
2.1.2 Le cahier des charges environnemental . . . . .	43
2.2 Le système de détection du module de mesure . . . . .	44
2.2.1 Le spectromètre NaI(Tl) : un scintillateur inorganique . . . . .	44
2.2.2 La stabilisation automatique du gain de haute tension . . . . .	45

---

2.3	Le spectre $\gamma$ : la base de cette étude . . . . .	46
2.3.1	Le spectre $\gamma$ , résultat des interactions entre particules et matière . . . . .	46
2.3.2	L'analyse des spectres $\gamma$ issus de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	49
2.4	La calibration du RSX-5 : du bruit de fond à la simulation . . . . .	56
2.4.1	Le bruit de fond instrumental . . . . .	57
2.4.2	La calibration en énergie . . . . .	62
2.4.3	La caractérisation de la résolution d'énergie . . . . .	64
2.4.4	La calibration de l'efficacité de détection . . . . .	67
2.4.5	L'efficacité de détection par la simulation numérique : Geant-4 . . . . .	79
2.4.6	L'efficacité de détection : comparaison entre mesures et simulation . . . . .	88
2.4.7	Conclusions . . . . .	96
<b>3</b>	<b>La mesure des paramètres environnementaux</b> . . . . .	<b>99</b>
3.1	Le radon-222 : un suivi du bruit de fond atmosphérique . . . . .	101
3.1.1	L'élément radon . . . . .	101
3.1.2	La détection des rayonnements ionisants de type $\alpha$ . . . . .	103
3.1.3	Le bruit de fond instrumental des moniteurs . . . . .	105
3.2	Les précipitations : mesures d'intensité de pluie . . . . .	112
3.3	Le suivi de l'humidité volumique du sol . . . . .	113
3.3.1	La teneur en eau pondérale . . . . .	113
3.3.2	La réflectométrie dans le domaine temporel : TDR, une échelle spatiale métrique : . . . . .	114
3.3.3	La mesure de l'humidité des sols par satellite, une échelle spatiale kilométrique . . . . .	116
<b>B</b>	<b>Mise en place du site pilote : entre instruments et études thématiques</b> . . . . .	<b>119</b>
<b>4</b>	<b>Le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan : le site pilote</b> . . . . .	<b>121</b>
4.1	Le choix du site pilote : Le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan . . . . .	123
4.2	Études contextuelles du site pilote . . . . .	126
4.2.1	Le contexte géographique . . . . .	126
4.2.2	Le contexte topographique et géomorphologique . . . . .	127
4.2.3	Le contexte géologique, un peu d'histoire . . . . .	128
4.2.4	Le contexte pédologique et agricole . . . . .	130
4.2.5	Les contextes climatique et météorologique . . . . .	135
4.3	Instrumentations déployées sur le mât . . . . .	138
4.3.1	La mesure de la radioactivité environnementale . . . . .	140
4.3.2	Le suivi du compartiment atmosphérique . . . . .	144
4.3.3	Le suivi du compartiment pédologique . . . . .	148
<b>5</b>	<b>La caractérisation radiologique du site pilote</b> . . . . .	<b>155</b>
5.1	La caractérisation radiologique du site étudié . . . . .	157
5.1.1	CREMP® : la spectrométrie $\gamma$ pédestre . . . . .	157

---

5.1.2	La spectrométrie $\gamma$ <i>in situ</i> par un détecteur BGO . . . . .	160
5.1.3	Les échantillons de sols : caractérisation radiologique et chimique en laboratoire . . . . .	166
5.2	Analyses des échantillons de sol . . . . .	168
5.2.1	La préparation des échantillons, une étape cruciale . . . . .	168
5.2.2	Le laboratoire LAFARA . . . . .	170
5.2.3	Un conditionnement hermétique pour une mesure sans fuite . . . . .	171
5.2.4	Le Thorium-232 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	174
5.2.5	L'Uranium-238 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	176
5.2.6	Le Potassium-40 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	180
5.2.7	Le Césium-137 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	181
5.2.8	Bilan sur les activités massiques dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	184
5.2.9	Fluorescence X . . . . .	184
5.2.10	La concentration effective en radium-226 - $EC_{Ra}$ . . . . .	186
5.3	Le flux d'exhalaison en radon à l'interface sol-atmosphère . . . . .	188
5.3.1	Les mesures de flux d'exhalaison du radon . . . . .	188
 <b>C Les effets environnementaux</b>		<b>191</b>
 <b>6 Les effets de l'humidité du sol sur le signal <math>\gamma</math> mesuré</b>		<b>193</b>
6.1	L'influence de l'humidité du sol sur les signaux $\gamma$ . . . . .	195
6.1.1	Les trois phases d'un sol . . . . .	195
6.1.2	L'atténuation des rayonnements $\gamma$ . . . . .	196
6.1.3	L'atténuation des rayonnements $\gamma$ dans les sols . . . . .	197
6.2	Des acquisitions aux chroniques temporelles des paramètres mesurés . . . . .	198
6.2.1	Le traitement des données acquises . . . . .	198
6.2.2	L'analyse des chroniques temporelles . . . . .	200
6.3	L'humidité du sol, un facteur d'influence dans le compartiment sol . . . . .	213
6.3.1	L'évolution des taux de comptage en fonction de l'humidité des sols . . . . .	214
6.3.2	Courbe théorique caractérisant l'influence de l'humidité du sol sur les rayonnements $\gamma$ émis depuis le sol . . . . .	217
6.3.3	Taux de comptage et sol sec pour répondre aux besoins de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	223
6.3.4	Comparaison entre simulations Geant-4 et mesures obtenues au P2OA-CRA . . . . .	227
6.4	L'humidité du sol par satellite : une perspective concrète de suivi . . . . .	236
6.4.1	Comparer les données d'humidité du sol observées <i>in situ</i> et issues de la télédétection satellitaire . . . . .	236
6.4.2	La relation entre les taux de comptage des radionucléides suivis sur le site P2OA-CRA et l'humidité du sol enregistrée par télédétection satellitaire . . . . .	242
6.5	Un profil de la teneur en eau dans le sol à partir de la spectrométrie $\gamma$ . . . . .	246
 <b>7 Les effets atmosphériques sur le signal <math>\gamma</math> mesuré</b>		<b>255</b>
7.1	Le compartiment atmosphérique : source de bruit de fond du signal $\gamma$ tellurique . . . . .	257

7.2	La pression atmosphérique . . . . .	258
7.2.1	Un effet visible sur le signal $\gamma$ mesuré . . . . .	259
7.3	Le rayonnement cosmique : un bruit de fond qui vient de loin . . . . .	261
7.3.1	La détermination du bruit de fond d'origine cosmique . . . . .	261
7.3.2	L'influence de la pression atmosphérique . . . . .	266
7.4	Les précipitations, un facteur d'influence éphémère . . . . .	267
7.4.1	Précipitations et taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , une relation admise	268
7.4.2	Convertir la variation du taux de comptage en activité surfacique	270
7.5	Le radon atmosphérique, un bruit de fond du signal $\gamma$ tellurique . . .	272
7.5.1	La basse atmosphère et la couche limite atmosphérique . . . . .	272
7.5.2	Les variations temporelles du $^{222}\text{Rn}$ sur le site P2OA-CRA . . .	274
7.5.3	L'influence du radon-222 atmosphérique sur le taux de comptage de l'uranium-238 . . . . .	286
7.5.4	Mesure du radon-222 atmosphérique par spectrométrie $\gamma$ . . . . .	295
7.5.5	Développement d'une méthode de mesure du radon-222 atmosphérique à partir de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	297
7.5.6	L'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ calculée par spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	308
7.6	Correction de l'effet du radon-222 sur le signal $\gamma$ de l'uranium-238 . . .	313
7.6.1	Le protocole de correction . . . . .	313
7.6.2	Les variations temporelles des taux de comptage corrigés du $^{238}\text{U}$ . . . . .	314
7.6.3	L'évolution du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ en fonction de l'humidité des sols . . . . .	316
7.6.4	La simulation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ pour un sol sec . . . . .	319
7.7	Conclusion sur les effets environnementaux sur le signal $\gamma$ mesuré . . .	322

## **D Une campagne de spectrométrie $\gamma$ aéroportée sur le site pilote P2OA-CRA** **325**

<b>8</b>	<b>La reproductibilité des cartes expérimentée sur une échelle diurne</b>	<b>327</b>
8.1	La campagne de spectrométrie $\gamma$ aéroportée de Septembre 2020 . . . . .	329
8.1.1	Les caractéristiques de la campagne de survols effectués sur le site P2OA-CRA . . . . .	329
8.1.2	Le protocole de correction PASTHEL, développé dans cette thèse . . . . .	333
8.2	Les cartographies réalisées pour étudier la répétabilité diurne . . . . .	339
8.2.1	$^{40}\text{K}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	341
8.2.2	$^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	342
8.2.3	$^{238}\text{U}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	343
8.2.4	Étude des cartographies de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements . . . . .	344
8.3	Les cartographies ultra-localisées réalisées à proximité du mât météorologique . . . . .	347
8.3.1	$^{40}\text{K}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	349
8.3.2	$^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	350
8.3.3	$^{238}\text{U}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL . . . . .	351

8.3.4	Étude des cartographies ultra-localisées de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements . . . . .	352
8.3.5	Comparaison Hélinuc® - PASTHEL à une échelle semi-diurne . . . . .	352
8.4	Conclusion . . . . .	353
<b>Conclusion générale</b>		<b>357</b>
<b>Bibliographie</b>		<b>I</b>
<b>Table des figures</b>		<b>XVII</b>
<b>Liste des tableaux</b>		<b>XXXVIII</b>
<b>A La radioactivité : les émissions de rayonnements ionisants</b>		<b>XLV</b>
A.1	La radioactivité : émission de rayonnements ionisants . . . . .	XLVI
A.2	Émission de rayonnements ionisants . . . . .	XLVI
A.2.1	Généralités . . . . .	XLVI
A.2.2	Émission $\alpha$ . . . . .	XLVI
A.2.3	Émission $\beta$ . . . . .	XLVII
A.2.4	Capture électronique . . . . .	XLVIII
<b>B Interaction des particules neutres avec la matière</b>		<b>XLIX</b>
B.1	L'effet photoélectrique . . . . .	L
B.2	La diffusion Compton . . . . .	LI
B.3	La création de paire . . . . .	LII
<b>C Protocole du bruit de fond instrumental du RSX-5</b>		<b>LV</b>
C.1	Le protocole de mesure du bruit de fond instrumental du RSX-5 . . . . .	LVI
C.1.1	Le choix du matériau "écran" et de son épaisseur . . . . .	LVI
C.2	La construction de l'écran - Un château fort de plomb! . . . . .	LVII
<b>D Cahier des charges du système mécanique de calibration du RSX-5</b>		<b>LIX</b>
D.1	Spécifications techniques du cahier des charges à respecter . . . . .	LX
<b>E Architecture générale d'un code de simulation développée sous Geant-4.</b>		<b>LXI</b>
E.1	L'architecture générale de Geant-4 . . . . .	LXII
<b>F Le taux de fuite de l'enceinte</b>		<b>LXV</b>
F.1	Le taux de fuite de l'enceinte . . . . .	LXVI
<b>G La télédétection satellitaire pour suivre l'humidité des sols.</b>		<b>LXVII</b>
G.1	Les radiomètres à micro-ondes et la télédétection passive . . . . .	LXVIII
G.1.1	La contribution des autres paramètres de surface . . . . .	LXIX
G.2	Les différents niveaux de produit de SMAP . . . . .	LXX
G.3	L'analyse des produits L4 de SMAP . . . . .	LXX

<b>H Application environnementale <i>via</i> la relation entre spectrométrie <math>\gamma</math> et humidité du sol.</b>	<b>LXXIII</b>
H.1 La relation entre spectrométrie $\gamma$ et humidité du sol à différentes échelles spatiales . . . . .	LXXIV
H.1.1 La spectrométrie $\gamma$ pour le suivi de l'humidité du sol à une échelle hectométrique, vers une agriculture de précision . . . .	LXXIV
H.1.2 Application du suivi de l'humidité du sol par spectrométrie $\gamma$ sur le site P2OA-CRA . . . . .	LXXVI







## Introduction générale

La présence de radionucléides émetteurs de rayonnements  $\gamma$  dans le sol et les roches et le libre parcours moyen de grande envergure des photons dans l'air ont permis d'envisager, depuis des décennies, la détection et la quantification des radionucléides par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. L'objectif principal des mesures réalisées par ce système est de contrôler l'état radiologique d'un site aux dimensions géographiques importantes, parfois difficilement accessible par des moyens terrestres, en un minimum de temps. Les systèmes de cartographie  $\gamma$  aéroportée tels que Hélinuc® imaginé par le Département Analyse et Surveillance de l'Environnement (DASE) du Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA) ont été développés en ce sens.

La possibilité de réaliser un diagnostic radiologique dans une zone de quelques dizaines à quelques centaines de km<sup>2</sup> et de procéder à l'identification de radionucléides avec une sensibilité allant au niveau de la radioactivité naturelle à celui d'une situation accidentelle offre trois grands axes d'application à la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée : l'intervention, la prévention et la collaboration internationale pour des mesures d'inter-comparaison (Figure 1).



Figure 1 – Principales missions attribuées au système Hélinuc® du CEA. La surveillance environnementale est la quatrième axe d'application de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Toutefois, une évolution des besoins se manifeste avec un système de plus en plus sollicité à des fins de **surveillance environnementale de sites** telles que la cartographie de sites industriels, le suivi de l'érosion des sols ou encore l'étude des pratiques agricoles. Cette surveillance environnementale constitue un quatrième axe d'application encore en développement, tel qu'envisagé pour les années à venir, avec une approche différente de celles des trois autres missions principales :

- Nécessité d'un **suivi multi-annuel et/ou infra-annuel** de l'évolution du marquage radiologique de sites.
- Nécessité de travailler à **haute résolution spatiale** avec de **faibles dynamiques d'évolution de comptage dans le temps**.

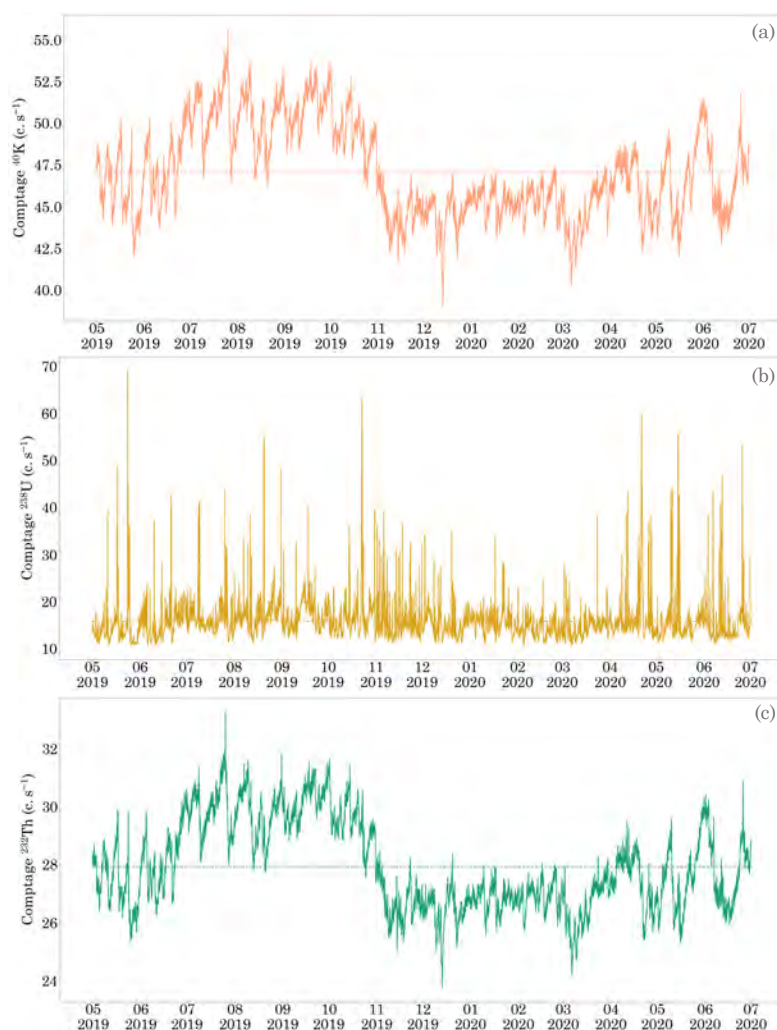
Pour toutes ces raisons, le besoin de développer une **méthodologie d'analyse** qui permette d'atteindre une sensibilité environnementale apparaît primordiale.

Ainsi, ce nouveau protocole d'expertise environnementale par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée doit assurer **une reproductibilité des cartographies d'activité des radionucléides, spatiale et temporelle, à partir des signaux  $\gamma$  mesurés**.

Comme le montrent les chroniques temporelles des taux de comptage de trois radionucléides qui découlent des signaux  $\gamma$  mesurés acquis sur une période de 14 mois dans cette thèse, pour une source naturelle homogène dans l'espace et dans le temps, la grande variabilité temporelle observée ne permet pas d'assurer de manière aisée cette reproductibilité des cartographies. Il est important de signaler qu'en présence d'une source naturelle homogène et stable spatialement et temporellement, les taux de comptage mesurés auraient dû être identiques.

**L'obtention de chroniques temporelles de l'évolution des taux de comptage d'un radionucléide par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à très haute résolution temporelle et spatiale n'avait jamais encore été obtenue (Figure 2).**

*Figure 2 - Évolution des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  ( $\text{c.s}^{-1}$ ) sur une période d'acquisition de 14 mois réalisée dans cette thèse. Les lignes en pointillés représentent les valeurs moyennes calculées sur la chronique pour les trois radionucléides.*



Cette thèse va ainsi se concentrer sur l'étude de l'influence des paramètres environnementaux et sur la compréhension des évolutions des taux de comptage observés et sur les réponses permettant l'élimination de ces variations temporelles. Mieux appréhender **les problèmes de répétabilité de cartographies d'un même site** va permettre à la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée d'être employée pour la surveillance environnementale par suivi de sites. Pour poser les jalons de cette étude, le développement d'un axe transverse entre métrologie  $\gamma$  et sciences environnementales a été nécessaire.

La thèse est organisée en parties, sous-divisées en chapitres. Ainsi, le premier chapitre va aborder le contexte scientifique dans lequel cette thèse s'inscrit et aboutir aux objectifs détaillés de la thèse qui sont orientés sur de multiples thématiques centrées autour de cette mission de surveillance environnementale par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

La première partie de cette thèse, *Instrumentation déployée : théorie et calibration*, se consacre à l'instrumentation déployée, des phases de calibration et d'étalonnage à l'installation sur le site pilote. Le deuxième chapitre s'intéresse ainsi à l'instrumentation liée au rayonnement  $\gamma$ , un spectromètre NaI(Tl) de même conception que celui utilisé par l'équipe Hélinuc® du CEA . Le troisième chapitre porte sur la mesure des paramètres environnementaux investigués dans cette thèse.

La deuxième partie, *Mise en place du site pilote : entre instruments et études thématiques*, s'intéresse principalement aux moyens mis en œuvre pour répondre à toutes les problématiques qui ont été soulevées. Ainsi, le quatrième chapitre est centré sur le site pilote sur lequel se sont appuyés ces travaux, le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan. Le cinquième chapitre s'intéresse à un diagnostic radiologique de ce site pilote par différentes techniques de spectrométrie  $\gamma$ .

La troisième partie, *Les effets environnementaux*, couvre les études réalisées sur les effets des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré. Les effets de l'humidité du sol font l'objet du sixième chapitre et les effets atmosphériques sont développés au sein du septième chapitre. Chaque effet environnemental, qu'il soit lié au compartiment sol ou au compartiment atmosphérique, se voit ainsi proposer une correction dans le but d'éliminer son influence sur le signal  $\gamma$  mesuré.

Enfin, la quatrième partie, *Une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur le site pilote P2OA-CRA*, constituée uniquement du huitième chapitre, permet de mettre en œuvre les corrections développées et validées en conditions réelles d'une campagne de vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée réalisée sur le site pilote du Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan.

**L'ensemble de cette étude a pour objectif de répondre à la problématique de faire évoluer les missions de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée en y incluant la surveillance environnementale à haute résolution grâce aux mesures de radionucléides reproductibles dans le temps.**



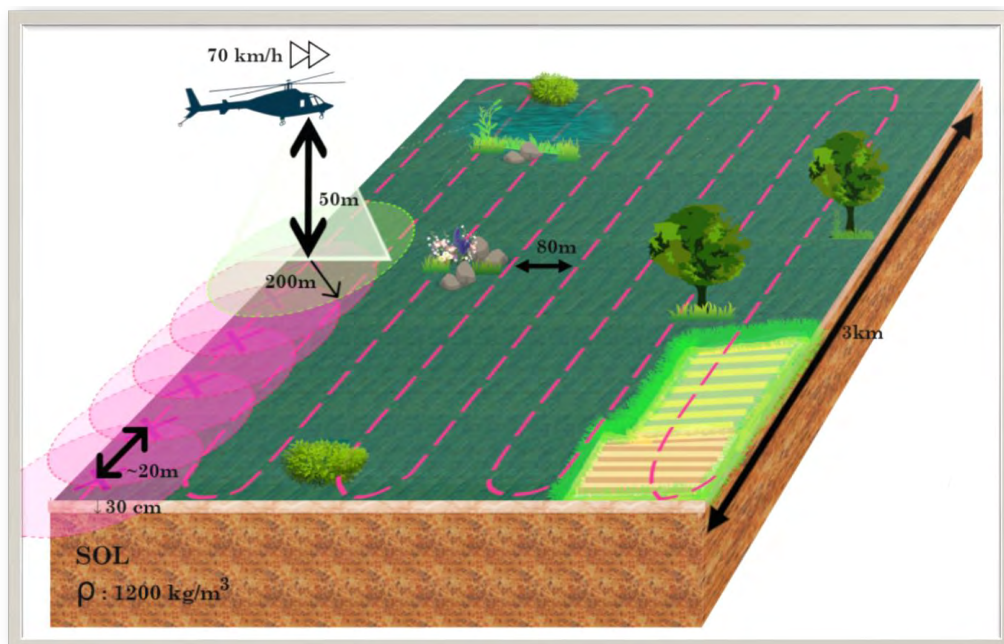
# 1

## Contexte et intérêt de l'étude

---

*"Voyageur, il n'y a pas de routes, c'est en marchant que tu vas les tracer" (Proverbe espagnol).*

---



## Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>La radioactivité dans l'environnement</b>	<b>7</b>
1.1.1	Les émissions $\gamma$	7
1.1.2	Les sources de radioactivité naturelle	9
1.1.3	Les sources de radioactivité artificielle	14
<b>1.2</b>	<b>La spectrométrie <math>\gamma</math> aéroportée</b>	<b>17</b>
1.2.1	Historique	17
1.2.2	Présentation du dispositif de spectrométrie $\gamma$ aéroportée développé par le CEA	18
1.2.3	Le RSX-5, pierre angulaire de ces travaux	20
1.2.4	La mesure en spectrométrie $\gamma$ aéroportée	21
<b>1.3</b>	<b>Application de la spectrométrie <math>\gamma</math> à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles</b>	<b>25</b>
1.3.1	Influence des paramètres de vol, instrumentaux et environnementaux sur les mesures	26
1.3.2	Le bruit de fond en radioactivité environnementale	29
1.3.3	Influence des paramètres environnementaux	30
<b>1.4</b>	<b>Objectifs détaillés de la thèse</b>	<b>32</b>

---

## 1.1 La radioactivité dans l'environnement

La radioactivité est présente dans toute la matière. Le sol, l'atmosphère, l'eau, les aliments, les êtres-vivants contiennent naturellement de la radioactivité. Omniprésente depuis toujours, la radioactivité a seulement été découverte en 1896 par Henri Becquerel. Elle est devenue depuis un sujet d'étude et de recherche important dont les applications sont de plus en plus présentes dans le quotidien.

Les recherches sur la radioactivité ont contribué à la connaissance de la matière, permis de reconstituer l'histoire de l'Univers et de la Terre et procuré des marqueurs, outils et instruments irremplaçables en biologie, médecine et géologie. L'énergie nucléaire pour la production d'électricité, l'aide au diagnostic médical grâce aux techniques d'imagerie ou encore le traitement de certaines maladies comme le cancer découlent des propriétés de la radioactivité. L'évolution des connaissances et des applications depuis plus de cent ans est loin d'être achevée et s'intéresse de plus en plus à la surveillance de l'environnement.

### 1.1.1 Les émissions $\gamma$

Les rayonnements  $\gamma$  sont des photons émis par le noyau d'un atome. Ils sont considérés comme très énergétiques au vu de leur gamme d'énergie qui s'étend entre quelques dizaines de keV à environ 2,7 MeV pour les  $\gamma$  émis par décroissance radioactive.

Le noyau des atomes est composé d'un assemblage de nucléons, maintenus en équilibre par l'interaction nucléaire forte. Ainsi, dans la nature, la plupart de ces noyaux sont stables. Lorsque l'équilibre entre interaction nucléaire forte et interaction coulombienne n'est plus assuré, le noyau est instable et se transforme spontanément. Pour revenir vers un état stable, il expulse donc de l'énergie, sous forme de rayonnements définissant ainsi le phénomène de radioactivité. Cette transformation peut s'effectuer selon différents processus de désintégration caractéristiques du radionucléide, de type  $\alpha$  et  $\beta$  (Cf. Annexe A) qui laissent parfois un supplément d'énergie au noyau fils caractérisant un état excité par rapport à son état fondamental.

Le passage du noyau d'un état excité vers l'état fondamental peut s'effectuer directement par émission d'un photon unique ou par transition vers des états intermédiaires. Ce phénomène va déclencher une cascade d'émission de photons représentée par un **schéma de désintégration** ou un diagramme en énergie propre à chaque radionucléide. Ce schéma de désintégration est une **carte d'identité** du radionucléide puisqu'il reprend le caractère unique de chaque émission  $\gamma$  accompagnée de sa probabilité d'émission et l'associe à une transition entre les différents états excités ou avec l'état fondamental. La désintégration d'un radionucléide peut donc s'accompagner de l'émission d'une série de rayons  $\gamma$  (ou d'électrons de conversion interne) qui lui sont propres. Ainsi, l'énergie d'un photon  $\gamma$  est caractéristique du noyau émetteur. La détection de ces raies permet une identification des radionucléides émetteurs. L'intensité du signal détecté est proportionnelle à l'abondance du radionucléide, toutefois cette relation n'est pas toujours aisée à établir.

Une partie des radionucléides des chaînes de décroissance radioactive du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{40}\text{K}$  ou encore le  $^{137}\text{Cs}$  sont des émetteurs de photons  $\gamma$ . En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le  $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$  sont mesurés par l'intermédiaire de l'un

de leurs descendants à vie courte, le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{208}\text{Tl}$ . Les schémas de désintégration simplifiés de ces radionucléides sont présentés sur la figure 1.1 et reprennent les énergies caractéristiques de ces radionucléides.

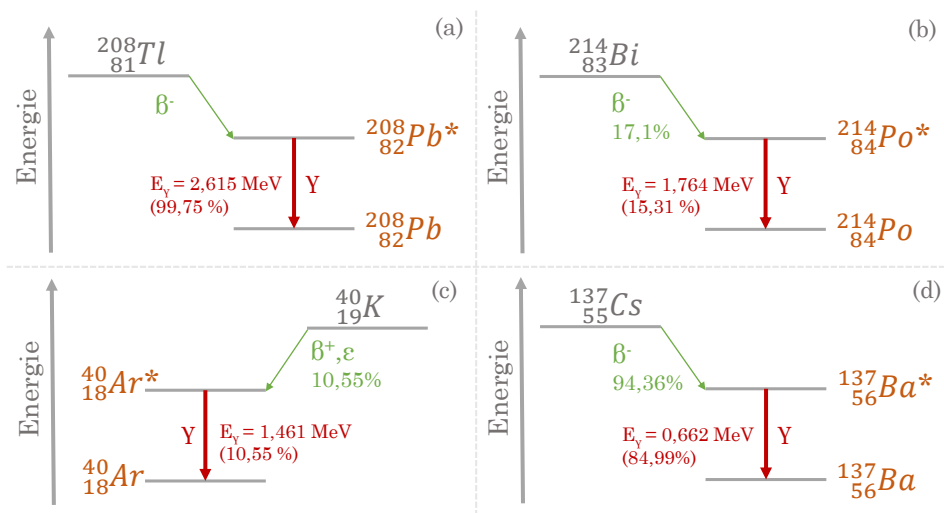


Figure 1.1 – Schémas de désintégration simplifiés du  $^{208}\text{Tl}$  (a), du  $^{214}\text{Bi}$  (b), du  $^{40}\text{K}$  (c) et du  $^{137}\text{Cs}$  (d) avec leur énergie caractéristique utilisée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Ensemble, toutes ces composantes individuelles vont constituer un spectre d'énergie des photons  $\gamma$  entre 0 et 2,7 MeV. Au sein de ce spectre, la détection de la série de raies caractéristiques d'un radionucléide permet son identification dans l'environnement mesuré. C'est le principe de base de la spectrométrie  $\gamma$ . Un exemple de spectre environnemental acquis par un détecteur NaI(Tl) de 20 L sur le site pilote est proposé sur la figure 1.2.

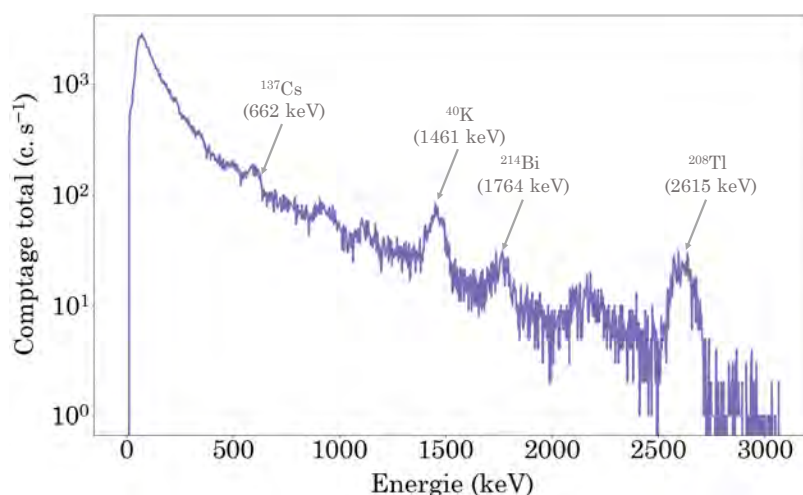


Figure 1.2 – Spectre  $\gamma$  acquis sur le site pilote par un NaI(Tl). Le comptage total, exprimé en  $\text{c. s}^{-1}$  sur une échelle logarithmique, est représenté en fonction de l'énergie en keV. Les raies présentées sont caractéristiques des radionucléides suivis par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Le temps de mesure est de 30 secondes.

La radioactivité naturelle constitue la principale source d'exposition aux rayonnements  $\gamma$  [UNSCEAR, 1988]. Que ce soit du fait de la radioactivité naturelle des



roches, ou celle liée à une intervention anthropique, la radioactivité nous entoure. Des différences notables apparaissent toutefois au niveau de ces sources naturelles en fonction des caractéristiques géologiques, orographiques et biologiques de la région considérée. Une radioactivité qualifiée d'artificielle peut également s'ajouter à ce bruit de fond radiologique naturel.

### 1.1.2 Les sources de radioactivité naturelle

Les sources de radioactivité naturelle peuvent être répertoriées en cinq catégories :

- Le rayonnement tellurique ou radioactivité du sol est émis les isotopes radioactifs de plusieurs éléments constitutifs de l'écorce terrestre tels que l'uranium, le thorium ou le potassium ainsi que leurs descendants. Il varie selon la nature de la roche et du sol en place. Ainsi, la radioactivité est cinq à vingt fois plus élevée dans les massifs granitiques que sur des terrains sédimentaires [UNSC-[CEAR, 2000a](#), UNSCEAR, 2000b].
- La radioactivité des eaux qui ne reflète que partiellement la nature géologique des terrains en interaction avec l'eau. Les propriétés chimiques de l'eau associées au degré de solubilité des radionucléides font que les eaux minérales sont plus radioactives que les eaux de surface. Certaines eaux souterraines peuvent être enrichies en gaz radon dissous. La radioactivité des eaux est toutefois bien inférieure à celle des roches.
- La radioactivité de l'air est essentiellement due à l'un des descendants de l'uranium-238, le radon-222 qui se trouve sous forme gazeuse. Elle est très variable dans l'espace et dans le temps et constitue la part la plus importante de l'exposition naturelle à la radioactivité. De nombreux facteurs vont avoir une incidence sur cette variabilité observée : la richesse du sol ou des roches en uranium-238, la porosité du sol facilitant la migration du radon-222 produit dans le sol vers l'atmosphère, les matériaux de construction et la ventilation de l'habitat qui concentre par confinement le gaz radon.
- Le rayonnement cosmique, par l'intermédiaire de l'interaction entre l'atmosphère et les ions très énergétiques en provenance du milieu interstellaire et les protons constitutifs du vent solaire produit des radionucléides cosmogéniques (tritium,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ , etc.).
- La radioactivité du corps humain est estimée à  $120 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Elle est causée par l'ingestion d'aliments contenant des radionucléides qui vont venir se fixer dans les os et les tissus. Les principaux radionucléides concernés sont le potassium-40 ( $\sim 4500 \text{ Bq}$ ), émetteur  $\gamma$ , et le carbone-14 ( $\sim 3700 \text{ Bq}$ ).

**Dans le domaine de la surveillance environnementale, l'intérêt se porte principalement sur le suivi du compartiment sol à savoir le rayonnement tellurique. Toutefois, le signal  $\gamma$  mesuré inclut également les  $\gamma$  émis par la composante atmosphérique constituée de la radioactivité de l'air et du rayonnement cosmique. Ces deux types de sources de rayonnements ionisants vont être considérés comme des bruits de fond du signal  $\gamma$  émis par l'écorce terrestre. Il est donc important de connaître l'origine des rayonnements  $\gamma$  dans chaque compartiment environnemental lors d'une étude de radioactivité.**

## Le rayonnement tellurique

En fonction de leur origine, les sources de rayonnements  $\gamma$  peuvent être divisées en 3 groupes [Kogan et al., 1971]. Le premier groupe est constitué des éléments primordiaux présents depuis la formation du système solaire et qui ont une période radioactive proche de l'âge de la Terre : Potassium-40, Uranium-235, Uranium-238 et Thorium-232. Le deuxième groupe comprend l'ensemble des produits de filiation de ces chaînes de désintégrations radioactives où les périodes sont nettement plus courtes que celles du groupe 1 avec un ordre de grandeur oscillant entre la milliseconde et le million d'années (Figure 1.3). L'uranium-238, 235 et le thorium-232 ont plusieurs descendants radioactifs, qui constituent des familles ou chaînes de désintégration comportant chacune entre dix et quinze radionucléides différents. Le troisième groupe inclut les isotopes créés par des causes externes telles que l'interaction des rayons cosmiques avec la Terre et son atmosphère ( $^{14}\text{C}$ ,  $^7\text{Be}$ , etc.).

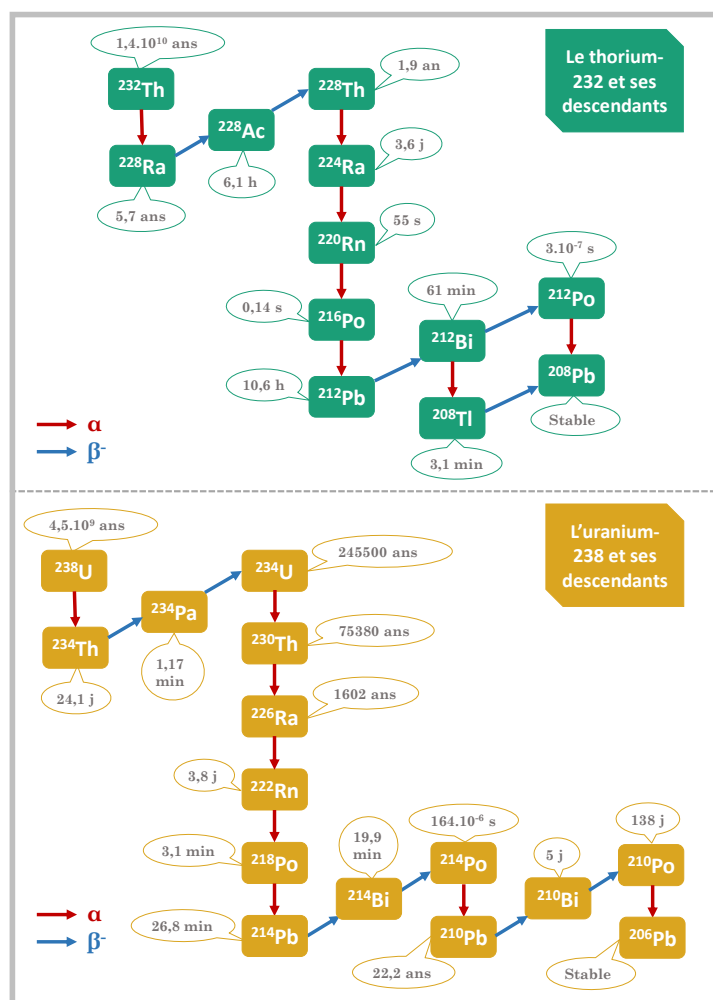


Figure 1.3 – Chaîne de filiation radioactive du thorium-232 et de l'uranium-238.

En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, les seuls radionucléides naturels qui émettent des rayons  $\gamma$  suffisamment énergétiques pour être mesurés sont le potassium-40, et certains descendants de l'uranium et du thorium. Leur mesure dans le sol terrestre permet de définir un **rayonnement tellurique**. Du fait de leur période radioactive très longue,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  sont abondants dans les sols et roches terrestres :

- Concentrations moyennes dans la croûte terrestre : K = 2,3% ; U = 2,7 ppm ; Th = 8,5 ppm [UNSCEAR, 2000a, UNSCEAR, 2000b]. L'abondance atomique relative du  $^{40}\text{K}$  est de 0,0117%.
- Concentrations moyennes dans les sols terrestres : K = 1,2% ; U = 2,7 ppm ; Th = 7,5 ppm [UNSCEAR, 2000a, UNSCEAR, 2000b].

Les concentrations moyennes pour ces 3 éléments sont toutefois peu représentatives de la diversité spatiale observée à l'échelle du globe terrestre [Mekongtso Nguellem et al., 2016, Yang et al., 2005] ou sur une emprise plus régionalisée [Quindos Poncela et al., 1994, Anagnostakis et al., 1996, Guidotti et al., 2015]. Quelques caractéristiques chimiques associées à ces trois radionucléides, au cœur de cette étude, sont brièvement abordées ci-dessous.

Le **potassium** est un élément mineur volatile lithophile monovalent en conditions naturelles. C'est un élément incompatible qui s'accumule dans les liquides lors des processus magmatiques. Le potassium-40,  $^{40}\text{K}$ , ne représente que 0,0117% du potassium total mais est le seul isotope radioactif de cet élément. L'abondance de potassium dans la croûte supérieure terrestre est de 2,33 wt.% K. Les micas et les feldspaths alcalins des roches felsiques concentrent 3,5 wt.%K en moyenne. Les roches mafiques et ultra-mafiques tels que les basaltes contiennent des concentrations largement inférieures, avec des concentrations moyennes en potassium oscillant entre 0,58 et 0,75 wt.%K [Mittlefehldt, 1999]. Dans la classification de Goldschmidt, le potassium est un cation soluble. Le potassium est libéré progressivement dans les sols par l'altération des minéraux, sous l'effet de l'activité biologique. Ainsi, le potassium dans les sols peut se retrouver sous 4 principaux états :

- Le potassium non échangeable présent dans les minéraux silicatés où les argiles proches des micas constituent la forme majoritaire. Les teneurs en potassium non échangeable sont très variables dans les sols français et mondiaux car directement liées à la nature minéralogique des sols.
- Le potassium à l'intérieur des réseaux cristallins et notamment dans les argiles dont les feuillets ont la capacité de s'écarter et de se rétracter dans certaines conditions (hydratation, apport de chaux, etc.). Ces variations dans l'espace interfoliaire permettent aux cations solubles  $\text{K}^+$  situés à leur surface de se fixer à l'intérieur des feuillets sous une forme non échangeable.
- Le potassium adsorbé est la forme la plus facilement utilisable car le potassium est à l'état d'ions  $\text{K}^+$  dans la solution du sol ou adsorbé sur le complexe argilo-humique.
- Le potassium contenu dans les matières organiques. Les plantes, après avoir prélevé et absorbé le potassium pour leur maturation, l'excrètent ensuite par leurs systèmes racinaires et leurs feuilles, contenu dans leurs sucs. Après la mort de la plante, la décomposition des résidus végétaux constitue la minéralisation primaire en libérant d'autres cations  $\text{K}^+$ .

Seuls 10,55% des noyaux du  $^{40}\text{K}$  se désintègrent par capture électronique en  $^{40}\text{Ar}$ . Au cours de cette transformation, un photon  $\gamma$  unique est émis à une énergie caractéristique de 1460,82 keV. Le flux de rayons  $\gamma$  émis par le  $^{40}\text{K}$  est utilisé pour estimer la quantité totale de potassium présent dans le milieu mesuré car la proportion de  $^{40}\text{K}$  par rapport au potassium total est fixe. Du fait de sa forte abondance dans l'environnement, le  $^{40}\text{K}$  est un contributeur privilégié aux radiations naturelles.

L'**uranium** est un élément trace de la croûte terrestre supérieure qui est aussi incompatible. Sa concentration moyenne est de l'ordre de 2,7 ppm. La forme la plus réduite, de valence 4,  $U^{4+}$ , est présente dans les minéraux insolubles, tandis que sa forme oxydée,  $U^{6+}$  peut se complexer aux anions tels que  $CO_3^{2-}$ ,  $SO_4^{2-}$  ou  $PO_4^{3-}$  afin de former des espèces solubles. La mobilité de cette forme oxydée de l'uranium est modifiée par adsorption sur les oxy-hydroxydes de fer, les argiles ou les colloïdes. L'uranium est naturellement présent dans l'environnement par l'intermédiaire de ces deux isotopes,  $^{235}U$  et  $^{238}U$ , notamment dans les roches magmatiques acides (granite, syénite). Ces deux radionucléides sont à l'origine de la présence de nombreux éléments radioactifs naturels présents sur Terre. En effet, ce sont les pères de deux chaînes de filiation radioactive. Le rapport  $\frac{^{235}U}{^{238}U}$  change relativement lentement au cours du temps du fait de périodes radioactives très grandes. Le fait que l' $^{235}U$  ne représente que 0,72% de l'uranium naturel dans l'environnement et que ses raies d'émission  $\gamma$  caractéristiques ont des énergies faibles,  $< 200$  keV, implique que ce radionucléide ne pourra être identifié par spectrométrie gamma aéroportée. Seuls certains descendants de  $^{238}U$  (Figure 1.3) peuvent être mesurés à partir d'un système aéroporté.

Le **thorium**, quant à lui, est un actinide de valence 4 en solution,  $Th^{4+}$ . Il peut être dissout en environnement acide. Sa solubilité augmente par la présence d'acides humiques [Choppin, 1988, Singh et al., 2009]. Le thorium est un élément mineur de la croûte terrestre supérieure (de l'ordre du ppm) avec une valeur moyenne de 8,5 ppm [Dickson and Scott, 1997]. Son abondance est en moyenne quatre fois supérieure à celle de l'uranium. Il est présent dans des minéraux accessoires très stables tels que les zircons, l'allanite ou la monazite à des niveaux supérieurs à 1000 ppm. Ces minéraux sont très lentement altérés et le thorium libéré (l'uranium l'est en premier) peut être retenu dans les oxy-hydroxydes de titane ou de fer et dans les argiles. Le thorium est l'un des contributeurs au rayonnement tellurique par l'intermédiaire du  $^{232}Th$ . De nombreux descendants émettent des photons  $\gamma$  dans cette filiation radioactive avant d'atteindre l'isotope stable de la famille, le  $^{208}Pb$  (Figure 1.3).

En spectrométrie  $\gamma$ , la mesure de la concentration du  $^{232}Th$  et du  $^{238}U$  n'est pas directe. En effet, ni le  $^{232}Th$ , ni le  $^{238}U$  n'émettent de rayons  $\gamma$ . Ainsi, la mesure s'effectue *via* les émissions  $\gamma$  de leurs descendants :

- Soit le  $^{208}Tl$  pour le  $^{232}Th$ . Le  $^{208}Tl$  est l'un des deux noyaux pères de l'isotope stable de la filiation radioactive, le  $^{208}Pb$ . Plusieurs raies  $\gamma$  composent le spectre d'énergie. La raie d'énergie utilisée en spectrométrie gamma aéroportée est à 2614,51 keV.
- Soit le  $^{214}Bi$  pour le  $^{238}U$ . Le  $^{214}Bi$  est l'un des descendants du  $^{222}Rn$ , gaz radioactif de la chaîne de l'Uranium-238. De ce fait, l'équilibre séculaire entre  $^{238}U$  et  $^{226}Ra$  d'une part, et entre  $^{226}Ra$  et  $^{214}Bi$  d'autre part est indispensable pour mesurer la concentration de  $^{238}U$ . La raie d'énergie utilisée en spectrométrie gamma aéroportée est à 1764,49 keV.

L'estimation des concentrations de  $^{238}U$  et de  $^{232}Th$  requiert des conditions d'équilibre séculaire avec leurs descendants, ce qui est rarement le cas pour la chaîne de l'uranium. En effet, le  $^{222}Rn$  est un gaz qui peut migrer dans le sol et atteindre l'atmosphère créant ainsi un déséquilibre dans la chaîne de l'uranium. De plus, l'uranium est très soluble dans les milieux oxydés superficiels et aura donc tendance à se

lessiver et se concentrer sans entraîner ses descendants qui ont des solubilités différentes. Ainsi, la concentration d'uranium est plutôt exprimée en *équivalent uranium* (eU) pour rappeler que cette mesure est dépendante de la présence de conditions d'équilibre strictes. La concentration en thorium est également exprimée en *équivalent thorium* (eTh) même si un déséquilibre dans la chaîne radioactive est plus rare que pour l'uranium, du fait de la présence du radon-220, qui possède une période très courte, dans sa chaîne de décroissance.

**En conclusion, le  $^{40}\text{K}$ , le  $^{238}\text{U}$  (et ses descendants) et le  $^{232}\text{Th}$  (et ses descendants) sont les seuls radionucléides qui peuvent être à l'origine d'émissions  $\gamma$  de haute énergie d'intensité suffisante pour être détectées par des moyens aéroportés.**

### La radioactivité de l'air

La radioactivité de l'air est principalement reliée à la présence de radon dans l'atmosphère. Le radon (Rn) est un gaz radioactif omniprésent à la surface de la Terre. Il possède trois isotopes naturels ( $^{219}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ) descendants des chaînes de filiation radioactive du  $^{235}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$ .

Le radon-222, descendant du radium-226 lui-même descendant de l'uranium-238, est l'isotope le plus abondant dans l'atmosphère terrestre (Figure 1.3). Sa période radioactive de 3,82 jours, est suffisamment longue pour lui permettre sa migration des sols où il a été formé, jusqu'à l'atmosphère, par diffusion, par advection, ou par pompage barométrique. En se désintégrant, le radon émet des particules  $\alpha$  et engendre une descendance solide elle-même radioactive (Figure 1.3).

Généralement faibles dans l'air extérieur, les concentrations en radon peuvent parfois être élevées à l'intérieur des bâtiments et des lieux fermés en contact avec le sol. En tenant compte de la teneur en uranium des terrains sous-jacents (Figure 1.4 a), le *potentiel radon* des formations géologiques (Figure 1.4 b) estime donc la probabilité de présence de radon à des niveaux élevés dans les bâtiments.

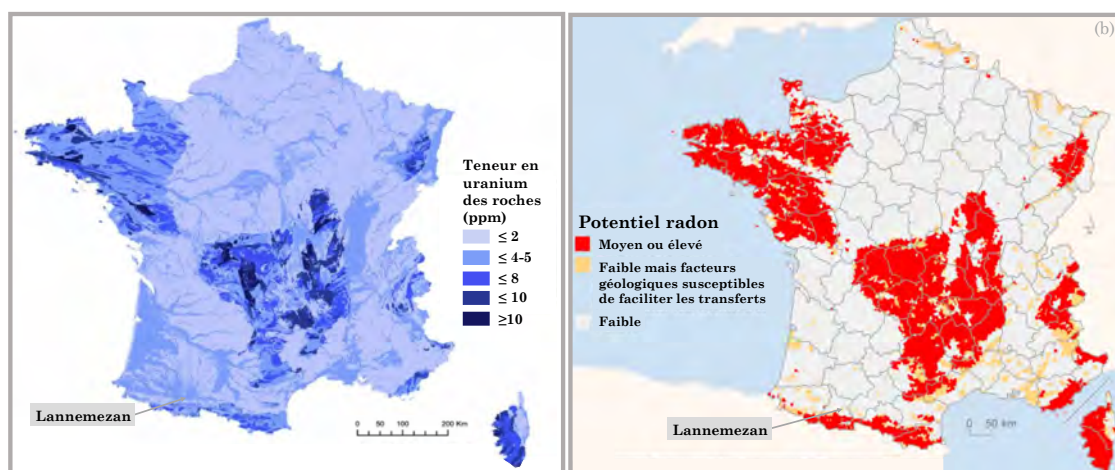


Figure 1.4 – (a) Carte de France de la teneur en uranium dans les roches telle que proposée par [Ielsch et al., 2017] (b) Carte de France du potentiel radon des formations géologiques issue des données de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), source : [www.ree.developpement-durable.gouv.fr](http://www.ree.developpement-durable.gouv.fr). La commune de Lannemezan (site pilote) est indiquée.

Les deux cartes proposées sur la figure 1.4 montrent une très grande hétérogénéité des concentrations en uranium et du potentiel radon à l'échelle de la France. Comme attendu par la filiation radioactive entre radon et uranium, les deux cartes peuvent se superposer.

## Le rayonnement cosmique

Les sources naturelles de rayonnements comprennent également le bombardement de la Terre par des particules de très haute énergie (89% protons, 10% alpha, 1% ions lourds) en provenance de l'espace qui composent les rayons cosmiques. Ces particules pénètrent dans les couches supérieures de l'atmosphère et entrent en collision avec des noyaux d'atomes ou de molécules dont les fragments vont heurter à leur tour d'autres noyaux. L'ensemble de ces collisions est à l'origine d'une gerbe de particules secondaires tels que les muons atmosphériques ou les neutrinos.

Les muons cosmiques interagissent peu avec les particules de l'atmosphère et vont atteindre la surface terrestre voire même la pénétrer sur de fortes profondeurs. L'interaction entre les rayons cosmiques et la roche ou le sol est faible [Gregory, 1960]. Dans la basse atmosphère, ces particules secondaires se définissent par une distribution en énergie constante avec une augmentation corrélée de l'amplitude et de l'altitude [Aviv and Vulcan, 1983]. Les muons atmosphériques ont des énergies cinétiques de plusieurs GeV lorsqu'ils atteignent le sol. Leur flux moyen au niveau de la mer est estimé entre 130 et 190  $s^{-1}.m^{-2}$  [Allkofer et al., 1971, Tsuji et al., 1998, Sanuki et al., 2000]. Ainsi, la contribution des rayons cosmiques au signal mesuré par un spectromètre  $\gamma$  pourra varier en fonction de la localisation géographique. De plus, sur une base journalière, les variations cosmiques en fonction des changements de pression atmosphérique sont mineures selon l'étude de [Grasty et al., 1982].

### 1.1.3 Les sources de radioactivité artificielle

Par opposition aux radionucléides naturels, les radionucléides artificiels désignent les éléments radioactifs qui n'existent plus sur la Terre, et qui sont recréés artificiellement par l'activité humaine. Depuis le milieu du XX<sup>ème</sup> siècle, ces activités ont entraîné la présence de radioactivité artificielle dans l'environnement.

Certains radionucléides peuvent être créés dans les réacteurs des centrales nucléaires. D'autres peuvent être utilisés comme source de rayonnements pour des radiographies ou comme source d'irradiation pour des applications industrielles ou médicales. Certains de ces radionucléides, fortement radioactifs et actuellement inutilisés par l'homme, constituent des déchets nucléaires devant être stockés sous haute surveillance. Actuellement, une dizaine de radionucléides artificiels sont régulièrement mesurés dans l'environnement français tels que le strontium-90, le césium-137, l'iode-131, les isotopes du plutonium ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , et  $^{240}\text{Pu}$ ) ainsi que l'américium-241. Ces radionucléides ont trois origines principales :

- Les retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires couvrant la période 1945 - 1980.
- Les retombées des incidents et accidents nucléaires tels que ceux de la centrale nucléaire de Tchernobyl en 1986 ou d'Algésiras en 1998. En France, les retombées de Fukushima (2011) sont négligeables.



- Les rejets réglementés et autorisés des activités de médecine nucléaire et ceux liés aux installations nucléaires. À l'heure actuelle, trois radionucléides sont principalement rejetés : le krypton-85, le tritium et le carbone-14. Seul le krypton-85 peut émettre, avec une faible probabilité, un rayonnement  $\gamma$  au cours de sa désintégration.

Le bruit de fond de la radioactivité artificielle en France est donc dominé par la rémanence des retombées des tirs atmosphériques et de l'accident de Tchernobyl.

### Les principaux radionucléides artificiels présents dans l'environnement en France

De nombreux radionucléides artificiels constituent le bruit de fond de la radioactivité artificielle de l'environnement français. Les principaux contributeurs de ce bruit de fond artificiel environnemental sont répertoriés dans le tableau 1.1.

La plupart d'entre eux ne sont pas émetteurs de rayonnements  $\gamma$ . Deux d'entre eux peuvent être d'origine artificielle et naturelle, le tritium ( $^3\text{H}$ ) et le carbone-14. En effet, ils sont produits naturellement avec les constituants de l'atmosphère par interaction des rayonnements cosmiques et de la matière, et proviennent également des retombées des tirs d'essais nucléaires. Ils figurent parmi les radionucléides les plus rejetés par l'industrie nucléaire.

Radionucléide	Période radioactive	Émissions principales	Principal descendant	Origines principales
$^3\text{H}$	12,32 ans	$\beta$	$^3\text{He}$	Cosmique, essais nucléaires, rejets de l'industrie nucléaire et horlogère
$^{14}\text{C}$	5730 ans	$\beta$	$^{14}\text{N}$	Cosmique, essais nucléaires, rejets de l'industrie nucléaire et de la recherche
$^{60}\text{Co}$	5,27 ans	$\beta, \gamma$	$^{60}\text{Ni}$	Rejets de l'industrie nucléaire
$^{90}\text{Sr}$	28,78 ans	$\beta$	$^{90}\text{Y}$	Essais nucléaires, rejets de l'industrie nucléaire
$^{131}\text{I}$	8 jours	$\beta, \gamma$	$^{131}\text{Xe}$	Rejets de l'industrie nucléaire et des services de médecine nucléaire
$^{137}\text{Cs}$	30,07 ans	$\beta, \gamma$	$^{137}\text{Ba}$	Essais nucléaires, accident de Tchernobyl, rejets de l'industrie nucléaire
$^{238}\text{Pu}$	87,7 ans	$\alpha$	$^{234}\text{U}$	Essais nucléaires, rejets de l'industrie nucléaire
$^{239+240}\text{Pu}$	24100 ans, 6560 ans	$\alpha$	$^{235+236}\text{U}$	Essais nucléaires, rejets de l'industrie nucléaire

Tableau 1.1 – Origines et type d'émissions des principaux radionucléides artificiels présents dans l'environnement français.

Parmi les autres radionucléides d'origine anthropique, le cobalt-60, le césium-137 et l'iode-131 sont des émetteurs de rayonnements  $\gamma$  au cours de leur transformation respective. Le  $^{137}\text{Cs}$  résulte des essais nucléaires des années 1960, de l'accident de Tchernobyl et figure également dans les rejets de certaines installations nucléaires. Toutefois, la part des rejets de ces installations dans l'environnement terrestre est difficilement décelable du fait de la rémanence des retombées anciennes.

En France, le césium-137 est le radionucléide artificiel le plus abondant. Il provient soit des retombées des essais atmosphériques d'armes nucléaires (1945-1980), soit des dépôts consécutifs à l'accident de Tchernobyl (mai 1986). Jusqu'au début des années 1990, la stratosphère constituait le réservoir principal de  $^{137}\text{Cs}$ .

Après dépôt progressif, le sol est devenu aujourd'hui le réservoir principal pour ce radio-isotope, qui peut être remobilisé sous l'effet de l'érosion ou d'une remise en suspension. Les dépôts de  $^{137}\text{Cs}$  les plus importants localisés dans l'Est résultent des fortes pluies s'étant produites au moment du passage du nuage de Tchernobyl. Les niveaux sont toutefois très inférieurs à ceux observés en Ukraine, en Biélorussie et en Russie. Ainsi, le pic de l'activité surfacique de  $^{137}\text{Cs}$  des sols a été atteint en 1963 avec une valeur de  $4000 \text{ Bq.m}^{-2}$  en moyenne. Suite à l'arrêt des essais atmosphériques d'armes nucléaires, la décroissance radioactive (période de 30,05 ans) ainsi que les processus de dilution et de migration dans les sols ont engendré une diminution significative de cette activité surfacique en césium.

Les transuraniens qui concernent les isotopes du plutonium ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  et  $^{241}\text{Pu}$ ) et l'américium-241 sont issus presque exclusivement des retombées des essais nucléaires atmosphériques. En ce qui concerne le  $^{238}\text{Pu}$ , la chute du satellite américain SNAP-9A en 1964 alimenté par une pile au  $^{238}\text{Pu}$  est responsable de sa présence décelable dans l'environnement. Le  $^{241}\text{Am}$  provient de la désintégration du  $^{241}\text{Pu}$  qui est encore très présent dans l'environnement. Ainsi, l'activité du  $^{241}\text{Am}$  continue d'augmenter régulièrement. Le pic de concentration est attendu aux alentours de 2036. Dès lors, la lente décroissance radioactive de l'américium-241 (période de 433 ans) sera dominante et l'activité diminuera.

Le  $^{239}\text{Pu}$  se transforme en  $^{235}\text{U}$ , un radionucléide primordial désormais présent en faible quantité dans l'environnement. Cet isotope de l'uranium est le père d'une chaîne de décroissance radioactive dans laquelle de nombreux émetteurs  $\gamma$  sont présents.

D'autres radionucléides artificiels peuvent être mesurés de manière plus ponctuelle au sein de l'environnement notamment suite à des rejets d'installations nucléaires ou hospitaliers.

Parmi ces radionucléides, quelques émetteurs de rayonnements  $\gamma$  au cours de leur transformation sont retrouvés tels que le cobalt-60, le césium-134 ou encore les radioxénons ( $^{133}\text{Xe}$ ,  $^{131m}\text{Xe}$ ,  $^{135}\text{Xe}$ , etc.).

Pour conclure, la radioactivité des sols peut être d'origine naturelle héritée des radio-isotopes de la roche à partir de laquelle ils se forment, ou artificielle par rejets d'activité anthropique.

En outre, les sols, selon le type de radionucléide considéré et le type de dépôt, peuvent atténuer les effets de la radioactivité ou au contraire, devenir des sources de pollution radioactive.



## 1.2 La spectrométrie $\gamma$ aéroportée

La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est une méthode d'analyse développée à l'origine pour répondre aux besoins de la prospection minière, et plus particulièrement la recherche de l'uranium. Elle est aujourd'hui reconnue comme une technique de référence pour mesurer la radioactivité des sols. La proportion de terres émergées pour laquelle une carte radiologique a été établie est voisine de vingt pour-cent [Guillot, 1996]. Les pays très nucléarisés tels que la France ne font toutefois pas l'objet d'un suivi temporel régulier avec ce système de surveillance. La France fait partie des pays où la surface couverte est relativement restreinte par rapport à des pays où le potentiel minier est plus important, notamment de nombreux pays d'Afrique, le Brésil ou le Canada.

La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée autorise de nombreuses applications à l'échelle mondiale telles que l'exploration minière [Grasty, 1975, Tourlière et al., 2003], les relevés radiologiques à la suite d'incidents ou d'accidents nucléaires [Grasty, 1997, Sanada and Torii, 2015], les cartographies géologiques ou l'étude des processus d'altération [Carrier et al., 2006, Wilford, 2012, Martelet et al., 2013], la cartographie des sols [Cook et al., 1996, Wilford, 2002, Laroche et al., 2013], la recherche de sources radioactives [Deal et al., 1972] et les effets anthropiques sur l'environnement comme pour les pratiques de fertilisation agricoles [Punniyakotti et al., 2020]. Les mesures aéroportées à vocation de surveillance de l'environnement disposent donc d'un large champ d'investigation.

### 1.2.1 Historique

Les premières propositions de mise à profit de l'émission  $\gamma$  des radionucléides naturels pour la recherche d'uranium par voie aérienne furent émises en 1944. Il a ensuite fallu attendre une trentaine d'années pour atteindre un développement technologique suffisant pour obtenir des données fiables et quantitativement exploitables. L'efficacité de détecteurs fut le paramètre limitant de l'utilisation de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée durant ces années.

Les premiers essais de mesures aéroportées faisant intervenir un détecteur par scintillation à l'iodure de sodium, NaI(Tl), eurent lieu au Canada en 1949 et furent rapportés par [Pringle et al., 1950]. La démonstration que des résultats convaincants pouvaient être obtenus par l'utilisation d'un détecteur de rayonnements embarqués à bord d'un aéronef fut fournie en 1958 par le Commissariat à l'Énergie Atomique [Berbezier et al., 1958]. Le dispositif mis en œuvre permettait de mettre en évidence les variations majeures de la radioactivité naturelle à une altitude de 80 mètres.

À la fin des années 1960, des dispositifs de mesure plus performants furent progressivement développés et adoptés. Ces systèmes permettaient une estimation de l'abondance des principaux radionucléides naturels [Darnley et al., 1969]. Cette obtention de données quantitatives fut accompagnée d'une mise en garde sur le besoin de prendre en compte la contribution du radon-222 atmosphérique et de ses descendants ainsi que les variations de topographie. À partir de 1971, grâce aux développements technologiques, la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est considérée à haute sensibilité et permet d'atteindre des résultats quantitatifs, sensibles à toute la gamme naturelle des concentrations des radionucléides dans les sols. La crise de l'énergie de 1973 et l'avènement des centrales nucléaires fournirent une opportunité au Canada et aux

États-Unis d'appliquer cette nouvelle méthode sur une échelle plus ambitieuse en se concentrant sur la prospection de l'uranium et l'initiation de la cartographie systématique des radionucléides. En 1978, l'utilisation de cette technique pour repérer les débris radioactifs du satellite COSMOS 954 [Grasty, 1980] dispersés sur une surface de plus de 200 000 km<sup>2</sup> a offert une démonstration surprenante de son efficacité.

Depuis 1980, le CEA a développé un dispositif de mesures hélicoptère baptisé Hélinuc®. Il a pour objectif d'effectuer un bilan radiologique régulier de l'environnement des sites nucléaires français et d'intervenir en situation accidentelle. Les premières cartographies, avec ce système, furent obtenues en 1983. L'usage de ce type de mesures pour la surveillance de l'environnement était à l'époque un concept nouveau qui s'est largement développé depuis. L'accident de Tchernobyl, en 1986, a accéléré la prise de conscience du besoin de cartographier des sites et a abouti en Europe à la constitution de plusieurs équipes spécialisées. Ainsi, en plus de la France, des États-Unis et du Canada, de nombreux pays disposent désormais de ce système de détection des rayonnements  $\gamma$  : l'Allemagne, la Suisse, la Finlande, le Royaume-Uni, la Suède, le Portugal, le Danemark, l'Australie et plus récemment l'Italie. Chaque pays fait le choix du développement de son système aéroporté, du détecteur utilisé ou encore de ces procédures de calibration.

De nos jours, la spectrométrie  $\gamma$  par voie aéroportée est internationalement reconnue comme une méthode fiable de contrôle de l'environnement [IAEA, 1991] par mesure et cartographie de l'évolution des répartitions des radionucléides naturels et artificiels. Cette technique est en évolution constante de par les développements instrumentaux qui ne cessent d'être mis en œuvre.

### 1.2.2 Présentation du dispositif de spectrométrie $\gamma$ aéroportée développé par le CEA

L'élaboration d'un dispositif de spectrométrie gamma aéroportée a été initiée par le CEA dès le début des années 1980 [Guillot, 1996]. À partir de cette date, des cartographies de plusieurs sites civils ou militaires ont pu être menées afin de regarder l'impact anthropique radiologique sur l'environnement. Cette technique permet de couvrir des surfaces très étendues et donc d'intervenir rapidement en situation accidentelle. Différents types d'opérations peuvent être effectués à l'aide de ce système de mesure aéroporté, lesquels peuvent être regroupés en deux catégories : **la prévention et l'intervention**. Dans le cadre d'une utilisation préventive, la réalisation de bruits de fond radiologiques sur des sites référencés d'intérêt national ou la sécurisation d'événements nationaux et internationaux se déroulant en France en sont des exemples concrets. Parmi les interventions ou déploiement possible du système, peuvent être cités les incidents ou accidents et la qualification par des exercices d'inter-comparaison.

Le dispositif a beaucoup évolué depuis les années 1980 mais le type de scintillateur inorganique utilisé est toujours le même, un iodure de sodium dopé au thallium (NaI(Tl)). Une présentation succincte du dispositif de mesure et du système de détection est proposée au sein de ce chapitre. L'un des objectifs de ces travaux étant de simuler un vol stationnaire avec le même type de spectromètre que ceux utilisés par le CEA sur une période minimale d'une année, il est donc important de bien connaître l'ensemble des caractéristiques de ce détecteur afin de s'assurer de la qualité des données acquises en contexte environnemental.

### Le dispositif de mesure en spectrométrie $\gamma$ aéroportée

L'ensemble du dispositif embarqué au sein de l'hélicoptère est composé de deux modules (Figure 1.5). Le module de mesure peut être fixé soit sous l'hélicoptère (pour les appareils de type Écureuil mono ou bi-turbine) soit sur le train d'atterrissage (pour les appareils de type EC145 standards de la sécurité civile). Le module d'acquisition se situe, quant à lui, à l'intérieur de la cabine de l'hélicoptère. Les deux modules communiquent entre eux, le module d'acquisition contrôlant le module de mesure.

Le **module de détection ou module de mesure** se compose d'un ensemble de détection de photons  $\gamma$ , d'une sonde de mesure de l'altitude de type radioaltimètre et d'un système de positionnement GPS différentiel pour identifier la position géographique des mesures effectuées par le scintillateur (Figure 1.5). Un conteneur protégeant ces équipements, fixé sur un système d'accroche spécifique à l'hélicoptère, est utilisé lors de la campagne de vol. Ce dernier a été agréé et certifié par les autorités aéronautiques. Chaque type d'hélicoptère a un système d'équipement et d'embarquement adapté. En effet, à la différence de l'hélicoptère de type Écureuil, l'hélicoptère de type EC145 est capable d'embarquer deux modules de mesure.

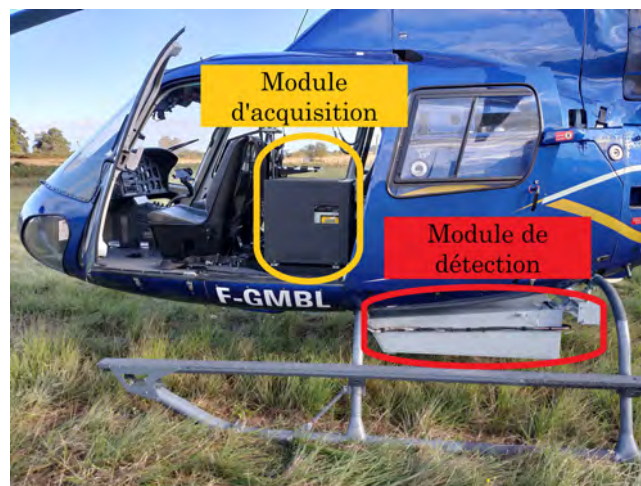


Figure 1.5 – Dispositif de mesure de spectrométrie  $\gamma$  embarqué sur un hélicoptère de type Écureuil lors du survol du P2OA-CRA de Lannemezan. Le module de mesure protégé dans un caisson est indiqué en rouge et le module d'acquisition, en orange, met en avant la baie de mesure fixée dans l'hélicoptère.

Le **module d'acquisition** fixé sur des rails dans la cabine permet à l'opérateur de contrôler en temps réel l'enregistrement des mesures et la qualité de suivi du plan de vol initial durant la mesure. Ce module comprend une unité centrale qui récupère les informations issues du détecteur, du GPS différentiel et de la radio-sonde (Figure 1.5). Un écran permet à l'opérateur de visualiser les spectres acquis en temps réel ainsi que les paramètres du détecteur tels que l'état des cristaux, leur stabilisation en énergie, l'alimentation et le gain de haute tension des photomultiplicateurs du spectromètre. Il est également possible de suivre l'état d'avancement du vol et la trajectoire de l'hélicoptère par rapport aux lignes de vol paramétrées. Le dispositif d'acquisition est complété par un second écran grâce auquel le pilote ajuste sa position en fonction de l'écart à la trajectoire décidée lors du plan de vol afin d'obtenir un maillage uniforme de la zone.

### 1.2.3 Le RSX-5, pierre angulaire de ces travaux

Pour le suivi aéroporté, l'ensemble de détection utilisé dans ces travaux est un système composé de cinq cristaux de NaI(Tl) conditionnés par la société canadienne Radiations Solutions Inc sous l'appellation RSX-5 (Figure 1.6) :

- Quatre cristaux scintillateurs NaI(Tl) de forme parallélépipédique de dimension 10,16 x 10,16 x 40,64 cm sont alignés et couplés à quatre tubes photo-multiplificateurs. Ceci correspond à un volume de 4,2 litres par cristal. Le volume de détection de 16,8 litres procure une efficacité de détection importante mais nécessaire pour des mesures effectuées sur un temps d'acquisition d'une seconde. Ces quatre cristaux composent la base *Down* du détecteur. Cette configuration à quatre cristaux compose le détecteur RSX-4 (Figure 1.6), système de détection standard exploité en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.
- Le cinquième cristal de NaI(Tl) couplé à son tube photo-multiplificateur est superposé aux quatre autres. Ce cristal permettra de corriger l'influence du radon atmosphérique et de ses descendants des spectres mesurés par le détecteur *Down*. Toutefois, aucune proposition de correction par utilisation de ce cinquième cristal n'est proposée à ce jour dans la littérature. Le volume total de détection pour ce détecteur de type RSX-5 est de 20 litres.

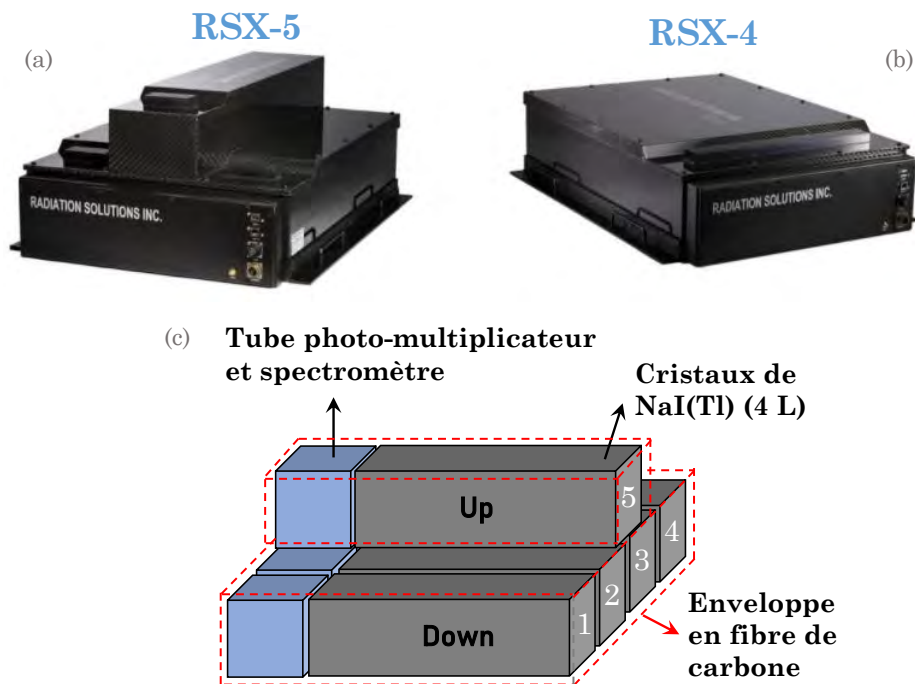


Figure 1.6 – Présentation des détecteurs RSX-5 (a) et RSX-4 (b) de la société canadienne Radiations Solutions Inc et schéma détaillé du détecteur RSX-5 (c). Le détecteur RSX-5 est le système utilisé dans le cadre de ces travaux de recherche alors que le RSX-4, configuration optimisée et très utilisée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, a été employé dans le cadre d'un survol du site pilote (cf. Chapitre 8). Source : [www.radiationsolutions.ca](http://www.radiationsolutions.ca)

Les cristaux de NaI(Tl) étant hygroscopiques, ils sont conditionnés dans des conteneurs étanches en acier inoxydable et isolant parfaitement adaptés aux mesures

aéroportées garantissant leur durée de vie et réduisant au minimum les gradients thermiques. L'enveloppe protectrice des cristaux de NaI(Tl) permet de les préserver des chocs thermiques et de limiter les variations de gain de haute tension des tubes photo-multiplieurs. De l'oxyde de magnésium est incorporé autour des cristaux pour maximiser les réflexions des photons de scintillation.

L'unité d'acquisition est intégrée au détecteur, que ce soit pour le RSX-5 ou le RSX-4. Ce dispositif traite un signal numérique. Un convertisseur analogique-numérique (CAN) est intégré à la chaîne d'acquisition en sortie du pré-amplificateur afin de permettre la conversion du signal analogique en signal numérique. Le processeur numérique également inclus dans l'unité d'acquisition va réaliser le filtrage des fluctuations statistiques et la mise en forme du signal en spectre d'énergies. Jusqu'à 250000 coups par seconde et par cristal peuvent être traités tout en conservant une stabilité de la résolution en énergie. Les cinq signaux numériques correspondant aux photons  $\gamma$  détectés par chaque cristal vont être codés sur 1024 canaux.

Le matériau d'enveloppe recouvrant tout le système est constitué de fibres de carbone à très faible atténuation garantissant la plus grande sensibilité à toutes les énergies investiguées de 0 à 3 MeV. Les températures atmosphériques recommandées pour l'utilisation de ce type de détecteur varient entre  $-20^{\circ}\text{C}$  et  $+50^{\circ}\text{C}$ . Usuellement ce type de détecteur est utilisé ponctuellement sur quelques heures avec des variations de température très faibles. Or, dans le cadre des travaux menés, le système de détection doit fonctionner en continu sur une période temporelle d'enregistrements de une année. La gamme de température rencontrée pendant l'étude est beaucoup plus large que celle d'un survol unique de quelques heures. Il est intéressant également de noter que les détecteurs RSX-5 et RSX-4 ont un fonctionnement identique sur une gamme d'énergie de 0,12 à 3 MeV. Seul le poids du détecteur présente une différence, 114 kg pour le RSX-5 et 91 kg pour le RSX-4.

Au cours de ces travaux de thèse, le choix d'utiliser un **détecteur de type RSX-5** s'est fait sur la possibilité d'utiliser le cinquième cristal comme correcteur du bruit de fond inhérent au radon-222 atmosphérique en proposant une méthode analytique (cf. Chapitre 2). De plus, le CEA dispose désormais d'un système d'embarquement certifié pour les hélicoptères de type EC145 permettant l'utilisation de ce type de détecteur. Les variations de signaux  $\gamma$  dans un environnement naturel non contaminé sont assez importantes. Pour atteindre une sensibilité environnementale adéquate, il faut impérativement éliminer tous les facteurs externes à l'origine des variations.

#### 1.2.4 La mesure en spectrométrie $\gamma$ aéroportée

La **cartographie** d'un site est effectuée à partir d'une succession de mesures de spectrométrie  $\gamma$  enregistrées avec un temps d'acquisition standard d'une seconde pendant tout le parcours de l'hélicoptère (Figure 1.7).

Chaque spectre est le reflet d'une surface d'émission de photons  $\gamma$  dépendante de l'altitude de vol. La position géographique en coordonnées latitude-longitude enregistrée par le GPS à chaque mesure ainsi que l'altitude de vol mesurée par la radiosonde sont enregistrées et associées à chaque spectre sauvegardé. La précision de mesure d'un GPS différentiel est de l'ordre de 1 à 2 mètres, ce qui s'avère suffisamment précis pour fournir une estimation instantanée de la position de l'hélicoptère



lors de l'acquisition à une vitesse moyenne de  $70 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ . Cette position mesurée par le GPS différentiel, avec une incertitude de 1 m, est affichée en temps réel sur les écrans de l'opérateur et du pilote, ce qui permet de le guider par rapport à la trajectoire de référence préalablement déterminée.

La précision sur l'altitude de vol peut varier de 1 à 20 mètres par exemple car la technique de mesure de la radiosonde ne permet pas de s'affranchir du couvert végétal ou forestier. Ainsi, une radiosonde peut enregistrer la distance qui sépare le détecteur de la canopée et non du sol entraînant un biais de mesure sur ce paramètre. Chaque spectre est enregistré sur 1024 canaux représentant une gamme d'énergie de 0 à 3 MeV.

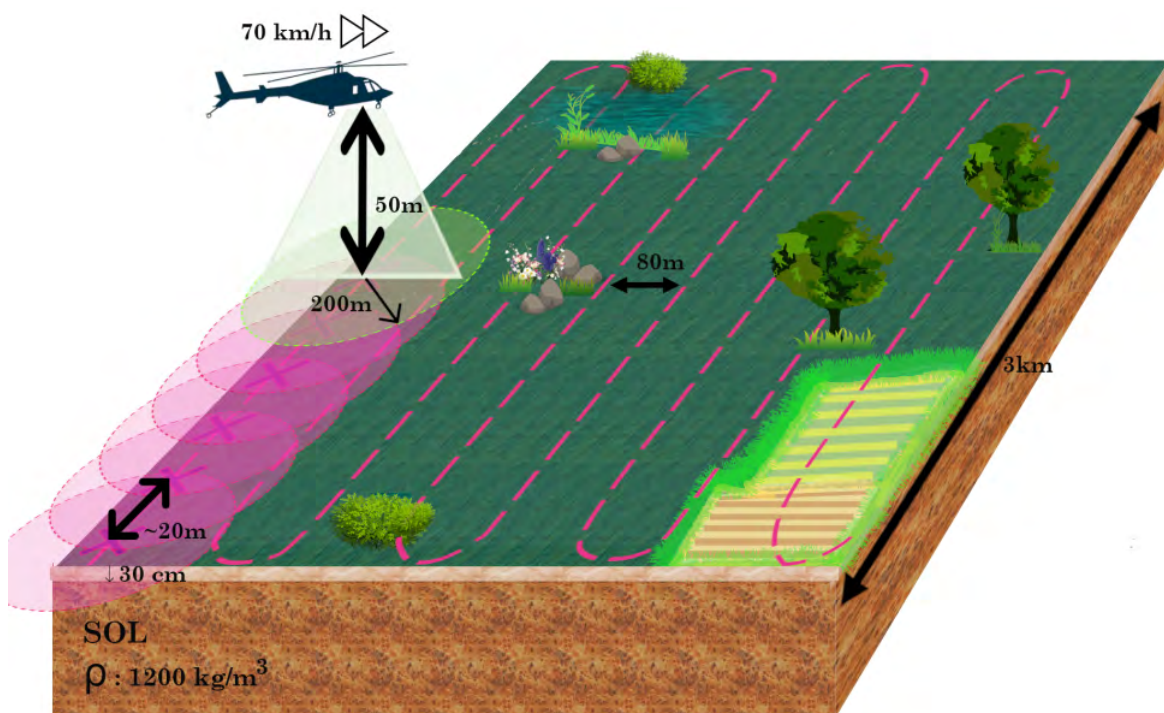


Figure 1.7 – Schéma explicatif d'une mesure de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Les lignes en pointillés représentent les lignes de vol équidistantes avec déport de 80 mètres. Les cercles roses identifient l'emprise spatiale au sol d'émission de photons  $\gamma$  détectés par le spectromètre à l'altitude de vol considérée, ici 50 mètres. 95% du signal  $\gamma$  provient de la zone à l'intérieur du cercle. Pour une vitesse de  $70 \text{ km}\cdot\text{h}^{-1}$ , la distance séparant deux points de mesures ou deux spectres enregistrés est de l'ordre de 20 mètres, avec une acquisition en continu. La profondeur de sol investiguée varie entre 15 et 30 cm en fonction de la masse volumique de la surface.

Lors d'une étude en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, l'hélicoptère suit une trajectoire théorique divisant la zone survolée souhaitée en **profils équidistants** (Figure 1.7). Guidé par l'ensemble du dispositif, le pilote devra suivre au mieux cette trajectoire afin d'obtenir un maillage uniforme de la zone. Certains obstacles obligent parfois un déport de la ligne de vol théorique. Il peut s'agir d'éléments naturels tels que des falaises ou des arbres ou bien d'éléments anthropiques comme des bâtiments et des lignes électriques haute tension.

Les divers **paramètres de vol** à prendre en compte sont les suivants : l'altitude de vol, le déport entre les profils équidistants, le temps de vol et la vitesse estimée de l'hélicoptère (Tableau 1.2). Ces caractéristiques techniques inhérentes au vol devront être mises en relation avec les paramètres spectrométriques, notamment le temps d'acquisition et les coûts humain et financier alloués à la mission.

Paramètres de vol	Standard
Déport lignes de vol	80 mètres
Altitude de vol	40 mètres
Vitesse de vol	70 km.h <sup>-1</sup>
Temps d'acquisition	1 seconde

Tableau 1.2 – Paramètres standards de vol et d'acquisition utilisés dans une campagne de spectrométrie gamma aéroportée.

Si l'altitude de vol de 50 mètres a été le standard pour le CEA ces dernières années, Hélinuc® opère désormais régulièrement à une altitude de 40 mètres permettant de diminuer l'influence de l'atténuation du signal  $\gamma$  dans l'atmosphère.

### Influence de l'altitude de vol sur la mesure de spectrométrie $\gamma$ aéroportée

La surface intégrée au sol par le détecteur varie en fonction de l'altitude de vol qui influe sur le champ de vue du spectromètre. Pour obtenir la réponse du détecteur en pic d'absorption totale d'un type particulier de géométrie de source, il faut intégrer l'équation 1.1 en fonction de cette géométrie.

Par exemple, le pourcentage de rayonnements  $\gamma$  émis au sein d'une source volumique homogène présente dans le sol de géométrie circulaire et détectés par le spectromètre est donné par l'expression suivante [Grasty, 1987] :

$$P = 100 \left( \frac{E_2(\mu_{air,E}h) - \cos \phi E_2\left(\frac{\mu_{air,E}h}{\cos \phi}\right)}{E_2(\mu_{air,E}h)} \right) \quad (1.1)$$

avec  $\mu_{sol,E}$  le coefficient d'atténuation linéaire dans le sol,  $E_2$  l'exponentielle intégrale de second ordre et  $\phi$  le champ de vue du détecteur.

La figure 1.8 montre le rendement géométrique de détection (%) vis-à-vis d'une source circulaire uniforme et infinie pour les photons  $\gamma$  émis à 2,615 MeV pour le thorium,  $^{208}\text{Tl}$  (a), 1,764 MeV pour l'uranium,  $^{214}\text{Bi}$  (b) et 1,461 MeV pour le potassium,  $^{40}\text{K}$  (c), en fonction du rayon de la source.

Les coefficients d'atténuation dans l'air utilisés pour ces trois radionucléides sont ceux proposés par les tables NIST à savoir 0,00464 m<sup>-1</sup> pour l'énergie du thorium  $^{208}\text{Tl}$ , 0,00573 m<sup>-1</sup> pour l'énergie de l'uranium  $^{214}\text{Bi}$  et 0,00632 m<sup>-1</sup> pour l'énergie du potassium  $^{40}\text{K}$ . Plusieurs altitudes de détection ont été investiguées : 15m, 40m, 50m et 100m. Les altitudes de vol à 40m et 50m sont les standards de la spectrométrie gamma aéroportée.

Pour les trois radionucléides, à une altitude de 100 mètres, 70% du signal reçu par le détecteur provient d'une source circulaire de rayon 100 mètres, correspondant au cône de détection projeté au sol. À 50m, 95% des photons mesurés émis proviennent d'une source de rayon 200 mètres.

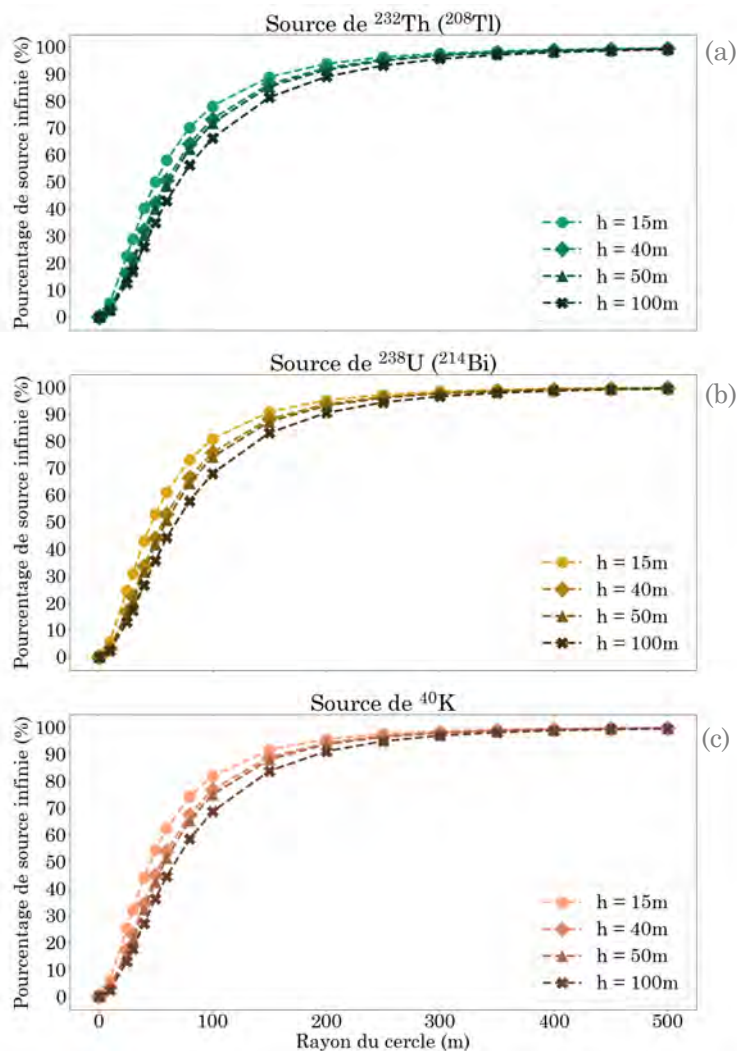


Figure 1.8 – Pourcentage de rayonnements  $\gamma$  détectés émis d'une source circulaire de rayon variable - de (a) thorium  $^{232}\text{Th}$  ( $^{208}\text{Tl}$ ) à une énergie de 2,615 MeV, (b) uranium  $^{238}\text{U}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ) à une énergie de 1,764 MeV et (c) potassium  $^{40}\text{K}$  à une énergie de 1,461 MeV.

### La profondeur de sol à l'origine du signal $\gamma$ mesuré

Une autre caractéristique des sources investiguées en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est l'épaisseur de la source responsable de l'émission des photons  $\gamma$  détectés, ici dénommée **profondeur de sol**. Le pourcentage de rayonnements  $\gamma$  émis par une source infinie d'épaisseur  $D$  et parvenant au détecteur est donné par [Grasty, 1987] :

$$P = 100(1 - E_2(\mu_{sol,E}D)) \quad (1.2)$$

Cette relation est appliquée pour des photons  $\gamma$  du thorium ( $^{208}\text{Tl}$ ) à 2,615 MeV, de l'uranium ( $^{214}\text{Bi}$ ) à 1,764 MeV et du potassium ( $^{40}\text{K}$ ) à 1,461 MeV.



### 1.3. Application de la spectrométrie $\gamma$ à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles

---

La masse volumique du sol utilisée est de  $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$  et le coefficient d'atténuation massique pour chaque radionucléide est donné par les tables NIST pour un sol de composition standard :  $0,03893 \text{ g.cm}^{-2}$  à  $2,615 \text{ MeV}$ ,  $0,04770 \text{ g.cm}^{-2}$  à  $1,764 \text{ MeV}$  et  $0,05255 \text{ g.cm}^{-2}$  à  $1,461 \text{ MeV}$ .

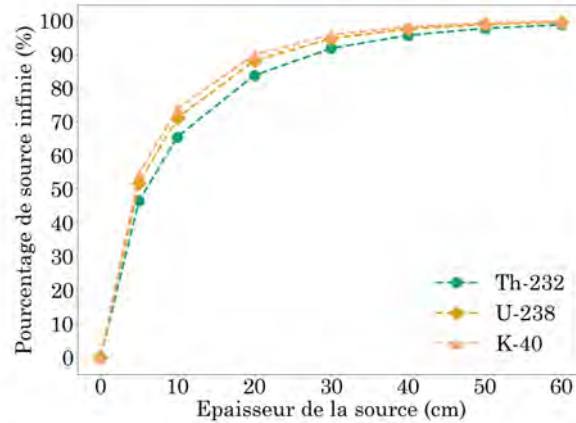


Figure 1.9 – Pourcentage de rayonnements  $\gamma$  détectés émis d'une source infinie d'épaisseurs variables - de thorium  $^{232}\text{Th}$  ( $^{208}\text{Tl}$ ) à une énergie de  $2,615 \text{ MeV}$ , uranium  $^{238}\text{U}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ) à une énergie de  $1,764 \text{ MeV}$  et potassium  $^{40}\text{K}$  à une énergie de  $1,461 \text{ MeV}$ . La masse volumique du sol prise en compte est de  $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ .

Cette figure 1.9 montre que 95% des rayonnements détectés proviennent des 30 premiers centimètres du sol pour une masse volumique de sol de  $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ . La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée peut donc cartographier la concentration d'un radionucléide sur cette épaisseur de la surface terrestre.

#### Les paramètres à surveiller lors d'un survol

Au cours d'une mesure de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, plusieurs paramètres sont à surveiller pour assurer une acquisition de qualité :

- Les paramètres de vols tels que l'altitude, la vitesse, la trajectoire suivie.
- Les paramètres instrumentaux inhérents à chaque détecteur ou capteur.
- Les paramètres environnementaux pouvant influencer la mesure.

Pour comprendre l'importance de regarder ces paramètres lors d'un survol, un exemple de campagnes de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur une même zone est abordé.

### 1.3 Application de la spectrométrie $\gamma$ à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles

La surveillance environnementale d'un site passe par une exigence de **reproductibilité des mesures** effectuées pour comparer l'évolution spatio-temporelle d'une contamination.

### 1.3.1 Influence des paramètres de vol, instrumentaux et environnementaux sur les mesures

Pour s'assurer que la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, en plus de ses missions de prévention et d'intervention, puisse être également utilisée dans ce cadre, une comparaison des activités mesurées du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  est réalisée sur les trois campagnes effectuées sur le site d'entraînement du CEA.

Ces sessions de maintien de compétences des opérateurs ont été effectuées du 13 au 16 Septembre 2009, du 12 au 14 Octobre 2010 et du 11 au 13 Octobre 2011. Une continuité de la période d'entraînement est assurée pour ces trois années. Ces trois relevés ont été effectués en utilisant les mêmes paramètres et caractéristiques de vol. Ainsi, le plan de vol, l'altitude ou encore le détecteur sont conservés d'une année sur l'autre, comme le montre les trajectoires suivies sur le site étudié lors de ces trois différentes sessions (Figure 1.10 a). À l'exception des virages en bout de trajectoire qui ne font pas partie du survol nominal, les trajectoires sont reproduites de façon parfaite d'un vol à l'autre. Ceci met en évidence la fiabilité du système de guidage du pilote.

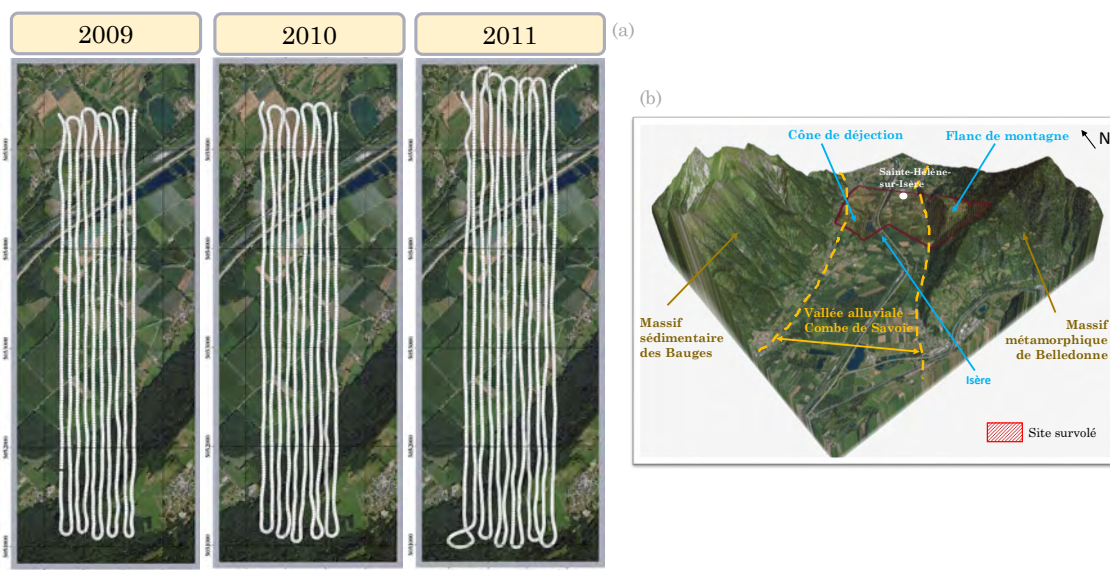


Figure 1.10 – (a) Trajectoires suivies sur le site d'Albertville lors des sessions de maintien en compétence en Octobre 2009, 2010 et 2011. (b) Représentation 3D de la zone étudiée et du site survolé (cadre rouge) : vallée alluviale bordée par deux massifs géologiques (métamorphique et sédimentaire).

Le site étudié lors de ces sessions de maintien de compétences se situe non loin de la commune d'Albertville en Savoie. La région survolée est située dans le sillon subalpin qui sépare les chaînes subalpines calcaires des massifs cristallins riches en schistes (Figure 1.10 b). Il est emprunté par le cours d'eau de l'Isère. Cette vallée principale de l'Isère a pour substratum des formations sédimentaires déformées. Sa largeur de l'ordre de 1 à 4 kilomètres est classiquement interprétée comme le résultat du creusement des glaciers quaternaires dans des roches tendres se superposant éventuellement à des phénomènes tectoniques.

1.3. Application de la spectrométrie  $\gamma$  à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles

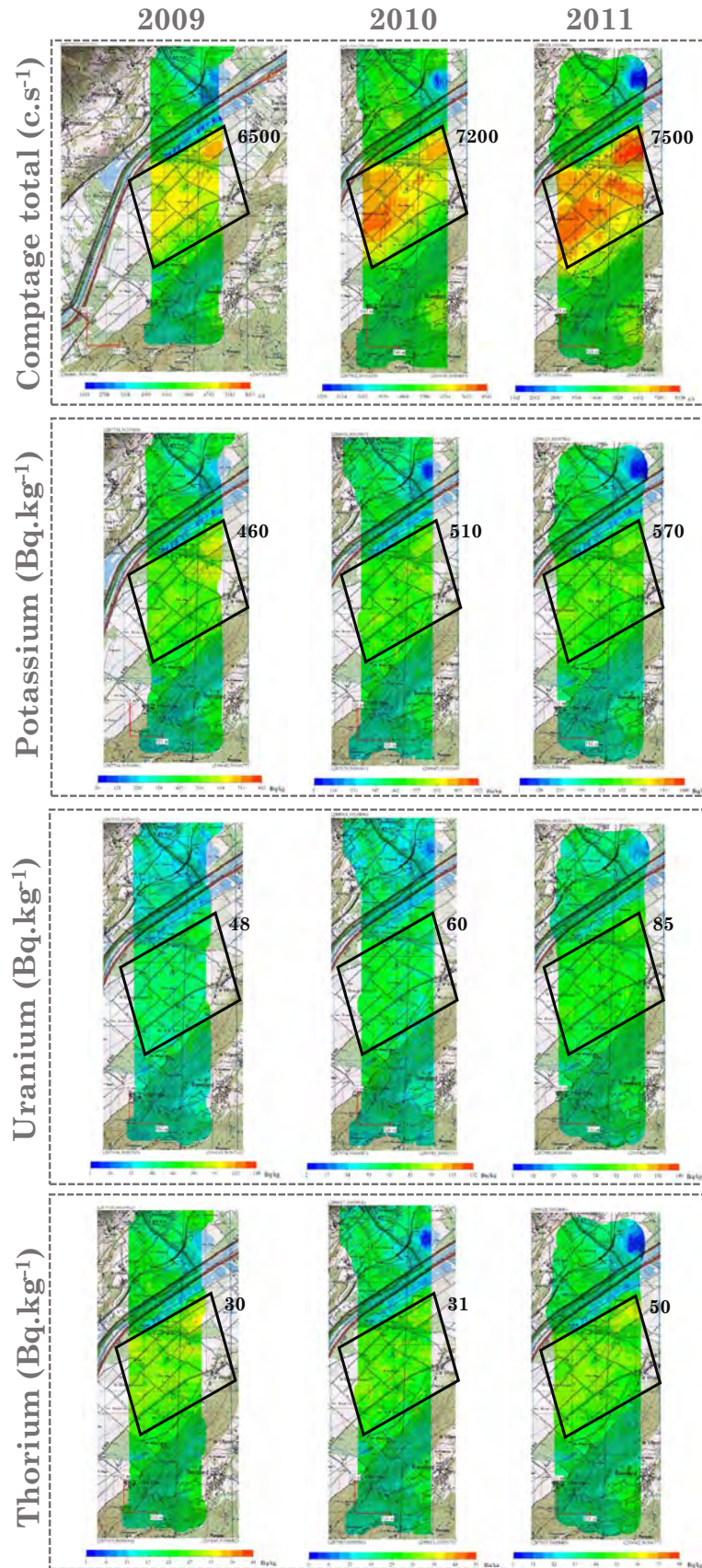


Figure 1.11 – Cartes de l'évolution des taux de comptage total ( $c.s^{-1}$ ) et des activités massiques du  $^{40}K$ , du  $^{238}U$  et du  $^{232}Th$  ( $Bq.kg^{-1}$ ) sur le site d'entraînement d'Albertville pour la période 2009-2011. La zone encadrée en noir et les valeurs moyennes associées montrent un problème de répétabilité.



Il s'agit donc d'un site naturel considéré comme stable à l'échelle humaine. Aucune contamination ou pollution radioactive n'est répertoriée sur cette zone. Ainsi, une reproductibilité des taux de comptage des radionucléides est attendue pour ces trois sessions. Pour cette zone de survol, les mesures ont été validées et différentes cartographies ont pu être établies : comptage total entre 40 keV et 3000 keV ( $\text{c.s}^{-1}$ ), potassium-40 ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ), uranium-238 ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) et thorium-232 ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ). Les cartes réalisées à partir des mesures du NaI(Tl), enregistrées au cours des différents vols et des sessions de 2009 à 2011 sont présentées sur la figure 1.11.

L'examen de ces cartes de comptage et d'activités massiques met en évidence la bonne reproductibilité des mesures de manière qualitative. En effet, les zones d'isocomptage sont définies de façon similaire d'une carte à l'autre. La précision du système de guidage et un temps d'acquisition de 1 s sont donc bien suffisants pour définir la forme des zones d'isocomptage avec une incertitude inférieure à 100 m.

Ces cartes ne permettent pas de conclure sur la bonne répétabilité temporelle des mesures d'une session à l'autre de manière quantitative. En effet, en étudiant l'évolution des moyennes du comptage total et des activités massiques de la zone encadrée en noir (Figure 1.11), celles-ci ne restent pas constantes dans le temps comme attendu. Ainsi, entre 2009 et 2011, la moyenne du comptage total a augmenté de 15%, et celles des activités massiques du potassium-40, de l'uranium-238 et du thorium-232 ont augmenté de 24%, 77% et 66% respectivement.

En faisant un état des lieux de l'occupation des sols en place, cette zone encadrée en noir se caractérise par une présence de cultures céréalières et de vergers. Il s'agit donc d'une zone à influence anthropique forte où l'utilisation d'engrais potassiques pour les céréales et également phosphatés pour les vergers, pouvant contenir des traces de thorium-232 et d'uranium-238, peut être envisagée comme l'une des causes de cette absence de répétabilité. En fonction de la date d'épandage entre août et octobre, qui dépend de nombreuses conditions notamment climatiques, l'impact sur les cartes de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée ne sera pas le même au cours du temps. Une autre hypothèse pourrait être la variation de la teneur en eau volumique dans le sol puisque les conditions météorologiques entre les sessions 2009 et 2011 n'étaient pas identiques avec une variation de la température de l'air de plus de  $10^\circ\text{C}$ .

Activités	Septembre 2009	Octobre 2010	Octobre 2011	
$^{40}\text{K}$	$377,8 \pm 36,3$	$398,6 \pm 42,4$	$452,0 \pm 44,9$	$\text{Bq.kg}^{-1}$
$^{238}\text{U}$	$41,7 \pm 9,7$	$50,6 \pm 10,6$	$59,7 \pm 12,8$	$\text{Bq.kg}^{-1}$
$^{232}\text{Th}$	$21,2 \pm 3,2$	$22,4 \pm 4,2$	$38,9 \pm 7,1$	$\text{Bq.kg}^{-1}$
$^{137}\text{Cs}$	$3045,5 \pm 384,4$	$3021,1 \pm 384,0$	$3127,0 \pm 432,5$	$\text{Bq.m}^{-2}$
Compt.Tot	$5169,5$ $1255,6$	$\pm 5352,5$ $1330,4$	$\pm 5368,0$ $1371,5$	$\pm \text{c.s}^{-1}$

Tableau 1.3 – Tableau récapitulatif des activités du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  calculées, à partir des mesures opérées en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, sur les périodes de vol de 2009, 2010, 2011. Le taux de comptage total pour ces trois périodes est également indiqué.

Le tableau 1.3 référence l'évolution des activités du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{137}\text{Cs}$  calculées, à partir des mesures opérées en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, sur les trois périodes sus-mentionnées pour l'ensemble de la zone survolée. Le taux de comptage total est également indiqué pour chaque période. En accord avec les conclusions précédentes sur la zone étudiée (encadrée en noir), toutes les activités des radionucléides étudiés sur la totalité de la zone survolée voient une augmentation graduelle entre les périodes de vol de 2009 et 2011. Le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  présentent une variation similaire d'environ 20% alors que le  $^{238}\text{U}$  se caractérise par une évolution largement supérieure de 43%. Le  $^{238}\text{U}$  montre une singularité par rapport aux deux autres radionucléides composant le signal tellurique. Ces variations des activités sont inexplicables d'un point de vue radiologique sur cette durée de trois ans.

Si les activités estimées présentent cette forte croissance, cela signifie que le signal mesuré par spectrométrie  $\gamma$  aéroporté est également plus important en Octobre 2011 qu'il ne l'était en Septembre 2009. Or, cette augmentation du signal  $\gamma$  n'est pas imputable à une variation de la quantité totale de radionucléides des sols considérée comme constante sur ces trois périodes, à l'exception d'apport anthropiques éventuels. Ainsi, les autres sources de rayonnements sus-mentionnées telles que l'ajout d'une composante surfacique par épandage d'engrais, la radioactivité de l'air ou encore les rayonnements cosmiques sont des pistes plausibles pour expliquer toutes ces variations. La radioactivité de l'air, par l'intermédiaire du radon-222 et de ses descendants, n'est, en effet, pas constante au cours du temps et son effet peut-être amplifié par la géographie régionale, une vallée encaissée.

Ces trois survols réalisés sur un même site montrent **la nécessité d'étudier les facteurs influençant les mesures environnementales. La compréhension de ce manque de reproductibilité ainsi que la mise en œuvre des corrections permettront l'emploi de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à des fins de surveillance environnementale.**

### 1.3.2 Le bruit de fond en radioactivité environnementale

L'objectif de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, employée en surveillance environnementale, est de pouvoir mesurer uniquement le signal  $\gamma$  de la composante tellurique. Ainsi, des études environnementales centrées sur l'évolution de la radioactivité des sols et de l'écorce terrestre pourraient être réalisées. Tous les autres rayonnements  $\gamma$  sont généralement considérés comme des **bruits de fond** du signal tellurique. Ils doivent donc être supprimés durant le procédé de traitement du signal afin d'en déduire des concentrations en radionucléides effectives du compartiment sol.

Il existe trois sources principales de rayonnements composant le bruit de fond :

- **Le radon atmosphérique** :  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants. Ils constituent la première partie de la composante atmosphérique et la part dominante du bruit de fond. Le  $^{222}\text{Rn}$  est un gaz mobile qui peut émaner du sol et des roches et s'accumuler dans la basse atmosphère. Contrairement au  $^{222}\text{Rn}$  émetteur  $\alpha$ , ses descendants ( $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ) émettent des rayonnements  $\gamma$  quand ils se désintègrent. Dans l'atmosphère, ils peuvent soit s'attacher à des aérosols ou des particules de poussières (fraction attachée) soit constituer la fraction libre. Cette composante du bruit de fond varie au cours du temps.

- **Le rayonnement cosmique** *via* les muons atmosphériques qui constituent la seconde partie de la composante atmosphérique. La désintégration de pions neutres dans l'atmosphère constitue une source de rayons  $\gamma$ . La variation au cours du temps de ce bruit de fond est limitée à l'échelle spatiale locale.
- Le **bruit de fond instrumental** qui se réfère aux rayonnements émis par les traces de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$  dans le détecteur et son équipement périphérique. C'est une composante constante au cours du temps, exception faite d'une contamination. Ce bruit de fond instrumental inclut les radiations du moyen de transport utilisé (hélicoptère, voiture) et de l'équipage pour le  $^{40}\text{K}$ .

Si la notion de bruit de fond et les variables associées sont bien connues, l'absence d'une quantification est un point d'amélioration non négligeable. Ainsi, comme l'étude sur le site d'Albertville l'a démontré, il est actuellement difficile d'utiliser la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour des études de petites variations temporelles, à l'échelle infra ou inter-annuelle, des concentrations en radionucléides d'un même site.

Ces bruits de fond sont ainsi dénommés car ils ont un **effet direct sur la mesure du signal  $\gamma$  tellurique étant eux-mêmes émetteurs de photons  $\gamma$** . D'autres facteurs mettant en jeu différents mécanismes d'influence sur l'atténuation des photons  $\gamma$  doivent également être pris en compte.

### 1.3.3 Influence des paramètres environnementaux

De nombreuses études sur l'effet de certains paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$  ont été menées ces trente dernières années. Celles-ci concernent à la fois le compartiment sol et le compartiment atmosphérique :

- Les **précipitations** sont à l'origine de l'ajout d'un signal  $\gamma$ . En effet, le rattachement des aérosols sur lesquels sont fixés les descendants solides du radon, **émetteurs de photons  $\gamma$** , et de leur fraction libre induisent la formation en surface du sol d'une contribution temporaire, limitée à environ 3 heures après la fin des événements de pluie. Cette période correspond au temps nécessaire pour éliminer tous les descendants à vie courte par décroissance radioactive [Fujinami, 1996, Horng and Jiang, 2003, Takeyasu et al., 2006, Bottardi et al., 2020].
- Le **radon-222 atmosphérique** par l'intermédiaire de son descendant, le  $^{214}\text{Bi}$ . Ce radionucléide est l'émetteur  $\gamma$  de la chaîne de décroissance du  $^{238}\text{U}$  qui permet de quantifier le patriarche. Le  $^{214}\text{Bi}$  retrouvé dans l'atmosphère fait donc partie d'un signal parasite par rapport au signal  $\gamma$  tellurique [Grasty, 1975, Malmqvist et al., 1989, Minty, 1992, Grasty, 1997, Sakoda et al., 2010].
- La **pression atmosphérique** joue sur l'atténuation des rayons  $\gamma$  dans l'air. La valeur de la densité de l'air augmente avec l'augmentation de la pression et entraîne une atténuation plus importante dans l'air [Davis, 1992, De Figueiredo et al., 2011]. Elle a également un effet sur l'intensité du flux de muons.
- L'**humidité du sol** va également avoir un effet sur les photons  $\gamma$  par atténuation. Plus la teneur en eau dans l'espace poral du sol est importante, plus l'atténuation des photons  $\gamma$  est grande [Grasty, 1975, Loijens, 1980, Carroll, 1981, Minty, 1997, Beamish, 2015, Baldoncini et al., 2019].

### 1.3. Application de la spectrométrie $\gamma$ à un site d'étude : un préambule sur les problématiques de variations temporelles

- Les **engrais** par apport anthropique de potassium et de phosphates pouvant être riches en uranium et thorium, ajoutent une contribution induite au signal  $\gamma$  [Barišić et al., 1992, Punniyakotti et al., 2020].

Ces études ont été réalisées par des expérimentations en laboratoire, à partir de mesures ponctuelles couplées de données de spectrométrie  $\gamma$  et d'un autre paramètre, ou encore par modélisation et simulations numériques. Ainsi, les facteurs environnementaux à l'origine des plus fortes perturbations du signal  $\gamma$  ont été répertoriés et sont représentés sur la figure 1.12.

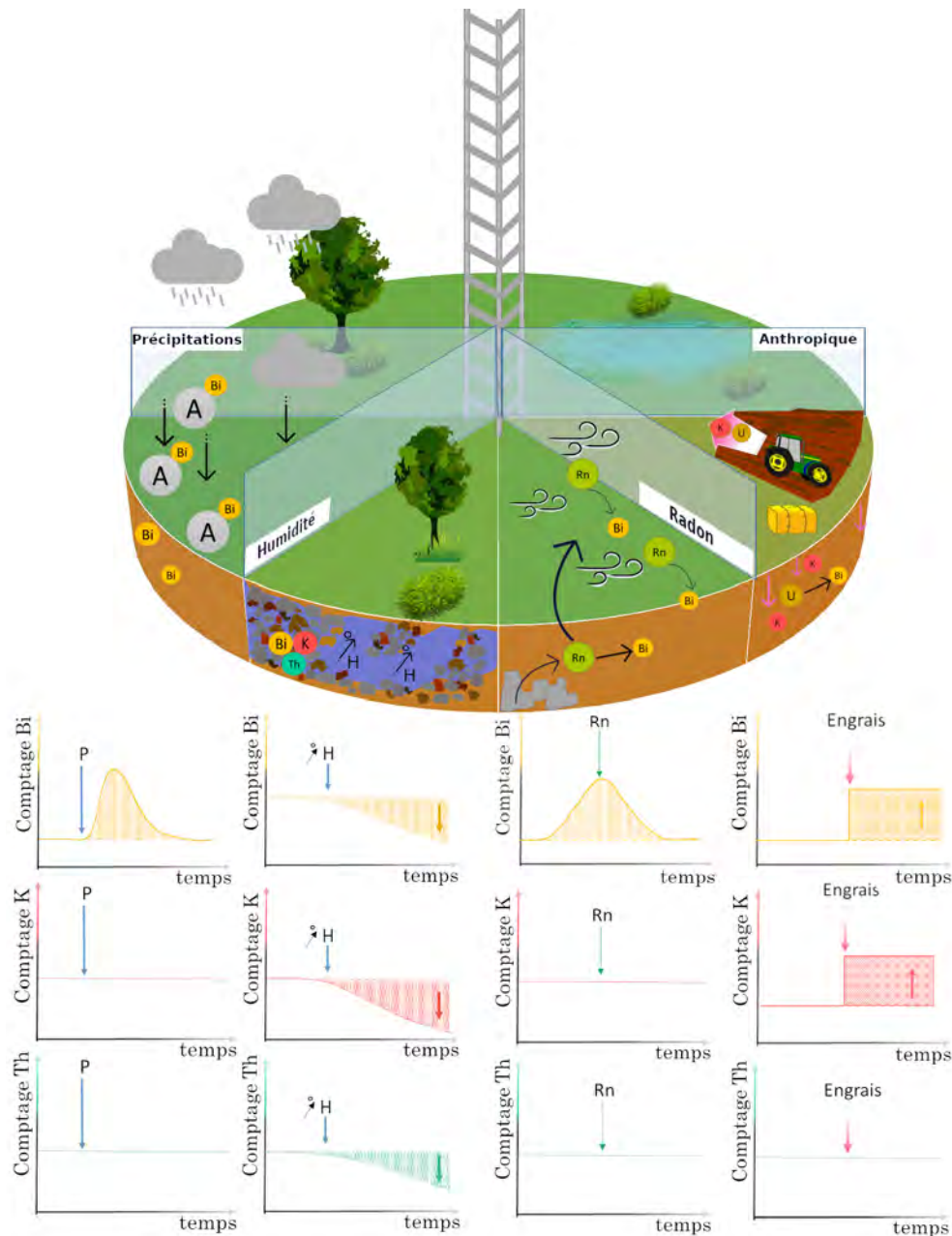


Figure 1.12 – Paramètres environnementaux pouvant influencer le signal  $\gamma$  mesuré par spectrométrie aéroportée : précipitations, humidité des sols, radon-222 atmosphérique et influence anthropique (activités agricoles). Les effets de chaque paramètre sur les radionucléides sont présentés sur les graphiques reliant le taux de comptage du  $^{214}\text{Bi}$  ( $^{238}\text{U}$ ),  $^{40}\text{K}$  et  $^{232}\text{Th}$  en fonction du temps.

Les graphiques indiquant l'évolution temporelle des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ), du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  en réponse à une sollicitation d'un facteur environnemental (Figure 1.12) montrent que tous les radionucléides n'ont pas une réponse uniforme.

- Lors d'événements pluvieux, seul le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  subit une augmentation. Aucune influence de ce paramètre météorologique n'est attendue sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ .
- Une augmentation progressive de la teneur en eau volumique du sol doit entraîner une diminution graduelle de tous les taux de comptage des radionucléides d'intérêt. L'effet est plus important sur le  $^{40}\text{K}$  que sur le  $^{232}\text{Th}$  en fonction du libre parcours moyen du photon  $\gamma$  associé à chaque radionucléide.
- La présence de radon-222 atmosphérique ne doit pas affecter les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  à la différence de celui du  $^{238}\text{U}$  qui répond favorablement à sa présence. Le  $^{214}\text{Bi}$  ne fait pas partie de la chaîne de décroissance du  $^{232}\text{Th}$  et n'a aucune relation avec le  $^{40}\text{K}$ .
- L'apport d'engrais, en fonction de sa nature chimique, a un impact sur la concentration effective locale du radionucléide concerné. Ainsi, le taux de comptage mesuré du radionucléide adjoint lors de l'épandage augmente brutalement avant de se stabiliser à une valeur maximale.

Tous ces paramètres environnementaux n'ont pas un effet constant sur le signal  $\gamma$  mesuré. En effet, ils sont eux-mêmes soumis à l'influence d'autres facteurs extérieurs induisant des variations quantitatives temporelles. Aussi, les études réalisées précédemment sur ces interactions entre le signal  $\gamma$  et les paramètres environnementaux cités l'ont été sur des courtes périodes. Elles ne permettent pas d'appréhender l'évolution temporelle d'un signal sur une très longue temporalité.

Ainsi, seule une étude couplée entre les évolutions du signal  $\gamma$ , à court, moyen ou long terme, et des paramètres environnementaux sur une longue échelle temporelle peut permettre de développer des procédures de correction de ces effets et de les valider.

## 1.4 Objectifs détaillés de la thèse

Afin de répondre aux nouvelles exigences liées à l'application de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour la surveillance environnementale de site, un axe de recherche transverse entre métrologie  $\gamma$  de pointe et sciences environnementales a été développé. Il repose sur un partenariat entre le CEA et différents laboratoires de recherche de l'Observatoire Midi-Pyrénées (OMP) ayant dans leurs thématiques une expertise environnementale et spatiale. Pour développer cette expertise environnementale de sites par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le suivi temporel multi-annuel voire infra-annuel de l'évolution du marquage radiologique avec de faibles dynamiques de variation de comptage dans le temps est nécessaire.

Ainsi, l'amélioration de la cartographie  $\gamma$  aéroportée pour le suivi environnemental de sites passe par la compréhension et la prise en compte de l'influence sur



la variabilité spatiale et temporelle du signal mesuré des effets instrumentaux et environnementaux :

- **Paramètres instrumentaux** : altitude de vol, fréquence d'acquisition, dérive de calibration, traitement numérique dédié aux instruments. L'étude de ces paramètres a fait l'objet d'une étude préalable à cette thèse et des recommandations sur une meilleure correction des altitudes de vol ont été faites au CEA. La maîtrise des paramètres intrinsèques au détecteur utilisés tels que le bruit de fond ou encore l'efficacité de détection du spectromètre est l'un des objectifs affichés de cette thèse. Leur caractérisation permettra de mieux appréhender l'influence des paramètres environnementaux.
- **Paramètres environnementaux** : état de l'art et réflexion ont permis de catégoriser les effets environnementaux en deux compartiments : le sol et l'atmosphère. La teneur en eau volumique, la pression, les rayonnements cosmiques, les précipitations et enfin le radon-222 atmosphérique sont recensés comme pistes d'études privilégiées. En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le signal  $\gamma$  émis par le compartiment atmosphérique est considéré comme un bruit de fond du signal  $\gamma$  émis par le compartiment sol. D'autres facteurs présentant une influence sur le signal  $\gamma$  tels que la biomasse [Baldoncini et al., 2019] ne font pas l'objet d'un suivi dans ces travaux de thèse.

Tous ces paramètres sont à l'origine de perturbations sur le signal  $\gamma$  mesuré. En effet, pour suivre l'évolution temporelle du marquage radiologique du compartiment sol uniquement, l'ensemble de ces facteurs doivent être étudiés et leur influence soustraite car ils participent au signal  $\gamma$  mesuré total.

Les moyens mis en œuvre, pour étudier ces effets, sont inédits et passent par la mise en place d'un site pilote où des mesures couplées de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et de tous les facteurs environnementaux sont réalisées **en continu sur une longue période temporelle de 14 mois**. La mesure de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est opérée par simulation d'un vol stationnaire à une hauteur de 50 mètres par l'intermédiaire d'un dispositif d'installation s'affranchissant de la présence d'un aéronef. Bien évidemment, chaque instrument déployé fait l'objet d'une calibration dédiée et adaptée à sa technique de mesure. Acquérir une chronique temporelle au cours d'une période aussi longue n'a encore jamais été réalisée et est l'un des atouts de ces travaux de thèse pour répondre aux problématiques liées la répétabilité des mesures et donc à l'effet sur le long terme des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$ .

La caractérisation de ces effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré est suivie de la mise en place d'une correction propre à chaque facteur environnemental. L'amélioration des protocoles de mesures par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée serait donc envisageable pour prendre en compte ces effets. La validation des corrections passe ensuite par une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée réalisée sur le site pilote. Chaque facteur environnemental disposant de mesures propres sur une longue acquisition temporelle, feront l'objet d'études dédiées.

Ce déroulement des objectifs de thèse amène à la mise en place d'un protocole de mesure par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et au développement d'un outil de traitement numérique permettant une reproductibilité du suivi d'activité de radionucléides, spatiale et temporelle, à partir des signaux  $\gamma$  mesurés.

Un schéma bilan regroupant l'ensemble des objectifs et attentes autour de cette étude est proposé sur la figure 1.13.

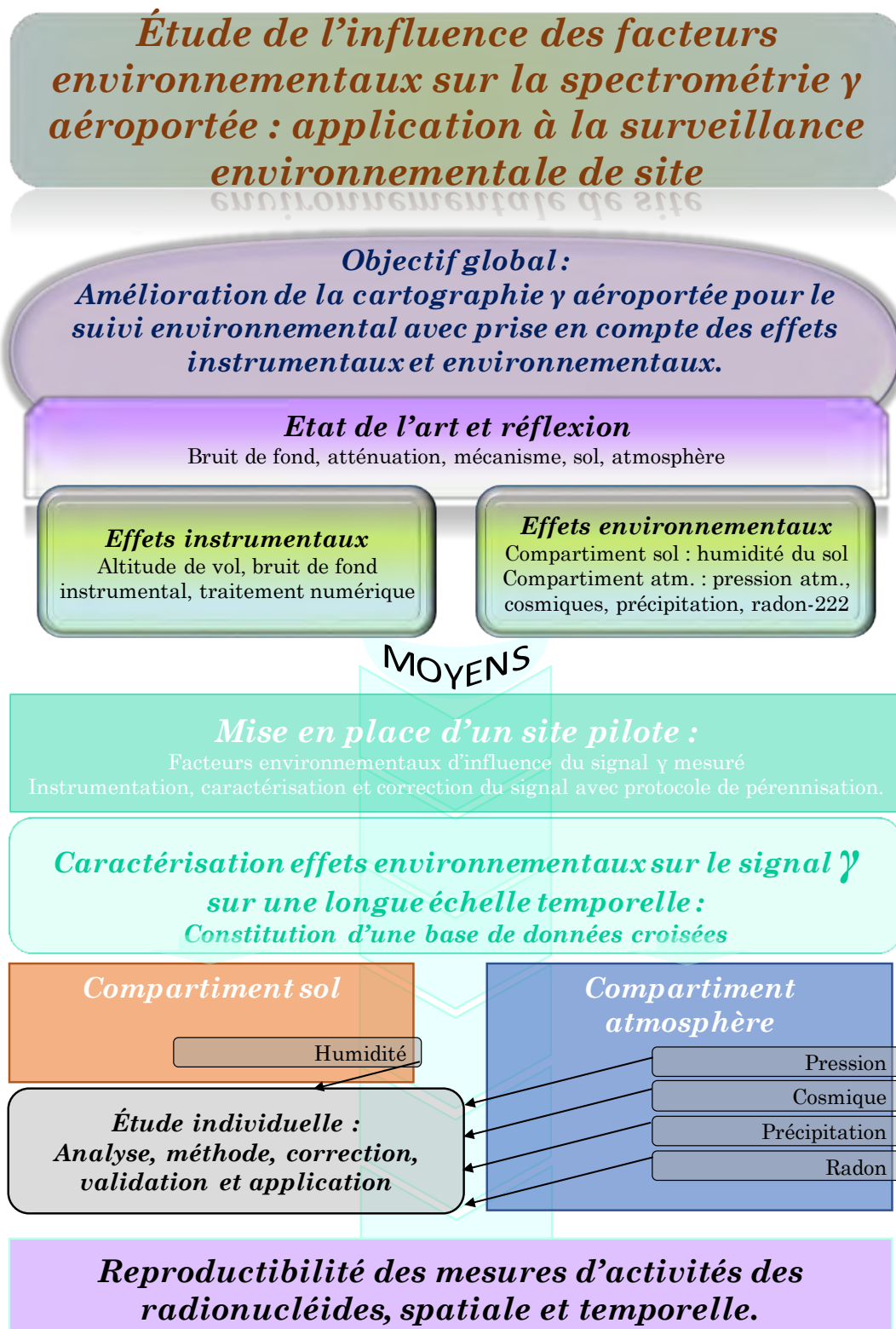


Figure 1.13 – Présentation succincte des objectifs de thèse sur l'étude de l'influence des facteurs environnementaux sur la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et l'application à la surveillance environnementale de sites.

La réussite de ces travaux de thèse passe donc par la mise en place d'un protocole de correction des données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée valide sur n'importe quel site survolé et les traitements numériques associés. Ainsi, la figure 1.14 fait un état des lieux de la structure imaginée en amont, pour cette procédure corrective.

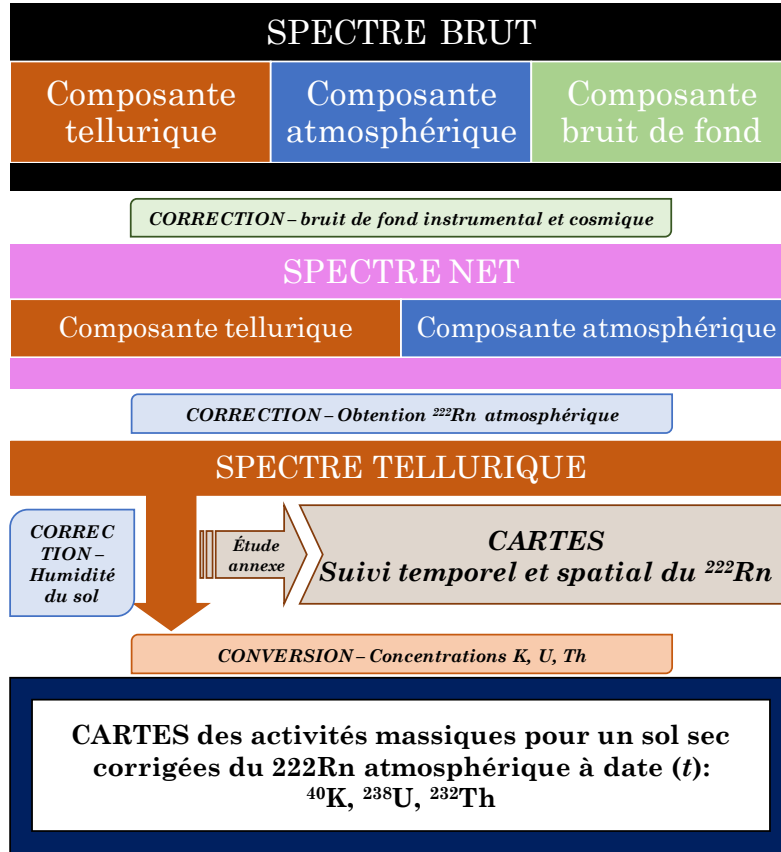


Figure 1.14 – Représentation simplifiée du protocole de correction des données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, tel qu'envisagé dans cette thèse, pour prendre en compte les effets environnementaux.



A large, stylized blue letter 'A' is centered at the top of the page. The letter is composed of thick blue strokes. The background behind the letter is a solid blue color, which transitions into a light blue gradient at the bottom of the page.

PARTIE

Instrumentation déployée :  
théorie et calibration



# 2

## L'instrumentation liée au rayonnement $\gamma$

---

*"Qui veut manger des huîtres doit en ouvrir l'écaille" (Proverbe islandais).*

---



## Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Simuler un vol stationnaire de spectrométrie <math>\gamma</math> aéroportée</b>	<b>41</b>
2.1.1	Le cahier des charges instrumental . . . . .	41
2.1.2	Le cahier des charges environnemental . . . . .	43
<b>2.2</b>	<b>Le système de détection du module de mesure</b> . . . . .	<b>44</b>
2.2.1	Le spectromètre NaI(Tl) : un scintillateur inorganique . . . . .	44
2.2.2	La stabilisation automatique du gain de haute tension . . . . .	45
<b>2.3</b>	<b>Le spectre <math>\gamma</math> : la base de cette étude</b> . . . . .	<b>46</b>
2.3.1	Le spectre $\gamma$ , résultat des interactions entre particules et matière . . . . .	46
2.3.2	L'analyse des spectres $\gamma$ issus de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée . . . . .	49
<b>2.4</b>	<b>La calibration du RSX-5 : du bruit de fond à la simulation</b>	<b>56</b>
2.4.1	Le bruit de fond instrumental . . . . .	57
2.4.2	La calibration en énergie . . . . .	62
2.4.3	La caractérisation de la résolution d'énergie . . . . .	64
2.4.4	La calibration de l'efficacité de détection . . . . .	67
2.4.5	L'efficacité de détection par la simulation numérique : Geant-4 . . . . .	79
2.4.6	L'efficacité de détection : comparaison entre mesures et simulation . . . . .	88
2.4.7	Conclusions . . . . .	96

---



## 2.1 Simuler un vol stationnaire de spectrométrie $\gamma$ aéroportée

Dans ce projet, l'objectif est de caractériser les effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré en fonction des spécificités techniques de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et de proposer, à la suite, une procédure de prise en compte de ces effets.

Pour répondre à cette problématique, les moyens qui doivent être mis en œuvre sont axés sur trois principaux piliers :

- **Simuler un vol stationnaire de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à 50 m** de hauteur en utilisant le scintillateur RSX-5 utilisé par l'équipe Hélinuc®.
- Nécessité de maîtriser les paramètres intrinsèques du spectromètre pour ne conserver que l'influence des effets environnementaux sur le signal mesuré.
- Suivre l'évolution temporelle de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique sur cette colonne d'air.
- Suivre l'évolution temporelle de la teneur en eau volumique du sol pour son horizon de surface, compris entre 0 et 5 cm de profondeur, à minima.
- Acquisitions couplées de spectres  $\gamma$  et de mesures des facteurs environnementaux sur une chronique temporelle couvrant une période minimale d'un an.

En effet, si le spectromètre enregistre en continu le signal  $\gamma$  provenant d'une même surface au sol sur une longue période temporelle, il sera possible d'associer les variations du signal mesuré à d'autres paramètres que ceux inhérents à un vol tels que l'altitude de vol, le temps d'acquisition, la vitesse de l'hélicoptère, l'influence de l'aéronef ou la présence humaine dans le moyen aéroporté.

Un cahier des charges a donc été établi pour permettre la réalisation de cette expérience en prenant en compte l'ensemble des spécifications techniques nécessaires et le cadre environnemental dans lequel devrait se dérouler l'acquisition des mesures couplées.

### 2.1.1 Le cahier des charges instrumental

Pour simuler un vol en phase stationnaire, il est nécessaire de placer le détecteur RSX-5 à la même hauteur de vol que lors des cartographies de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, soit 50 m. Cela signifie que 95% du signal provient d'une zone d'influence circulaire de 200 m de rayon pour une profondeur de sol investiguée de 30 cm environ d'après la masse volumique du sol de  $1,2 \text{ g.cm}^{-3}$ . **L'objectif étant d'obtenir des mesures en continu sur une période temporelle d'un an minimum.** La structure d'accueil doit offrir la possibilité de varier la hauteur pour en étudier ses effets ou réaliser des chandelles pour analyser les effets de l'atténuation des photons  $\gamma$  dans l'atmosphère.

Pour cela, il est nécessaire de disposer d'une structure d'accueil, de type mât météorologique, sur laquelle serait fixée le détecteur et qui est donc capable de supporter à minima 120 kg, poids du détecteur.

Un couvercle de protection servira de prévention contre les aléas climatiques comme le fait le caisson de transport dans lequel est placé le détecteur lors de son

utilisation en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Bien sûr, les capacités en alimentation électrique ainsi qu'une communication avec câble ethernet jusqu'à un PC d'acquisition doivent être assurés pour que le système de mesure fonctionne. De plus, la structure d'accueil doit être équipée d'un monte-charge facilitant la mise en place à 50 m de hauteur du détecteur NaI(Tl), permettant également de le manoeuvrer si celui-ci présente un problème technique. Cette hauteur de 50 mètres coïncide avec l'altitude de vol de référence utilisée par Hélinuc®. Selon le constructeur, le détecteur n'a jamais été éprouvé dans des conditions d'utilisation en continu sur une longue période de temps. Des problèmes peuvent donc apparaître au cours de l'étude. Bien évidemment, l'ensemble du dispositif doit être protégé d'un système anti-foudre pour éviter une fin prématurée de l'expérience.

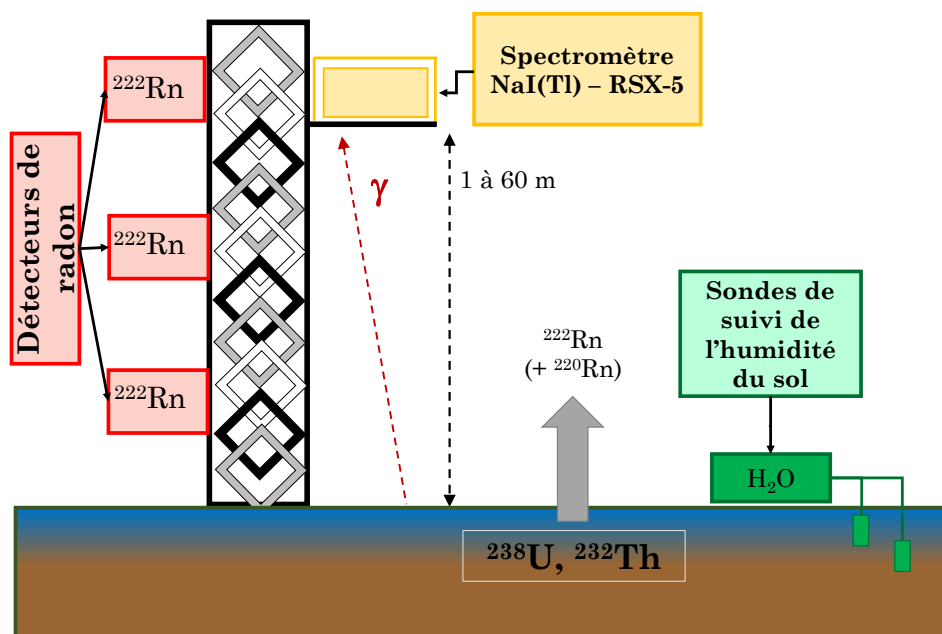


Figure 2.1 – Schéma de l'installation instrumentale envisagée pour simuler un vol stationnaire de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à une hauteur de 50 mètres.

Pour suivre l'influence du compartiment atmosphérique ( $^{222}\text{Rn}$ ) sur le signal  $\gamma$  mesuré sur cette structure d'accueil doivent être également fixés **trois moniteurs du radon atmosphérique, AlphaGUARD®** préalablement calibrés en laboratoire et dont l'ensemble du dispositif est protégé. Les détecteurs de radon ainsi installés sur trois différentes hauteurs permettront d'identifier les variations du profil de radon dans la basse atmosphère au cours du temps. Ces acquisitions de données sur l'activité en radon dans la basse atmosphère se font en parallèle de celui du signal  $\gamma$  permettant des analyses sur l'influence de la distribution du radon sur le signal  $\gamma$  mesuré notamment dans le compartiment atmosphérique. La couche de demi-atténuation des photons de 1765 keV dans l'air est d'environ 115 mètres ce qui donne une idée du volume de sensibilité du spectromètre vis-à-vis des descendants du radon. Ces trois détecteurs de radon n'ont que quelques jours d'autonomie. Tout comme pour le détecteur NaI(Tl), il faut assurer une alimentation électrique continue aux détecteurs de radon et établir une communication avec le PC d'acquisition permanente pour suivre leur fonctionnement, vérifier et télécharger les jeux de données enregistrés durant l'étude.

À proximité de cette structure d'accueil et dans un but de suivi de l'influence du compartiment sol sur le signal  $\gamma$ , le déploiement des sondes de suivi de l'humidité du sol doit pouvoir être réalisé.

Bien sûr, la totalité des équipements doit se trouver sur un site sécurisé où seules des personnes habilitées à les manipuler pourront y avoir accès assurant la pérennité des acquisitions. Un accès à distance au PC d'acquisition est un dispositif obligatoire afin de conserver le contrôle des opérations depuis le laboratoire IRAP basé sur Toulouse.

### 2.1.2 Le cahier des charges environnemental

En plus du cahier des charges instrumental, il faut considérer certaines spécificités environnementales pour garantir un signal  $\gamma$  mesuré avec une intensité suffisante pour être détecté et sur une surface au sol invariable au cours du temps en topographie plane. L'influence des paramètres environnementaux et leur prise en compte dans une méthodologie de traitement du signal  $\gamma$  mesuré est la base de ce travail. Il faut donc s'assurer que le site d'accueil ne présente aucune autre perturbation mesurable que celles des paramètres environnementaux classiques comme les facteurs climatiques ou météorologiques ou encore l'humidité du sol.

Même si les spécifications techniques sont prioritaires et vont de ce fait drastiquement réduire le champ des possibilités de site d'accueil, il faudrait que la surface au sol investiguée soit très peu contaminée par la présence humaine ces dernières années et qu'elle reste en l'état sur la durée de l'expérience, un minimum d'un an. En effet, les perturbations anthropiques doivent être limitées à leur minimum ou exclues de la surface au sol investiguée. Ceci concerne surtout les activités agricoles de type cultures avec un labourage régulier des terres mais également l'apport d'engrais potassiques riches en potassium et phosphatés avec présence d'uranium au sein des cultures. Le pâturage, avec présence d'animaux, n'affecte pas le sol d'une manière mécanique avec remise en surface de matériel plus profond. La présence de bâtiments, de routes ou d'autres éléments ayant perturbé l'environnement naturel est à exclure.

Un site rocheux de type granitique riche en uranium garantirait un signal  $\gamma$  important tout comme un site géologique avec forte présence de monazites enrichies en thorium ce qui serait préférable pour l'étude. Les sols issus de la pédogenèse initiée à partir de matériau parental comme les roches vont présenter des teneurs en uranium, thorium et potassium variables en fonction de la localisation géographique. Ce sont toutefois les sols qui dominent au niveau de la structure superficielle de l'écorce terrestre. La probabilité de déployer les instruments sur un site où les sols sont dominants est très grande et va nécessiter des activités complémentaires *in situ* pour déterminer si le sol est homogène latéralement et en profondeur en composition chimique, texture, teneurs en radionucléides, masse volumique etc.

Équiper un site où la surface au sol investiguée par le champ de vue du détecteur est constamment remaniée ou avec une forte dynamique humaine et urbaine n'aurait ainsi aucun sens pour les questionnements scientifiques posés dans cette thèse.

## 2.2 Le système de détection du module de mesure

L'ensemble de cette section se concentre sur le système de détection des rayonnements  $\gamma$  utilisé sur le site P2OA-CRA, le spectromètre NaI(Tl). Le choix de cet instrument s'est fait en relation avec l'équipe Hélinuc® du CEA. L'objectif est de disposer d'un instrument de mesure identique à ceux employés par le CEA, le RSX-5.

### 2.2.1 Le spectromètre NaI(Tl) : un scintillateur inorganique

Les détecteurs à scintillation comme le NaI(Tl) servent d'instruments de référence en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Le CEA ne déroge d'ailleurs pas à cette utilisation dans son système Hélinuc®. En général, un détecteur à scintillation comprend deux entités propres (Figure 2.2)

- Scintillateur (vert, Figure 2.2) : il génère des photons de fluorescence en réponse aux rayonnements ionisants incidents et secondaires qui excitent les électrons du matériau. Le signal issu de ce flux de photons visibles nécessite d'être converti et amplifié par un tube photo-multiplicateur.
- Photo-détecteur (rose, Figure 2.2) : il s'agit d'un photo-détecteur sensible tel qu'un tube photo-multiplicateur (PMT) qui permet de convertir le flux de photons visible en photo-électrons à la photocathode. Grâce à la haute tension d'alimentation ( $HT \simeq 600 \text{ V}$  pour cette étude), ces électrons vont être accélérés de dynode en dynode en arrachant à chaque fois des électrons supplémentaires. En sortie du tube photo-multiplicateur, ce signal électrique est récupéré puis traité de telle sorte qu'il puisse être converti en un signal électronique exploitable et représenté par un spectre (histogramme du nombre d'impulsions en fonction de leur hauteur).

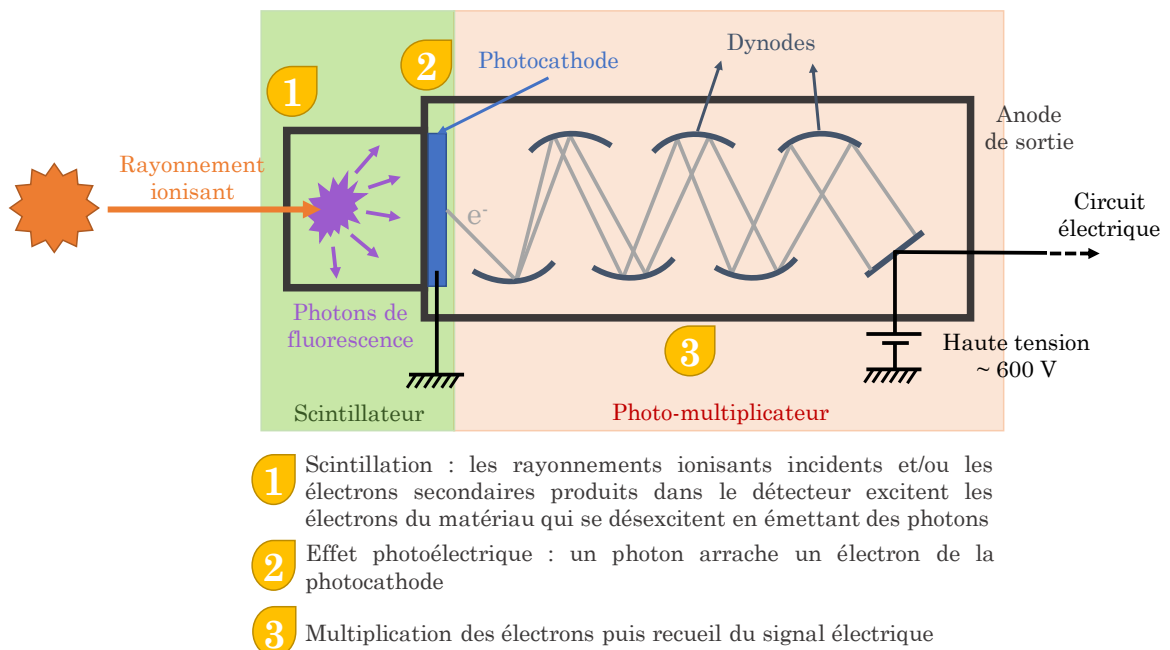


Figure 2.2 – Principe de fonctionnement d'un scintillateur inorganique de type NaI(Tl) comme utilisé en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Le principe de base du fonctionnement implique que le rayonnement ionisant incident réagisse avec le matériau du scintillateur, ce qui produit une série de flashes lumineux d'intensité variable. L'intensité de ces flashes est proportionnelle à l'énergie déposée par le rayonnement incident. C'est cette proportionnalité qui permet à ces détecteurs d'être adaptés pour mesurer l'énergie du rayonnement  $\gamma$  et, par conséquent, peuvent être utilisés pour identifier les radionucléides émetteurs  $\gamma$ .

Les caractéristiques à considérer pour définir si le système de détection est performant sont le rendement lumineux et la durée de scintillation. Le rendement lumineux correspond au nombre de photons de fluorescence émis par unité d'énergie déposée par les rayonnements  $\gamma$  incidents. Plus il est important, plus le signal en sortie du tube photo-multiplicateur sera grand. La durée de scintillation doit être la plus courte possible pour limiter le temps mort qui correspondent à la durée minimale pour qu'un autre rayonnement soit détecté.

Le NaI(Tl) est le plus employé des cristaux en raison de sa bonne efficacité aux rayons  $\gamma$  due à l'iode, et de son prix modéré qui permet de réaliser des cristaux d'un diamètre de 40 à 50 centimètres indispensables pour la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Il peut également être utilisé à température ambiante. Sa résolution en énergie qui atteint 7 % pour des photons de 662 keV est plutôt un inconvénient.

Dans le cas d'un NaI(Tl), le matériau traversé est un cristal d'iodure de sodium dopé au thallium ce qui le définit comme un scintillateur inorganique. Ces scintillateurs cristallins sont caractérisés par une densité élevée ( $3,67 \text{ g.cm}^{-3}$ ), un nombre atomique élevé ( $Z_{\text{iode}} = 53$ ) et des temps de décroissance d'impulsion d'environ 1 microseconde ( $\sim 10^{-6}$  s). Ils présentent une efficacité élevée pour la détection des rayons  $\gamma$  et sont capables de gérer des taux de comptage élevés. Leur rendement lumineux atteint les  $38000 \text{ photons.MeV}^{-1}$  ce qui favorise un signal plus grand.

### 2.2.2 La stabilisation automatique du gain de haute tension

Au cours d'un vol, la réponse de chaque cristal peut évoluer lentement, essentiellement en fonction des variations de température. Le détecteur est muni d'un dispositif de **stabilisation automatique** permettant d'ajuster en permanence, sur un rythme de 30 secondes, le gain de haute tension de chaque voie de détection.

La correction automatique du gain de haute tension s'opère en contrôlant la position du pic d'absorption totale du thallium à 2,615 MeV ( $^{208}\text{Tl}$ ). Le  $^{208}\text{Tl}$  génère à cette énergie un comptage par effet photoélectrique, de quelques coups par seconde, suffisant pour assurer une stabilisation valide toutes les 30 secondes. Ainsi, tout écart de mesure sur la position théorique du pic d'absorption totale de 2,615 MeV entraîne une correction du gain.

L'autre choix possible est le pic d'absorption totale du ( $^{137}\text{Cs}$ ) à 0,662 MeV. Or, les concentrations de ce radionucléide sur le site étudié sont plus faibles et moins uniformes. La résolution d'énergie courante pour un ensemble de cinq cristaux est comprise entre 7 et 8% pour le pic à 0,662 MeV du  $^{137}\text{Cs}$  et entre 3,5 et 4,5% pour le pic à 2,615 MeV du  $^{208}\text{Tl}$ . Par conséquent, dans le logiciel d'acquisition dédié à l'utilisation du RSX-5, la réalisation d'une **stabilisation manuelle** (test système) permet de vérifier la résolution d'énergie du pic d'absorption totale du  $^{208}\text{Tl}$  à 2,615 MeV. La valeur du gain automatique de haute tension associée est également vérifiée et doit rester dans la gamme de variations définies par le constructeur, soit entre 0,90 et 1,10.

L'étude de la forme des profils spectraux est très sensible aux variations de résolution d'énergie et de gain haute tension. Ces paramètres doivent donc être enregistrés régulièrement lors d'activités en laboratoire ou en environnement extérieur pour chaque jeu de mesures.

## 2.3 Le spectre $\gamma$ : la base de cette étude

Pour atteindre l'objectif de répétabilité cartographique temporelle et spatiale d'un site, il est primordial de s'intéresser au spectre qui en est à l'origine. En effet, c'est en caractérisant sa forme et les radionucléides qui le définissent qu'il sera possible de soustraire l'effet des rayonnements  $\gamma$  qui ne sont pas émis depuis le sol.

Les détecteurs de spectrométrie  $\gamma$  donnent une forme caractéristique au spectre  $\gamma$  mesuré suivant des paramètres intrinsèques. En maîtrisant ces effets instrumentaux, l'étude des effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  pourra être considérée.

### 2.3.1 Le spectre $\gamma$ , résultat des interactions entre particules et matière

Le spectre total mesuré en spectrométrie  $\gamma$  est en fait la représentation composite de tous les spectres de raies caractéristiques associés à chaque radionucléide et retrouvés dans l'environnement. Un exemple de spectre acquis par le détecteur NaI(Tl) de 20 L sur le site P2OA-CRA est proposé sur la figure 2.3.

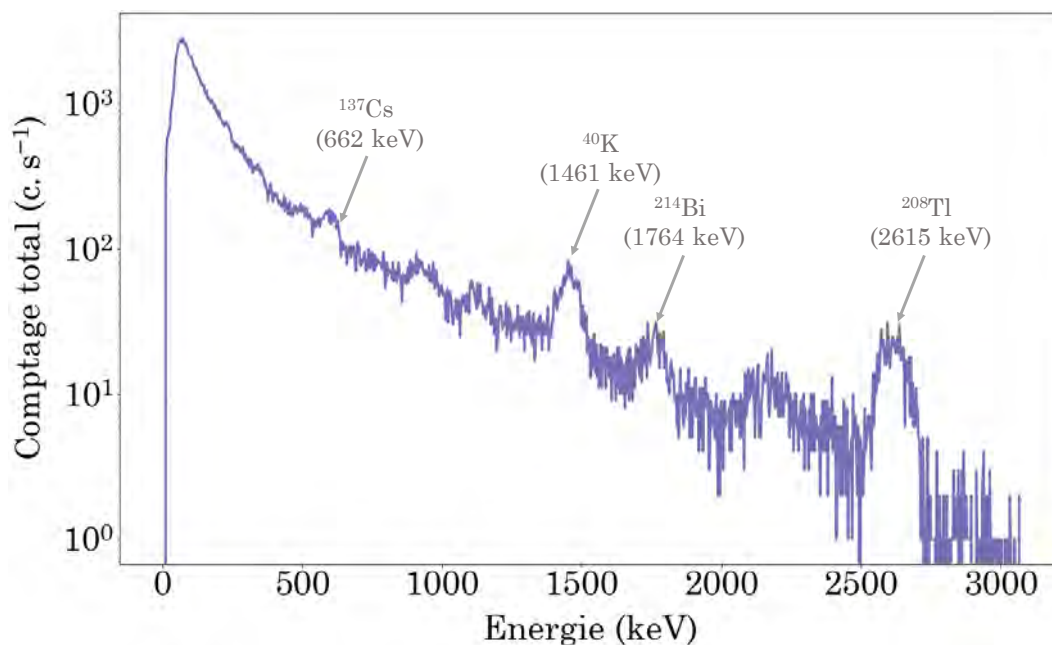


Figure 2.3 – Spectre  $\gamma$  acquis sur le site P2OA-CRA par le NaI(Tl). Le comptage total, exprimé en  $c.s^{-1}$  sur une échelle logarithmique, est représenté en fonction de l'énergie en keV. Les principales énergies caractéristiques  $\gamma$  sont identifiées. Le temps de mesure est de 30 secondes.

## Comprendre la forme du spectre

La forme du spectre n'identifie pas une succession de raies bien définies centrées sur chaque énergie caractéristique mais plutôt une succession de pics de forme gaussienne avec un écart-type plus ou moins grand. Elle est le résultat des interactions entre les photons  $\gamma$  et la matière traversée et des propriétés de réponse instrumentale du détecteur employé. Le milieu traversé, incluant le détecteur lui-même, va jouer sur le rapport entre le photopic et le fond diffus mais également sur l'étalement du photopic autour de son centroïde. Les détails sur les différentes interactions des photons avec la matière et notamment l'effet photo-électrique, la diffusion Compton et la création de paires sont présentés en annexe B.

Les énergies originelles des photons  $\gamma$  vont être modifiées par des diffusions Compton dans la source, dans le détecteur et au sein du matériau présent entre cette source et le détecteur. La contribution relative des photons diffusés et non diffusés au taux de fluence des rayons  $\gamma$  dépend de la géométrie entre la source et le détecteur, de la quantité de matériau d'atténuation entre la source et le détecteur et sa composition chimique.

Chaque radionucléide génère un pic de pleine absorption dont l'énergie est égale à l'énergie totale du photon incident. Il s'agit donc de la détection du photo-électron créé lors de l'interaction par effet photoélectrique du photon avec un électron du cortège électronique. Ce pic se superpose au spectre des photons diffusés par effet Compton qui montrent un continuum d'énergies terminé par un front Compton défini comme le maximum d'énergie cédée à un électron lors d'une diffusion simple (Figure 2.4). À ce continuum s'ajoute celui des diffusions multiples entre la source et le détecteur et dans le volume de détection. En effet, pour les détecteurs de taille et de volume importants, l'apparition d'évènements aux énergies comprises entre celle du front Compton et celle du pic de pleine absorption est possible suite à une diffusion multiple subie par le photon diffusé (Figure 2.4).

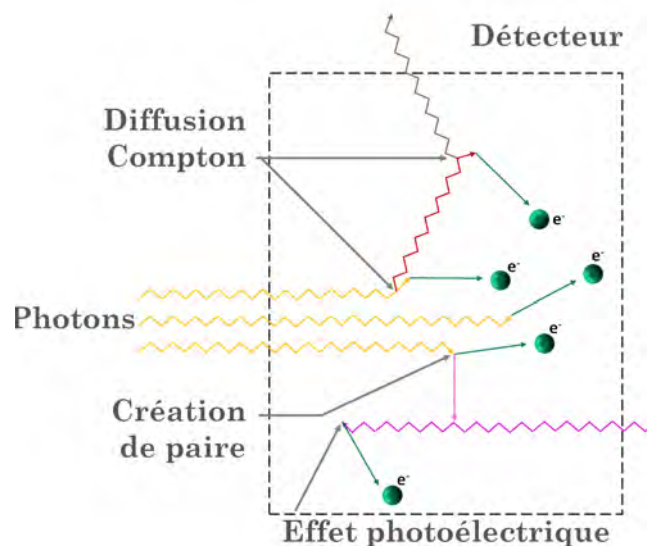


Figure 2.4 – Interaction des photons  $\gamma$  incidents dans le volume du détecteur.

La création d'une paire électron-positon est possible pour les énergies caractéristiques du  $^{40}\text{K}$  (1,461 MeV),  $^{214}\text{Bi}$  (1,764 MeV) et  $^{232}\text{Th}$  (2,615 MeV) mais est peu probable à ces énergies. La différence entre l'énergie du photon incident et l'énergie seuil de 1,022 MeV correspond à l'énergie cinétique transmise à la paire électron-positon. Le positon va perdre progressivement son énergie dans le détecteur et s'annihiler avec un électron du milieu (Figure 2.4).

Cette disparition du positon s'accompagne de l'émission de deux photons de 0,511 MeV pouvant interagir avec le scintillateur et former un pic de simple échappement dont l'énergie est égale à l'énergie du photon  $\gamma$  initial à laquelle 0,511 MeV doivent être soustraits. Dans le cas où ces deux photons de 0,511 MeV n'ont pas subi d'interaction avec le milieu, l'apparition d'un pic de double échappement est matérialisée au niveau d'une énergie égale à l'énergie du photon  $\gamma$  incident amputée de 1,022 MeV.

Des rayonnements X caractéristiques du réarrangement du cortège électronique suite à l'interaction photon  $\gamma$ -détecteur peuvent être observés à très basses énergies (Figure 2.5). Leur présence n'impacte pas la mesure des rayonnements  $\gamma$ .

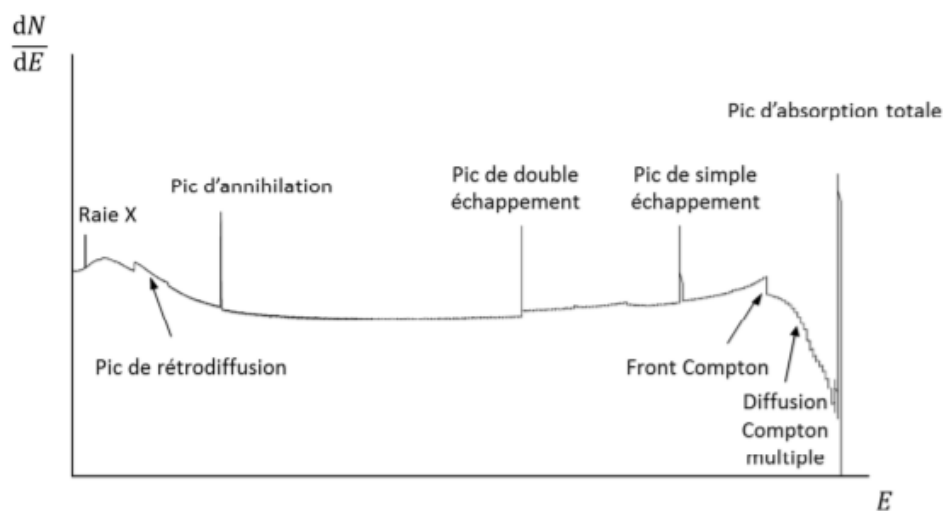


Figure 2.5 – Spectre théorique illustrant les signatures des différents processus d'interaction des photons  $\gamma$  avec le détecteur et son environnement.  $E$  représente l'énergie et le rapport  $\frac{dN}{dE}$  le nombre de photons par incrément d'énergie.

Le scintillateur inorganique NaI(Tl) utilisé dans le cadre de cette étude pour détecter les photons  $\gamma$  va donc considérablement modifier la forme du spectre d'émission des rayons  $\gamma$ . Plusieurs aspects de la réponse instrumentale aux interactions entre photons  $\gamma$  et détecteur sont à considérer tels que **l'efficacité de détection** ou **la résolution d'énergie** associée à la largeur à mi-hauteur du photopic.

L'efficacité de détection va avoir un impact sur le taux de comptage mesuré. La résolution d'énergie, quant à elle, détermine la capacité du détecteur à discriminer deux raies d'énergies adjacentes permettant ainsi d'identifier les différents radio-nucléides composant le spectre mesuré. Ces deux propriétés sont abordées plus en détails lors de la présentation de la calibration expérimentale du spectromètre NaI(Tl) au sein de ce chapitre.



## Un spectre typique de la mesure dans l'environnement

La somme des contributions spectrales caractéristiques des radionucléides naturels ou artificiels présents sur un site constitue un spectre  $\gamma$  du domaine environnemental. En spectrométrie gamma aéroportée, un photon  $\gamma$  émis lors d'une transformation nucléaire dans le sol peut être diffusé successivement par le sol, l'atmosphère et les équipements entourant le détecteur tels que l'hélicoptère ou le container de vol. L'ensemble de ces interactions successives génère un fond de diffusion. Celui-ci est réparti sur l'ensemble des énergies inférieures à l'énergie d'émission de la source avec une intensité potentiellement supérieure à celle du pic d'absorption totale. En effet, en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le détecteur fixé à l'hélicoptère dans son container de vol est situé entre 40 et 120 mètres du sol. Cette grande distance séparant la source du détecteur engendre un flux incident difficile à modéliser au sein de l'atmosphère traversée par les photons  $\gamma$  provenant du sol.

En plus de cette problématique d'un fond de diffusion ayant une intensité supérieure à celle du pic d'absorption, la résolution en énergie dégradée du scintillateur inorganique NaI(Tl) utilisé pour cette étude, de l'ordre de 7% à 0,662 keV, amplifie la réduction du rapport entre le pic d'absorption total et le fond diffusé dans chaque canal. Cela rend d'autant plus difficile la localisation et le calcul de l'aire des pics d'absorption totale d'autant plus s'il doit y avoir prise en compte de la superposition d'un second pic. L'isolement des pics d'absorption totale et la caractérisation du fond continu sous ce même pic sont deux éléments clés permettant une bonne caractérisation de l'aire du pic. De plus, le temps de mesure standard d'une seconde réduit le nombre de comptages enregistrés à hautes énergies entre 0 et 1 pour certains canaux. La conséquence directe va être une diminution forte du nombre de coups enregistrés dans les pics d'absorption totale.

Ainsi, le profil spectral global est complexe puisqu'il se compose de la somme des profils spectraux incluant les familles naturelles ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ ) ainsi que la présence éventuelle de radionucléides artificiels ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ). Les méthodes standards d'analyse des spectres issues de la spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire seront difficilement applicables aux spectres acquis par moyen aéroporté. L'analyse spectrale est donc une science délicate qui est fonction de la capacité à discriminer les raies d'énergie caractéristiques d'un radionucléide. Plusieurs méthodes utilisées en analyse spectrale sont détaillées dans la partie suivante. Une nouvelle méthode mise en place dans le cadre de ces travaux est également proposée.

### 2.3.2 L'analyse des spectres $\gamma$ issus de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée

En spectrométrie gamma aéroportée, les spectres enregistrés représentent une somme de contributions spectrales caractéristiques des radionucléides présents sur ou dans le sol. Le nombre de pics d'un spectre global est important avec de nombreux recouvrements. Or, chaque pic d'absorption totale permet d'identifier les radionucléides et d'en calculer leur abondance.

Ainsi, il est nécessaire que le traitement du spectre permette d'isoler les pics majeurs des divers radionucléides émetteurs. Un spectre typique enregistré en spectrométrie gamma aéroportée est présenté sur la figure 2.6.

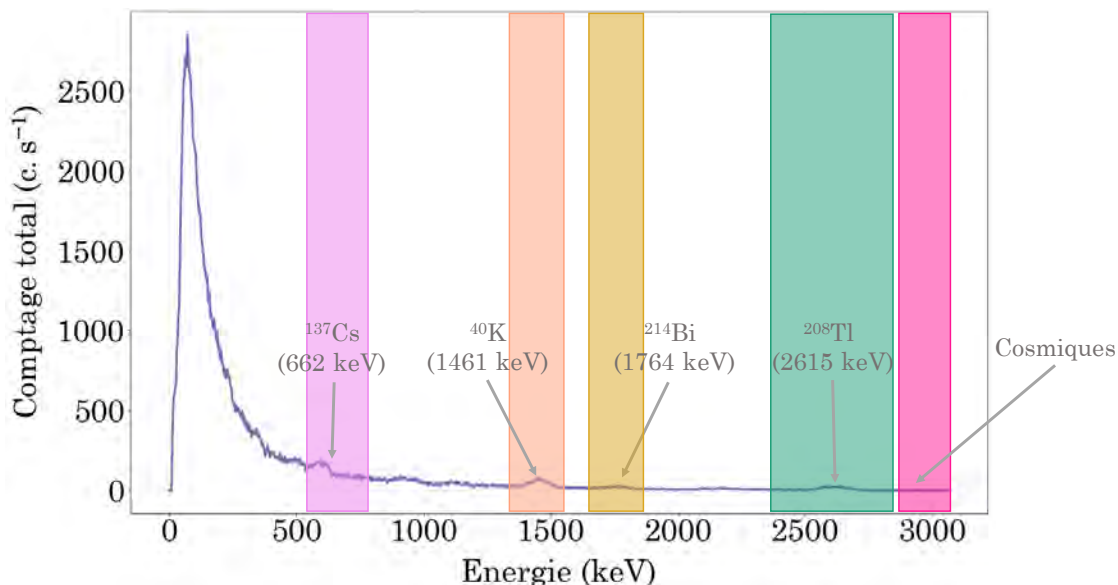


Figure 2.6 – Spectre de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée typique montrant la position des fenêtres énergétiques conventionnelles pour les radionucléides <sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th et <sup>137</sup>Cs ainsi que le comptage total. Une fenêtre "Cosmiques", dont la caractérisation et l'intérêt scientifique ont été développés dans ces travaux, a été ajoutée au spectre.

### La méthode des fenêtres d'intégration - AIEA

L'analyse du spectre global par la méthode des fenêtres, tel que préconisé par l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique (AIEA) [IAEA, 1991], s'opère sur quelques fenêtres énergétiques caractéristiques des raies d'émission majeures des nucléides recherchés.

Pour les familles naturelles, ces raies sont centrées sur les énergies 1461 keV pour le potassium-40, 1764 keV pour l'uranium (équivalent uranium, <sup>214</sup>Bi) et 2615 keV pour le thorium (équivalent thorium, <sup>208</sup>Tl). Les fonds diffus associés à ces spectres indépendants vont se superposer aux photopics de plus basses énergies. Chaque fenêtre va se définir par une borne inférieure et une borne supérieure (Tableau 2.1).

Élément	Isotope	Énergie $\gamma$	Fenêtre (keV)
Potassium	<sup>40</sup> K	1461	1370 - 1570
Uranium	<sup>214</sup> Bi	1764	1660 - 1860
Thorium	<sup>208</sup> Tl	2615	2410 - 2810
Césium	<sup>137</sup> Cs	662	544 - 761
Cobalt	<sup>60</sup> Co	1333	1092 - 1412
Comptage total	-	-	40 - 2810

Tableau 2.1 – Fenêtres énergétiques exprimées en keV [IAEA, 1991] caractéristiques des radionucléides des trois familles naturelles et de deux radionucléides artificiels. Le comptage total sur la gamme d'énergie 40 - 2810 keV est aussi spécifié.

Pour les radionucléides artificiels qui peuvent présenter un risque sanitaire ou un danger pour l'environnement, les énergies centrées à 662 keV ( $^{137}\text{Cs}$ ) pour le césium et 1333 keV ( $^{60}\text{Co}$ ) pour le cobalt sont investiguées (Tableau 2.1). Une fenêtre permettant d'analyser les comptages sur la totalité du spectre est également considérée favorisant une observation rapide de la distribution des taux de comptage total sur une cartographie réalisée par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Dans chaque fenêtre d'énergie considérée, le comptage est décomposé sous la forme d'une somme de contributions indépendantes représentatives des différents radionucléides présents au sol ainsi que des différents bruits de fond. Ceci suppose que chaque composante ne soit pas affectée par la présence des autres radionucléides. Or, ce n'est pas le cas du fait des photons de plus haute énergie diffusés par effet Compton. Ainsi, il est nécessaire de modéliser le fond continu ou bruit de fond sous chaque pic d'absorption totale pour permettre la détermination de l'aire de la raie.

Pour extraire les comptages inhérents au pic d'absorption totale de chaque radionucléide dans les fenêtres considérées, il faut donc soustraire le bruit de fond global à l'aire mesurée dans la fenêtre énergétique :

- Le **bruit de fond instrumental** comprenant les traces de radionucléides dans le détecteur et son matériel environnant. Il faut donc prendre en compte le continuum et les raies associées.
- Le **bruit de fond** dû à la composante atmosphérique à savoir le **rayonnement cosmique** et le **radon atmosphérique**. La façon de soustraire l'influence du rayonnement cosmique n'est pas spécifiée par l'AIEA. Une méthode de détermination de l'effet des rayonnements cosmiques dans chaque fenêtre d'intégration de l'AIEA est proposée dans le chapitre 7. Le continuum et les raies associés au radon-222 atmosphérique influencent également le signal mesuré. Seul le suivi de la composante tellurique intéresse, *a priori* la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.
- L'influence des photons diffusés par les radionucléides de plus haute énergie que l'énergie du radionucléide considéré. Cette correction s'appelle le *stripping* ou déconvolution spectrale [IAEA, 1991].

Ce dernier point évoque la détection dans les fenêtres de plus basses énergies de l'uranium et du potassium, de photons émis d'une source pure de thorium du fait de la diffusion Compton dans le sol. Des comptages enregistrés à plus basse énergie peuvent aussi résulter d'une absorption incomplète des photons à 2,615 MeV dans le détecteur. Certains coups mesurés dans la fenêtre de plus basse énergie, celle du potassium, peuvent provenir de photons émis par une source pure d'uranium. Ainsi, dans la fenêtre d'énergie du potassium, l'influence des photons diffusés par le thorium et l'uranium doit donc être pris en compte pour déterminer les comptages effectifs dans la fenêtre du potassium. Cette influence des photons diffusés par les radionucléides de plus haute énergie sur l'énergie du radionucléide investiguée est défini comme un bruit de fond et va devoir être traitée au travers d'un processus de correction, la déconvolution spectrale.

La procédure de **déconvolution spectrale** fait intervenir des rapports spectraux, les **coefficients de déconvolution** déterminés expérimentalement à l'aide de blocs de béton actif disposant chacun d'une valeur de concentration connue de

$^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  [Ward, 1978] ou par des outils de simulation numérique (calcul Monte Carlo). Ainsi, les composantes spectrales élémentaires de chaque famille aux trois fenêtres énergétiques sont obtenues. La présence d'autres éléments dans ces spectres *purs* va être à l'origine de la détermination des coefficients de déconvolution. Afin de remonter aux contributions de chaque radionucléide, il faudra procéder à l'inversion d'une matrice de dimension 3 représentant la somme des contributions de chacun de ces trois radionucléides, K, U et Th, dans leur fenêtre énergétique respective [Allyson and Sanderson, 2001] qui se présente sous la forme :

$$\begin{pmatrix} K/K & K/U & K/Th \\ U/K = 0 & U/U & U/Th \\ Th/K = 0 & Th/U \simeq 0 & Th/Th \end{pmatrix} \begin{pmatrix} CN_K \\ CN_U \\ CN_{Th} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} CT_K \\ CT_U \\ CT_{Th} \end{pmatrix}$$

avec :

- $X/X$  représentant le coefficient de déconvolution spectrale qui constitue le rapport entre le comptage induit par l'élément X dans sa fenêtre énergétique,
- $X/Y$  représentant le coefficient de déconvolution spectrale qui constitue le rapport entre le comptage induit par l'élément Y dans la fenêtre énergétique de l'élément X,
- $CN_X$  qui définit le comptage net, c'est-à-dire le comptage induit par l'élément X dans sa fenêtre énergétique.
- $CT_X$  qui caractérise le comptage total (comptage net + contributions) dans la fenêtre énergétique de l'élément X.

Dans cette matrice, les radionucléides artificiels ne sont pas représentés. Toutefois, depuis 1989, deux fenêtres supplémentaires centrées sur les pics du  $^{137}\text{Cs}$  à 622 KeV et du  $^{134}\text{Cs}$  à 795 keV ont été ajoutés à la suite de l'accident nucléaire de Chernobyl en 1986 [Sanderson et al., 1990]. La caractérisation de l'évolution temporelle des concentrations en radionucléides artificiels peut faire l'objet d'une étude de suivi environnemental de site pour vérifier la décroissance progressive de ces radionucléides.

Cette méthode des fenêtres agit en cascade d'influence depuis les hautes énergies vers les moyennes énergies. Il est donc indispensable d'avoir une connaissance préalable des radionucléides présents sur chaque spectre pour ne pas procéder à des surestimations de comptages dans les fenêtres énergétiques du césium. Par exemple, le Cobalt-60 qui émet des photons  $\gamma$  à deux énergies caractéristiques de 1173 keV et 1332 keV doit nécessairement être pris en compte dans les fenêtres du césium qui sont centrées à des plus basses énergies pour éviter une surestimation des comptages du césium.

Cette méthode des fenêtres est la méthode standard employée pour analyser les données issues de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Ce protocole, encouragé par l'AIEA, est donc appliqué par l'équipe Hélinuc® depuis de nombreuses années. **Cette méthode des fenêtres a été donc employée pour traiter l'ensemble des spectres acquis durant cette thèse à partir du spectromètre NaI(Tl) installé sur le site pilote.** Les coefficients de déconvolution spectrale utilisés dans le cadre de ces travaux de recherche ont été fournis par l'équipe Hélinuc® du CEA. La procédure de traitement appliquée aux données de cette étude est donc identique à celle utilisée par l'équipe Hélinuc® ce qui permet d'éviter les biais de traitement.

### Une autre approche proposée : la méthode de la ligne de base

La méthode de la ligne de base, très employée dans le domaine spatial, en spectroscopie (LIBS<sup>1</sup>, Raman et Infrarouge) et en spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire (avec détecteurs HPGe), a pour objectif de simuler la ligne de base du signal spectral et de la soustraire à un ajustement analytique du profil des photopics.

Cette méthode appliquée à l'analyse de spectres  $\gamma$  aéroportés permettrait donc d'investiguer des raies d'énergie caractéristiques de l'uranium et du thorium supplémentaires par rapport aux standards de la méthode des fenêtres, sur des spectres acquis par un NaI(Tl). Ces nouvelles informations qui découleraient de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée assurerait une validité des taux de comptage mesurés dans la fenêtre de plus haute énergie. Les photons  $\gamma$  émis à basses et hautes énergies se caractérisent par la profondeur de sol qu'ils sont capables de traverser. La profondeur d'origine du signal  $\gamma$  étant différente, l'étude de raies à plus basses énergies permettrait de s'intéresser uniquement à la couche superficielle du sol. C'est d'ailleurs cet horizon de sol qui est le premier impacté par une pollution et qui est le plus souvent remobilisé par les activités anthropiques. L'analyse spectrale sur ces raies de plus basses énergies a été réalisée par cette méthode de la ligne de base avec un protocole de traitement et un code informatique développé dans le cadre de ces travaux.

**La procédure développée au cours de cette thèse :** La ligne de base est une estimation du fond diffusé sous les différents pics d'absorption totale qui composent le signal mesuré. Une fois déterminée, il est possible en soustrayant le signal spectroscopique brut de déterminer plusieurs paramètres de la raie et notamment le comptage net dans la fenêtre du pic d'absorption totale.

Le protocole mis en place dans cette thèse dans le cadre d'une analyse spectrale par estimation de la ligne de base d'une fenêtre énergétique du radionucléide considéré peut être résumé en trois étapes :

- **Estimation de la ligne de base** sur un intervalle énergétique considéré par minimisation des moindres carrés par sélection automatique des points. En effet, la ligne de base d'un spectre varie lentement, il est donc possible de la modéliser par un polynôme d'ordre faible déterminé numériquement. L'algorithme de moindres carrés asymétriques (ALS) développé par [Eilers and Boelens, 2005] a montré les résultats les plus prometteurs pour être appliqué à la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.
- **Ajustement du pic** d'absorption totale par lissage de Savitzky-Golay par polynôme de degré 3 et taille de la fenêtre dépendant de la largeur à mi-hauteur du plus petit pic considéré dans le cadre de l'analyse spectrale. Le polynôme de degré 3 permet de prendre en compte la courbure et les points d'inflexion de la courbe à ajuster. Ce filtre est couramment utilisé pour l'étude de pics en spectrométrie et pour analyser des variations temporelles de mesures hydrologiques. Cet ajustement facilite la détermination de la largeur à mi-hauteur du photopic (FWHM) et entre en compte dans la caractérisation de la résolution d'énergie pour des simulations Geant-4.

---

1. Laser Induced Breakdown Spectroscopy

- **Détermination de l'intégrale** par la méthode de Simpson sur la plage énergétique du pic d'absorption totale. L'aire est déterminée entre le signal lissé par le filtre de Savitsky-Golay et la ligne de base estimée par la méthode ALS, deux paramètres potentiellement sources d'incertitude.

Un exemple d'application de ce protocole est proposé sur la figure 2.7 (a) pour la raie du  $^{137}\text{Cs}$ . Ce spectre a été obtenu à partir de la mesure de calibration du détecteur NaI(Tl) en présence d'une source radioactive de  $^{137}\text{Cs}$ .

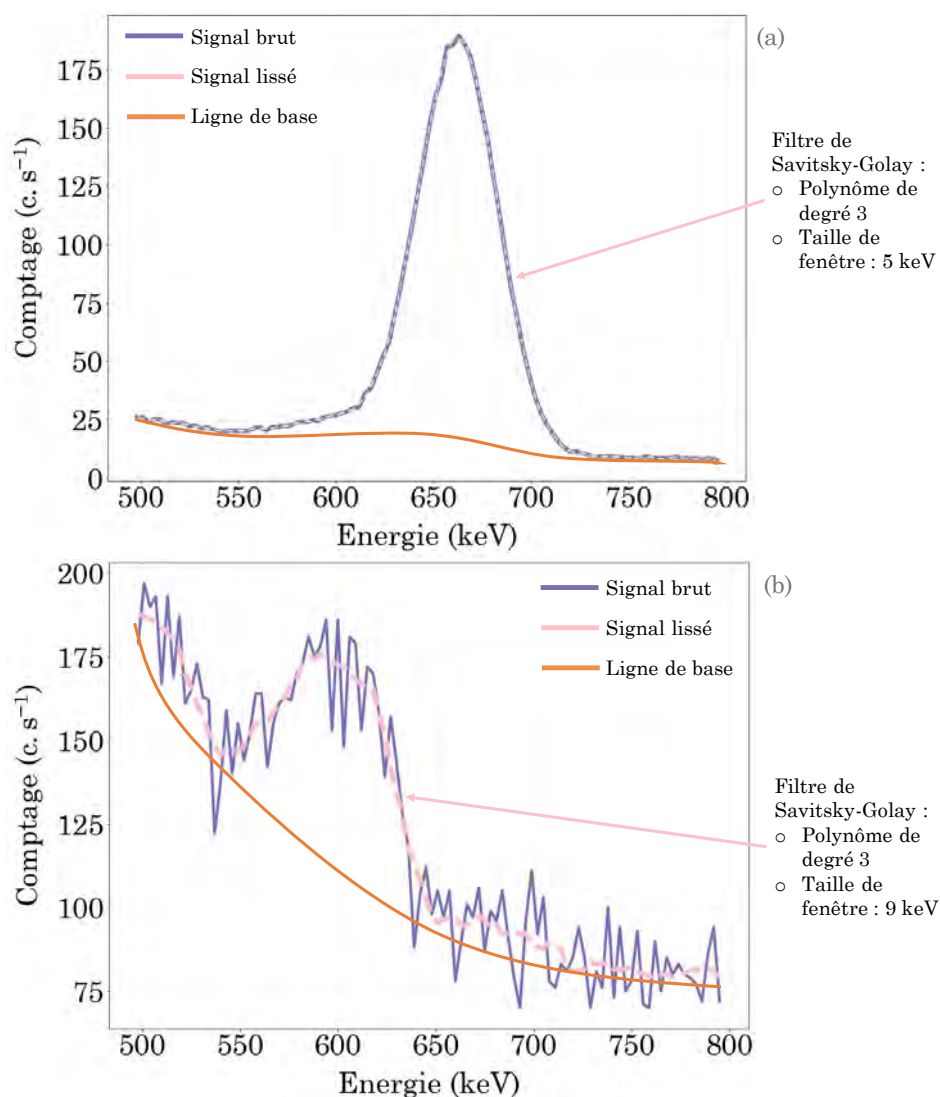


Figure 2.7 – (a) Application de la méthode de la ligne de base sur la raie caractéristique du  $^{137}\text{Cs}$  à 662 keV. Le spectre a été acquis en laboratoire au cours de la calibration du NaI(Tl) avec une source de  $^{137}\text{Cs}$  sur une durée de 90 secondes. (b) Application de la méthode de la ligne de base sur le doublet de raies caractéristiques du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV et du  $^{208}\text{Tl}$  à 583 keV. Le spectre a été acquis en conditions environnementales sur le site du P2OA-CRA sur une durée de 30 secondes.

L'utilisation de cette méthodologie en trois étapes pour la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée ou pour une calibration du scintillateur inorganique NaI(Tl) en laboratoire est rendue complexe par la résolution en énergie dégradée de ce type de détecteur. En effet, un pic d'absorption totale identifié sur un spectre acquis par ce type de



détecteur peut être le fruit de deux raies d'émission de deux radionucléides différents (Figure 2.7 (b)). Cela peut entraîner une erreur dans les aires calculées dans le sens d'une surestimation. Ces pics multiples doivent d'abord être décomposés en pic d'absorption totale élémentaire afin d'assurer une qualité de résultat. Il est donc nécessaire de connaître les radionucléides présents dans le bruit de fond radiologique ainsi que leurs énergies de raies d'émission caractéristiques afin de vérifier la présence de pics multiples et d'ajouter cette étape de décomposition. Les raies élémentaires issues de la déconvolution spectrale doivent conserver la même ligne de base. C'est à cette seule condition que la détermination de l'intégrale entre signal lissé et ligne de base fera sens pour une raie d'émission investiguée pour un radionucléide.

Cette méthodologie d'extraction des aires est appliquée à une trentaine de raies du spectre  $\gamma$  couvrant les énergies 59,54 keV ( $^{241}\text{Am}$ ) à 2614,51 keV ( $^{208}\text{Tl}$ ). L'ensemble de ces raies est investiguée dans le cadre de la calibration en laboratoire du spectromètre NaI(Tl) installé sur le site P2OA-CRA avec des sources radioactives. En environnement extérieur, comme pour les spectres acquis sur le site P2OA-CRA, les raies exploitées par cette procédure sont regroupées dans le tableau 2.2.

Élément	Isotope	Énergie (keV)	Élément	Isotope	Énergie (keV)
Thorium	$^{212}\text{Pb}$	238,63	Uranium	$^{214}\text{Pb}$	295,22
	$^{208}\text{Tl}$	583,19		$^{214}\text{Pb}$	351,93
	$^{228}\text{Ac}$	911,19		$^{214}\text{Bi}$	609,31
	$^{228}\text{Ac}$	968,96		$^{214}\text{Bi}$	1120,29
	$^{208}\text{Tl}$	2614,51		$^{214}\text{Bi}$	1238,11
Potassium	$^{40}\text{K}$	1460,82		$^{214}\text{Bi}$	1764,49
Césium	$^{137}\text{Cs}$	661,66		$^{214}\text{Bi}$	2204,11

Tableau 2.2 – Raies caractéristiques de plusieurs radionucléides pouvant être exploitées par l'intermédiaire de la méthode de la ligne de base.

Le protocole mis en place fait l'objet d'une routine automatique de calcul pour une application à **l'étude de l'analyse spectrale de la réponse du détecteur à une calibration avec sources radioactives en environnement contrôlé**. Une seconde utilisation sur l'ensemble des spectres acquis en environnement extérieur non contrôlé a également montré son intérêt pour l'extraction des taux de comptage pour des raies d'énergie non caractérisées en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Des points de vérifications automatiques et manuels sur la forme de la ligne de base, l'ajustement polynomial ou encore le calcul de l'aire de raie sont effectués pour chaque spectre. La mise en place de seuils d'acceptabilité pour ces critères permettent de s'assurer de la bonne réalisation de chaque étape de la procédure.

La forme du spectre et l'analyse qui en découle montrent **la nécessité d'une parfaite connaissance de l'influence des paramètres instrumentaux sur la mesure** : le bruit de fond, la résolution en énergie et l'efficacité de détection.

## 2.4 La calibration du RSX-5 : du bruit de fond à la simulation

La **calibration** d'un détecteur qu'elle soit expérimentale ou modélisée est une étape importante. Elle conditionne l'emploi effectif de l'instrument dans des conditions optimisées en s'assurant que les mesures effectuées sont uniquement représentatives du paramètre étudié [Breur, 2013]. La calibration dite au sol, c'est-à-dire, en environnement contrôlé (température, pression, système électrique, etc.) offre un large éventail de possibilités, depuis la simple mesure de la réponse à une source radioactive ponctuelle jusqu'à la reproduction exacte de conditions de vol par concentration des paramètres.

La performance d'un détecteur passe donc par cette étape de calibration qui peut être divisée en trois étapes : **la calibration en énergie, la calibration en résolution et la calibration en efficacité** [Gilmore, 2008]. Ces calibrations permettent d'identifier et de déterminer correctement l'activité des radionucléides impliqués. Alors que les calibrations en énergie et en résolution sont réalisées facilement de manière expérimentale, la calibration en efficacité peut être une tâche difficile notamment pour les géométries de source complexes et étendues. Une approche classique pour réaliser la calibration en efficacité est d'utiliser des simulations Monte-Carlo qui doivent être validées expérimentalement avec au moins une géométrie source-détecteur assez simple [Allyson and Sanderson, 1998].

Dans le cadre de cette thèse, un **protocole** de calibration a été mis en place pour le spectromètre NaI(Tl) afin de procéder à l'identification de toutes les caractéristiques instrumentales nécessaires au traitement des données acquises :

- La **linéarité entre énergie et canal** par l'intermédiaire de l'association entre les comptages d'un canal et l'énergie du centroïde du photopic d'absorption totale de la source radioactive connue. La vérification du coefficient de conversion entre énergie et canal qui est fournie par le fabricant est également réalisée. Un mauvais paramétrage peut influencer à la fois sur les bornes d'intégration et sur le nombre de comptages réellement présent dans la fenêtre énergétique investiguée et ainsi influencer sur l'aire totale mesurée.
- L'**efficacité de détection** absolue du détecteur permet de quantifier la réponse instrumentale à une sollicitation photonique ponctuelle. Elle est définie par le rapport du nombre de coups mesurés dans le pic de pleine énergie sur le nombre total de photons émis par la source. C'est un paramètre propre à une géométrie source-détecteur donnée. Elle varie avec l'énergie. Pour satisfaire ensuite à une géométrie source-détecteur différente, il est indispensable de procéder à une validation de cette courbe d'efficacité de détection en fonction des énergies par des **simulations numériques**.
- La **résolution en énergie** mesurant la capacité du détecteur à séparer les raies dans le spectre. Elle varie avec l'énergie. La résolution est la somme de plusieurs contributions comme la fluctuation statistique du nombre de photons émis, puis du nombre de photo-électrons produits, de la dispersion dans la collecte des photons et du bruit de l'électronique. Implémenter la courbe de calibration de la résolution en énergie dans les simulations numériques permettra de mieux s'approcher des spectres obtenus lors des mesures.



En suivant cette feuille de route mêlant mesures et simulations, les quatre calibrations ont été réalisées en environnement contrôlé dans un local dédié à cet effet. De nombreux ajustements de courbes ont également été testés pour la résolution en énergie et l'efficacité de détection. Une simulation Monte-Carlo développée sous Geant-4 est venue compléter ce protocole et fait partie intégrante de ce chapitre.

En plus de cette calibration, une mesure de **bruit de fond de l'instrument** a été réalisée puisque le détecteur est lui-même émetteur. Ainsi, elle doit permettre de quantifier le taux de comptage dans les fenêtres énergétiques du  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{238}\text{U}$  associé à la présence en quantité minimale de ces radionucléides au sein du détecteur, dans les matériaux servant d'enveloppe et de protection, dans l'électronique d'acquisition etc. Ces comptages internes intrinsèques à l'instrument sont considérés comme constants au cours du temps.

### 2.4.1 Le bruit de fond instrumental

Le bruit de fond instrumental est une des composantes du bruit de fond total qui doit être soustrait des spectres acquis lors de mesures [IAEA, 1991]. Pour déterminer le bruit de fond d'un instrument, il est nécessaire d'isoler l'instrument des émissions  $\gamma$  de sources externes.

La mesure de bruit de fond s'effectuant sur la surface terrestre, l'ensemble des photons  $\gamma$  émis par les composantes tellurique, cosmique et artificielle peuvent atteindre l'instrument. Les photons  $\gamma$  sont très pénétrants dans la matière et il est donc difficile d'isoler un détecteur pour en mesurer son bruit de fond. Ces photons ne peuvent qu'être atténués et jamais freinés par la traversée de matériaux. Plus le matériau est dense et plus l'atténuation des photons associée est importante pour une épaisseur donnée. Trouver un matériau écran susceptible d'atténuer suffisamment les photons ou mieux encore les absorber pour qu'ils n'interagissent pas pendant la mesure de bruit de fond du détecteur est donc primordiale. L'objectif est de parvenir à rendre la proportion de photons  $\gamma$  traversant l'écran la plus insignifiante possible pour que leur effet sur la mesure de bruit de fond soit considéré comme négligeable.

La **complexité** de réalisation de ce type de mesure due à la taille et au poids du détecteur fait qu'en principe le bruit de fond instrumental est estimé par simulations numériques ou par des processus de post-traitements [Minty, 1997, IAEA, 2003, Zhang et al., 2015]. **Aucune mesure effective directe du bruit de fond instrumental n'a encore été proposée pour un spectromètre NaI(Tl) de type RSX-5 ou RSX-4.**

Dans ces travaux, un **protocole** a donc été mis en place afin de mesurer de manière expérimentale le bruit de fond du détecteur RSX-5 et est présenté en détails en annexe C. La construction d'un sarcophage en plomb de 10 cm d'épaisseur, permettant une atténuation des rayons  $\gamma$  de 98,3% à 2615 keV, autour du détecteur suivant ses dimensions est présentée sur la figure 2.8 qui en reprend les principales étapes. Le plomb utilisé est un plomb archéologique de 300 ans qui permet de considérer comme négligeable l'émission de rayonnements  $\gamma$  par ce matériau.

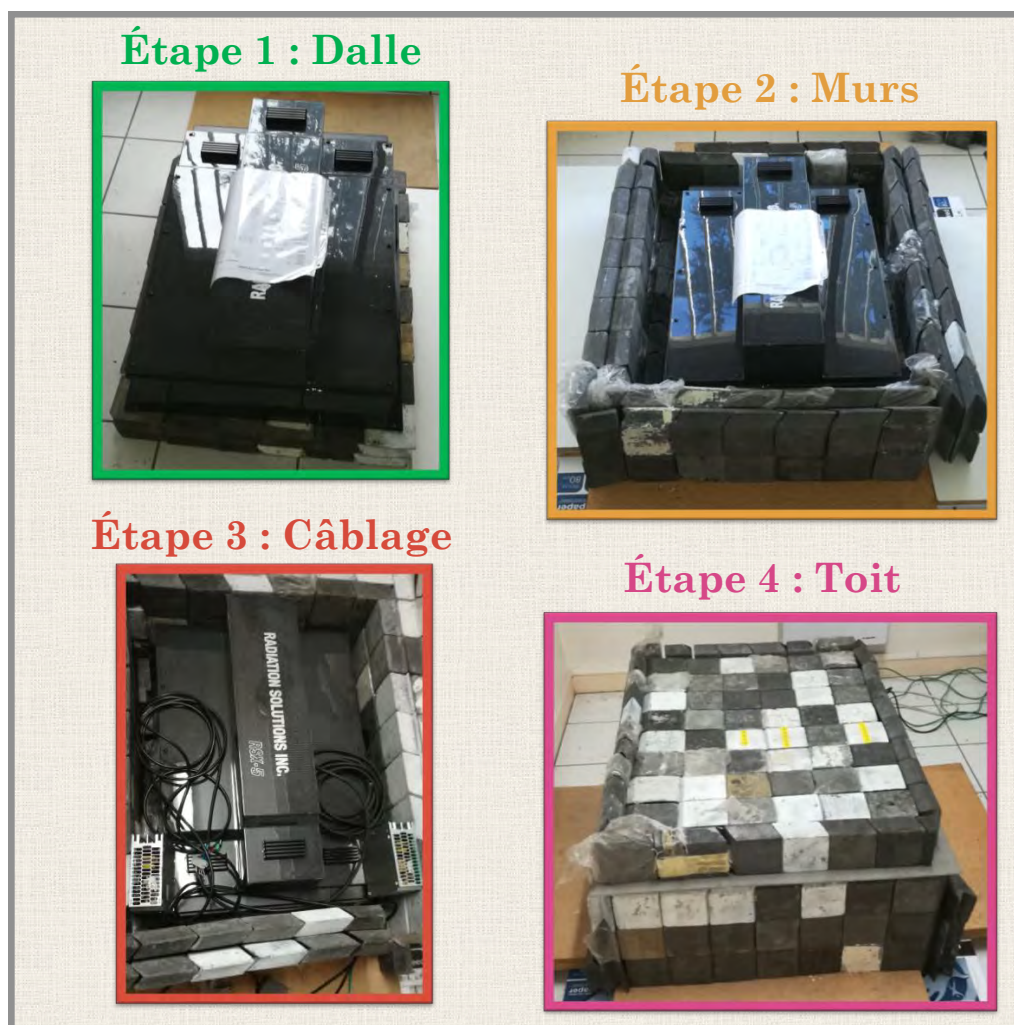


Figure 2.8 – Protocole mis en place pour la mesure de bruit de fond du détecteur RSX-5. Un château de plomb de 10 cm d'épaisseur pour sa base, ses murs et son toit permet d'isoler le détecteur de l'environnement extérieur. Une plaque en acier inoxydable permet de structurer le toit du château de plomb en protégeant le détecteur. Les photons  $\gamma$  provenant de l'extérieur du sarcophage sont atténués par l'épaisseur de plomb. Seuls les photons  $\gamma$  émis par le détecteur pourront être détectés déterminant le bruit de fond instrumental dans chaque fenêtre énergétique considérée.

Suite à la construction du château de plomb et avant de débiter la mesure de bruit de fond, la vérification de la stabilité de l'édifice est réalisée. Des renforts extérieurs à cet édifice de 700 kg ont été ajoutés pour le stabiliser le temps des mesures.

### La mesure du bruit de fond

Plusieurs mesures de bruit de fond instrumental, en présence et en absence des alimentations électriques, ont été réalisées en environnement contrôlé. Une procédure garantissant sécurité et rigueur de mesure sur toute la période d'enregistrement a été appliquée :

- La stabilisation du détecteur s'est opérée avant la mise en place du toit.

- Une seule personne est autorisée à entrer dans le local pour vérifier la stabilité de l'édifice et l'enregistrement des données.
- La **température** de 20°C est constante pour éviter un risque de dérive des spectres au cours de la mesure.
- Aucune source radioactive n'est présente dans le local durant les mesures.
- Les spectres sont enregistrés sur 1 seconde et par un cumul de spectres sur 300 secondes. L'étude se base sur les données cumulées de 300 secondes.

La **méthode de la ligne de base**, où la ligne de base du spectre intégré a été soustraite, est appliquée pour déterminer les comptages dans chaque fenêtre énergétique d'intérêt et pour chaque cristal. Ainsi, seul le bruit de fond instrumental est pris en compte, sans l'influence du rayonnement cosmique qui peut traverser le château de plomb sans atténuation, mais qui ont un spectre continu. Le bruit de fond cosmique doit être soustrait aux spectres environnementaux et fait l'objet d'un protocole de détermination présenté au chapitre 7.

Le cumul de comptages des cristaux 1 à 4 pour chaque fenêtre d'énergie constitue le bruit de fond de la composante *Down* et le comptage calculé pour le cristal 5 celui de la composante *Up* (Figure 2.9).

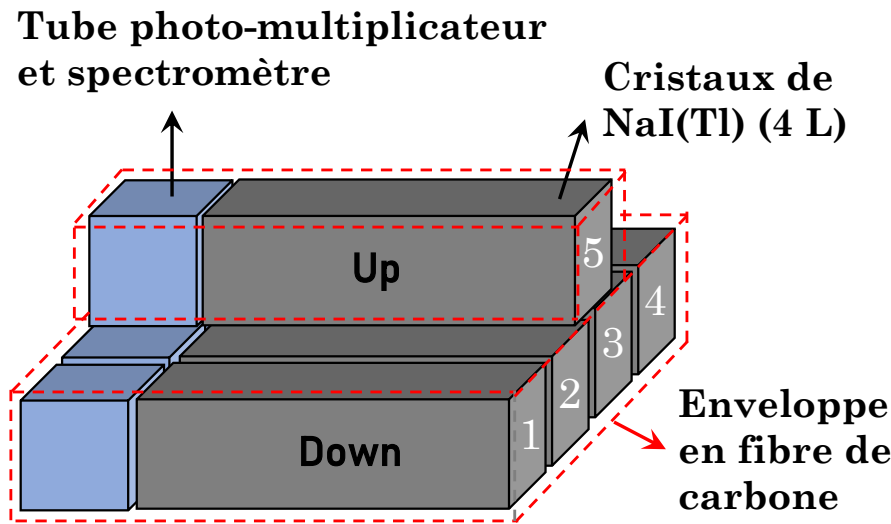


Figure 2.9 – Présentation des composantes *Down* et *Up* du détecteur RSX-5.

Chaque mesure a été réalisée sur 3 semaines complètes pour s'assurer une statistique de comptage suffisamment importante pour valider les mesures de bruit de fond instrumental tout en s'assurant une fiabilité par répétabilité des acquisitions. Quatre mesures de bruit de fond, deux en présence et deux en absence des alimentations électriques, ont été réalisés. Les résultats sont associés sous les appellations *BDF-RSX5a* (avec alimentation) et *BDF-RSX5* (sans alimentation) au sein du tableau 2.3.

Les résultats pour tous les cristaux, y compris la composante *Down* sont identiques d'une mesure de bruit de fond à une autre. La stabilité des bruits de fond mesurés ne montre pas un effet de la présence des alimentations électriques au contact

du détecteur. La variation maximale observée de 4,2% se situe au niveau de la fenêtre énergétique du  $^{40}\text{K}$  pour le cristal 4. Elle peut être considérée comme négligeable car inférieure à 5%.

Radionucléide	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$	$^{40}\text{K}$	Comptage Total
Cristal-1	1,01	0,72	2,19	42,59
Cristal-2	0,88	0,62	1,61	39,98
Cristal-3	0,87	0,61	1,63	40,17
Cristal-4	0,96	0,74	2,11	43,76
Cristal-5	0,93	0,66	1,97	45,41
Down	<b>3,72</b>	<b>2,69</b>	<b>7,54</b>	<b>166,50</b>
Cristal-1	0,98	0,73	2,22	42,74
Cristal-2	0,87	0,61	1,60	39,83
Cristal-3	0,89	0,63	1,65	40,39
Cristal-4	0,98	0,73	2,20	43,85
Cristal-5	0,91	0,66	2,00	45,81
Down	<b>3,72</b>	<b>2,70</b>	<b>7,67</b>	<b>166,81</b>

Tableau 2.3 – Valeurs moyennes, en  $\text{c.s}^{-1}$  calculées à partir des comptages de chaque fenêtre énergétique pour les deux mesures de bruit de fond "RSX5" (haut de tableau) et "RSX5a" (bas de tableau). Le "Cristal-5" définit la composante Up.

Un exemple de résultats du bruit de fond instrumental est présenté sur la figure 2.10 pour la période du 16 au 23 Janvier 2019. Les variations de bruit de fond pour chaque cristal dans les fenêtres énergétiques de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$  sont minimales sur la période. Le bruit de fond est stable sur la période considérée avec une gamme de variation inférieure à 10 %.

Les cristaux 2 et 3 (intérieurs) qui sont écrantés par les cristaux 1, 4 et 5 (extérieurs) ont des valeurs de bruit de fond pour ces 3 radionucléides inférieures à celles observées par les cristaux 1 et 4. Pour le bruit de fond lié au  $^{232}\text{Th}$ , les cristaux 2 et 3 ont une valeur moyenne de 0,87 et 0,88  $\text{c.s}^{-1}$  alors qu'elles sont de l'ordre de 0,92  $\text{c.s}^{-1}$  pour le cristal 5, 1,00 et 0,97  $\text{c.s}^{-1}$  pour les cristaux 1 et 4 respectivement. Le cumul des cristaux 1 à 4 composant la base du détecteur *Down* donne donc une moyenne de 3,84  $\text{c.s}^{-1}$  pour la période considérée. En ce qui concerne le bruit de fond instrumental dû au  $^{238}\text{U}$ , la moyenne de chaque cristal est de 0,72, 0,62, 0,62, 0,74 et 0,66 pour les cristaux 1 à 5 respectivement. Le cumul moyen pour la composante *Down* est donc de 2,69  $\text{c.s}^{-1}$ . Pour le  $^{40}\text{K}$ , les valeurs moyennes des cristaux 1 à 5 atteignent 2,21, 1,60, 1,64, 2,14 et 1,99  $\text{c.s}^{-1}$ . La composante *Down* du détecteur a donc un bruit de fond moyen de 7,67  $\text{c.s}^{-1}$  pour la fenêtre énergétique du  $^{40}\text{K}$ .

Ces observations sont identiques pour toutes les mesures de bruit de fond réalisées sur la période.

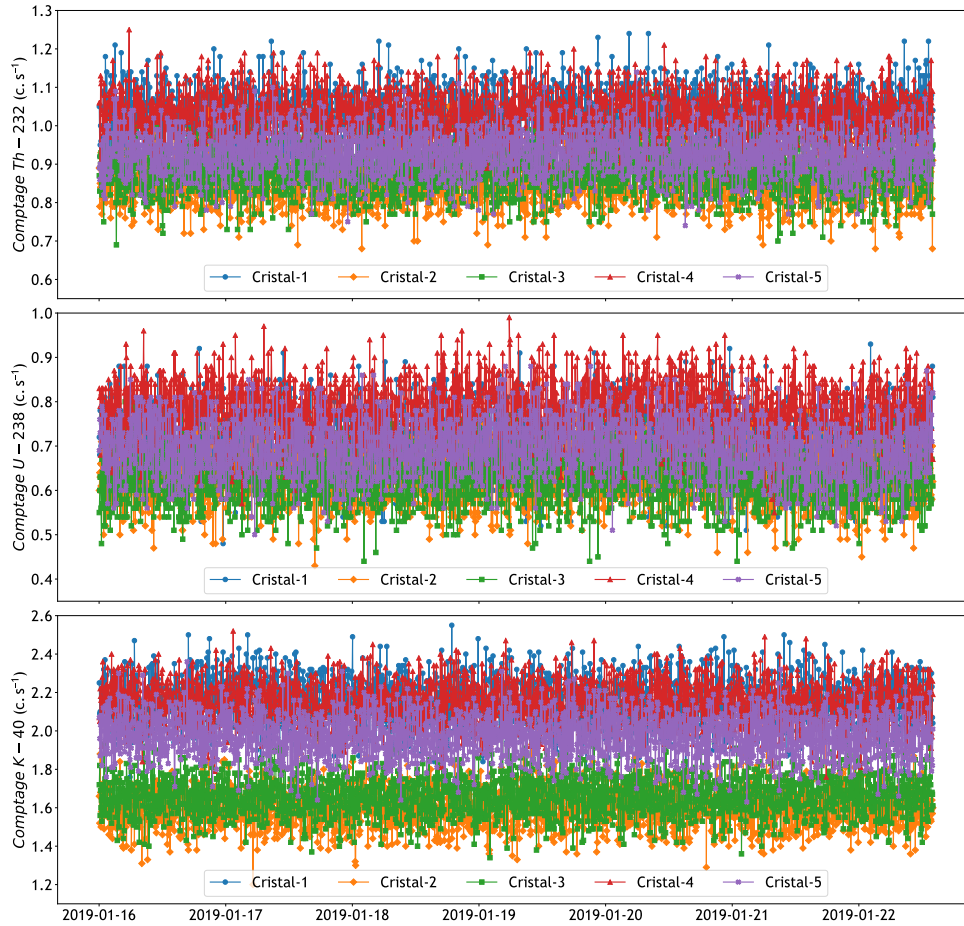


Figure 2.10 – Exemple de résultats pour la mesure de bruit de fond instrumental pour chaque cristal dans les fenêtres énergétiques du  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$ . Période de mesure avec alimentation électrique incluse dans le château de plomb.

Ainsi, pour le  $^{232}\text{Th}$ , la valeur expérimentale est 36% plus importante que celle utilisée par défaut. Une différence de 25% est observée pour la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  avec une valeur de bruit de fond expérimental toujours supérieure à celle du CEA. Pour le  $^{40}\text{K}$ , la valeur du CEA est supérieure à la valeur expérimentale de 38%. Cette dernière variation peut s'expliquer par une simulation de la réponse du bruit de fond avec présence humaine (source de potassium) à bord d'un hélicoptère [Guillot, 1996]. Les valeurs de bruit de fond estimées par simulation incluent également l'influence du moyen aéroporté utilisé.

La comparaison entre les valeurs de bruit de fond simulées initialement par le CEA et celles acquises expérimentalement montrent des différences notables sur l'ensemble des fenêtres pour la composante *Down*. Les valeurs expérimentales sont supérieures à celles attendues et prises en compte actuellement. En effet, les bruits de fond simulés sont supposés prendre en compte les effets de l'hélicoptère, du système d'accroche, du facteur humain et des rayonnements cosmiques en plus de bruit de fond du spectromètre [Guillot, 1996]. Cela sous-entend que dans chaque fenêtre d'énergie, le bruit de fond est finalement plus important que celui de l'expérimentation ne prenant en compte que le spectromètre.



**Le protocole de mesure de bruit de fond le plus optimal serait d'effectuer des mesures en survolant l'océan assez loin des côtes par une brise de mer, de façon à ce que le radon-222 atmosphérique soit faible.**

Dans cette thèse, le détecteur est fixé à un mât. Les bruits de fond inhérents au système aéroporté n'entrent donc pas dans les corrections à appliquer ici.

Puisque le détecteur est toujours en présence de ses deux alimentations électriques et du câble de communication, les valeurs de bruit de fond prises en compte dans la suite de ces travaux pour chaque fenêtre énergétique sont celles issues de la mesure de bruit de fond avec présence des alimentations. **Ce protocole expérimental a permis de mesurer pour la première fois avec ce type de détecteur, les valeurs de bruit de fond instrumental à soustraire dans le cadre d'une analyse spectrale de données environnementales. Il s'agit d'un premier point d'amélioration de la méthode usuelle de la soustraction du bruit de fond.**

## 2.4.2 La calibration en énergie

Un système de détection comme un scintillateur doit être calibré en amont de son déploiement pour la détection des rayonnements dans le but de convertir les numéros de canaux en échelle d'énergie. La conversion entre canal et énergie est une étape importante du traitement des spectres. Elle fait partie de la première étape de **calibration en énergie** qui consiste à établir une relation entre les canaux et les énergies des photons  $\gamma$  correspondants du spectre acquis. Parce que cette relation n'est pas toujours linéaire [Quarati et al., 2007], une non-linéarité peut entraîner des inexactitudes dans la détermination des énergies des pics d'absorption totale et sur la comparaison entre les spectres mesurés et ceux simulés. Une imprécision sur cette conversion aura également un effet sur deux paramètres dépendants de l'énergie : l'efficacité de détection mesurée et la résolution.

La relation entre l'énergie et la position du pic d'absorption totale sur le canal peut être étendue à un polynôme de degré  $n > 1$ . La relation entre canaux et énergie permet de déterminer correctement les bornes des fenêtres énergétiques des pics d'absorption totale des différents radionucléides. Ce paramètre servira également à la calibration du découpage énergétique de la réponse de la simulation du détecteur à la mesure.

Pour cette calibration de la relation entre énergie et canal, **14 sources radioactives représentant 46 pics d'absorption totale couvrant l'intégralité du spectre de 0 à 3 MeV ont été utilisées.** La nature des sources émettrices mono-énergétiques ou pluri-énergétiques de photons  $\gamma$  est donnée dans le tableau 2.7.

Chaque source a été placée à 1 m de distance du détecteur *Down* puis du détecteur *Up* afin de vérifier la relation linéaire entre canal et énergie pour les deux composantes du détecteur. La durée de mesure pour chaque couple source-détecteur est de 180 secondes, renouvelée 3 fois pour vérifier la répétabilité des mesures. Sur chaque spectre acquis, la relation entre canal et énergie représentée par le coefficient directeur  $a$  de la fonction affine a été vérifiée pour les deux composantes du détecteur à toutes les énergies investiguées. Les résultats sont présentés sur la figure 2.11

avec un alignement des points entre énergie et canal. La fonction affine de coefficient directeur 3 qui a été simulée caractérise l'ajustement optimal entre ces deux variables. Le coefficient 3 retrouvé correspond en effet à celui fourni par le constructeur du NaI(Tl). Les équations associées à ces fonctions affines ont une ordonnée à l'origine nulle ( $a_0 = 0$ ). Les incertitudes retrouvées pour le coefficient directeur sont exprimées en  $10^{-5}$  et valident donc un ajustement linéaire entre canaux et énergies.

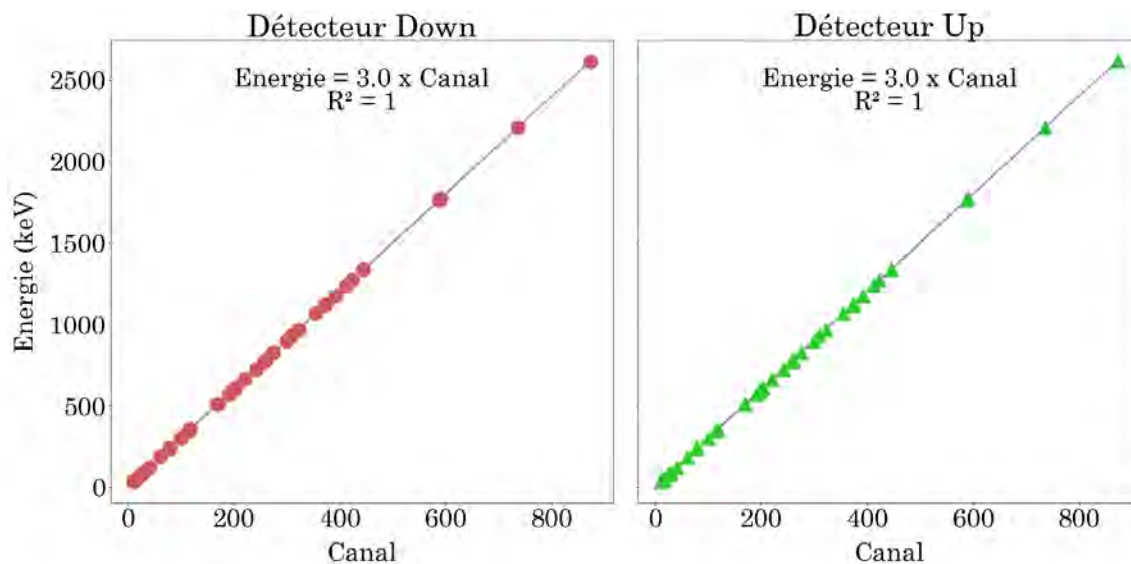


Figure 2.11 – Calibration en énergie des 5 cristaux du NaI(Tl). Les cristaux 1 à 4 composent le détecteur Down et le cristal 5, le détecteur Up. La linéarité entre canal et énergie est assurée pour les deux composantes avec un coefficient de conversion ( $a_1$ ) entre énergie et canal d'une valeur de 3 et une valeur nulle pour  $a_0$ .

Le tableau 2.4 montre les différents résultats des fonctions d'ajustement testées pour des polynômes de degré 1 à 3. La qualité de l'ajustement a été évaluée à l'aide du coefficient de détermination ajusté plutôt qu'avec un coefficient de détermination standard. Ce coefficient ajusté tient compte des paramètres supplémentaires ajoutés à l'ajustement supposés améliorer l'ajustement.

Fonction d'ajustement $E(C)$	$\bar{R}^2$
$E = a_0 + a_1C$	$0.999992 \pm 0.0000002$
$E = a_0 + a_1C + a_2C^2$	$0.999991 \pm 0.0000002$
$E = a_0 + a_1C + a_2C^2 + a_3C^3$	$0.999991 \pm 0.0000002$

Tableau 2.4 – Fonctions d'ajustement pour la calibration en énergie avec leur coefficient de détermination ajusté pour le NaI(Tl).

Dans cette calibration en énergie, la fonction d'ajustement polynomial de degré 1 suffit largement à expliquer la relation entre canaux et énergie.

Sur les 4 spectres de 180 secondes acquis par source, la déviation maximale en énergie observée sur l'énergie d'un pic d'absorption totale est de 4,74 keV pour le

détecteur *Down* et de 4,36 keV pour le détecteur *Up* pour la même énergie de 586,26 keV ( $^{152}\text{Eu}$ ).

**Toutefois, la déviation maximale à la linéarité entre énergie et canal exprimée en % s'est produite à basses énergies (30,97 KeV), mais elle est inférieure à 7%. La réponse instrumentale en énergie semble donc tout à fait robuste.**

Que ce soit pour le détecteur *Down* ou le détecteur *Up*, la relation entre canal et énergie est bien de forme linéaire de pente unique égale à 3. Cette linéarité parfaite assure notamment la précision sur l'emplacement des limites des fenêtres énergétiques. La localisation des pics d'absorption totale est également assurée ce qui permettra une mesure de qualité de la résolution en énergie.

### 2.4.3 La caractérisation de la résolution d'énergie

La cause principale de la résolution d'énergie dégradée pour les NaI(Tl) sont les fluctuations statistiques du nombre de porteurs de charge. Elles concernent principalement le nombre de photo-électrons au niveau de la cathode, lié au nombre de photons de scintillation, qui lui-même dépend de l'énergie nécessaire pour exciter des électrons [Knoll, 2000, Moszyński, 2003, Balcerzyk et al., 2005, Moszynski et al., 2008].

La résolution en énergie est utilisée notamment pour définir la largeur des fenêtres énergétiques lors de la recherche des pics d'absorption totale présents. Les calibrations en résolution d'énergie entrent en compte dans les logiciels dédiés à l'analyse spectrale ainsi que dans les simulations Monte-Carlo pour obtenir un spectre réaliste. La largeur du pic est souvent caractérisée par la largeur à mi-hauteur (FWHM), la calibration en résolution va donc relier la dépendance de la largeur à mi-hauteur à l'énergie  $E$  au sein d'une fonction  $\text{FWHM}(E)$ . Cependant, il n'existe pas de consensus dans la littérature sur la forme mathématique de cette fonction pour les scintillateurs inorganiques. Plusieurs fonctions vont donc être testées pour identifier celle offrant le meilleur ajustement.

Le protocole déployé pour cette calibration en énergie a été utilisé sur tous les spectres acquis pour la calibration de la linéarité entre énergie et canal. Une fonction gaussienne d'ajustement de pic, un filtre de type Savitzky-Golay, a été appliquée afin de diminuer les fluctuations statistiques entre les canaux de la même fenêtre énergétique sur les 46 raies d'émission caractéristiques des 14 sources radioactives. La largeur à mi-hauteur est ensuite déterminée pour l'ensemble de ces pics et reliée à l'énergie caractéristique du pic d'absorption totale. L'ajustement du pic d'absorption totale par une gaussienne permet de déterminer ses paramètres comme le centroïde et l'écart-type.

La résolution d'énergie exprimée en % est le rapport entre la largeur à mi-hauteur (FWHM) en keV et l'énergie du centroïde du maximum d'amplitude du pic d'absorption ajusté. Cette calibration a été réalisée sur les détecteurs *Down* et *Up* et les résolutions d'énergie, exprimées en %, les plus pertinentes sont données dans le tableau 2.5 pour des raies caractéristiques.



Énergie (keV)	Radionucléide	FWHM	Résolution	FWHM	Résolution
		(keV) DOWN	% DOWN	(keV) UP	% UP
59,54	<sup>241</sup> Am	7	11,76	7	11,76
302,85	<sup>133</sup> Ba	24	7,93	24	7,93
661,66	<sup>137</sup> Cs	46	6,95	47	7,10
911,20	<sup>228</sup> Ac	58	6,37	59	6,48
1120,29	<sup>214</sup> Bi	66	5,89	66	5,89
1274,54	<sup>22</sup> Na	70	5,49	69	5,41
1332,49	<sup>60</sup> Co	71	5,33	69	5,17
1764,49	<sup>214</sup> Bi	87	4,93	88	4,99
2614,51	<sup>208</sup> Tl	110	4,21	107	4,09

Tableau 2.5 – Résolution en énergie exprimée en keV et en % de raies d'émission caractéristiques de radionucléides utilisés pour la calibration en énergie du NaI(Tl). Les résultats sont donnés pour les composantes Down et Up de l'instrument.

Les graphiques de la figure 2.12 présentent l'ensemble des points de calibration utilisés pour caractériser la résolution d'énergie sur tout le spectre de 0 à 3 MeV. La qualité de l'ajustement et la faible dispersion de la mesure observée valident la méthode de la ligne de base ainsi que la largeur à mi-hauteur.

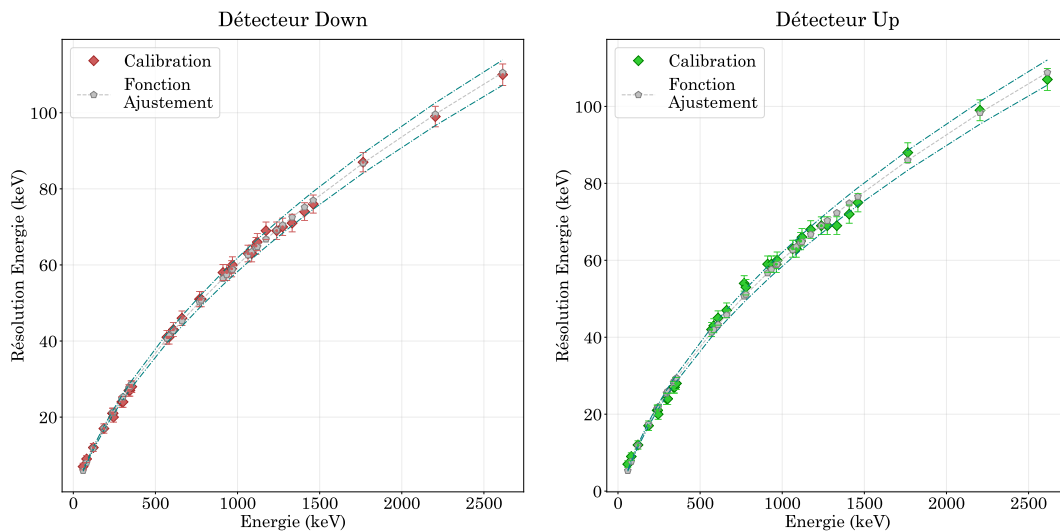


Figure 2.12 – Calibration en résolution d'énergie des composantes Down et Up du NaI(Tl). Les graphiques présentent les 46 résolutions d'énergies déterminées pour les 46 pics d'absorption totale ainsi que la courbe d'ajustement la plus adaptée aux points de calibration. Les courbes de couleur bleue représente l'enveloppe à  $\pm 1\sigma$ .

Dans le cadre de simulations Monte-Carlo, afin d'avoir des spectres simulés représentatifs des spectres mesurés, il est nécessaire de déterminer la meilleure fonc-

tion d'ajustement reliant énergie et largeur à mi-hauteur. Pour identifier cette fonction d'ajustement  $FWHM(E)$ , de nombreuses fonctions consultées dans la littérature pour différents détecteurs (Tableau 2.6) sont testées sur les données de calibration de résolution en énergie exprimées en keV ou en %. La précision de l'ajustement est évaluée par le coefficient de détermination ajusté.

Fonction	Littérature	Littérature	$\bar{R}^2$	$\bar{R}^2$
$FWHM(E)$	Détecteur	Références	DOWN	UP
$a+bE$	Ge	[Gilmore, 2008]	0,779742	0,793956
$a+b\sqrt{E}$	Ge	[Gilmore, 2008]	0,996763	0,995336
$a.E^b$	NaI	[Shi et al., 2002]	0,984889	0,967624
$a+b\sqrt{E+cE^2}$	NaI, LaCl <sub>3</sub>	[Kovaltchouk and Machrafi, 2011]	0,997641	0,995426
$a\sqrt{E}+bE$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Gilmore, 2008]	0,990782	0,986090
$a\sqrt{E}$	NaI	[Ashrafi et al., 2006]	0,939886	0,943710
$\sqrt{a+bE}$	NaI, Ge	[Gilmore, 2008]	0,970153	0,973197
$\sqrt{a+bE+cE^2}$	Ge	[Gilmore, 2008]	0,984907	0,979951
$a+bE+cE^2$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Su et al., 2011]	0,996439	0,992675
$a+b\sqrt{E+c}$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Casanovas et al., 2012]	<b>0,998793</b>	<b>0,996142</b>
$a+bE+cE^2+d\sqrt{E}$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Casanovas et al., 2012]	0,995907	0,994518
$a+bE+c\sqrt{E}$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Casanovas et al., 2012]	0,997908	0,995513
$aE+bE^2$	NaI, LaBr <sub>3</sub>	[Casanovas et al., 2012]	0,986820	0,982378

Tableau 2.6 – Coefficients de détermination ajustés calculés pour plusieurs fonctions  $FWHM$  en fonction de l'énergie consultées dans la littérature pour les composantes *Down* et *Up* de l'instrument sur les données de calibration. Détecteur : NaI pour Iodure de Sodium, Ge pour Germanium, LaBr<sub>3</sub> pour Bromure de Lanthane et LaCl<sub>3</sub> pour Chlorure de Lanthane.

À partir des résultats du tableau 2.6, le meilleur ajustement des données expérimentales pour un NaI(Tl), pour les composantes *Down* et *Up*, a pour relation :

$$FWHM(E) = a + b\sqrt{E+c} \quad (2.1)$$

Les largeurs à mi-hauteur déterminées sur l'ensemble de la gamme énergétique sont ensuite ajustées par la fonction définie par l'équation 2.1. L'ajustement permet

de déterminer les paramètres  $a$ ,  $b$  et  $c$  pour les deux composantes du détecteur. Les incertitudes sur ces paramètres sont les écart-types respectifs déterminés pendant l'ajustement. L'enveloppe à  $\pm 1 \sigma$  est calculée à partir de la formule de propagation des incertitudes appliquée à l'équation reliant l'énergie à la FWHM (Equation 2.2).

$$u(FWHM) = \sqrt{\left(\frac{\delta(FWHM)}{\delta(a)}\right)^2 \times u^2(a) + \left(\frac{\delta(FWHM)}{\delta(b)}\right)^2 \times u^2(b) + \left(\frac{\delta(FWHM)}{\delta(c)}\right)^2 \times u^2(c)} \quad (2.2)$$

La fonction de résolution d'énergie obtenue par l'équation 2.1 est ensuite introduite dans une simulation Monte-Carlo. Elle permet de modéliser l'évolution de la largeur à mi-hauteur en fonction de l'énergie grâce aux paramètres déterminés à partir de cette régression. La résolution en énergie simulée permettra d'obtenir des spectres plus réalistes. Comme l'ajustement est vérifié pour la région d'énergie comprise entre les énergies minimum et maximum définies par la calibration, une interpolation linéaire est réalisée entre  $FWHM(0) = 0$  et  $FWHM(E_{min})$ .

La calibration et la simulation de la résolution d'énergie permettent de valider la deuxième étape de la procédure de calibration, la dernière étape restante est la calibration de l'efficacité de détection.

#### 2.4.4 La calibration de l'efficacité de détection

La relation entre le nombre de coups sous le pic d'absorption totale et l'activité de la source radioactive est donnée par l'efficacité de détection. Alors que les calibrations en énergie et en résolution ne dépendent que de l'énergie du photon  $\gamma$  et du détecteur, la calibration de l'efficacité de détection dépend d'autres facteurs tels que la distance entre la source radioactive et le détecteur, la géométrie de la source et les matériaux utilisés dans la configuration expérimentale.

Lorsque la calibration en efficacité de détection est réalisée avec des sources radioactives certifiées, les efficacités de détection expérimentales  $\varepsilon_{exp}$  sont calculées en utilisant l'équation 2.3 :

$$\varepsilon_{exp} = \frac{N}{A \cdot t \cdot p} \quad (2.3)$$

avec  $N$ , le nombre de comptages nets enregistrés sous le pic d'absorption totale ;  $A$  l'activité connue de la source radioactive à la date de la mesure de calibration ;  $t$  le temps d'intégration de la mesure supposé court devant la période du radionucléide et ;  $p$  la probabilité d'émission du photon  $\gamma$  d'énergie caractéristique de la source mesurée.

La formule de propagation des incertitudes donne l'équation ?? pour la détermination des incertitudes sur l'efficacité de détection  $\delta\varepsilon_{exp}$  :

$$\frac{\delta\varepsilon_{exp}}{\varepsilon_{exp}} = \sqrt{\left(\frac{\delta(N)}{N}\right)^2 + \left(\frac{\delta(A)}{A}\right)^2 + \left(\frac{\delta(p)}{p}\right)^2} \quad (2.4)$$

La calibration en efficacité de détection d'un détecteur de volume 21 litres comme le RSX-5 sous  $4\pi$  stéradians n'a jamais été réalisée. Il est de coutume de déterminer l'efficacité de détection de ce spectromètre en utilisant 3 types de sources radioactives dans une configuration source-détecteur (*Down*) séparée d'une distance d'un

mètre. En s'assurant que la calibration expérimentale est la plus complète possible, la calibration issue des simulations n'en sera que plus robuste. Cette dernière permet de procéder à des simulations complexes dans des géométries sources-détecteur différentes de celle utilisée pour la calibration expérimentale.

### Un protocole de calibration à développer

Le choix qui a été fait est de procéder à une calibration de l'efficacité de détection de l'instrument sous  $4\pi$  stéradians. Cette calibration nécessite l'utilisation de sources radioactives émettant des photons  $\gamma$  à plusieurs énergies, entre 50 keV et 2600 keV, disposées à intervalles d'azimut et d'élévation réguliers (15 degrés), à distance constante du centre du détecteur.

Pour ce faire, un **système mécanique** a été développé dans le cadre de cette thèse à partir d'un cahier des charges précis et détaillé en annexe D. Le service mécanique de l'IRAP a participé à la conception, la fabrication et l'assemblage de ce système qui est représenté de façon schématique sur la figure 2.13.

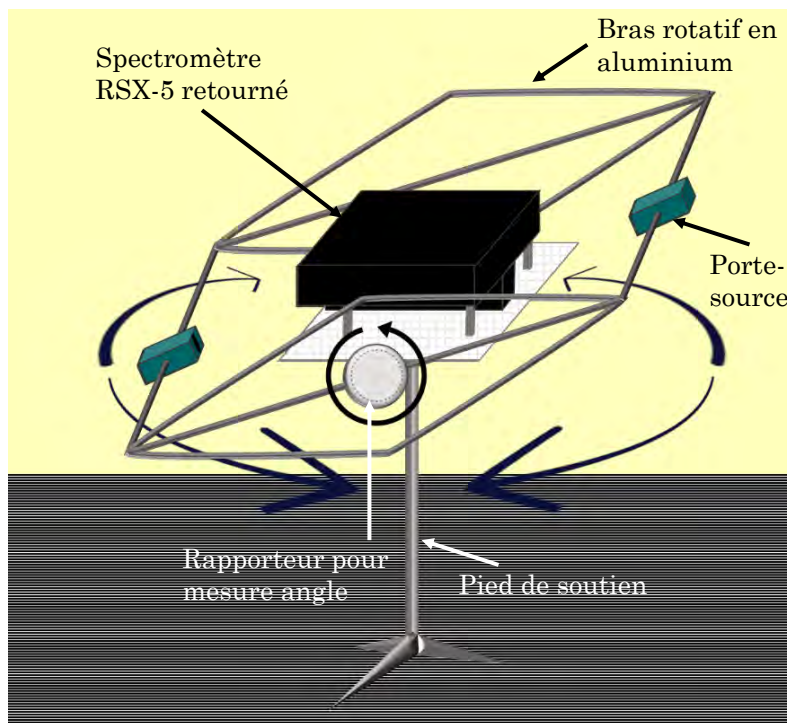


Figure 2.13 – Système mécanique de calibration du détecteur RSX-5 développé à l'IRAP. Le détecteur est placé au centre du système de mesure sur une plaque d'aluminium de 1 cm d'épaisseur découpée à plusieurs endroits et fixé à un pied métallique. Le spectromètre est arrimé à la plaque par 4 tiges métalliques d'1 cm de diamètre. La source radioactive se place dans l'un des boîtiers de couleur verte. La distance source-géométrie varie entre 0,92 m et 1,08 m. Le système permet une calibration sous  $4\pi$  stéradians.

Afin de garantir la **stabilité** de la structure mécanique lors de la mesure, le centre de gravité du détecteur est utilisé comme origine du repère. Ce point est distant d'environ 10 cm du centre géométrique. La structure mécanique repose sur un pied métallique en inox de 5 cm de diamètre. Sur ce pied, une plaque en aluminium de 1

cm d'épaisseur est fixée. Il s'agit de la structure d'accueil où est installé le détecteur. Pour minimiser l'écrantage induit par la plaque, celle-ci est percée à de nombreux endroits en suivant une géométrie spécifique. Pour que l'écrantage n'affecte pas les cristaux de la composante *Down*, l'instrument est fixé à l'envers sur cette plaque. Le détecteur *Up* est ainsi orienté vers le sol alors que le détecteur *Down* l'est vers le plafond, sans écrantage possible entre la source et l'instrument. **L'instrument est fixé de manière permanente** à la plaque par l'intermédiaire de quatre colonnes métalliques de 1 cm de diamètre et ne bascule pas.

Sur cette structure d'accueil sont ensuite attachées des barres d'aluminium qui constituent le système de positionnement rotatif et le lieu d'installation d'un porte-source. Ce système permet une rotation à  $360^\circ$  en azimuth et en élévation,  $2 \times 180^\circ$  pour ce degré de liberté du fait de la présence centrale du pied. Il peut être immobilisé par une tige métallique dans des points de fixation prévus à cet effet et espacés d'un **intervalle régulier de  $15^\circ$**  en azimuth et en élévation.

Les valeurs d'angle en azimuth et en élévation nulles pour ce système de rotation sont identifiées sur la position d'alignement horizontal entre la source radioactive et la partie arrière du détecteur, c'est-à-dire celle où l'électronique d'acquisition n'est pas présente. Une valeur d'angle de  $180^\circ$  est donnée à l'azimut dès lors que la source est positionnée devant la face avant du détecteur. En ce qui concerne l'élévation, des valeurs positives d'angle sont octroyées dès lors que le système de positionnement de la source quitte son alignement horizontal et se dirige vers le plafond du local. Les valeurs négatives d'angle en élévation sont données lorsque la source est déplacée vers le sol du local. Ce système de rotation permet de couvrir en totalité une sphère invisible dont le détecteur en constitue le centre avec un nombre total de 364 positions possibles, identifiées par un couple d'angle azimuth-élévation, permettant une calibration en efficacité de détection sous  $4 \Pi$  stéradians. Les sources sont considérées comme ponctuelles.

Le fait d'utiliser le centre de gravité du détecteur comme origine du repère et non son centre géométrique induit une distance source-détecteur variable d'un point à l'autre de la sphère. La **distance source-détecteur** se mesure entre le centre géométrique de la source radioactive fixée sur le système de positionnement rotatif et le centre de gravité du détecteur. Elle est minimale,  $0,92 \pm 0,02$  m, lorsque la source se situe en position d'azimut  $180^\circ$  et élévation  $0^\circ$  mais également pour tous les points de la sphère situés en élévation  $+90^\circ$  ou  $-90^\circ$ . La distance maximale de  $1,08 \pm 0,02$  correspond à la position d'une source avec des angles de  $0^\circ$  en azimuth et en élévation définissant la position d'origine du système rotatif.

Le porte-source fixé au système de positionnement rotatif est une boîte en inox refermable représentée par un parallélépipède de couleur vert sur la figure 2.13. Il dispose d'une ouverture circulaire non modifiable de diamètre  $4 \pm 0,01$  cm. La distance séparant les parois externes du porte-source au bras servant de pivot de chaque côté de la structure est identique. Un système d'insertion et de maintien permet à la source d'être placée au niveau de l'ouverture en garantissant son immobilité tout au long des mesures sans écrantage de la part du porte-source car **la même face est toujours orientée vers le détecteur de manière tangentielle**. La géométrie du système source étant invariant, elle assure une reproductibilité des mesures de calibration sur chaque position souhaitée sur la sphère.

### Les sources radioactives

Une fois le système mécanique conçu, construit et approuvé par le protocole de sécurité, le détecteur est mis en place sur la structure d'accueil.

Afin de procéder à une calibration en efficacité de détection la plus complète possible sur le spectre énergétique de 0 à 3 MeV, 14 sources radioactives mono-énergétiques ou pluri-énergétiques et couvrant les énergies 59,54 à 2614,51 keV sont employées à tour de rôle dans le système mécanique. Les sources radioactives ainsi que leur activité au temps de la mesure, leur période radioactive et la géométrie de la source sont consultables dans le tableau 2.7.

Source	Activité	Période	Géométrie
Radionucléide	(kBq)	(ans)	source
$^{241}\text{Am}$	2208	432,2	Circulaire
$^{133}\text{Ba}$	172,6	10,5	Circulaire
$^{207}\text{Bi}$	41,05	32,9	Circulaire
$^{60}\text{Co}$	47,79	5,3	Circulaire
$^{137}\text{Cs}$	408,00	30,5	Circulaire
	27,64	30,5	Circulaire
$^{152}\text{Eu}$	150,71	13,5	Circulaire
$^{232}\text{Th}$ (Descendants)	70,00	$14 \cdot 10^9$	Circulaire
	68,50	$14 \cdot 10^9$	Circulaire
$^{238}\text{U}$ (Descendants)	40,00	$4,5 \cdot 10^9$	Circulaire
	42,00	$4,5 \cdot 10^9$	Circulaire
	38,00	$4,5 \cdot 10^9$	Circulaire
	43,00	$4,5 \cdot 10^9$	Circulaire
$^{22}\text{Na}$	36,73	2,60	Circulaire

Tableau 2.7 – Activité au temps de mesure et période des sources radioactives utilisées dans le cadre de la calibration instrumentale. 14 sources ont été employées pour assurer une calibration sur tout le domaine spectral d'émission des photons  $\gamma$ .

Ces 14 sources radioactives permettent de couvrir le domaine spectral des photons  $\gamma$  sur 35 énergies caractéristiques de pic d'absorption totale. Ces énergies d'émission de photons  $\gamma$  ainsi que leur probabilité d'émission sont présentées dans le tableau 2.8. Plus le nombre de raies d'émission employées pour la calibration d'efficacité de détection est important et plus la relation entre énergie et efficacité de détection sera affinée pour toutes les énergies n'ayant pas fait l'objet de calibration. Par ailleurs, les activités et la distance source-détecteur sont telles que les pics somme sont négligeables, ne nécessitant donc pas de corrections associées.

Source Radionucléide (keV)	Énergie	Probabilité d'émission %	Source Radionucléide (keV)	Énergie	Probabilité d'émission %
<sup>241</sup> Am	59,54	35,92	<sup>232</sup> Th	238,63	43,60
<sup>133</sup> Ba	81,00	33,31		338,32	11,40
	302,85	18,31		583,19	30,54
	356,01	62,05		911,20	26,20
<sup>207</sup> Bi	569,70	40,84		968,96	20,90
	1063,66	31,16		2614,51	35,84
<sup>60</sup> Co	1173,23	99,60	<sup>238</sup> U	186,21	3,55
	1332,49	99,73		295,22	18,41
<sup>137</sup> Cs	661,65	84,99		351,93	35,60
<sup>152</sup> Eu	121,78	28,41		609,31	45,49
	244,70	7,55		768,36	4,89
	344,28	26,59		934,06	3,10
	778,90	12,97		1120,29	14,91
	964,08	14,50		1238,11	5,83
	1085,84	10,13		1764,49	15,31
	1112,08	13,41		2204,21	4,91
	1408,01	20,85	<sup>22</sup> Na	1274,54	99,94

Tableau 2.8 – Énergies caractéristiques et probabilité d'émission des photons  $\gamma$  des sources de radioisotopes utilisées pour la calibration. La totalité du spectre est couverte en énergie (59 à 2615 KeV).

### L'acquisition des données lors de la calibration du détecteur

Cette calibration en efficacité de détection pour cette géométrie source-détecteur a nécessité la mise en place d'un protocole reproductible d'une source à l'autre.

Le nombre très élevé de positions hypothétiques de la source radioactive sur la sphère, 364, fait que l'ensemble de ces positions ne pourront être traitées dans le temps dédié à ces travaux. Le compromis a été de procéder à une calibration sur 4  $\Pi$  stéradians en utilisant environ **74 à 81 points de mesure** par source radioactive en prenant un intervalle en azimut de 15 à 45°. L'intervalle en élévation restant de 15°. En fonction des résultats observés pour certaine géométrie source-détecteur, un complément de mesure de calibration pourra être envisagé.

Le nombre commun de géométries source-détecteur fonction des valeurs d'angle en azimut et en élévation est de 74 pour toutes les sources. Ce nombre permet de garantir le même nombre de mesure de calibrations de l'efficacité de détection pour



les 35 énergies caractéristiques sur la géométrie considérée.

La calibration en efficacité de détection avec une source radioactive et le système mécanique nécessite une journée entière d'acquisition. Avant de procéder à l'enregistrement de données expérimentales, il est nécessaire de procéder à une stabilisation du détecteur afin de vérifier la résolution en énergie et la linéarité entre canal et énergie.

Une fois que le détecteur a procédé à sa stabilisation, les mesures de calibration peuvent débuter sous environnement contrôlé avec une température ambiante de 20°C et la présence d'un seul opérateur dans la pièce lors du lancement de l'acquisition. La durée de la mesure réalisée sur chaque position azimuth-élévation est constante et peut varier entre **60 et 600 secondes** en fonction de l'activité de la source radioactive utilisée.

Source Radionucléide	Activité (kBq)	Durée (s)	Distance (m)	Nombre de mesures
$^{241}\text{Am}$	2208	90	0,92-1,08	81
$^{133}\text{Ba}$	172,6	300	0,92-1,08	79
$^{207}\text{Bi}$	41,05	300	0,92-1,08	81
$^{60}\text{Co}$	47,79	300	0,92-1,08	104
$^{137}\text{Cs}$	408,00	60	0,92-1,08	101
	27,64	300	0,92-1,08	90
$^{152}\text{Eu}$	150,71	300	0,92-1,08	77
$^{232}\text{Th}$ (Descendants)	70,00	300	0,92-1,08	96
	68,50	300	0,92-1,08	27
$^{238}\text{U}$ (Descendants)	40,00	300	0,92-1,08	23
	42,00	300	0,92-1,08	30
	38,00	300	0,92-1,08	26
	43,00	300	0,92-1,08	89
$^{22}\text{Na}$	36,73	300	0,92-1,08	88

Tableau 2.9 – Nombre de mesures et temps d'acquisition pour les sources radioactives utilisées dans le cadre de la calibration en efficacité de détection.

Pour nous assurer qu'aucune dérive de température ou de gain automatique de haute tension n'a eu lieu durant la journée d'acquisitions associées à une source radioactive, une mesure de contrôle est réalisée toutes les heures sur la même position azimuth ( $0^\circ$ ) - élévation ( $180^\circ$ ). Ce couple d'angle situe la source radioactive en face des quatre cristaux de la composante *Down* lorsque le maximum de signal est enregistré par le détecteur. La figure 2.14 présente ainsi 3 exemples de position de sources lors de la calibration en efficacité de détection.





Figure 2.14 – Exemples de mesures de calibration en efficacité de détection réalisées au cours du mois de février 2019. Ces photographies présentent le système mécanique ainsi que le protocole mis en place pour l’acquisition. Les blocs de plomb disposés au sol assurent la stabilité.

À la fin de chaque journée d’acquisition, les données enregistrées étaient traitées par un code de traitement spécifiquement développé pour vérifier la validité de toutes les mesures effectuées.

### Le traitement des données acquises

Un exemple de spectre acquis lors de cette calibration en efficacité de détection est montré sur la figure 2.15 pour une source radioactive de  $^{137}\text{Cs}$ .

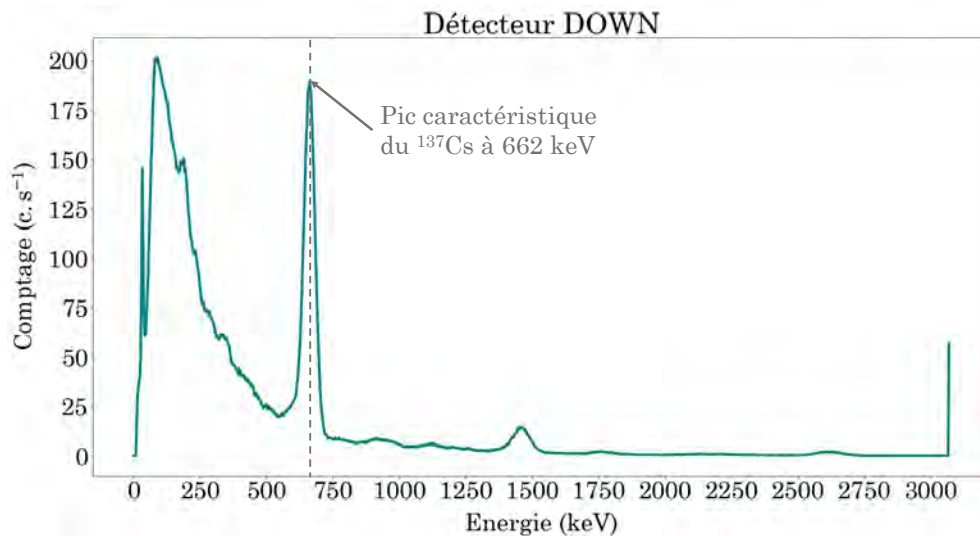


Figure 2.15 – Spectre de  $^{137}\text{Cs}$  acquis lors de la calibration en efficacité de détection. La position de la source est en azimuth  $0^\circ$  et en élévation  $+90^\circ$ .

Les comptages  $y$  sont exprimés en coups par seconde après avoir divisé les comptages bruts par le temps d'intégration de la mesure, à savoir 60 secondes, corrigé du temps mort (*live time*). La source est placée en azimuth  $0^\circ$  et en élévation  $+90^\circ$  correspondant à la configuration optimisée pour la composante *Down*.

Le pic d'absorption totale caractéristique du  $^{137}\text{Cs}$  à l'énergie 661,66 keV se superpose bien au spectre de bruit de fond radiologique du local dans lequel se déroule cette calibration en efficacité de détection. La durée d'acquisition de 60 secondes associée à une activité de 408 kBq pour la source de  $^{137}\text{Cs}$  utilisée ont permis de réduire les fluctuations statistiques.

Une **traitement automatique des spectres** enregistrés, développée pour cette calibration, détermine le comptage net de chaque pic d'absorption totale par la méthode de la ligne de base et intègre cette donnée dans le calcul de l'efficacité de détection par l'équation 2.3. Les autres paramètres de cette équation ; activité de la source radioactive, temps de la mesure et probabilité d'émission, sont tous connus. L'efficacité de détection expérimentale ainsi calculé par ce traitement est exprimée en %. La première étape consiste à identifier le pic d'absorption totale qui doit être traité. L'énergie des pics  $y$  est à préciser manuellement. Le code implémenté calcule ensuite automatiquement les bornes de la fenêtre énergétique dans laquelle la ligne de base sera estimée. Un ajustement est appliqué sur le pic d'absorption totale du spectre brut avant de procéder au calcul de l'intégrale entre le pic et la ligne de base. Le bruit de fond instrumental a d'abord été soustrait à l'ensemble du spectre brut.

La figure 2.16 présente l'application de l'algorithme sur le pic d'absorption totale du  $^{137}\text{Cs}$  à une énergie de 661,66 keV pour la composante *Down*. Le calcul de la ligne de base a pris en compte le fait que deux raies d'émission significatives du  $^{208}\text{Tl}$  à 583 keV et du  $^{214}\text{Bi}$  à 609 keV sont présentes sur cette plage d'énergie du spectre. Bien sûr, le même algorithme est utilisé sur les données du détecteur *Up* afin de déterminer le comptage net dans la même fenêtre énergétique et pour la même configuration géométrique d'acquisition du spectre.

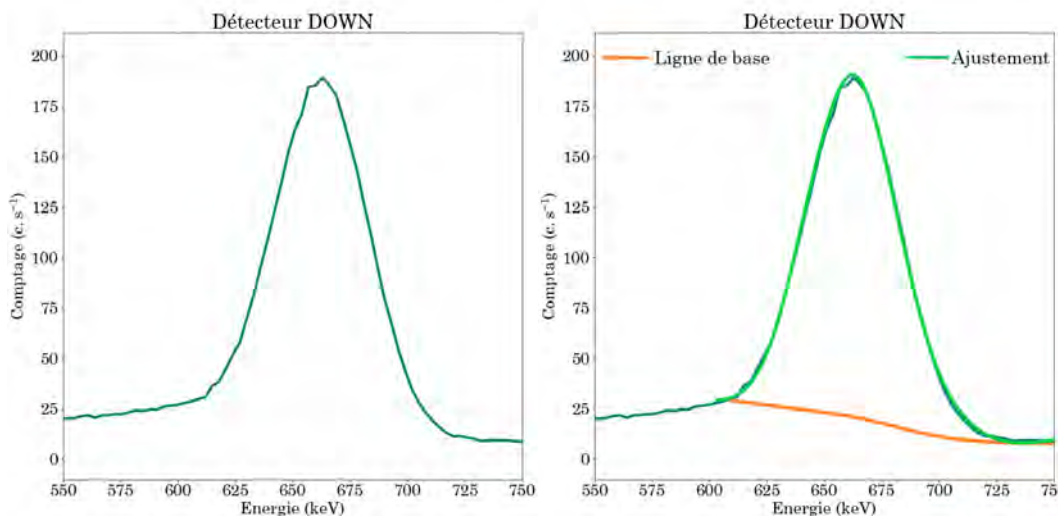


Figure 2.16 – Exemple d'application de l'algorithme de calcul du comptage net sur la raie d'émission du  $^{137}\text{Cs}$  d'après le spectre enregistré pour la configuration de source, azimuth en  $0^\circ$  et élévation en  $+90^\circ$  et représenté par une ligne de couleur bleue.

Dans cet exemple où la source est positionnée en azimut  $0^\circ$  et en élévation  $+90^\circ$ , le nombre de comptages par seconde calculé pour le pic d'absorption totale du  $^{137}\text{Cs}$  à 661,66 keV est de 2772,8. Connaissant l'activité de la source de  $^{137}\text{Cs}$  utilisée à 408 kBq, le temps de mesure ramené à 1 seconde et la probabilité d'émission à 662 keV de 84,99%, l'efficacité de détection expérimentale calculée exprimée en % est :

$$\varepsilon_{exp} = \frac{2772,80 \times 100}{408000 \times 1 \times 0,8499} = 0,7996\% \quad (2.5)$$

Cet algorithme est utilisé sur chaque raie d'émission caractéristique de la source radioactive sur toutes les positions en azimut et élévation pour lesquelles une calibration a été réalisée.

À partir de ces bases de données, l'algorithme produit des graphiques en deux dimensions de type polaire sur lequel est consultable directement l'ensemble des efficacités de détection en fonction de la position de la source d'après ses coordonnées en azimut et en élévation. Les graphiques sont produits à la fois pour le détecteur *Down* et le détecteur *Up* et présentés sous le même format que celui de la figure 2.17.

Les valeurs à l'extérieur du graphique correspondent aux valeurs d'angle en azimut. Les cercles concentriques et les valeurs associées permettent d'identifier les valeurs d'angle pour l'élévation. Le point de coordonnées  $0^\circ$  en azimut et  $0^\circ$  en élévation est la position de départ de la source radioactive située dans l'alignement horizontal de la face arrière du détecteur distante de 1.08 m du centre de gravité du

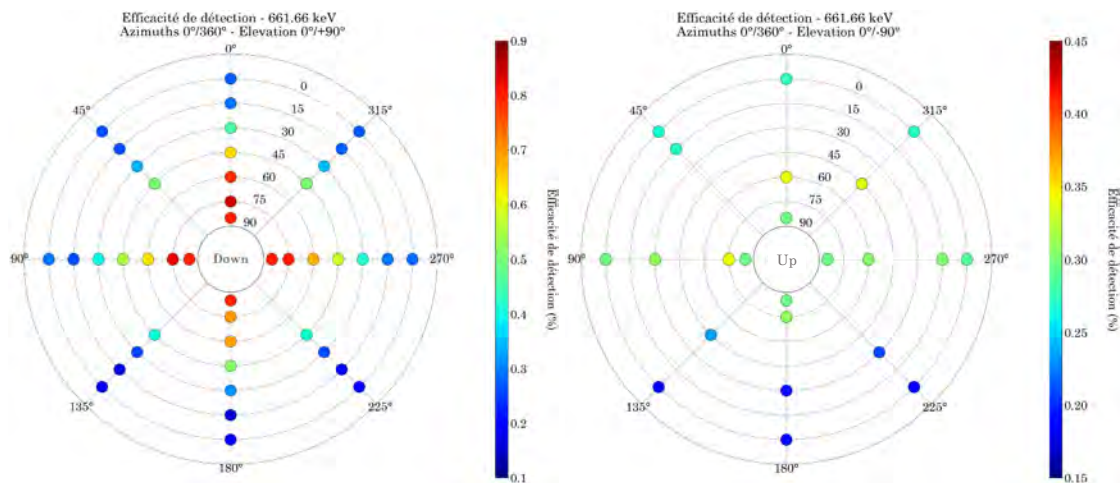


Figure 2.17 – Exemple d'application de l'algorithme de calcul du comptage net sur la raie d'émission du  $^{137}\text{Cs}$  d'après le spectre enregistré pour la configuration de source, azimut en  $0^\circ$  et élévation en  $+90^\circ$ .

Le premier graphique de la figure 2.17 présente les valeurs d'efficacité de détection associées au détecteur *Down* pour l'énergie 661,66 keV. Les élévations sont donc positives et sont comprises entre  $0^\circ$  et  $+90^\circ$ . Plus la source radioactive se rapproche de l'élévation  $90^\circ$  et plus l'alignement entre le centre de la source et le centre du détecteur est perpendiculaire, définissant la configuration optimale de détection pour la composante *Down*.

Le deuxième graphique de la figure 2.17 est associé aux résultats sur l'efficacité de détection pour le détecteur *Up*. Les élévations sont donc négatives en partant de

$0^\circ$  pour atteindre  $-90^\circ$  coïncidant avec la configuration optimale de détection pour la composante *Up*. La plaque de fixation du détecteur en aluminium d'1 cm d'épaisseur est à l'origine d'un écrantage du signal mesuré. Le nombre de points de mesure de calibration est trois fois supérieur pour le détecteur *Down* que pour le détecteur *Up*.

Ainsi, pour la raie d'émission du  $^{137}\text{Cs}$  à 661,66 keV, les premières observations montrent que l'étendue des efficacités de détection est plus grande pour le détecteur *Down* (0,1 - 0,9 %) que pour le détecteur *Up* (0,15 - 0,45 %). Plus la source radioactive est positionnée de façon perpendiculaire au détecteur et plus l'efficacité de détection augmente du fait d'une section efficace plus importante. Les efficacités de détection du détecteur *Down* sont maximales pour les élévations  $+75^\circ$  et  $+90^\circ$  peu importe la valeur de l'azimut. Les valeurs les plus faibles sont concentrées sur le cercle extérieur relatif à une élévation égale à  $0^\circ$  pour tout azimut. Lorsque l'élévation est nulle, la section efficace totale du détecteur *Down* est nettement moins grande que pour une élévation de  $+90^\circ$ . Si la source se situe en azimut  $90^\circ$  pour une élévation nulle, elle fait uniquement face au cristal de NaI numéro 1 qui écranche donc les cristaux 2, 3 et 4. Le signal mesuré dans le cristal 1 est donc nettement supérieur à celui mesuré dans les autres cristaux. La réponse instrumentale est dans ce cas très limitée puisqu'un seul cristal est réellement sollicité. À l'inverse, les quatre cristaux sont tous sollicités uniformément dans la configuration optimale en azimut  $0^\circ$  et élévation  $+90^\circ$  et donc l'efficacité de détection s'en trouve améliorée.

Les efficacités de détection mesurées sont similaires sur les deux faces latérales du détecteur. Cette propriété est attendue d'un détecteur où les cristaux ne sont pas dégradés et ont donc une réponse uniforme. Le même constat est fait pour les azimut  $45^\circ$  et  $315^\circ$  sur la face antérieure du détecteur. La configuration géométrique du détecteur est identique sur ces deux angles, il est donc logique de retrouver les mêmes niveaux d'efficacité de détection.

Une différence existe entre le signal reçu par la face antérieure (azimut  $45^\circ$ ,  $0^\circ$  et  $315^\circ$ ) de celui de la face postérieure du détecteur (azimut  $135^\circ$ ,  $180^\circ$  et  $225^\circ$ ) où l'électronique d'acquisition se situe devant les cristaux. La distance source-détecteur est de 1,08 m pour la face antérieure et de 0,92 m pour la face postérieure. Toutefois, c'est au niveau de la face postérieure que l'efficacité de détection la plus faible est observée pour les deux composantes (0,1 %).

Un écrantage du signal reçu par les photomultiplicateurs et l'électronique d'acquisition est envisagé comme source d'explication possible. De plus, il semble que cet écrantage ne soit pas uniforme sur la face postérieure avec des valeurs d'efficacité de détection plus grandes au niveau de l'azimut  $225^\circ$  que pour l'azimut  $135^\circ$ . Il faut savoir que les connectiques des câbles de communication et d'alimentation se situent au niveau de l'alignement des mesures opérées pour un azimut  $135^\circ$ . Ceci ajoute un écrantage supplémentaire au niveau de cet azimut.

L'algorithme présenté sur l'exemple du traitement de la raie du  $^{137}\text{Cs}$  à 661,66 keV a ensuite été utilisé sur tous les pics d'absorption totale identifiables des sources radioactives employées pour la calibration. Les efficacités de détection en fonction de la position de la source radioactive en azimut et élévation sont présentées sur la figure 2.18 pour la composante *Down* du détecteur et sur la figure 2.19 pour la composante *Up* du détecteur.



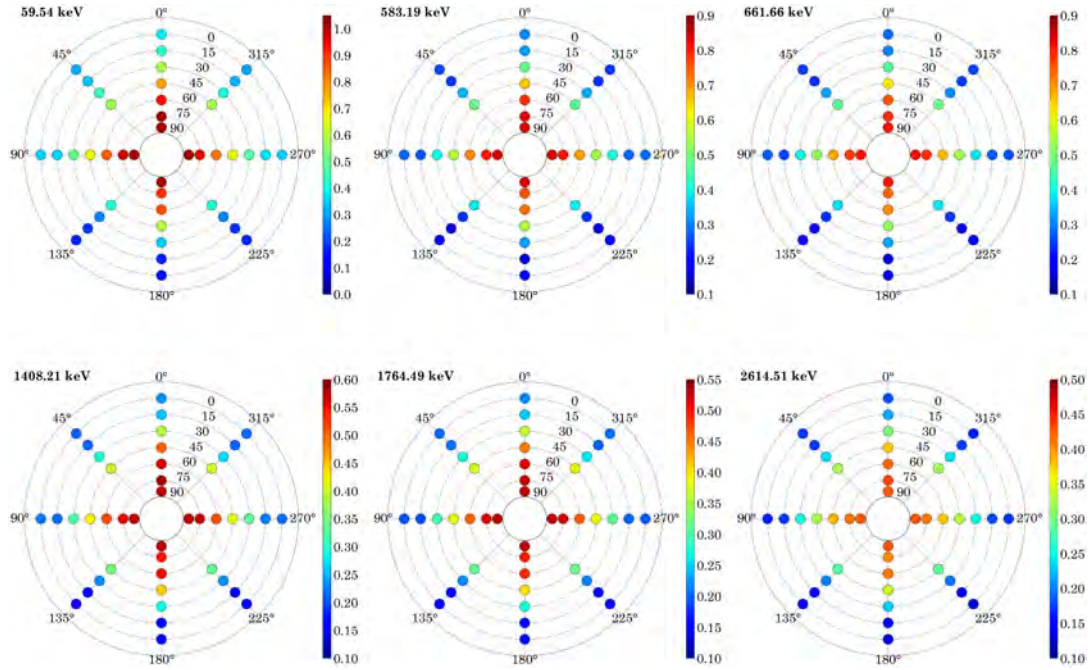


Figure 2.18 – Graphiques polaires représentant les efficacités de détection de la composante Down du détecteur sur les élévations positives entre  $0^\circ$  et  $+90^\circ$  pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques investiguées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection, en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation.

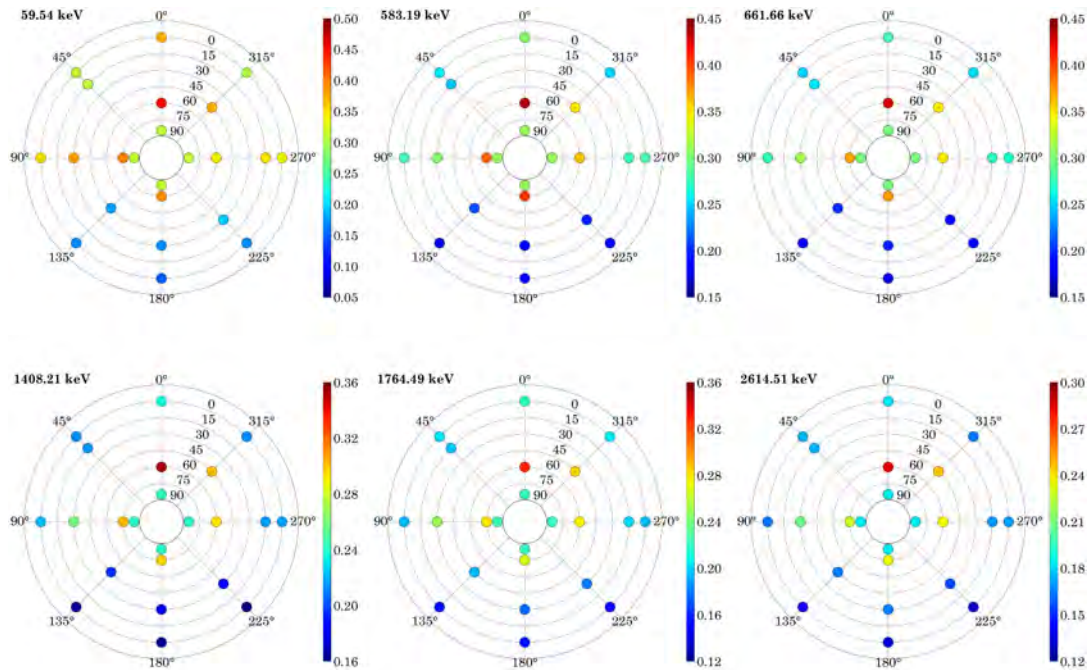


Figure 2.19 – Graphiques polaires représentant les efficacités de détection de la composante Up du détecteur sur les élévations négatives entre  $0^\circ$  et  $+90^\circ$  pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques investiguées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation.

Pour toutes les énergies considérées, les efficacités de détection calculées sont minimales pour toutes les élévations nulles et notamment la plus faible valeur retrouvée au niveau de l'azimut  $135^\circ$  comme expliqué précédemment. Les efficacités de détection calculées maximales sont observées principalement pour les élévations  $+75^\circ$  et  $+90^\circ$  dès lors que la source radioactive et le détecteur sont dans le même plan d'alignement. Les efficacités de détection calculées pour la composante *Down* (Figure 2.18) sont décroissantes des basses énergies vers les hautes énergies. Les gammes de variation évoluent de 0,10 à 1,05 % pour l'énergie 59,54 keV de l' $^{241}\text{Am}$  et entre 0,10 et 0,50 % pour l'énergie 2614,51 keV du  $^{208}\text{Tl}$ . Cela confirme qu'aux basses énergies, l'interaction photon-matière dominante est l'effet photoélectrique alors que la diffusion Compton est privilégiée pour les moyennes et plus hautes énergies.

La figure 2.20 montre l'efficacité de détection expérimentale en fonction de l'énergie exprimée sous forme de pourcentage ou en logarithme pour toutes les élévations associées à la mesure en azimut  $0^\circ$ , pour la composante *Down* du détecteur. Sept courbes d'efficacité sont donc représentées pour les élévations de  $0^\circ$  à  $+90^\circ$  avec un intervalle de  $+15^\circ$ . Toutes les raies d'émission de photons  $\gamma$  caractéristiques étudiées ont permis l'élaboration de ces courbes.

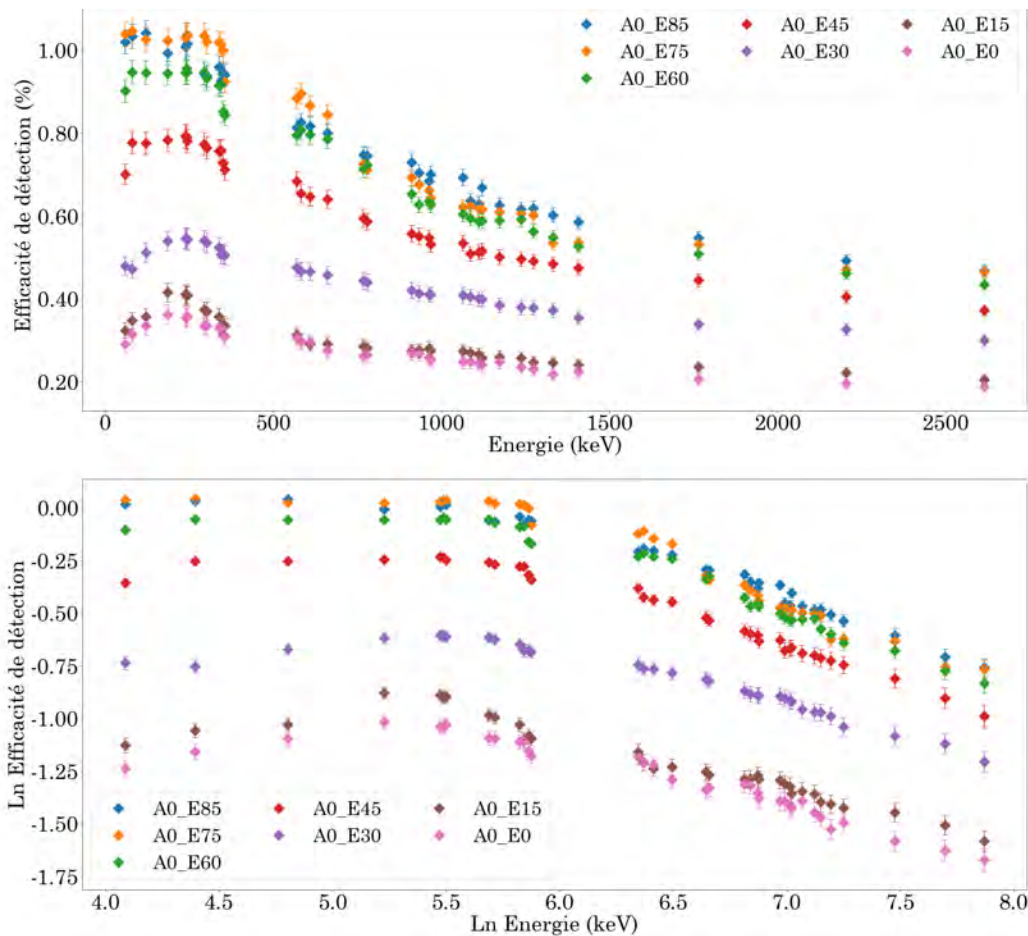


Figure 2.20 – Efficacité de détection calculée exprimée en % ou en logarithme en fonction de l'énergie (keV). Les courbes d'efficacité sont reliées aux variations d'élévations de  $0^\circ$  à  $+90^\circ$ , espacées de  $15^\circ$ , pour la même valeur nulle d'azimut.

Ces courbes d'efficacité de détection montrent le même profil des basses aux hautes énergies. Les valeurs maximales d'efficacité de détection sont observées vers 200-300 keV. En amont de ces énergies, les photons  $\gamma$  peuvent être atténués ou absorbés dans les matériaux d'enveloppe du détecteur et donc limiter l'efficacité de détection. Lorsque l'énergie du rayonnement est faible, le coefficient d'atténuation linéaire augmente ce qui entraîne une plus grande influence de l'épaisseur du matériau considéré. Les courbes aux élévations  $0^\circ$  et  $+15^\circ\text{C}$  sont relativement proches l'une de l'autre démontrant une très légère augmentation de la section efficace du détecteur visible par la source radioactive. Pour les élévations suivantes, de  $+30^\circ$  à  $+60^\circ$ , l'augmentation observée d'environ 35% en efficacité de détection est presque identique à toutes les énergies. Les efficacités de détection atteintes à une élévation de  $+60^\circ$  sont très proches des valeurs maximales observées à la fois pour les élévations  $+75^\circ$  et  $+90^\circ$ . Cet angle de  $30^\circ$  entre les élévations  $+60^\circ$  et  $+90^\circ$  marque l'angle de vue où la section efficace du détecteur est la plus grande, ce qui permet d'enregistrer des taux de comptage plus importants.

Les incertitudes de mesure présentées sur ces courbes d'efficacité de détection sont principalement dues à l'algorithme de traitement permettant le calcul des comptages nets. En effet, un mauvais ajustement du signal mesuré, une ligne de base trop marquée, des bornes inexactes peuvent entraîner une surestimation ou une sous-estimation du comptage mesuré dans le pic d'absorption totale. Les incertitudes sur le taux de comptage sont donc déterminées en modifiant les paramètres utilisés dans l'algorithme et notamment les bornes utilisées influençant l'ajustement automatique de la ligne de base. Des bornes plus resserrées ou plus étalées de 3 keV, correspondant à 1 canal selon la linéarité calculée entre énergie et canal, sont utilisées pour calculer les taux de comptage associés ce qui permettra d'en déterminer une gamme de variation.

### 2.4.5 L'efficacité de détection par la simulation numérique : Geant-4

Des récents travaux ont montré que les simulations développées sous Geant-4 pour les scintillateurs inorganiques étaient particulièrement bien adaptées [Ashrafi et al., 2006, Baccouche et al., 2012, Casanovas et al., 2012, Duc Tam et al., 2017, Thomas, 2019]. Des comparaisons entre spectres expérimentaux et simulés montrent des marges d'erreur de 9% maximum pour un intervalle de confiance de 93% sur la gamme en énergie allant de 30 keV à 2500 keV [Kumar et al., 2009, Britton, 2015].

Cette section présente donc les principales caractéristiques de l'outil de simulation Monte-Carlo Geant-4 ainsi que l'architecture du programme développé dans le cadre de ces travaux pour le calcul de l'efficacité de détection de particules neutres. Ce travail a été réalisé en partenariat avec Vincent Thomas [Thomas, 2019]. **L'objectif est de valider une géométrie simulée du détecteur RSX-5 à partir d'une comparaison des efficacités de détection simulées et mesurées.** Celle-ci pourra ensuite être utilisée dans des simulations environnementales à plus grande échelle spatiale, notamment à partir des données recueillies sur le site pilote.

La première application de la méthode Monte-Carlo au transport de particules remonte à la seconde guerre mondiale. Ces travaux, effectués par Fermi, Van Neumann et Ulam furent résumés dans le premier ouvrage traitant de la méthode par Cashwell et Everett [Cashwell and Everett, 1959]. Les codes de simulation des in-

teractions des rayonnements avec la matière les plus utilisés en physique des particules sont MCNP [Briesmeister et al., 1985], PENELOPE [Salvat et al., 2006], GEANT4 [Agostinelli et al., 2003], Fluka [Fasso et al., 2003], Gespecor [Sima and Arnold, 2002] et Tripoli-4 [Brun et al., 2011]. La simulation du passage de particules à travers la matière par la méthode de Monte-Carlo a été largement utilisé au cours de cette thèse par l'intermédiaire de l'infrastructure logicielle GEANT4 développée par le CERN (Conseil Européen pour la Recherche Nucléaire).

### Brève présentation de l'outil de simulation Geant-4

L'outil de simulation Geant-4 peut être vu comme une *boîte à outils* ou plutôt comme un ensemble de classes C++ que l'utilisateur peut utiliser et implémenter afin d'être appelées par le programme principal (Cf. Annexe E). Le code permet à l'utilisateur d'avoir le contrôle sur tous les aspects de la simulation initiée, par exemple pour déterminer l'efficacité de détection d'un système de mesure expérimental, tels que :

- La configuration géométrique du système,
- La génération des particules primaires dans les événements,
- Le type de particules et leur énergie
- Les processus physiques qui gouvernent les interactions particule-matière.

Ainsi, à partir des différentes bibliothèques disponibles, il est nécessaire de paramétrer les points suivants :

- *La géométrie* qui spécifie la disposition et les propriétés physiques de tous les éléments présents (détecteur, source etc.). Les propriétés physiques comme l'ensemble des matériaux constitutifs, les éléments sensibles, l'environnement intérieur sont également prises en compte. Le volume logique reprend le volume solide et les propriétés physiques affiliés à chaque élément présent.
- *Le traçage* qui simule le passage des particules à travers la matière en prenant en compte les interactions et les processus de désintégration radioactive.
- *La détection* qui enregistre une particule quand elle entre dans le volume sensible lié au détecteur et simule la réponse effective du détecteur.
- *Le management d'exécution* qui enregistre les détails de chaque exécution où une exécution est une collection d'événements simulés dans des conditions identiques. Cette classe contient toutes les informations relatives à la génération des particules primaires. La description du type de particule, son énergie, sa position ou encore sa direction d'émission est réalisée ici.
- *La visualisation* qui permet de visualiser la géométrie d'une expérience ainsi que les trajectoires des particules simulées,
- *L'analyse* avec un export des résultats de simulation dans différents formats de fichier et notamment le format ROOT [Brun and Rademakers, 1997] très utilisé dans la communauté de physique des particules pour sa grande efficacité informatique. Une représentation en histogramme permet de visualiser le spectre linéaire de la particule simulée



### Simulation de l'efficacité de détection du NaI(Tl) de type RSX-5

Dans le cadre de la simulation de l'efficacité de détection du NaI(Tl), il est nécessaire de disposer de l'ensemble des spectres expérimentaux. La modélisation du détecteur RSX-5, scintillateur NaI(Tl), de Radiations Solutions Inc. est réalisée en prenant en compte :

- L'ensemble des spécifications techniques du détecteur tels que le nombre de cristaux ou les matériaux (Tableau 2.10). Il importe de modéliser le détecteur avec la géométrie la plus aboutie,
- L'environnement par l'intermédiaire de la dimension du local, le positionnement du détecteur et de la source dans ce volume, le matériau présent,
- La source radioactive ponctuelle avec ses énergies d'émission caractéristiques, ses probabilités d'émission, sa géométrie.

**La modélisation de la géométrie du détecteur :** Avec l'aide des paramètres géométriques et des spécifications techniques (Tableau 2.10), une géométrie allégée du NaI(Tl) de type RSX-5 a pu être réalisée. La précision de la définition de la géométrie a davantage d'impacts sur les résultats à basse énergie qu'à haute énergie. Aux basses énergies, l'augmentation du coefficient d'atténuation linéaire induit une influence supérieure de l'épaisseur du matériau traversé. Les éléments chimiques, molécules et autres matériaux sont définis à partir d'une base de données NIST des éléments et des molécules importée dans Geant-4. Les matériaux construits à partir des éléments simples considèrent les fractions massiques de chaque élément.

La géométrie modélisée est basée sur une structure complète de détection composée du cristal, du photo-multiplicateur et de l'électronique d'acquisition associée puis dupliquée aux quatre autres systèmes de détection du RSX-5. Fondamentalement, la géométrie unitaire qui est dupliquée pour construire le NaI(Tl) dans la simulation se compose des éléments suivants :

- Un cristal de dimension  $40,64 \times 10,16 \times 10,16$  cm composé de iodure de sodium dopé au thallium de densité  $3,70 \text{ g.cm}^{-3}$ .
- Une enveloppe de protection de ce cristal en aluminium d'épaisseur 2 mm et de densité de  $2,70 \text{ g.cm}^{-3}$ .
- Une couche de réflexion entre le cristal et l'enveloppe de protection composée d'oxyde de magnésium et d'épaisseur 1 mm.
- Un photo-multiplicateur construit sous la forme de trois cylindres et d'un cube associés. Le premier cylindre constitue l'interface optique de diamètre 8,8 cm et de hauteur 0,6 cm. Le cylindre extérieur d'épaisseur 4 mm est en aluminium et l'intérieur est composé de silice,  $\text{SiO}_2$ , pour simuler le verre. Le seconde cylindre de hauteur 6,8 cm présente un diamètre de 8,6 cm. Il est également constitué d'aluminium sur une épaisseur de 4 mm. L'intérieur est considéré comme creux et rempli d'air. Pour le dernier cylindre de hauteur 5,2 cm et de diamètre 6,2 cm la même configuration en matériau est utilisée. Le cube de côté 10,5 cm et de profondeur 6,8 cm simule la boîte électronique du tube photo-multiplicateur. Les matériaux utilisés sur conseil du constructeur au sein de la simulation de cette boîte sont de la silice,  $\text{SiO}_2$  de fraction massique 52,2 %, et du cuivre, Cu, de fraction massique 47,8 %.

Une fois que la duplication de cette structure de détection est réalisée, l'enveloppe de protection externe composée de carbone d'une épaisseur de 2 cm et qui englobe tous ces volumes logiques est mise en place dans la simulation. Cette couche de carbone complète la géométrie du détecteur modélisé. Les espaces laissés vides dans la géométrie modélisée sont remplis d'air. Pour vérifier que toutes les dimensions utilisées dans les simulations sont correctes, une comparaison des mesures des dimensions générales simulées et réelles est opérée. Les dimensions totales de la simulation coïncident bien avec les dimensions réelles du détecteur RSX-5 fournies par le constructeur et mesurées par le bras robotique :  $69,00 \times 57,30 \times 28,80$  cm.

	Composante	Valeur
Matériau	Densité de l'aluminium	2,700
	Densité de l'oxyde de magnésium	3,580
	Densité du carbone	2,300
	Densité de la silice	2,650
	Densité du cuivre	8,960
	Densité du cuivre	8,020
	Densité de l'air à 20°C	1,204
	Densité du NaI(Tl)	3,667
Détecteur NaI(Tl)	Longueur cristal	40,64 cm
	Largeur cristal	10,16 cm
	Hauteur cristal	10,16 cm
	Épaisseur MgO	1 mm
	Épaisseur Al	2 mm
	Épaisseur C	2 cm
Environnement	Longueur local	3,80 m
	Largeur local	2,70 m
	Hauteur local	2,50 m

*Tableau 2.10 – Description de la géométrie du détecteur NaI(Tl) telle que fournie par le constructeur et dimensions du local dans lequel a été réalisée la calibration expérimentale en efficacité de détection.*

**La modélisation de la structure :** La définition de la géométrie du système mécanique est simplifiée par rapport au nombre de composants et à la visserie employée. La structure est modélisée par un pied en inox de diamètre 5 cm sur lequel repose une plaque d'aluminium d'épaisseur 2 cm percée de six emplacements. Les dimensions données dans la simulation reprennent celles réellement observées sur la

structure mécanique de calibration, y compris sur l'emplacement des trous percés dans la plaque d'aluminium. Tous les paramètres sont considérés comme constants dans les simulations.

Les bras métalliques et le porte-source ne sont pas intégrés dans la simulation tout comme les quatre colonnes de diamètre 1 cm assurant la fixation du détecteur RSX-5 à la plaque d'aluminium. Dans le cas où les résultats de simulation seraient éloignés des résultats expérimentaux, l'intégration de ces volumes logiques serait effectué.

**La modélisation de l'environnement :** L'environnement du local de calibration a été pris en compte en modélisant tous les murs de la pièce, le plafond ainsi que le sol par du béton sec (Tableau 2.10). L'épaisseur standard implémentée est de 30 cm pour les murs, le plafond et le sol. Cette prise en compte de l'environnement contribue à une meilleure représentativité du fond de diffusion.

Dans la simulation Geant-4, le local utilisé dans le cadre de la calibration expérimentale est rempli d'air d'une masse volumique constante de  $1,204 \text{ g.cm}^{-3}$  correspondant à la température de  $20^\circ\text{C}$  fixée tout au long de la procédure de calibration.

**Les sources radioactives :** Les sources radioactives utilisées dans le cadre des simulations sont identiques à celles employées lors de la calibration expérimentale en efficacité de détection (Tableau 2.7). Ce sont des sources d'émission ponctuelles de photons  $\gamma$  aux énergies considérées dans le tableau 2.8. La comparaison entre les efficacités de détection expérimentales et simulées pourra ainsi être faite pour les mêmes énergies investiguées. La géométrie circulaire des sources est prise en compte lors de la définition de la source dans Geant-4. La mesure du diamètre de toutes les sources radioactives utilisées avait été réalisée dans ce but précis.

Les distances source-détecteur sont variables selon la position de la source radioactive sur le système de positionnement rotatif de la structure mécanique ayant servi pour la calibration. Chaque distance source-détecteur pour toutes les configurations angulaires azimut-élévation utilisées dans le cadre de la calibration expérimentale a été mesurée. Ainsi, à chaque simulation lancée, un point de vérification doit être effectué sur la distance implémentée dans le modèle. Comme dit précédemment, les distances entre la source ponctuelle et le centre de gravité du détecteur peuvent varier entre 0,92 et 1,08 m en fonction des angles d'azimut et d'élévation. Les valeurs de distance les plus petites sont au niveau de la face avant du détecteur où se situe les tubes photo-multiplicateurs. Pour tous les couples azimut-élévation ayant été défini dans la calibration expérimentale, une simulation Geant-4 a été réalisée en nous assurant de la bonne localisation de la source ponctuelle par rapport au détecteur grâce aux outils de visualisation.

Dans la simulation, la répartition spatiale des noyaux radioactifs est homogène dans tout le volume de source radioactive considérée. Un **générateur aléatoire** est employé pour générer dans un premier temps une **position aléatoire** du noyau dans le volume d'intérêt et dans un second temps, une **direction d'émission** de la particule assimilable à un vecteur trois composantes ( $x, y, z$ ) au sein d'une distribution isotrope. Dès lors que la particule, sa position et sa direction d'émission à générer sont définies, un événement peut être produit.

**La simulation d'un spectre de photons  $\gamma$  :** À chaque source radioactive, la génération d'un nombre identique d'**événements** est proposée lors de la phase d'exécution du programme principale. Ainsi, si l'utilisateur désire étudier la réponse d'un détecteur suite à la désintégration d'un million de noyaux radioactifs de  $^{60}\text{Co}$ , un unique programme d'exécution composé d'un million d'événements est proposé.

Un événement correspond à toutes les étapes de la vie d'une particule de son émission lors de la désintégration d'un noyau radioactif à sa disparition totale ou sa fuite en prenant en compte tous les effets des particules secondaires qu'elle a pu initiée. Lorsqu'un noyau radioactif se désintègre, il peut émettre une particule  $\alpha$ . Cette particule ainsi que toutes les particules secondaires issues de l'ionisation de particules dans le milieu traversé font partie de l'événement. À ce groupe de particules s'ajoute la succession de particules émises lors de la désintégration des noyaux fils pour atteindre le noyau stable ainsi que toutes les particules secondaires générées par ces particules. La fin d'un événement correspond au moment où toutes les particules secondaires émises lors de l'interaction entre particule primaire et matière ont quitté le volume général, ici le local de calibration, ou ont été absorbées.

En intégrant uniquement les énergies des photons  $\gamma$  souhaitées en conservant leur probabilité d'émission, une seule exécution est nécessaire pour accéder aux résultats d'efficacité de détection à toutes les énergies considérées. Le choix s'est porté sur l'édition de la liste d'énergies caractéristiques des photons  $\gamma$  utilisées à partir des sources radioactives de la calibration expérimentale permettant d'obtenir très facilement l'efficacité de détection simulée pour les 35 énergies considérées.

Lorsque l'événement est terminé, il est alors possible d'accéder aux **énergies déposées par l'événement** dans tous les **volumes sensibles** définis lors de la construction de la géométrie. Le volume sensible d'intérêt est défini par le cristal d'iodure de sodium dopé au thallium seul. Dès lors que de l'énergie est déposée dans le volume sensible, un coups dans le canal correspondant est enregistré. Le comptage net d'un pic d'absorption totale est donc directement lisible sur un histogramme Geant-4 au niveau de l'énergie déposée.

Pour obtenir des **histogrammes** réalistes, l'équation d'ajustement de la résolution d'énergie déterminée à partir de la calibration expérimentale est implémentée au niveau de cette étape. L'adaptation de cette équation dans un format où l'écart-type est fonction de l'énergie permet de reconstituer l'écart-type simulé  $\sigma$  à partir de l'énergie déposée dans le volume sensible au sein de Geant-4. Une fonction gaussienne centrée au niveau de l'énergie déposée et d'écart-type  $\sigma$  assure un spectre simulé réellement comparable à celui observé par un cristal de NaI(Tl) avec une résolution en énergie dégradée. En optant pour cette représentation, le calcul de l'intégrale entre les bornes d'énergie identifiées permet de déterminer le comptage net pour cette raie d'émission. Avec une seule exécution du programme, le comptage net des 35 énergies d'intérêt est déterminé par la simulation pour une position ponctuelle de source en azimut et élévation. Ainsi, si 74 positions de source radioactive ont servi à la calibration instrumentale, 74 fichiers de sortie de simulation sont produits. Ces fichiers contiennent les informations nécessaires à toutes les énergies traitées. Pour toutes les positions de source radioactive, un nombre de **100 millions de particules (photons  $\gamma$ )** est généré dans la simulation Geant-4. Connaissant le

nombre de particules émises depuis la source radioactive et le comptage net à l'énergie considérée sur une plage mono-énergétique, l'efficacité de détection simulée à cette énergie est définie. Ces valeurs simulées pourront donc être facilement comparables aux valeurs mesurées.

#### Les efficacités de détection issues des simulations Geant-4

La figure 2.21 montre les efficacités de détection simulées pour la composante *Down* du détecteur pour toutes les élévations positives et la figure 2.22 celles de la composante *Up* du détecteur lorsque les élévations sont négatives. Les résultats sur la simulation de l'efficacité de détection pour les 35 énergies considérées sont représentés.

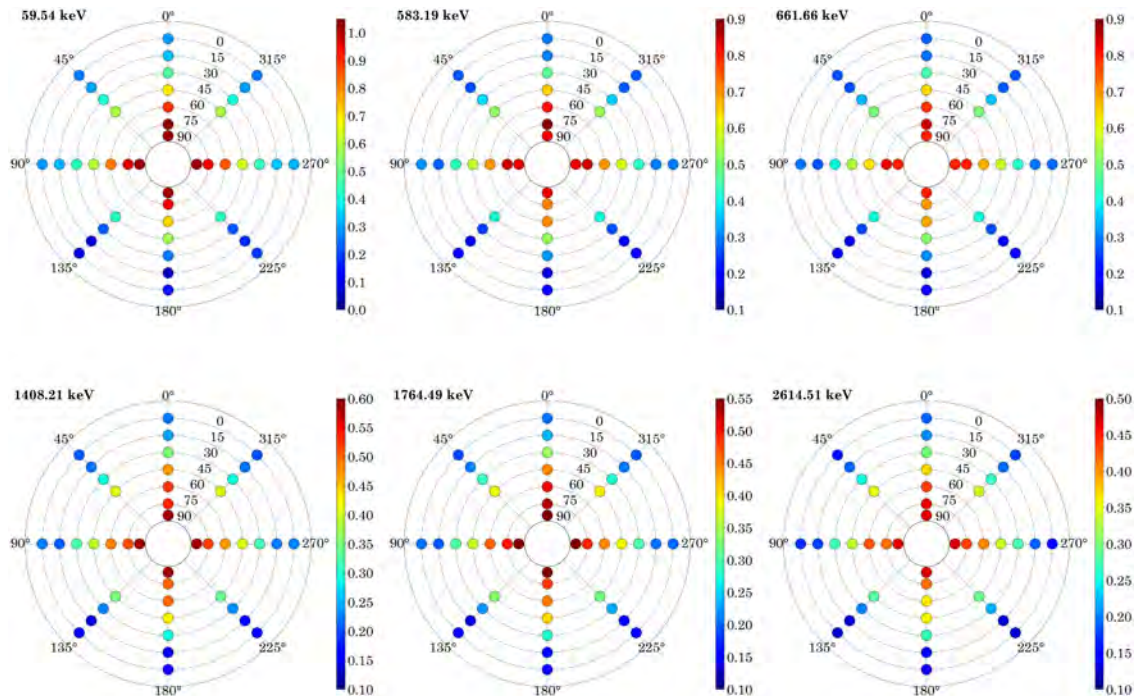


Figure 2.21 – Graphiques polaires représentant les efficacités de détection simulées de la composante *Down* du détecteur sur les élévations positives entre  $0^\circ$  et  $+90^\circ$  pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation.

Les efficacités de détection pour la composante *Down* présentent la même distribution géographique que les efficacités de détection expérimentales. Les valeurs les plus faibles pour chaque énergie sont concentrées sur les valeurs d'élévation nulles au niveau des azimut  $135^\circ$  à  $225^\circ$ . À la différence des valeurs expérimentales, il n'existe pas de différence d'efficacité de détection entre les azimut  $135^\circ$  et  $225^\circ$ . Les valeurs les plus grandes sont corrélées aux élévations les plus grandes ( $+60^\circ$  à  $+90^\circ$ ), lorsque la source est orientée vers la section efficace la plus optimale du détecteur. Les gammes de variation de l'efficacité de détection simulée oscillent entre 0,05 et 1,05 % pour les basses énergies et entre 0,10 et 0,50 % pour les hautes énergies en fonction de la géométrie source-détecteur considérée.



Les efficacités de détection à toutes élévations pour les azimut  $90^\circ$  et  $270^\circ$  sont identiques comme attendu du fait d'une géométrie similaire et d'une distance source-détecteur similaire à chaque position. L'influence de la distance ayant bien été prise en compte, il n'y a pas de correction à apporter sur ce paramètre. De prime abord, la distribution spatiale des valeurs minimales et maximales ainsi que l'étendue des variations d'efficacité de détection entre basses et hautes énergies semblent valider cette géométrie modélisée.

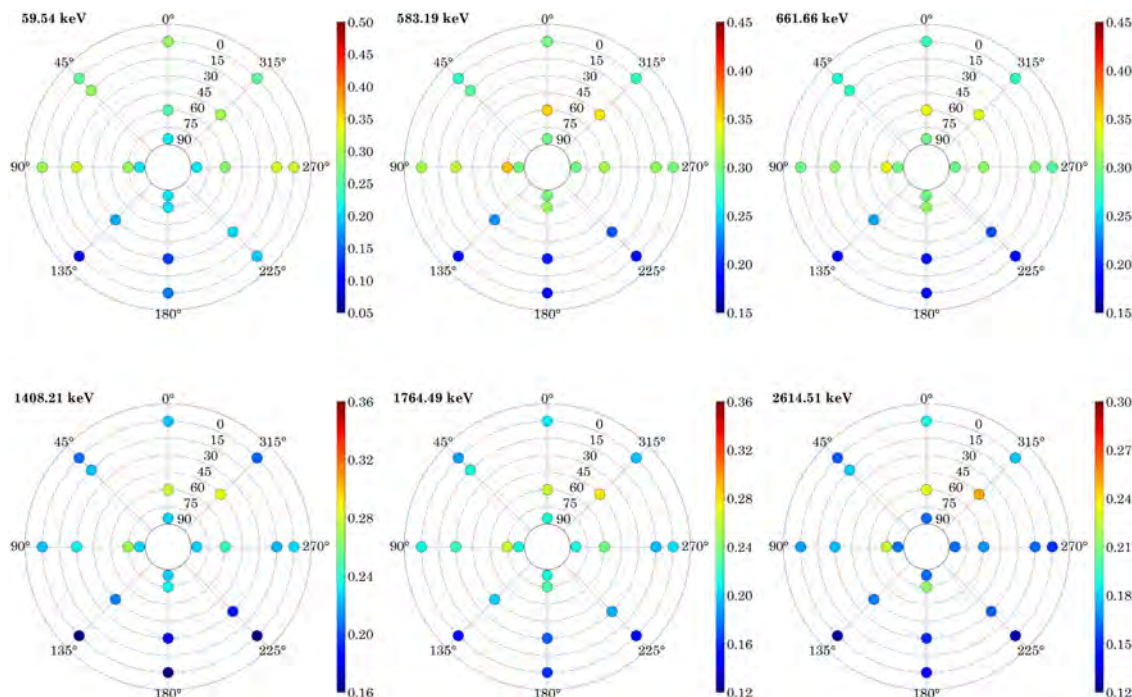


Figure 2.22 – Graphiques polaires représentant les efficacités de détection simulées de la composante  $U_p$  du détecteur sur les élévations positives entre  $0^\circ$  et  $-90^\circ$  pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation.

En ce qui concerne la composante  $U_p$ , les résultats présentent quelques nouveautés par rapport à la calibration expérimentale. Les plus petites valeurs d'efficacité de détection sont toujours retrouvées du côté des tubes photomultiplicateurs au niveau des azimut  $135^\circ$  et  $225^\circ$ . Les plus importantes ne sont pas associées à une élévation de  $-90^\circ$  ou  $-75^\circ$  mais plutôt à une valeur de  $-60^\circ$ . De plus, la distribution des efficacités de détection sur les azimut  $90^\circ$  et  $270^\circ$  est différente et peut atteindre un écart de 30% notamment sur les élévations  $-45^\circ$  et  $-60^\circ$ . La plaque de support en aluminium de 2 mm d'épaisseur percée en six emplacements et qui a été modélisée comme telle ne doit pas atténuer les rayonnements au même niveau que celui réellement observé. Dans la simulation ces six emplacements sont modélisés sous forme de carré identique en dimension or dans la structure, deux types de formes plutôt triangulaires permettent de limiter l'atténuation des rayonnements par la plaque aluminium. Cet effet reste néanmoins limité et explicable et ne remet pas en cause la simulation de la composante  $U_p$  puisqu'elle ne fait pas partie intégrante des analyses des futures simulations.

La figure 2.23 montre l'efficacité de détection simulée en fonction de l'énergie exprimée sous forme de pourcentage ou en logarithme pour toutes les élévations associées à la mesure en azimuth  $0^\circ$ , pour la composante *Down* du détecteur. Comme pour les données expérimentales un total de sept courbes d'efficacité est représenté pour les élévations de  $0^\circ$  à  $+90^\circ$  avec un intervalle de  $+15^\circ$ . Toutes les raies d'émission de photons  $\gamma$  caractéristiques étudiées ont permis l'élaboration de ces courbes.

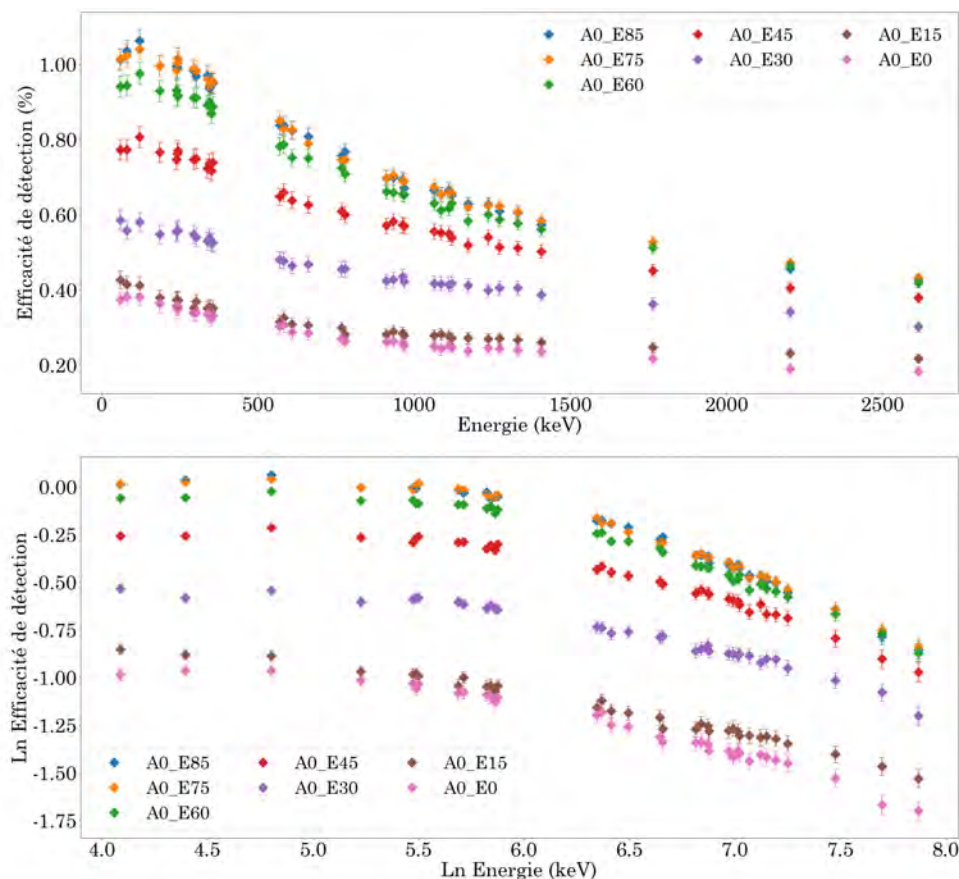


Figure 2.23 – Efficacité de détection simulée exprimée en % ou en logarithme en fonction de l'énergie (keV). Les courbes d'efficacité sont reliées aux variations d'élévations de  $0^\circ$  à  $+90^\circ$ , espacées de  $15^\circ$ , pour la même valeur nulle d'azimut. Les incertitudes représentent les valeurs d'efficacité de détection simulées pour une variation de distance de  $\pm 1$  cm par rapport à la distance réellement mesurée.

Les courbes d'efficacité de détection pour ces géométries source-détecteur présentent le même profil entre les basses énergies et les hautes énergies. Les valeurs minimales sont retrouvées pour l'énergie maximale mesurée, à 2614,51 keV, et les valeurs les plus importantes sont observées vers une plage d'énergie 150-250 keV. Lorsque la source est en position d'élévation  $+15^\circ$ , les efficacités de détection pour tout azimuth est très légèrement supérieur, de l'ordre de 1 à 10 % en tenant compte des incertitudes, à celles simulées en position d'élévation nulle. Comme observé sur les graphiques polaires, les efficacités de détection maximales sont concentrées sur les élévations  $+75^\circ$  et  $+90^\circ$  avec des valeurs aux élévations  $+60^\circ$  légèrement inférieures de l'ordre de 1 à 10% en fonction de l'énergie considérée. Les courbes d'efficacité semblent présenter une symétrie entre elles avec pour plan de symétrie, une courbe d'efficacité de détection pour une élévation estimée à  $38^\circ$  d'après la figure 2.23.



Les incertitudes liées aux simulations et présentées sur ces courbes d'efficacité de détection sont difficilement quantifiables. Le principal point d'incertitude repose sur la distance entre la source et le détecteur. Une erreur de 10 cm sur la distance peut engendrer des erreurs sur l'efficacité de détection de 100 % d'après des tests effectués. Il a donc été considéré comme judicieux de présenter comme bornes de variation de l'incertitude d'une efficacité de détection, les valeurs d'efficacité de détection simulées pour une distance supérieure et inférieure de 1 cm par rapport à la distance mesurée. De plus, les incertitudes sur les simulations Monte-Carlo sont surtout des incertitudes statistiques qui peuvent être réduites en augmentant le nombre d'événements simulés. Les incertitudes représentées par les barres d'erreur peuvent donc être considérées comme indicateurs d'une bonne statistique dans les simulations.

La sous-section suivante fait un état des lieux comparatifs des efficacités de détection calculées et simulées et permet de spécifier si la simulation du détecteur est suffisamment robuste pour être utilisée dans d'autres contextes de simulation.

### 2.4.6 L'efficacité de détection : comparaison entre mesures et simulation

Dans la simulation, l'énergie déposée de chaque photon est sommée après que l'événement soit terminé. Le spectre résultant de l'énergie totale déposée contient non seulement les pics d'absorption totale correspondant aux énergies des photons incidents mais aussi le continuum Compton. En conséquence, une comparaison des spectres expérimentaux et simulés peut être réalisée uniquement après détermination de l'air du pic d'absorption totale.

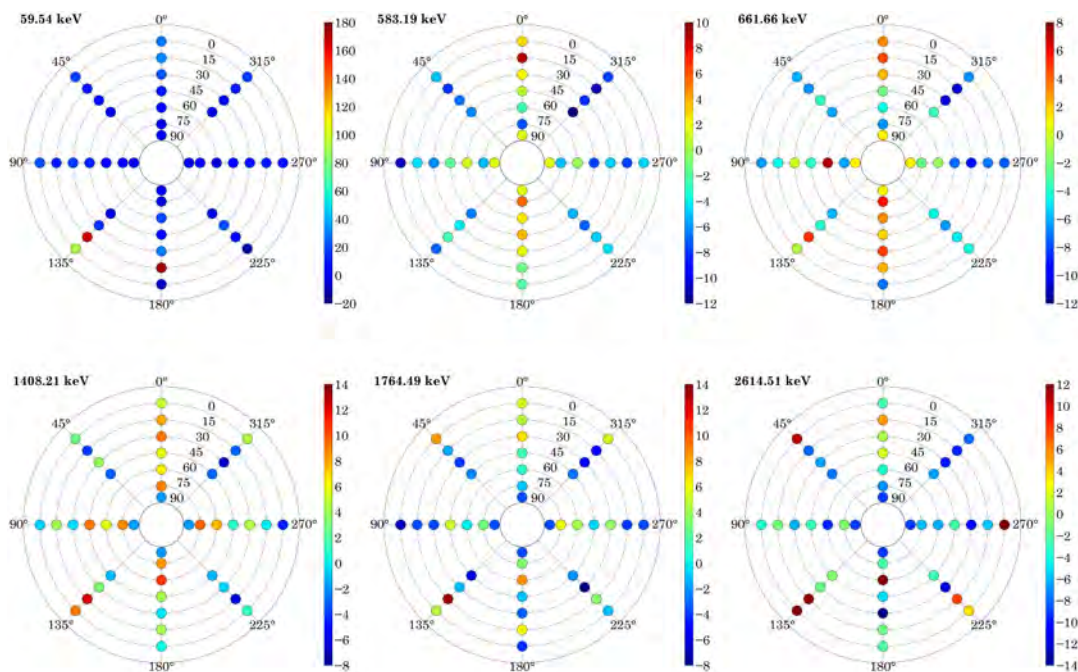


Figure 2.24 – Graphiques polaires représentant les résidus exprimés en % entre les efficacités de détection simulées et calibrées de la composante Down du détecteur sur les élévations positives entre  $0^\circ$  et  $-90^\circ$  pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent l'écart relatif exprimé en %.

Les figures 2.24 et 2.25 présentent les comparaisons des résidus exprimés en % entre les valeurs d'efficacité de détection des pics d'absorption totale simulées et calculées pour les composantes *Down* et *Up* du détecteur. Les résidus calculés le sont sur la base d'une différence entre efficacités de détection simulées et calculées.

Pour la composante *Down*, à l'exception des quatre énergies représentant les basses énergies (de 59,54 à 186,21 keV) et celles à hautes énergies (de 1332,49 à 2614,51 keV), l'ensemble des variations des résidus est défini sur une plage moyenne allant de -12% à +10%. Cet ordre de grandeur est identique à celui observé pour les valeurs expérimentales et montre que l'atténuation des particules dans les tubes photo-multiplificateurs et la boîte électronique est correctement considérée par la simulation. L'absence de simulation de la chaîne d'électronique d'acquisition compensée par la présence d'air ne semble pas porter préjudice aux résultats.

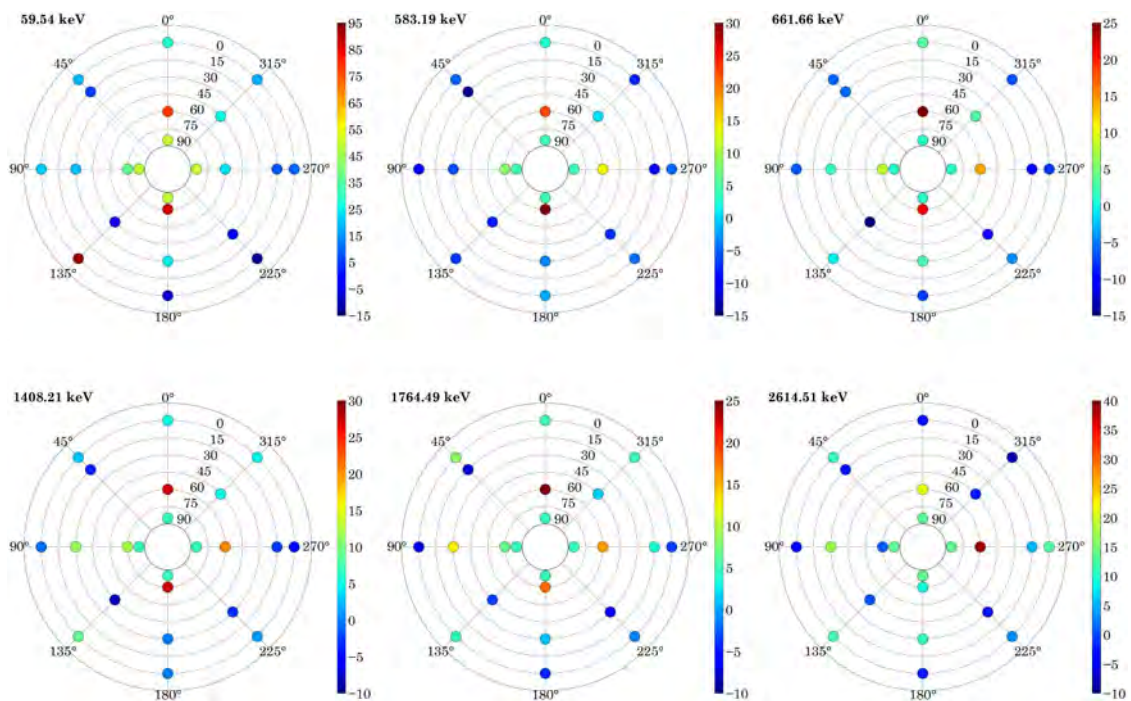


Figure 2.25 – Graphiques polaires représentant les résidus exprimés en % entre les efficacités de détection simulées et calibrées de la composante *Up* du détecteur sur les élévations positives entre 0° et 90° pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent l'écart relatif exprimé en %.

Les plus grands écarts observés pour les basses énergies sont concentrés sur l'azimut 135° où se situe la zone de raccordement des câbles d'alimentation et de connexion. La figure 2.26 qui représente les efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut 135° et élévation nulle montre bien ce phénomène. Les résidus pour les trois énergies investiguées les plus basses varient entre 50 et 90% alors que le reste des énergies conduisent à des valeurs de résidus proche de la valeur 0%.

La simulation ne prend pas en compte ni la géométrie de la chaîne d'acquisition ni toutes les connectiques externes que composent l'entrée de l'alimentation électrique ou les prises ethernet situées au niveau de cet azimut sur le détecteur. L'absence de ces composants dans la géométrie simulée justifient ces écarts observés entre

efficacité de détection simulées et calculées. L'atténuation des photons  $\gamma$  entre les situations expérimentales et simulées n'est, de ce fait, pas similaire.

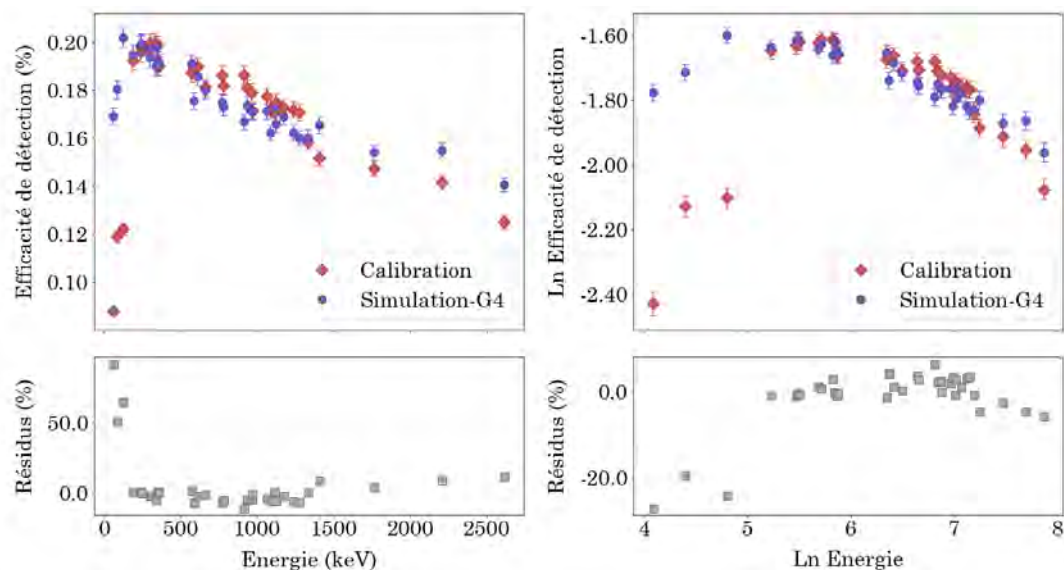


Figure 2.26 – Représentation des efficacités de détection calculées et simulées, et des résidus, en fonction de l'énergie pour la configuration en azimuth  $135^\circ$  et élévation nulle pour une distance source-détecteur de 96 cm. Cette configuration correspond à celle où les écarts sont les plus grands.

En ce qui concerne les hautes énergies, les variations moyennes des résidus sont comprises entre -10% et +15% montrant que les valeurs simulées sont légèrement supérieures à celles calculées. La configuration source-détecteur avec un azimuth  $180^\circ$  et une élévation de  $+60^\circ$  montre des résidus entre les efficacités de détection variant entre +8 et +13% pour les hautes énergies (Figure 2.27).

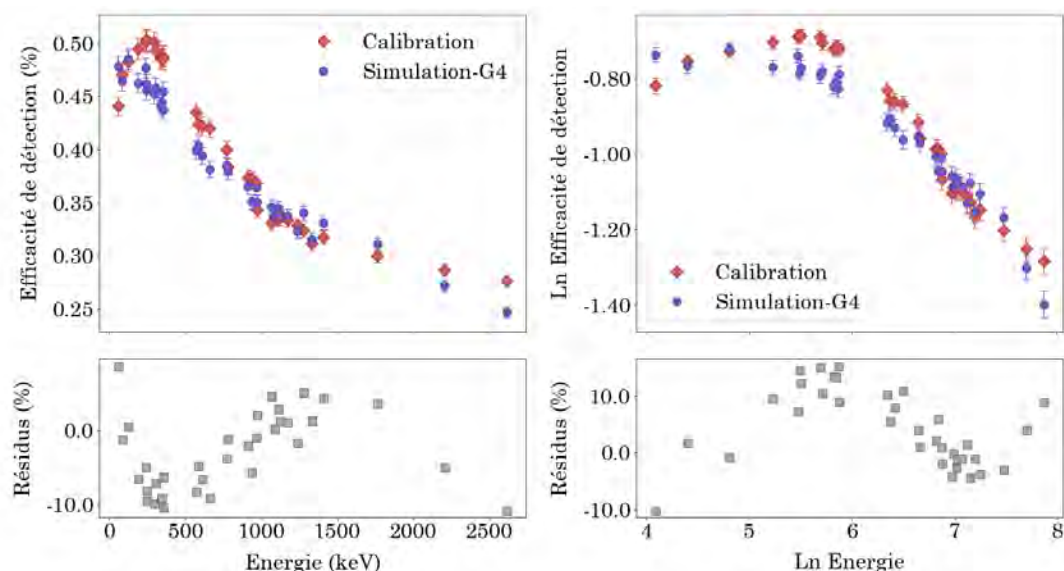


Figure 2.27 – Représentation des efficacités de détection calculées et simulées, et des résidus, en fonction de l'énergie pour la configuration en azimuth  $270^\circ$  et élévation  $+30^\circ$  pour une distance source-détecteur de 104 cm.

Cette différence avec les autres énergies semble être principalement due à la négligence de la correction angulaire. La probabilité que la direction de la particule secondaire soit parallèle ou anti-parallèle à celle du photon primaire est plus grande que celle d'avoir une direction orthogonale. Le nombre de coups enregistré est donc supérieur dans la fenêtre du pic d'absorption totale. Les hautes énergies sont représentatives des radionucléides de la composante naturelle tellurique constituées du  $^{40}\text{K}$  (1460,82 keV),  $^{238}\text{U}$  (1764,49 keV) et  $^{232}\text{Th}$  (2614,51 keV), il est donc indispensable de bien comprendre les différences observées afin de s'assurer que la simulation Monte-Carlo et la réponse du détecteur modélisé est robuste.

La figure 2.28 présente les résultats sur l'efficacité de détection pour la configuration optimale de détection entre les sources radioactives et le détecteur pour une distance mesurée de 98 cm. Les efficacités de détection mesurées expérimentalement et simulées se superposent presque parfaitement pour chaque énergie considérée. Au regard de la dispersion des incertitudes, 34 énergies sur 35 se recourent totalement. Un très léger écart (moins de 3%) subsiste pour l'énergie la plus élevée investiguée à 2614,51 keV ce qui est considéré comme un résultat probant.

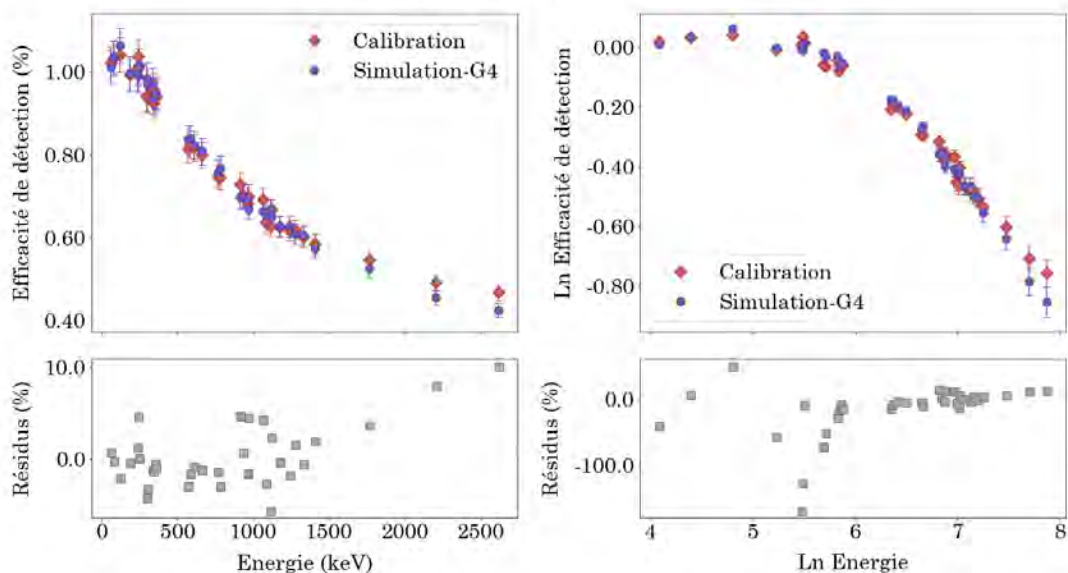


Figure 2.28 – Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimuth  $90^\circ$  et élévation  $+85^\circ$  pour une distance source-détecteur de 98 cm. Les résidus sur l'efficacité de détection exprimés en % y sont proposés. Cette configuration correspond à celle où les écarts sont les plus petits.

Le tableau 2.11 présente une étude statistique réalisée sur les résidus de la composante *Down* et montre que les valeurs moyennes oscillent entre -4% et +3%, exception faite des basses énergies. Ces résultats corroborent d'autres études comparatives entre efficacité de détection calibrées et simulées [Ashrafi et al., 2006, Kovaltchouk and Machrafi, 2011, Casanovas et al., 2012, Akkurt et al., 2014, Zhang et al., 2015, Duc Tam et al., 2017]. Ces études ont toutefois été réalisées sur des géométries source-détecteur limitées et notamment dans les conditions optimisées où la source radioactive fait directement face au détecteur sur une courte distance, 20 cm en moyenne contre 98 à 104 cm pour cette étude.



Énergie (keV)	Moyenne %	Médiane %	Écart-type %	Minimum %	Maximum %
59,54	16,87	7,80	37,72	-13,64	173,96
81,00	2,80	-0,44	17,72	-35,11	74,74
121,78	6,83	2,07	19,32	-8,73	98,41
186,21	-2,60	-2,51	5,67	-14,70	17,61
238,63	-3,24	-3,22	4,25	-12,23	6,02
241,99	-3,44	-4,26	3,77	-13,88	5,63
295,22	-3,56	-4,17	5,46	-15,69	10,83
302,85	-2,46	-2,46	4,66	-11,31	8,26
338,32	-2,98	-3,69	5,05	-11,93	8,56
351,93	-2,66	-2,14	4,84	-10,63	8,06
356,02	-0,53	-0,28	4,82	-8,28	8,26
569,70	-3,42	-3,96	5,34	-11,87	10,12
583,19	-3,23	-4,56	4,76	-12,05	9,04
609,31	-2,82	-3,79	4,19	-10,12	6,81
661,66	-2,63	-3,89	4,68	-10,56	7,19
778,91	-0,93	-1,09	4,60	-9,78	7,61
911,20	-2,72	-3,97	5,14	-13,48	8,22
934,06	-1,18	-0,92	4,85	-10,48	8,40
968,96	-0,92	-1,02	4,59	-9,14	9,01
1063,66	0,02	0,13	4,97	-9,43	11,18
1085,84	-0,16	-1,01	5,28	-9,68	9,62
1120,99	-0,50	-1,38	5,45	-12,78	8,68
1173,33	-0,87	-0,63	4,77	-10,05	7,63
1238,11	-0,22	-0,17	4,97	-10,01	10,45
1274,54	0,19	-0,68	5,08	-8,75	11,26
1332,49	2,40	1,41	6,47	-10,48	19,61
1408,21	2,61	2,96	5,01	-6,57	12,40
1764,49	0,15	-1,05	4,86	-7,99	13,32
2204,21	-1,69	-3,70	6,34	-10,69	15,15
2614,51	-2,90	-3,82	7,00	-14,51	12,62

Tableau 2.11 – Statistiques réalisées sur les résidus des efficacités de détection calibrées et simulées pour la composante Down du détecteur.

En s'intéressant à la comparaison des efficacités de détection sur la composante  $Up$  (Figure 2.25), la première remarque se fait sur l'étendue entre valeurs minimum et maximum (-15% à +35%) qui est relativement homogène à toutes les énergies investiguées.

Pour la plupart des énergies, la majorité des positions en azimuth et élévation considérées présentent des résidus négatifs. Les valeurs d'efficacité de détection simulées sont donc inférieures à celles réellement observées. Comme il a été expliqué à de nombreuses reprises, la plaque d'aluminium servant de structure d'accroche au détecteur et percé en six emplacements distincts ne semble pas écranter de la même manière que dans la situation expérimentale.

La configuration géométrique source-détecteur avec un azimuth  $90^\circ$  et une élévation  $-75^\circ$  présente les résultats qui sont les plus proches entre les deux efficacités de détection [Figure 2.29]. Les résidus varient entre 0% et 37% avec une moyenne de 9%. La simulation de l'efficacité de détection est ici supérieure à celle calibrée expérimentalement, un cas minoritaire pour cette composante  $Up$ .

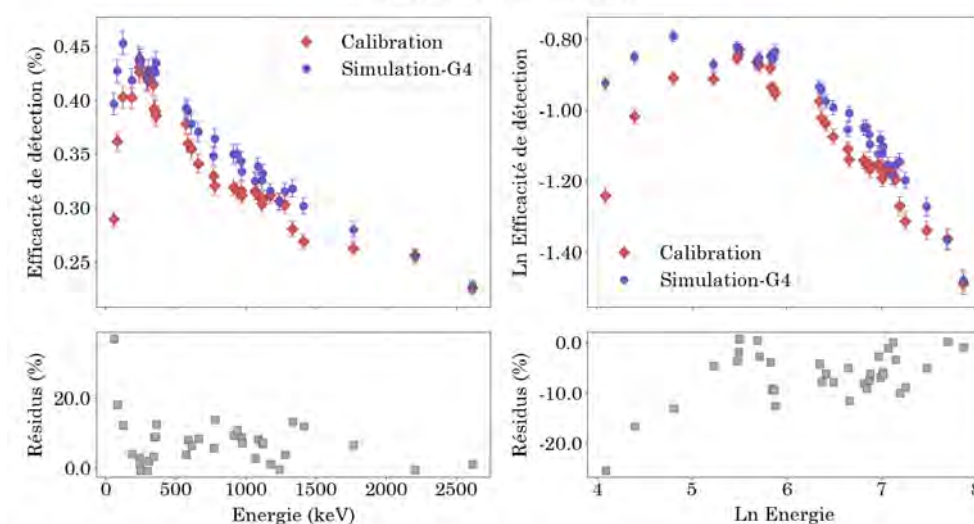


Figure 2.29 – Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimuth  $90^\circ$  et élévation  $-75^\circ$  pour une distance source-détecteur de 92 cm. Les résidus sur l'efficacité de détection exprimés en % y sont proposés.

Les efficacités de détection liées au pic d'absorption totale de la composante  $Down$ , qu'elles soient déterminées expérimentalement ou par simulation, impliquent les mêmes mécanismes de détection. La déduction logique est que les données simulées sont suffisamment proches des données calibrées pour en déduire des courbes d'efficacité de détection.

**En conclusion, la validation de la comparaison entre efficacités de détection calculées et simulées permet une nouvelle fois de signaler la très bonne qualité de l'ajustement réalisé à partir de la méthode d'analyse spectrale dite de la ligne de base développée dans cette thèse pour les spectromètres NaI(Tl).**

**Une fonction réponse à l'efficacité de détection :** La distribution des efficacités de détection expérimentales et simulées en fonction de l'énergie permet de procéder à un ajustement par une fonction réponse. Une équation reliant efficacité de détection et énergie facilitera l'extrapolation de l'efficacité de détection expérimentale ou simulée au niveau des énergies non considérées par les sources radioactives. Ce travail présente un intérêt au niveau de la raie d'émission mono-énergétique du potassium  $^{40}\text{K}$  dont aucune source n'a pu être utilisée lors de la phase de calibration puis de simulation. Ce radioélément fait partie intégrante des trois énergies suivies en spectrométrie gamma aéroportée.

Plusieurs fonctions de réponse entre efficacité de détection et énergie consultées dans la littérature ont été testées sur les données expérimentales et simulées afin de déterminer si l'un de ces ajustements pouvaient être appliqués. Les efficacités de détection issues de toutes les géométries source-détecteur font l'objet de ces investigations. Les fonctions utilisées et les résultats sur la qualité de l'ajustement exprimés par le coefficient de détermination ajusté pour la configuration optimale de réponse instrumentale de la composante *Down* (azimut  $90^\circ$ , élévation  $+85^\circ$ ) sont présentés sur le tableau 2.12.

Fonction	Littérature	Littérature	$\overline{R}_{Exp}^2$	$\overline{R}_{Sim}^2$
ED(E)	Détecteur	Références	DOWN	DOWN
$\frac{aE^b}{c+E^d}$	NaI	[Sudarshan et al., 1992]	<b>0,990694</b>	<b>0,996442</b>
$aE^3 + bE^2 + cE + d$	NaI	[East, 1971]	0,985290	0,995336
$\frac{1}{(aE^b) + (cE^d)}$	NaI	[Shi et al., 2002]	<b>0,990694</b>	<b>0,996442</b>
$a.e^{(bE)} + ce^{(dE)}$	NaI, LaCl <sub>3</sub>	[Kovaltchouk and Machrafi, 2011]	0,984914	0,989641
$a.e^{(b-c\ln(E)+d\ln(E)^2)}$	NaI	[Kane and Mariscotti, 1967]	0,989628	0,995857
$a-b.e^{(-cE^d)}$	NaI	[Kane and Mariscotti, 1967]	0,988485	0,993528
$a.e^{(b-c\ln(E)+d\ln(E)^2)}$	Ge	[East, 1971]	0,989628	0,995857
$e^{a\ln(\frac{b}{E})+c(\ln(\frac{b}{E}))^2}$	Ge	[East, 1971]	0,989628	0,9958571

Tableau 2.12 – Résultats de l'ajustement des efficacités de détection expérimentales et simulées (%) en fonction de l'énergie exprimée en MeV. Les coefficients de détermination ajustés permettent de signaler la fonction la plus pertinente à utiliser pour cette calibration. Détecteur : NaI pour Iodure de Sodium, Ge pour Germanium.

Toutes les fonctions testées présentent des résultats très prometteurs sur les données calibrées et simulées. Les coefficients de détermination ajustés sont légèrement supérieurs pour les efficacités de détection simulées par rapport à celles issues de la calibration instrumentale. Deux fonctions validées précédemment sur des NaI(Tl)



et exprimées sous forme de fraction avec quatre paramètres à estimer ont montré qu'elles étaient les plus robustes dans l'ajustement des données acquises dans ces travaux. La fonction division développée par [Shi et al., 2002] est celle qui est utilisée dans la suite de cette étude. La représentation de cette fonction d'ajustement sur les efficacités de détection calibrées et simulées pour une configuration géométrique azimut  $90^\circ$  et élévation  $+85^\circ$  est visible sur la figure 2.30.

Que ce soit pour les efficacités de détection calibrées ou simulées, la fonction division proposée permet un ajustement de qualité sur toutes les énergies du spectre. Le maximum de la courbe au niveau des énergies 150-250 keV est confondu avec celui des points expérimentaux. La diminution entre les énergies 150 et 59,54 keV est bien représentée par l'ajustement. Ces courbes permettent de retrouver les efficacités de détection du  $^{40}\text{K}$  avec une valeur de 0,5733% pour les données issues de la simulation Geant4 et de 0,5865% pour les données de la calibration expérimentale.

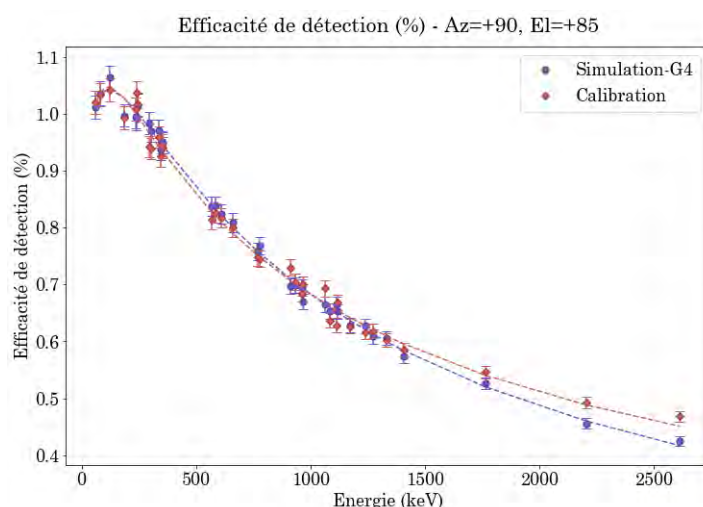


Figure 2.30 – Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut  $90^\circ$  et élévation  $85^\circ$  pour une distance source-détecteur de 92 cm. La courbe d'ajustement proposée est validée pour les deux jeux de données avec des énergies exprimées en keV.

**La dépendance angulaire du signal  $\gamma$  mesuré :** La variation de l'efficacité de détection normalisée au maximum en fonction de l'angle d'élévation sur les sections transversale en azimut  $0^\circ$ - $180^\circ$  et  $90^\circ$ - $270^\circ$  a été investiguée. La géométrie du détecteur sur la section transversale en azimut  $0^\circ$ - $180^\circ$  n'est pas symétrique. Les tubes photomultiplicateurs sont uniquement présents sur la face en azimut  $180^\circ$  sur une épaisseur de 16 cm environ. Les résultats de trois énergies sont présentées sur la figure 2.31 : 59,54 keV, 661,66 keV et 2614,51 keV.

Les trois premiers graphiques montrent la dépendance angulaire du signal  $\gamma$  mesuré pour la section en azimut  $0^\circ$ - $180^\circ$ . Les courbes de type gaussienne centrées sur un azimut  $90^\circ$  correspondant à la configuration optimisée de la réponse instrumentale ne sont pas symétriques. Le rapport des efficacités de détection normalisées est supérieures en azimut  $0^\circ$  par rapport à celui en azimut  $180^\circ$ . Ce rapport diminue progressivement entre les basses énergies (2,6) et les hautes énergies (1,33) montrant que les photons  $\gamma$  de plus basse énergie disposant d'un coefficient d'atténuation

linéaire plus grand sont plus affectés par les tubes photomultiplicateurs que les photons  $\gamma$  de plus haute énergie.

La géométrie du détecteur est symétrique dans le plan de la section transversale  $90^\circ$ - $270^\circ$ . Les trois derniers graphiques de la figure 2.31 montrent la dépendance angulaire du signal  $\gamma$  mesuré pour la section en azimuth  $90^\circ$ - $270^\circ$ . Cette fois-ci, les courbes de réponse sont symétriques. Le rapport des efficacités de détection normalisées est similaire entre les basses et les hautes énergies et s'approche de 1. La réponse instrumentale est donc identique sur ces deux faces du détecteur du fait d'une même configuration géométrique. L'atténuation des photons à basses énergies est visible sur l'écart-type de la courbe qui s'étale de plus en plus vers les hautes énergies. Toutes ces observations sont faites pour les données expérimentales et simulées.

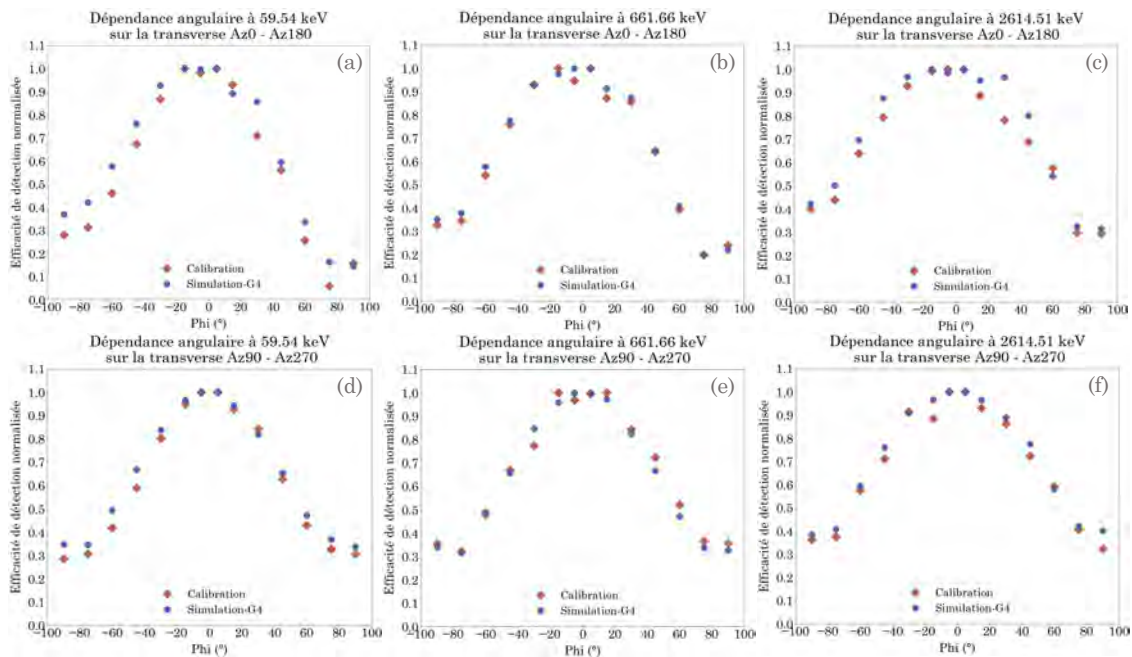


Figure 2.31 – Variation de l'efficacité de détection normalisée au maximum en fonction de l'angle d'élévation sur la section transverse entre les azimuth  $0^\circ$  et  $180^\circ$  (a, b, c) et celle entre les azimuth  $90^\circ$  et  $270^\circ$  (d, e, f) pour trois énergies. Ces graphiques montrent une dépendance angulaire du signal  $\gamma$  mesuré par le détecteur. L'angle Phi exprimé en degrés représente la valeur de l'azimut de  $-90^\circ$  à  $+90^\circ$  correspondant aux couples d'angles  $0^\circ$ - $180^\circ$  et  $90^\circ$ - $270^\circ$ .

## 2.4.7 Conclusions

La caractéristique principale d'un détecteur est son **efficacité de détection**. Celle-ci varie avec le volume et la forme du matériau composant le détecteur, la section transversale d'absorption du matériau, les couches d'atténuation du détecteur et aussi la distance entre le détecteur et la position de la source. Un code de simulation Monte-Carlo a été développé et validé pour reproduire des spectres  $\gamma$  réels et des efficacités de détection cohérentes pour un détecteur NaI(Tl) de type RSX-5. La bonne implémentation de la résolution en énergie dans ce code a été testée sur toutes les énergies en comparant les spectres expérimentaux et simulés. Le code de

simulation a aussi été validé par le calcul des efficacités de détection de nombreuses géométries simples avec des sources radioactives. Les efficacités de détection ont une très bonne concordance avec les valeurs expérimentales obtenues à partir de sources radioactives certifiées. **La cohérence des mesures expérimentales et celles simulées par Geant-4 valide le traitement des pics d'absorption totale à toutes les énergies.**

Cette validation sur des géométries source-détecteur simples va permettre **de simuler des valeurs d'efficacité de détection pour d'autres distributions de sources radioactives en d'autres géométries.** Par exemple, dans le cadre d'une simulation environnementale *in situ* dans laquelle ce détecteur est utilisé, plusieurs paramètres doivent être pris en compte en plus dans la simulation tels que la distribution des radionucléides dans le sol, la composition et la masse volumique du sol, l'altitude à laquelle est installée le détecteur et la densité de l'air. Cette simulation décrit le cadre environnemental type observé sur le site pilote et utilisée dans le chapitre 6.

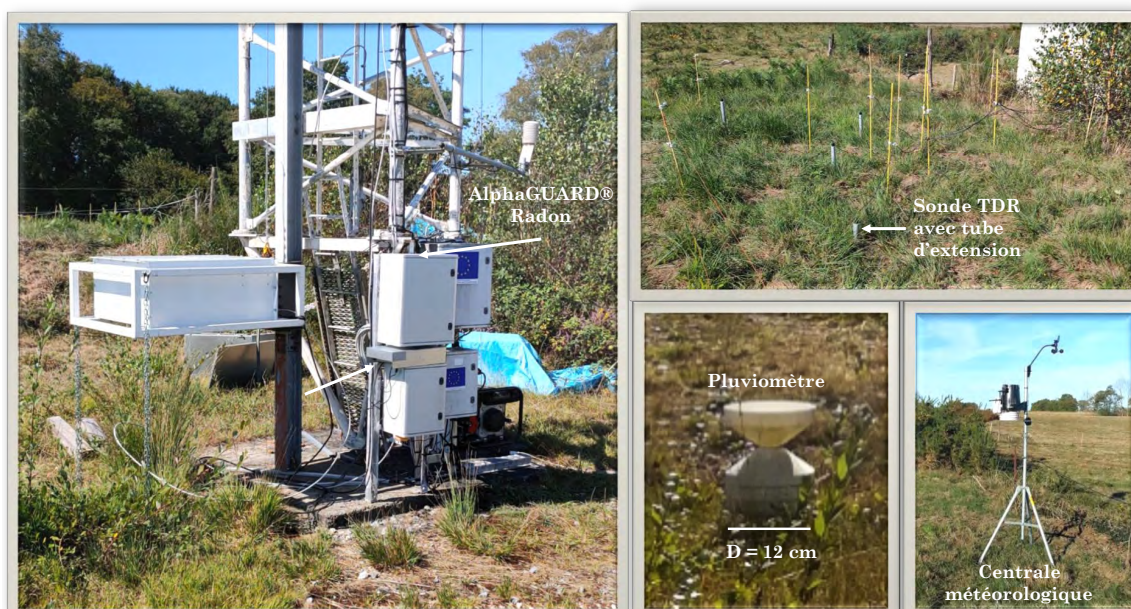
Le très bon ajustement réalisé à partir de la méthode de la ligne de base est validé par la comparaison des efficacités de détection mesurées et simulées. La méthode développée au cours de cette thèse pour analyser des spectres NaI(Tl) est donc totalement applicable en l'état.



# 3

## La mesure des paramètres environnementaux

*"On ne peut pas souffler contre le vent, ni nager contre l'eau" (Proverbe lituanien).*



## Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Le radon-222 : un suivi du bruit de fond atmosphérique</b>	<b>101</b>
3.1.1	L'élément radon . . . . .	101
3.1.2	La détection des rayonnements ionisants de type $\alpha$ . . . . .	103
3.1.3	Le bruit de fond instrumental des moniteurs . . . . .	105
<b>3.2</b>	<b>Les précipitations : mesures d'intensité de pluie</b>	<b>112</b>
<b>3.3</b>	<b>Le suivi de l'humidité volumique du sol</b>	<b>113</b>
3.3.1	La teneur en eau pondérale . . . . .	113
3.3.2	La réflectométrie dans le domaine temporel : TDR, une échelle spatiale métrique : . . . . .	114
3.3.3	La mesure de l'humidité des sols par satellite, une échelle spatiale kilométrique . . . . .	116

---

## 3.1 Le radon-222 : un suivi du bruit de fond atmosphérique

Le radon-222 atmosphérique ( $^{222}\text{Rn}$ ) est un perturbateur de la mesure du signal  $\gamma$  mesuré au sol et est donc considéré comme un **bruit de fond** devant être soustrait du signal enregistré au même titre que le bruit de fond instrumental du détecteur ou celui engendré par les rayonnements cosmiques. C'est pourquoi, dans cette thèse, sa mesure dans l'atmosphère, en parallèle des acquisitions de spectrométrie  $\gamma$ , est indispensable.

Friedrich E. Dorn met en évidence en 1900 que l'air au contact de composés du radium devient radioactif et que ce phénomène est dû à une émanation gazeuse issue du radium, le radon. Au cours de la même année, Ernest Rutherford montre que ce gaz se forme lors de la désintégration du radium avec émission d'une particule  $\alpha$ .

### 3.1.1 L'élément radon

Le radon est un gaz rare pour lequel une vingtaine d'isotopes radioactifs sont connus. Trois d'entre eux se rencontrent à l'état naturel : le radon ( $^{222}\text{Rn}$ ), le thoron  $^{220}\text{Rn}$  et l'actinon  $^{219}\text{Rn}$ . Ces trois isotopes se désintègrent en émettant une particule  $\alpha$  pour donner un isotope du polonium.

Le radon, le thoron et l'actinon appartiennent respectivement aux familles radioactives naturelles du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{235}\text{U}$ . Au sein de ces trois familles, les trois éléments pères possèdent une période très longue et engendrent des séries de descendants radioactifs jusqu'à l'apparition d'un élément stable, isotope du plomb. Les différents radionucléides formés sont des solides (à température et pression normales) à l'exception d'un par famille qui est l'isotope du radon.

### Origine et migration du radon au sein du compartiment tellurique

Le radon-222 est un gaz radioactif inerte, qui est produit par la désintégration  $\alpha$  du radium-226 dans la série de l'uranium-238. Tous les matériaux terrestres ont des radionucléides naturels en leur sein, tels que les isotopes de l'uranium, et émettent donc plus ou moins de radon. Les atomes de radon, émis par ces matériaux, migrent avec un temps de demi-vie de 3,82 jours pour être distribués dans l'air intérieur (bâtiment) ou extérieur (atmosphère terrestre). L'émanation de radon peut ainsi être définie comme la probabilité de libération d'un atome de radon d'un grain porteur de  $^{226}\text{Ra}$  dans des espaces interstitiels.

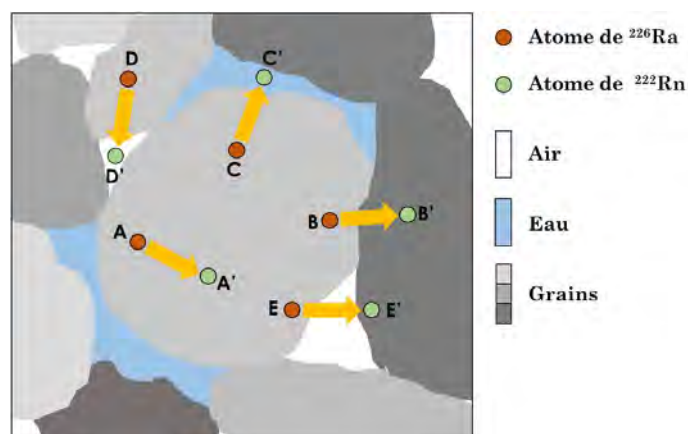
En considérant différents grains constituant la roche en contact, entre ceux-ci, il peut y avoir un espace rempli d'eau et/ou air. Ces deux matériaux sont en constante compétition dans ces pores. Selon la position de l'atome de  $^{226}\text{Ra}$  père, le radon fils pourra ou non quitter le réseau cristallin de la roche mère. Pour expliquer le déplacement des atomes de  $^{226}\text{Ra}$  dans le cristal, deux phénomènes coexistants prédominent [Tanner, 1978, Morawska and Phillips, 1993, Sakoda et al., 2010] :

- Le processus de déplacement par énergie de recul : à l'intérieur du grain minéral où la désintégration a eu lieu, l'énergie de recul du radon se traduit par un



déplacement de l'atome de gaz de plusieurs dizaines de nanomètres suivant le matériau ou le fluide considérés. Ainsi, différentes configurations peuvent être envisagées (Figure 3.1). Si l'atome de radium est situé au sein du réseau cristallin à une distance supérieure au parcours de recul, l'atome de radon reste piégé dans la roche ( $A \rightarrow A'$ ). De même, si la désintégration a lieu à proximité d'un joint de grains dans une direction où les phases inter-cristallines traversées sont inférieures à ce parcours, le radon viendra se piéger dans un grain voisin ( $B \rightarrow B'$ ,  $E \rightarrow E'$ ). Enfin, dans le cas où la direction du parcours n'entraîne aucune interaction avec les grains voisins, l'atome de radon sera libre dans l'espace des pores dans une phase liquide, eau, ou gazeuse, air, ( $C \rightarrow C'$ ,  $D \rightarrow D'$ ).

Figure 3.1 – Schéma des processus de libération du radon à l'échelle macroscopique [Tanner, 1978].



- Le processus de diffusion intracristalline : La désorganisation du réseau cristallin (métamictisation) est associée à la multiplication des désintégrations radioactives. Après avoir parcouru leur distance de recul, les atomes de radon vont pouvoir diffuser dans le grain pour parcourir les quelques nanomètres qu'ils leur restent pour éventuellement se retrouver dans l'espace poral.

Suite à son échappement dans l'espace poral, le radon va migrer progressivement à travers ces pores du sol, par des processus de diffusion (dominant) et convection afin d'être exhalés dans l'atmosphère. La diffusion dans les roches se fait par l'intermédiaire des fissures et fractures. Ainsi, le compartiment tellurique alimente la radioactivité de l'air par l'ensemble des processus inhérents au radon. Du fait de sa longueur de diffusion, le radon va se concentrer dans les 400 premiers mètres de l'atmosphère c'est-à-dire dans la couche de la basse atmosphère délimitée par la couche limite atmosphérique. Ainsi, pour comprendre la dynamique du radon dans cette basse atmosphère et donc l'influence sur le signal  $\gamma$  mesuré, il est nécessaire de faire un état des lieux des phénomènes impactant cette couche atmosphérique au contact du sol.

### Quelques propriétés physico-chimiques

Le radon fait partie de la classification chimique des gaz rares comme l'hélium ou l'argon. Il est mono-atomique, inodore, incolore et sans saveur et donc inerte chimiquement. Il est soluble dans l'eau et plus encore dans les solvants et composés organiques. Le radon est le gaz le plus lourd connu avec une densité de  $9,72 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$  à

0°C soit 8 fois plus que l'air et va s'accumuler dans les zones basses mal ventilées. Il se liquéfie à -68°C et se solidifie à -71°C. Son coefficient de diffusion est moins important dans l'eau que dans l'air, soit à 18°C  $1,15 \cdot 10^9 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  dans l'eau et  $1,02 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  dans l'air. Ses descendants s'adsorbent facilement sur les solides et donc sur les aérosols atmosphériques. Le paramètre physique qui différencie le plus chacun des isotopes est leur période radioactive. En effet, elle est de 3,92 secondes pour l'actinon, 54,2 secondes pour le thoron et 3,82 jours pour le radon (Tableau 3.1).

La période radioactive du radon-222 est très supérieure à celle des autres isotopes; ce qui explique sa présence dans l'atmosphère en quantité plus ou moins importante. En se désintégrant, le radon émet des particules  $\alpha$  et crée ainsi, des descendants solides, eux-mêmes radioactifs tels que le  $^{218}\text{Po}$ , le  $^{214}\text{Bi}$  ou encore le  $^{210}\text{Pb}$ . Le  $^{214}\text{Bi}$ , un des descendants du  $^{222}\text{Rn}$ , est l'isotope utilisé en spectrométrie  $\gamma$  pour caractériser le  $^{238}\text{U}$ . Cette étude se concentre exclusivement sur le radon-222.

Nom	Isotope	Période	Constante de désintégration ( $\text{s}^{-1}$ )	Énergie (MeV) de la désintégration $\alpha$
Radon	$^{222}\text{Rn}$	3,82 jours	$2,11 \cdot 10^{-6}$	5,5
Thoron	$^{220}\text{Rn}$	54,2 secondes	$1,28 \cdot 10^{-2}$	6,3
Actinon	$^{219}\text{Rn}$	3,92 secondes	$1,77 \cdot 10^{-1}$	6,8

Tableau 3.1 – Caractéristiques des isotopes du radon.

Afin de déterminer l'influence de ce paramètre sur le signal de spectrométrie gamma aéroportée et de mesurer les profils atmosphériques de radon, plusieurs détecteurs de radon ont été mis en place sur le site environnemental choisi pour cette étude.

### 3.1.2 La détection des rayonnements ionisants de type $\alpha$

La détection du rayonnement  $\alpha$  est très spécifique car les particules  $\alpha$  ne parcourent que quelques centimètres dans l'air. Elles déposent toute leur énergie le long de courts trajets rectilignes.

La technique de mesure utilisée est celle des **chambres d'ionisation**. Elle se base sur le caractère ionisant du rayonnement pénétrant dans le volume de mesure. En effet, chaque particule  $\alpha$  crée, lors de son parcours dans le volume de détection, des paires d'ions qui, sous l'effet d'un champ électrique, produisent un courant d'ionisation. Par exemple, dans le cas des particules  $\alpha$  du radon-222 dont l'énergie est de 5,5 MeV, il y a formation d'environ  $1,6 \cdot 10^5$  paires d'ions par atome de radon-222 présent. Ce courant d'ionisation, bien que très faible, est mesurable et va être accru par l'intermédiaire d'un amplificateur et produire un signal électrique.

La chambre d'ionisation est une enceinte métallique comprenant une anode et une cathode maintenues à une tension constante (Figure 3.2). Deux techniques d'échantillonnage pour le renouvellement de l'air dans la chambre sont possibles : le pompage du volume d'air à analyser dans la chambre et la diffusion simple à l'intérieur du

volume d'air. À l'entrée de la chambre de mesure, un filtre en fibre de verre bloque les descendants *solides* du radon. La réponse de la chambre d'ionisation est proportionnelle au nombre d'atomes de radon présents dans le volume de détection dans lequel circule l'air prélevé.

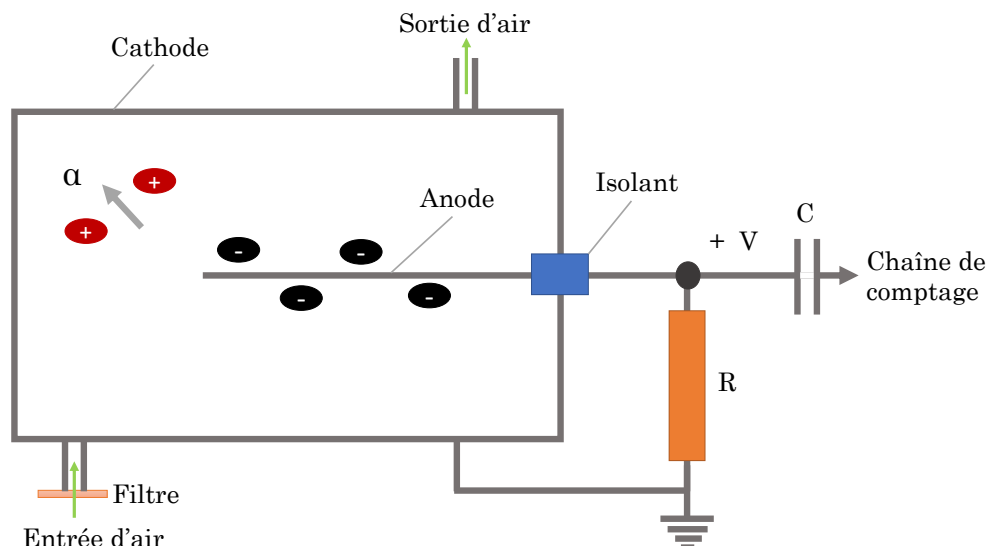


Figure 3.2 – Schéma de principe d'une chambre d'ionisation [Demongeot, 1997].

Lors de cette expérience, l'échantillonnage est effectué de façon continue par ionisation de l'air. L'analyse simultanée, au cours de l'acquisition, permet ainsi d'enregistrer les variations temporelles de l'activité volumique.

### Les systèmes de détection AlphaGUARD®

La mesure de l'activité volumique dans l'air du radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) exprimée en  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  est donc réalisée par spectrométrie  $\alpha$ . Pour des suivis ponctuels tels que la mesure de flux ou en continu comme le suivi du radon à l'intérieur d'un bâtiment, les détecteurs de radon AlphaGUARD® qui répondent aux exigences de la norme AFNOR NF M60-767 sont utilisés (Figure 3.3). Le choix s'est donc porté sur ces systèmes de mesure pour suivre l'évolution temporelle du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique.



Figure 3.3 – Moniteurs de radon AlphaGUARD® utilisés dans cette expérience.

Ces instruments sont calibrés en usine lors de l'achat et cette calibration peut être conservée pendant plusieurs années. Elle est régulièrement vérifiée par inter-comparaison entre plusieurs instruments.

### 3.1.3 Le bruit de fond instrumental des moniteurs

Une caractérisation du bruit de fond des détecteurs à l'origine des mesures a été effectuée. En effet, chaque appareil et ses composants peuvent être à l'origine d'un biais de mesure, par surestimation. Au sein de la chambre d'ionisation des détecteurs de radon AlphaGUARD<sup>®</sup>, des descendants à vie longue du radon sont à l'origine d'un bruit de fond qu'il est nécessaire de connaître. Cette perturbation connue, le réajustement de la mesure enregistrée dans les conditions quatre détecteurs de radon installés sur le site dans le cadre de ce sujet de thèse a été réalisée.

Pour effectuer cette expérience, il est nécessaire d'éliminer la contribution du radon-222 présent dans l'atmosphère de celle du détecteur. Dès lors, en injectant un flux d'azote en continu dans le détecteur, il est possible d'évacuer l'air présent et l'ensemble des descendants à vie courte du <sup>222</sup>Rn. Il est indispensable que la mesure de bruit de fond dure trois heures à minima couvrant leur temps de vie dans l'air. Le temps moyen nécessaire pour la mesure de bruit de fond total approche ici les 150 heures afin d'avoir une bonne estimation statistique du bruit de fond de chaque détecteur. Une longue acquisition permet d'augmenter la précision des mesures, précision nécessaire pour des mesures environnementales à faible niveau.

#### La mesure de bruit de fond

Trois cycles de mesure de bruit de fond ont été réalisés. Sur les deux premiers cycles, les trois détecteurs étaient reliés en série les uns aux autres par des tubes en plastique de diamètre 1 cm, connectés à une bouteille d'azote, avec un flux injecté de  $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  (Figure 3.4). Lors du troisième cycle de mesure, un quatrième moniteur de radon qui restera dans le laboratoire pour d'autres expérimentations a également été relié afin d'obtenir une mesure de bruit de fond (BDF) pour ce détecteur.

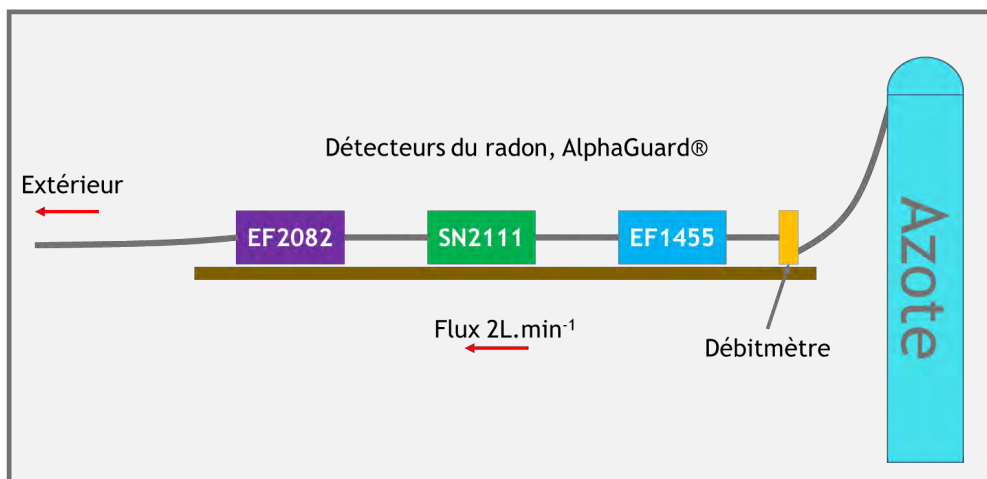


Figure 3.4 – Protocole de mesure des bruits de fond instrumentaux des détecteurs radon. Un débit d'azote de  $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  est injecté dans les chambres d'ionisation des détecteurs connectés en série. En tout, 233 heures de mesure ont été réalisées.

La première mesure de bruit de fond a été réalisée entre le 10 Septembre 2018 à 13h00 et le 13 Septembre 2018 à 17h00. Le deuxième cycle a lieu du 24 Septembre 2018 à 13h00 au 28 Septembre à 11h00. La troisième mesure s'est déroulée du 02

Octobre 2018 à 10h00 au 03 Octobre 2018 à 01h00. Dans toutes ces configurations, le temps d'intégration de la mesure est d'une heure pleine.

Les mesures de bruit de fond sont représentées sur la figure 3.5 qui couvre la période du 07 Septembre 2018 à 08h00 au 04 Octobre 2018 à 18h00. Cette chronique temporelle permet de recouvrir les trois cycles de mesure de bruit de fond et celles des périodes intermédiaires où les mesures se font sur l'air ambiant. Une meilleure appréhension des résultats sur les mesures de bruit de fond est rendue possible grâce à la présence de ces périodes de mesure avec air ambiant.

### Les résultats de la mesure de bruit de fond

Le premier graphique de la figure 3.5 montre l'évolution de la mesure du radon par les trois détecteurs exprimée en  $\text{Bq.m}^{-3}$ . Ils présentent une réponse instrumentale identique sur les mesures de bruit de fond ou les mesures faites en air ambiant. Sur l'ensemble de la mesure, le détecteur EF1455 (bleu) montre une plus grande dispersion des mesures horaires par rapport aux autres détecteurs. Cette plus grande variabilité est liée au suivi de la qualité de la mesure et à l'âge des composants du détecteur. Ils peuvent se dégrader au cours du temps ou une persistance des descendants à vie longue du  $^{222}\text{Rn}$  est à signaler dans la chambre d'ionisation.

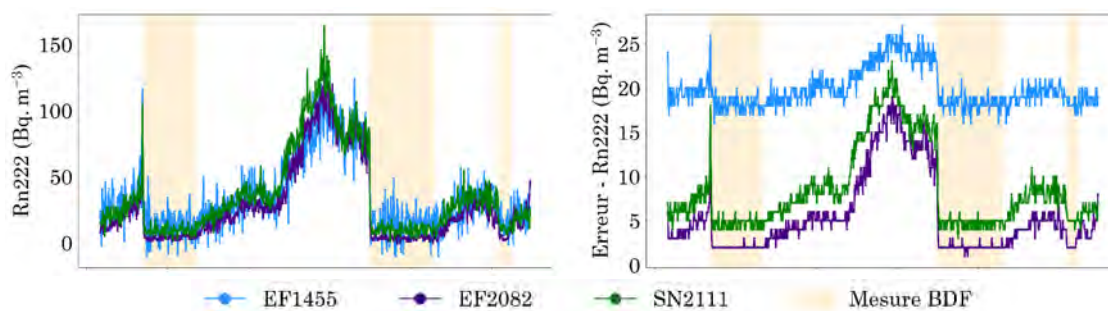


Figure 3.5 – Représentation de l'évolution des mesures de radon ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) et d'erreur sur la mesure de radon ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) pour la période du 07 Septembre 2018 à 08h00 au 04 Octobre 2018 à 18h00, pour les trois détecteurs de radon AlphaGUARD®. Les zones rosées correspondent aux périodes de mesure du bruit de fond de ces instruments.

Les trois détecteurs ont une réponse instrumentale identique sur les périodes d'injection de l'azote avec une baisse notable de la teneur en radon mesurée au moment de l'injection. Toutefois, une différence est visible pour les mesures opérées par le plus ancien détecteur, EF1455, qui présente le bruit de fond instrumental le plus élevé avec une valeur moyenne aux alentours de  $16\text{-}17 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour les trois cycles de mesure. Le détecteur EF2082 (violet) a les valeurs de bruit de fond les plus faibles avec un moyenne quantifiable proche de  $4 \text{ Bq.m}^{-3}$  au regard des trois cycles.

Le second graphique de la figure 3.5 montre les erreurs de mesure du radon en  $\text{Bq.m}^{-3}$  en fonction du temps. Les mêmes observations sont faites que précédemment. La grande variabilité inter-mesures du détecteur EF1455 se caractérise ici par une gamme d'erreur plus importante que pour les deux autres détecteurs :  $15\text{-}25 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour EF1455,  $5\text{-}20 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour SN2111 et  $2\text{-}15 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour EF2082.

### 3.1. Le radon-222 : un suivi du bruit de fond atmosphérique

Les trois périodes de mesures de bruit de fond ont été réalisées sur 76 acquisitions pour la première, 91 pour la deuxième et 15 pour la troisième. L'incertitude sur la valeur moyenne des mesures de radon,  $^{222}\text{Rn}$ , est déterminée par le rapport entre l'écart-type et la racine carrée du nombre de mesures. La valeur moyenne observée pour l'activité en  $^{222}\text{Rn}$ , son incertitude associée  $\Delta_{^{222}\text{Rn}}$  et l'écart-type moyen  $\sigma_{^{222}\text{Rn}}$  sont regroupés au sein du tableau 3.2.

<b>EF1455</b>	Unité	BDF 1	BDF 2	BDF 3	Moyenne
$^{222}\text{Rn}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	16,37	17,15	16,80	16,77
$\sigma_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	11,37	11,43	10,67	11,16
$\Delta_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	1,30	1,18	2,76	1,44
<b>EF2082</b>	Unité	BDF 1	BDF 2	BDF 3	Moyenne
$^{222}\text{Rn}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	4,00	3,76	4,07	3,94
$\sigma_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	1,68	1,92	2,11	1,90
$\Delta_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	0,46	0,20	0,54	0,24
<b>SN2111</b>	Unité	BDF 1	BDF 2	BDF 3	Moyenne
$^{222}\text{Rn}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	9,32	10,06	11,13	10,17
$\sigma_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	3,45	3,45	2,73	3,21
$\Delta_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	0,39	0,36	0,70	0,41
<b>EF1456</b>	Unité	BDF 1	BDF 2	BDF 3	Moyenne
$^{222}\text{Rn}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	-	-	55,40	55,40
$\sigma_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	-	-	8,20	8,20
$\Delta_{^{222}\text{Rn}}$	$\text{Bq.m}^{-3}$	-	-	2,12	2,12

Tableau 3.2 – Activité, écart-type ( $\sigma$ ) et incertitude ( $\Delta$ ) moyens mesurés et calculés de chaque instrument lors des trois mesures de bruit de fond.

L'instrument EF1455 a la valeur d'écart-type la plus élevée des trois détecteurs utilisés au cours de cette étude. L'instrument EF2082 se caractérise par un bruit de fond et une incertitude les plus faibles. Le détecteur SN2111 montre un bruit de fond intermédiaire entre ceux mesurés pour EF1455 et EF2082. Le moniteur EF1456 stationné en laboratoire dispose de la mesure de bruit de fond la plus élevée et avec une dispersion autour de la moyenne relativement limitée.

Ainsi, le réajustement de la mesure de radon enregistrée dans les conditions d'acquisition environnementales par soustraction de la valeur du bruit de fond instrumental est de :

- $16,77 \pm 1,44 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour le détecteur EF1455,
- $3,94 \pm 0,24 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour l'instrument EF2082,
- $10,17 \pm 0,41 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour le moniteur SN2111.



Une fois ces valeurs de bruit de fond retranchées des données enregistrées par les détecteurs de radon, les mesures de radon atmosphériques, par exemple, peuvent être l'objet d'analyse détaillée sur la variation temporelle des activités de radon observées sur le site.

### L'étalonnage des instruments

Suite aux mesures de bruit de fond des détecteurs de radon, un étalonnage de la réponse instrumentale de chaque moniteur a été effectuée. Les instruments ont été soumis aux mêmes conditions de mesure et au même moment permettant une inter-comparaison des résultats enregistrés par chaque détecteur. L'objectif de cet étalonnage est de vérifier que tous les AlphaGUARD® qui sont déployés sur le site P2OA-CRA ont la même réponse instrumentale. Ainsi, les variations observées lors d'une mesure environnementale ne seraient pas liées à un problème interne à l'instrument.

Toutes les mesures réalisées dans le cadre de ce protocole d'étalonnage l'ont été dans un environnement hermétique et contrôlé, une enceinte d'un volume connu de 290 L. Une fois fermé, ce dispositif ne permet pas au radon-222 présent au moment de la fermeture de l'enceinte de s'en échapper et le radon-222 à l'extérieur ne peut y pénétrer. Le taux de fuite du radon-222 de l'enceinte a été quantifié à de nombreuses reprises préalablement à ces travaux, et se caractérise par une valeur d'environ  $3,0 \pm 0,3$  %. Dans le cadre du protocole de mesures de radon-222 inter-comparatives, deux expériences sont menées avec le dispositif mis en place et présenté sur la figure 3.6 :

- Inter-comparaison du **bruit de fond de l'enceinte hermétique fermée**. En effet, l'air qui est présent dans l'enceinte au moment de la fermeture contient peu de radon à l'origine mais du radon est produit à l'intérieur de l'enceinte par les parois. L'objectif de cette étape est de s'assurer que le bruit de fond inhérent à ce radon produit dans l'enceinte à chaque mesure est constant dans le temps garantissant une valeur fixe de bruit de fond de l'enceinte. Ce radon est un perturbateur de la mesure et doit donc être quantifié pour être soustrait aux mesures d'inter-comparaison suivantes.
- Inter-comparaison de la réponse instrumentale des détecteurs à la **présence d'une source radioactive de radium** ( $^{226}\text{Ra}$ ). Cette source émettrice de radon ( $^{222}\text{Rn}$ ), d'activité connue de 362 Bq et de facteur d'émanation de 0,89 au moment des mesures est placée dans l'enceinte hermétique en présence de tous les détecteurs de radon.

Pour chaque mesure, il est nécessaire d'attendre l'équilibre séculaire entre le radon  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants équivalent à une durée de 5 fois la période radioactive du radon (3,82 jours) soit un total de 21 jours.

Les quatre détecteurs de radon de type AlphaGUARD® sont placés dans l'enceinte de 290 L et connectés au réseau d'alimentation électrique par un système de connectiques nouvellement mis en place dans l'enceinte pendant ces travaux. Les détecteurs ne disposent, en effet, que d'une autonomie sur batterie d'environ 10 jours par détecteur or la durée de la mesure dans l'enceinte est de 21 jours minimum.

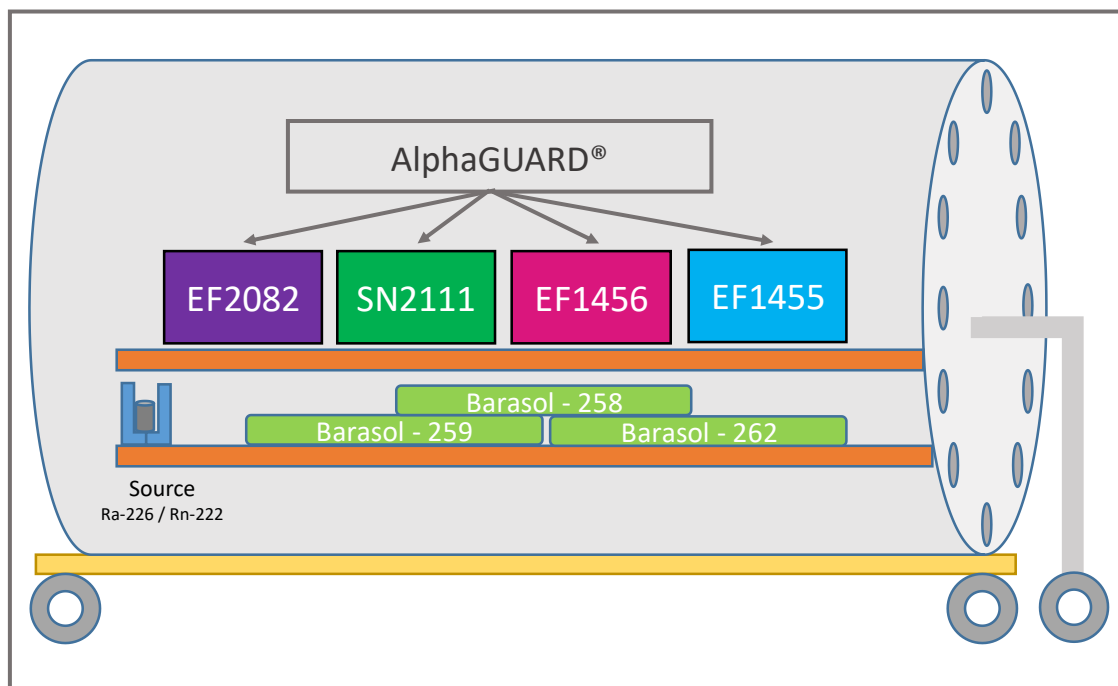


Figure 3.6 – Dispositif mis en place pour la calibration de l'ensemble des détecteurs de radon avant leur installation sur le site pilote. L'enceinte hermétique d'un volume de 290 L permet de contenir tous les instruments en même temps garantissant le protocole d'inter-comparaison voulu.

### Inter-comparaison de la mesure du bruit de fond de l'enceinte

Deux mesures inter-comparatives de bruit de fond de l'enceinte ont été effectuées sur une acquisition de 30 jours permettant d'obtenir 8 jours de mesure une fois que l'équilibre séculaire entre le radon et ses descendants est atteint. Les résultats pour l'ensemble des paramètres mesurés par un AlphaGUARD® lors de la première période expérimentale sont disponibles sur la figure 3.7.

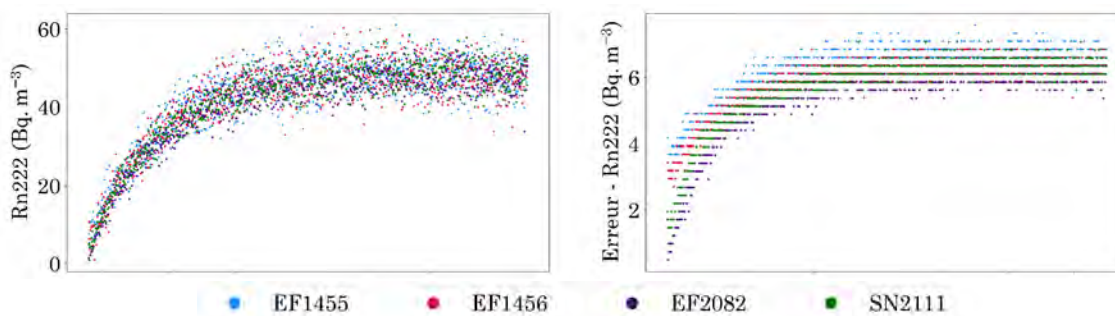


Figure 3.7 – Représentations des valeurs enregistrées par les détecteurs radon au cours de l'expérience d'inter-comparaison par mesure de bruit de fond en radon de l'enceinte hermétique pour chaque paramètre mesurable.

Le premier graphique présente l'activité de radon en Bq.m<sup>-3</sup> mesurée par chaque détecteur dans l'enceinte. Les bruits de fond de chaque détecteur de radon ont été soustraits aux mesures pour faciliter la lecture. Un palier caractérisant l'équilibre

séculaire est atteint 21 jours après le début de la mesure. Les quatre détecteurs ont une réponse instrumentale identique pour cette mesure de bruit de fond en radon dans l'enceinte. Toutes les courbes se sont stabilisées sur un palier d'environ  $45 \pm 2 \text{ Bq.m}^{-3}$  définissant la valeur de bruit de fond de radon dans l'enceinte. Cette valeur devra être soustraite lors de la mesure inter-comparative avec la source de radium  $^{226}\text{Ra}$  émettrice de radon  $^{222}\text{Rn}$ . Les erreurs sur la concentration en radon mesurées par les détecteurs sont différentes entre les quatre détecteurs. Les moniteurs EF1455 et EF1456 qui sont les plus anciens de la flotte d'instruments ont des valeurs supérieures à celles des détecteurs plus récents, EF2082 et SN2111.

Les résultats de la seconde mesure de bruit de fond de l'enceinte sont tous identiques à ceux obtenus lors de la première mesure. La mesure est donc répétable permettant de conclure sur la valeur de bruit de fond en radon et ses descendants dans l'enceinte de  $45 \pm 2 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Le taux de fuite de l'enceinte est considéré comme négligeable puisqu'aucune fuite n'a été mise en évidence lors de la mesure du taux de fuite de l'enceinte (Annexe F).

### Inter-comparaison de la mesure de $^{222}\text{Rn}$ avec la source radium $^{226}\text{Ra}$

En ce qui concerne l'expérience d'inter-comparaison des mesures enregistrées par les détecteurs en présence d'une source de radium ( $^{226}\text{Ra}$ ) émettrice de radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) dans l'enceinte hermétique, deux mesures de 22 jours ont été réalisées. Connaissant l'activité de la source (362 Bq) et son émanation (0,89) pour une température de  $21^\circ\text{C}$  lors de son utilisation pour les expérimentations au sein de l'enceinte de volume connu de ( $0,290 \text{ m}^3$ ), la concentration attendue en radon dans l'enceinte après équilibre séculaire qui doit être mesurée par les détecteurs est de  $1111 \text{ Bq.m}^{-3}$ .

Le premier graphique de la figure 3.8 montre l'activité de radon en  $\text{Bq.m}^{-3}$  enregistrée par chaque détecteur lors de la première expérience menée. Les bruits de fond de chaque détecteur de radon ont été soustraits aux mesures tout comme le bruit de fond en radon de l'enceinte préalablement déterminé et commun à tous les détecteurs ( $45 \text{ Bq.m}^{-3}$ ). Les quatre détecteurs présentent la même réponse instrumentale avec des profils de courbes similaires et un palier marqueur de l'équilibre séculaire atteint au bout de 19 jours. Toutes les courbes se sont stabilisées sur un palier d'environ  $1122 \pm 3,5 \text{ Bq.m}^{-3}$ .

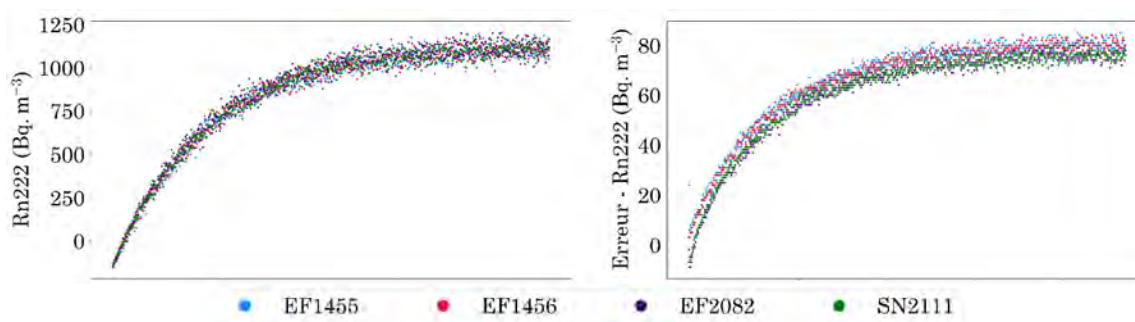


Figure 3.8 – Représentations des valeurs enregistrées par les détecteurs radon au cours de l'expérience d'inter-comparaison avec la source radium/radon ( $^{226}\text{Ra}/^{222}\text{Rn}$ ) pour chaque paramètre mesurable. Tous les bruits de fond ont été soustraits de la mesure de radon.

Le détail des mesures obtenues pour les deux expérimentations est donné dans le tableau 3.3. Tout d'abord, toutes les mesures à l'équilibre séculaire tendent vers la valeur de l'activité théorique de radon calculée à partir de la source de radium émettrice de radon dans un volume de 0,290 m<sup>3</sup> à savoir 1111 Bq.m<sup>-3</sup>. Les activités mesurées sont similaires d'une expérience à une autre pour les quatre détecteurs avec une variation sur les mesures inférieures à 2%. L'inter-comparaison des mesures d'activité de radon-222 montre également que les quatre détecteurs présentent la même réponse instrumentale à cette source de radium émettrice de radon en environnement clos. La validité de cette inter-comparaison montre que les détecteurs de radon peuvent être déployés sur le site pilote en assurant des valeurs acquises du signal radon-222 mesuré réellement comparables entre les détecteurs.

Détecteur	Activité radon mesurée (Bq.m <sup>-3</sup> )	Activité radon source (Bq.m <sup>-3</sup> )	Résidu %
EF1455	1120,3 ± 4,5	1111,00	+0,84
EF1456	1155,4 ± 5,6	1111,00	+4,00
EF2082	1126,1 ± 4,4	1111,00	+1,36
SN2111	1121,8 ± 4,7	1111,00	+0,98
EF1455	1121,3 ± 4,9	1111,00	+0,93
EF1456	1123,5 ± 5,1	1111,00	+1,12
EF2082	1127,1 ± 5,5	1111,00	+1,45
SN2111	1122,8 ± 4,8	1111,00	+1,06

Tableau 3.3 – Activité en radon mesurée par les détecteurs lors des deux expérimentations menées avec présence de la source de radium dans l'enceinte hermétique. Le résidu est exprimé entre l'activité en radon mesurée et celle déterminée préalablement pour la source radioactive de radium. Tous les bruits de fond des dispositifs ont été soustraits aux mesures. Le facteur d'émanation de la source est de 0,89 pour une température de 21°C.

Les résidus entre les activités volumiques de <sup>222</sup>Rn mesurée et théorique (source) sont toujours positifs. La température moyenne dans l'enceinte pendant les deux mesures d'inter-comparaison était de 24°C soit 3°C de plus que celle associée au facteur d'émanation de la source. L'émanation augmente avec la température [Collé and Hutchinson, 1993] et peut donc expliquer ces résidus positifs.

La réponse similaire en activité radon des quatre détecteurs montrent que les données acquises sont de qualité. Elles valident le fait que les données mesurées en milieu environnemental non contrôlées pourront être comparées entre elles. Les variations sur un profil de radon seront imputables à une différence d'activité du radon à des hauteurs variables plutôt qu'à des différences de réponse instrumentale.

La suite de ce chapitre se consacre aux mesures de précipitations et de teneur en eau volumique dans les sols, deux autres paramètres environnementaux dont l'influence sur le signal  $\gamma$  est connue.

## 3.2 Les précipitations : mesures d'intensité de pluie

Au cours des épisodes de précipitations, le rabattement des aérosols atmosphériques par dépôt humide s'ajoute au dépôt sec. Le lessivage atmosphérique va rabattre à la fois la fraction attachée et la fraction libre et peut donc conduire à une augmentation du signal mesuré de  $^{214}\text{Bi}$  par un dépôt surfacique des aérosols atmosphériques perturbant ainsi la mesure environnementale.

Pour que ces événements de pluie soient qualifiés et quantifiés, l'étude s'est basée sur deux pluviomètres à augets basculants installés depuis quelques années sur le site du P2OA-CRA. Le premier, ARG100, est installé à environ 2 mètres du pied de la tour instrumentée (Figure 3.9 (a)) et le deuxième fait partie d'une station complète (StatIC) du réseau de l'association InfoClimat (Figure 3.9 (b)) et distant de 50 mètres du mât météorologique.

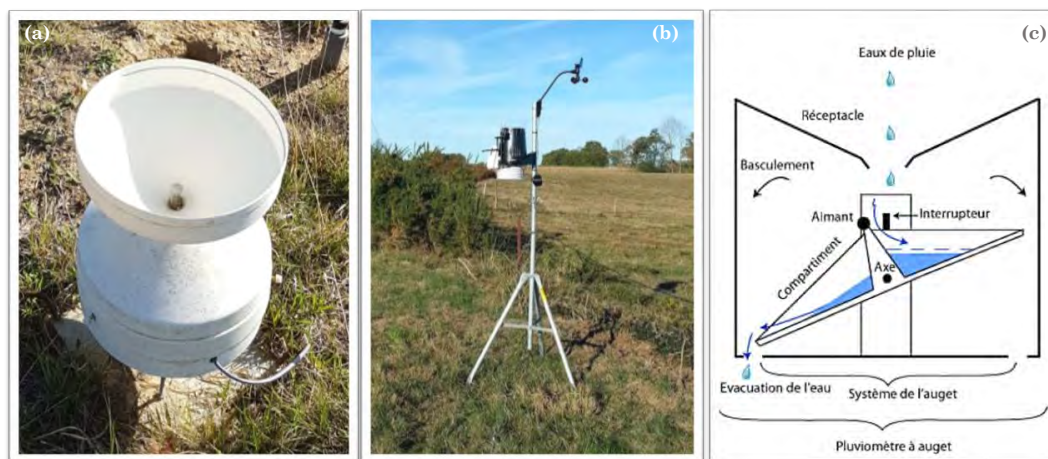


Figure 3.9 – Photographies représentant le pluviomètre à auget installé au pied du mât instrumenté et relié au PC d'acquisition du P2OA-CRA (a) et celui de la station InfoClimat (b). Le pluviomètre a une sensibilité à une pluie d'intensité minimale de 0,2 mm. En-dessous de ce seuil, l'épisode de pluie n'est pas détecté par le pluviomètre. Crédit : [www.infoclimat.fr](http://www.infoclimat.fr). (c) Schéma de principe du pluviomètre à augets.

Le pluviomètre, sous forme rectangulaire (le plus souvent), comporte à son sommet un entonnoir pour recueillir l'eau de pluie. À l'intérieur du récipient rectangulaire se trouvent deux augets. Ces augets se présentent sous la forme de deux petits récipients qui basculent sous le poids de l'eau. Dès que l'un d'eux bascule, l'autre auget prend immédiatement la place. L'eau renversée par l'auget s'écoule vers le fond du récipient (Figure 3.9).

En général, tous les pluviomètres à augets n'ont pas les mêmes capacités. Pour mesurer la quantité d'eau tombée, les appareils connaissant la quantité d'eau qu'il faut à un auget pour se remplir, peuvent déterminer la hauteur de l'eau dans le récipient, en fonction du nombre de fois qu'un auget a basculé. Dans le cas des deux pluviomètres, cette hauteur d'eau est incrémentée à chaque basculement d'un auget d'une valeur de 0,2 mm. L'avantage de ce pluviomètre est sa capacité à se vider lui-même de l'eau. Il ne garde pas l'eau dans son réservoir puisque les données sont déjà prises.



Le principal défaut des pluviomètres est leur résolution en intensité de pluie. Un épisode pluvieux est pris en compte dès lors que son intensité permet de remplir un auget de contenance 0,2 mm. De ce fait, des pluies fines observées sur des temps courts ne pourront être détectées par le pluviomètre or elles impliquent un rabattement des aérosols atmosphériques avec contribution d'un dépôt surfacique sur la mesure de  $^{214}\text{Bi}$ . Il faudra donc prendre en compte cette limite de détection pour ne pas imputer une variation du signal mesuré de  $^{214}\text{Bi}$  à un autre phénomène. Le suivi des précipitations par deux pluviomètres assure de détecter le maximum d'événements pluvieux. La fréquence de mesures est de 0,1 Hz.

## 3.3 Le suivi de l'humidité volumique du sol

Depuis plusieurs décennies, des techniques de mesure automatique de l'humidité des sols ont été développées qu'il s'agisse de matériel destiné à une expérimentation en laboratoire tel que les colonnes de sol remanié ou pour suivre le transfert d'eau et de soluté, ou des suivis *in situ* à l'échelle du  $\text{m}^2$  ou du bassin versant. Dans le cadre de la mise en place d'une méthodologie du suivi des radionucléides par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour une application environnementale sur un site, l'*humidité des sols* doit nécessairement être connue. En effet, le phénomène d'atténuation des rayons  $\gamma$  avec des teneurs en eau volumique élevées est bien documenté (Chapitre 6). De ce fait, plusieurs méthodes de détermination *in situ* de ce paramètre sont utilisées sur le site pilote. Elles sont présentées dans la suite de cette section.

### L'humidité du sol

L'humidité volumique du sol est l'expression conventionnelle du contenu en eau du sol exprimée en % vol. ou  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$  c'est-à-dire par unité de volume géométrique. Sa gamme de variation s'étend de l'humidité résiduelle et celle à saturation. En pourcentage volumique ( $\% \text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ), les valeurs varient entre 0 et 50%, pouvant atteindre 60% dans le cas de certains sol argileux. C'est selon cette unité de mesure que toutes les valeurs d'humidité du sol sont exprimées dans ces travaux, à moins d'une mention contraire.

#### 3.3.1 La teneur en eau pondérale

Elle peut être réalisée en même temps que l'estimation de la masse volumique apparente du sol. En effet, la mesure consiste à prélever un échantillon de sol qui est pesé une première fois, alors qu'il est humide, dans un délai très court après son échantillonnage. Après un séchage à  $105^\circ\text{C}$  pendant 48 heures, l'échantillon est à nouveau pesé. Le rapport (%) entre les masses d'eau évaporée et sèches permet d'estimer la teneur en eau pondérale des sols.

Il s'agit d'une méthode directe de mesure très fiable mais destructive, comme abordée dans la section précédente, car un prélèvement de sol est nécessaire pour chaque mesure. Une seconde contrainte est l'obtention des résultats avec un délai de



48 heures. Les données ne peuvent fournir une mesure en temps réel. La précision de la détermination de la teneur en eau volumique par cette méthode est liée à l'incertitude sur la mesure de la densité apparente du sol. Une mesure bien opérée de la teneur en eau volumique du sol permet d'apprécier l'état de saturation et la porosité du sol. La **mesure est ponctuelle** et locale ce qui rend difficile une spatialisaiton des mesures sans prélever un nombre conséquent d'échantillons nécessitant un traitement long et fastidieux en laboratoire. Le suivi dans le temps par cette méthode est par définition lourd car il nécessite un passage régulier voire journalier sur le terrain en fonction du protocole expérimental mis en place.

Des mesures de la teneur en eau pondérale ont été réalisées uniquement dans un but comparatif et de validation aux mesures opérées par des sondes d'humidité et celles réalisées à l'échelle kilométrique par satellite. Les mesures ponctuelles de teneur en eau pondérale peuvent être appliquées à l'étude environnementale de site survolé lors d'une campagne de mesure  $\gamma$  aéroportée. Toutefois, les valeurs obtenues ne sont le reflet que du type et de la structure de sol investigué (porosité, perméabilité, densité apparente). Si le site présente de nombreuses variations latérales et en profondeur des sols, il faudra donc prévoir un nombre conséquent d'échantillons de sol pour lesquels une mesure de teneur en eau devra être effectuée.

### 3.3.2 La réflectométrie dans le domaine temporel : TDR, une échelle spatiale métrique :

Un dispositif complet de suivi de l'humidité du sol qui se compose de 9 sondes ThetaProbe® *tri-tiges* (Figure 3.10) utilisant la réflectométrie dans le domaine temporel permet de suivre la teneur en eau volumique. Les sondes *tri-tiges* conduisent à une définition du volume de mesure intégré plus précis. Elles s'utilisent aussi bien en surface qu'en profondeur grâce à l'ajout de tubes d'extension (50 ou 100 cm) facilitant la mise en place et l'extraction des sondes déployées en profondeur. Ces sondes sont reliées à une centrale d'acquisition constituée d'un data-logger protégé par un coffre métallique étanche, d'une alimentation électrique et d'un système de communication RS232 qui peut être connecté à un PC d'acquisition.

Figure 3.10 – Sonde TDR de type ThetaProbe® utilisée pour mesurer la teneur en eau volumique du sol du site pilote. Source : Eijelkamp, SOil and Water.



### Le principe de la mesure

Le dispositif TDR se compose d'un oscilloscope couplé à un générateur d'impulsions, relié via un câble co-axial et une tête de raccordement à une ligne de transmission de longueur variable qui constitue la sonde. Le principe de la mesure de la **teneur en eau volumique** est basé sur l'exploitation du contraste de permittivité électrique apparente entre l'eau et le milieu [Thiébeau and Bertrand, 2016]. Pour accéder à la permittivité électrique apparente du milieu  $\kappa$ , il ne s'agit pas de mesurer la capacité du sol mais la vitesse de propagation  $\nu$  de l'impulsion électrique délivrée par le générateur dans le sol selon la relation :

$$\nu = \frac{c}{\sqrt{\kappa}} \quad (3.1)$$

avec  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide ( $2,998 \times 10^8 \text{ m.s}^{-1}$ ).

La permittivité peut être déterminée en mesurant le temps de propagation  $\Delta_t$  entre les deux extrémités de la sonde de longueur  $L$  placée dans le sol par l'intermédiaire de l'équation suivante :

$$\kappa = \left( \frac{c \times \Delta_t}{L} \right)^2 \quad (3.2)$$

La conversion de la permittivité en teneur en eau volumique peut être réalisée par la relation polynomiale empirique de Topp [Topp et al., 1980] considérée comme universelle mais qui présente des limites d'utilisation pour les sols riches en argile [Zakri, 1997].

Un certain nombre de paramètres est susceptible de limiter la validité de la loi de Topp et donc restreindre son utilisation. Il est donc préférable de procéder à des mesures de calibration des sondes TDR pour chaque type de sol rencontré.

### La calibration des sondes TDR

Une calibration spécifique aux sols étudiés a été réalisée avant l'installation des sondes de suivi de l'humidité du sol sur le site du P2OA-CRA. Le protocole mis en œuvre porte sur :

- Une mesure d'humidité au sein d'un volume d'eau. L'objectif est de s'assurer que les sondes ont une réponse instrumentale normale et non biaisée avec une valeur affichée de 100%. L'inter-comparaison a montré que les 9 sondes ont mesuré un signal avec 100% de teneur en eau volumique.
- Une utilisation de sols remaniés en laboratoire. Le sol est séché, tamisé puis recompacté de manière à avoir une densité apparente proche de celle mesurée *in situ* au sein d'un volume donnée. Par saturation progressive, des mesures TDR sont effectuées pour différentes humidités, connues par ailleurs *via* la pesée de l'échantillon. Cette méthode est limitée par le fait que les hétérogénéités de la structure du sol ne sont pas reproduites.

Cette méthode a été appliquée pour calibrer les 9 sondes avec des prélèvements de sol du site pilote. La compaction du sol remanié a été réalisée par une presse permettant d'obtenir un sol de densité apparente de  $1,20 \text{ g.cm}^{-3}$ , valeur mesurée sur le site pilote.

### 3.3.3 La mesure de l'humidité des sols par satellite, une échelle spatiale kilométrique

La télédétection est une approche particulièrement adaptée pour acquérir des informations concernant l'humidité et la température du sol à l'échelle globale. De nombreuses études ont montré que la **télédétection micro-ondes** était la méthode de mesure la plus appropriée [Njoku and Entekhabi, 1996, Jones et al., 2004]. Elle se base sur le fait que l'identification d'un corps et sa composition à distance *via* un capteur peut être réalisée à partir de sa signature spectrale, déterminée par la quantité d'ondes électromagnétiques que le corps réfléchit, transmet, absorbe ou émet.

#### Le principe de mesure de l'humidité du sol par micro-ondes passives

Les satellites dotés de capteurs micro-ondes mesurent les variations de la constante diélectrique  $\epsilon$  du milieu qui est reliée à l'humidité du sol. La mesure des variations du contenu en eau du sol ne se fait donc pas de manière directe [Wang and Schmugge, 1980]. En effet, la constante diélectrique est fortement dépendante de la teneur en eau du milieu ce qui fait qu'elle sera très variable d'un milieu à l'autre. Plus le sol est sec et plus les émissions de micro-ondes sont grandes. Inversement, plus il est humide, moins il contient d'énergie. Les mesures de ces radiations de micro-ondes permettent de déterminer le degré hydrique des sols. Dans le domaine des micro-ondes, le modèle semi-empirique proposé par Dobson [Dobson et al., 1985] a établi une relation entre la constante diélectrique et le contenu en eau du sol est linéaire excepté pour les faibles taux d'humidité du sol.

La bande de fréquence micro-onde passive utilisée pour la mesure des températures de brillance retranscrit les informations qui concernent la tranche de sol allant de la surface aux 5 premiers centimètres de profondeur. La profondeur de pénétration peut toutefois augmenter sensiblement avec l'assèchement des sols puisque la profondeur observée est fonction de la longueur d'onde (Cf. Annexe D).

L'émissivité reçue par un radiomètre est le produit des contributions et atténuations provenant des différentes couches traversées, qu'il s'agisse du sol, de la végétation ou de l'atmosphère. Chacun de ces facteurs peut avoir un biais sur la mesure, corrigé en un produit délivrable par le fournisseur de ces images satellites.

#### Le satellite SMAP - NASA

L'objectif de la mission SMAP (Soil Moisture Active-Passive) est de fournir à l'échelle globale des valeurs volumiques d'humidité du sol avec une précision de 4%  $m^3 \cdot m^{-3}$ . Un capteur radiométrique enregistre de manière passive les micro-ondes émises naturellement par la planète et contenant les informations sur les changements d'humidité des sols (Figure 3.11). Des données de haute résolution et de haute précision sont fournies par ces images satellites. En fonction du produit de données choisi, la résolution spatiale peut être de 9 kilomètres (radar) ou de 36 kilomètres (radiomètre). Une combinaison des données radar et radiométrique permet également d'obtenir une grille au sol d'humidité de résolution 9 kilomètres (Cf. Annexe G).

Les produits retenus de niveau 4 sont des produits de données à valeur ajoutée dérivés de modèles sur l'humidité du sol en surface et en zone racinaire. De nombreuses études ont été réalisées préalablement au lancement et après la mise en orbite du satellite SMAP afin d'établir, de calibrer et de valider des modèles à partir des données issues des capteurs du satellite [Bindlish et al., 2011, McNairn et al., 2015, Colliander et al., 2017]. Ces études indiquent que les produits de données sur l'humidité du sol fondés sur le radiomètre SMAP atteignent le rendement prévu de  $0,04 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ . Les produits issus de la combinaison des données du radar et du radiomètre sont également proches de ce rendement prévu de  $0,04 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ .

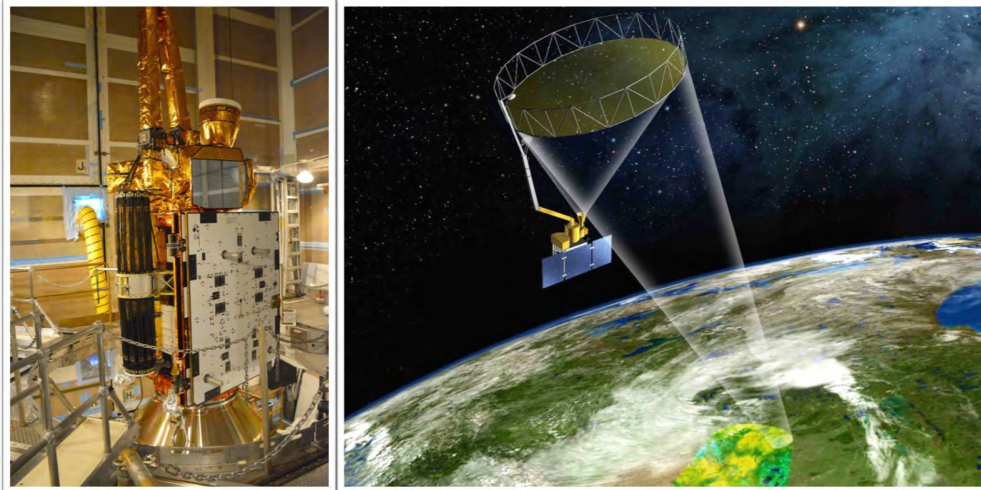


Figure 3.11 – La première photographie présente le satellite SMAP lors de son assemblage sur la fusée Delta 2 (Source : NASA Kennedy). Le grand réflecteur est roulé pour le lancement (tube noir). La partie blanche est l'arrière du panneau solaire. La deuxième image est une vue d'artiste du satellite SMAP (Crédit : NASA).

### L'utilisation des produits de SMAP

Les produits utilisés dans ces travaux sont les produits de niveau L4 extrapolés à partir des périodes temporelles où une valeur d'humidité est connue, tous les deux ou trois jours. Les données satellites sont estimées et mesurées sur une base journalière. Une comparaison des données de teneur en eau volumique entre les mesures **in situ** et issues de la télédétection pour la couche superficielle de sol sur le site P20A-CRA peut ainsi être réalisée. Lors de cette comparaison de données, il est nécessaire de prendre en compte le fait d'une différence possible de profondeur d'observation. Les sondes enregistrent des informations à une profondeur intégrée entre la surface et 6 cm de profondeur.

Les produits d'humidité du sol retranscrivent les taux et variations de l'humidité présente dans la strate de sol observée par les micro-ondes, environ 5 cm de profondeur depuis la surface du sol. Il faut donc s'assurer que les deux sources sont représentatives des mêmes conditions de surface. De plus, les données de télédétection intègrent une teneur en eau volumique sur des grilles de résolution 9 kilomètres. Cette résolution est très importante par rapport à celle de sondes insérées dans la surface du sol où la résolution spatiale est considérée comme métrique. La teneur en eau volumique déterminée sur la grille de résolution 9 kilomètres va être une valeur

composite représentative de tous les terrains présents sur cette grille y compris les surfaces imperméables et anthropiques. Ceci peut entraîner un biais de la valeur de l'humidité d'un sol naturel. La grille EASE-2 de résolution 9 kilomètres dispose d'environ 85 % de terrains naturels ou en activités agricoles ou pastorales. Les 15% restants concernent principalement le réseau routier, les bâtiments et quartiers résidentiels de la banlieue ouest de la ville de Lannemezan.

Les produits L4 permettent également d'avoir accès à une estimation de la teneur en eau volumique de la zone racinaire (0 - 10 cm) et celle d'un profil de sol d'un mètre de profondeur. Ce niveau de produit même s'il est déterminé à partir de traitements issus de modélisation peut être un bon indicateur de la teneur en eau volumique sur des profondeurs de sol plus importante que la couche superficielle (Cf. Annexe G). Les traitements et analyses réalisés sur ces produits sont également présentés en Annexe G.

# B

PARTIE

Mise en place du site pilote :  
entre instruments et études  
thématiques





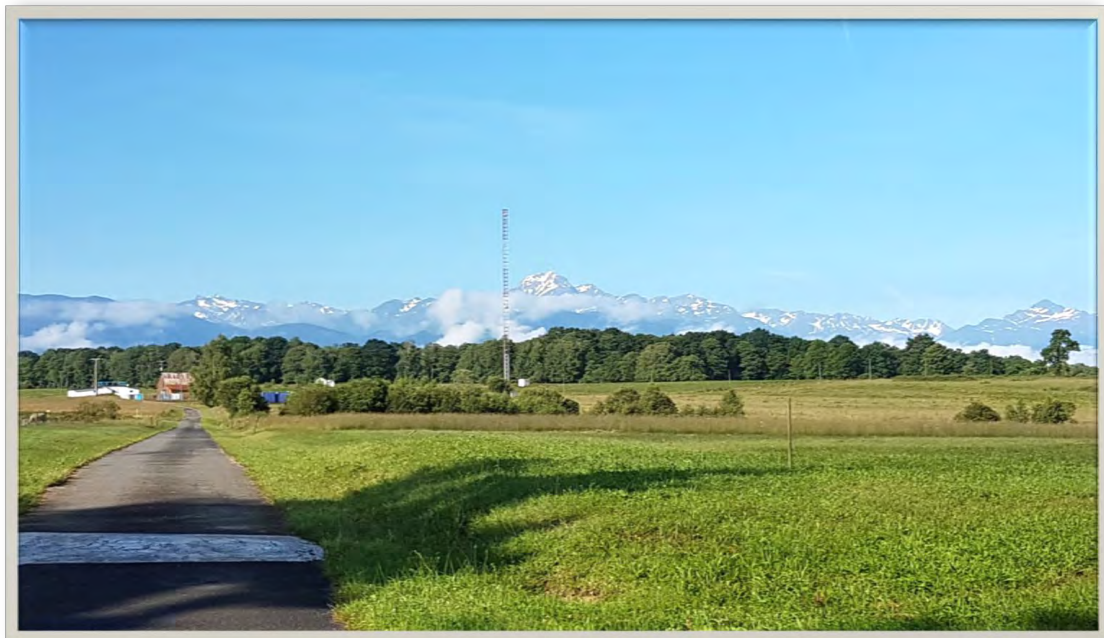
# 4

## Le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan : le site pilote

---

*"La terre promet au ciel que tous les secrets seront connus"*  
(Proverbe serbe).

---



## Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Le choix du site pilote : Le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan</b>	<b>123</b>
<b>4.2</b>	<b>Études contextuelles du site pilote</b>	<b>126</b>
4.2.1	Le contexte géographique	126
4.2.2	Le contexte topographique et géomorphologique	127
4.2.3	Le contexte géologique, un peu d'histoire	128
4.2.4	Le contexte pédologique et agricole	130
4.2.5	Les contextes climatique et météorologique	135
<b>4.3</b>	<b>Instrumentations déployées sur le mât</b>	<b>138</b>
4.3.1	La mesure de la radioactivité environnementale	140
4.3.2	Le suivi du compartiment atmosphérique	144
4.3.3	Le suivi du compartiment pédologique	148

---

## 4.1 Le choix du site pilote : Le Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan

L'IRAP fait partie d'un réseau de laboratoires aux thématiques diverses regroupés au sein d'une même entité, l'Observatoire Midi-Pyrénées (OMP). En plus de la structure toulousaine, l'OMP dispose de deux sites dans les Hautes-Pyrénées dévolus à l'observation de l'atmosphère : le Centre de Recherches Atmosphériques (P2OA-CRA), situé près de Lannemezan à 588 m d'altitude, et, distant de 28 kilomètres, le Pic du Midi de Bigorre (PDM) à 2877 m d'altitude. La plateforme P2OA a trois missions principales, l'observation continue de l'atmosphère, l'accueil de campagnes expérimentales et la formation sur le terrain [Gheusi, 2018]. Outre les observations et expérimentations menées indépendamment sur chaque site du fait de leurs potentialités propres, la configuration géographique des sites permet notamment, par l'exploitation de mesures coordonnées, l'étude spécifique des échanges de masses d'air et de constituants atmosphériques entre la plaine et la montagne.

Le choix du site pilote s'est porté sur le site du **Centre de Recherches Atmosphériques de Lannemezan**. Il s'agit du **site validant la quasi totalité des points soulevés dans le cahier des charges préalablement établi**.

Créé dans les années 60 à proximité de la commune de Lannemezan, le Centre de Recherches Atmosphériques rassemble des capacités d'observation et d'accueil de campagnes de mesures mais également toutes les caractéristiques d'un laboratoire de recherche. Le P2OA-CRA répond aux besoins d'expérimentation en milieu naturel exprimés dans le cahier des charges environnemental (Figure 4.1).

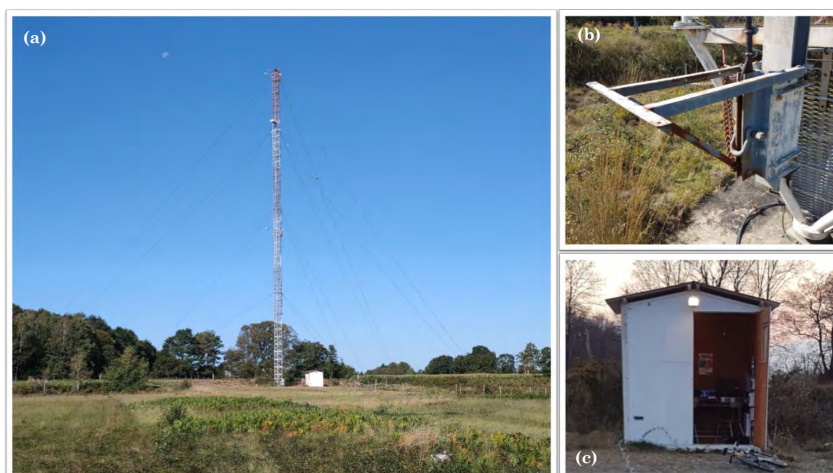


Figure 4.1 – Photographie de la topographie du Centre de Recherches Atmosphériques. La présence d'une tour instrumentée de 60 mètres est visible au centre de la photographie. Le Pic du Midi de Bigorre est situé en arrière plan.

Par sa **situation isolée, en terrain plat, ouvert et étendu**, le P2OA-CRA est propice à l'implantation de moyens spécifiques ou lourds. De plus, il est doté d'infrastructures lui permettant d'accueillir des campagnes expérimentales ponctuelles et répétées, des observations permanentes ou des développements instrumentaux sur toutes thématiques. Le site offre aussi une homogénéité suffisante pour conduire

des études de processus de couche de surface et couche limite, ainsi que des opérations de validation de capteurs spatiaux ou aéroportés. À plus large échelle, la proximité du massif pyrénéen, distant d'une vingtaine de kilomètres, génère des systèmes orographiques intéressants pour les études de dynamique atmosphérique, du cycle de l'eau et des nuages, et du transport de la pollution à différentes échelles.

### Le mât météorologique : une structure d'accueil toute désignée

Le P2OA-CRA dispose d'un mât météorologique instrumenté de 61,60 mètres installé dans les années 1980 (Figure 4.2). Cette tour dispose d'une ossature métallique et permet la mise en place de capteurs pour l'étude de la couche de surface des **paramètres météorologiques** comme la température de l'air, l'humidité relative, la pression atmosphérique, le vent en module et direction ainsi que la caractérisation de la turbulence à trois niveaux, 30, 45 et 60 mètres. Ce mât est donc employé dans les études de turbulence dans la couche de surface, des mesures long-terme des flux d'énergie et de dioxyde de carbone qui intègrent l'hétérogénéité du paysage mais aussi dans des campagnes de validation d'autres instruments de mesure. La stabilité du mât est assurée par quatre points d'ancrage au sol qui sont reliés à la tour par des câbles tendus (Figure 4.2).



Figure 4.2 – (a) Mât météorologique de 60 mètres instrumenté à plusieurs niveaux avec des capteurs de pression atmosphérique, de température de l'air et des profileurs de vent. (b) Plateforme élévatrice accrochée à la tour. (c) À proximité immédiate de la tour, une cabane accueillant l'ensemble de l'architecture informatique d'acquisition nécessaire au fonctionnement des instruments est présente. Les câbles d'ancrage dans le sol sont facilement identifiables sur la photographie.

Sur l'une des faces du mât, une plateforme d'accueil et de transport de matériel pour le travail en hauteur est fixée (Figure 4.2). **Pouvant atteindre la hauteur de 50 mètres et être stabilisée à ce niveau, la plateforme associée au mât est toute désignée pour cette étude.** Une sécurisation de l'installation doit toutefois être considérée. Ce dispositif remplit le cahier des charges instrumental ainsi que le cahier des charges environnemental avec une surface au sol relativement plane et non affectée par les perturbations anthropiques.

À proximité immédiate de la tour, une cabane accueillant l'ensemble de l'architecture informatique d'acquisition nécessaire au fonctionnement des instruments est présente (Figure 4.2). Elle permet la protection des connexions établies entre les instruments sur le mât ou à sa proximité avec les PC d'acquisition dédiés.

En résumé, le site du P2OA-CRA est tout désigné pour recevoir cette expérience de simulation d'un vol stationnaire de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée de hauteur 50 mètres avec un détecteur NaI(Tl) dans l'environnement grâce notamment à :

- Un mât instrumenté d'une hauteur d'environ 60 mètres,
- Une plateforme élévatrice supportant un poids maximum de 250 kg,
- Une assurance sur l'alimentation électrique, la connexion internet et donc l'accès à distance aux enregistrements de données et à la vérification du bon fonctionnement des détecteurs,
- Une structure d'accroche des coffrets contenant les moniteurs radon à différentes hauteurs,
- Une surface au sol ouverte et aplanie sans perturbation anthropique récente,
- Un survol en hélicoptère possible avec des contraintes limitées sur les zones urbanisées aux alentours.
- Un support technique humain et matériel sur place.

L'accord et le support technique du personnel du P2OA-CRA pour la mise en place de cette expérience sur la tour instrumentée ont fini de convaincre l'ensemble des intervenants de choisir ce site déjà très bien fournis en divers équipements et instruments avec une base de données météorologiques existante.

**Un nombre conséquent d'instruments déjà en place :** La tour instrumentée porte cette dénomination du fait du déploiement à différentes hauteurs d'un grand nombre d'instruments permettant le suivi de paramètres météorologiques indispensable dans le cadre d'études atmosphériques. Les variations des paramètres météorologiques au cours du temps font partie du champ d'influence de facteurs externes sur la mesure du signal  $\gamma$ . Ce réseau de mesures en continu sur le mât fournit des données en temps réel des paramètres météorologiques tels que :

- La pression atmosphérique avec une fréquence de mesure de 0,1 Hz aux hauteurs 2, 30 et 60 mètres (Baromètre Vaisala PTB101B)
- La température de l'air avec une fréquence de mesure de 0,1 Hz à 2 mètres et de 1 Hz à 15, 30, 45 et 61 mètres (Sonde Campbell HMP45),
- La direction et la vitesse horizontale et verticale du vent avec une fréquence de mesure de 0,1 Hz à 15 mètres et de 1 Hz à 45 mètres ainsi que les trois composantes du vent mesurées avec une fréquence de 10 Hz à 30 et 60 mètres,
- Le suivi de certains gaz atmosphériques présent à l'état de traces ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{CO}$ ) avec une fréquence de mesure de 1 Hz à 5, 30 et 60 mètres,
- Un pluviomètre à auget basculeur complète cette panoplie au niveau du pied du mât avec une fréquence de mesure de 1 Hz et une sensibilité de bascule de 0,2 mm permettant de mesurer l'intensité de tous les événements de pluie identifiable.

De plus, deux stations de mesure au sol sont également présentes sur le site. Ces stations gérées par Météo-France et l'association InfloClimat permettent d'avoir accès aux données de paramètres météorologiques déjà détaillés précédemment.



## 4.2 Études contextuelles du site pilote

La suite de ces travaux va se consacrer à une étude du site pilote sur différents contextes tels que les situations géographiques et géomorphologiques, les contextes géologiques et pédologiques ou encore la climatologie observée sur le site. En effet, pour permettre une analyse de l'influence des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré de ce site, il est primordial de bien comprendre toutes ces spécificités.

### 4.2.1 Le contexte géographique

Le site pilote choisi est donc la Plateforme Pyrénéenne d'Observation du Centre de Recherches Atmosphériques (P2OA-CRA) basé sur la commune de Campistrous (43° 07' 26"N, 0° 22' 44"E). Le P2OA-CRA est situé dans le département des Hautes-Pyrénées (65) à 2 kilomètres à l'Ouest de Lannemezan et à 35 kilomètres à l'Est de Tarbes dans le sud-ouest de la France (Figure 4.3). Le site est distant de 125 kilomètres de l'IRAP sur Toulouse (Sud-Ouest) et d'une vingtaine de kilomètres des Pyrénées.

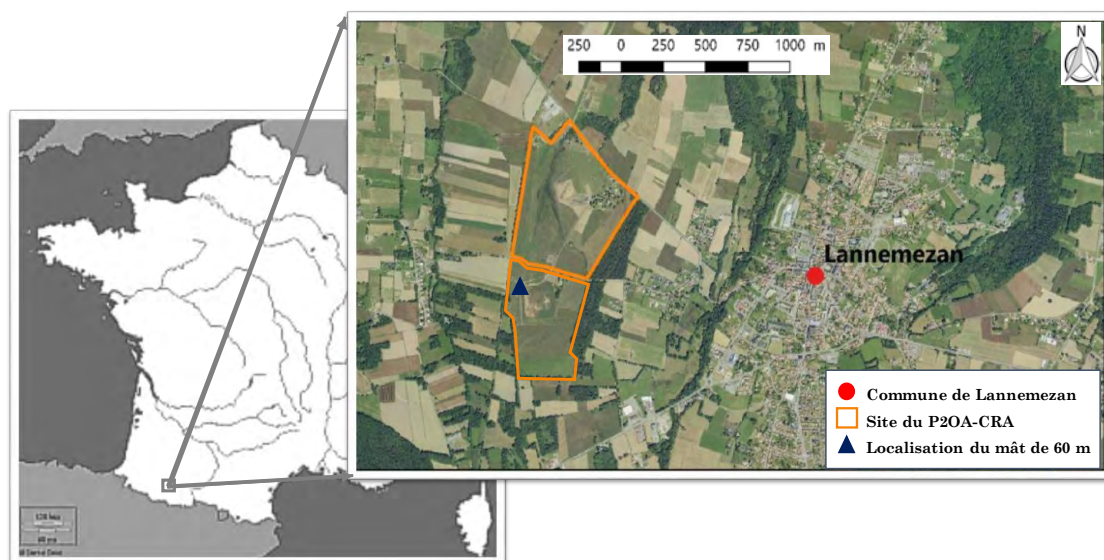


Figure 4.3 – Localisations du site du Centre de Recherches Atmosphériques (P2OA-CRA) et du mât météorologique de 60 mètres. Le fond de carte utilisé est une orthophotographie de résolution 1 mètre provenant de l'IGN (Géoportail).

Le P2OA-CRA est situé sur le plateau sédimentaire de Lannemezan en aval du piémont pyrénéen, à une altitude comprise entre 580 et 600 mètres au-dessus du niveau de la mer. Il couvre une superficie de 70 ha en topographie plane sur des prairies permanentes et temporaires. L'environnement proche du site pilote est peu urbanisé, avec à proximité la présence d'activités agricoles et pastorales. Des champs céréaliers et de maïs bordent le site sur ses frontières Ouest et Nord principalement alors que plusieurs forêts de feuillus et de conifères délimitent les frontières Est et Sud du site.

### 4.2.2 Le contexte topographique et géomorphologique

Le piémont des Pyrénées Centrales est essentiellement constitué par un vaste ensemble sédimentaire d'altitude modérée qui s'abaisse régulièrement vers le Nord : le plateau de Lannemezan.

Il s'agit d'un ancien cône de déjections de pente faible vers le Nord entaillé par un réseau hydrographique disposé en éventail vers le Nord. Les principales rivières de Gascogne prennent leur source sur le plateau de Lannemezan. La forme actuelle est donc celle d'un plateau composé d'unités géologiques déformées par la tectonique du front chevauchant nord pyrénéen formant des lanières sub-parallèles (digitations planes) disposées en éventail vers le Nord et l'Est séparées par des combes évasées s'approfondissant progressivement vers le Nord (Figure 4.4). L'altitude sur le plateau de Lannemezan est de l'ordre de 600 mètres (650 mètres en amont) et s'abaisse progressivement pour être de l'ordre de 500 mètres sur les digitations planes.

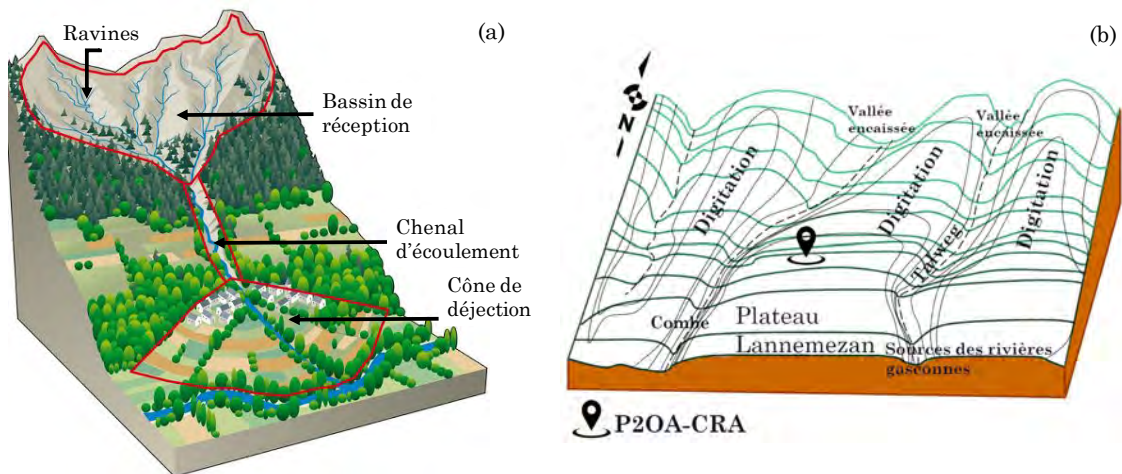


Figure 4.4 – Schémas représentant (a) la géomorphologie générale d'un cône de déjection et (b) du plateau de Lannemezan composé de longues digitations planes en éventails vers le Nord et l'Est. Des vallées encaissées (réseau hydrographique) segmentent ces digitations.

Le site du P2OA-CRA est localisé sur l'une de ces digitations planes du Nord du plateau de Lannemezan avec un gradient d'altitude marquée entre le Sud et le Nord d'environ 60 mètres comme présenté sur la figure 4.5 (a). Sur une échelle spatiale plus réduite centrée autour du mât instrumenté (Figure 4.5 (b)), ce gradient n'est que de 20 mètres. À proximité immédiate du mât, un talus d'environ 1 mètre de hauteur est à signaler sur une longueur d'environ 400 mètres caractérisé par un trait blanc sur la figure 4.5 (b). Au Sud-Est du mât, un terrain décaissé sur sa partie Ouest est signalé par une forme carrée (pointillés de couleur gris). Le volume de matériau excavé a été réparti à l'Est de ce terrain. L'objectif de cet aplanissement était de procéder à un drainage du terrain et établir une surface plane de grande envergure dans le cadre d'une campagne de drones. La proximité immédiate du mât présente une topographie moins plane qu'envisagée avec des valeurs d'altitude comprises entre 595 et 605 mètres.

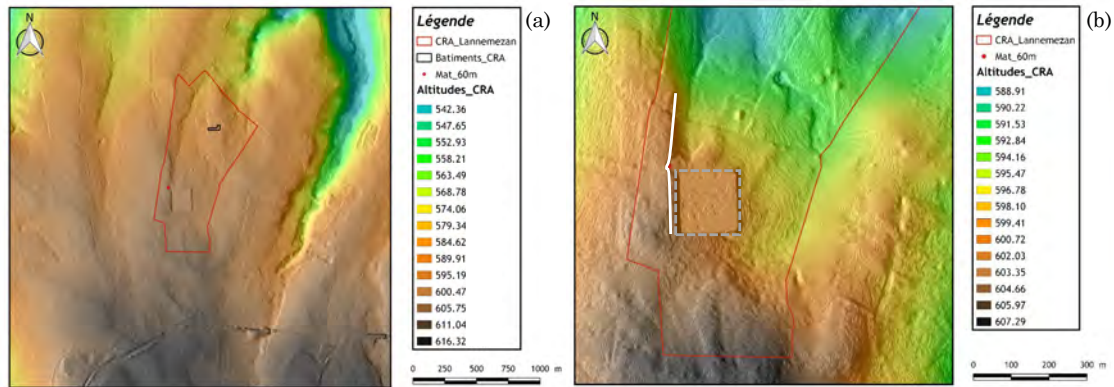


Figure 4.5 – Contexte topographique à l'échelle du P2OA-CRA (a) et à proximité immédiate de la tour instrumentée (b). Les altitudes ont été extraites du Référentiel à Grande Échelle d'Altitude (RGE Alti®) avec une résolution d'1 mètre (IGN).

### 4.2.3 Le contexte géologique, un peu d'histoire

Dans un contexte géologique régional, le **plateau de Lannemezan** est une structure géomorphologique issue de l'accumulation progressive de sédiments provenant de la chaîne pyrénéenne. Sa formation a débuté au Tertiaire, il y a environ 50 millions d'années. Le faible relief de l'époque qui constitue les pré-Pyrénées s'élève, poussé par des mouvements de compression. Les torrents et glaciers qui s'installent sur ces nouveaux reliefs et dévalent les pentes vont soumettre les montagnes à une érosion mécanique et chimique intensive. Le résultat de cette érosion va être le déversement des matériaux arrachés aux pentes des montagnes sur le piémont. Tout en continuant leur surrection, les Pyrénées érigent l'amas de ces dépôts et forment ainsi le plateau de Lannemezan. Cette formation géologique correspond donc à d'anciennes surfaces de dépôts de la fin du Tertiaire et du début du Quaternaire issues de l'érosion des Pyrénées et déposées sous forme de cône de déjection (Figure 4.4).

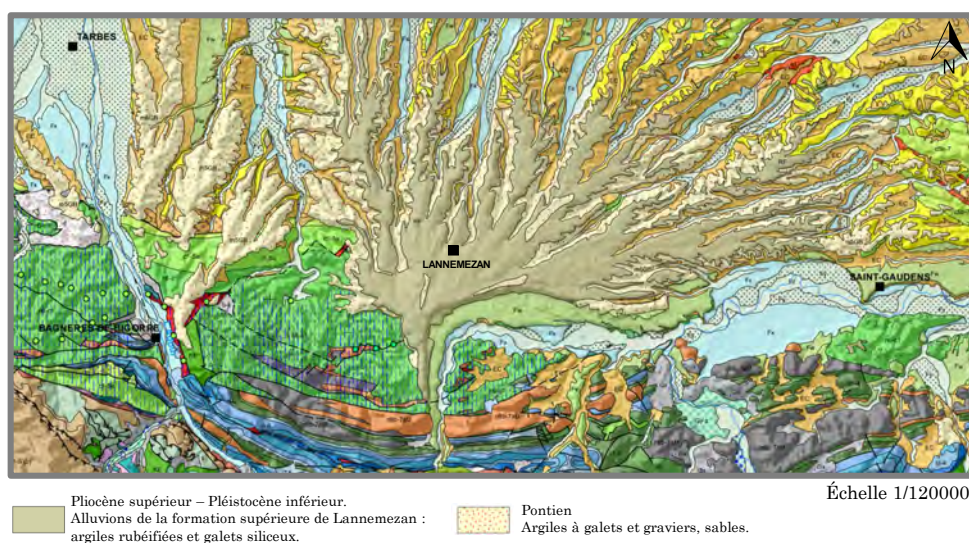


Figure 4.6 – Contexte géologique général du cône de déjection caractérisant le plateau de Lannemezan bordé au Sud par les formations accidentées du relief Pyrénéen. Les digitations planes y sont clairement identifiables. Source : BRGM.



Sur la carte géologique de Saint-Gaudens (Figure 4.6), le plateau de Lannemezan apparaît comme un large éventail de terrains sédimentaires mio-pliocènes et quaternaires déployés au débouché de la vallée Pyrénéenne de la Neste. Sur le substratum plissé d'âge secondaire masqué par les molasses oligo-miocènes, qui forment le soubassement du plateau, repose une masse d'argiles à galets ponto-pliocènes qui représentent les formations supérieures du plateau. Au niveau du P2OA-CRA, les formations ponto-pliocènes n'affleurent pas. L'étage affleurant dominant sur le plateau et notamment sur le site pilote est le Quaternaire ancien (Donau).

Les formations supérieures du plateau de Lannemezan se distinguent des formations antérieures par la taille des éléments qu'elles renferment (apparition de blocs) et par l'intensité de la rubéfaction. Elles présentent une lithologie d'argiles à galets qui diffère sur la teneur en argile et la mise en place des galets dans la formation. Ce sont des argiles jaunes à rougeâtres avec des galets siliceux en lits (quartzite, lydiennes, grès ferrugineux) pour le Pontien-Pliocène et dans la masse pour le Quaternaire qui donne une disposition très désordonnée à cet ensemble. Il n'y a pas de stratification visible mais une succession de faciès peut être distinguée dont deux sont présents sur le site du P2OA-CRA selon la coupe géologique (Figure 4.7) :

- La formation de base, le faciès L<sub>1</sub>, est composée d'argiles sableuses à blocs et galets polygéniques tels que des granites, schistes, quartzite, lydiennes mais aucun calcaire. Il n'y a pas de stratification apparente, mais des argiles à graviers et des cailloutis peuvent se retrouver côte-à-côte et sont disposés de manière désordonnée dans une gangue argilo-sableuse.
- La formation sommitale, le faciès L<sub>3</sub>, est formée essentiellement de gros galets et de blocs de quartzite enrobés dans une gangue argilo-sableuse de couleur brun-rougeâtre. Aucune stratification apparente n'est visible pour ce faciès.

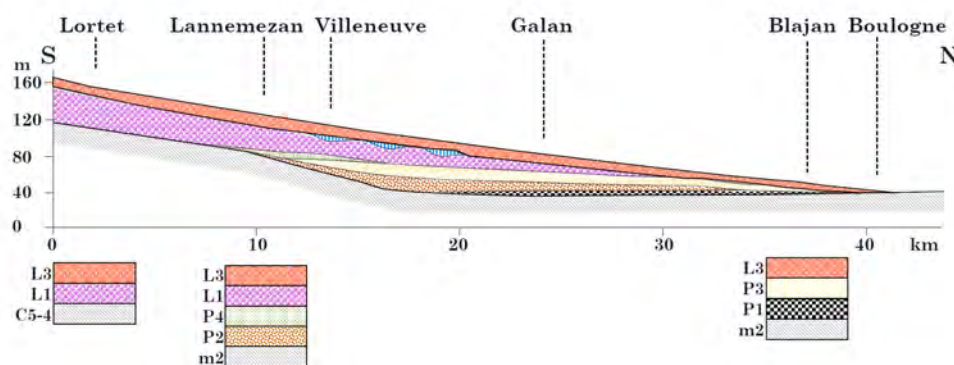


Figure 4.7 – Coupe géologique des formations supérieures du plateau de Lannemezan. Les faciès L représentent les formations du Quaternaire, les faciès P constituent les formations Ponto-Pliocène et les faciès m les molasses du Secondaire [Patin, 1967].

Le tableau 4.1 [Patin, 1967] présente les faciès comparés de la formation supérieure de Lannemezan. Les minéraux argileux dominants changent entre les faciès L<sub>1</sub> et L<sub>3</sub>, de kaolinite à illite, marquant une évolution climatique sur la région. Ces deux types d'argiles ne sont pas des argiles gonflantes limitant ainsi la mise en place de fentes de dessiccation très prononcées en été lorsque la teneur en eau volumique du sol est faible. Un nombre conséquent de fentes favoriserait une meilleure exhalaison du radon-222 du sol vers l'atmosphère notamment en été.

	Faciès L <sub>1</sub>	Faciès L <sub>3</sub>
Stratification	Nulle	Nulle
Minéraux argileux	Kaolinite domine + Illite	Illite domine + Kaolinite
Minéraux lourds	10% totalement altérés	79% totalement altérés
Fer (% Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	5,5 à 6 %	3,7 à 5 %
Cailloutis	Polygénique	Plus de 80 % de quartzite

Tableau 4.1 – Faciès comparés de la formation supérieure de Lannemezan.

Le passage d'une disposition lenticulaire due à une sédimentation fluviatile à des dépôts sans stratification apparente mêlant matériel mal trié et argiles sableuses est la conséquence d'une modification des écoulements. Le mode d'écoulement des laves torrentielles est le seul phénomène permettant d'expliquer l'épaisseur considérable de ces formations au débouché des montagnes et leur amincissement rapide vers le Nord du plateau. Une accentuation progressive de l'aridité est à l'origine du transport de masses importantes par coulées boueuses comme le suggère les calibres des blocs et galets. Cette surface de transit a ensuite été le témoin du dépôt des argiles à galets. Des limons éoliens jaunes retrouvés en lentilles sur certaines formations pliocènes sont des témoins de ces périodes froides du Quaternaire sur la région.

La transition entre la kaolinite et l'illite, les minéraux argileux dominants de ces faciès, est un marqueur d'altération d'une roche acide passant d'une hydrolyse forte en climat chaud et humide (fin Tertiaire-début Quaternaire) à une hydrolyse faible (périodes froides du Quaternaire).

#### 4.2.4 Le contexte pédologique et agricole

Les sols sont une entité structurale propre qui composent la couche superficielle observée sur **1 mètre de profondeur** sur le site du P2OA-CRA. Cela correspond à l'entité qui est sondée par le spectromètre NaI(Tl) (0 - 30 cm de profondeur) à une hauteur de 50 mètres. Il est donc indispensable de bien comprendre cette structure et son fonctionnement sur le site P2OA-CRA autour de la tour instrumentée.

La connaissance du sol est donc fondamental pour appréhender le marquage observé autour du mât par le détecteur.

#### La formation d'un sol, une histoire de temps

La formation des sols ou *pédogénèse* est un phénomène lent et complexe qui fait intervenir des processus physiques, chimiques et biologiques. Il est conditionné par la nature de la roche-mère ou matériau parental, l'activité biologique par l'intermédiaire des êtres-vivants dans le sol et de la végétation, et les facteurs climatiques notamment la température et la pluviométrie (Figure 4.8).

La roche-mère, ici les limons et argiles jaunes à galets, est exposée à la surface. Elle va subir des altérations résultant de différents agents comme l'eau ou le vent qui vont conduire à sa fragmentation (action mécanique) et à sa dissolution (action chimique). La surface altérée du matériau parental va ensuite être colonisée

par les végétaux. Les racines vont s'incruster dans la roche, accélérant son altération. Lorsque cette végétation meurt, elle se dépose en surface et se décompose en matière minérale (litière et humus). L'altération de la roche est donc de plus en plus profonde. Les horizons de sols se différencient et l'horizon humifère en surface s'approfondit grâce à l'infiltration des eaux de pluies (pH acide, 5,5 à 6) favorisant le développement d'une végétation plus importante. Les sols ne sont pas considérés comme renouvelables à l'échelle humaine puisqu'il faut environ 300 ans pour approfondir le sol de 1 cm en climat tempéré.

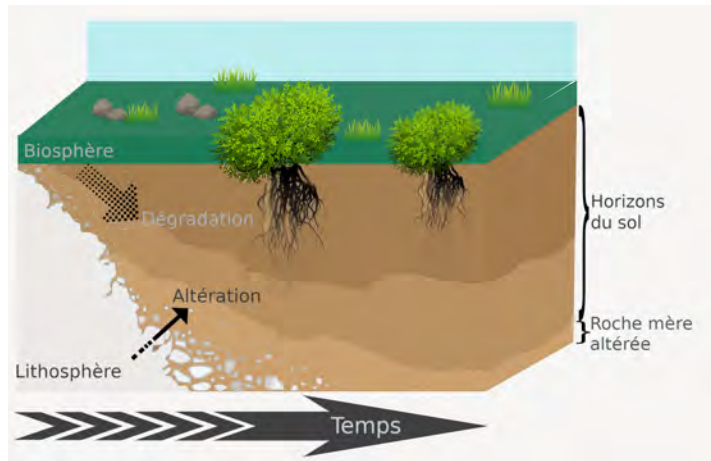


Figure 4.8 – Schéma évolutif de la pédogénèse d'un sol. La nature de la roche-mère ainsi que les facteurs climatiques sont prépondérants dans la nature du sol formé.

### La typologie des sols en place sur le site P2OA-CRA

Grâce à plusieurs campagnes de terrain réalisées sur le site, une analyse des sols en surface et en profondeur par méthode destructive (tarière) a été menée au cours de cette thèse. L'objectif est de déterminer si la typologie des sols autour du mât instrumenté est homogène ou hétérogène latéralement et en profondeur. Associés à un historique des impacts anthropiques sur le site du P2OA-CRA et à une cartographie de l'occupation des sols, cette étude pédologique permet de mieux appréhender ce compartiment au niveau de l'emprise spatiale du spectromètre NaI(Tl) et à terme de déterminer la structure du sol à modéliser au sein d'une simulation de la réponse du détecteur NaI(Tl) aux conditions environnementales présentes sur le site du P2OA-CRA. Les premiers enseignements de cette étude montrent que trois grandes typologies de structure de sol sont caractérisées autour de la tour instrumentée avec des variantes dans chaque typologie :

- Les **limons argileux à galets de couleur jaune** qui sont la roche-mère pour tous les sols du site sont à l'affleurement suite à l'excavation du sol supra pour aplanissement du terrain. C'est une structure poreuse mais imperméable à l'origine de la formation d'un petit marécage entre l'automne et le printemps et qui peut influencer sur le signal  $\gamma$  émis par cette zone. La pédogénèse en est au stade préliminaire d'installation de végétation basse. Ces limons argileux à l'affleurement représente environ 8% de la surface couverte par le spectromètre NaI(Tl). Le terrain concerné est observable en jaune sur la figure 4.9.
- Les sols bruns acides développés de type *véracrisol*. Ces sols sont caractérisés par leur acidité (pH = 5 - 5,5) et l'accumulation importante de matière organique sur une épaisseur de 50 cm liée à l'intense activité biologique des vers de



terre malgré l'acidité et la présence en profondeur d'un horizon très peu perméable. Sur le site P2OA-CRA, les sols ont une épaisseur comprise entre 60 et 100 cm en fonction de la topographie et avant d'atteindre la surface du matériau parental constitué par les limons argileux à galets. Ces sols se retrouvent sur environ 80% du site et sont représentés en vert sur la figure 4.9. Ces sols considérés comme profonds car supérieurs à 50 cm sont des marqueurs de stabilité des conditions tectoniques, climatiques et anthropiques sur la région. Une étude granulométrique de l'horizon d'accumulation de matières organiques a été réalisée par l'Institut National de Recherche pour l'Agriculture, l'Alimentation et l'Environnement (INRAE) et montre des valeurs homogènes avec la profondeur : **40% d'argiles, 30% de sables et 30% de limons**.

- Les sols bruns acides remaniés et en cours de pédogénèse. Ce sont principalement les *véracrisols* remaniés lors de l'installation du mât et l'excavation du terrain à sa proximité pour aplanissement. Ils se caractérisent par un horizon d'accumulation de matière organique plus petit, de l'ordre de 25 cm. Un horizon intercalé entre l'horizon du matériau parental et celui en surface enrichi en sables limoneux fait la spécificité de cette typologie de sol. Ils sont représentés en orange sur la figure 4.9 et sont observés sur 12% du site P2OA-CRA.

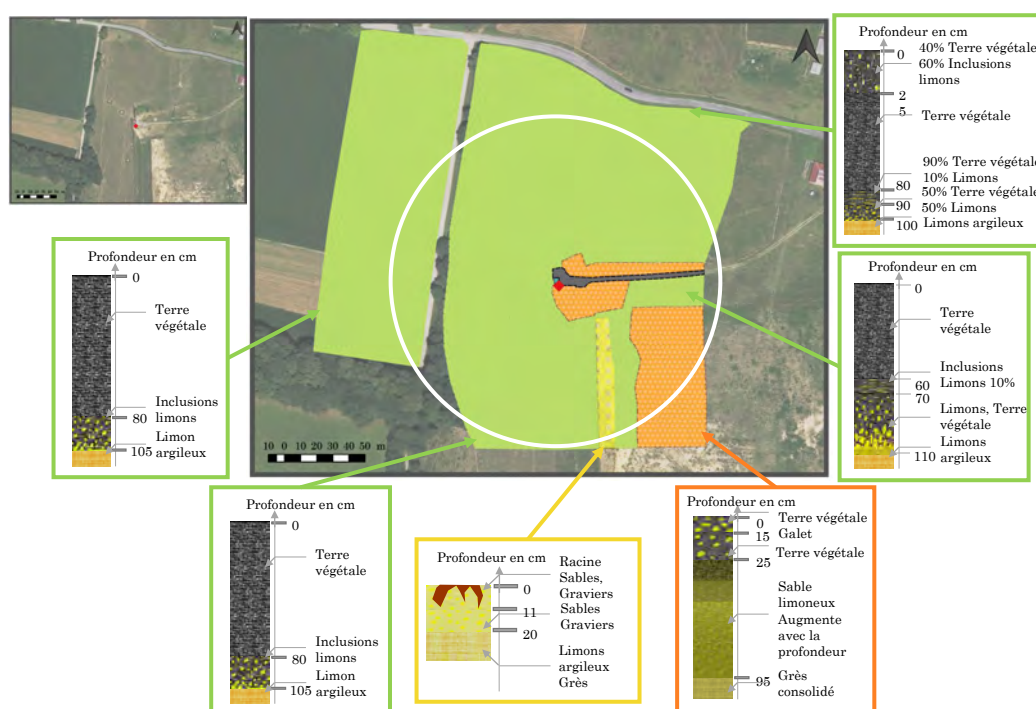


Figure 4.9 – Typologie et représentation schématique des sols et de ses horizons observés sur le site P2OA-CRA à proximité de la tour instrumentée représentée par un marqueur de couleur rouge. Le matériau parental à l'affleurement est caractérisé par une couleur jaune, les *véracrisols* profonds (60 à 100 cm) sont identifiés par une couleur verte et les *véracrisols* remaniés sont marqués par une couleur orange. Le chemin d'accès est représenté par une surface grise. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%.

Cette typologie générale observée sur le site d'étude a montré quelques variantes suite à des activités anthropiques destructives. Le premier impact anthropique iden-

tifié et clairement visible sur le site est la présence d'activités agricoles de type cultures céréalières et maïs sur les véracrisols qui sont situés à l'extérieur du P2OA-CRA. Le labour des terres entraîne un remaniement des 15 à 20 premiers centimètres du sol et la formation d'une croûte de battance. Ce remaniement n'entraîne pas cependant l'apport de matériaux profonds différents de ceux observés en surface (Figure 4.9). L'impact anthropique le plus important sur le site concerne justement la remise en surface de matériaux profonds (limons argileux) sur l'horizon d'accumulation de matières organiques. Cet apport est clairement observé sur la bordure Nord du site (Figure 4.10). Un fossé d'évacuation d'eau d'un mètre de profondeur a été creusé à proximité de la route et l'ensemble des matériaux constituant cette colonne de sol a été mélangé puis dispersé sur la surface du sol (terrains de couleur marron sur la figure 4.10) constituant une couche de mélange sur une profondeur de 20 centimètres environ. Ce phénomène est également identifié au niveau des différents points d'ancrage de stabilité du mât instrumenté sur une zone d'environ 1,50 mètres autour de ces structures mais avec une profondeur de couche de mélange plus restreinte, de l'ordre de 10 centimètres. Une dernière zone du site P2OA-CRA présente également un remaniement des matériaux profonds impactant sa couche de surface sur une profondeur de 25 centimètres en moyenne. Cette zone se situe au niveau d'une ravine de ruissellement qui a été creusée le long d'un parcours de 200 mètres environ à proximité du mât afin d'assurer le drainage et l'écoulement de l'eau en dehors de la zone d'installation de la tour instrumentée.

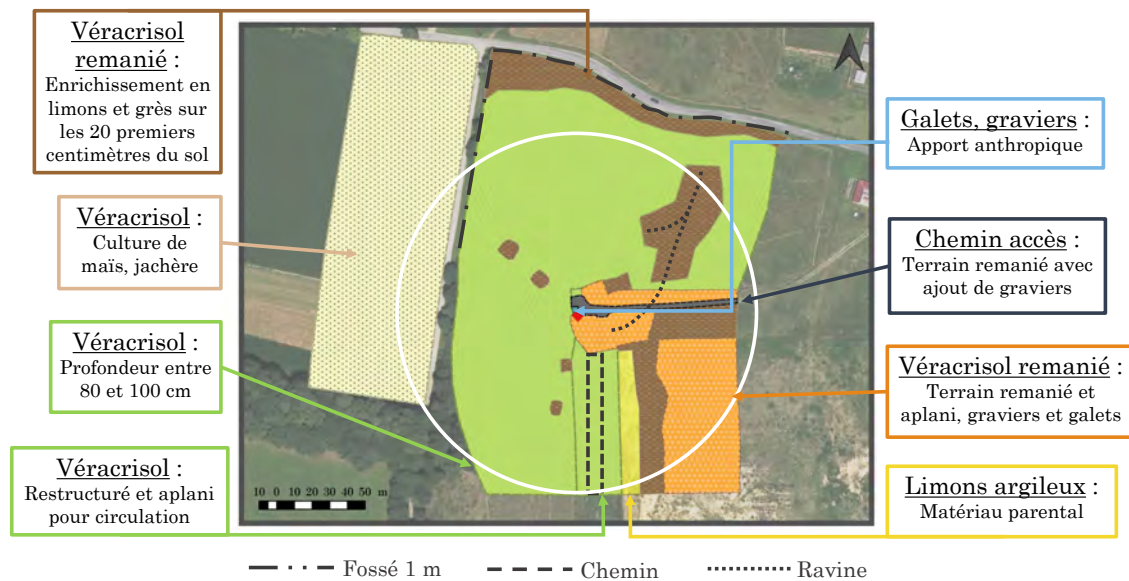


Figure 4.10 – Présentation des remaniements affectant principalement les véracrisols observés sur le site P2OA-CRA. La tour instrumentée est identifiée par un marqueur de couleur rouge. Les impacts anthropiques sont à l'origine des perturbations des sols naturellement en place. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%.

Un terrain à proximité des limons argileux à l'affleurement montre une profondeur de véracrisol inférieure de 20 centimètres par rapport au terrain limitrophe ayant la même structure. Une opération d'arasement puis d'aplanissement de cette couche de surface a été réalisée afin de créer un accès vers une zone instrumentée du site. Ce terrain est délimité par un rectangle noir au Sud du site sur la figure 4.10.

Le spectromètre NaI(Tl) a une hauteur de 50 mètres sonde une profondeur de sol d'environ 30 cm, pour laquelle provient 95% du signal  $\gamma$ . Les 50 premiers centimètres des sols de Lannemezan sont relativement homogènes latéralement en surface et en profondeur à l'exception des zones perturbées par des activités anthropiques qui représentent moins d'un quart de l'angle solide du détecteur. Un modèle de sol avec une seule couche de profondeur 50 centimètres et des teneurs en radionucléides moyennes observées sur le site devrait être normalement suffisant pour une simulation de la réponse du détecteur aux conditions d'opérations du site P2OA-CRA sur Geant-4. Pour affiner le modèle, une structure à deux couches peut être envisagée sur une partie de l'emprise spatiale vue par le détecteur. Dans tous les cas, l'investigation des sols en place a permis de montrer que les conditions recherchées initialement dans le cahier des charges étaient presque atteintes avec une homogénéité en profondeur et latérale des sols. L'impact anthropique est limité sur le site depuis la phase d'installation du mât, de ses points d'ancrage, des chemins d'accès et de la construction de la cabane il y a plus de 30 ans.

### L'occupation des sols, un impact anthropique modéré

Les véracrisols identifiés autour de la tour instrumentée sont occupés principalement par des landes riches en matières organiques composées d'herbe, d'ajoncs, de touyas et de fougères. Des conifères de type épicéas et des chênaies pédonculées complètent les espèces végétales en présence. Cette végétation est considérée comme acidophile et se développe généralement sur des sols au pH variant entre 5 et 6. Les véracrisols naturels constituent donc des prairies permanentes et temporaires (Figure 4.11) sur le site occupées partiellement par des cheptels de vaches. À l'échelle annuelle, la végétation présente est relativement constante en superficie occupée.

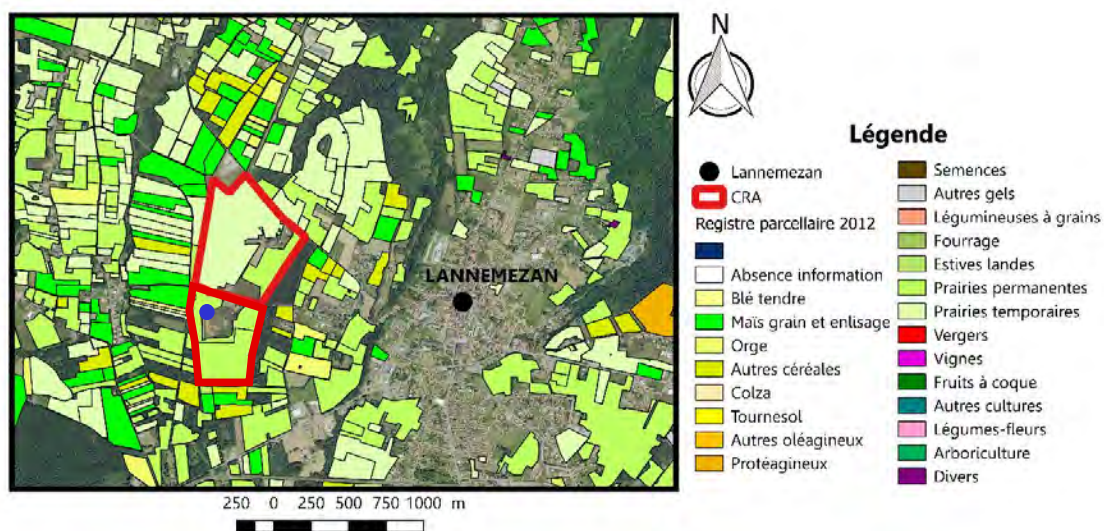


Figure 4.11 – Occupation des sols et activités agricoles sur et autour du site P2OA-CRA d'après le registre parcellaire RPG de 2012 issu de la base de données européenne d'occupation biophysique des sol Corine Land Cover. Les prairies permanentes et temporaires dominent au sein du P2OA-CRA. Des activités agricoles comme la culture de céréales sont présentes à proximité du site sur des surfaces limitées. La tour instrumentée est représentée par un marqueur de couleur bleu.

Les véracrisols en dehors du P2OA-CRA sur sa bordure Ouest présentent quelques terrains dont l'orientation est centrée sur des activités agricoles de type cultures céréalières et de maïs. Ces cultures nécessitent très souvent des **apports d'engrais potassiques et phosphatés** durant le développement des plants pour permettre leur croissance et la maturation des épis ou des grains. Or, ces terrains étant en périphérie de la zone mesurée par le spectromètre NaI(Tl), la mesure de spectrométrie  $\gamma$  des terrains naturels ne devrait pas être affectée par ces apports d'engrais. Du fait d'un pH de sol acide comme le démontre la végétation en place, le choix de la culture de maïs, et l'absence de calcaire, des opérations de chaulage ou des amendements calcaire vont être réalisées par les agriculteurs pour tamponner le pH du sol et permettre la culture d'autres types de céréales comme le colza ou l'orge. Dans les mesures de composition chimique d'échantillons de sols prélevés sur ces différentes typologies de sols, la teneur en calcium attendue sur les champs alentours devrait être supérieure à celle observée sur les véracrisols du site.

Ces sols épais au pH acide présentent une forte macroporosité et une faible densité apparente liée à une forte teneur en matières organiques. La présence d'argiles en profondeur constitue une couche imperméable.

#### 4.2.5 Les contextes climatique et météorologique

Le climat sur le plateau est de type océanique-montagnard. Le site P2OA-CRA est à une altitude de 580 mètres en moyenne. Sur les 5 dernières années de données enregistrées par les instruments de suivi météorologique du P2OA-CRA sur la tour instrumentée, la **température** moyenne observée à 15 m y est de 11,96°C avec une plage de variation constante d'environ 30°C entre les températures moyennes mensuelles minimales et maximales (Figure 4.12(b)). Les températures maximales sont atteintes en été sur les mois de juin et juillet avec un pic enregistré à 35,09°C. Les températures minimales se concentrent en hiver et notamment sur les mois de janvier et février avec un pic observé à -8,80°C sur le mois de Février 2017.

Des chutes de neige sont rares mais peuvent se produire surtout aux mois de Février et de Mars. Une épaisseur de neige suffisante peut agir comme une couche d'atténuation et ainsi provoquer un écrantage du signal  $\gamma$  issu du compartiment sol. Le radon-222 est ainsi bloqué et se concentre dans le compartiment sol avant une émission massive lors de la fonte de cette barrière naturelle. Ce phénomène d'enneigement est donc un facteur important à considérer lors du traitement des mesures  $\gamma$ .

La **pression atmosphérique** moyenne observée sur la période 2015-2019 est de 948,64 mbar (Figure 4.12(a)). Ce paramètre météorologique a un impact sur la dynamique des gaz du sol et notamment le radon-222. Les cycles diurne et semi-diurne de la pression atmosphérique peuvent entraîner un pompage barométrique des gaz du sol vers l'atmosphère ainsi qu'une variation de l'atténuation des photons  $\gamma$ . La gamme de variation des pressions moyennes mensuelles mesurées n'est pas constante. L'amplitude est de 45 mbar en moyenne l'hiver, entre 918 et 963 mbar, alors qu'elle est de 20 mbar durant les mois d'été, entre 940 et 960 mbar. Cette plage de variation plus limitée en été indique un nombre d'événements pluvieux qui est plus réduit qu'en hiver.



Les **précipitations** jouent un rôle primordial dans le bruit de fond du signal  $\gamma$  mesuré par le spectromètre. En effet, le rabattement des descendants du radon-222 à vie courte en fraction libre ou attachés aux aérosols est alors observable. Ce signal temporaire issu de cette couche surfacique pluvio-formée dure environ 3 heures, temps considéré comme nécessaire pour permettre la décroissance des descendants sur au moins 5 périodes de temps de demi-vie. Il est donc important de connaître et comprendre la dynamique des événements de précipitations sur le site. La figure 4.12(c) présente l'évolution du cumul moyen mensuel des intensités des précipitations en millimètres de pluie enregistrée par le pluviomètre à augets en pied de mât. Sur la période 2015-2019, la précipitation moyenne annuelle sur le site est de 1296 mm. Cette valeur qui paraît élevée au regard de la moyenne annuelle des précipitations en France, entre 550 et 600 mm, est tout à fait commune pour le Sud-Ouest français notamment pour le piémont Pyrénéen du Pays Basque à la Bigorre (Figure 4.12(d)). Les précipitations maximales sont mesurées sur les mois d'hiver principalement avec des cumuls moyens mensuels dépassant les 120 mm. La période du printemps (Mars à Mai) est également très pluvieuse avec des valeurs sommées moyennes supérieures à 100 mm. L'humidité du sol mesurée par les sondes doit donc présenter une tendance similaire avec des valeurs maximales mesurées sur ces périodes très humides. Pour comparer l'influence des teneurs en eau du sol sur les mesures  $\gamma$ , il convient de réaliser deux survols, l'un en Septembre (sol sec) et

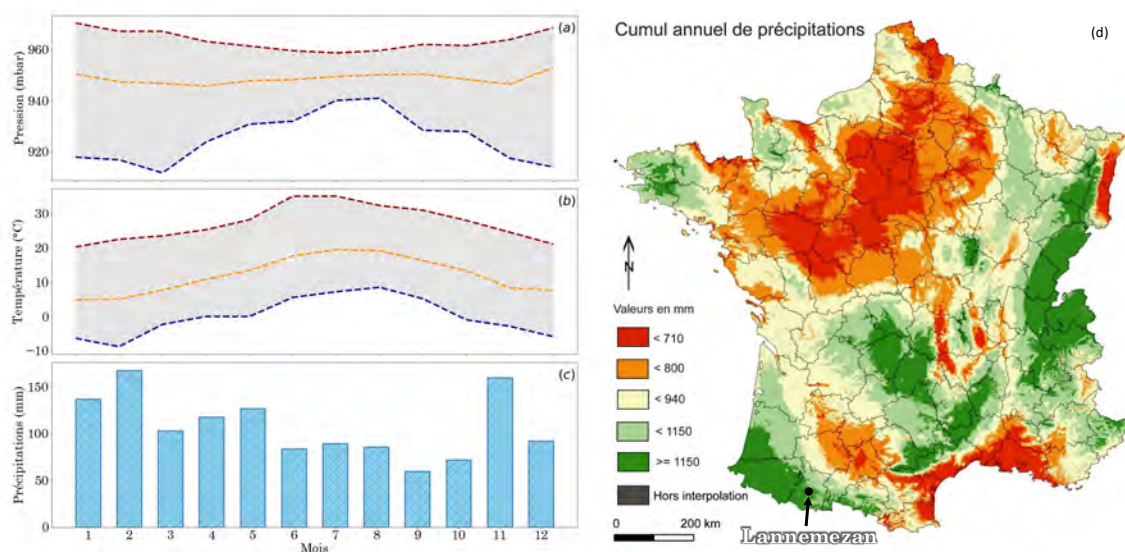


Figure 4.12 – Évolution des moyennes mensuelles sur la période 2015-2019 (a) de la pression atmosphérique (mbar), (b) de la température à 15 m (°C), des précipitations (c) et du cumul mensuel moyen des précipitations en mm. Les courbes rouges indiquent la tendance maximale observée, la courbe bleue la tendance minimale et la courbe orange, la moyenne mensuelle. (d) La carte du cumul annuel de précipitations sur la période 1976-2015 est tirée de [www.meteopassion.com](http://www.meteopassion.com).

Les **vents** vont jouer un rôle sur la dynamique du  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère. Son activité volumique au sein de l'atmosphère varie au cours du temps. Le radon-222 est un excellent traceur des échanges atmosphériques du fait de sa période de demi-vie de 3,82 jours [Feichter and Crutzen, 1990, Lee and Larsen, 1997, Zahorowski et al.,

2004, Arnold et al., 2010]. Diffusé dans l'atmosphère à partir du compartiment sol, le radon-222 peut être transporté par les vents sur de longues distances.

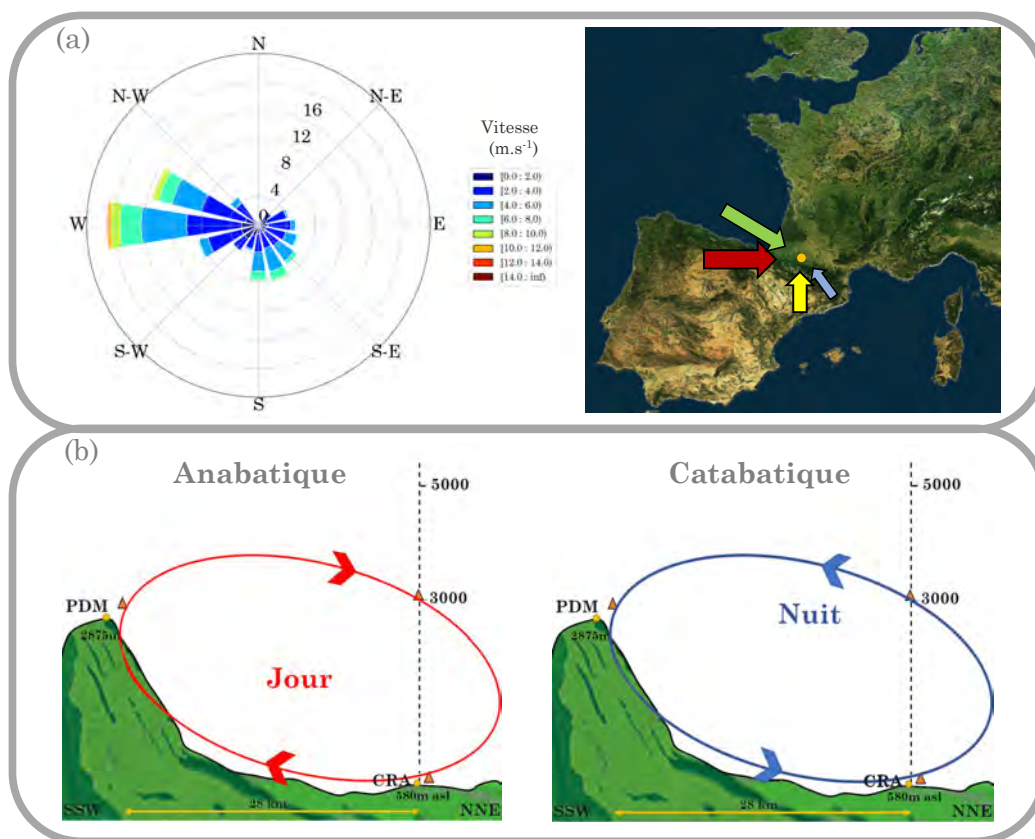


Figure 4.13 – (a) Rose des vents fréquentielle avec vitesse mesurée en  $m.s^{-1}$  pour les données de la tour instrumentée à 45 mètres. Les vents continentaux d'Ouest (Espagne) et océaniques Nord-Nord-Ouest (Atlantique) sont dominants sur le P2OA-CRA. Les vents du Sud et du Sud-Est provenant des Pyrénées participent aux échanges plaines-montagnes qui font la particularité climatique de ce site. (b) Présentation schématique des cellules d'échange plaine-montagne avec notion de vents anabatique et catabatique.

De ce fait, il est important de connaître l'**origine des vents** observés sur le site P2OA-CRA et mesurés à partir de capteurs installés sur le mât météorologique à une hauteur de 45 m. La rose des vents fréquentielle sur la figure 4.13(a) montre que les vents dominants sur le site P2OA sont très majoritairement des vents d'Ouest ( $225-315^\circ$ ). Sur la période 2015-2019, cette direction représente 50,99% des vents mesurés. Les vents d'Ouest et de Sud-Ouest proviennent des surfaces continentales espagnoles (flèche rouge sur la figure 4.13(a)). Ces vents sont donc à priori chargés en radon-222 avec une activité volumique variable au cours du temps. Les vents de Nord-Ouest en provenance de l'Océan Atlantique peuvent se charger en radon-222 sur les surfaces continentales en amont du site P2OA-CRA mais devraient présenter des valeurs plus faibles que les autres composantes Ouest (flèche verte sur la figure 4.13(a)). Les vents Sud et Sud-Est représentent 24,73% des vents mesurés sur le site d'étude (flèches jaune et bleu sur la figure 4.13(a)). Ces vents proviennent directement des Pyrénées, du fait de la situation topographique, et correspondent à des échanges connus entre la montagne et la plaine *via* des vents catabatiques (Figure 4.13(b)).



Dans les Pyrénées, de nombreuses roches granitiques émettrices de radon-222 sont présentes ayant pour conséquence des activités volumiques de radon-222 importantes pouvant arriver sur le site P2OA-CRA. Les vents d'Est sont observés dans 20,34% des cas et circulent principalement sur des surfaces continentales de type calcaire peu chargées en radon. Les vents du Nord sont quasiment inexistantes sur le site P2OA-CRA, seulement 3,94% des vents mesurés. Ils sont souvent marqueurs de la mise en place d'un phénomène bien connu sur le site, les échanges de brise thermique entre la plaine et la montagne [Gäggeler et al., 1995] avec un vent anabatique dirigé du Nord vers le Sud observé la journée et inversement, un vent catabatique dirigé du Sud vers le Nord la nuit [Hulin et al., 2019].

Le site P2OA-CRA se situe dans une situation topographique privilégiée en piémont pyrénéen pour étudier les échanges atmosphériques entre la plaine et la montagne. Un traceur inerte chimiquement comme le radon-222 et son cortège de descendants est tout indiqué dans ce genre d'études atmosphériques. La direction et la vitesse des vents, variables au cours du temps, auront pour conséquence d'entraîner des variations temporelles au niveau des activités volumiques de radon-222 transporté par les masses d'air et mesuré sur le site P2OA-CRA.

Toutes ces études complémentaires sur le site P2OA-CRA de Lannemezan permettent de dire qu'il répond à de très nombreuses contraintes environnementales. La spécificité régionale du site avec la proximité des Pyrénées offre des perspectives d'études en sciences atmosphériques. Couplés aux instruments déployés sur le site, le site P2OA-CRA réunit tous les besoins nécessaires à cette étude.

### 4.3 Instrumentations déployées sur le mât

La tour instrumentée de 60 mètres ainsi que l'équipe technique du P2OA-CRA sont les points d'intérêt majeur de ce site. Sa hauteur maximale dépasse celle préconisée par les survols opérés par le CEA avec Hélinuc®. Il est donc aisé d'imaginer une installation pérenne dans le temps entre le mât et le même type de spectromètre NaI(Tl) que celui utilisé par le CEA.

Suite aux études de faisabilité réalisées, la tour instrumentée a été jugée apte à accueillir l'expérimentation sur sa structure. Quelques ajustements techniques et travaux de mise en conformité sont toutefois nécessaires en amont de l'installation d'un détecteur de 120 kg afin de sécuriser cette expérience. De nombreux instruments ont été installés sur le site pour répondre à la problématique générale posée dans cette étude (Figure 4.14). Les différents instruments mis en place, associés à ceux déjà présents, doivent permettre de mesurer les nombreux paramètres environnementaux identifiés comme responsables potentiels des variations du signal  $\gamma$  mesuré. Les compartiments atmosphérique et pédologique vont donc faire l'objet d'un long suivi temporel et leurs mesures pourront être analysées de manière indépendante par des études complémentaires.

Ainsi, dans la suite de cette section, des explications sont données sur le choix des différentes installations respectives et protocoles associés aux instruments déployés.

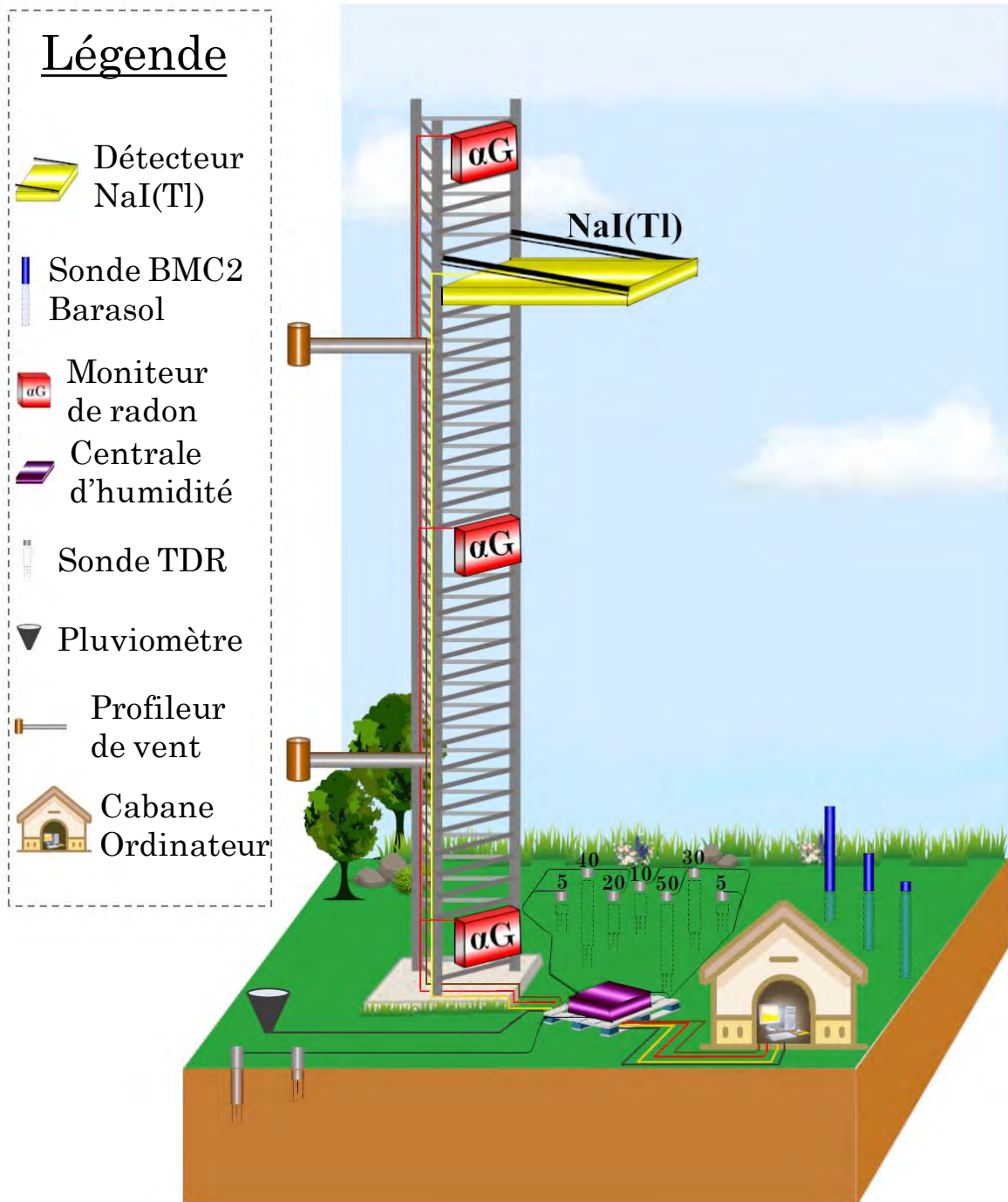


Figure 4.14 – Instrumentation mise en place sur le site du P2OA-CRA que ce soit sur la tour instrumentée de 60 mètres ou à sa base. Le spectromètre NaI(Tl) (jaune) est fixé à une hauteur de 50 mètres alors que les moniteurs de radon-222 atmosphérique (rouge) sont accrochés à la structure aux hauteurs 1, 30 et 60 mètres. Le réseau de sondes de suivi de l'humidité dans le sol (gris) est connecté à une centrale d'acquisition (violet). Des détecteurs de radon-222 dans le sol sont également installés à trois profondeurs : 30, 60 et 90 cm (bleu). Les profileurs de vent (marron) et le pluviomètre (noir) font partie des instruments déjà installés sur le site. Tous les instruments sont reliés au PC d'acquisition situé dans la cabane et peuvent être commandés à distance depuis l'IRAP de Toulouse. Échelles non respectées.

### 4.3.1 La mesure de la radioactivité environnementale

Simuler un vol stationnaire de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée avec un détecteur NaI(Tl) de 20 L pesant approximativement 120 kg nécessite une structure d'accueil pour le détecteur permettant de l'apporter et de l'arrimer à la hauteur requise pour l'expérience.

#### L'installation du détecteur NaI(Tl)

La **plateforme élévatrice** devant supporter le détecteur NaI(Tl) a fait l'objet d'un renforcement permettant la mise en mouvement et la mise en sûreté à une hauteur définie de charges d'un poids maximum de 250 kg. Le détecteur NaI(Tl) a bénéficié de la conception d'un système d'accroche dédié sur la plateforme élévatrice et d'une protection aux intempéries, insectes et autres oiseaux pouvant directement impacter le spectromètre. En se basant sur la procédure de calibration (cf. Chapitre 2) ainsi que sur les spécifications techniques existantes du détecteur et de la plateforme (cf. Chapitre 1), la conception d'une structure réceptive et stable a été imaginée puis réalisée. La face avant du détecteur NaI(Tl) où se situent les branchements électrique et de communication est orientée directement vers la tour instrumentée. Ce choix de géométrie oblige la dimension longueur du détecteur à être disposée perpendiculairement à la tour instrumentée.

La structure est donc conçue sur la base d'une ossature parallélépipédique rectangle ouverte en aluminium (Figure 4.15). Des grilles anti-insectes assurent que la

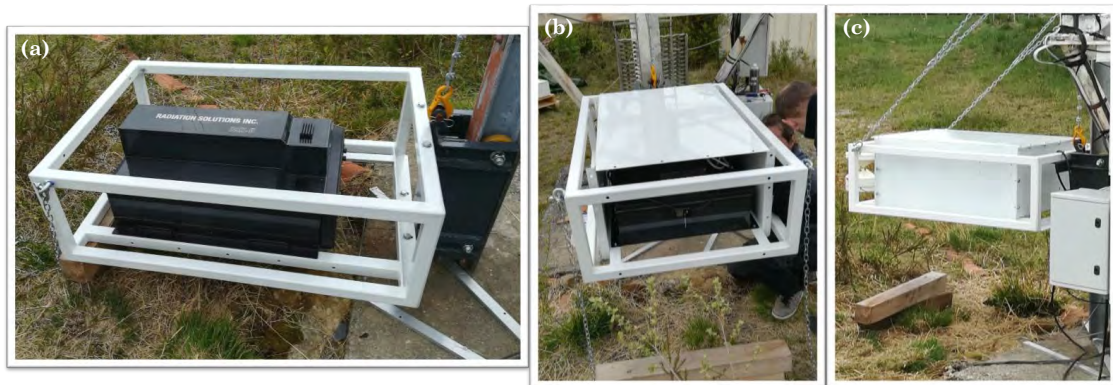


Figure 4.15 – (a) Structure d'accroche du détecteur avec une ossature de forme parallélépipédique ouverte sur toutes les faces. Le détecteur est fixé sur cette structure. (b) Couvercle de protection du détecteur en aluminium d'épaisseur 2 mm. (c) Installation de chaînes en acier pour stabiliser le détecteur.

Cette géométrie en structure ouverte permet de limiter les phénomènes d'atténuation des photons  $\gamma$  avant une possible interaction avec le spectromètre. La structure complète de soutien du détecteur pèse environ 40 kg en incluant le poids de la plateforme élévatrice. Le détecteur NaI(Tl) est fixé sur cette structure par l'intermédiaire de son système de déplacement perforé à de nombreux endroits et prévu pour recevoir de la visserie de fixation.

Dès lors que le système est stabilisé, en prenant en compte le centre de gravité du détecteur, un couvercle de protection de 2 mm d'aluminium est positionné pour ne recouvrir que les faces supérieures et latérales du spectromètre (Figure 4.15). Les choix sur l'épaisseur et le matériau sont le reflet des spécifications techniques du caisson du détecteur arrimé en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. La face inférieure du scintillateur, garantissant les conditions optimales de détection, du fait de la géométrie des cristaux et du détecteur, n'est perturbée par aucun ajout de matériel et laissée en l'état. Les conditions du vol stationnaire à 50 mètres de hauteur doivent respecter au mieux les conditions d'un vol standard.

Du fait d'un poids total atteignant les 165 kg, le système détecteur-structure présente un angle inférieur à  $90^\circ$  avec le mât de 60 mètres. Pour remédier à cette situation qui pourrait entraîner un masquage du sol par la structure du mât, un système de chaînes en acier est ajouté sur la structure d'accueil parallélépipédique. Elles sont ensuite fixées sur les tubes métalliques de la tour de telle sorte que l'angle entre le détecteur et le mât soit de  $92^\circ$  au niveau de la hauteur souhaitée. L'ensemble du dispositif est soumis aux radiations solaires. Pour éviter un phénomène de surchauffe, la structure complète est peinte en blanc. Cela va limiter l'accumulation de chaleur dans les matériaux et donc réguler à minima la température sous le couvercle de protection. Le contrôle de la dérive de température des détecteurs sera encore plus important et donc renforcé sur toute la durée de l'étude par des expériences dédiées impliquant une source de  $^{40}\text{K}$ .

**L'installation du détecteur NaI(Tl) a été réalisée sur 2 journées consécutives les 29 et 30 Avril 2019** et a nécessité l'intervention de 6 personnes. Le détecteur se trouve à une hauteur exacte de **49,70 mètres** d'après un pointeur métrique laser.

#### **L'acquisition et le contrôle des données**

Depuis son installation au 30 Avril 2019 jusqu'au 30 Juin 2020 représentant un total de 10248 heures d'enregistrements de mesure, seulement 50 heures d'acquisitions ont été "perdus" soit un total inférieur à 0,50% du jeu de données complet. Le détecteur NaI(Tl) nécessite de communiquer en continu avec le PC d'acquisition à travers son logiciel dédié. Ce sont les coupures électriques, malgré la présence d'un onduleur, qui ont été responsables de ces pertes de données.

Dans le but d'harmoniser les dates et heure d'acquisition entre les divers instruments, le choix de l'heure UTC a été fait pour synchroniser les données et éviter l'impact des changements d'heure avec post-traitement des données enregistrées. L'heure du PC est donc programmée sur le fuseau horaire du temps universel coordonné (UTC).

Le détecteur enregistre à la fois des spectres  $\gamma$  toutes les secondes mais aussi des **spectres cumulés sur 30 secondes** permettant d'améliorer la statistique de comptage. Ces **spectres cumulés** constituent la base du travail d'analyse qui suivra le déploiement des instruments sur le site. Ils sont traités suivant la méthode des fenêtres proposée par l'AIEA avec soustraction du bruit de fond instrumental calibré en laboratoire pour chaque fenêtre (Chapitre 4).

**Le contrôle de la qualité des données :** D’après le constructeur du détecteur NaI(Tl), une utilisation en continu sur une période temporelle d’un an n’a jamais été réalisée auparavant. Ainsi, le constructeur ne peut offrir de garantie sur l’évolution de la réponse du détecteur ou autre problème possible sur le long terme.

De ce fait, un **protocole journalier de contrôle** de la mesure a été effectué chaque matin et chaque soir pour s’assurer du bon fonctionnement du détecteur et de la qualité des données enregistrées depuis le premier jour d’installation du détecteur sur le mât. **Plusieurs étapes** composent cette procédure de vérification :

- Le logiciel d’acquisition du détecteur est bien allumé et **enregistre** les données mesurées dans le dossier prévu à cet effet. Cette étape passe par le contrôle visuel du spectre en cours d’enregistrement,
- Le contrôle de l’**heure affichée** dans le logiciel et affiliée au spectromètre,
- Le suivi des **températures des cristaux** de NaI(Tl), des **tensions** appliquées à chaque photo-multiplieur et des **gains de haute tension automatique** qui évoluent toutes les 30 secondes sont relevées à distance depuis l’IRAP à chaque connexion,
- La réalisation d’une **stabilisation ou test système** à partir des photons  $\gamma$  du descendant du  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{208}\text{Tl}$ , issus de la couche superficielle de sol investiguée. Cette mesure se fait par l’acquisition de 2000 ou 5000 coups enregistrés par chaque cristal sur la fenêtre considéré à 2615 keV. Cette stabilisation permet d’observer l’évolution journalière de la résolution d’énergie calculée par le logiciel à cette énergie de 2615 keV. La valeur doit être aux alentours de  $4,5 \pm 0,5\%$  pour être considérée comme satisfaisante selon les spécifications techniques fournies par le détecteur.
- Le contrôle des fichiers de 30 secondes enregistrés dans la nuit ou la journée pour s’assurer qu’il n’y a eu aucune perte de données sur la période non surveillée,
- Le regroupement des fichiers de 30 secondes enregistrés au sein d’un dossier à la date du jour d’acquisition et le transfert de ce dossier vers le PC de l’IRAP,
- Le **traitement** du dossier journalier contenant l’ensemble des spectres de 30 secondes à partir desquels sont extraits les comptages du  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$  et total. Une routine de traitement permet de déterminer les aires de raie pour chaque spectre et pour chaque cristal. La somme des quatre cristaux de la composante *Down* du détecteur est également indiquée,
- Une **représentation graphique** des 5 cristaux et de la composante indéfinie est ensuite produite permettant un contrôle visuel des variations observées qui doivent être communes entre chaque cristal.

Au cours de ces 14 mois d’acquisition à 49,70 mètres, le détecteur ainsi que les autres instruments ont connu des conditions météorologiques extrêmes et variées (canicule, tempête, neige). La gamme de variation de température de l’air mesurée par les sondes de température à 15m sur le mât, confirmée par les données de Météo-France et de la station InfoClimat, au cours de cette période est de  $-4^{\circ}\text{C}$  à  $+35,3^{\circ}\text{C}$ .

Les cristaux de NaI(Tl) ont donc vu leur température interne varier au cours du temps en atteignant un minimum de  $+18^{\circ}\text{C}$  le 02 Février 2020 pour les cristaux latéraux (1 et 4) et un maximum de  $+62^{\circ}\text{C}$  le 25 Juin 2019 pour les cristaux internes



(2 et 3). La réponse des gains de haute tension automatique a été adaptative aux variations de température journalières ou saisonnières.

Chaque stabilisation effectuée durant ces périodes n'a montré aucune dégradation de la résolution en énergie aux hautes ou aux basses énergies (fenêtre du  $^{137}\text{Cs}$  à 662 keV) ou de la réponse instrumentale du détecteur.

Plusieurs contrôles de la réponse instrumentale des cristaux ont été opérés au cours de ces 14 mois d'acquisitions afin de vérifier que les variations du signal observé n'était pas imputable à une dérive de la température. Un exemple de contrôle est présenté sur la figure 4.16 avec la réponse instrumentale à la présence d'une source radioactive de  $^{40}\text{K}$  superposée au bruit de fond radiologique ambiant mesuré sur le site BOSTON-GRAND-EST. Les données ont été enregistrées le 08/09/2020 à 15:00.

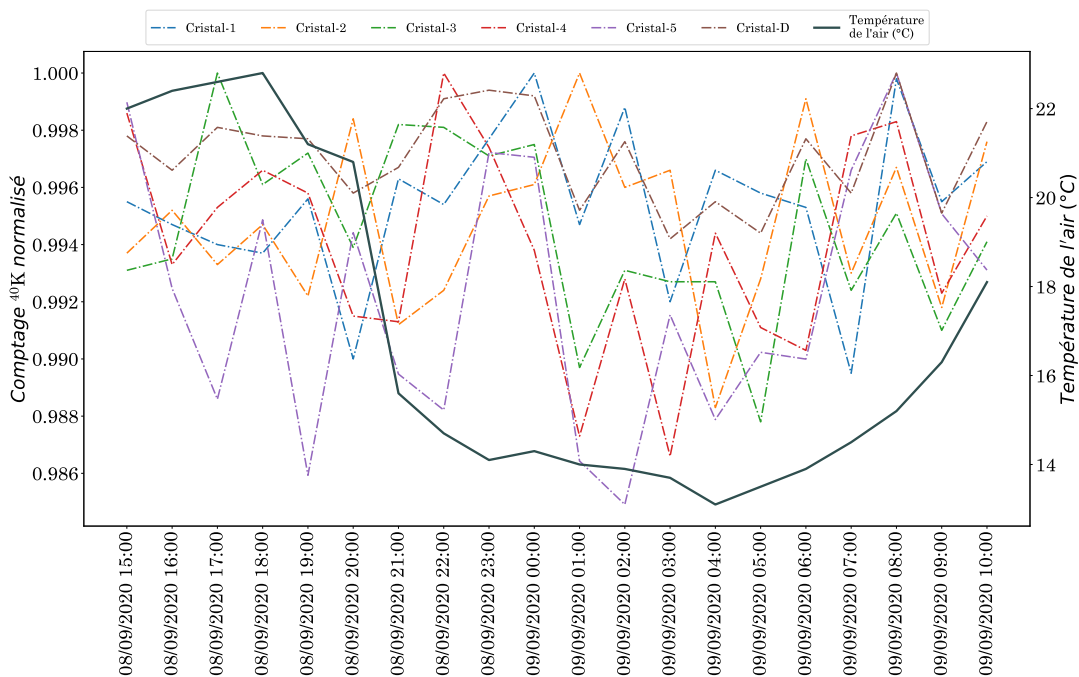


Figure 4.16 – Évolution du taux de comptage, d'une source externe de  $^{40}\text{K}$ , normalisé au maximum de chaque cristal et de la température de l'air en fonction du temps. Avec une amplitude de variation de  $8,3^\circ\text{C}$  pour la température de l'air, le taux de comptage normalisé est constant au cours de cette période de mesure pour chaque cristal. L'amplitude de variation de température de chaque cristal est de  $12^\circ\text{C}$ .

La figure 4.16 représente l'évolution du taux de comptage normalisé au maximum de la fenêtre du  $^{40}\text{K}$  pour chaque cristal et de la température de l'air ( $^\circ\text{C}$ ) sur la période de temps considérée pour ce contrôle de dérive de température. Au cours de cette expérience, l'amplitude de variation de la température de l'air est d'environ  $8,3^\circ\text{C}$  alors qu'elle est en moyenne de  $12^\circ\text{C}$  pour les cristaux ( $30 - 42^\circ\text{C}$ ). Malgré cette évolution de la température des cristaux dans le temps, la réponse instrumentale de chaque cristal à la source radioactive de  $^{40}\text{K}$  est constante sur cette période. La dérive de température est compensée par un gain de haute tension automatique et n'affecte pas le taux de comptage mesuré. Les variations qui découlent de l'évolution du taux de comptage ne sont donc pas inhérentes à un biais instrumental de mesure. Des



fluctuations statistiques naturelles de comptage sont possibles sur ces temps courts d'acquisitions (30 s). Ce type de contrôle a été réalisé 3 fois au cours de ces travaux.

### 4.3.2 Le suivi du compartiment atmosphérique

Au sein du compartiment atmosphérique, de nombreux facteurs environnementaux font l'objet d'un suivi temporel. Parmi eux, le radon-222 atmosphérique, et ses descendants, qui est un des bruits de fond sur le signal  $\gamma$  mesuré ne fait pas encore l'objet d'un suivi sur le site P2OA-CRA.

#### La mesure du radon-222 atmosphérique

Dans le but de comprendre et de corriger l'influence du bruit de fond atmosphérique sur le signal  $\gamma$  mesuré, il faut obligatoirement s'intéresser au gaz radon  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants à vie courte sous fraction libre ou attachée aux aérosols. En ce qui concerne la détection et le suivi du radon-222 atmosphérique, le choix instrumental s'est porté sur des AlphaGUARD®, produit de référence sur ce marché. Ces équipements détectent les rayonnements  $\alpha$  émis par le radon-222 dans l'air présent dans leur chambre d'ionisation. Ils permettent ainsi de déterminer l'activité volumique du radon-222 atmosphérique. Ce type de détecteur est déjà couramment utilisé en environnement extérieur, au sein de mines, ou encore dans les bâtiments.

Ainsi, trois instruments de suivi de l'activité volumique en radon-222 dans l'air ont été calibrés en laboratoire (cf. Chapitre 3) puis déployés sur des paliers de hauteur différents sur la tour instrumentée. En plus de la surveillance de l'activité volumique en radon-222 dans l'atmosphère sur la colonne d'air monitorée et son impact sur le signal  $\gamma$  mesuré, l'influence de l'évolution du profil de radon entre la surface au sol et la hauteur maximale d'installation du troisième détecteur pourra être observée. La couche de demi-atténuation (CDA) du  $^{214}\text{Bi}$ , descendant du  $^{222}\text{Rn}$  par lequel la concentration en  $^{238}\text{U}$  est déduite, est d'environ 115 mètres à 1764 keV [IAEA, 1991]. De ce fait, la mesure du radon atmosphérique est intégrée sur une hauteur approximative de 480 mètres (environ 4 fois la CDA) par le spectromètre  $\gamma$ .

**Configuration mécanique des détecteurs de radon-222 :** Les détecteurs de radon-222 sont installés en conditions extérieures subissant les aléas météorologiques. D'après le constructeur, ces détecteurs AlphaGUARD® ne doivent pas être utilisés pour des mesures environnementales en plein-air sans protection. De plus, si le détecteur et le PC d'acquisition sont distants de plus de 10 mètres, il est nécessaire de passer par un modem de connexion dénommé DataGATE® pour pouvoir communiquer avec le détecteur. Une alimentation électrique en continue est également nécessaire du fait d'une autonomie sur batterie très limitée (10 jours) par rapport au besoin affiché d'une année d'acquisition à minima. Le cahier des charges doit répondre à deux objectifs :

- Protéger le détecteur, son alimentation électrique sur secteur ainsi que le modem de communication.
- Définir une structure d'accroche de l'ensemble du système de mesure, protection incluse.

Le détecteur de radon mesure le radon-222 de l'air ambiant à travers une chambre d'ionisation par un mode de diffusion de l'air. Il faut donc que le système de protection laisse circuler l'air librement pour permettre la mesure de radon-222. Chaque dispositif de mesure se compose d'un détecteur radon et de sa connectique. L'ensemble va être placé dans un coffret électrique, réputé résistant à tous types d'intempéries, aux dimensions  $40 \times 30 \times 20$  cm. Le coffret est aménagé de manière à supporter l'intégration d'un AlphaGUARD®, du DataGATE® et de la connectique.

Le détecteur radon est fixé sur une grille métallique tapissant le fond du coffret (Figure 4.17). La chambre d'ionisation du détecteur radon est orientée vers le bas du coffret électrique. Une grille d'aération passive d'environ 7 cm de diamètre est créée pour permettre la circulation de l'air au sein du coffret (Figure 4.17). Une lumière anti-insectes est installée au niveau de cette grille afin d'éviter l'installation



Figure 4.17 – Coffret de protection des AlphaGUARD® pour l'installation sur la tour instrumentée à 1, 30 et 60 mètres.

**L'installation des détecteurs de radon-222 :** Les boîtiers contenant les moniteurs radon de type AlphaGUARD® ont été installés sur le mât par l'intermédiaire d'un système de fixation préalablement mis en place sur le boîtier de protection.

Le choix des hauteurs d'installation des détecteurs a été décidé pour des questions mêlant intérêts scientifiques et praticité technique. Un espacement le plus important possible entre les détecteurs de radon permet de mieux contraindre la courbe du profil de radon entre le sol et la hauteur maximale du mât.

Par ailleurs, les détecteurs ont besoin d'une alimentation électrique pour assurer un fonctionnement en continu de l'instrument et enregistrer les mesures. En basant sur les installations existantes sur le mât, le système électrique général du mât dispose de trois répartiteurs disposés au sein de trois coffrets électriques avec plusieurs prises de 220V intégrées aux hauteurs 1 m, 30 m et 60 m. Pour ces deux raisons, les détecteurs ont été mis en place le **29 Novembre 2018** aux hauteurs **1 m, 30 m et 60m** (Figure 4.14).

Le choix de répartition des détecteurs sur ces trois hauteurs s'est fait sur la base de la valeur de bruit de fond instrumental préalablement déterminée (cf. Chapitre 5). L'inter-comparaison de la réponse instrumentale à la présence d'une source radioactive ayant donné des valeurs du même ordre de grandeur et de même sensibilité, seule la mesure de bruit de fond instrumental peut orienter ce choix.

En considérant le fait que la teneur en radon-222 à 1 m du sol est plus importante que celle mesurable à 60 m, le détecteur installé à 1 mètre est le détecteur calibré le plus ancien de la flotte d'AlphaGUARD® avec le bruit de fond instrumental le plus grand de  $16,77 \pm 1,44 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Le détecteur EF2082, avec le bruit de fond le plus faible de  $3,94 \pm 0,24 \text{ Bq.m}^{-3}$ , est mis en place à 60 m où l'activité volumique de radon-222 est supposé la plus faible sur la colonne d'air 0 - 60 m. Le détecteur installé à 30 m est donc l'instrument SN2111 présentant un bruit de fond intermédiaire aux deux autres à savoir  $10,17 \pm 0,41 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Un exemple d'installation est présenté

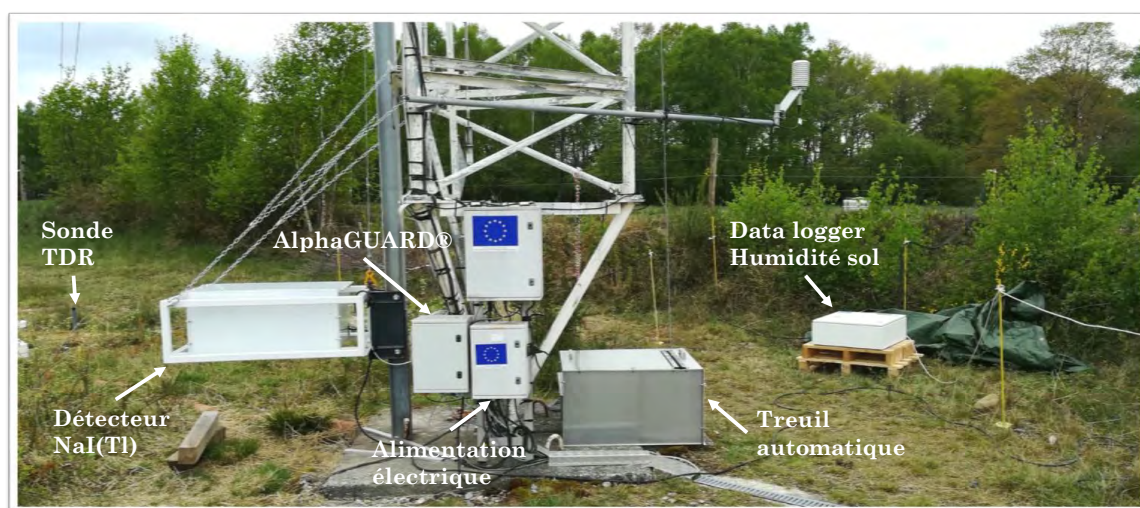


Figure 4.18 – Photographie représentant les instruments déployés sur le site du P2OA-CRA dans le cadre de ces travaux. Le boîtier AlphaGUARD® est dupliqué aux hauteurs 30 m et 60 m.

Les trois détecteurs sont également connectés au PC d'acquisition afin de pouvoir les contrôler à distance et procéder au téléchargement mensuel des données. Ainsi, toutes les opérations tels que le contrôle journalier des enregistrements pour chaque détecteur, le contrôle de l'heure indiquée par le détecteur ou encore le relevé des mesures sont assurées à distance.

**L'acquisition de données :** Au cours de presque **2 années d'acquisition** depuis le 30 Novembre 2018, aucune perte de données n'a été relevée pour les détecteurs de radon du fait de leur grande autonomie de mémoire, presque 6 mois de stockage possible dans le cas d'une mesure horaire par diffusion. Suite à trois coupures électriques, le personnel du CRA a dû intervenir à 3 reprises sur le détecteur à 60 m du fait de la perte de communication entre le DataGATE éteint et le PC. Aucun problème n'est à signaler sur les deux autres moniteurs de radon.

Les mesures se font sur un **pas de temps horaire en mode diffusion**. Ce mode d'acquisition est permis par l'aération passive du boîtier de protection du

dispositif. Une mesure par flux nécessiterait de contrôler le débit programmé et la pompe interne du détecteur ce qui ne serait pas viable sur le long terme, encore plus à distance. L'heure UTC est plus proche de l'heure solaire vraie. Le cycle du radon est directement relié au temps solaire vrai et le P2OA-CRA ne présente qu'un décalage entre UTC et temps solaire vrai d'1 minute et 28 secondes puisque le P2OA-CRA est à 0°22' longitude Est.

### La mesure des descendants du radon - AlphaPM

À la fin de l'année 2019, après une année de mesure complète effectuée par les trois détecteurs de radon installés sur le mât, il a été décidé de mettre en place un suivi continu des descendants du radon. L'objectif de cette mesure est de caractériser le facteur d'équilibre entre le radon-222 et ses descendants à vie courte. Cette expérience permet de déterminer la hauteur à partir de laquelle le facteur d'équilibre entre le radon-222 et ses descendants est égal à 1 où 1 Bq.m<sup>-3</sup> de radon-222 en se désintégrant donne 1 Bq.m<sup>-3</sup> de descendants (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb et <sup>214</sup>Bi). Pour des contraintes budgétaires et techniques, un seul détecteur des descendants du radon-222 (AlphaPM) et le détecteur de radon-222 associé de type AlphaGUARD® nouvelle génération ont été commandés, livrés puis calibrés avant installation sur le site. L'AlphaGUARD® DF2000Pro dispose d'une chambre d'ionisation de volume utile de détection de 0,56 L de même volume que l'ancienne génération d'AlphaGUARD®.

Le protocole de calibration développé et appliqué sur les quatre détecteurs de radon a également été utilisé pour calibrer ce nouvel AlphaGUARD® (Chapitre 5). La procédure de bruit de fond instrumental s'est déroulée sur un total de deux semaines complètes avec flux d'azote de 0,2 mL.min<sup>-1</sup> en compagnie du détecteur de radon resté au laboratoire, EF1456. L'AlphaGUARD® étant neuf, la valeur de bruit de fond déterminée après deux semaines de mesure est de  $1,94 \pm 0,08$  Bq.m<sup>-3</sup>. Cette valeur est très proche de la limite de détection de ce moniteur de radon (2 Bq.m<sup>-3</sup>) donc cela valide la mesure de bruit de fond. La procédure d'inter-comparaison de la mesure de bruit de fond radiologique dans l'enceinte de 290 L a été réalisée sur 24 jours toujours en compagnie du détecteur EF1456. Les résultats sont cohérents avec la valeur de  $45$  Bq.m<sup>-3</sup>  $\pm 1,7$  avec une incertitude sur la mesure, moins importante que pour la précédente mesure de calibration. En ce qui concerne la procédure d'inter-comparaison en présence de la source radioactive de radium (<sup>226</sup>Ra) émettrice de radon (<sup>222</sup>Rn) au sein de l'enceinte hermétique, le nouvel AlphaGUARD® présente la valeur la plus proche de la réalité avec une incertitude moindre,  $1246 \pm 5,6$  Bq.m<sup>-3</sup> et une durée d'expérience de 23 jours effectuée à deux reprises.

Le moniteur de descendants du radon, AlphaPM, mesure les descendants atmosphériques du radon-222 qui sont absorbés en continu par une pompe interne et intercepté sur un filtre dédié (<sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb et <sup>214</sup>Bi). Les particules  $\alpha$  émises à la surface du filtre sont comptées par détecteur silicium. Sur la base des résultats de comptage (nombre total d'impulsions) et du débit correspondant (également mesuré), la concentration de radon à l'équilibre (EEC) est calculée toutes les 10 minutes. Une moyenne horaire est ensuite définie.

Suite à ces trois mois de procédure de calibration du détecteur de radon, une phase de test complémentaire associant les deux détecteurs a été lancée sur deux



périodes de quinze jours en environnement contrôlé au sein de l'IRAP. Dans cette expérience à l'air libre, le réglage de la pompe était de  $2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$  et le temps de mesure choisi pour les deux moniteurs étaient d'une heure. L'objectif était de voir si le facteur d'équilibre au sein d'une pièce non ventilée comme un bureau atteignait une valeur de 0,70 - 0,80 [Ramola et al., 2003, Prasad et al., 2016] ce qui fut le cas.

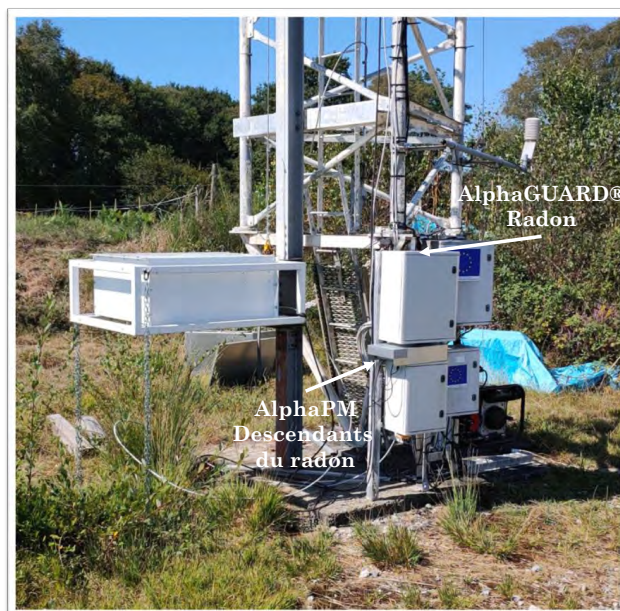


Figure 4.19 – Photographie représentant l'ajout du moniteur AlphaGUARD® nouvelle génération accompagné du détecteur des descendants du radon, AlphaPM, sur le mât instrumenté à une hauteur de 1,50 mètres.

L'installation des deux détecteurs a eu lieu le 08 Septembre 2020 sur le site du P2OA-CRA. Le coffret de protection contenant le nouvel AlphaGUARD® a été mis en place en suivant le même schéma d'installation que les précédents AlphaGUARD® (Figure 4.19). Pour l'AlphaPM, il a fallu penser un autre système de protection car pour obtenir des mesures cohérentes, il ne faut pas que le détecteur soit incorporé dans un boîtier avec aération passive. Un couvercle de protection en aluminium assure son étanchéité (Figure 4.19).

### 4.3.3 Le suivi du compartiment pédologique

Le compartiment atmosphérique n'est pas le seul à être instrumenté pour comprendre l'influence des paramètres préalablement cités sur la mesure du signal  $\gamma$  mesuré. Au sein du compartiment pédologique et tellurique, certains paramètres comme **l'humidité du sol** peuvent affecter le signal  $\gamma$  qui sera détecté par le spectromètre  $\gamma$  aéroporté. La masse volumique du sol est également concernée par son influence sur les pores et donc sur la circulation des gaz et sur la profondeur sondée.

#### La mesure de la masse volumique du sol

La masse volumique apparente d'un échantillon de sol (MVA) est définie comme étant le rapport de la masse sèche à  $105^\circ\text{C}$  de l'échantillon et de son volume à l'état humide. Ce paramètre constitue un indicateur de qualité du sol car elle intervient

dans le calcul de la porosité du sol paramètre essentiel pour son fonctionnement biologique, la colonisation racinaire et la circulation des gaz au sein de ce compartiment. Ce paramètre influe donc sur l'atténuation des rayonnements  $\gamma$  dans le sol.

La **masse volumique apparente** est un paramètre qui présente une valeur standard dans les sols de climat tempéré comprise généralement entre 1,35 et 1,50  $\text{g.cm}^{-3}$ . Cette simplification constitue souvent une source d'erreur non négligeable car la masse volumique apparente d'un horizon de sol peut varier dans une large gamme de 1,00 à 1,80  $\text{g.cm}^{-3}$  [Jalabert et al., 2010, Keller and Håkansson, 2010, Fu et al., 2011, Abdelbaki, 2018]. La mise en œuvre de la mesure de la masse volumique apparente sur le terrain est lourde, destructrice et de ce fait non répétable au même endroit pour le même horizon car elle nécessite le prélèvement direct d'un volume de sol *in situ*. L'utilisation de la **méthode du cylindre** a été privilégiée dans cette étude et est fondée sur la détermination du poids spécifique apparent d'un volume de sol prélevé. Le volume est estimé immédiatement sur le terrain alors que le poids est évalué au laboratoire après séchage et pesée. La connaissance de ces deux variations permet de calculer la densité apparente selon la relation :

$$MVA = \frac{P}{V} \quad (4.1)$$

avec MVA la masse volumique apparente du sol, P le poids de l'échantillon exprimé en grammes ou en kilogrammes et V le volume de l'échantillon prélevé et séché ou volume du cylindre en  $\text{cm}^{-3}$  ou  $\text{m}^{-3}$ .

Des deux variables, le volume apparaît comme le plus délicat car sa détermination nécessite beaucoup d'attention et de doigté [Audry et al., 1972]. Le protocole mis en place pour la mesure de la densité apparente, suivant les recommandations de la norme ISO 11272 :2017(fr), a consisté à :

- Prélever un échantillon de sol humide à l'aide d'un cylindre lisse à l'intérieur et à l'extérieur du contenant. Ce cylindre est en aluminium d'épaisseur 5 mm, de diamètre 15 cm et de hauteur 10 cm, calibré et enfoncé dans le sol comme un emporte-pièce,
- Préparer un récipient de poids connu allant à l'étuve,
- Vider l'échantillon de sol prélevé dans le récipient et peser l'ensemble,
- Mettre le récipient avec l'échantillon à l'étude pour séchage à 105°C pour environ 24 à 48 heures,
- Peser régulièrement jusqu'à obtenir 3 valeurs successives similaires garantissant un échantillon sec. La différence entre la masse humide et la masse sèche permet d'accéder à la masse d'eau contenue dans le sol et donc le volume,
- Déterminer la valeur de densité apparente du sol à partir de l'équation 4.1.

Un nombre total de 22 mesures de densité apparente a été effectuée sur le site P2OA-CRA à proximité de la zone de la tour instrumentée sur les années 2018 et 2019 (Figure 4.20). Les quinze cercles représentent les localisations géographiques des prélèvements. Les sept zones identifiées les plus à l'Ouest (Figure 4.20) ont pu bénéficier d'une deuxième mesure à proximité immédiate du premier prélèvement à une autre date. Les mesures sont opérées suivant le protocole dédié sur la couche superficielle de sol.





Figure 4.20 – Orthophotographie du site P2OA-CRA de résolution 50 cm. La tour instrumentée est marquée par un cadre rouge. Les cercles représentent les zones de mesure de la densité apparente du sol. Les cercles jaunes ont une gamme de valeur similaires y compris sur la mesure de répétabilité (environ  $1,20 \text{ g.cm}^{-3}$ ). Le cercle bleu montre une densité apparente supérieure ( $1,50 \text{ g.cm}^{-3}$ ). Crédit : Solène Derrien.

Les cercles jaunes identifient les sites où les masses volumiques apparentes sont similaires entre elles y compris pour les deuxièmes mesures effectuées sur les sept zones à d'autres saisons. La gamme de valeur s'étend entre une valeur minimale de  $1,142 \pm 0,093 \text{ g.cm}^{-3}$  et une valeur maximale de  $1,258 \pm 0,105 \text{ g.cm}^{-3}$ . La médiane est à  $1,204 \pm 0,0529 \text{ g.cm}^{-3}$  montrant une relative homogénéité dans les mesures. Sur un aspect visuel, les sols observés sur ces zones étaient relativement uniformes entre eux et de couleur brun foncé caractéristique d'un sol riche en matières organiques, avec une végétation basse de type pâturage. Le cercle bleu présente une densité apparente beaucoup plus importante,  $1,513 \pm 0,132 \text{ g.cm}^{-3}$ . Le sol était différent avec une couleur jaune ocre et une texture beaucoup plus lisse de type argileuse. De la végétation très clairsemée était présente sur ce terrain. Enfoncer le cylindre dans ce sol fut nettement plus délicat. Les valeurs observées sont inférieures d'environ  $0,30 \text{ g.cm}^{-3}$  aux mesures dans les sols standards des zones climatiques de type tempéré.

Suite à ces observations, une **densité apparente moyenne** fixe dans le temps est déduite pour la zone autour de la tour instrumentée de  $1,200 \pm 0,050 \text{ g.cm}^{-3}$ .

### Le suivi de l'humidité volumique du sol

Le suivi de la teneur en eau volumique est réalisé *in situ* par l'intermédiaire de sondes TDR préalablement calibrées (Cf. Chapitre 3) et connectées à une centrale d'acquisition.

**L'installation des sondes TDR - ThetaProbe® :** Les 9 sondes TDR de type *ThetaProbe* ont toutes les mêmes dimensions : un diamètre de 40 mm et une longueur totale, électrodes incluses, de 158 mm. Les trois électrodes qui sont en acier inoxydable mesurent 60 mm en longueur pour un diamètre de 3 mm. Le volume d'échantillon monitoré par une sonde est de 169 cm<sup>3</sup> pour une surface d'intégration de diamètre 30 mm et de hauteur 60 mm. Ces sondes mesurent la teneur en eau volumique des sols avec une incertitude de mesure de 1%. Il s'agit d'une mesure intégrée sur la profondeur donnée par la hauteur de la sonde (6 cm). Elles fonctionnent pour une gamme de températures du sol variant entre -20 et +60°C avec une précision de mesure de  $\pm 0,75^\circ\text{C}$ .

L'installation des sondes et de la centrale d'acquisition automatique a été réalisé le **29 Avril 2019** dans l'après-midi en parallèle du déploiement du spectromètre NaI(Tl) sur le mât. Une installation verticale à partir de la surface du sol est la méthode utilisée. Une installation horizontale, par mise en place d'une fosse pédologique, ne pouvait être réalisée. L'utilisation de sondes de différentes longueurs, *via* des tubes d'extension par exemple, permet d'estimer un profil de teneur en eau du sol par comparaison des résultats obtenus pour chaque sonde.

L'installation des sondes doit être réalisée avec le maximum de précaution pour éviter de perturber le sol [Robinson et al., 2003]. Pour l'insertion des sondes en profondeur, un pré-trou exécuté à la tarière de diamètre 4 cm est réalisé en amont de l'installation. La présence d'hétérogénéités autour des sondes et notamment la présence d'air peuvent fortement perturber la mesure de teneur en eau [Knight, 1992]. Il faut donc s'assurer qu'une poche d'air ne s'est pas formée en bout de sonde.

Le site d'installation des neuf sondes se situe sur un terrain de pâturage surplombant la base d'installation de la tour instrumentée d'environ 1,20 mètres. C'est une surface plane, non remaniée et non perturbée par des activités anthropiques qui a le mérite d'être dans le champ de vue du NaI(Tl) quand celui-ci effectue ses mesures à 50 mètres. Le sol présent est caractéristique du site P2OA-CRA (cf. Chapitre 3) et la profondeur de sol à cet endroit est d'environ 1 mètres.

Sur les neuf sondes, sept sont installées dans cet enclos dans le but de monitorer la teneur en eau volumique du sol en surface et en profondeur par l'intermédiaire d'un profil couvrant les 50 premiers centimètres du sol, profondeur maximale intégrée par le spectromètre NaI(Tl) (Figure 4.21). Deux sondes sont installées sur la même ligne horizontale au contact direct de la surface du sol, les électrodes intègrent donc une mesure de la profondeur 0 - 6 cm permettant le suivi de la teneur en eau volumique dans la couche superficielle du sol. La comparaison des mesures de ces deux sondes distantes de 4 mètres assure la représentativité des enregistrements sur cette couche superficielle. Les incertitudes sur la mesure reposent principalement sur le développement végétal non uniforme sur ces deux sections et donc sur la perturbation inégale sur le signal. Les cinq autres sondes sont déployées à différentes profondeurs entre la surface et 50 cm de profondeur, avec un pas de 10 cm (centre des tiges), par l'intermédiaire de tubes d'extension afin d'établir un suivi du profil de la teneur en eau volumique du sol dans cette section (Figure 4.14). La distance entre les sondes est comprise entre 1 et 2 mètres et est fonction de la topographie du terrain et de la présence de végétation.

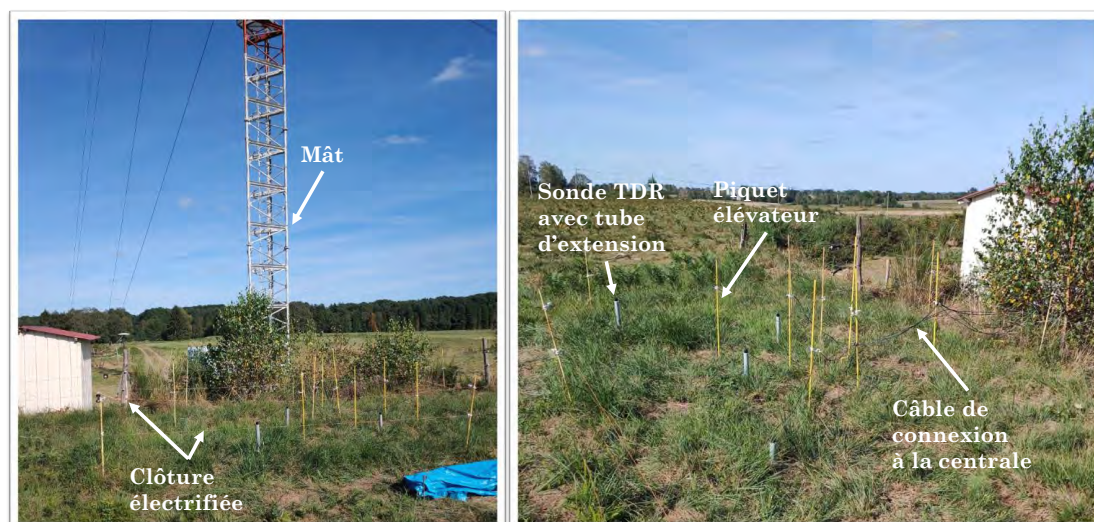


Figure 4.21 – Installation des sondes TDR ThetaProbe sur le site P2OA-CRA. Un total de 9 sondes est déployé pour permettre le suivi de la teneur en eau volumique. 3 sondes intègrent une mesure pour la couche superficielle (0-6 cm). 5 sondes sont utilisées pour mesurer l'évolution du profil de l'humidité du sol.

Les deux dernières sondes ont été mises en place à proximité du pluviomètre en respectant une distance de 2 mètres avec cet instrument. Le choix d'installer deux sondes à ce niveau, l'une au contact de la surface pour mesurer la teneur en eau volumique de la couche superficielle (0 - 6 cm), l'autre à 30 cm de profondeur pour intégrer les profondeurs de 27 à 33 cm, s'est fait sur la base d'un changement de la nature du terrain observé. C'est un terrain remanié composé d'argiles et de limons des horizons plus profonds qui fait suite à l'installation de la dalle en béton du mât et de la tour il y a de nombreuses années. Ce terrain présente une densité apparente supérieure au terrain de l'enclos avec les sept autres sondes,  $1,55 \pm 0,08 \text{ g.cm}^{-3}$  similaire à celle de la zone cerclée de couleur bleu observée sur la figure 4.20. Les deux sondes sont distantes de 1,20 mètres.

**L'acquisition des teneurs en eau volumique *in situ* :** Toutes les sondes sont directement reliées à la centrale d'acquisition automatique installée en contrebas de ce talus et à proximité immédiate du mât (Figure 4.14). La localisation de la centrale a été contrainte pour permettre son alimentation en électricité depuis la cabane à proximité du mât. La communication avec le PC d'acquisition pour accéder aux données en continu est également assurée.

Tout comme les autres instruments, la date et l'heure de la centrale d'acquisition automatique sont programmées sur le temps universel coordonnée (UTC). Le pas de mesure de chaque sonde est fixé sur **10 minutes**, temps minimal d'intégration autorisé par le logiciel d'acquisition et de traitement mis à disposition sur le PC d'acquisition dans la cabane. Cette période de mesure est suffisante pour observer les effets des précipitations sur la teneur en eau volumique mesurée dans les sols notamment sur les couches superficielles. Sur toute la période du 29 Avril 2019 au 30 Juin 2020, 13 jours complets et successifs de mesures ont été perdus à la fin du mois d'Avril-début Mai 2020 suite à la Covid-19.

Une routine de traitement des données acquises a été réalisée. Elle permet, après avoir effectué un contrôle automatique des données *via* un filtre des valeurs négatives, nulles ou non acquises, la constitution d'une chronique complète de la teneur en eau volumique en fonction du temps pour l'ensemble des sondes. Sur un jeu de données total de 61632 mesures sur la période du 29 Avril 2019 au 30 Juin 2020 et en incluant les 13 jours de données perdus, un nombre de 2128 mesures d'intervalle de 10 minutes ont été filtrées par la routine. Ceci représente 3,45% de la chronique totale. En excluant ces 13 journées de données perdues, seuls 0,42% du jeu de données ont été exclus de la chronique complète. Dès lors que les bases de données traitées ont été reconstituées, des représentations graphiques de la chronique totale et de la dernière semaine de données enregistrées sont produites automatiquement pour vérifier de manière visuelle les variations d'amplitudes et temporelles observées pour ce paramètre.

La technologie TDR permet une mesure fiable de la teneur en eau volumique des sols. Cette méthode de suivi du paramètre humidité du sol pour ces travaux s'est avérée concluante car elle répondait à un besoin de couverture spatiale limitée (échelle métrique) et temporelle longue avec acquisition d'une chronique sur une période minimum d'une année. Le temps nécessaire à la calibration des sondes avec des sols remaniés issus du site à caractériser puis l'installation des sondes sur le site avait été préalablement considéré (cf. Chapitre 5).

Pour une campagne de mesures aéroportées, l'emploi d'un tel dispositif pourrait s'avérer contraignant et inadapté si les sols couverts par le plan de vol sont très hétérogènes. La mesure de teneur en eau volumique du site suivi n'est pas forcément adaptée pour des terrains ou des horizons avec des compositions structurales et chimiques différentes. Une sonde TDR portable permettant d'opérer des mesures au sol de teneur en eau volumique sur toute la surface couverte par le plan de vol est une solution plus adaptée à une campagne ponctuelle de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. La calibration de la sonde portable TDR avec le sol *in situ* reste préconisée pour garantir des résultats cohérents.

Les mesures de la teneur en eau volumique par technologie TDR *via* l'utilisation de sondes directement insérées dans le sol restent contraintes par la couverture surfacique possible, d'un diamètre de l'ordre du mètre.





# 5

## La caractérisation radiologique du site pilote

---

*"Goutte à goutte, l'abreuvoir se remplit" (Proverbe grec).*

---





## Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>La caractérisation radiologique du site étudié . . . . .</b>	<b>157</b>
5.1.1	CREMP® : la spectrométrie $\gamma$ pédestre . . . . .	157
5.1.2	La spectrométrie $\gamma$ <i>in situ</i> par un détecteur BGO . . . . .	160
5.1.3	Les échantillons de sols : caractérisation radiologique et chimique en laboratoire . . . . .	166
<b>5.2</b>	<b>Analyses des échantillons de sol . . . . .</b>	<b>168</b>
5.2.1	La préparation des échantillons, une étape cruciale . . . . .	168
5.2.2	Le laboratoire LAFARA . . . . .	170
5.2.3	Un conditionnement hermétique pour une mesure sans fuite	171
5.2.4	Le Thorium-232 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	174
5.2.5	L'Uranium-238 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	176
5.2.6	Le Potassium-40 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	180
5.2.7	Le Césium-137 dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	181
5.2.8	Bilan sur les activités massiques dans les sols du site P2OA-CRA . . . . .	184
5.2.9	Fluorescence X . . . . .	184
5.2.10	La concentration effective en radium-226 - $EC_{Ra}$ . . . . .	186
<b>5.3</b>	<b>Le flux d'exhalaison en radon à l'interface sol-atmosphère</b>	<b>188</b>
5.3.1	Les mesures de flux d'exhalaison du radon . . . . .	188

---

## 5.1 La caractérisation radiologique du site étudié

L'objectif de ce chapitre sur le site P2OA-CRA est de parvenir à une compréhension radiologique de la structure générale du site. Pour cela, des mesures dédiées invasives ou non invasives existent. L'utilisation de la spectrométrie  $\gamma$  *in situ* sans destruction du sol en place ou avec destruction du sol en place par prélèvements d'échantillons analysés en laboratoire permet de connaître leurs compositions chimique et radiologique, la concentration effective en  $^{226}\text{Ra}$  ou encore établir un profil de  $^{137}\text{Cs}$  au sein d'une colonne de sol.

En préambule de l'installation du spectromètre NaI(Tl) sur la tour instrumentée de 60 mètres, une étude sur la radioactivité environnementale du site a été opérée afin de déterminer le potentiel radiologique du site. Dans ce cadre, deux diagnostics radiologiques ont été réalisés par l'intermédiaire de deux types de scintillateur inorganique portable ou mobile pour mesurer le signal  $\gamma$  émis par le sol, pour la même profondeur sondée que celle du NaI(Tl). La caractérisation radiologique qui découle de l'analyse des deux diagnostics va permettre de délimiter des zones d'intérêt ou de confirmer celle identifiées de manière visuelle et orienter une campagne d'échantillonnage du compartiment sol afin de mesurer les activités massiques du  $^{232}\text{Th}$ , de  $^{238}\text{U}$  et de  $^{40}\text{K}$  en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec en laboratoire d'analyses radiologiques à bas bruit de fond. Trois campagnes de terrain ont été nécessaires pour mener à bien cette caractérisation radiologique du site autour du mât instrumenté : du 28 au 30 Mai 2018, les 14, 15, 18 et 19 Juin 2018. Les conditions climatiques n'étaient pas totalement les mêmes durant ces campagnes de terrain et notamment entre la première du mois de Mai et les deux du mois de Juin. Un temps élément nuageux à pluvieux avec des températures de l'ordre de 15 à 20°C a accompagné la première campagne. Au contraire, un temps sec et plus chaud avec des températures oscillant entre 23 et 30°C dominait les deux autres campagnes de mesure, ponctué par un orage estival lors de la dernière campagne comme cette région sait en proposer. Des variations de concentration peuvent être attendues.

### 5.1.1 CREMP® : la spectrométrie $\gamma$ pédestre

#### Présentation du système CREMP®

Le système de spectrométrie  $\gamma$  mobile CREMP® a été mis en œuvre par le Service de Protection des Rayonnements (SPR) du CEA pour répondre à un besoin de cartographie de la radioactivité environnementale où le déploiement d'un système aéroporté est trop lourd. La surface de sol couverte par ce système varie en fonction de l'opérateur (taille et vitesse), de la topographie du site et des conditions météorologiques présentes. Ce système permet de cartographier le comptage total exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$  dans la fenêtre d'énergie 60 - 1500 keV pour des mesures enregistrées toutes les secondes.

CREMP® est un système pédestre de spectrométrie  $\gamma$  constitué d'une sonde NaI(Tl) disposant d'un cristal de diamètre 5,08 cm et d'épaisseur 1,27 cm proposée par la société CANBERRA. Cette sonde est fixée à la base d'une tige de carbone sur laquelle est aussi mis en place à son sommet un système de positionnement de type GPS différentiel. Cette tige en carbone peut être extensible en fonction de la taille de l'opérateur. Porté dorsalement, ce système est facile d'utilisation de ce dispositif

pour un opérateur. La distance entre la sonde NaI(Tl) et le sol doit être fixe tout au long de la mesure pour ne pas engendrer un biais lié à la hauteur surface-instrument. Une tablette numérique d'acquisition complète ce système. La sonde NaI(Tl) et le GPS différentiel y sont reliés par des câbles de communication et les mesures entre ces deux instruments sont synchronisées permettant de référencer spatialement la valeur de comptage total mesuré à l'instant  $t$ . La zone investiguée doit être quadrillée par l'opérateur avec des lignes espacées de 1 à 2 mètres d'après les conseils du SPR. L'opérateur équipé de CREMP® peut adapter sa vitesse de marche en fonction de la densité de points de mesure souhaitée sur la surface au sol à couvrir. Le maillage recommandé est fixé à 1 pas toutes les secondes ce qui va impacter la superficie couverte en fonction de l'opérateur.

### Le relevé du comptage total

Un relevé pédestre du signal  $\gamma$  a été effectué autour du mât météorologique pendant ces campagnes de terrain. L'objectif est de reconstituer le taux de comptage total du sol, en  $\text{c.s}^{-1}$ , dans la zone de sensibilité du spectromètre pour cartographier les variations spatiales du sol. L'étude consiste en des mesures intégrées de 1 seconde du signal  $\gamma$  représentant le comptage total dans une fenêtre d'énergie de 60 à 1500 keV avec une distance fixe entre la sonde  $\gamma$  NaI(Tl) et la surface du sol de 20 cm.

La carte interpolée de la surface de 40000  $\text{m}^2$  couverte autour du mât (triangle blanc) par le logiciel Kartotrak® est présentée sur la figure 5.1(b) et a nécessité environ 80 heures de marche pour en acquérir les données.

Cette carte montre quelques variations spatiales avec un taux de comptage total allant de 60 à 160  $\text{c.s}^{-1}$ . Les valeurs les plus faibles (60 à 80  $\text{c.s}^{-1}$ ) coïncident avec des prairies permanentes aménagées sur les véracrisols profonds. Les valeurs les plus élevées (140 à 160  $\text{c.s}^{-1}$ ) sont représentatives du matériau parental du sol dans cette région, un limon argileux ocre typique (zone rouge sur la figure 5.1(b)). La plupart des zones caractérisée par un taux de comptage total variant entre 110 et 130  $\text{c.s}^{-1}$  est associée aux matériaux profonds remobilisés à la surface (petit cailloutis ocre et gréseux), comme à proximité des points d'ancrage du mât, sur le chemin d'accès en gravier et autour de la ravine d'écoulement artificiel (Figure 5.1(b)). Les matériaux excavés et remobilisés en surface du sol de type cailloutis gréseux ocre font partie de la couche superficielle de sol pour ces zones identifiées. Ces cailloutis gréseux riche en limons et argiles avaient été identifiés sur le site. Ils semblent présenter une radioactivité plus importante que le véracrisol en place non remanié et constitué principalement de terre végétale et matière organique. Une différence sur le comptage total mesuré d'environ 30  $\text{c.s}^{-1}$  caractérise ces deux typologies de terrain.

Les chemins d'accès constitués de graviers sont clairement identifiables sur la figure 5.1(b). Le taux de comptage total mesuré est similaire à celui observé sur les véracrisols remaniés avec des valeurs autour de 110 et 120  $\text{c.s}^{-1}$ . Toute la zone à proximité immédiate du mât constituant le parking en graviers présente des taux de comptage entre 110 et 130  $\text{c.s}^{-1}$  quasiment identiques à celui des chemins d'accès. Cet apport anthropique avec des matériaux extérieurs au site P2OA-CRA est clairement identifiable par cartographie avec une augmentation du comptage total. Toutefois, les valeurs de comptage associées à ces zones sont dans la gamme des valeurs moyennes observées sur le site et ne sont donc pas considérés comme un biais avéré à la mesure de radioactivité naturelle du site.

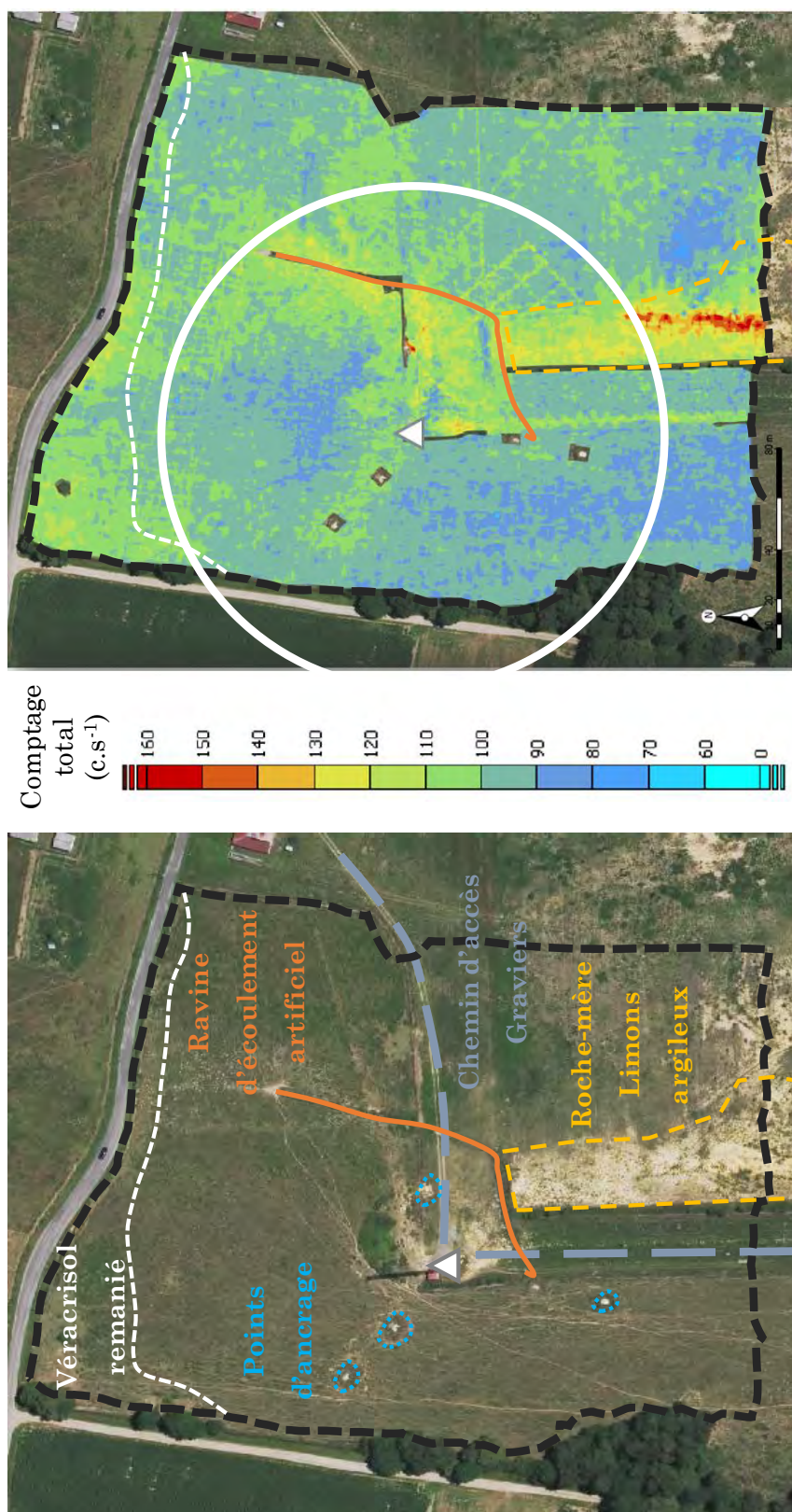


Figure 5.1 – Carte interpolée (Kartotrak®) du comptage total en  $c.s^{-1}$  pour la gamme d'énergie 60 - 1500 keV avec le système pédestre de suivi des rayonnements  $\gamma$  CREMP®. Le site montre des variations spatiales autour du mât comprises entre 60 et 160  $c.s^{-1}$ . Les taux de comptage les plus élevés se situent au niveau des limons argileux, qui est le matériau parental des sols alentours. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%.

La caractérisation radiologique de la zone autour du mât instrumenté avec le système de spectrométrie  $\gamma$  pédestre CREMP® confirme une variabilité spatiale latérale et en profondeur des valeurs de radioactivité comme supposé dans les observations de terrain *via* les études géologiques et pédologiques. Cette distribution hétérogène pourra être prise en compte dans le cadre de simulations futures de la réponse du détecteur NaI(Tl), installé sur le mât, au signal  $\gamma$  inhérent aux activités massiques de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$  de ces sols.

### 5.1.2 La spectrométrie $\gamma$ *in situ* par un détecteur BGO

La cartographie radiologique *in situ* du site avec un spectromètre  $\gamma$  de type germanate de bismuth (BGO) va nous permettre de caractériser les concentrations en potassium, thorium et uranium autour du mât. Les valeurs de concentrations sont données pour une profondeur de sol de 30 cm environ pour une emprise au sol de 1 mètre de diamètre.

#### Le spectromètre portable de type BGO

Le spectromètre RS-230 BGO de la société Radiations Solutions est l'un des appareils portatifs les plus employés dans le cadre de relevé gamma pour les applications géophysiques (Source : [www.daxan.co.uk/radiation-solutions-rs-230](http://www.daxan.co.uk/radiation-solutions-rs-230)). Ce type de détecteur est généralement utilisé dans le cadre d'une spectrométrie  $\gamma$  à haute énergie ( $> 1$  MeV) avec une plage de comptage total estimée entre 30 keV et 3 MeV. La performance d'un germanate de bismuth de volume  $103\text{ cm}^3$  de densité supérieure à celle d'un NaI(Tl) est approximativement égale à 80% de celle obtenue avec un NaI(Tl) de volume  $390\text{ cm}^3$ . Il présente donc une plus grande sensibilité que le NaI(Tl) pour un cristal de même volume. Avant chaque utilisation, une stabilisation automatique par les radioéléments naturels est opérée par le détecteur. Très dépendant des effets de dérive de température, ce détecteur nécessite de procéder à une récupération de la température locale avant de l'utiliser.

Le détecteur peut effectuer une mesure des concentrations de  $^{232}\text{Th}$  en ppm (2615 keV),  $^{238}\text{U}$  en ppm (1764 keV),  $^{40}\text{K}$  en % (1461 keV) et de la dose en  $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$  pour un pas de temps compris entre 30 et 1800 secondes. Le volume de sol considéré est très limité par rapport à celui intégré par le spectromètre NaI(Tl) à 50 mètres sur la tour. Ces concentrations sont calculées directement par le spectromètre à partir de l'analyse spectrale effectuée par le détecteur et utilisant les paramètres et coefficients fournis par le constructeur pour convertir les comptages mesurés en concentration. Associé à un GPS d'une précision moyenne d'un mètre environ, le détecteur peut enregistrer les coordonnées géographiques de chaque point de mesure effectué.

#### Les concentrations en $^{232}\text{Th}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{40}\text{K}$ mesurées par le BGO

Pour s'assurer de la mise en œuvre complète de cette caractérisation, un protocole a été mis en place pour organiser et préparer les acquisitions. Son objectif est de palier au facteur limitant de temps de mesure répétitive réalisés par un opérateur.

Le temps d'intégration de mesure décidé pour cette campagne de caractérisation radiologique *in situ* avec ce spectromètre portable est de 300 secondes. Cette durée d'acquisition est considérée comme suffisante pour permettre une statistique de



comptage relativement importante et s'assurer de la qualité de la donnée. Le temps moyen pour une mesure est de 600 secondes en prenant en compte le déplacement entre chaque point de mesure ainsi que la phase de stabilisation automatique du détecteur. Ce paramètre est limitant en terme de couverture géographique par rapport à la résolution spatiale atteinte avec CREMP® et son temps de mesure d'une seconde. De ce fait, il a été considéré que la caractérisation radiologique par spectrométrie  $\gamma$  *in situ* devait se consacrer à des mesures au sein de l'emprise spatiale observée par le détecteur NaI(Tl) à une hauteur de 50 mètres.

Une grille de mesure de forme carrée centrée sur la tour instrumentée (origine du repère) a donc été établie en conséquence (Figure 5.2). Chaque côté de grille mesure 140 mètres, où 15 lignes espacées de 10 mètres chacune permettent la mise en place d'un quadrillage interne au sein de la grille. L'intersection des lignes verticales et horizontales constitue la localisation de chaque point de mesure avec le détecteur BGO. À partir de la figure 1.8, la proportion du signal provenant de la région sondée par le BGO est d'environ 60% pour le  $^{40}\text{K}$  et de 65 à 70% pour  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  en considérant un rayon de 70 m. Les valeurs de concentrations mesurées peuvent ensuite être extrapolées à la majorité de la surface analysée par le spectromètre sur le mât, au vu des analyses pédologiques faites et des relevés plus ponctuels mentionnés ci-dessous. Ainsi, l'espacement de 10 mètres entre les lignes et donc entre chaque point de mesure est à la fois suffisamment importante pour observer une certaine variabilité spatiale des concentrations entre les différentes typologies de sols et suffisamment resserrée pour s'assurer qu'au sein de chaque typologie une homogénéité spatiale des concentrations est observable.

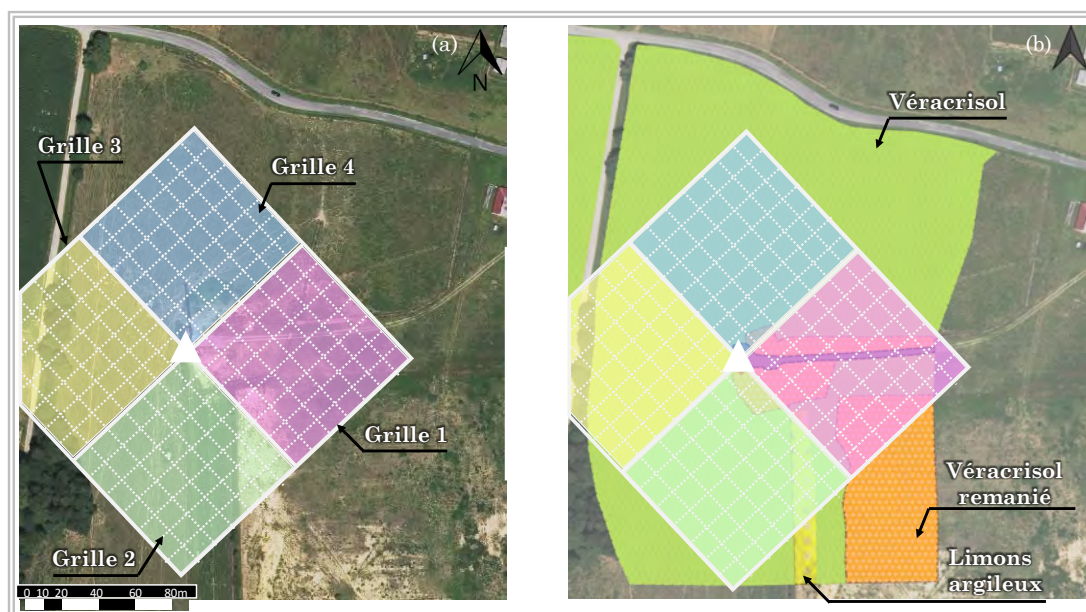


Figure 5.2 – Grille générale de mesure centrée sur la tour instrumentée (triangle blanc) servant de points de repères géographiques pour les mesures *in situ* effectuées avec un spectromètre de type BGO. La grille est représentée par un carré de côté 140 mètres et l'espacement entre chaque ligne est de 10 mètres. 4 sous-ensembles sont identifiées sur une carte globale du site (a) et sur une carte des typologies de sols observés sur le site autour du mât (b).



La grille générale a été découpée en quatre sous-espaces dénommés *Grille 1*, *Grille 2*, *Grille 3* et *Grille 4* comportant chacune 7 à 8 lignes de mesure correspondant à 70 ou 80 mètres avec 7 à 8 points de mesure par ligne. Chaque ligne est représentée par une lettre de A à H avec pour préfixe son numéro de grille, les points de mesure sont ensuite identifiés par un chiffre de 1 à 8. Par exemple, le point de nomenclature 2H3 correspond au point numéro 3 de la ligne H de la grille 2.

Ce deuxième découpage permet de s'assurer que les 49 à 56 points de mesure d'un sous-ensemble de la grille générale puissent être enregistrés au cours de la même journée. La veille de chaque journée de mesure sur une grille, le sous-ensemble de la grille est matérialisé au sol par une structure constituée de ficelles facilitant l'identification des points de croisement entre les lignes et donc les points de mesure de spectrométrie  $\gamma$  *in situ*.

Chaque intersection est matérialisée *en dur* par un piquet de jardinage portant le nom affilié au point de mesure. Une photographie de chaque mesure est réalisée permettant une traçabilité dans les données et une vérification visuelle du terrain mesuré en post-traitement. Un total de 4 jours incluant 10 heures de mesure permettra de tenir les délais imposés par ce protocole. Ce délai ne tient pas compte de la mise en place préalable de la structure ficelée.

Pour qu'une continuité des acquisitions soit vérifiée entre chaque jour de mesure et entre chaque campagne de terrain, trois points de contrôle sont mesurés à chaque nouvelle mission le matin et en fin de journée en conditions sèches. Des points de mesure complémentaire ont également été réalisés sur des zones d'intérêt y compris sur des champs en culture à proximité du P2OA-CRA.

Le spectre obtenu pour chaque point de mesure a été contrôlé pour s'assurer de la bonne qualité de la mesure (Figure 5.3). Une comparaison des spectres par ligne d'acquisition a été réalisée pour vérifier que l'ensemble des points d'une même ligne ait le même protocole de mesure à savoir un détecteur BGO stabilisé lors d'...

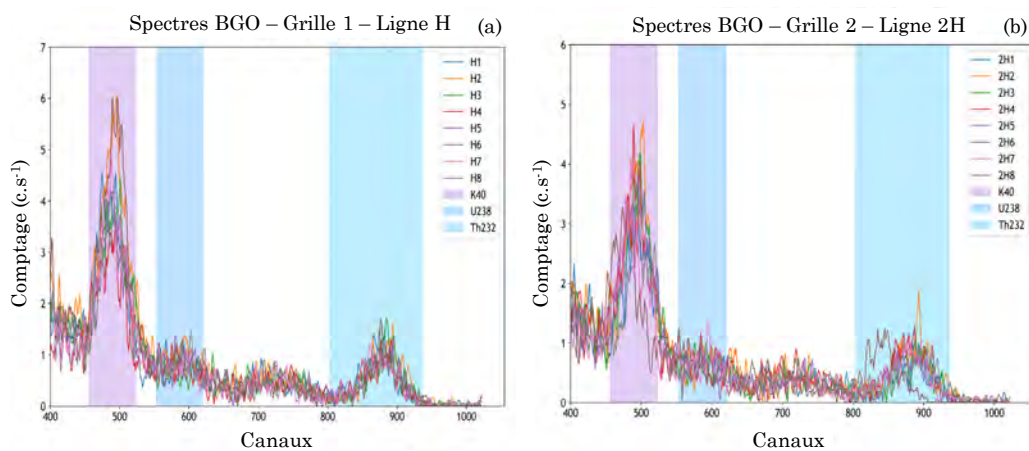


Figure 5.3 – Spectres BGO acquis sur l'ensemble des points de mesure de 2 lignes de la grille générale. (a) Le premier graphique montre une excellente superposition des photopics d'absorption totale des spectres sur les fenêtres de canaux souhaitées. (b) Le second graphique présente un spectre en décalage pour le point de mesure 2H6.

Une routine de traitement développée pour cette étude vérifie automatiquement pour chaque spectre acquis que le maximum du photo-pic d'absorption totale de chaque radionucléide d'intérêt,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$ , est bien centrée sur son énergie, 2615 keV, 1764 keV et 1461 keV, plus ou moins 5 keV (Figure 5.3). Sur le premier graphique de la figure 5.3, une excellente superposition des spectres est observée. Sur le deuxième graphique, le spectre acquis au niveau du point de mesure 2H6 est en décalage avec les autres spectres de la même ligne de mesure. Chaque photopic d'absorption totale n'est plus centré sur son énergie plus ou moins 5 keV. Un problème de stabilisation du détecteur est à l'origine de ce décalage d'après le contrôle qualité. Une nouvelle mesure a donc été opérée pour ce point.

Dès lors que les données ont été contrôlées et validées, des cartographies des concentrations en équivalent  $^{232}\text{Th}$ , équivalent  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$  issues des mesures BGO ont été réalisées à partir des coordonnées géographiques de chaque point de mesure (Figure 5.4).

#### **Le thorium-232 :**

Les **concentrations en équivalent  $^{232}\text{Th}$**  ont une distribution hétérogène au niveau de la grille générale (Figure 5.4(a)). Un axe de séparation entre deux zones se dégage, isolant d'un côté les points de mesure des sous-ensembles de grilles 2 et 3 avec une valeur moyenne de  $4,53 \pm 0,27$  ppm, et d'un autre les points de mesure des sous-ensembles de grille 1 et 4 qui présentent des valeurs moyennes supérieures,  $6,12 \pm 0,23$  ppm et  $7,90 \pm 0,25$  ppm.

Les concentrations les plus élevées (11 à 12 ppm) se situent au niveau des limons argileux, des terrains remaniés près de la ravine d'écoulement, à proximité des points d'ancrage, du chemin d'accès et du parking en graviers ainsi qu'au niveau du véracrisol remanié en surface par l'excavation des matériaux profonds du fossé d'évacuation de l'eau de la route.

Les concentrations les plus faibles sont concentrées principalement sur les véracrisols profonds à destination pastorale et riches en matières organiques où le limon argileux est à 1 mètre de profondeur. Ces valeurs communes entre le limon argileux à l'affleurement et les cailloutis gréseux retrouvés en surface suite à l'excavation de matériaux profonds semblent confirmer le fait que tout le sol du site a été développé sur un limon argileux jaune à galets. La concentration moyenne en équivalent  $^{232}\text{Th}$  sur toute la grille est de  $6,43 \pm 0,26$  ppm.

#### **L'uranium-238 :**

Les **concentrations en équivalent  $^{238}\text{U}$**  ont également une distribution hétérogène au niveau de la grille générale (Figure 5.4(b)). Toutefois, à la différence des concentrations en équivalent  $^{232}\text{Th}$ , seule la grille 1 se démarque des 3 autres grilles. La valeur moyenne au sein de cette grille est de  $2,43 \pm 0,13$  ppm alors que l'on atteint la valeur de  $1,25 \pm 0,11$  ppm pour les autres sous-ensembles.

Les points de mesure où les concentrations sont élevées sur les grilles 2, 3 et 4 sont associés à des taupinières avec remontée de matériel plus profond et à la proximité avec les dalles de béton des points d'ancrage du mât. Les concentrations élevées au sein de la grille 1 sont principalement concentrées autour de la dalle de béton du mât, des chemins d'accès en graviers et de la ravine d'écoulement autour de laquelle de nombreux galets et graviers sont présents.

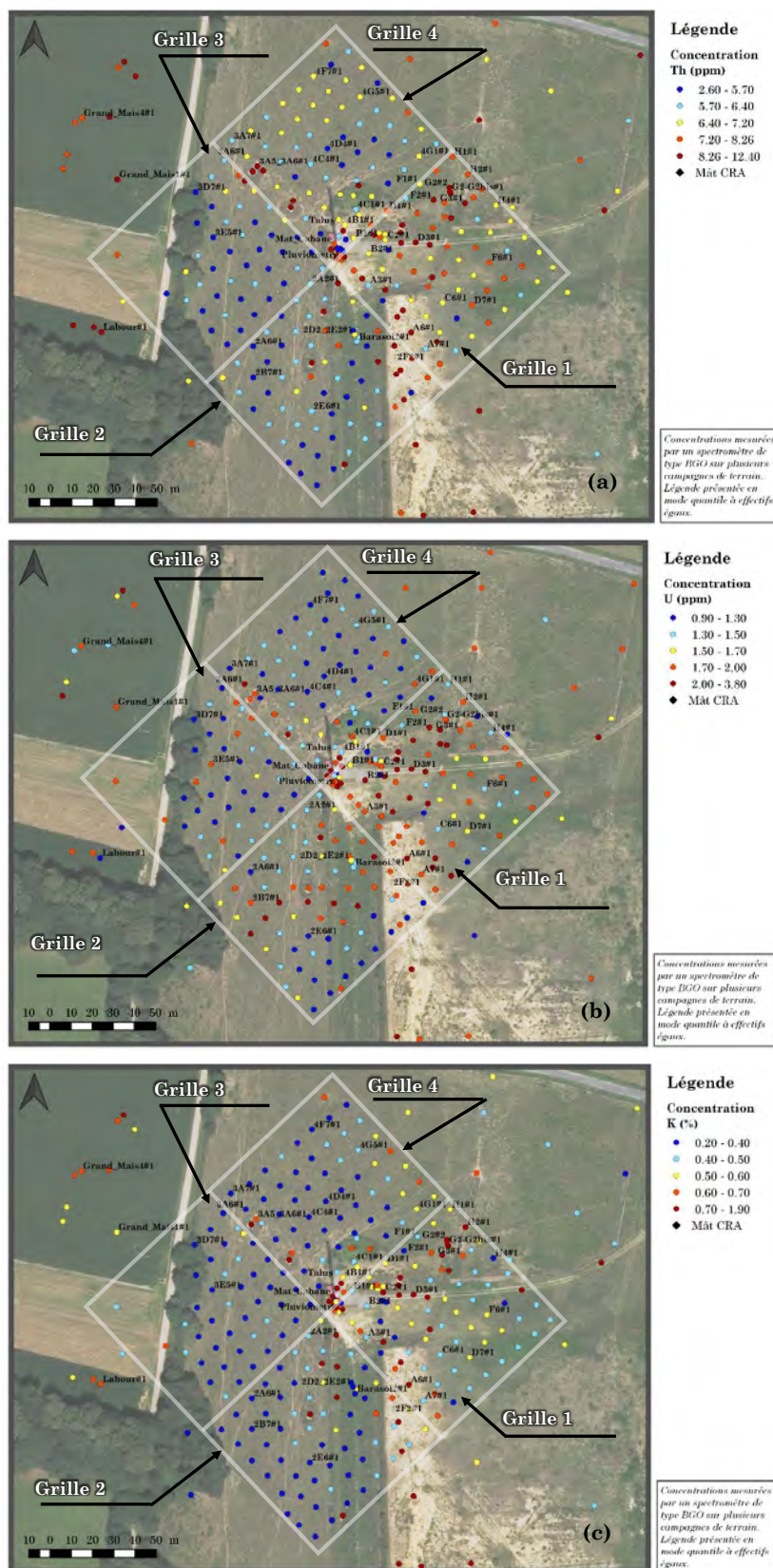


Figure 5.4 – Cartographies des concentrations en équivalent  $^{232}\text{Th}$  en ppm (a),  $^{238}\text{U}$  en ppm (b) et  $^{40}\text{K}$  en % (c) réalisées à partir des mesures BGO sur l'emprise spatiale de la grille de mesure centrée autour du mât, réalisées sur QGIS 2.18.

Les concentrations les plus faibles sur la grille générale sont retrouvées sur le véracrisol profond non remanié à usage pastoral et dans le bosquet forestier de la grille 3. Les concentrations au niveau des champs céréaliers (à gauche de la carte) sont dans la moyenne du site autour du mâ. L'agriculteur ne semblent pas avoir épandu d'engrais phosphatés, souvent enrichis en uranium, au sein de ses terres. Les mesures ont été réalisées en début de cycle de croissance du maïs lorsque les semis ne dépassaient pas une hauteur de plants de 1 m or ces engrais sont très souvent utilisés en fin de cycle de croissance pour permettre la bonne maturation des épis.

La concentration moyenne en équivalent  $^{238}\text{U}$  sur toute la grille est de  $1,59 \pm 0,15$  ppm. Le rapport entre la concentration moyenne en équivalent thorium et celle en équivalent uranium est donc d'environ 4, ce qui correspond à la valeur typique pour les sols et la croûte continentale [Lin et al., 1987, Omoniyi et al., 2013].

### **Le potassium-40 :**

Les concentrations en  $^{40}\text{K}$  ont également une distribution hétérogène au niveau de la grille générale (Figure 5.4(c)) mais similaire à celle observée pour l' $^{238}\text{U}$ . La concentration moyenne pour les grilles 2, 3 et 4 qui concentrent les valeurs les plus faibles est de  $0,31 \pm 0,04$  %.

Les concentrations élevées au sein de la grille 4 (1,20 %) sont au niveau des dalles de béton des deux points d'ancrage. D'autres points de mesure, sur la périphérie nord de la grille 4, se démarquent par rapport au reste des grilles 2 et 3. Ces points se situent sur une légère pente topographique où un lessivage du  $^{40}\text{K}$  de la partie supérieure peut être à l'origine de cette accumulation de potassium à ce niveau. Les graviers, galets et dalle de béton étant très riches en potassium, il est tout à fait logique d'observer les plus hautes valeurs de concentration en  $^{40}\text{K}$  au niveau de la grille 1 notamment autour de la dalle de béton du mâ, des chemins d'accès et de la ravine d'écoulement artificiel. Des fortes concentrations sont également répertoriées pour les limons argileux. Ceci est dû au fait que le potassium est l'un des constituants majeurs structural du minéral dans les argiles présentes sur le site, les illites.

Par rapport au véracrisol non remanié qui a une valeur moyenne de  $0,31 \pm 0,04$  %, les champs de céréales à l'extérieur du P2OA-CRA disposent d'une concentration moyenne en potassium deux fois plus grande ( $0,59 \pm 0,06$  %). Le cycle de croissance des plants de maïs nécessite beaucoup de potassium lorsqu'ils sont en phase de développement (plants de moins d'un mètre) ce qui est le cas lors des mesures avec le détecteur BGO. L'apport d'engrais potassique est tout à fait envisageable mais non confirmé par l'agriculteur avec lequel aucun échange n'a eu lieu. La concentration moyenne en  $^{40}\text{K}$  sur toute la grille est de  $0,49 \pm 0,05$  %.

**Conclusion :** Sur le site et la zone investiguée, une variabilité spatiale des concentrations en potassium, uranium et thorium est démontrée par les mesures BGO et confirmée par le comptage total mesuré par CREMP®. Le sous-ensemble *grille 1* présente toujours les concentrations les plus fortes pour ces trois radionucléides et les taux de comptage total mesurés par CREMP® les plus élevés. La dispersion spatiale des concentrations observées pour les trois radionucléides au niveau des trois autres grilles peut être considérée comme relativement homogène.

Les cartes radiologiques réalisées avec le système de spectrométrie  $\gamma$  pédestre et *in situ* avec le détecteur BGO ont montré les mêmes variations spatiales sur le site que ce soit en terme de comptage total ou en concentration de radionucléides.



### 5.1.3 Les échantillons de sols : caractérisation radiologique et chimique en laboratoire

Les deux cartographies vont **orienter le choix des échantillons de sols à prélever** lors d'une campagne de terrain intensive autour du mât. Les points de prélèvement doivent être situés au niveau des points de mesure de la grille utilisée avec le spectromètre BGO pour faciliter leur comparaison. Des prélèvements complémentaires sont réalisés en dehors des lignes de cette grille pour un total de 80 prélèvements environ réalisés sur toute la grille générale du BGO.

Les points de prélèvements doivent être représentatifs de la distribution spatiale des concentrations en potassium, thorium et uranium et concernent aussi bien la couche superficielle de sol que les horizons plus en profondeur. Les échantillons sont sélectionnés pour couvrir toutes les hétérogénéités spatiales observées lors des deux cartographies faites par CREMP® et BGO ou les observations faites sur les différentes typologies de terrain.

#### Un protocole d'échantillonnage

Comme pour toute campagne de prélèvements d'échantillons de sols, un protocole d'échantillonnage a été mis en place consistant à :

- Un relevé des coordonnées GPS du point de prélèvement sélectionné où une mesure BGO a été effectuée, avec prise de photographies du site de prélèvements à deux échelles, une globale et une très localisée, avant la perturbation du sol en place.
- La préparation du sachet plastique avec les annotations suivantes : nom de l'échantillon, coordonnées géographiques, date et l'heure du prélèvement, le ou les opérateurs à l'origine du prélèvement.
- Le retrait de la partie aérienne de la végétation mais la partie racinaire est conservée.
- Le prélèvement de l'échantillon à l'aide d'une tarière à main de diamètre 7 cm et de hauteur de prélèvement possible de 18 cm. Cette tarière assure un minimum de friction durant la pénétration dans le sol et pendant l'excavation du sol mais reste une méthode destructive. La prise d'une photographie lorsque l'échantillon est encore au niveau de la tarière est réalisée.
- L'échantillon de sol prélevé à la tarière est directement conditionné dans le sachet plastique prévu pour ce prélèvement. Une masse d'échantillon de sol attendue est d'environ 150-200 grammes par prélèvement.
- Une mesure de la profondeur de sol prélevé est vérifiée à l'aide d'un mètre entre la surface du sol et le sol profond resté en place. Cette mesure est reportée sur le sachet plastique sous la forme d'une gamme de profondeur, par exemple 0 - 5 cm.
- Une prise de photographies post-prélèvement de l'échantillon à différentes échelles.
- Le stockage du sachet plastique contenant l'échantillon de sol dûment répertorié.
- La conservation de l'échantillon dans une caisse de rangement prévu à cet effet au sein d'un local à température ambiante.

## 5.1. La caractérisation radiologique du site étudié

La localisation des échantillons est précisée sur la figure 5.5. 42 points de prélèvements sont identifiés sur toute la grille de mesure utilisée pour les mesures de spectrométrie  $\gamma$  au contact du sol.

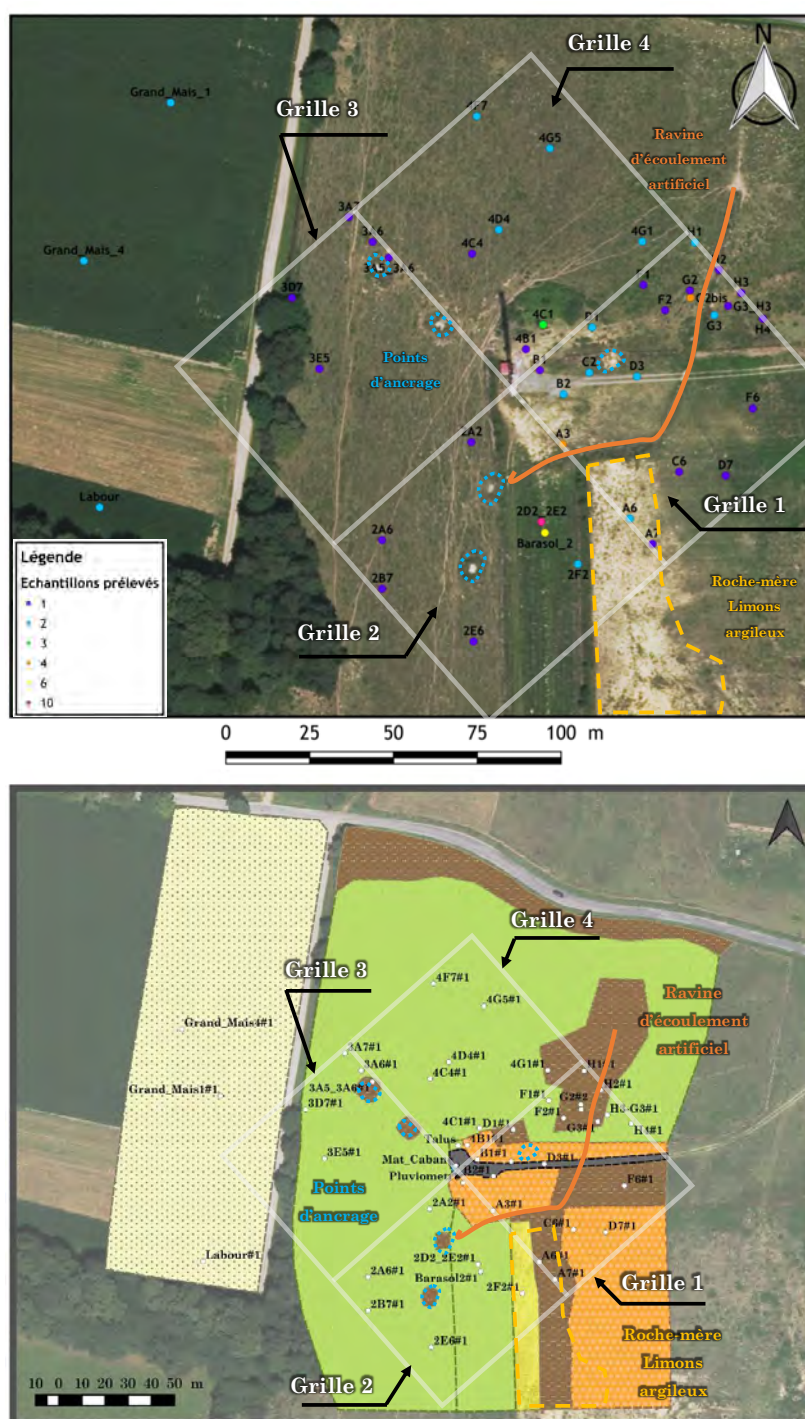


Figure 5.5 – Représentation cartographique de la localisation des échantillons de sols réalisés au niveau de certains points de mesure répertoriés en spectrométrie  $\gamma$  in situ au contact du sol par détecteur BGO. La couleur correspond au nombre d'échantillons prélevés.

La grille 1 présentant les variations spatiales les plus importantes en terme de concentration de radionucléides regroupe 21 points et 34 échantillons de sol en sur-



face (0 - 10 cm) ou en profondeur ( $> 10$  cm). La grille 2 concentre 8 points de mesure et 24 échantillons de sol dont deux profils de sols avec un prélèvement effectué tous les 10 cm environ entre les profondeurs 0 - 60 cm et 0 - 100 cm. Au niveau de la grille 3, 8 points de mesure permettent d'obtenir 10 échantillons de sol principalement pour l'horizon de la couche superficielle (0 - 10 cm). La grille 4 présente 14 échantillons de sol centrés sur 7 points de mesure. Les prélèvements de sol effectués en profondeur sont réalisés pour détecter une hétérogénéité de la distribution des radioéléments en 3 dimensions.

L'objectif de ces prélèvements de sol est de valider analytiquement les variations spatiales observées par l'intermédiaire des activités massiques exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  pour chaque radionucléide d'intérêt. Ces valeurs d'activités serviront également de base dans le cadre de simulations Geant-4 de la réponse du détecteur NaI(Tl) aux  $\gamma$  du site P2OA-CRA pour comparer les abondances absolues obtenues à celles déduites du détecteur NaI(Tl) placé sur le mât, et à celles obtenues pendant la campagne aéroportée. **Un total de 84 échantillons a été prélevé puis analysé** en laboratoires.

## 5.2 Analyses des échantillons de sol

Les analyses effectuées sur les échantillons de sols prélevés autour de la tour instrumentée doivent détecter et quantifier les radionucléides naturels ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{40}\text{K}$ ) et artificiels ( $^{137}\text{Cs}$  et  $^{241}\text{Am}$ ) présents dans cette matrice. La détermination de la composition chimique des sols par fluorescence X est également réalisée tout comme une estimation par échantillon de la concentration effective en radium-226 ( $EC_{Ra}$ ). Couplé à une activité massique de radium-226 déterminée par spectrométrie  $\gamma$ , ce paramètre permet de remonter au coefficient d'émanation du radon-222 de l'échantillon de sol ou de roche en place. Ainsi, trois laboratoires ont été sollicités afin de mener à bien ces analyses avec une participation de l'IRAP sur toute la préparation et le conditionnement des échantillons pour chaque laboratoire : le Laboratoire de mesures des FAibles RAdioactivités (LAFARA), le CEA et l'Institut de Physique du Globe de Paris (IPGP).

Pour traiter l'ensemble de ces analyses, il importe de transmettre à chaque laboratoire, un seul échantillon homogène. Cette étape de préparation fait l'objet du paragraphe suivant.

### 5.2.1 La préparation des échantillons, une étape cruciale

En prenant en compte les besoins spécifiques de chaque laboratoire en ce qui concerne la phase préparatoire des échantillons, un protocole a été établi puis mis en œuvre pour l'ensemble des échantillons de sols prélevés. Cette étape de préparation est commune à tous les laboratoires afin de pouvoir analyser les échantillons dans les conditions standards d'utilisation des instruments et des techniques viabilisées en laboratoire. Le plus important lors de cette phase préparatoire est de s'assurer de la représentativité de l'échantillon et de s'assurer d'absence de contamination. Si l'ana-

lyse de l' $EC_{Ra}$  par l'IPGP nécessite 150 grammes de matériel, le protocole actuel du CEA sur la mesure en fluorescence X exige plutôt 25 à 30 grammes d'échantillon. Enfin le LAFARA a besoin d'une masse d'échantillon moyenne comprise entre 20 et 25 grammes.

La période de temps écoulé entre le prélèvement et la mesure effective ne présente aucun impact métrologique, les radionucléides dont l'activité doit être estimée ont des périodes de demi-vie très longues. Le protocole mis en place se base sur l'analyse d'une préparation de sol composite homogénéisé par strate d'une épaisseur moyenne de 10 cm après que l'échantillon de sol a été soumis à différentes procédures :

- Une **pesée** est effectuée afin de connaître la quantité de matière prélevée avant d'ouvrir le sachet plastique contenant l'échantillon.
- Tous les échantillons prélevés l'ont été sur une strate du sol d'environ 10 cm d'épaisseur pour un poids moyen d'échantillon de 210 grammes. Il faut donc s'assurer de l'homogénéité de cet échantillon avant analyse en **éliminant la fraction végétale** tel que les racines des végétaux ou les cailloutis résiduels.
- Chaque échantillon est soumis à une **dessiccation à l'étuve à 105°C** qui permet d'éliminer l'humidité résiduelle des pores et celles adsorbée sur les grains pour obtenir un échantillon de sol sec.
- Les racines fines présentes initialement dans l'échantillon sont mixées ou coupées aux ciseaux, puis sont réintégrées à l'échantillon. Les racines ligneuses ainsi que les cailloux les plus grossiers sont retirés de l'échantillon après avoir ôté la terre présente à leur surface.
- L'échantillon de sol sec est ensuite **concassé et broyé** par l'intermédiaire d'un godet et d'une broyeuse à billes automatique afin de désagglomérer les mottes de terre et rendre la granulométrie de l'échantillon de sol homogène de sorte que la totalité de l'échantillon passe au travers d'un tamis de mailles de 2 mm.
- L'échantillon de sol ainsi préparé est de nouveau **stocké** dans un sachet plastique pour éviter que l'humidité relative de l'air ne vienne humidifier de nouveau l'échantillon. Le temps entre la préparation des échantillons et l'analyse en laboratoire a parfois pu être assez long (jusqu'à un an). De ce fait, une **deuxième dessiccation** à l'étuve est réalisée juste avant de procéder au conditionnement des échantillons pour chaque laboratoire.

Suite à ce travail préparatoire, les échantillons ont été soumis aux analyses prévues dans cet ordre : l'analyse de la concentration effective en radium-226 ( $EC_{Ra}$ ) à de l'IPGP, la détermination de la composition chimique des sols réalisée au CEA et enfin les mesures par spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire sur le site du LAFARA. Entre chaque analyse, les échantillons ont été renvoyés systématiquement à l'IRAP pour subir un reconditionnement suivant le protocole mis en place dans cette thèse et garantir une harmonisation des échantillons réceptionnés par les laboratoires.

Les sections suivantes reprennent les résultats des analyses effectuées en commençant par la spectrométrie  $\gamma$  puis sur la composition chimique des sols et la comparaison entre les mesures de concentration issues de la spectrométrie  $\gamma$  et celles faites en fluorescence X pour les radionucléides  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ .

## 5.2.2 Le laboratoire LAFARA

Le LAFARA, un laboratoire géré par l'OMP, est spécialisé dans la mesure des très faibles niveaux de radioactivité par spectrométrie  $\gamma$ . Le laboratoire dispose de cinq spectromètres  $\gamma$  qui permettent d'identifier les radioéléments présents dans un échantillon et de quantifier leur activité. Le LAFARA est basé dans une galerie EDF, à Ferrières-sur-Ariège près de Foix (09), sous une couverture rocheuse métasédimentaire de 85 mètres. Ces roches offrent un bouclier de protection naturel contre les rayonnements cosmiques ce qui fait que les détecteurs du LAFARA présentent un bruit de fond particulièrement bas (Figure 5.6).



Figure 5.6 – Le LAFARA est rattaché à la plateforme d'analyses environnementales PANGEE de l'Observatoire Midi Pyrénées (Université Toulouse III Paul Sabatier) et est labellisé comme plateforme par la Région Occitanie. Le LAFARA fait partie du réseau européen de laboratoires souterrains CELLAR (Collaboration of European Low-Level Underground Laboratories). Source : [www.lafara.obs-mip.fr](http://www.lafara.obs-mip.fr).

Les échantillons de sol du site P2OA-CRA ont été analysés sur un détecteur plan coaxial (CX) du constructeur Mirion-Canberra permettant l'analyse d'une plus grande quantité de matériel par échantillon. Ce détecteur présente un volume de germanium de  $230 \text{ cm}^3$  avec une efficacité relative de 53%, une résolution d'énergie à 122 keV de 0,95 keV et de 1,97keV à 1332 keV (Source : [www.lafara.obs-mip.fr](http://www.lafara.obs-mip.fr)). Les détecteurs de type germanium ont une excellente résolution par rapport au scintillateur inorganique NaI(Tl) ce qui facilite la recherche des pics d'absorption totale. Ce détecteur plan est protégé de la radioactivité ambiante par un château de plomb d'épaisseur 24 cm réduisant au maximum le volume d'air autour du détecteur. L'air de la salle de mesure est filtré en continu afin d'obtenir les meilleures conditions d'analyses possibles et limiter au maximum la présence de radon-222.

La suite de cette section va d'abord se consacrer à une étude réalisée en partenariat avec le LAFARA sur l'amélioration du conditionnement des échantillons solides afin de les rendre totalement hermétiques. Dans ce but, un protocole a été créé de toute pièce dans cette thèse et conservé par le LAFARA. Grâce à ce nouveau protocole, la fuite de radon-222 de l'échantillon conditionné est ainsi rendue négligeable et la garantie d'un équilibre séculaire entre le  $^{226}\text{Ra}$  (supposé à l'équilibre séculaire avec  $^{238}\text{U}$  et ses descendants assuré). Via cette étude, la mise en place de ce protocole a permis au LAFARA d'améliorer l'étanchéité de son conditionnement.

### 5.2.3 Un conditionnement hermétique pour une mesure sans fuite

Un seul format d'échantillon est utilisé pour le détecteur plan coaxial (CX) germanium, les boîtes en polystyrène cristal. Parmi ce format, plusieurs géométries sont disponibles afin d'optimiser les analyses en fonction du volume d'échantillon disponible :

- Boîte de diamètre 72 mm et de hauteur 15 mm pour un volume de 61 cm<sup>3</sup>.
- Boîte de diamètre 45 mm et de hauteur 15 mm pour un volume de 24 cm<sup>3</sup>.
- Boîte de diamètre 45 mm et de hauteur 10 mm pour un volume de 16 cm<sup>3</sup>.

Le conditionnement initial des échantillons pour les mesures de spectrométrie  $\gamma$  proposé par le LAFARA consiste à sceller la boîte contenant l'échantillon à l'aide d'une bande de parafilm. Puis, cette boîte est mise dans un sachet plastique scellé sous vide. Le sachet utilisé est composé d'un plastique multi-couches devant assurer l'étanchéité de la boîte, en particulier vis-à-vis du radon-222, gaz extrêmement volatile.

#### Protocole initialement proposé par le LAFARA

Dans le cadre de mesures de spectrométrie  $\gamma$  dédiées à la surveillance environnementale et notamment sur le suivi des concentrations en uranium des sols, il est important que l'équilibre séculaire entre le radium-226, utilisé pour mesurer l'uranium-238, et ses descendants soit absolument garanti avec un conditionnement faisant donc barrière aux fuites de radon-222. En effet, l'<sup>238</sup>U ne se mesure pas directement en spectrométrie  $\gamma$  mais par l'intermédiaire de ses descendants et notamment le <sup>214</sup>Bi qui est un descendant à vie courte en aval du <sup>222</sup>Rn. L'activité en <sup>238</sup>U est donc potentiellement sous-estimée sans une correction du taux de fuite. De plus, il faut s'assurer que ce conditionnement soit répétable d'une mesure à une autre sans avoir à prendre en compte un éventuel facteur correctif, sans doute variable, de taux de fuite de radon-222. Pour s'assurer que les données mesurées avec ce conditionnement proposé par le LAFARA sont fiables en l'état, une étude du taux de fuite de ce protocole leur a été proposé et effectuée en amont des analyses des échantillons de sols du P2OA-CRA.

Grâce à une enceinte hermétique de 290 litres, d'un détecteur de radon-222 de type AlphaGUARD® (EF1456) et d'une source de radium-226 émettrice de radon-222 de 362 Bq, un protocole de vérification du taux de fuite du radon-222 pour cette géométrie de conditionnement a rapidement été mis au point. Les bruits de fond de l'enceinte ( $45 \pm 2$  Bq.m<sup>3</sup>) et du moniteur de radon-222 ( $55,40 \pm 2,12$  Bq.m<sup>3</sup>) ont été préalablement déterminés et validés (Chapitre 5). L'enceinte est considérée hermétique avec un taux de fuite de 2 % (Chapitre 5).

En lieu et place d'un échantillon de sol ou de roches, la source de radium-226 est placée dans la boîte de diamètre 72 mm scellée par la bande de parafilm et un plastique scellé sous vide. La source conditionnée accompagnée du détecteur de radon-222 sont disposés dans l'enceinte fermée pour une durée de 25 jours, le temps que l'équilibre séculaire soit atteint entre le radon-222 et ses descendants. Si le conditionnement est optimal, l'activité volumique en radon-222 au sein de l'enceinte

devrait avoisiner la valeur de  $100,40 \pm 3,54 \text{ Bq.m}^{-3}$  soit la somme des bruits de fond ambiant de l'enceinte et instrumental du détecteur de radon-222.

La courbe de tendance de l'activité en radon-222 mesurée par le détecteur est proposée sur la figure 5.7(a) dans le cadre de l'utilisation du protocole initial de conditionnement du LAFARA. L'observation de cette courbe indique une valeur de radon-222 atteinte à l'équilibre de  $1082 \pm 65 \text{ Bq.m}^{-3}$ , bruits de fond soustraits. Ce palier se rapproche de celui retrouvé lors de la mesure inter-comparative des détecteurs de radon-222 lorsque la source de radium-226 était placée dans l'enceinte sans protocole de conditionnement,  $1247 \pm 81 \text{ Bq.m}^{-3}$  pour une source de 362 Bq (cf. Chapitre 5).

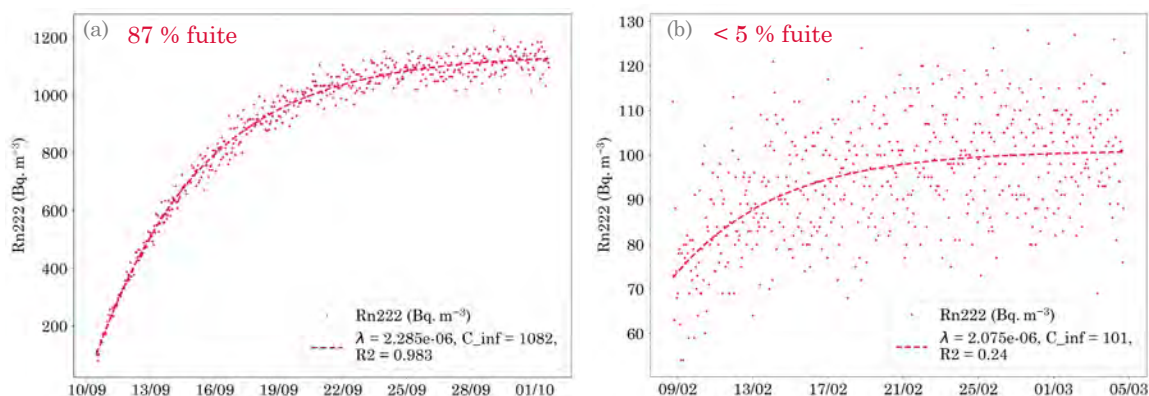


Figure 5.7 – Courbes de tendance de l'activité en radon-222 mesurée par le détecteur de type AlphaGUARD® EF1456 dans le cadre du protocole initial proposé par le LAFARA (a) et pour le protocole ayant été validé comme celui étant le plus hermétique aux fuites de radon-222 (b).

Avec ce conditionnement, 86,7 % du radon-222 produit par la source s'est donc échappé de la boîte scellée. Ce taux de fuite pour ce conditionnement ne garantit pas la conservation de l'équilibre séculaire entre le radium et ses descendants au sein de l'échantillon. Un facteur de correction très important devrait être appliqué aux données mesurées sans assurance que ce taux de fuite soit constant d'un échantillon à l'autre. La mise en place du parafilm pourrait impacter ce pourcentage de taux de fuite. Dans tous les cas, ce conditionnement ne convient pas au standard de la surveillance environnementale et ne garantit pas la promesse d'une mesure répétable avec un taux de fuite considéré comme négligeable, inférieur à 5 %.

De ce fait, sept protocoles de conditionnement différents ont été testés avec le LAFARA pour les divers formats et géométries considérés. Le test d'un protocole nécessite 25 jours de mesure dans l'enceinte hermétique auquel s'ajoute une deuxième mesure de répétabilité lorsque le protocole est digne d'intérêt.

Un protocole de conditionnement s'est montré très efficace pour limiter le taux de fuite du radon-222 à une valeur inférieure à 5 % de manière répétable pour une géométrie d'analyse sur le détecteur plan coaxial CX. La courbe de tendance de l'activité volumique de radon-222 exprimée en  $\text{Bq.m}^{-3}$  pour le protocole développé est présentée sur la figure 5.7 (b). La valeur du palier considérée comme l'activité volumique atteinte lors de l'équilibre séculaire est de  $102 \text{ Bq.m}^{-3}$ , ce qui est très

proche de la valeur de  $100,40 \pm 3,54 \text{ Bq.m}^{-3}$  correspondant à la somme des bruits de fond ambiant de l'enceinte et instrumental du détecteur de radon-222. Avec ce protocole, le taux de fuite de radon-222 est considéré comme négligeable puisqu'il rentre dans la valeur des incertitudes de la mesure couplée de bruits de fond. Il remplit donc tous les critères pour assurer une qualité de mesure des descendants de l'uranium afin d'avoir une juste estimation de l'activité massique en  $^{238}\text{U}$ .

### **Protocole développé en partenariat avec le LAFARA**

Le protocole de conditionnement développé en partenariat avec le LAFARA et appliqué aux 84 échantillons prélevés sur le site P2OA-CRA est donc le suivant (Figure 5.8) :

- Une boîte de diamètre 45 mm et de hauteur 15 mm parafilmée sur ses bordures externes, pour permettre une meilleure adhésion du capot de fermeture, est pesée à vide,
- Dans cette boîte sont déposés environ 25 grammes d'échantillon de sol préalablement préparé. Le capot de fermeture est apposé puis la boîte 45/15 avec échantillon est pesée pour déterminer le poids exact de l'échantillon de matière soumis à analyse spectrométrique. Un ensemble d'inscriptions est noté sur la boîte pour assurer la traçabilité : nom de l'organisme demandeur, nom de l'échantillon, poids de l'échantillon et date de mise sous scellé de l'échantillon.
- Après la pesée, cette boîte est de nouveau scellée avec un parafilm sur ses bordures externes (capot inclus) puis avec une association de deux poches en plastique mise sous vide. Les sachets plastiques utilisés sont désormais des plastiques alimentaires permettant une conservation longue (anti-gaz) avec un maillage très resserré. Le radon-222 est un gaz rare, mais de grande taille atomique, et ne peut donc pas circuler à travers ce maillage très resserré,
- Ce système boîte 45/15 scellée avec cette double poche est ensuite placée dans une boîte de plus grand diamètre (72 mm) préalablement parafilmée puis scellée de nouveau avec un parafilm sur toute sa hauteur, capot inclus.
- Une fois conditionné, l'échantillon est mis sous séquestre 21 jours pour permettre d'atteindre l'équilibre séculaire entre tous les descendants à vie courte du  $^{226}\text{Ra}$ .

Les 84 échantillons ont été conditionnés suivant ce protocole. Chaque échantillon est mesuré sur une durée de 24 heures pour avoir une très bonne statistique de comptage. Les spectres mesurés sont ensuite traités et les activités déterminées puis vérifiées pour l'ensemble des énergies caractéristiques des radionucléides naturels et artificiels émetteurs de rayonnements  $\gamma$ . Ces activités sont ensuite rapportées en activité massique exprimée en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec en considérant le poids de chaque échantillon. Les résultats liés aux trois radionucléides naturels suivis en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sont présentés tour à tour dans les sous-sections suivantes. Ces valeurs d'activité issues de la spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire serviront donc de référence pour les analyses réalisées par le spectromètre NaI(Tl) installé à 50 mètres et celui embarqué sur un hélicoptère lors du survol aéroporté réalisé sur le site.





Figure 5.8 – Protocole de conditionnement développé avec le LAFARA

### 5.2.4 Le Thorium-232 dans les sols du site P2OA-CRA

La mesure du  $^{232}\text{Th}$  ne se fait pas de manière directe car le  $^{232}\text{Th}$  n'est pas un émetteur de rayonnements  $\gamma$ . De ce fait, afin d'accéder à une activité de  $^{232}\text{Th}$ , l'énergie du  $^{208}\text{Tl}$  à 2615 keV peut être considérée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée avec un détecteur de type NaI(Tl).

En spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire avec des détecteurs au germanium aux résolutions d'énergie bien plus fines que les scintillateurs inorganiques, trois descendants du  $^{232}\text{Th}$  sont mesurés par l'intermédiaire de leurs énergies caractéristiques :

- Le  $^{228}\text{Ra}$  est identifié par les raies à 338,32 keV, 911,20 keV et 968,96 keV.
- Le  $^{228}\text{Th}$  par l'intermédiaire de la raie à 238,63 keV.
- Le  $^{208}\text{Tl}$  a deux énergies caractéristiques permettant des points comparatifs entre les activités mesurées : 583,19 keV et 2614,51 keV. De plus, il faut savoir que dans la chaîne du  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{220}\text{Rn}$  à l'état gazeux compris entre le  $^{228}\text{Th}$  et le  $^{208}\text{Tl}$  peut aussi entraîner un déséquilibre et donc des différences d'activités entre les descendants en amont et en aval de la chaîne. Le conditionnement de l'échantillon est désormais totalement hermétique.

Une étape de vérification de l'équilibre séculaire entre tous les descendants mesurés de la chaîne de filiation radioactive du  $^{232}\text{Th}$  est d'abord réalisée. Exploitant les données du  $^{208}\text{Tl}$  qui est l'un des descendants solides postérieurs au descendant gazeux,  $^{220}\text{Rn}$ , pour quantifier la concentration en équivalent  $^{232}\text{Th}$ , il faut garantir une bonne correspondance entre les activités des premiers descendants mesurables du  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{208}\text{Tl}$ . Ce travail a été réalisé pour les trois radionucléides permettant la quantification du  $^{232}\text{Th}$  et observé sur les graphiques de la figure 5.9.

Le premier graphique (Figure 5.9 (a)) montre la dispersion statistique des activités massiques exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  par une représentation en boîte à moustache pour le  $^{228}\text{Th}$ , le  $^{228}\text{Ra}$  et le  $^{228}\text{Tl}$ . Les trois radionucléides ont les mêmes dispersions statistiques avec des valeurs médianes variant autour de 42-44  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ . Les trois autres graphiques de la figure 5.9 montrent les relations entre les activités massiques de deux radionucléides ainsi qu'une représentation d'une droite de pente attendue 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants suivis sur chaque

graphique. Les résultats dénotent une faible dispersion des échantillons mesurés autour de cette pente 1 :1 ce qui valide à la fois le fait que l'équilibre séculaire est conservé entre le  $^{228}\text{Th}$  et le  $^{228}\text{Tl}$  et le protocole de conditionnement hermétique. Les activités massiques ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}\text{ sec}$ ) en  $^{208}\text{Tl}$  sont donc bien représentatives des activités en  $^{232}\text{Th}$  et peuvent être analysées pour le site P2OA-CRA. Les comptages enregistrés dans la fenêtre du  $^{208}\text{Tl}$  par le spectromètre NaI(Tl) à 50 mètres devraient être liés à cette activité massique de  $^{208}\text{Tl}$  mesurée pour un sol sec.

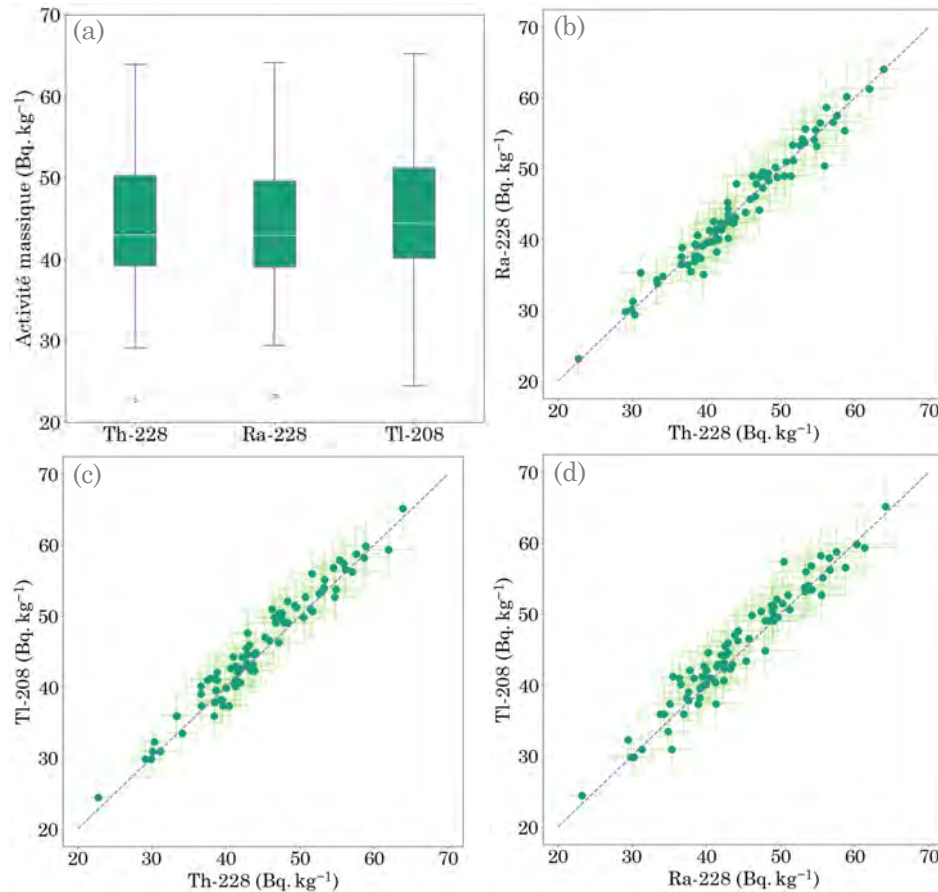


Figure 5.9 – (a) Activité massique ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) des trois descendants du  $^{232}\text{Th}$  mesurés dans les échantillons de sols du site P2OA-CRA. Les graphiques (b), (c) et (d) montrent les relations entre le  $^{228}\text{Th}$ , le  $^{228}\text{Ra}$  et le  $^{208}\text{Tl}$  ainsi que les droites de pente 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants représentés.

Les 46 points de mesure pour lesquels des échantillons ont été prélevés que ce soit en surface ou en profondeur sont localisés sur la figure 5.11. Les 46 échantillons couvrant les 10 premiers centimètres du sol depuis la surface et caractérisant la couche superficielle sont ceux qui ont été utilisés pour déterminer les variations des activités massiques du  $^{208}\text{Tl}$  à l'échelle du site P2OA-CRA autour du mât. Le fond de carte se compose d'une orthophotographie IGN® sur laquelle ont été projetées les cinq typologies de sol préalablement identifiées : les limons argileux, le véracrisol, le véracrisol remanié, le véracrisol cultivé et le véracrisol anthropisé.

Les **activités massiques en  $^{208}\text{Tl}$**  montrent une forte variation spatiale sur le site avec une valeur minimale de  $29,80 \pm 2,06$  et une valeur maximale de  $59,80 \pm 4,67$   $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}\text{ sec}$ , soit du simple au double pour les échantillons de surface (Figure 5.11

(a)). D'après cette représentation cartographique des 46 échantillons de surface, les valeurs d'activité les plus faibles (dérivé de bleus) sont concentrées au niveau du véracrisol profond et autour du mât au niveau des graviers et des galets appauvris en  $^{232}\text{Th}$ . Les valeurs les plus élevées sont représentées par les teintes de rouge et sont principalement situées au niveau des véracrisols remaniés sur la couche superficielle et des limons argileux, le matériau parental à l'origine des sols du site. Les limons argileux étant remis en surface sous forme de cailloutis gréseux au niveau de ces terrains remaniés, il n'y a rien d'étonnant à ce que des valeurs élevées représentatives du limon argileux soit retrouvées à ce niveau.

Les 84 échantillons de sol sont ensuite répartis en fonction de leur appartenance à l'une des cinq typologies de sol et une représentation statistique par boîte à moustache est proposée sur la figure 5.11 (b). Les 4 échantillons des limons argileux ont les activités massiques en  $^{208}\text{Tl}$  les plus importantes. Les 40 échantillons de véracrisol observent la valeur médiane d'activité massique la plus faible,  $42 \pm 2,41 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ . Les véracrisols remaniés, cultivés et anthropisés sont caractérisés par la remise en surface de limons argileux. Ces trois types de sols ont des gammes de variation d'activité massique comprises entre celle du véracrisol profond et celle des limons argileux. Les véracrisols anthropisés présentent la plus grande gamme de variation des activités massiques. Cette catégorie regroupe des sols très variés dont certains très enrichis en limons argileux proches du mât et d'autres en majorité constitués de graviers appauvris en thorium. Cette variation spatiale hétérogène avec les plus faibles valeurs de thorium centrées sur le véracrisol étaient déjà observées avec le spectromètre portable de mesures au contact du sol, BGO.

**La valeur médiane de l'activité massique pour l'équivalent thorium est de  $44,30 \pm 3,20 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  pour les 84 échantillons couvrant une analyse des profondeurs 0 - 50 cm.** Cette valeur médiane sur le site P2OA-CRA est 1,50 fois supérieure à celle de la valeur médiane mondiale de  $30 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  et montre un sol enrichi en thorium [UNSCEAR, 2000a]. La valeur moyenne de  $45,40 \pm 3,30 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  servira de base aux analyses futures et aux simulations Geant-4.

### 5.2.5 L'Uranium-238 dans les sols du site P2OA-CRA

Cette section présente les résultats sur les activités massiques en  $^{238}\text{U}$  mesurées dans les échantillons du site P2OA-CRA. La mesure du  $^{238}\text{U}$  n'est pas réalisée directement car le  $^{238}\text{U}$  n'est pas un émetteur de rayonnements  $\gamma$ . De ce fait, afin d'obtenir une valeur d'activité de  $^{238}\text{U}$ , l'énergie du  $^{214}\text{Bi}$  à 1764 keV peut être considérée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée avec un détecteur de type NaI(Tl). En spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire avec des détecteurs au germanium aux résolutions d'énergie bien plus fines que les scintillateurs inorganiques, cinq descendants du  $^{238}\text{U}$  sont exploités par l'intermédiaire de leurs énergies caractéristiques :

- Le  $^{234}\text{Th}$  est mesuré par ses raies caractéristiques à 63,30 keV et 92,80 keV.
- Le  $^{226}\text{Ra}$  présente une seule raie d'énergie caractéristique à 186,21 keV. Cette raie fait souvent partie d'un doublet de raie avec celle du  $^{235}\text{U}$  à 185,71 keV et nécessite donc un traitement de déconvolution supplémentaire pour extraire les comptages de cette raie du  $^{226}\text{Ra}$ . Le  $^{226}\text{Ra}$  est le père du  $^{222}\text{Rn}$  et va donc être un marqueur privilégié de l'équilibre séculaire entre les descendants du  $^{238}\text{U}$  en amont du descendant gazeux,  $^{222}\text{Rn}$ , et ceux issus du  $^{222}\text{Rn}$ .

- Le  $^{214}\text{Pb}$  est caractérisé par trois pics d'absorption totale marqueurs de rayonnements  $\gamma$  aux énergies 242,00 keV, 295,22 keV et 351,93 keV. Les trois aires de raies associées sont moyennées pour déterminer l'activité du  $^{214}\text{Pb}$ .
- Le  $^{214}\text{Bi}$  est mesuré par l'intermédiaire de sa raie à 1764,49 keV par le LA-FARA. Seule l'activité mesurée à 1764,49 keV est prise en compte dans la détermination de l'activité de ce radionucléide.
- Le  $^{210}\text{Pb}$  qui présente une période de 22,2 ans et qui peut s'accumuler dans la couche superficielle du sol suite au rabattement des aérosols est mesuré par son pic d'absorption totale à 46,54 keV.

La vérification de l'équilibre séculaire entre tous les descendants mesurés de la chaîne de filiation radioactive du  $^{238}\text{U}$  est réalisée entre la mesure des activités de  $^{226}\text{Ra}$  et de  $^{214}\text{Bi}$ . Pour quantifier la concentration en équivalent  $^{238}\text{U}$ , les données du  $^{214}\text{Bi}$  sont exploitées. Le  $^{214}\text{Bi}$  est l'un des descendants solides postérieurs au descendant gazeux,  $^{222}\text{Rn}$ . Il faut donc garantir une bonne correspondance entre les activités des premiers descendants mesurables du  $^{238}\text{U}$  et le  $^{214}\text{Bi}$ .

Le premier graphique de la figure 5.10 montre la dispersion statistique des activités massiques exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec par une représentation en boîte à moustache pour le  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{210}\text{Pb}$ . Les trois radionucléides  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{214}\text{Bi}$  ont des dispersions statistiques analogues avec des valeurs médianes variant autour de 38-40  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec. Le  $^{210}\text{Pb}$  montre une gamme de variation des activités massiques très importante, entre 15 et 80  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec avec une valeur médiane d'activité massique supérieure à celle de ses parents de la chaîne de filiation radioactive. L'accumulation de  $^{210}\text{Pb}$  dans les couches superficielles issue des dépôts des fractions sèches et humides des aérosols atmosphériques est à l'origine de cette variation.

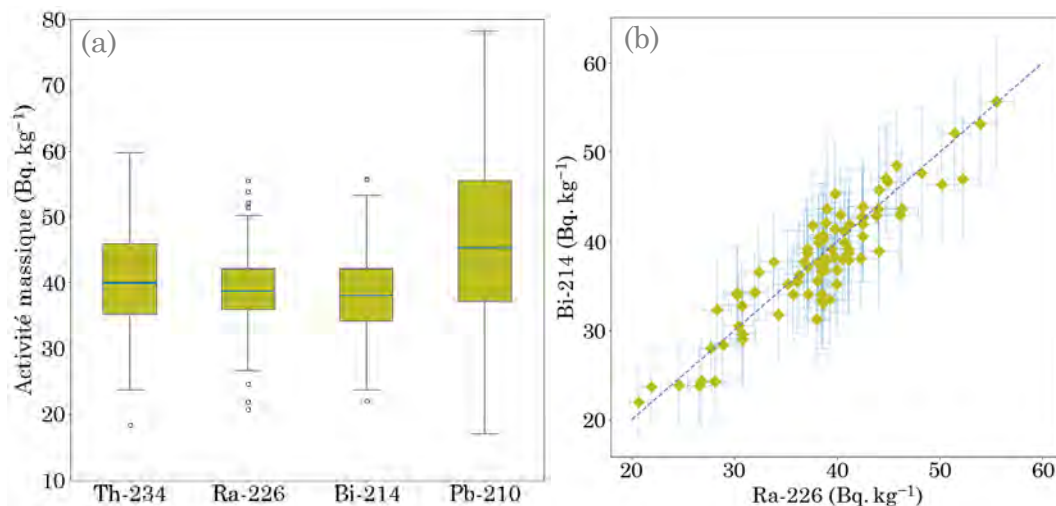


Figure 5.10 – (a) Activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) de quatre descendants du  $^{238}\text{U}$  mesurés dans les échantillons de sols du site P2OA-CRA. Le graphique (b) montre la relation entre le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{226}\text{Ra}$  ainsi que la droite de pente 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants représentés sur ce graphique. Les échantillons se retrouvent positionnés à proximité immédiate de cette droite de pente 1 :1 validant l'absence de fuite de  $^{222}\text{Rn}$ .

Le deuxième graphique de la figure 5.10 montre la relation entre les activités massiques du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{214}\text{Bi}$  accompagnée d'une représentation d'une droite de

penne attendue 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants. Le résultat est relativement concluant sur l'absence de fuite de  $^{222}\text{Rn}$  de l'échantillon conditionné vu la dispersion très limitée autour de cette droite. Le  $^{234}\text{Th}$  est le descendant le plus directement lié au  $^{238}\text{U}$  puisqu'il se met à l'équilibre avec le  $^{238}\text{U}$  en seulement quelques dizaines de jours. L'équilibre entre  $^{238}\text{U}$  et  $^{226}\text{Ra}$  est donc bien réel et le bon accord entre  $^{234}\text{Th}$  et  $^{226}\text{Ra}$  puis entre  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{214}\text{Bi}$  montre que les activités massiques ( $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ ) en  $^{214}\text{Bi}$  sont représentatives des activités en  $^{238}\text{U}$ . Aucun facteur correctif lié à un taux de fuite de  $^{222}\text{Rn}$  ne doit être appliqué sur le jeu de données.

Les **activités massiques en  $^{214}\text{Bi}$**  montrent une forte variation spatiale sur le site avec une valeur minimale de  $22,00 \pm 2,21$  et une valeur maximale de  $53,20 \pm 4,75 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ , pour les échantillons de surface (Figure 5.11 (c)). D'après cette représentation cartographique des 46 échantillons de surface, les valeurs d'activité les plus faibles (dérivé de bleus) sont concentrées au niveau du véracrisol profond et autour du mât au niveau des graviers et des galets appauvris en  $^{232}\text{Th}$ . Contrairement au  $^{208}\text{Tl}$ , les limons argileux font plutôt partie de ce groupe des activités massiques plus faibles par rapport à la moyenne du site P2OA-CRA. Les valeurs les plus élevées sont caractérisées par les teintes de rouge et sont localisées au niveau des véracrisols remaniés sur la couche superficielle. Les points d'échantillonnage proche des dalles d'ancrage du mât montrent également des activités massiques supérieures à la moyenne du site P2OA-CRA.

Les 84 échantillons de sol sont ensuite répartis en fonction de leur appartenance à l'une des cinq typologies de sol et une représentation statistique par boîte à moustaches est proposée sur la figure 5.11 (d). Les 4 échantillons des limons argileux ont les activités massiques en  $^{214}\text{Bi}$  les plus faibles observées sur le site P2OA-CRA avec une valeur médiane de  $28,87 \pm 2,01 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ . Les 40 échantillons de véracrisol ont une valeur d'activité massique médiane de  $37,33 \pm 2,87 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ . La gamme de variation s'étend d'une activité de  $23,20 \pm 1,87 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $47,85 \pm 3,52 \text{ Bq.kg}^{-1}$ .

Les échantillons en bordure d'espace forestier ou d'arbustes sont associés aux plus faibles valeurs. Les véracrisols remaniés sont associés aux valeurs les plus élevées retrouvées sur le site P2OA-CRA. Les cailloutis gréseux de type limons argileux ne semblent pas être à l'origine de ces valeurs. Les sols du site de Lannemezan se sont développés sur des roches sédimentaires dont les compositions chimiques ne sont pas homogènes spatialement.

Au niveau du véracrisol remanié, des roches enrichies en uranium pourraient être à l'origine de la pédogénèse et l'escavation de matériel profond suite à la mise en place d'une ravine d'écoulement artificiel et leur remise en surface entraînerait ce genre d'observations. Une autre hypothèse serait le lessivage de l'uranium depuis le sommet du talus vers cette ravine. Les activités massiques des véracrisols cultivés se retrouvent dans la gamme de variation des véracrisols profonds. L'apport d'engrais phosphatés, potentiellement enrichis en uranium, sur ces terrains agricoles n'est donc pas avéré sinon les valeurs d'activité massique sur ces terrains auraient été supérieures.

**La valeur médiane de l'activité massique pour l'équivalent uranium est de  $37,90 \pm 5,70 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  pour les 84 échantillons couvrant une**



analyse des profondeurs 0 - 50 cm. Cette valeur médiane sur le site P2OA-CRA est légèrement supérieure à celle de la valeur médiane mondiale de  $35 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  [IAEA, 2003]. La valeur moyenne de  $38,90 \pm 5,70 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  servira de base aux analyses futures et aux simulations Geant-4. Cette valeur moyenne ramenée en ppm donne environ  $3,15 \pm 0,46 \text{ ppm}$ . D'après la carte de France de la concentration en uranium des roches (Figure 1.4 a), proposée par [Ielsch et al., 2017], la commune de Lannemezan se trouve à la jonction entre 2 et 4 ppm d'uranium.

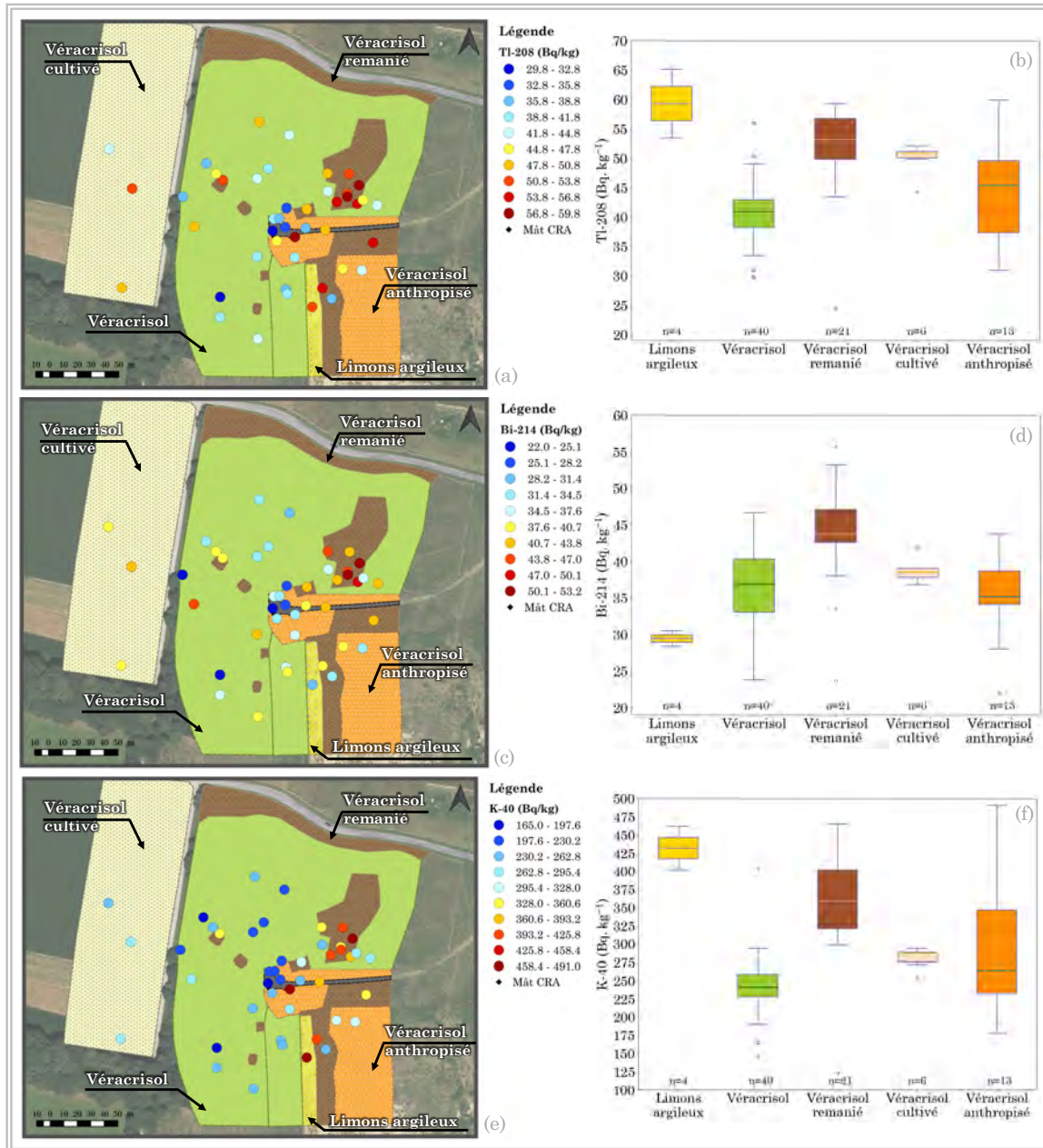


Figure 5.11 – Cartographies des activités massiques en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  (a) du  $^{232}\text{Th}$ , (c) du  $^{238}\text{U}$  et de (e)  $^{40}\text{K}$  pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). Une représentation statistique par boîte à moustache pour l'ensemble des échantillons est proposée pour chaque radionucléide (b)  $^{232}\text{Th}$ , (d)  $^{238}\text{U}$  et (f)  $^{40}\text{K}$  en fonction de la typologie des sols rencontrés sur le site P2OA-CRA de Lannemezan.



### 5.2.6 Le Potassium-40 dans les sols du site P2OA-CRA

La mesure du  $^{40}\text{K}$  se fait de manière directe car le  $^{40}\text{K}$  est un émetteur de rayonnements  $\gamma$ . De ce fait, pour déterminer l'activité de  $^{40}\text{K}$ , sa seule énergie caractéristique à 1460,82 keV va être considérée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée avec un détecteur de type NaI(Tl) et en spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire avec des détecteurs au germanium aux résolutions d'énergie bien plus fines que les scintillateurs inorganiques. Dans le cas du potassium, il n'y a pas de problématique relative à la vérification de l'équilibre séculaire avec ses descendants du fait d'une caractérisation directe.

La distribution des **activités massiques en  $^{40}\text{K}$**  montre une forte variation spatiale sur le site avec une valeur minimale de  $165,00 \pm 19,30 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et une valeur maximale de  $491,00 \pm 48,10 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec, pour les 46 échantillons de surface (Figure 5.11 (e)). D'après cette représentation cartographique des 46 échantillons de surface, les valeurs d'activité les plus faibles (dérivé de bleus) sont concentrées au niveau du véracrisol profond et autour du mât, au niveau des graviers et des galets et proche du bosquet forestier à l'Ouest du site. Les valeurs les plus élevées sont représentées par les teintes de rouge et sont principalement situées au niveau des limons argileux et des véracrisols remaniés principalement autour de la ravine d'écoulement artificiel. Le matériau parental excavé et remis en surface au sein des véracrisols remaniés participe à une augmentation de l'activité massique observée pour le  $^{40}\text{K}$  de cette couche superficielle sur ces terrains.

Les 84 échantillons de sol sont ensuite répartis en fonction de leur appartenance à l'une des cinq typologies de sol et une représentation statistique par boîte à moustaches est proposée sur la figure 5.11 (f). Les 4 échantillons des limons argileux ont les activités massiques en  $^{40}\text{K}$  les plus importantes avec une médiane à  $437,00 \pm 36 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Les 40 échantillons de véracrisol sont caractérisés par la valeur médiane d'activité massique la plus faible,  $235 \pm 21 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec. Les véracrisols remaniés, cultivés et anthropisés sont caractérisés par la remise en surface de limons argileux. Ces trois types de sols ont des gammes de variation d'activité massique comprises entre celle du véracrisol profond et celle des limons argileux. Les véracrisols anthropisés présentent la plus grande gamme de variation des activités massiques, entre  $165 \pm 19,30$  et  $491 \pm 48,10 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec. Cette catégorie regroupe des sols très variés dont certains très enrichis en limons argileux proches du mât et d'autres en majorité constitués de graviers appauvris en thorium. Cette variation spatiale hétérogène avec les plus faibles valeurs de thorium centrées sur le véracrisol étaient déjà observées avec le spectromètre portable de mesures au contact du sol, BGO.

**La valeur médiane de l'activité massique pour le potassium est de  $264,50 \pm 27,80 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec pour les 84 échantillons couvrant une analyse des profondeurs 0 - 50 cm.** Cette valeur médiane sur le site P2OA-CRA est 1,50 fois inférieure à celle de la valeur médiane mondiale de  $400 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec et montre un sol appauvri en potassium [UNSCEAR, 2000a]. Les sols au pH acide comme ceux du site P2OA-CRA favorisent le lessivage et la lixiviation du potassium du sol ce qui peut être une hypothèse pour expliquer ces teneurs réduites sur le site. La valeur moyenne de  $286,30 \pm 29,40 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec servira de base aux analyses futures et aux simulations Geant-4.

### 5.2.7 Le Césium-137 dans les sols du site P2OA-CRA

La mesure du  $^{137}\text{Cs}$  se fait de manière directe car le  $^{137}\text{Cs}$  est un émetteur de rayonnements  $\gamma$ . De ce fait, pour déterminer l'activité de  $^{137}\text{Cs}$  dans un échantillon, seule son énergie caractéristique avec la probabilité d'émission la plus grande à 661,66 keV va être considérée en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée avec un détecteur de type NaI(Tl) et en spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire avec des détecteurs au germanium. Le deuxième pic d'absorption totale identifiant le  $^{137}\text{Cs}$  est à très basses énergies à 32,19 keV et ne peut être détecté en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Les comptages enregistrés dans la fenêtre du  $^{137}\text{Cs}$  par le spectromètre NaI(Tl) à 50 mètres devraient être liés à cette activité massique de  $^{137}\text{Cs}$  mesurée pour un sol sec.

La distribution des **activités massiques en  $^{137}\text{Cs}$**  montre une forte variation spatiale sur le site avec une valeur minimale de 0 et une valeur maximale de  $14,50 \pm 2,29 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec, pour les 46 échantillons de surface (Figure 5.12 (a)). La distribution ne suit pas une loi normale. D'après cette représentation cartographique des 46 échantillons de surface, les valeurs d'activité les plus faibles (dérivé de bleus) sont concentrées au niveau de tous les véracrisols cultivés et anthropisés mais également au niveau des limons argileux à l'affleurement. Les activités les plus élevées sont représentées par les teintes de rouge et sont principalement situées au niveau des

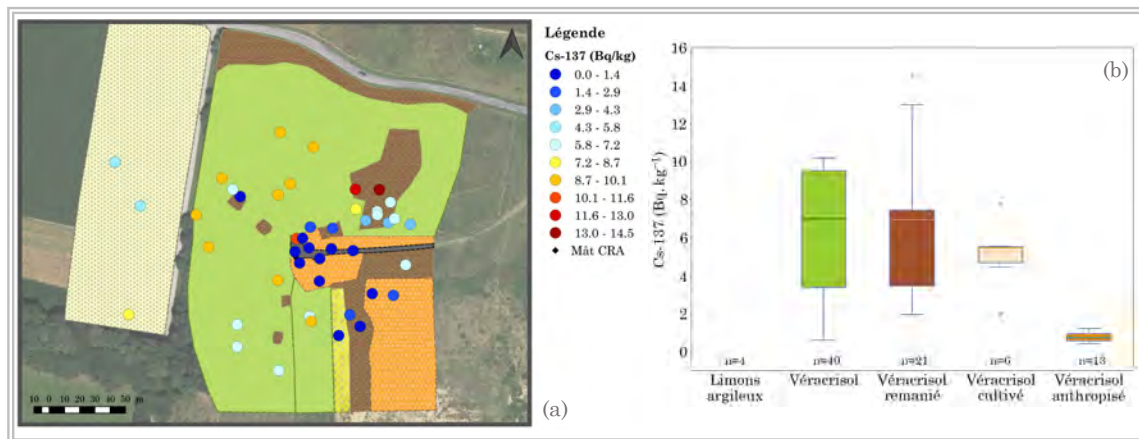


Figure 5.12 – (a) Cartographie de la distribution spatiale des activités massiques en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  sec  $^{137}\text{Cs}$  pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). (b) Une représentation statistique par boîte à moustaches pour l'ensemble des échantillons est proposée en fonction de la typologie des sols.

Les 84 échantillons de sol sont ensuite répartis en fonction de leur appartenance à l'une des cinq typologies de sol et une représentation statistique par boîte à moustaches est proposée sur la figure 5.12 (b). Au sein des 4 échantillons de limons argileux, le  $^{137}\text{Cs}$  n'est pas détecté. Les 40 échantillons de véracrisol présentent la valeur médiane de l'activité massique de  $^{137}\text{Cs}$  la plus grande à savoir  $7,12 \pm 0,45 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . La distribution s'étend entre 1 et  $10 \text{ Bq.kg}^{-1}$  environ pour cette typologie de sols regroupant à la fois des échantillons de surface et des échantillons à des profondeurs plus marquées supérieures à 30 centimètres. Les mêmes observations peuvent être faites pour les véracrisols remaniés à l'exception d'une distribution comprise entre 2

et  $14,5 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et pour les véracrisols cultivés où la couche de surface est souvent labourée mais restant en place sur le terrain. Cette phase d'homogénéisation de la couche superficielle par labour peut expliquer la plus faible dispersion des valeurs (autour d'une même valeur moyenne). Les activités massiques au sein des véracrisols anthropisés sont presque au niveau de la limite de détection avec des valeurs inférieures à  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ .

Le  $^{137}\text{Cs}$ , radionucléide artificiel, s'est surtout déposé dans les premiers centimètres des sols après les essais atmosphériques d'armes nucléaires dans les années 1950-1960 puis après l'accident de Tchernobyl en 1986 et Fukushima en 2011. Il est donc tout à fait normal de ne pas en retrouver au niveau des limons argileux ou dans tous les sols anthropisés ayant été remaniés sur de très grandes profondeurs.

**La valeur médiane de l'activité massique pour le césium est de  $6,61 \pm 0,71 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec pour les 84 échantillons couvrant une analyse des profondeurs 0 - 50 cm.** La valeur moyenne de  $5,81 \pm 0,77 \text{ Bq.kg}^{-1}$  sec servira de base aux analyses futures. Les valeurs de  $^{137}\text{Cs}$  retrouvées sur le site P2OA-CRA de Lannemezan, entre 0 et 5 cm de profondeur, sont plutôt dans les valeurs basses des sols des prairies tels que recensés dans l'étude de [Brimo et al., 2019].

Un profil de sol de la couche superficielle jusqu'aux limons argileux en profondeur a été réalisé en prenant un échantillon représentatif tous les 10 centimètres et marqueurs d'une profondeur comprise par exemple entre 0 et 10 cm ou encore entre 60 et 70 cm. Ce profil a été réalisé au sein du véracrisol ayant développé une profondeur de sol de 100 cm. La distribution de l'activité massique de  $^{137}\text{Cs}$  avec la profondeur est étudiée à partir du profil présenté sur la figure 5.13 (a). Une décroissance de l'activité massique est observée entre la couche de surface (0 - 10 cm) et la

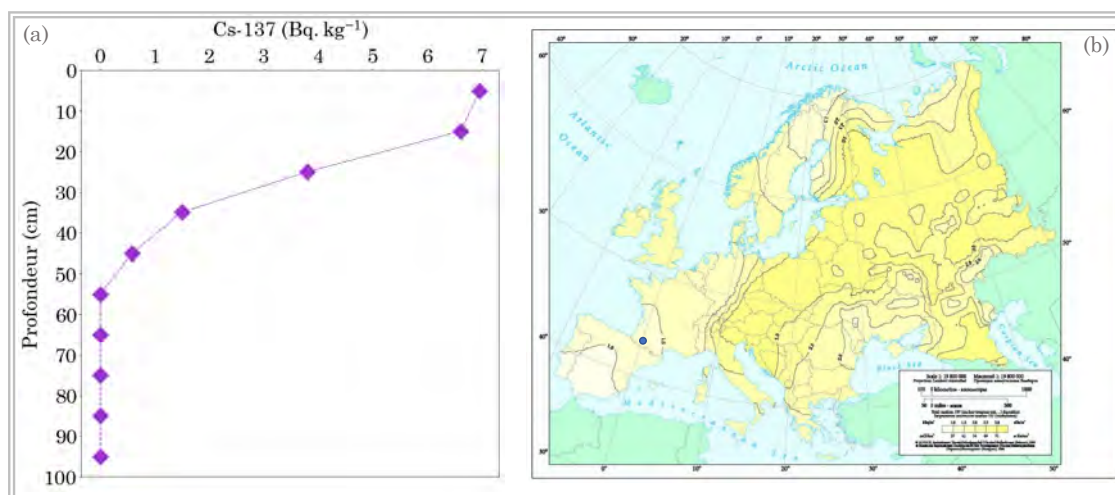


Figure 5.13 – (a) Distribution de l'activité massique de  $^{137}\text{Cs}$  avec la profondeur sur un profil de sol effectué au sein du véracrisol profond. (b) Concentrations résiduelles (en Mai 1986) de  $^{137}\text{Cs}$  provenant des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Le site P2OA-CRA est localisé par l'intermédiaire d'un marqueur de couleur bleue.

Les analyses réalisées par le LAFARA sur ce radionucléide artificiel montre que sur tous les échantillons, la strate de surface (0 - 10 cm) concentre 67% du  $^{137}\text{Cs}$

mesuré. La strate entre 10 et 20 cm se caractérise par 12% du  $^{137}\text{Cs}$  mesuré, la strate suivante entre 20 et 30 cm par une valeur de 10% du  $^{137}\text{Cs}$  mesuré. Les deux autres strates (30 - 40 et 40 - 50) concentrent 7 et 4 % du  $^{137}\text{Cs}$  mesuré.

Cette distribution avec la profondeur n'est pas dû à des dépôts successifs. La migration chimique ou par bioturbation du  $^{137}\text{Cs}$  de la couche superficielle vers les strates inférieures est à considérer tout comme une éventuelle contamination des échantillons de profondeur lors du prélèvement. La distribution ne peut donc pas refléter l'âge du sol. Des travaux récents sur la distribution du  $^{137}\text{Cs}$  dans les sols [Jagercikova et al., 2015] ont permis de caractériser une vitesse de migration de ce radionucléide entre 0,05 et 0,76  $\text{cm}\cdot\text{an}^{-1}$ , avec une médiane de 0,28  $\text{cm}\cdot\text{an}^{-1}$ , sur une période intégrée de 25 ans.

Les valeurs hautes de vitesse de migration peuvent coïncider avec ce qui est observé sur les sols du site P2OA-CRA. Environ 80% du  $^{137}\text{Cs}$  mesuré est situé au niveau de la couche 0 - 20 cm. Cette proportion statistique fait écho à une mesure de suivi de la contamination des sols par le  $^{137}\text{Cs}$  en Rhone-Alpes opérés par la Commission de Recherche et d'Information Indépendantes sur la Radioactivité (CRIIRAD) [Jeambrun and Chareyron, 2017].

Le  $^{137}\text{Cs}$  semble assez homogène sur les 20 premiers centimètres, l'hypothèse d'une monocouche homogène pour simuler le signal du  $^{137}\text{Cs}$  avec Geant-4 peut être faite.

L'activité surfacique résiduelle de  $^{137}\text{Cs}$  provenant des essais atmosphériques d'armes nucléaires est estimée entre 1000 et 1500  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  sur le site de Lannemezan en Mai 1986 [De Cort et al., 1998]. Une concentration supplémentaire  $^{137}\text{Cs}$  s'est ajoutée à cette composante *essais atmosphériques* à la suite de l'accident de Tchernobyl en Mai 1986. Cette contribution sur le site de Lannemezan a été modélisée entre 1000 et 5000  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  [Anspaugh et al., 1988]. La densité de flux moyenne en  $^{137}\text{Cs}$  en 1986 après l'accident de Tchernobyl est donc comprise entre 2000 et 6500  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ .

En prenant en compte le temps de décroissance et la période radioactive de 30,05 ans du  $^{137}\text{Cs}$ , cette activité surfacique doit être comprise entre 1200 et 3200  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$  en 2020 pour des dates de dépôt entre 1956-1962 (essais nucléaires) et 1986 (Tchernobyl). Cela suppose qu'il n'y a pas eu de pertes par absorption végétale (ruminants sur site), que le lessivage est entièrement pris en compte en intégrant tout le profil vertical de  $^{137}\text{Cs}$  mesuré ce qui inclut que les pertes par lessivage par le bas du système sont négligeables, et que le sol n'a pas été perturbé ou détruit depuis les années 1950. En l'absence de ces hypothèses, [Brimo et al., 2019] donne une période effective médiane du  $^{137}\text{Cs}$  de 17,3 ans.

En considérant la surface et le volume des échantillons prélevés et en prenant en compte la valeur de densité apparente préalablement déterminée de  $1204 \pm 47 \text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$ , la conversion entre activité surfacique et activité massique peut s'écrire sous la forme :

$$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2} = \text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1} \times (\rho_a \times z) \quad (5.1)$$

Ainsi, la conversion de la valeur moyenne d'activité massique de  $^{137}\text{Cs}$  mesurée de  $3,00 \pm 0,22 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  sur une profondeur  $z$  de 0,55 m donne une valeur moyenne d'activité surfacique de  $^{137}\text{Cs}$  par l'équation 5.1 de  $2000 \pm 182 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . Cette valeur est comprise entre les bornes d'activité surfacique déterminées pour 2020.

### 5.2.8 Bilan sur les activités massiques dans les sols du site P2OA-CRA

Dans un premier temps, cette caractérisation des activités massiques en  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{137}\text{Cs}$  permet de montrer l'intérêt que représente le site P2OA-CRA. En effet, les activités massiques pour ces quatre radionucléides sont relativement proches des valeurs moyennes mondiales même si on dénote un enrichissement en  $^{232}\text{Th}$  et une teneur en  $^{40}\text{K}$  appauvrie.

Ce site offre donc la possibilité de suivre la réponse du détecteur à un environnement représentatif de conditions assez standardisées. Le tableau 5.1 reprend l'ensemble des activités massiques moyennes et médianes ainsi que les incertitudes associées pour les quatre radionucléides suivis.

	$^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U}$	$^{40}\text{K}$	$^{137}\text{Cs}$
Moyenne ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ )	$45,40 \pm 3,30$	$38,90 \pm 5,70$	$286,30 \pm 29,40$	$5,81 \pm 0,77$
Médiane ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ )	$44,30 \pm 3,20$	$37,90 \pm 5,70$	$264,50 \pm 27,80$	$6,61 \pm 0,71$

Tableau 5.1 – Tableau bilan des activités massiques moyennes et médianes mesurées pour le  $^{232}\text{Th}$ , le  $^{238}\text{U}$ , le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{137}\text{Cs}$  sur le site P2OA-CRA.

Dans un second temps, ces activités massiques seront utilisées dans le cadre de simulations Geant-4 associées au protocole expérimental mis en place sur le site P2OA-CRA. Les valeurs d'activité massique injectées de manière homogène dans le compartiment sol permettra d'assurer une meilleure comparaison entre signaux mesurés et simulés.

### 5.2.9 Fluorescence X

Le terme de fluorescence est appliqué aux phénomènes dans lesquels l'absorption d'un rayonnement produit la ré-émission d'un rayonnement moins énergétique. La spectrométrie par fluorescence X ou XRF est une technique analytique non destructive permettant d'obtenir des analyses quantitatives élémentaires.

Dans cette étude, le CEA qui s'est occupé des mesures de fluorescence X a demandé à ce que tous les échantillons de sol soient conditionnés de manière analogue sous forme de poudre. Le matériel de conditionnement a été livré à l'IRAP permettant un emboîtement des 84 échantillons de sol prélevés et préalablement préparés d'après le protocole mis en place. Chaque échantillon présente environ 30 grammes de matières pour analyse. Les échantillons ont ensuite été envoyés au CEA pour analyse en fluorescence X dans le but de déterminer la composition chimique des sols en place.

La composition chimique moyenne des cinq typologies de sol caractéristiques sur le site P2OA-CRA exprimée en pourcentage d'oxydes est présentée dans le tableau 5.2. Les autres composantes majeures du sol que sont la teneur en eau et la proportion de matières organiques n'ont pas fait l'objet de mesures.



	SiO <sub>2</sub> (%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	K <sub>2</sub> O (%)	CaO (%)	TiO <sub>2</sub> (%)
Limons argileux	51,42±0,58	10,00±0,26	3,26±0,03	3,46±0,03	0,30±0,02	1,90±0,03
Véracrisol	70,86±0,70	6,42±0,24	7,84±0,04	2,08±0,03	0,52±0,03	2,08±0,02
Véracrisol remanié	64,50±0,64	9,48±0,26	9,90±0,04	2,88±0,03	0,44±0,02	2,20±0,02
Véracrisol cultivé	65,66±0,66	9,14±0,28	12,92±0,04	2,52±0,04	1,32±0,03	2,12±0,02
Véracrisol anthropisé	73,64±0,74	10,90±0,28	7,70±0,04	2,66±0,04	0,70±0,02	2,28±0,02
Sol P2OA	68,92±0,68	8,20±0,24	8,60±0,04	2,44±0,02	0,58±0,02	2,14±0,02

Tableau 5.2 – Composition chimique moyenne des cinq typologies de sol caractéristiques sur le site P2OA-CRA exprimée en pourcentage d'oxydes pour l'ensemble des échantillons.

Le total analytique pour les limons argileux n'est que de 70% contre 98% pour le véracrisol anthropisé et montre que les limons argileux sont sans doute plus riches en matières organiques que le véracrisol anthropisé. En calculant les concentrations pour un total de 100%, les teneurs en silice (SiO<sub>2</sub>) sont presque identiques (73% contre 74%). Pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, la teneur la plus faible est observée pour le véracrisol profond, 6,42 ± 0,22 %. Un lessivage de l'aluminium des couches superficielles vers les horizons profonds est tout à fait réaliste dans ce type de sol brun acide. D'ailleurs les véracrisols remaniés, cultivés et anthropisés montrent des valeurs supérieures à celle du véracrisol non perturbé. La remise en surface d'horizons de sol plus riche en aluminium a eu un impact positif sur la couche superficielle pour ces sols. Le Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> montre une forte teneur au niveau des véracrisols cultivés 12,92 ± 0,04 % par rapport à celle des limons argileux 3,26 ± 0,03 %. Dans les sols bruns comme les véracrisols, les complexes argilo-humiques se forment notamment par l'intermédiaire des hydroxydes de fer. Les couches superficielles étant régulièrement labourées dans les véracrisols cultivés, le lessivage naturel du fer vers les horizons plus profonds est rompu. La teneur en CaO au niveau des véracrisols cultivés est particulièrement intéressante puisqu'elle est trois fois supérieure (1,32 ± 0,03 %) à celle des véracrisols non cultivés (0,48 ± 0,02 %). Les amendements de calcaire ou opération de chaulage sont donc bien réalisés sur les sols cultivés pour permettre une remontée du pH et favoriser les cultures. Toutefois, ces opérations n'ont pas dû être réalisées sur ces sols cultivés cette année du fait d'une teneur en calcium certes supérieure mais modérée.

Une comparaison des concentrations obtenues entre les techniques de fluorescence X et de spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire est proposée pour validation couplée des résultats. Cette comparaison entre les deux techniques est à observer sur la figure 5.14.



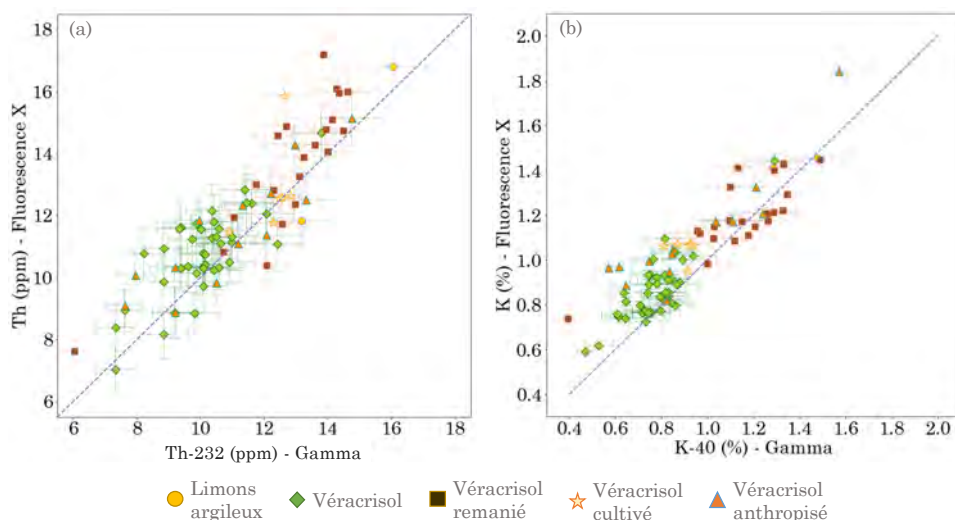


Figure 5.14 – (a) Comparaison entre les concentrations en  $^{232}\text{Th}$  mesurées par fluorescence X en fonction de celle déterminées par spectrométrie  $\gamma$ . (b) Comparaison entre les concentrations en  $^{40}\text{K}$  mesurées par fluorescence X en fonction de celle déterminées par spectrométrie  $\gamma$ .

Le premier graphique de la figure 5.14 présente les concentrations de  $^{232}\text{Th}$  (en ppm) mesurées à partir de la fluorescence X en fonction des concentrations d'équivalent  $^{232}\text{Th}$  ( $^{208}\text{Tl}$ ) déterminées par spectrométrie  $\gamma$  pour les cinq typologies de sol. Les résultats montrent une très bonne corrélation positive entre les deux techniques avec un coefficient de corrélation de 0,88 et un rapport moyen  $^{232}\text{Th}_{FluoX}/^{232}\text{Th}_{Gamma}$  de 1,05.

En ce qui concerne le potassium, la deuxième figure de la figure 5.14 montre les concentrations de  $^{40}\text{K}$  (en %) mesurées à partir de la fluorescence X en fonction des concentrations de  $^{40}\text{K}$  (en %) déterminées par spectrométrie  $\gamma$  pour les cinq typologies de sol. Comme pour le thorium-232, les résultats sont concluants avec une nouvelle corrélation positive bien identifiée et validée par un coefficient de corrélation de 0,90 pour l'ensemble des échantillons. Le rapport moyen  $^{40}\text{K}_{FluoX}/^{40}\text{K}_{Gamma}$  de 1,10. Le véracrisol profond (vert) montre le plus grand écart entre les concentrations déterminées par ces deux techniques. C'est aussi les concentrations les plus faibles mesurées. Cette comparaison entre les deux techniques permet de proposer une validation croisée des concentrations mesurées par la technique de fluorescence X et celles déterminées par la spectrométrie  $\gamma$ .

Grâce à ces mesures, la composition chimique ainsi déterminée pourra être utilisée dans la modélisation GEANT-4 du sol de Lannemezan.

### 5.2.10 La concentration effective en radium-226 - $\text{EC}_{Ra}$

La concentration effective en radium est le produit de l'activité massique de  $^{226}\text{Ra}$  ( $C_{Ra}$ ) et le coefficient d'émanation du radon-222 (E). Ce coefficient représente la probabilité, après la décroissance radioactive, que l'atome de  $^{222}\text{Rn}$  (noyau fils) soit libéré dans l'espace poral du milieu considéré d'où il peut ensuite être transporté dans l'environnement et notamment entre les compartiments sol et atmosphère [Tanner, 1964, Malmqvist et al., 1989, Nazaroff, 1992].

[Girault and Perrier, 2012a, Girault and Perrier, 2012b] ont développé et validé un protocole permettant de quantifier les valeurs d' $EC_{Ra}$ , qui fait intervenir la méthode d'accumulation du  $^{222}\text{Rn}$  au sein de fioles scintillantes. L'incertitude de mesure a été évaluée autour de 30% pour des  $EC_{Ra}$  dont les valeurs sont inférieures à  $0,2 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et entre 8 et 10% pour des valeurs d' $EC_{Ra}$  supérieures à  $50 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Ce protocole a été utilisé sur les mêmes 84 échantillons de sol fournis à l'IPGP que ceux conditionnés pour l'étude de spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire.

La connaissance de ce paramètre associée aux activités massiques de  $^{226}\text{Ra}$  déterminées par l'intermédiaire des analyses de spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire au LAFARA faites sur les mêmes échantillons permettra de remonter au **coefficient d'émanation en  $^{222}\text{Rn}$**  pour des sols secs. À partir de ce coefficient, l'estimation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  dans la couche superficielle de sol du site P2OA-CRA est possible. Cela permet de quantifier la production locale de  $^{222}\text{Rn}$  susceptible d'atteindre le compartiment atmosphérique.

La distribution des coefficients d'émanation du  $^{222}\text{Rn}$  dans les sols montre une forte variation spatiale sur le site avec une gamme de valeurs comprises entre 11 et 35% (Figure 5.15).

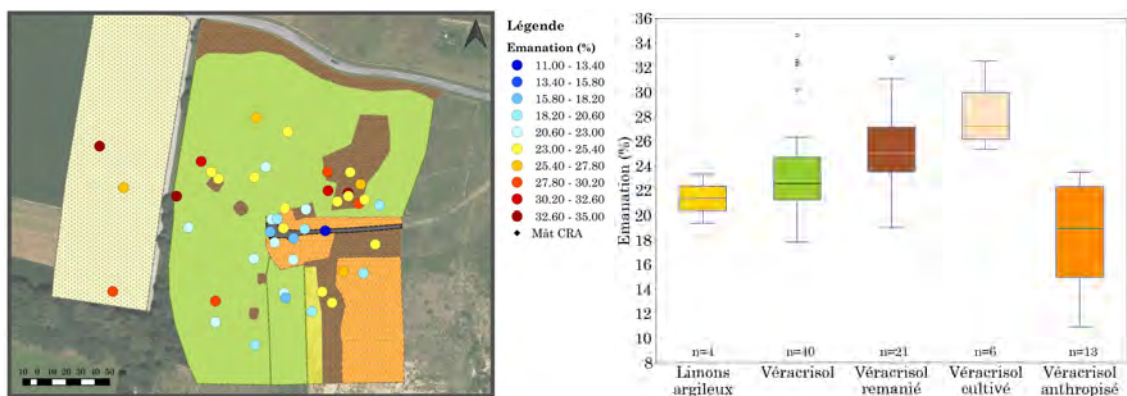


Figure 5.15 – (a) Cartographie de la distribution spatiale de l'émanation en  $^{222}\text{Rn}$  en %, sur sol sec, pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). (b) Une représentation statistique par boîte à moustaches pour l'ensemble des échantillons est proposée en fonction de la typologie des sols.

Les facteurs d'émanation les plus importants se situent au niveau des véraçrisols cultivés et remaniés où la couche superficielle de sol est plus enrichie en argiles. Les valeurs les plus faibles sont distribuées au niveau des véraçrisols anthropisés, où la présence de roches gréseuses est notée, et des limons argileux où la taille des grains est supérieure à celle des véraçrisols. Les sols argileux ont un pouvoir d'émanation en  $^{222}\text{Rn}$  compris entre 20 et 38%, les grès entre 5 et 12% et les sols limoneux varient entre 10 et 20% [Barretto et al., 1972, Demongeot, 1997]. Les sols du site P2OA-CRA semblent donc être caractérisés par des valeurs de coefficient d'émanation en  $^{222}\text{Rn}$  relativement classiques pour les natures de sols et roches rencontrées. Le coefficient d'émanation moyen estimé sur le site autour de la tour instrumentée est de 24,3%. En considérant une activité massique moyenne de  $^{226}\text{Ra}$  de  $37,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et une masse volumique apparente de sol de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ , l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  est d'environ  $11 \text{ kBq.m}^{-3}$  pour une couche superficielle de sol sec. Cette concentration a été vérifiée par des mesures de radon dans les sols du P2OA-CRA.

Les coefficients d'émanation sont exprimés à partir d'analyses d'échantillons de sol sec. Si le pouvoir d'émanation est directement dépendant du type de roches ou de sols, d'autres facteurs peuvent faire varier cette valeur comme le taux d'humidité [Stranden et al., 1984, Menetrez et al., 1996], la taille des grains [Markkanen and Arvela, 1992, Sakoda et al., 2010] ou encore le degré de saturation [Schery et al., 1984, Malmqvist et al., 1989, Hosoda et al., 2007].

### 5.3 Le flux d'exhalaison en radon à l'interface sol-atmosphère

La quantité de radon qui arrive à l'air libre par unité de surface et par unité de temps est appelée le flux d'exhalaison de radon [Demongeot, 1997]. Les valeurs observées sur des massifs granitiques sont comprises entre  $10^{-3}$  et  $10^{-1}$  Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> et peuvent atteindre 50 Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> [Ielsch et al., 2001]. En terrain sédimentaire, comme au CRA, des flux plus faibles sont observés, de l'ordre de  $10^{-3}$  Bq.m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup> [Robe et al., 1996]. Le flux moyen à la surface de la Terre est estimé à 21 mBq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> soit 10000 atome.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> [UNSCEAR, 1994]. La variation saisonnière des flux de radon est en grande partie attribuable à l'effet du cycle saisonnier de l'humidité du sol. Un sol humide réduit le flux de radon à la surface en réduisant la diffusion du radon à travers la matrice du sol [Rogers and Nielson, 1991a, Nazaroff, 1992, Papanichristodoulou et al., 2007, Meslin, 2008, Meslin et al., 2010]. Le cycle saisonnier de la température du sol peut aussi introduire un cycle saisonnier du radon car la diffusion devient plus importante à des températures plus élevées [Schery and Wasiolek, 1998, Meslin, 2008].

#### 5.3.1 Les mesures de flux d'exhalaison du radon

Les mesures de flux d'exhalaison du radon sont effectuées selon la technique dite d'accumulation. Celle-ci consiste à déterminer à un instant donné la concentration de radon collecté dans un conteneur dont une face ouverte est appliquée sur le sol (Figure 5.16 a). La mesure est réalisée à partir d'un protocole utilisant un détecteur de radon AlphaGUARD®, équipé d'une chambre d'ionisation de diffusion, installé dans le volume de l'enceinte posée à la surface du sol (Figure 5.16 b).

Le détecteur de radon permet la mesure de l'activité volumique de radon (Bq.m<sup>-3</sup>) par pas d'intégration de 10 minutes. Comme l'appareil se trouve dans un volume connu, le flux d'exhalaison, en Bq.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> peut ainsi être déterminé. Dans cette étude, le volume de l'enceinte est de  $56,10 \cdot 10^{-3}$  m<sup>3</sup> et la surface de  $13,21 \cdot 10^{-2}$  m<sup>2</sup>. La durée d'accumulation recommandée pour avoir une précision de mesure suffisante est de 1 à 3 heures. Avec la chambre d'ionisation, le flux est calculé d'après la pente de la courbe donnant l'activité volumique de radon (Bq.m<sup>-3</sup>) en fonction du temps suivant la relation 5.3, où le terme de fuite a été mesuré et corrigé :

$$\Phi_0 = \frac{a \times h^*}{\lambda_{Rneff}} \quad (5.2)$$

### 5.3. Le flux d'exhalaison en radon à l'interface sol-atmosphère

avec  $\Phi_0$  qui définit le flux d'exhalaison de radon en  $\text{Bq.m}^2.\text{s}^{-1}$ ,  $a$  est la pente de la courbe de l'activité volumique de radon en fonction du temps,  $h^*$  est la hauteur du volume de l'enceinte et  $\lambda_{Rn_{eff}}$  est la constante de désintégration radioactive en  $\text{s}^{-1}$  modifiée du terme de fuite.

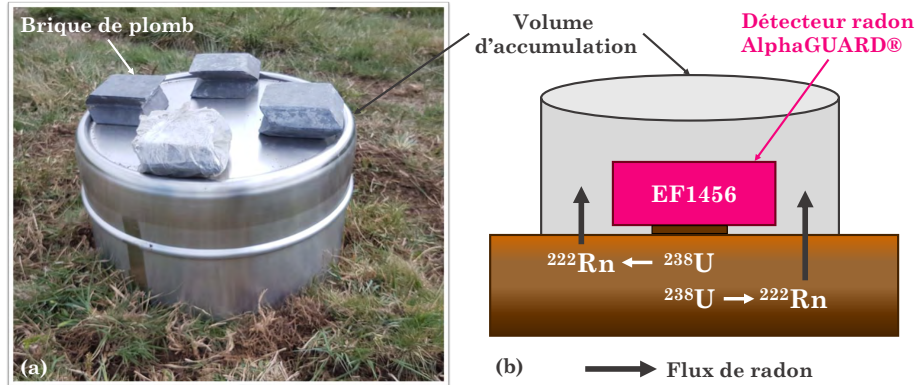


Figure 5.16 – Protocole de mesure des flux de  $^{222}\text{Rn}$  à l'interface sol-atmosphère.

À partir de ce protocole, 14 mesures de flux d'exhalaison de radon ont été réalisées sur le site P2OA-CRA sur la période Avril 2019 - Septembre 2020 (Tableau 5.3).

Date	Période	Flux $^{222}\text{Rn}$ $\text{atome.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$	Humidité sol % vol.	$^{222}\text{Rn}$ atm. $\text{Bq.m}^{-3}$
29/04/2019	10h-18h	4479	30,8	2,8
30/04/2019	09h-16h	4334	31,7	2,5
17/06/2019	14h-20h	3964	31,4	3,9
18/06/2019	09h-17h	4054	29,6	6,0
18/06/2019	21h-09h	4104	28,2	4,9
17/07/2019	10h-18h	5833	22,3	5,3
05/09/2019	09h-16h	4345	26,2	0,9
22/11/2019	10h-17h	3254	38,5	3,2
15/01/2020	11h-17h	3561	35,6	6,1
02/03/2020	12h-18h	3017	39,9	0,4
07/09/2020	12h-18h	5954	21,6	0,8
08/09/2020	20h-10h	6816	21,0	2,5
09/09/2020	11h-16h	6219	20,1	3,4
12/10/2020	10h-18h	6284	19,4	4,8

Tableau 5.3 – Flux d'exhalaison de radon mesurés sur le site P2OA-CRA sur la période Avril 2019 - Octobre 2020. Les humidités du sol (horizon 0 - 5 cm de profondeur) et les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique sont présentées.

Toutes les valeurs de flux d'exhalaison sont inférieures à la valeur moyenne mondiale de  $10000 \text{ Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Les terrains sédimentaires du site et les sols développés sont moins enrichies en uranium ce qui peut expliquer ces valeurs plus faibles.

Les flux d'exhalaison mesurés montrent une relative variabilité temporelle sur la période investiguée avec une gamme de valeurs comprises entre 3017 et 6816  $\text{Bq.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$ . Les flux les plus importants sont associés aux périodes où les teneurs en eau volumique du sol sont les plus faibles (Septembre 2020). L'apport de radon du compartiment tellurique au compartiment atmosphérique est donc bien variable au cours de l'année et va dépendre en partie de l'humidité du sol. Cela aura pour effet d'engendrer une variabilité des valeurs d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique mesurées sur une longue période temporelle.

La figure 5.17 présente les flux de radon mesurés en fonction de l'humidité de la couche superficielle du sol (0 - 5 cm). Une relation se dessine avec une augmentation du flux de radon nettement marqué lorsque l'humidité dans le sol diminue. L'influence de l'humidité du sol sur la diffusion du radon dans le sol va donc être à l'origine de variations temporelles sur le site P2OA-CRA. La courbe théorique déduite de la relation entre le coefficient de diffusion effectif du  $^{222}\text{Rn}$  ( $D_{air}$ ) et la saturation en eau [Rogers and Nielson, 1991b] ajuste suffisamment les données acquises sur le site P2OA-CRA. L'équation 5.3 en rappelle la forme [Meslin, 2008] :

$$\Phi_0 = \rho \times EC_{Ra} \times \sqrt{\frac{\varepsilon_0 \times D_{air}}{\varepsilon_0 + \rho \times k_{ads}}} \times \sqrt{\exp(-6S_w\varepsilon_0 - 6S_w^{14}\varepsilon_0)} \quad (5.3)$$

avec  $\rho$  qui définit la masse volumique du sol,  $k_{ads}$  est le coefficient d'adsorption du  $^{222}\text{Rn}$  à  $0^\circ\text{C}$ ,  $S_w$  est la teneur en eau volumique et  $\varepsilon_0$  la porosité.

Le flux de  $^{222}\text{Rn}$  pour un sol sec estimé à partir de cette relation est de  $10542 \text{ atome.m}^2.\text{s}^{-1}$ . En prenant en compte les valeurs moyennes de la concentration en  $^{226}\text{Ra}$  sur le site, le coefficient d'émanation et le coefficient d'adsorption du  $^{222}\text{Rn}$  dans le sol [Meslin et al., 2011], le flux de  $^{222}\text{Rn}$  théorique est de  $8900 \text{ atome.m}^2.\text{s}^{-1}$ . L'écart entre les flux théorique et ajusté pour un sol sec est probablement dû au coefficient d'adsorption du  $^{222}\text{Rn}$  dans le sol car la valeur utilisée est celle pour une température de  $0^\circ\text{C}$  [Meslin et al., 2011].

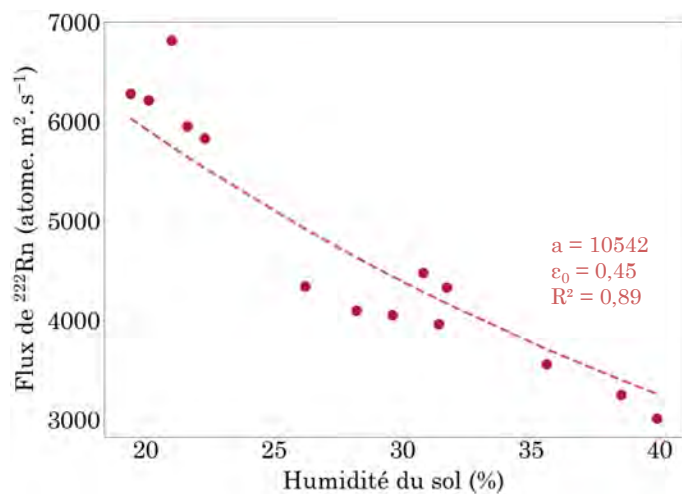


Figure 5.17 – Flux de  $^{222}\text{Rn}$ , exprimé en  $\text{atome.m}^2.\text{s}^{-1}$  en fonction de l'humidité du sol (% vol.). Une fonction d'ajustement est proposée en lignes pointillées.

La prochaine partie de cette thèse se consacre à l'étude de l'influence des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré et leur prise en compte dans le traitement des spectres acquis.



PARTIE

## Les effets environnementaux





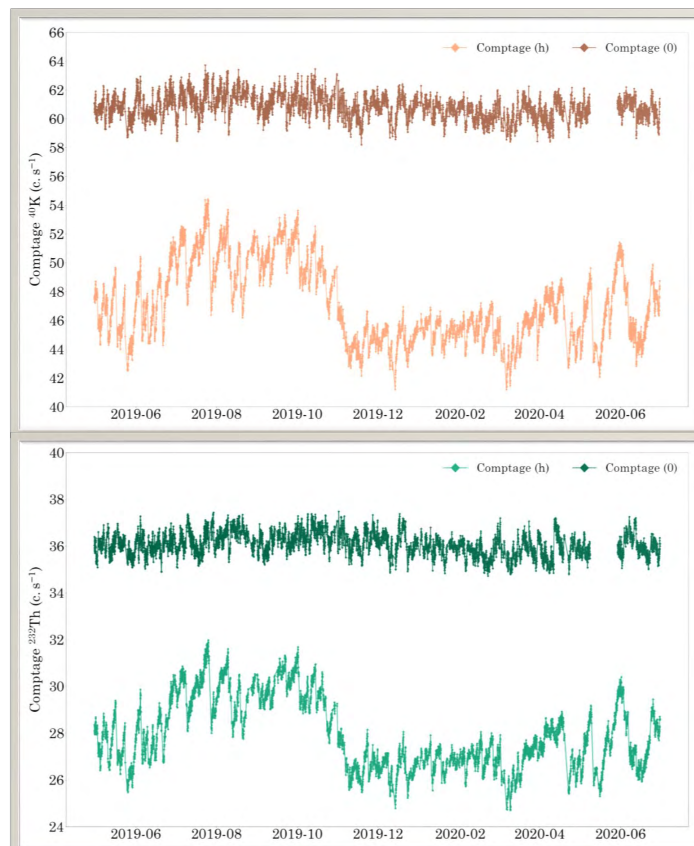
# 6

## Les effets de l'humidité du sol sur le signal $\gamma$ mesuré

---

*"La nature ne va pas par sauts, elle avance avec ordre"*  
(Proverbe danois).

---



## Sommaire

---

<b>6.1</b>	<b>L'influence de l'humidité du sol sur les signaux <math>\gamma</math></b>	<b>195</b>
6.1.1	Les trois phases d'un sol	195
6.1.2	L'atténuation des rayonnements $\gamma$	196
6.1.3	L'atténuation des rayonnements $\gamma$ dans les sols	197
<b>6.2</b>	<b>Des acquisitions aux chroniques temporelles des paramètres mesurés</b>	<b>198</b>
6.2.1	Le traitement des données acquises	198
6.2.2	L'analyse des chroniques temporelles	200
<b>6.3</b>	<b>L'humidité du sol, un facteur d'influence dans le compartiment sol</b>	<b>213</b>
6.3.1	L'évolution des taux de comptage en fonction de l'humidité des sols	214
6.3.2	Courbe théorique caractérisant l'influence de l'humidité du sol sur les rayonnements $\gamma$ émis depuis le sol	217
6.3.3	Taux de comptage et sol sec pour répondre aux besoins de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée	223
6.3.4	Comparaison entre simulations Geant-4 et mesures obtenues au P2OA-CRA	227
<b>6.4</b>	<b>L'humidité du sol par satellite : une perspective concrète de suivi</b>	<b>236</b>
6.4.1	Comparer les données d'humidité du sol observées <i>in situ</i> et issues de la télédétection satellitaire	236
6.4.2	La relation entre les taux de comptage des radionucléides suivis sur le site P2OA-CRA et l'humidité du sol enregistrée par télédétection satellitaire	242
<b>6.5</b>	<b>Un profil de la teneur en eau dans le sol à partir de la spectrométrie <math>\gamma</math></b>	<b>246</b>

---

## 6.1 L'influence de l'humidité du sol sur les signaux $\gamma$

L'objectif de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour le suivi environnemental est de mesurer uniquement les rayonnements  $\gamma$  émis depuis le sol. La compréhension des variations liées aux facteurs extérieurs sur le compartiment sol permettra d'effacer les effets parasites sur les cartes de concentration en K, U et Th issues de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Par l'intermédiaire de l'analyse des différentes chroniques temporelles, l'influence de l'humidité du sol sur le signal  $\gamma$  a été caractérisée par des variations saisonnières et diurnes. La prise en compte de l'influence de l'humidité du sol sur le signal  $\gamma$  au sein d'un protocole de traitement de données permettra de s'en affranchir et de comparer plus aisément deux cartographies réalisées à deux périodes différentes. Les variations observables entre deux cartographies spatio-temporelles seront donc uniquement dues à l'évolution de cette concentration dans le temps. Atteindre une haute sensibilité environnementale pour des données acquises en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pourrait être ainsi possible. Or, la structure d'un sol et son influence sur l'atténuation des rayonnements  $\gamma$  est à connaître.

### 6.1.1 Les trois phases d'un sol

Le sol est un milieu poreux où se déroulent de nombreux processus physiques, chimiques et biologiques, pouvant impacter le signal des rayonnements  $\gamma$  (distribution des radionucléides, atténuation). Ce système multi-composants ouvert est un mélange d'éléments solides, d'eau pouvant circuler entre les grains constitutifs et d'air. Trois phases caractérisent donc ce compartiment :

- La **phase solide** du sol qui est constituée par des minéraux et des matières organiques en proportions variables. La composition minérale dépend de la nature de la roche-mère. La nature des minéraux peut être extrêmement diverse avec des tailles granulométriques différentes. La fraction organique est constituée de 80 % de matière organique morte et de 20 % d'organismes vivants (bactéries, champignons). Les organismes biologiques présents dans le sol font partie de cette phase solide puisqu'ils ne sont ni liquides, ni gazeux et participent à l'évolution de la structure du sol en affectant la porosité et la perméabilité.
- La **phase liquide** du sol est principalement constituée par l'eau, dans laquelle sont présents les ions minéraux et les molécules organiques. Sa composition dépend du milieu géologique avec lequel elle est en contact mais aussi des eaux de pluie et de l'eau de surface. L'eau de cette phase peut être libre, capillaire, adsorbée à la surface des grains ou constituante dans certains minéraux. C'est cette phase liquide qui est caractérisé par la notion de teneur en eau.
- La **phase gazeuse** du sol ou atmosphère du sol présente une composition chimique souvent voisine de celle de l'air mais elle peut être variable dans l'espace et dans le temps. Elle dépend principalement de deux facteurs : la proximité de l'atmosphère, c'est-à-dire la profondeur dans le sol, et l'activité biologique.

Ces trois phases constituantes du sol participent à la vie du rayonnement  $\gamma$  émis depuis les minéraux composants la phase solide du sol et qui traversent ce mélange de

matière en étant atténués progressivement. En plus de l'atténuation, des processus de lessivage, d'absorption racinaire, la mobilité du radon-222 peuvent entraîner des variations dans l'émission de photons  $\gamma$  d'un site dédié.

### 6.1.2 L'atténuation des rayonnements $\gamma$

Les principes généraux de l'atténuation des rayonnements  $\gamma$  et l'effet que peut avoir l'humidité du sol sur ces derniers au sein de différents matériaux ont été résumés par [Løvborg, 1984]. La diffusion Compton est l'interaction entre les photons  $\gamma$  et la matière qui permet de manière significative une atténuation des photons aux énergies d'intérêt. Lorsque la diffusion Compton est l'interaction dominante, le coefficient d'atténuation linéique  $\mu$  est proportionnel au nombre total d'électrons par unité de volume de matériau. Tous les éléments chimiques qui ont un numéro atomique inférieur à 30 auront des coefficients d'atténuation massique similaires. La silice et l'oxygène, principaux éléments chimiques constitutifs des sols du site P2OA-CRA sont retrouvés au sein de ce groupe d'éléments. Ainsi, en l'absence d'eau, le sol, les matériaux superficiels et le substrat rocheux auront des coefficients d'atténuation comparables.

L'hydrogène fourni au matériau du sol sous forme d'eau adsorbée ou libre, eau interstitielle dans l'espace poral, génère alors une atténuation supplémentaire due à la présence d'électrons additionnels. En effet, l'eau contient 1,11 fois plus d'électrons par gramme que la plupart des matériaux, y compris les sols [Grasty, 1997]. La relation entre le coefficient d'atténuation linéaire pour un sol humide  $\mu_w$  et celui d'un sol sec  $\mu_d$  est donnée par [Kogan et al., 1971, Løvborg, 1984] :

$$\mu_w = \mu_d[1 + 1,11w] \quad (6.1)$$

avec  $w$  définissant l'humidité du sol comme le poids d'eau dans 1 g de sol sec.

Cette équation 6.1 montre bien que lorsque de l'eau va humidifier le sol sec,  $w$  n'est plus nul, le coefficient d'atténuation linéaire du sol humide est bien supérieur à celui d'un sol sec. **Plus la teneur en eau volumique est importante et plus l'atténuation sera forte.**

Par exemple, l'humidité du sol augmente l'atténuation du signal et l'atténuation augmente d'environ 10 % pour chaque augmentation volumétrique de 10% de la teneur en eau. Cette relation est retrouvée dans de nombreuses publications [Loijens, 1980, Carroll, 1981, Løvborg, 1984, Grasty, 1987, Grasty and Minty, 1995, Cook et al., 1996, IAEA, 2003].

Par conséquent, l'atténuation à l'échelle de la couche superficielle de la croûte terrestre dépend de la masse volumique et de la teneur en eau volumique totale. Cette couche, entre 0 et 30 cm, caractérise très souvent le sol et correspond à la profondeur pour laquelle 95 % du flux de photons  $\gamma$  est mesuré. L'épaisseur de sol responsable de l'atténuation des rayonnements varie entre 20 cm, pour les substrats rocheux très peu impactés par l'érosion, et 60 cm pour les tourbières riches en matières organiques [Beamish, 2013]. Pour la plus grande majorité des sols du domaine climatique tempéré, cette épaisseur oscille entre 20 et 60 cm [Beamish, 2013]. Il s'en suit donc qu'une étude de l'évolution de l'atténuation sur les données radiométriques pourrait fournir des informations sur les propriétés du sol jusqu'à des profondeurs pouvant atteindre les 60 premiers cm du profil de sol.

### 6.1.3 L'atténuation des rayonnements $\gamma$ dans les sols

Dans le cas des sols (système triphasé), il est nécessaire d'ajuster le coefficient d'atténuation  $\mu$  pour chaque matériau du mélange (Equation 6.2). L'équation 6.2, applicable à un flux monodirectionnel et monoénergétique, peut ainsi s'écrire sous la forme suivante pour ce système triphasé [Endrestøl, 1980] :

$$I = I_0 \exp(-(\mu_s \theta_s x + \mu_e \theta_e x + \mu_a \theta_a x)) \quad (6.2)$$

avec  $\theta$  qui représente la fraction de chaque phase dans le mélange et les indices  $s$ ,  $e$ ,  $a$  font référence aux phases solide (sol), liquide (eau) et gazeuse (air) et  $\theta_s + \theta_e + \theta_a = 1$ .

Ainsi, le comportement de l'atténuation dans un sol dû à la densité apparente du sol, l'humidité du sol et la porosité, et démontré dans des études anciennes a été validé dans des études plus récentes [Sakoda et al., 2010, Beamish, 2013, Beamish, 2015]. De ce fait, les sols très minéralisés vont entraîner une augmentation significative de l'atténuation ( $\sim 20$  %) pour des fortes valeurs d'humidité du sol.

En l'absence de connaissance de la composition de sol, il est recommandé d'utiliser les coefficients d'atténuation représentatifs du matériau dominant des sols ou roches standards à savoir ceux de la silice,  $\text{SiO}_2$  [Beamish, 2015]. Cette étude a caractérisé la composition chimique des sols du site étudié sur plusieurs échantillons de sol par fluorescence X (cf. Chapitre 5). Le tableau 6.1 regroupe les coefficients d'atténuation massique ( $\mu_m = \mu/\text{g}$ ) exprimés en  $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$  pour les rayons  $\gamma$  émis par les trois radionucléides naturels suivis ainsi que celui du  $^{137}\text{Cs}$  pour deux compositions chimiques de sol sec différentes, l'eau et l'air. Ces coefficients ont été définis par le National Institute of Standards and Technology (NIST), référence mondiale sur ces thématiques (Tableau 6.1).

Radio nucléide	Énergie (keV)	Sol ( $\text{SiO}_2$ ) $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$	Sol (CRA) $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$	Eau $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$	Air $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$	Ratio Sol (CRA)-Eau
$^{137}\text{Cs}$	662	0,07727	0,07669	0,08574	0,07722	1,118
$^{40}\text{K}$	1461	0,05255	0,05214	0,05833	0,05252	1,118
$^{238}\text{U}$	1764	0,04770	0,04733	0,05288	0,04762	1,117
$^{232}\text{Th}$	2615	0,03893	0,03867	0,04271	0,03853	1,104

Tableau 6.1 – Coefficients d'atténuation massique exprimés en  $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$  pour un sol sec composé à 100 % de silice ( $\text{SiO}_2$ ), un sol sec de même composition chimique que ceux du site P2OA-CRA, l'eau (100 %  $\text{H}_2\text{O}$ ) et de l'air (mélange de 79 % d'azote,  $\text{N}_2$  et de 21 % d'oxygène,  $\text{O}_2$ ). Les coefficients pour chaque radionucléide sont issus des tables du National Institute of Standards and Technology (NIST).

Les coefficients d'atténuation massique pour les deux types de sol ne présentent quasiment aucune variation pour les quatre milieux présentés. La proportion de silice sur le site P2OA-CRA est d'environ 35 % contre 100 % pour le second sol présenté. La variation de la proportion de silice dans ces deux sols secs affecte de manière négligeable le coefficient d'atténuation massique. L'absence de connaissance



de la composition chimique du sol pour en déterminer la valeur de coefficient d'atténuation massique n'est donc pas rédhibitoire pour ce cas d'étude et des sols de même composition. La valeur associée à 100 % de  $\text{SiO}_2$  peut être utilisée dans la grande majorité des sols et roches présents en France. Les coefficients d'atténuation massique dans l'eau sont supérieurs à ceux du sol sec (Tableau 6.1). Le ratio entre ces deux coefficients donne la même valeur de 1,11 pour les quatre radionucléides et confirme ce qui a été énoncé dans la littérature.

Lorsque la phase liquide commence à partager l'espace poral avec la phase gazeuse, l'atténuation dans l'espace poral s'en voit augmenter. De surcroît, plus la proportion de la phase liquide augmente au détriment de la phase gazeuse et plus l'atténuation due à la présence d'eau est importante. Les rayonnements  $\gamma$  émis depuis la phase solide sont donc plus atténués dans le sol, ce qui aura pour conséquence d'en réduire le taux de fluence. La proportion de photons  $\gamma$  quittant le sol est donc moindre, ce qui va entraîner une diminution du nombre de photons  $\gamma$  détectés par le spectromètre. La proportion de la phase liquide dans le sol varie au cours du temps en fonction de la pluviométrie et des radiations solaires. L'atténuation additionnelle à celle de la phase solide n'est donc pas un paramètre constant. Par cette variation de l'atténuation causée par l'humidité du sol et la densité du matériel en place, les caractéristiques du compartiment sol influencent donc les taux de comptage mesurés par le détecteur. Pour conforter les affirmations et hypothèses de ce chapitre sur le rayonnement  $\gamma$  associée à l'humidité du sol, l'analyse des chroniques temporelles acquises par l'ensemble des instruments déployés va être développée.

## 6.2 Des acquisitions aux chroniques temporelles des paramètres mesurés

La mise en place de l'ensemble de cette expérimentation sur le site P2OA-CRA a permis d'acquérir des données sur la période s'écoulant **du mois d'Avril 2019 au mois de Juin 2020**. **Sur cette période de 14 mois d'acquisition a été réalisée pour la première fois des mesures couplées entre le signal  $\gamma$ , le suivi de l'humidité du sol et des paramètres météorologiques tels que la température ou la pression**. L'installation et la calibration des neufs sondes TDR de suivi de l'humidité du sol à proximité du mât a été détaillée dans le chapitre 4.

Cette section s'intéresse donc plus particulièrement à **l'influence du compartiment sol** sur les données de spectrométrie  $\gamma$  issues du détecteur NaI(Tl) installé à 50 mètres de hauteur sur la tour instrumentée.

### 6.2.1 Le traitement des données acquises

La période d'acquisition de 14 mois a généré une base de données qu'il a fallu structurer et traiter à l'aide de nombreux codes informatiques afin de pérenniser un système d'acquisition, de gestion et de validation de ces données.

Les mesures brutes enregistrées ont toutes fait l'objet d'un traitement propre à chaque paramètre et développé au cours des chapitres 2 et 4.

Les spectres bruts résultant de la mesure du **signal**  $\gamma$  s'enregistrent sur une base temporelle de 30 secondes permettant un meilleur comptage statistique. Chaque spectre brut de 30 secondes est traité suivant le même protocole assurant une continuité dans les données. La routine de traitement mise en place permet de lire les fichiers, d'en extraire les comptages dans les fenêtres des radionucléides suivis dans cette étude et d'en soustraire les valeurs de bruits de fond instrumentaux (cf. Chapitre 4) et inhérents aux rayonnements cosmiques (cf. Chapitre 7). Ces spectres traités reflètent les taux de comptage mesurés dans l'environnement au sein des compartiments sol et atmosphère car ils incluent encore l'influence du signal du radon-222 atmosphérique considéré comme un bruit de fond [IAEA, 2003]. La chronique temporelle du taux de comptage total exprimé pour la fenêtre d'énergie 40 - 2810 keV sur la période considérée, **Avril 2019 - Juin 2020**, est présentée sur la figure 6.1 pour les mesures de la composante *Down* du spectromètre NaI(Tl).

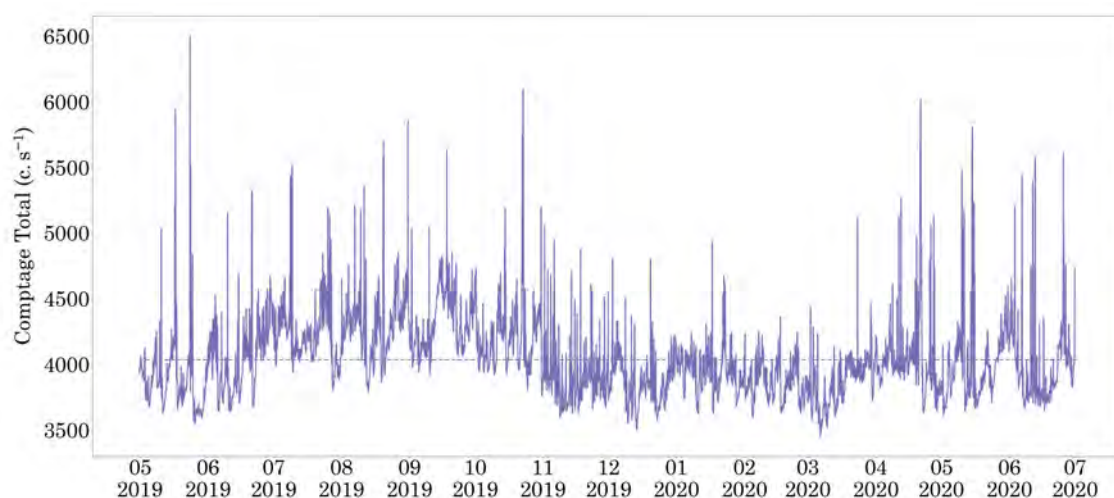


Figure 6.1 – Chronique temporelle du taux de comptage total exprimé en  $c.s^{-1}$  pour la fenêtre d'énergie 40 - 2810 keV sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour la composante *Down* du détecteur. La chronique est réalisée à partir des spectres moyennés sur une base horaire. La ligne pointillée représente le taux de comptage moyen,  $4040 c.s^{-1}$ . Le taux de comptage varie entre  $3550$  et  $6500 c.s^{-1}$ .

Un total de 2880 à 2885 spectres sont donc enregistrés et traités pour chaque journée sur un total de 423 jours une fois les périodes sans données retirées de la chronique. Dans la suite des analyses et pour faciliter la lecture avec les autres paramètres enregistrés avec une fréquence de mesure moins élevée, ces spectres ont été moyennés sur un créneau horaire où une mesure présentée à 12 heures correspond au spectre moyen enregistré sur la période 12h - 13h. Ainsi, chaque spectre associé à un créneau horaire est représentatif de la moyenne de 120 spectres de 30 secondes. En utilisant cette base horaire, le jeu de données se réduit à 10152 valeurs pour toute la chronique temporelle.

Le suivi de **l'humidité du sol *in situ*** par l'intermédiaire des neufs sondes déployées sur le site se fait sur une base temporelle de 10 minutes. La calibration effectuée sur chaque sonde permet de valider les données mesurées. Le seul paramètre pouvant entraîner une dérive des mesures d'humidité est l'importance du couvert végétal qu'il faut maintenir dans la même proportion tout au long de l'étude.

Comme les spectres restituant le signal  $\gamma$ , les données d'humidité sont moyennées sur une base horaire pour chaque sonde installée à différentes profondeurs. Ainsi, pour chaque sonde, chaque valeur horaire reflète le spectre moyen basé sur six mesures d'humidité du sol. Une mesure moyenne enregistrée à 12 heures est en fait le résultat de la moyenne des six valeurs associées au créneau horaire 12h - 13h, comme celle représentée par le signal  $\gamma$  horaire. L'appellation **humidité du sol en surface** fait référence à la moyenne horaire des valeurs des trois sondes implantées dans la couche de surface du sol sur la profondeur 0 - 5 cm.

Les données d'humidité et température du sol acquises par télédétection satellitaire se font sur un pas de temps journalier. Elles servent comme point de comparaison journalier avec l'humidité du sol *in situ*. L'objectif est de s'assurer que leur utilisation est satisfaisante dans le cadre d'une campagne de survol de spectrométrie gamma aéroportée où la mesure de l'humidité du sol *in situ* ne pourrait être assurée.

L'ensemble des **paramètres météorologiques** est mesuré sur des hautes fréquences, 0,1 Hz. Elles permettent d'identifier des variations temporelles rapides ou limitées dans le temps comme la détection d'un événement de pluie ou un changement de régime de vent. Dans une logique comparative sur une base temporelle identique à celle des signaux  $\gamma$  ou d'humidité du sol, chaque paramètre météorologique voit ses mesures intégrées sur une base horaire où la valeur affiliée à 12 heures UTC représente la mesure moyenne du paramètre mesuré sur le créneau horaire 12h - 13h. Les paramètres concernés sont la température de l'air enregistrée à une hauteur de 15 mètres sur la tour instrumentée et les intensités des précipitations mesurées à partir du pluviomètre à augets se situant en pied de mât.

## 6.2.2 L'analyse des chroniques temporelles

Les résultats présentés dans cette section font référence à la base de données constituée des 10152 moyennes horaires sur la période **Avril 2019 - Juin 2020**. Les taux de comptage associés aux signaux  $\gamma$  détectés dans les fenêtres d'énergie des radionucléides d'intérêt (Tableau 6.2) sont uniquement issus des mesures traitées de la composante *Down* du spectromètre NaI(Tl) sauf indication contraire.

Radionucléide	Isotope	Énergie du photopic (keV)	Fenêtre d'énergies (keV)
Potassium	$^{40}\text{K}$	1461	1370 - 1570
Uranium	$^{214}\text{Bi}$	1764	1660 - 1860
Thorium	$^{208}\text{Tl}$	2615	2140 - 2810
Comptage total	-	-	40 - 2810

Tableau 6.2 – Fenêtres spectrales en énergie utilisées pour mesurer *K*, *U* et *Th* telles que recommandées par la méthode des fenêtres (Chapitre 2) de l'AIEA [IAEA, 1991].

Dans une situation sans perturbation du signal  $\gamma$  mesuré issu du rayonnement tellurique, dont les  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  et des chaînes de décroissance de l' $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  sont les seuls contributeurs naturels, aucune variation du taux de comptage ne devrait

être observée au cours du temps. Une présentation suivie d'une analyse des chroniques temporelles des taux de comptage respectifs ( $\text{c.s}^{-1}$ ) : total,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , ainsi que de l'intensité des précipitations en mm associée aux valeurs d'humidité du sol (% vol.) est présentée dans la suite de cette section (Figure 6.2 a-e).

### Le comptage total :

La chronique temporelle du **taux de comptage total** (Figure 6.2 a) montre de très nombreuses variations au cours de la période d'acquisition de 14 mois sur une gamme de variation comprise entre 3486 et 6537  $\text{c.s}^{-1}$ . La moyenne annuelle matérialisée par une ligne en pointillés (Figure 6.2 a) est de 4072  $\text{c.s}^{-1}$ . Les augmentations brutales du taux de comptage sur des temps limités sont associées aux événements pluvieux enregistrés sur le site P2OA-CRA et sont matérialisées par des grands pics. En-dehors de ces événements de pluie qui représentent tout de même 24,8 % des données horaires de la base de données (2517 valeurs), le taux de comptage total varie plutôt entre 3486 et 4500  $\text{c.s}^{-1}$  caractérisant une variation de 30 % entre le signal minimal et le signal maximal mesuré par temps sec.

Les mois d'été ainsi que le mois d'octobre présentent des taux de comptage total supérieurs à la valeur moyenne annuelle et sont synchrones des plus faibles valeurs d'humidité du sol mesurées sur le site P2OA-CRA (rectangle de rouge sur les figures 6.2 a et e). Cette période de l'année est plutôt caractérisée par une moyenne du taux de comptage total de 4300  $\text{c.s}^{-1}$ . Les mois d'hiver montrent des valeurs de comptage total inférieures à la valeur moyenne annuelle avec une moyenne de 3800  $\text{c.s}^{-1}$  et sont associées aux plus grandes valeurs d'humidité du sol mesurées *in situ* ou par satellite (rectangle bleu sur les figures 6.2 a et e).

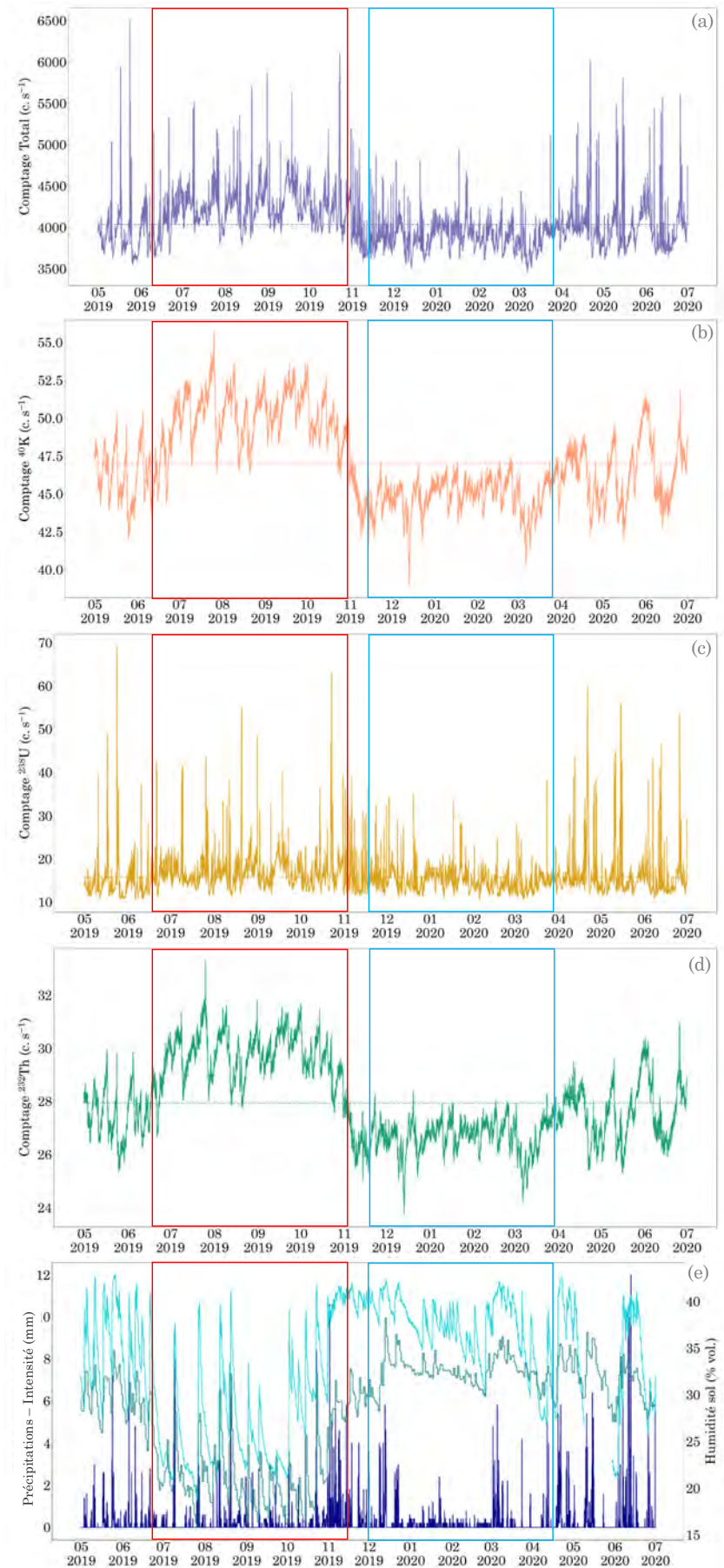
La plus grande amplitude entre le taux de comptage moyen maximal et celui minimal, donc entre deux périodes très marquées sur la période de mesure, se fait très rapidement à l'échelle d'une quinzaine de jours sur le mois de Novembre. Cette très forte diminution est contemporaine d'une période de pluie intense et régulière sur le site P2OA-CRA comme le montre la figure 6.2 e. Du fait de précipitations nombreuses, l'humidité du sol en surface (0 - 5 cm) augmente rapidement de 20 % volumique à 40 % volumique. En effet, ces précipitations répétées rendent possible une plus grande infiltration dans le sol, avant de se stabiliser autour de cette valeur pour les mois d'hiver. Ces distinctions entre la période estivale et hivernale (Tableau 6.4) permettent d'identifier un **cycle saisonnier** du taux de comptage total synchrones de celui observé pour l'humidité des sols en surface sur la couche superficielle (0 - 5 cm) et donc des précipitations. Le taux de comptage total inclus l'ensemble des comptages mesurés pour les radionucléides naturels et artificiels. Les variations observables pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , de  $^{238}\text{U}$  et de  $^{232}\text{Th}$  sont donc influencées par les précipitations de manière différente.

### L'uranium-238 :

La chronique temporelle du **taux de comptage** dans la fenêtre du  $^{214}\text{Bi}$  utilisée pour caractériser l' $^{238}\text{U}$  présente les mêmes variations que celles décrites pour le suivi du taux de comptage total au cours du temps (Figure 6.2 c). Les très fortes augmentations du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sont bien limitées dans le temps et associées à celle du taux de comptage total et aux périodes de précipitations. Les variations des taux de comptage sont présentées dans le tableau 6.3.



Figure 6.2 – Chroniques temporelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $c.s^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du  $^{40}K$  ( $c.s^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du  $^{238}U$  ( $c.s^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du  $^{232}Th$  ( $c.s^{-1}$ ), (e) de l'intensité des précipitations (mm) et de l'humidité du sol in situ et par satellite (% vol.). (e) La courbe turquoise est associée à l'humidité du sol en surface et celle en vert-de-gris aux données satellites. La rectangule rouge représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants à l'inverse de l'humidité du sol. Au niveau du rectangule bleu, les taux de comptage sont les moins élevés à l'inverse des valeurs d'humidité du sol.



Le taux de comptage moyen pour l'uranium est de  $15,98 \text{ c.s}^{-1}$ , précipitations exclues. Comme pour la chronique du taux de comptage total, les mois d'été sont également marqués par une moyenne du taux de comptage de l'uranium supérieure à la moyenne annuelle avec une valeur de  $18,52 \text{ c.s}^{-1}$  et les mois d'hiver par une moyenne inférieure,  $14,75 \text{ c.s}^{-1}$ . (Tableau 6.4) L'évolution annuelle moyenne du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est donc de 25,6 %. Les périodes de précipitations sont ponctuelles et de différentes intensités mais influent fortement le taux de comptage mesuré de l'uranium. Ces augmentations brutales du comptage du  $^{238}\text{U}$  ne sont pas observées sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . **Seule l'augmentation du comptage du  $^{238}\text{U}$  est donc responsable de l'augmentation du comptage total lors d'un épisode de précipitation.**

Radio nucléide	Date Min.	Minimum $\text{c.s}^{-1}$	Date Max.	Maximum $\text{c.s}^{-1}$	$\Delta$ %
$^{40}\text{K}$	Décembre 2019	38,99	Juillet 2019	55,67	+ 43
$^{238}\text{U}$	Mars 2020	12,84	Mai 2019	71,75	+ 460
$^{232}\text{Th}$	Décembre 2019	23,75	Juillet 2019	33,30	+ 40
Compt. Tot.	Mars 2020	3486	Mai 2019	6537	+ 88

Tableau 6.3 – Gamme de variation des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du comptage total sur la période Avril 2019 - Juin 2020.

### Le potassium-40 et le thorium-232 :

Les chroniques temporelles des **taux de comptage du  $^{40}\text{K}$**  (Figure 6.2 b) et **du  $^{232}\text{Th}$**  (Figure 6.2 d) sont similaires entre elles et reprennent à leur compte les remarques faites sur les périodes des mois d'été et des mois d'hiver (Tableau 6.4).

Le taux de comptage moyen annuel du  $^{40}\text{K}$  est de  $47,06 \text{ c.s}^{-1}$  avec une évolution annuelle moyenne du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  de 14,4 %. L'évolution annuelle moyenne du taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  est de 13,40 % pour une valeur moyenne de taux de comptage de  $27,93 \text{ c.s}^{-1}$ . Les valeurs minimales et maximales (Tableau 6.3) sont retrouvées sur les mêmes mois pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ .

Les périodes de précipitations n'affectent pas les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . En effet, le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  peuvent être considérés comme uniquement présents dans les sols et la croûte terrestre. La mesure de leur taux de comptage respectif issu de photons  $\gamma$  provenant du sol ne peut donc pas être affecté par le compartiment atmosphérique.

### L'humidité du sol :

Les chroniques temporelles des **humidités du sol** (Figure 6.2 e) en surface *in situ* (turquoise) ou par satellite (vert-de-gris) sont anti-corrélées à celles des taux de comptage. Les mois d'été concentrent les valeurs d'humidité en surface les plus faibles avec une teneur en eau moyenne de 21,84 % pour les mesures *in situ*. Au cours



des mois d'hiver, l'humidité du sol *in situ* s'est stabilisée autour d'une moyenne de 36,1 %. L'évolution annuelle moyenne de la teneur en eau volumique du sol est donc de 14,3 %. La moyenne annuelle est, quant à elle, de 33,4 %. Les variations observées pour les mesures d'humidité du sol par télédétection satellitaire montrent la même évolution annuelle que celles *in situ*. Toutefois, l'amplitude de variation entre les mois d'été et les mois d'hiver est moins marquée du fait de mesures d'humidité dans les mois d'hiver présentant une moyenne proche des 32 %, inférieure à celle observée pour les mesures *in situ*. À chaque épisode de pluie est associée une augmentation brutale de l'humidité du sol et est particulièrement observable sur la figure 6.2 (e) au cours des mois d'été. Les augmentations peuvent atteindre 20 % sur une période de quelques heures en fonction de la durée et de l'intensité des précipitations.

Un bilan de cette analyse de premier ordre des chroniques temporelles observées entre les **mois d'Avril 2019 et de Juin 2020** est proposé au sein du tableau 6.4.

Paramètre	Moyenne période (c.s <sup>-1</sup> )	Moyenne été (c.s <sup>-1</sup> )	Moyenne hiver (c.s <sup>-1</sup> )	Variation été-hiver (%)
Comptage total	4072	4300	3800	13,16
<sup>40</sup> K	47,06	50,45	44,11	14,37
<sup>238</sup> U	15,98	18,52	14,75	25,56
<sup>232</sup> Th	27,93	29,87	26,34	13,40
Humidité <i>situ</i>	33,35	21,84	36,13	14,29
Humidité sat.	28,25	19,21	32,34	13,13

Tableau 6.4 – Moyennes globales, estivales et hivernales sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour les taux de comptage total, de <sup>40</sup>K, de <sup>238</sup>U et de <sup>232</sup>Th ainsi que des humidités du sol *in situ* et par télédétection satellitaire. Le taux de comptage total et du <sup>238</sup>U excluent les données de pluie pour éviter un biais statistique.

La variation de la moyenne entre les mois d'été et les mois d'hiver est du même ordre de grandeur pour l'ensemble des paramètres investigués à l'exception du taux de comptage de <sup>238</sup>U. Une variation entre les mois d'été et les mois d'hiver de plus de 10 % est observée en comparaison avec les autres paramètres et notamment l'humidité du sol. Les moyennes présentées reprennent l'ensemble des données horaires de la période **Avril 2019 - Juin 2020** à l'exception du taux de comptage total et du <sup>238</sup>U où les données reliées à un événement de pluie sont exclues.

Sur les chroniques enregistrées entre **Avril 2019 - Juin 2020**, un **cycle saisonnier** se dessine autour d'une période estivale et d'une période hivernale avec une amplitude de 15 % de variation entre ces deux saisons, ce qui est conséquent et dépasse les incertitudes acceptables. De prime abord, deux campagnes aéroportées opérées sur le site P2OA-CRA à ces deux saisons montreraient donc une évolution des taux de comptage d'environ 15 % sur un site où les concentrations en potassium, uranium et thorium ne varient pas au cours du temps. C'est bien évidemment ce genre de problématique soulevée ici qui ne permet pas d'utiliser actuellement la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour le suivi environnemental de sites.

Le cycle saisonnier observé sur les chroniques temporelles globales est également bien marqué sur les **moyennes mensuelles** (Figure 6.3) avec un maximum atteint au début de l'automne. Parallèlement, l'humidité du sol en surface *in situ* présente sa moyenne mensuelle minimale de 24,0 % tout comme l'humidité du sol par télédétection satellitaire, 19,5 %.

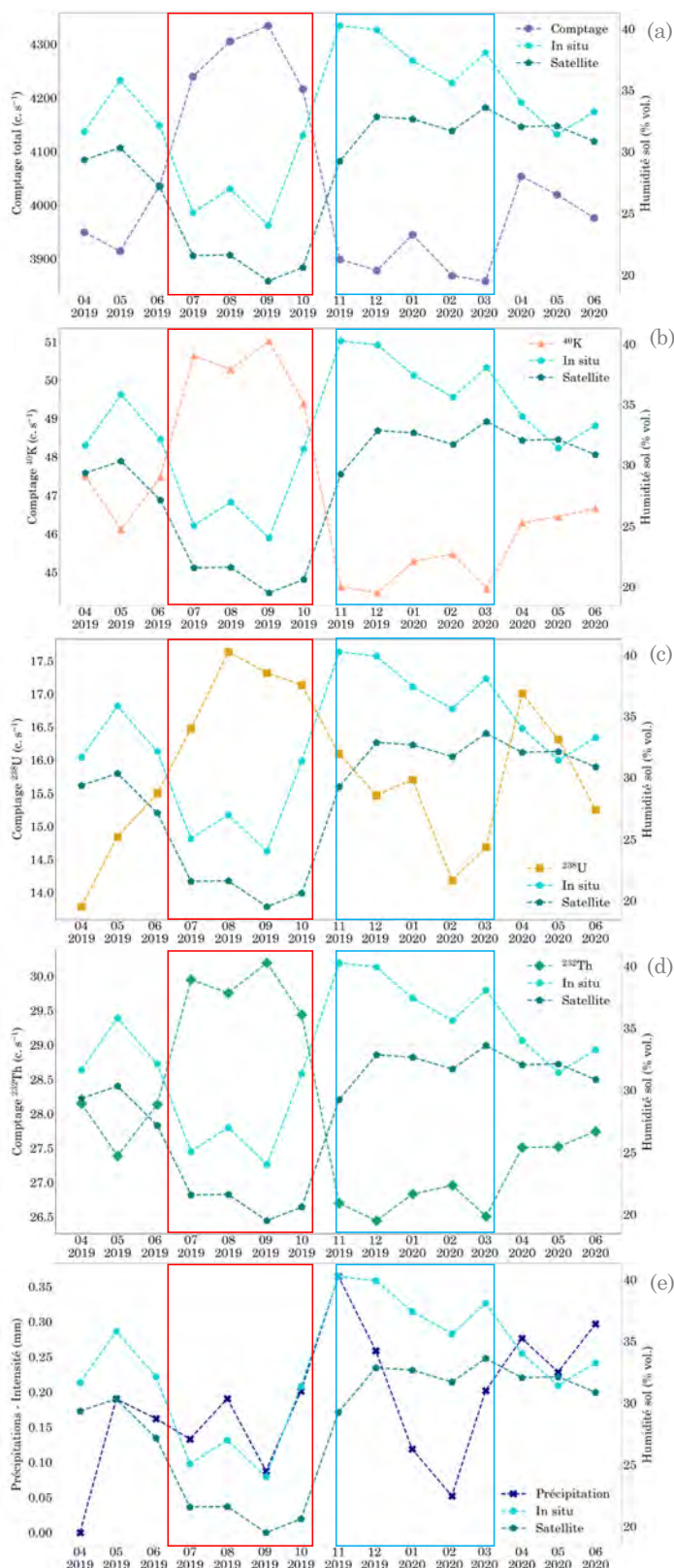


Figure 6.3 – Chroniques des moyennes mensuelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $c.s^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  ( $c.s^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $c.s^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  ( $c.s^{-1}$ ), (e) de l'intensité des précipitations (mm). L'humidité du sol *in situ* et par satellite (% vol.) est retrouvée sur chaque chronique. Le rectangle rouge représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants à l'inverse de l'humidité du sol. Au niveau du rectangle bleu, les taux de comptage sont les moins élevés à l'inverse des valeurs d'humidité du sol.

Entre les mois de **Septembre et de Novembre 2019**, une forte diminution de l'ensemble des taux de comptage est observable et atteint -11,1 % pour le comptage total, -13,5 % pour le  $^{40}\text{K}$ , -7,6 % pour le  $^{238}\text{U}$ , -13,1 % pour le  $^{232}\text{Th}$ . Sur cette même période, une augmentation de 16 % est associée à l'humidité du sol *in situ* et de 9,7 % pour l'humidité du sol par télédétection satellitaire. La décroissance du taux de comptage de l' $^{238}\text{U}$  est plus limitée que celles des autres comptages avec une différence d'environ 6 %. Une fois encore, le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  présente le même sens de variation que les autres comptages en fonction de l'évolution de l'humidité du sol. Toutefois, le compartiment sol seul n'explique pas ces différences sur les ordres de grandeur observés.

Les augmentations d'humidité du sol *in situ* et satellite varient en amplitude au cours du temps mais elles sont toutes corrélées à une augmentation synchrone de l'intensité moyenne des précipitations enregistrées sur le site P2OA-CRA. La diminution de l'intensité moyenne des précipitations entre les mois de **Décembre 2019 et de Février 2020** entraîne une décroissance des valeurs d'humidité du sol, plus marquée pour les mesures *in situ*, et une augmentation des taux de comptage total, du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ .

Les corrélations et anti-corrélations observées entre les différentes séries temporelles reflètent une forte influence de l'humidité du sol sur l'évolution temporelle du signal  $\gamma$  mesuré. Le tableau de corrélation 6.5 entre les comptages total, du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , les précipitations et les humidités du sol *in situ* et par télédétection satellitaire a été réalisé sur la base de l'utilisation complète des données horaires disponibles.

	Comp.Tot	$^{40}\text{K}$	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	Précip.	Hum. <i>situ</i>	Hum.sat
Comp.Tot	1	0,71	0,84	0,72	0,44	-0,59	-0,56
$^{40}\text{K}$	0,71	1	0,26	0,99	-0,10	-0,94	-0,87
$^{238}\text{U}$	0,84	0,26	1	0,29	0,72	-0,13	-0,15
$^{232}\text{Th}$	0,72	0,99	0,29	1	-0,05	-0,91	-0,88
Précip.	0,44	-0,10	0,72	-0,05	1	0,19	0,12
Hum. <i>in situ</i>	-0,59	-0,94	-0,13	-0,91	0,19	1	0,80
Hum.sat	-0,56	-0,87	-0,15	-0,88	0,12	0,80	1

Tableau 6.5 – Tableau de corrélation pour les comptages total (Comp.Tot), du  $^{40}\text{K}$ , de  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$ , des précipitations (Précip), et des humidités du sol *in situ* et par satellite (Hum.sat). L'ensemble des données horaires a été utilisé dans le cadre de cette étude sur la corrélation des paramètres étudiés.

La relation observée entre l'humidité des sols et les taux de comptage sur les chroniques temporelles est visible avec des facteurs de corrélation négatifs marqueurs d'une forte anti-corrélation : -0,94 entre le  $^{40}\text{K}$  et l'humidité du sol *in situ* et -0,91 entre le  $^{232}\text{Th}$  et l'humidité du sol *in situ*. L'anti-corrélation entre le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et l'humidité du sol est de -0,13 est quant à elle très limitée

et montre que la relation entre ces deux paramètres n'est pas seule maîtresse de l'évolution temporelle du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Si les précipitations n'ont pas l'air d'impacter les comptages du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  (facteurs de corrélation presque nuls), ce n'est pas le cas pour le  $^{238}\text{U}$  qui présente un facteur de corrélation avec les précipitations de 0,72. Le facteur de corrélation entre le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  est de 0,99 et caractérise bien les observations faites sur leurs chroniques temporelles respectives. Le comptage du  $^{238}\text{U}$  montre des facteurs de corrélation positifs mais faibles avec les comptages du  $^{40}\text{K}$  (0,26) et du  $^{232}\text{Th}$  (0,29).

### Un cycle diurne observable

Au cours des campagnes de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, des survols d'un même site peuvent être organisés et réalisés sur toute la journée. Il est donc important de regarder si des variations du signal  $\gamma$  sur une échelle diurne sont observables et quantifiables. Dans un premier temps, l'étude des variations des différents comptages associée à celle de l'humidité du sol *in situ* sur la période du **10 au 19 Juillet 2019** est proposée sur la figure 6.4. Au cours de cette période, un seul événement de précipitation est enregistré au cours de la journée du 18 Juillet 2019.

Les graphiques représentant le taux de comptage total (a) et le taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  (b), sur cette période limitée dans le temps, montrent une évolution et une forme de courbe relativement similaires. Si entre le **10 et le 18 Juillet 2019**, une augmentation du comptage total d'environ 8 % est observé et est associée à une diminution synchrone des valeurs d'humidité du sol *in situ* de 10 % (34 à 24 % vol.), il est difficile de mettre en avant un cycle diurne du comptage à l'inverse de celui montré pour l'humidité du sol *in situ*. Cette tendance croissante du signal  $\gamma$  sur cette période est plus difficile à voir sur le taux de comptage dans la fenêtre de l'uranium malgré une hausse de 21 % entre le **10 et le 18 Juillet 2019**.

Les courbes du taux de comptage de  $^{40}\text{K}$  et de  $^{232}\text{Th}$  sur cette même période sont similaires en tout point avec une présence marquée d'une succession de valeurs maximales et minimales liées à chaque journée. De nouveau, la tendance globale sur ces 8 jours investigués présente une hausse de 8,4 % pour le comptage du  $^{40}\text{K}$  et de 7,80 % pour le comptage du  $^{232}\text{Th}$ . Un cycle diurne de ces taux de comptage accompagné par celui de l'humidité du sol *in situ* vient s'ajouter à cette tendance globale d'augmentation. Pour chaque journée qui compose la période analysée, la valeur minimale du taux de comptage en  $^{40}\text{K}$  et en  $^{232}\text{Th}$  est observée la nuit et la valeur maximale en milieu d'après-midi. À l'inverse, la valeur d'humidité du sol *in situ* maximale constitue un palier stable la nuit et la valeur d'humidité minimale est atteinte en milieu d'après-midi.

Sur la journée du 10 Juillet 2019, l'amplitude de variation du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  augmente de 3,8 % et celle du  $^{232}\text{Th}$  de 2,5 % entre la nuit et le jour. Associée à cette hausse, l'amplitude de diminution de l'humidité du sol entre les périodes nocturne et diurne est de 4 % (35 à 31 % vol.). La journée du 12 Juillet 2019 voit une augmentation du signal de  $^{40}\text{K}$  de 2,5 % et de  $^{232}\text{Th}$  de 2,4 %. En parallèle, la diminution des valeurs d'humidité du sol est de 2,2 % (28,4 à 26,2 % vol.). Les températures du sol et de l'air doivent être considérées puisque ce sont ces paramètres, en plus des précipitations, qui sont responsables de la variation de l'humidité dans le sol.



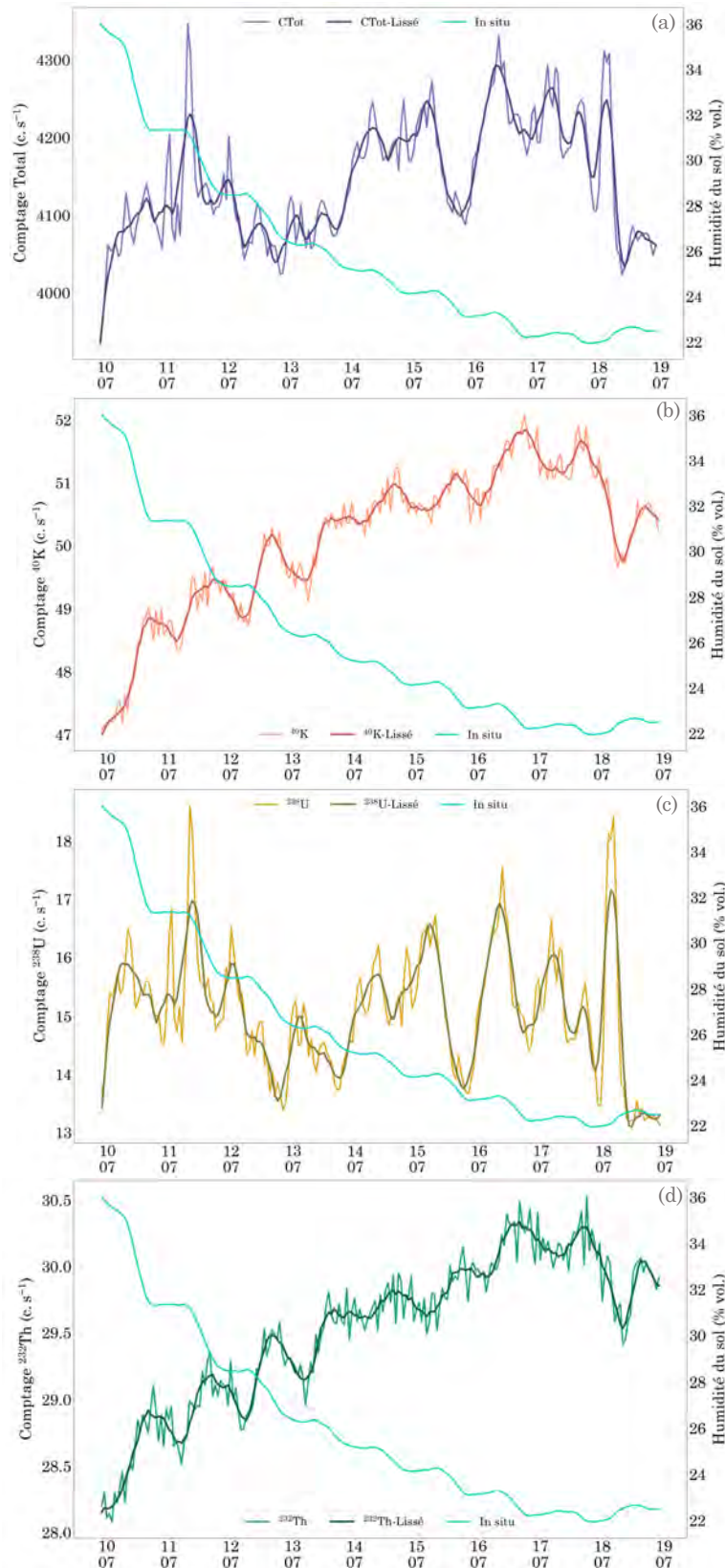


Figure 6.4 – Chroniques temporelles centrées sur la période du 10 au 19 Juillet 2019 en l'absence d'événements de pluie pour le taux de comptage total (a), taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (b), taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  (c) et taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  (d), exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$ . Un lissage sur 12 heures a été réalisé pour limiter les fluctuations statistiques (courbes de couleur foncée). Dans chaque graphique, la courbe d'humidité du sol *in situ* exprimée en % vol. sur la même période est présentée.

Un **cycle diurne** des comptages du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  est bien mis en évidence sur cette période de la chronique temporelle générale dès lors que les événements de précipitations sont absents. Ce cycle diurne permet de montrer que sur une journée, le taux de comptage pour ces deux radionucléides peut varier de 2 à 3 % lorsque la valeur d'humidité du sol en surface diminue d'un ordre de grandeur de 2 à 3 %. Une variation du signal  $\gamma$  sur un site présentant des concentrations en radionucléides stable à cette échelle de temps ne peut être expliquée autrement que par l'influence de facteurs environnementaux. Cette variation doit donc également être prise en compte dans la correction des données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. En effet, cela permettra une comparaison effective de cartographies d'un site réalisées lors d'un survol matinal et un autre dans l'après-midi par exemple.

En reconstituant une journée composite à partir de l'ensemble des 10152 valeurs horaires obtenues durant cette campagne d'acquisition, il est possible d'observer l'évolution des taux de comptage total, du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  ou de l'humidité du sol *in situ* (Figure 6.5 a, c, e, g, i). Ce travail a également été réalisé par saison pour offrir une analyse de l'évolution des mêmes paramètres à l'échelle des mois d'été et des mois d'hiver (Figure 6.5 b, d, f, h, j). La journée composite reconstituée pour les **mois d'été** s'est fait en prenant en compte l'ensemble des données acquises pendant les mois de **Juillet, Août et Septembre**. La journée composite reconstituée pour les **mois d'hiver** s'est concentrée sur la prise en compte des données des mois de **Décembre, Janvier et Février**.

D'après les observations faites sur la figure précédente 6.4, **les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  présentent bien un cycle diurne anti-corrélé à celui de l'humidité du sol *in situ***. Les valeurs maximales des signaux  $\gamma$  sont observées aux alentours de 14 h dans l'après-midi alors que les valeurs minimales sont concentrées sur le créneau du matin 5h - 6h. Il suffit d'inverser ces observations pour caractériser le cycle diurne composite de l'humidité du sol.

Un décalage de deux heures entre le maximum des taux de comptage et le minimum de l'humidité du sol, lié à l'assèchement progressif du sol, est visible avec une valeur minimale l'après-midi à 16 h et maximale entre 6 h et 8 h. Le même constat peut être fait sur les graphiques présentant les journées composites par saison.

L'amplitude de variation entre les minimas et maximas pour le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  est de 0,80 % l'hiver, de 1,40 % l'été et de 1,09 % en prenant en compte la totalité des données. L'amplitude de variation pour le taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  est de 0,71 % l'hiver, de 1,08 % l'été et de 0,90 % pour le jour composite global.

Pour l'humidité du sol *in situ*, l'amplitude de variation estivale est très marquée par rapport à celle des mois d'hiver, 3,20 % contre 1,13 %, pour une amplitude moyenne sur la période d'**Avril 2019 à Juin 2020** de 1,80 %.

Les taux de comptage total et du  $^{238}\text{U}$  présentent des cycles diurnes anti-corrélés à ceux du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  et suivent la même tendance de variation que l'humidité du sol. Ces observations sont faites pour les journées composites globales, les mois d'été pour le comptage total et les deux saisons été-hiver pour le comptage de l'uranium. Les variations du signal  $\gamma$  de l' $^{238}\text{U}$  devraient initialement suivre celles des deux autres radionucléides mesurés pour des raisons purement physiques. **De ce fait, une correction seule de l'influence de l'humidité du sol sur les signaux  $\gamma$  mesurés ne semble pas suffisante pour l'uranium-238.**



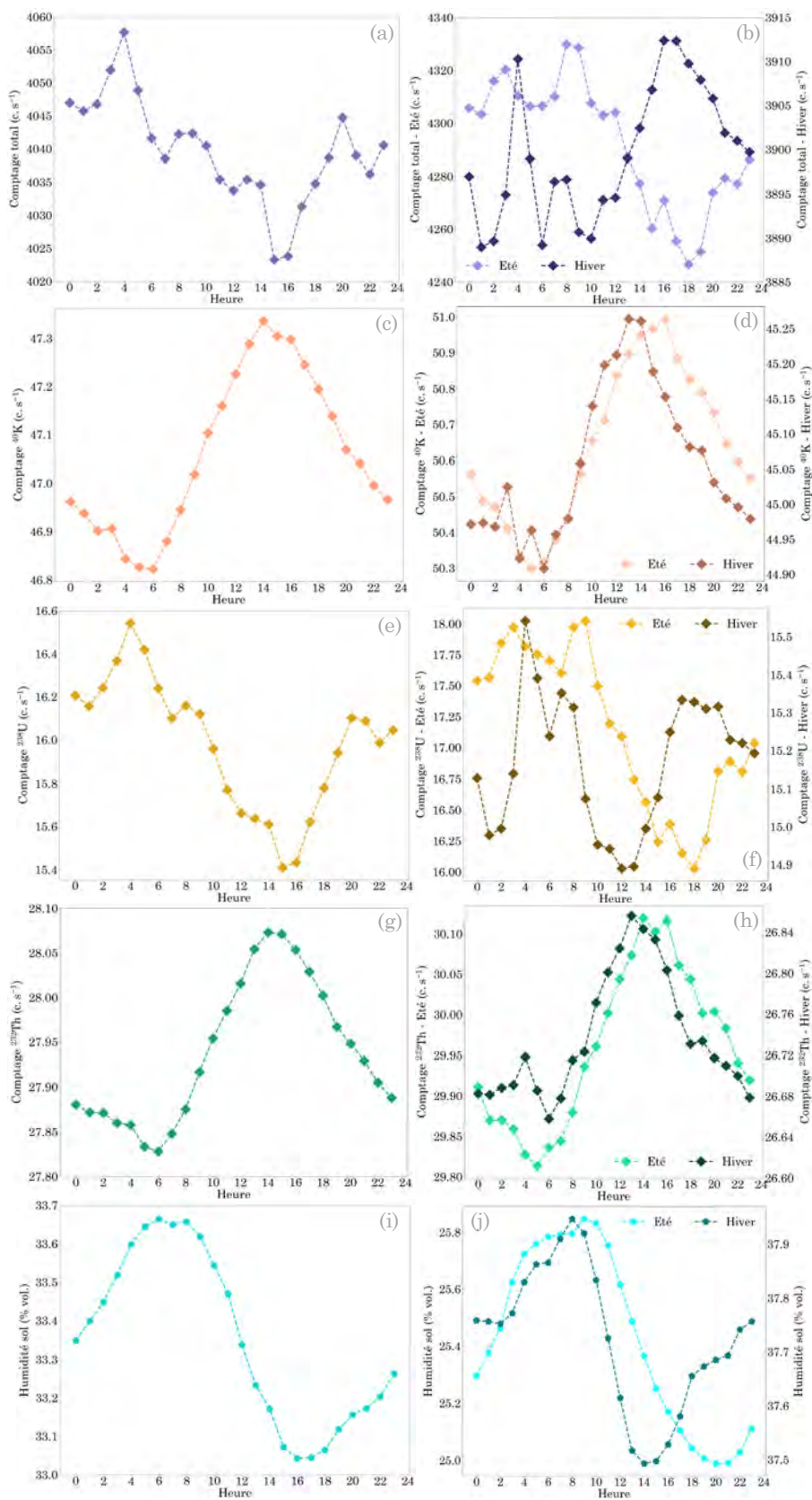


Figure 6.5 – Évolution diurne sur une base composite des 10152 acquisitions horaires des taux de comptage total (a),  $^{40}\text{K}$  (c),  $^{238}\text{U}$  (e),  $^{232}\text{Th}$  (g) et de l'humidité du sol in situ (i). Le cycle diurne sur une base composite des mois d'été (Juillet, Août et Septembre) et d'hiver (Décembre, Janvier, Février) est proposé pour le taux de comptage total (b),  $^{40}\text{K}$  (d),  $^{238}\text{U}$  (f),  $^{232}\text{Th}$  (h) et de l'humidité du sol in situ (j).

### L'analyse de Fourier pour mieux comprendre la périodicité

Une analyse de Fourier a été réalisée dans le but de confirmer le cycle diurne observé à la fois sur les chroniques temporelles globales du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l'humidité du sol *in situ* (Figure 6.4) et sur la journée composite reconstituée à partir de l'ensemble des données horaires disponibles (Figure 6.5). Pour utiliser ce type d'outil statistique et en identifier des périodicités dans les signaux, il est indispensable que les chroniques temporelles des variables à analyser soient complètes. Dans le cas de cette étude, quelques données manquantes sont présentes sur les chroniques des comptages  $\gamma$  et sur celle de la mesure de l'humidité *in situ*. Une interpolation des journées manquantes permet d'utiliser cette méthode qui inclut donc les données liées aux précipitations.

L'analyse de Fourier est représentée sous la forme de la densité spectrale de puissance définie comme étant le produit du carré du module de la transformée de Fourier, par le temps d'intégration  $T$ . Ainsi, la densité spectrale de puissance vaut :

$$\Gamma_x = |X|^2 \times T \quad (6.3)$$

Elle représente la répartition fréquentielle de la puissance d'un signal suivant les fréquences qui le composent. Son unité est de la forme  $U_x^2/\text{Hz}$ , où  $U_x$  représente l'unité physique du signal  $x$ , soit par exemple  $\text{V}^2/\text{Hz}$ .

La figure 6.6 montre ainsi la **densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure** pour les taux de comptage total, du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  ainsi que celle de l'humidité du sol *in situ*, restant ainsi uniquement dans l'analyse de l'influence du compartiment sol sur les signaux  $\gamma$ .

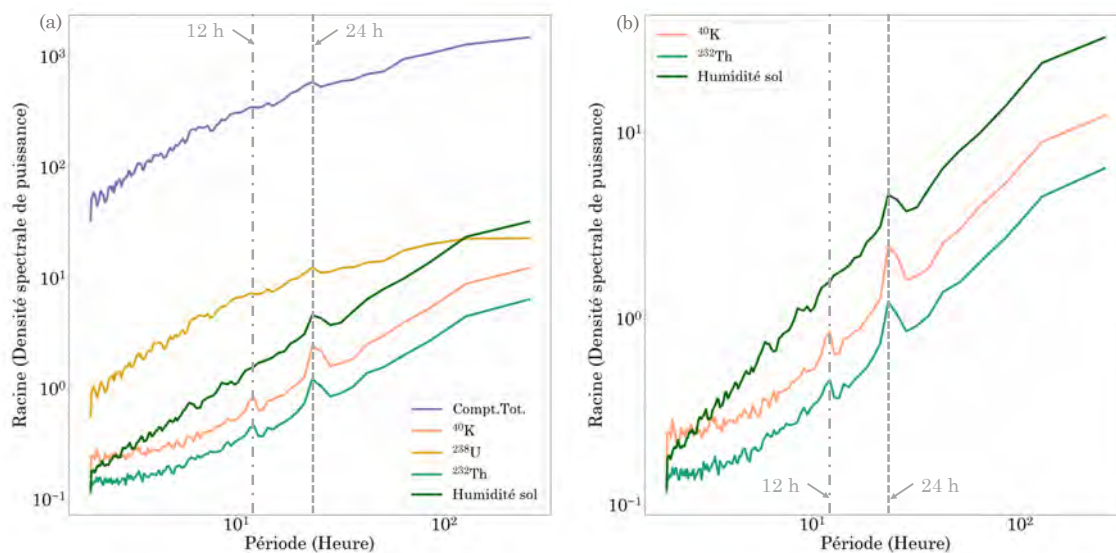


Figure 6.6 – (a) Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage total et ceux du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l'humidité du sol *in situ*. (b) Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l'humidité du sol *in situ*. Les données associées aux événements de pluie sont conservées.

En observant les courbes de densité spectrale de puissance des variables considérées en fonction de la période, incluant toutes les données horaires (précipitations incluses), trois groupes de spectres se dégagent :

- **L'humidité du sol** présente un **cycle** périodique très marqué à l'échelle **diurne**, 24 h, comme constaté précédemment et relié au cycle de radiations solaires où un réchauffement du sol l'après-midi entraîne une diminution des valeurs d'humidité du sol sur la même période.
- **Le comptage total et le comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$**  avec des **périodicités** faiblement marquées. Un cycle diurne est identifiable.
- **Les comptages du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$**  montrent également un **cycle diurne** très marqué, du même niveau que celui de l'humidité du sol *in situ* et également un cycle semi-diurne très prononcé, 12 h, par rapport aux autres taux de comptage présentés. Ce **cycle semi-diurne** n'est pas retrouvé au niveau de l'humidité du sol. Le compartiment sol, par l'intermédiaire de l'humidité du sol ne semble pas être à l'origine de cette périodicité semi-diurne. Il faudra vérifier si ce cycle semi-diurne observé pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  peut être expliqué par l'intermédiaire du compartiment atmosphérique.

Afin de vérifier si le cycle semi-diurne constaté sur le spectre de Fourier des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  est observable à l'échelle du jour reconstitué, une analyse des graphiques de la figure 6.5 a été réalisée. Une superposition des graphiques de l'humidité du sol au taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  a été opérée afin de faciliter la lecture comparative des signaux (Figure 6.7).

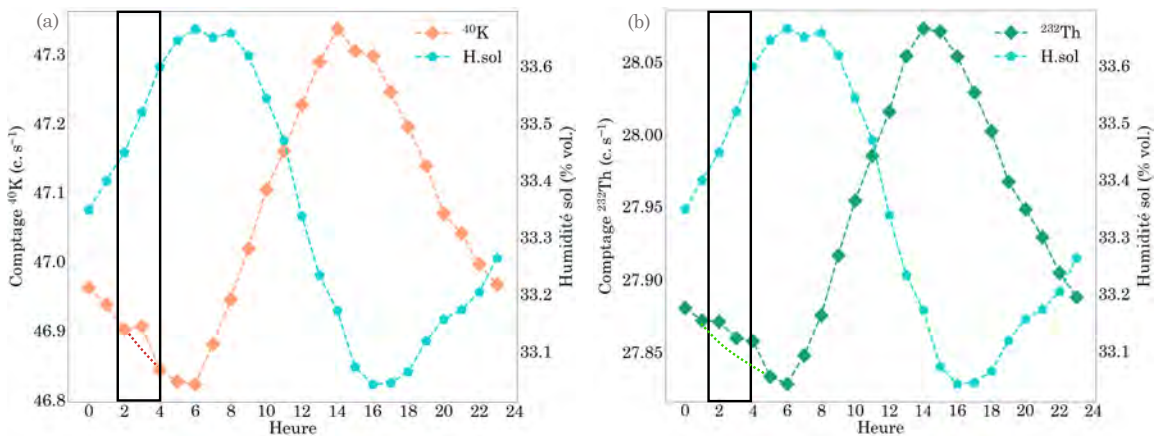


Figure 6.7 – Évolution du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) (c.s $^{-1}$ ) et de l'humidité du sol *in situ* (% vol.) du jour composite en fonction de l'heure. Les courbes rouge et verte interpolées (a) et (b) représentent l'évolution attendue du taux de comptage due à l'augmentation de l'humidité associée (a). Le rectangle noir indique le créneau horaire où l'influence de l'humidité ne semble plus être dominante sur le signal  $\gamma$ .

Sur la base d'un cycle diurne anti-corrélé, une diminution de l'humidité du sol doit entraîner une augmentation du signal  $\gamma$  et réciproquement sur un ordre de grandeur similaire, exprimé en pourcentage. Si cette relation n'est pas observée pour l'un des créneaux horaire, cela peut indiquer que le cycle semi-diurne n'est pas dépendant de l'humidité du sol.

Le rectangle noir sur la figure 6.7 indique un créneau horaire, entre 2h et 4h du matin, où une augmentation du comptage est observé pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  alors que l'humidité du sol *in situ* augmente très peu, de 0,4 %. Une diminution des comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  était attendue comme le montre les courbes interpolées (Figure 6.7).

Sur ce créneau horaire matinal centré à 3h, l'influence de l'humidité du sol sur le signal  $\gamma$  ne semble plus être dominante. Cette augmentation du signal mesurée pour le  $^{40}\text{K}$  et pour le taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  n'est pas imputable au compartiment sol. En considérant que le cycle semi-diurne défini par l'analyse de Fourier sur les comptages du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  se matérialise à cet horaire, il devrait également être visible aux alentours de 15 h avec une augmentation du signal  $\gamma$  mesuré, marqueur du cycle semi-diurne.

À cet horaire de l'après-midi le signal  $\gamma$  mesuré, que ce soit pour  $^{40}\text{K}$  ou pour  $^{232}\text{Th}$ , est maximal et synchrone a la valeur minimale de l'humidité dans la couche superficielle de sol. Le phénomène d'augmentation du signal  $\gamma$  observé le matin à 3h et qui n'est pas dépendant de la variation de l'humidité du sol *in situ* est aussi présent vers 14h - 15h. Le phénomène responsable de l'augmentation du signal  $\gamma$  mesuré par le spectromètre, entre 2h et 4h du matin, a une influence limitée. L'impact de ce phénomène peut même être considéré comme relativement négligeable dans l'après-midi par rapport à l'ordre de grandeur de variation caractérisant la relation anti-corrélée qu'entretiennent les signaux  $\gamma$  mesurés et l'humidité du sol *in situ*. La pression atmosphérique semble être une piste de travail privilégiée pour expliquer le cycle semi-diurne des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Elle sera développée au sein du chapitre 7 qui aborde l'influence du compartiment atmosphérique sur les signaux  $\gamma$  mesurés.

L'influence de l'humidité du sol sur ces signaux reste l'effet principal de variations horaires possible lors des campagnes de survol aéroportées, entre 8 h et 19 h. La section suivante va se consacrer à l'analyse et la quantification de l'influence de l'humidité du sol sur les signaux  $\gamma$  en abordant le phénomène d'atténuation du compartiment sol. Une prise en compte de cet impact sur les données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est également étudiée.

## 6.3 L'humidité du sol, un facteur d'influence dans le compartiment sol

Faisant suite à ces observations sur l'atténuation des rayonnements  $\gamma$  dans le compartiment sol et l'impact qu'elle pouvait avoir sur le taux de comptage mesuré par le spectromètre, l'évolution des taux de comptage en fonction de l'humidité du sol mesurée *in situ* a été approfondie. La finalité de cette étude est de proposer une correction de l'influence de l'humidité du sol sur les mesures de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée permettant d'obtenir les cartographies de taux de comptage. Si les taux de comptage étaient ramenés à une humidité nulle, équivalent à un sol sec, alors la variation de l'atténuation due à une présence en quantité aléatoire d'eau dans



les pores au cours du temps ne serait plus problématique. Toutes les cartographies produites le seraient sur une base commune de sol sec assurant une comparaison réelle de l'évolution temporelle des concentrations en radionucléides quelque soit la période de mesure.

### 6.3.1 L'évolution des taux de comptage en fonction de l'humidité des sols

La représentation de l'évolution des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  en fonction de l'humidité du sol *in situ* a été réalisée pour l'ensemble du jeu de données sur une base horaire (Figure 6.8 a, c, e) ainsi que sur les données traitées hors influence des précipitations (Figure 6.8 b, d, f), en base horaire.

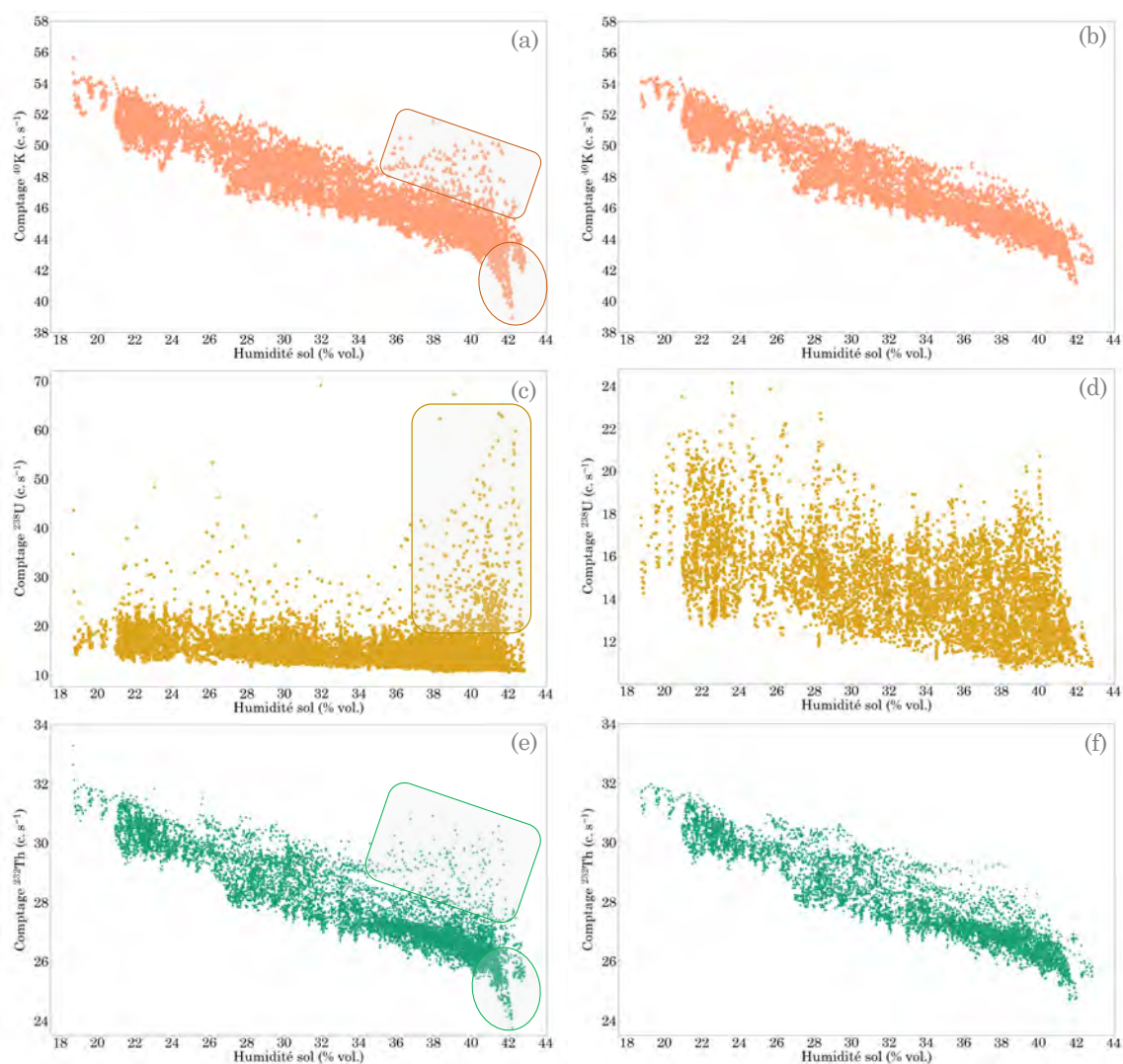


Figure 6.8 – Évolution du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol *in situ* du  $^{40}\text{K}$  (a-b), du  $^{238}\text{U}$  (c-d) et du  $^{232}\text{Th}$  (e-f) d'après le jeu de données total (sur une base horaire) et d'après le jeu de données filtrées des données de pluie (sur une base horaire) respectivement. Les zones encadrées et encerclées sont directement reliées à l'influence des précipitations.

La relation entre le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et l'humidité du sol montre une très forte corrélation négative avec un coefficient de  $-0,93$  pour le jeu de données total (Figure 6.8 a). Pour une humidité constante, entre 18 et 35 % vol., la dispersion du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  autour de la valeur moyenne est de 4% (Figure 6.8 a). Entre 35% et 43 %, deux zones se distinguent avec des dispersions plus prononcées d'environ 10% (cercle et rectangle rouge). Elles ne sont pas retrouvées sur le graphique comparatif où les données liées aux précipitations ont été filtrées (Figure 6.8 b), et qui est également marqué par un coefficient de corrélation négatif de  $-0,95$ .

L'ensemble de ces observations peut être repris pour l'évolution du  $^{232}\text{Th}$  en fonction de l'humidité du sol et notamment la présence de ces deux zones caractéristiques liées aux événements de pluie (Figure 6.8 e, f). Le coefficient de corrélation entre ces deux variables sur la totalité des données horaires est de  $-0,91$  et de  $-0,94$  lorsque les données de précipitations ont été supprimées. La dispersion du taux de comptage pour une même valeur d'humidité est inférieure à celle du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et se caractérise par une valeur constante de 2 %. Cette différence qui ne s'explique pas par des écarts de statistique de comptage reflète probablement une plus grande hétérogénéité du terme source.

La première zone décorrélée est matérialisée par un rectangle sur la figure 6.8 (a) et (e). Les événements de pluie ont entraîné une forte augmentation de la valeur de l'humidité de la couche superficielle (0 - 5 cm). Le temps de réponse aux événements de pluie pour les horizons profonds est plus long qu'en surface. Ainsi, la valeur d'humidité du sol (0 - 5 cm) affiliée au taux de comptage mesuré pour cet épisode pluvieux ne reflète pas celle de la couche de sol réellement investiguée, entre 0 et 50 cm. Ces points correspondent donc à des situations où des événements de pluie saturent d'eau les premiers centimètres, alors que le sol profond est plus sec (Figure 6.9 c).

La zone encerclée (Figure 6.8 a et e)) est marquée par les taux de comptage les plus faibles aux humidités les plus élevées. L'atténuation des rayonnements  $\gamma$  semble plus importante et est associée aux périodes de précipitations. L'humidité du sol étant déjà très élevée, le ruissellement en surface va être dominant par rapport à l'infiltration de l'eau dans le sol. Comme les sols sont gorgés d'eau, des flaques vont se former localement à la surface sur une épaisseur de quelques mm. Cette nouvelle couche d'atténuation surfacique, temporaire, composée d'eau va engendrer une augmentation de l'atténuation (Figure 6.9 b).

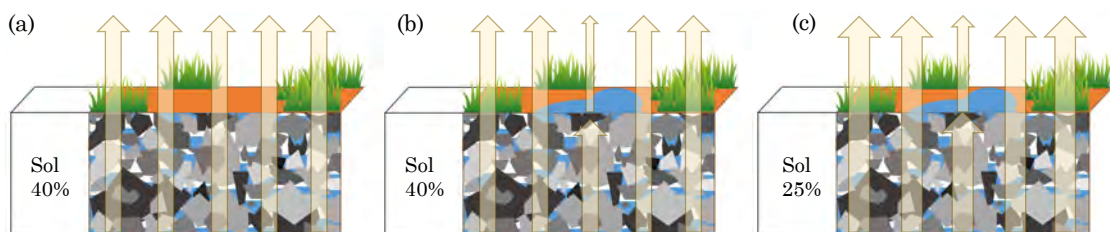


Figure 6.9 – Évolution du taux de fluence en fonction de la teneur en eau volumique dans le sol en partant d'un sol humide (40 % vol.) en absence (a) et en présence de flaques d'eau en surface (b), un sol humide (25 % vol.) (c). Les flèches jaunes décrivent la densité du flux de photons  $\gamma$  qui atteint l'atmosphère.



Ainsi, lorsque le sol est sec, seules les phases solides (minéraux et grains) et gazeuses (air des pores) vont participer à l'atténuation des rayonnements  $\gamma$ . Le nombre de rayonnements  $\gamma$  émis par le sol et diffusés ensuite dans l'atmosphère est maximale (Figure 6.9 a). Dès lors que de l'eau remplace l'air atmosphérique dans l'espace poral, l'atténuation par la phase liquide qui est supérieure à celle de la phase gazeuse s'ajoute à celles déjà existantes. Il en résulte une diminution du nombre de rayonnements  $\gamma$  émis parvenant à atteindre l'atmosphère. Le taux de comptage mesuré décroît alors par rapport à celui d'un sol sec (Figure 6.9 b).

En ce qui concerne la relation entre l'humidité du sol *in situ* et le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , celle-ci présente une corrélation négative moins marquée (-0,13). La présence des événements de pluie dans l'analyse des données semble être marqueur d'un biais. Les événements de pluie sont facilement identifiables sur le graphique du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  reprenant la totalité du jeu de données (Figure 6.8 c). Ils sont associés aux points très dispersés des valeurs moyennes liées à chaque humidité constante. La dispersion moyenne du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  pour une même valeur d'humidité est dans ce cas d'environ 10 %. Dès lors que les données de précipitations ont été supprimées (Figure 6.8 d), cette dispersion se réduit pour atteindre une valeur moyenne de 6 %. Cette réduction de la dispersion du taux de comptage pour une humidité constante entraîne *de facto* l'apparition d'une corrélation plus marquée entre le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et l'humidité du sol. Le coefficient de corrélation atteint désormais une valeur de -0,52, très inférieure à celles observées pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Le filtrage des données de précipitations ne permet pas une réduction forte de la dispersion des valeurs autour de la droite de corrélation attendue entre comptage du  $^{238}\text{U}$  et humidité.

Le tableau 6.6 permet de conclure sur ces relations observées entre les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  avec la teneur en eau volumique du sol pour le jeu de données filtrées (Figure 6.8 b, d, f).

Radionucléide	Minimum c.s <sup>-1</sup>	Maximum c.s <sup>-1</sup>	$\Delta$ %
$^{40}\text{K}$	42,0	53,0	26,2
$^{238}\text{U}$	12,0	17,0	41,7
$^{232}\text{Th}$	25,4	31,8	25,2
Humidité sol	18%	43%	25%

Tableau 6.6 – Gamme de variation des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l'humidité du sol *in situ* sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour les données filtrées des épisodes pluvieux.

Les variations de l'humidité du sol et des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  sont du même ordre de grandeur, environ 25 % et caractérisent donc une évolution temporelle synchrone entre ces paramètres. D'après l'évolution synchrone des deux autres taux de comptage avec la teneur en eau volumique, 25 % de la gamme de variation de 41,70 % du  $^{238}\text{U}$  sont expliqués par l'évolution de l'humidité du sol.

Un écart positif de 16,70 % est donc observé entre les gammes de variation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et de l'humidité du sol. Cette différence pourrait être imputable à des facteurs du compartiment atmosphérique non encore investigués tels que l'influence du radon-222 atmosphérique et ses descendants.

Par conséquent, deux relevés aériens de spectrométrie  $\gamma$  aéroportés réalisés en hiver (sol humide) pour l'un et en été pour l'autre (sol sec) peuvent montrer des différences notables sur les taux de comptage enregistrés. Ces écarts peuvent donc atteindre 100 %, selon la gamme de variation de l'humidité du sol observée sur le site P2OA-CRA, pour les concentrations en radionucléide mesurées sur le site pilote du P2OA-CRA. En effet, ces différences ne représenteraient pas une évolution de la concentration des radionucléides dans le sol mais uniquement les variations du signal  $\gamma$  dues à l'évolution de l'humidité du sol. En s'affranchissant de cette influence, les taux de comptage mesurés sur ces deux périodes pourront être comparés sur la base unique de la concentration en radionucléide dans le sol.

### 6.3.2 Courbe théorique caractérisant l'influence de l'humidité du sol sur les rayonnements $\gamma$ émis depuis le sol

La relation entre taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  de gamme de variation du même ordre de grandeur que celle de l'humidité ( $\sim 25$  %) peut être modélisée afin d'en extrapoler le taux de comptage des radionucléides pour un sol sec (0 % d'humidité dans le sol). En connaissant la valeur d'humidité du sol au moment de la réalisation de la cartographie, celle-ci pourra être projetée sur cette courbe simulée afin d'en déduire le taux de comptage à une humidité nulle par une relation mathématique.

Pour simuler cette fonction réponse entre les taux de comptage d'une énergie caractéristique mesurés à une hauteur  $h$  et l'humidité du sol *in situ*, les travaux de [Kogan et al., 1971] et de [Grasty, 1975] ont été utilisés. Du fait de la variation de l'humidité dans le sol qui influence le signal  $\gamma$  mesuré, ces études doivent être adaptées avec les paramètres et notations appropriés.

En considérant le spectromètre à une altitude constante,  $h$ , au-dessus d'un sol où l'humidité varie, le volume élémentaire  $dV$  associé à une fine couche de sol horizontale d'épaisseur  $dz$  à une profondeur  $z$  dans le sol va être exprimée par la relation suivante :

$$dV = r^2 \frac{\sin \theta}{\cos \theta} d\theta dz d\phi \quad (6.4)$$

avec  $r$  qui définit la distance entre le détecteur et le volume élémentaire  $dV$  et  $\theta$ , l'angle existant entre le volume élémentaire et la normale projetée entre le détecteur et le sol.

En supposant que  $n(z)$  est le nombre de photons primaires, à une énergie caractéristique  $E$ , émis par unité de volume par seconde dans  $dV$ , alors le flux de rayons  $\gamma$  non diffusés à une hauteur  $h$  est donné par :

$$\phi = \frac{1}{4\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \int_{z=0}^{\infty} \int_{\phi=0}^{2\pi} \frac{n(z) \exp^{-(\lambda z + \mu h) \sec \theta} \sin \theta d\theta dz d\phi}{\cos \theta} \quad (6.5)$$

avec  $\lambda$  et  $\mu$  qui correspondent aux coefficients d'atténuation linéaire de l'air et du sol sec à l'énergie considérée, exprimés en  $\text{m}^{-1}$ .

En faisant l'hypothèse que le sol est uniforme sur toute son épaisseur, le coefficient d'atténuation  $\lambda$  est considéré comme homogène et l'équation 6.5 peut être simplifiée sous la forme :

$$\phi = \frac{n}{2} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \int_{\phi=0}^{2\pi} \frac{\exp^{-\lambda z \sec\theta} \exp^{-\mu h \sec\theta} \sin\theta d\theta dz}{\cos\theta} \quad (6.6)$$

Par résolution de la première intégrale, l'équation 6.6 devient :

$$\phi = \frac{n}{2\lambda} \int_{\theta=0}^{\pi/2} \frac{\exp^{-\mu h \sec\theta} d\sec\theta}{(\sec\theta)^2} = \frac{n}{2\lambda_E} E_2(\mu h) \quad (6.7)$$

avec  $\lambda_E$  qui caractérise le coefficient d'atténuation total du sol incluant donc les propriétés physiques de la phase solide et de la phase liquide,  $E_2$  étant la fonction exponentielle intégrale de second ordre et  $h$  la hauteur de détection. Ce coefficient d'atténuation total va être défini selon l'équation suivante :

$$\lambda_E = [\hat{\mu}_s \rho_s (1 - \epsilon_0) + \hat{\mu}_e \rho_e \epsilon_0 S_w] \quad (6.8)$$

où  $\hat{\mu}_s$  et  $\hat{\mu}_e$  sont les coefficients d'atténuation massique dans le sol et dans l'eau,  $\rho_s$  et  $\rho_e$  sont la masse volumique du sol et celle de l'eau,  $\epsilon_0$  est la porosité et  $S_w$ , le taux de saturation en eau des pores.

Le taux de comptage du radionucléide considéré va donc s'exprimer sous la forme suivante :

$$N = \frac{nA\eta}{2[\hat{\mu}_s \rho_s (1 - \epsilon_0) + \hat{\mu}_e \rho_e \epsilon_0 S_m]} E_2(\mu h) \quad (6.9)$$

Cette équation 6.9 peut s'écrire :

$$N = \frac{nA\eta E_2(\mu h)/2}{\hat{\mu}_s \rho_{b,sec} + \hat{\mu}_e \rho_e w} \quad (6.10)$$

où  $N$  est le taux de comptage exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ ,  $A$  est la section transversale du détecteur ( $\text{m}^2$ ),  $\eta$  est l'efficacité de détection intrinsèque du photopic,  $n$  correspond au nombre de photons émis par unité de volume du sol,  $\hat{\mu}_s$  et  $\hat{\mu}_e$  sont les coefficients d'atténuation des rayonnements  $\gamma$  par unité de masse dans le sol et dans l'eau ( $\text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$ ),  $\rho_{b,sec}$  et  $\rho_e$  sont les densités apparentes du sol sec et de l'eau ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) et  $w$  est la teneur en eau volumique du sol (% vol.).

Cette dernière équation peut être réécrite pour établir la relation finale entre le taux de comptage par seconde à une énergie  $E$  et la teneur en eau volumique du sol :

$$N = \frac{a_E}{b_E + c_E x} \quad (6.11)$$

avec  $a$  qui reprend le dénominateur complet de l'équation 6.10,  $b$  les propriétés physiques de la phase solide,  $c$ , les propriétés physiques de la phase liquide contenue dans la phase solide et  $x$  représente la valeur d'humidité du sol exprimée en % vol.

En utilisant cette équation 6.11 à trois paramètres ( $a$ ,  $b$  et  $c$ ), un ajustement par la méthode des moindres carrés des taux de comptage mesurés en fonction de l'humidité du sol peut être réalisé. La masse volumique apparente de l'eau retenue,

$\rho_e$ , est la valeur standard de  $1000 \text{ kg.m}^{-3}$ . Les coefficients d'atténuation massique pour le sol et l'eau associés à chaque radionucléide sont ceux du NIST regroupés dans le 6.1. Ces trois paramètres que sont la masse volumique apparente de l'eau et les deux coefficients massiques dans le sol et l'eau sont fixés dans la procédure d'ajustement. Par conséquent, le paramètre  $c$  relié à la phase liquide du sol est totalement figé et ne fait pas partie des paramètres à ajuster par la méthode des moindres carrés.

Le paramètre  $b$  correspond au facteur entre la masse volumique apparente du sol exprimée en  $\text{kg.m}^{-3}$  et le coefficient d'atténuation massique du sol ( $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ ). Son unité est le  $\text{m}^{-1}$  et se caractérise comme l'inverse du libre parcours moyen des rayonnements  $\gamma$  dans le matériau caractérisé par le coefficient d'atténuation massique. En ce qui concerne ce paramètre  $b$  associé à la phase solide, deux choix sont possibles. Soit la masse volumique apparente du sol est laissée libre et est ajustée sur la maximisation du critère validant la fonction théorique, soit elle est définie ce qui entraîne *de facto* la fixation du paramètre  $b$ .

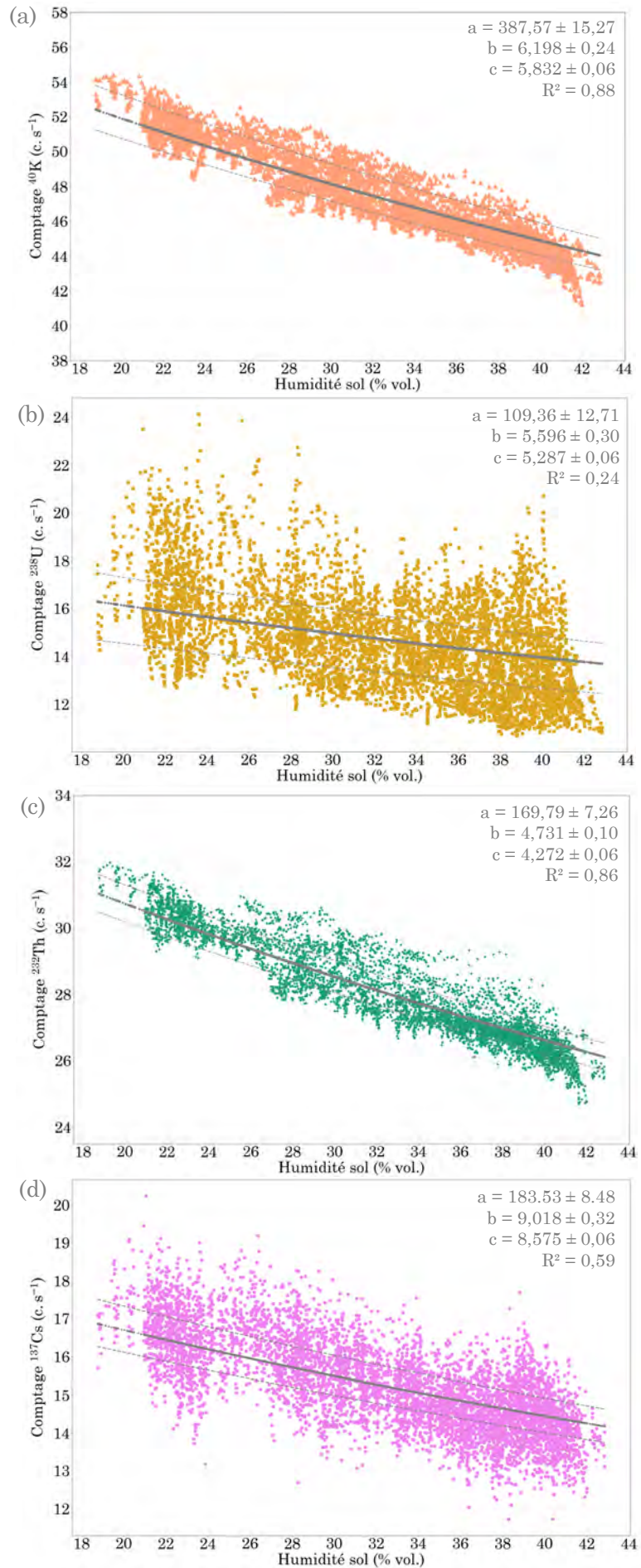
Dans le cas où la masse volumique apparente du sol n'est pas fixée dans l'équation, alors les paramètres  $a$  et  $b$  seront optimisés. Si la masse volumique apparente du sol est connue mais qu'elle est laissée libre pour l'ajustement de la courbe théorique, cela offre un critère de comparaison et de validation aux paramètres calculés par l'ajustement de cette fonction théorique. Dans le cas où la masse volumique apparente du sol est figée, seul le paramètre  $a$  sera optimisé dans le cadre de l'ajustement de la courbe théorique.

Le choix qui a été fait ici est de laisser la masse volumique apparente du sol être ajustée au sein du paramètre  $b$  pour disposer d'un critère de vérification sur ces courbes théoriques calculées. La caractérisation de la densité apparente sur le site P2OA-CRA a été abordée au sein du chapitre 2 avec une valeur moyenne de  $1204 \pm 52,5 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Sur la figure 6.10 a été représentée l'évolution du taux de comptage exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$  pour le  $^{40}\text{K}$  (a), l' $^{238}\text{U}$  (b), le  $^{232}\text{Th}$  (c), et le  $^{137}\text{Cs}$  (d) en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.) sur une base de données horaires. Les données utilisées sont celles filtrées des événements de précipitations pour éviter de créer un biais dont l'origine est connue. Sur chaque graphique de cette figure 6.10, la ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11 et son intervalle de confiance est déterminé par le domaine entre les deux lignes grises en pointillés. Les paramètres et les incertitudes associés à  $1\sigma$  ainsi que les coefficients de détermination  $R^2$  pour chaque courbe d'ajustement sont également présentés afin d'en discuter les valeurs calculées.

Pour chaque radionucléide, il existe un très bon accord entre les données filtrées des événements de précipitation et la courbe d'ajustement théorique sur toute la gamme de valeurs du taux de comptage et de celle de l'humidité du sol. Les coefficients de détermination  $R^2$  entre les données réelles et simulées sont très robustes pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  avec des valeurs respectives de 0,88 et 0,86. Les coefficients de corrélation entre l'ajustement et les données acquises atteignent des valeurs de 0,95 et 0,94 pour ces deux radionucléides.

Figure 6.10 – Taux de comptage exprimé en  $c.s^{-1}$  pour le  $^{40}\text{K}$  (a),  $^{238}\text{U}$  (b), le  $^{232}\text{Th}$  (c), et le  $^{137}\text{Cs}$  (d) en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.) in situ sur une base de données horaires. Sur chaque graphique, la ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'intervalle de confiance. Les paramètres et les incertitudes associés à  $1\sigma$  ainsi que les coefficients de détermination  $R^2$  pour chaque courbe d'ajustement sont présentés. Les données sont filtrées des événements des précipitations.





La grande dispersion des taux de comptage, déjà observée, pour le  $^{238}\text{U}$  impacte la valeur de ce coefficient à une valeur de 0,24. Toutefois, il existe une très bonne corrélation entre la courbe théorique et le jeu de données acquises (0,54 pour le coefficient de corrélation entre données mesurées et simulées). Cela montre que si les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sont nettoyés de l'influence du radon-222 atmosphérique, hypothèse la plus probable, alors la dispersion des taux de comptage serait moins importante et donc le coefficient de détermination s'en verrait amélioré. L'écart maximal observé est de 50 % entre taux de comptage et ajustement théorique. Par comparaison, il est de seulement 8 % pour le  $^{40}\text{K}$  et de 12 % pour le  $^{232}\text{Th}$ .

Le taux de comptage associé au  $^{137}\text{Cs}$ , dispose également d'un bon ajustement entre la courbe théorique calculée et le jeu de données. Le coefficient de corrélation est de 0,74 et le coefficient de détermination est ici de 0,59. La dispersion autour de la valeur moyenne est plus importante pour ce radionucléide que pour celle du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Elle atteint une valeur maximale de 15 %, très inférieure au 50 % du  $^{238}\text{U}$ . D'après la méthode des fenêtres utilisée, le  $^{137}\text{Cs}$  est caractérisé à une énergie de 662 keV. Le taux de comptage calculé va dépendre de l'élimination de l'influence du  $^{232}\text{Th}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{60}\text{Co}$  à partir de coefficients de déconvolution spectrale généralisés. L'ensemble du traitement peut être à l'origine de variation et d'incertitude engendrant cette plus grande dispersion. Une autre hypothèse pourrait être la dispersion hétérogène dans le sol du  $^{137}\text{Cs}$ .

En effet, le  $^{137}\text{Cs}$  ne s'est probablement pas déposé uniformément en formant une couche horizontale bien caractérisée sur le site P2OA-CRA au cours du temps. D'ailleurs, les concentrations en  $^{137}\text{Cs}$  retrouvées sur le site par l'analyse des échantillons par spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire bas bruit de fond (cf. Chapitre 5) montrent une grande hétérogénéité en surface et en profondeur. Cette hétérogénéité du dépôt de  $^{137}\text{Cs}$  va être associée à des différences locales de compaction du sol et de teneur en eau volumique. Cela peut entraîner une variation du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol représentative d'une zone restreinte du domaine étudié. Le fait que le spectromètre soit capable de détecter le  $^{137}\text{Cs}$  est en adéquation avec les mesures des nombreux échantillons de sol sur la profondeur 0 - 30 cm (cf. Chapitre 5).

**La relation inverse observée entre les taux de comptage  $\gamma$  et la masse volumique apparente du sol, qui a une dépendance linéaire avec l'humidité du sol, décrit les variations mesurées pour le  $^{40}\text{K}$ , le  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{137}\text{Cs}$ . Ces résultats sont en accord avec ceux établis dans d'autres études [Carroll, 1981, Grasty, 1997, Baldoncini et al., 2019]. Cependant, cette équation 6.11 n'est pas suffisante pour expliquer en totalité la dispersion observée sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  qui montrent des écarts allant jusqu'à 50 % par rapport à l'ajustement théorique. Pour les radionucléides naturels, l'humidité du sol peut donc être considérée comme le facteur environnemental le plus influent sur les taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$ , mais elle ne peut pas à elle seule expliquer la dispersion observée dans le taux de comptage de l'uranium.**

En ce qui concerne le paramètre  $b$ , déterminé par ajustement pour vérifier si chaque ajustement était capable de reconstituer la masse volumique apparente du sol mesuré, une décroissance des valeurs du paramètre est observée entre les basses



et les hautes énergies. Cette valeur est presque divisée par 2 entre celle du  $^{137}\text{Cs}$ , à 662 keV, où le paramètre  $b$  affiche une valeur de  $9,018 \pm 0,32 \text{ m}^{-1}$  et celle du  $^{232}\text{Th}$ , à 2615 keV, où la valeur de  $b$  est de  $4,731 \pm 0,10 \text{ m}^{-1}$ . Ce facteur de division par 2 est également associé aux valeurs de coefficients d'atténuation massique de ces deux radionucléides (Tableau 6.1) pour le sol du site P2OA-CRA et un sol à 100 % de  $\text{SiO}_2$ . De prime abord, ce même ordre de grandeur observé entre ces deux ratios permet de dire que la valeur de masse volumique apparente calculée à partir de l'ajustement des courbes théoriques de chaque radionucléide doit être relativement identique. Il s'agit en effet du seul paramètre variable dans ce facteur d'ajustement  $b$ . La densité apparente du sol sec se calcule donc par l'intermédiaire de la relation suivante :

$$\rho_{b,sec} = \frac{b}{\hat{\mu}_s} \quad (6.12)$$

À partir du paramètre  $b$  calculé et du coefficient d'atténuation massique pour un sol de composition chimique similaire à celui du P2OA-CRA, la masse volumique apparente du sol sec a été déterminée. La différence en absolu entre la valeur de densité apparente du sol sec mesurée et celles calculées par l'équation 6.12 est également calculée. L'ensemble des valeurs utilisées et calculées sur la base de cette équation sont regroupées dans le tableau 6.7.

Élément	Énergie (keV)	$b_{ajuste}$ $\text{m}^{-1}$	$\hat{\mu}_s$ $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$	$\rho_{b,sec}$ $\text{kg}.\text{m}^{-3}$	$ \Delta\rho_{b,sec} $ %
$^{137}\text{Cs}$	662	$9,02 \pm 0,32$	0,007669	$1176 \pm 42$	$2,34 \pm 0,06$
$^{40}\text{K}$	1461	$6,20 \pm 0,24$	0,005214	$1189 \pm 46$	$-0,94 \pm 0,06$
$^{238}\text{U}$	1764	$5,60 \pm 0,30$	0,004733	$1182 \pm 63$	$-1,81 \pm 0,07$
$^{232}\text{Th}$	2615	$4,73 \pm 0,10$	0,003867	$1223 \pm 26$	$1,62 \pm 0,05$

Tableau 6.7 – Ce tableau regroupe le paramètre  $b$  ( $\text{m}^{-1}$ ) issu des ajustements des courbes théoriques associées à chaque radionucléide, les coefficients d'atténuations massiques dans le sol P2OA-CRA ( $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ ), la masse volumique apparente du sol calculée ( $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ ) et la différence en absolu entre la masse volumique apparente mesurée et celle calculée pour chaque radionucléide.

Les masses volumiques apparentes calculées à partir des données du  $^{137}\text{Cs}$ , du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  varient entre  $1176 \pm 42 \text{ kg}.\text{m}^{-3}$  et  $1223 \pm 26 \text{ kg}.\text{m}^{-3}$ . Cette gamme de variation englobe la valeur de densité apparente du sol sec mesurée,  $1204 \pm 52,5 \text{ kg}.\text{m}^{-3}$ . Les différences en absolus exprimées en pourcentage sont toutes inférieures à 3 % d'écart entre la valeur mesurée et celle calculée. En partant de cette analyse sur la détermination de la densité apparente du sol à partir d'un des paramètres ajustés de la courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol, les résultats montrent que l'ajustement a permis de retrouver la valeur de densité apparente du sol sec pour tous les radionucléides investigués.

Les résultats pour les quatre radionucléides d'intérêt **valident l'équation 6.11** comme référence pour l'établissement de courbe théorique entre le taux de comptage ( $\text{c}.\text{s}^{-1}$ ) et l'humidité du sol.

### 6.3.3 Taux de comptage et sol sec pour répondre aux besoins de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée

D'après l'équation 6.11 appliquée à un **sol sec**, le paramètre  $c$  est nul puisque la teneur en eau volumique du sol est de 0 %. De ce fait, le taux de comptage d'un radionucléide associé à un sol sec est déterminé uniquement par le rapport entre les paramètres  $a$  et  $b$  une fois que ceux-ci sont connus. Comme les courbes théoriques ont été validées par l'intermédiaire de la comparaison des densités apparentes du sol sec et des observations faites sur les coefficients de détermination notamment, il est désormais possible de déterminer le **taux de comptage d'un radionucléide exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$  pour un sol sec**. Cette expression pour un sol sec sert de référence pour les mesures en spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire, tel que le LAFARA.

Pouvoir exprimer un taux de comptage en fonction uniquement de la phase solide d'un sol est une **avancée majeure** en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. S'affranchir de l'influence des variations d'humidité du sol sur le signal  $\gamma$  assure une comparaison optimisée de deux cartographies réalisées à deux intervalles de temps différents. C'est aussi la possibilité de combiner ensemble plusieurs jeux de données radiométriques pour en faire des cartes globales ou régionales, par exemple une cartographie à l'échelle d'un pays réalisées en plusieurs campagnes.

La période d'acquisition de 14 mois, entre **Avril 2019 et Juin 2020**, a permis d'enregistrer un volume de données extrêmement conséquent atteignant plus de 10000 heures de mesure pour les taux de comptage et l'humidité du sol *in situ*. L'importance de ce nombre de points de mesure permet d'établir des relations entre taux de comptage et humidité du sol *in situ* qui prennent en compte les variations saisonnières inhérentes à cette échelle temporelle de 14 mois. De ce fait et vu que la gamme de variation des humidités du sol est large (18 à 43 %), l'ajustement d'une courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol est adapté avec des résultats exploitables. L'incertitude résiduelle sur cet ajustement de courbe est concentrée sur la gamme de teneur en eau volumique 0 - 18 % du fait de l'absence de données mesurées à ces valeurs. Toutefois, comme la densité apparente estimée à partir des quatre courbes théoriques a été validée, le paramètre  $a$  qui en découle est tout à fait significatif. Le taux de comptage pour un sol sec est exprimé à partir de l'équation globale de la courbe théorique :

$$\text{Comptage}(0) = \frac{a}{b + cx_0} = \frac{a}{b} \quad (6.13)$$

avec  $x_0$  qui représente la valeur de l'humidité du sol pour un taux de comptage à une humidité nulle, donc 0 %.

L'équation simplifiée 6.13 montre que la seule connaissance des paramètres  $a$  et  $b$  suffit à calculer le taux de comptage pour un sol sec. Ce travail de quantification du taux de comptage pour un sol sec a été réalisé pour les quatre radionucléides dont les courbes théoriques ont été estimées pour le site P2OA-CRA. Les taux de comptage pour un sol sec sont présentés au sein du tableau 6.8 qui regroupe également les paramètres  $a$  et  $b$  de chaque courbe théorique d'un radionucléide et qui ont été utilisés pour calculer ces taux de comptage.

Les taux de comptage semblent cohérents avec ceux qui pouvaient être attendus de manière visuelle sur les graphiques reliant taux de comptage et humidité du sol *in*

*situ*. Les incertitudes représentent moins de 5 % du taux de comptage calculé pour un sol sec. Seule l'incertitude sur le taux de comptage pour un sol sec du  $^{238}\text{U}$  est élevée, environ 12 % du taux de comptage calculé, ce qui imputable à la dispersion plus importante des taux de comptage autour de la courbe d'ajustement théorique.

Élément	Énergie (keV)	$a_{ajuste}$ Photons.m <sup>-2</sup>	$b_{ajuste}$ m <sup>-1</sup>	$N_{sec}$ c.s <sup>-1</sup>
$^{137}\text{Cs}$	662	183,53±8,48	9,018±0,32	20,35±0,96
$^{40}\text{K}$	1461	387,57±15,27	6,198±0,24	62,53±2,46
$^{238}\text{U}$	1764	109,36±12,71	5,596±0,30	19,54±2,27
$^{232}\text{Th}$	2615	169,79±7,26	4,731±0,10	35,89±1,53

Tableau 6.8 – Taux de comptage pour un sol sec  $N_{sec}$  exprimé en c.s<sup>-1</sup> calculé à partir des paramètres  $a$  et  $b$  ajustés par les courbes théoriques de chaque radionucléide. Les incertitudes pour chaque paramètre sont également présentés.

Dans le cas où il est possible de disposer d'un nombre important de mesures d'un radionucléide en fonction de l'humidité du sol, une courbe d'ajustement théorique pourra être réalisée et l'équation 6.13 permettra de calculer le taux de comptage mesuré d'une humidité  $x$  à une humidité nulle. Cette procédure assurera une comparaison optimale entre deux taux de comptage pour un sol sec, où l'influence de l'humidité du sol a été soustraite.

Le grand nombre de points de mesures (14 mois d'acquisition) permet une représentation détaillée du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol et donc d'en déduire un ajustement de courbe théorique robuste. Le paramètre  $a$ , qui regroupe différentes variables comme l'efficacité de détection du photopic, le nombre de photons émis par m<sup>2</sup> ou encore l'altitude du spectromètre et le coefficient d'atténuation linéaire dans l'atmosphère, est entièrement ajusté par la méthode des moindres carrés. Ce paramètre  $a$  nécessite un nombre de points de mesure suffisamment important sur toute la gamme de valeurs de l'humidité du sol comprise entre 0 et 45% volumique pour être ajusté de manière précise. En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le site survolé est très rarement étudié en terme d'humidité du sol. De ce fait, il va être très compliqué à partir d'une seule valeur d'humidité du sol, affiliée à la journée de campagne de mesure, de procéder à un ajustement de la courbe théorique. En effet, comme il a déjà été précisé, les campagnes de survol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour un site d'étude s'opèrent généralement sur deux jours consécutifs avec un ou deux vols d'une heure sur la zone dédiée. Il en découle que peu de points reliant taux de comptage d'un radionucléide et humidité de sol *in situ* seront disponibles.

Afin de pouvoir généraliser cette procédure d'utilisation de la courbe théorique ajustée à n'importe quel site environnemental, il est nécessaire de connaître la teneur en eau volumique du sol au moment de la mesure et la masse volumique apparente du sol. La formule théorique, qui a été validée, peut ensuite être appliquée.

Pour remédier à ce problème lié au paramètre  $a$  dans l'équation 6.13, il faut établir une seconde équation où le paramètre  $a$  pourrait intervenir et dont l'ensemble des autres paramètres de l'équation serait connu. D'après la figure 6.11, en utilisant

l'équation 6.11 de la courbe d'ajustement théorique avec la valeur d'humidité du sol mesurée *in situ*, par exemple 35 % volumique, deux équations représentatives de deux humidités sur la même courbe d'ajustement sont disponibles.

L'équation 6.14 présente le taux de comptage mesuré par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur un site aléatoire, exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ , relié à une valeur d'humidité du sol déterminée *in situ*. La projection du taux de comptage et de l'humidité mesurés sur la courbe théorique d'ajustement permet donc de définir cette équation 6.14 :

$$\text{Comptage}(35) = \frac{a}{b + cx_{35}} \quad (6.14)$$

En isolant le paramètre  $a$  dans les équations 6.14 et 6.13 puis en fusionnant ces deux équations par l'intermédiaire du paramètre  $a$  (équation 6.15), le taux de comptage pour un sol sec peut être exprimé en fonction de celui mesuré ou calculé à une humidité déterminée *in situ* de 35 % dans cet exemple.

$$\text{Comptage}(0) = \frac{(b + cx_{35}) \times \text{Comptage}(35)}{b} \quad (6.15)$$

Le paramètre  $c$  est fixé et n'est pas ajusté par la courbe théorique. Il faut toutefois le calculer par l'intermédiaire du coefficient d'atténuation massique du radionucléide considéré dans l'eau, exprimé en  $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ , et de la masse volumique de l'eau connue à  $1000 \text{ kg.m}^{-3}$ . Le paramètre  $b$  correspond au facteur entre le coefficient d'atténuation massique du radionucléide considéré dans le sol, déterminé comme 100 %  $\text{SiO}_2$  et exprimé  $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ , et la densité apparente du sol dont l'unité est le  $\text{kg.m}^{-3}$ .

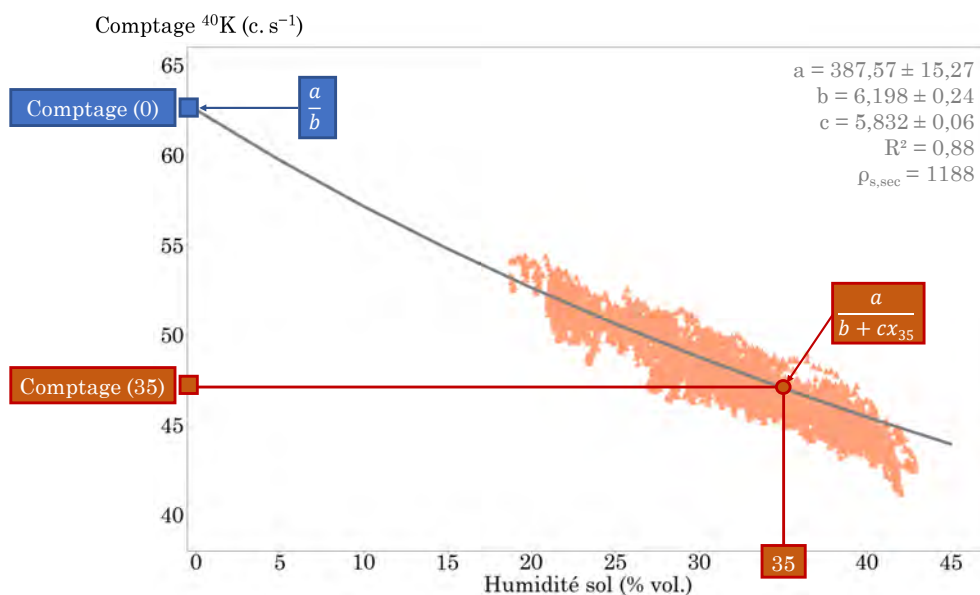


Figure 6.11 – Évolution du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  en fonction de l'humidité du sol *in situ*. La courbe théorique d'ajustement pour ce radionucléide est également représentée. Les paramètres et incertitudes associés sont affichés. L'équation 6.11 est appliquée pour une humidité de sol nulle et une humidité de sol de 35 %.

Le paramètre  $a$  est commun aux deux équations 6.13 et 6.14 qui relient les taux de comptage à humidité nulle et à humidité 35 % vol. dans le sol par l'intermédiaire de la courbe d'ajustement théorique.

En caractérisant la densité apparente du sol par un prélèvement de sol, le paramètre  $b$  du site investigué peut être déterminé. Il peut également être choisi de fixer arbitrairement cette valeur de densité apparente dans le cas où l'opérateur ne dispose pas du matériel adéquat pour effectuer un prélèvement selon la norme standard en vigueur. La grande majorité des sols de France présentent une densité apparente comprise entre  $1350$  et  $1500 \text{ kg.m}^{-3}$  [Al Majou et al., 2008, Martin et al., 2011]. La valeur de densité apparente pour un sol standard est de  $1500 \text{ kg.m}^{-3}$  [Blake, 1965]. L'utilisation de l'équation 6.15 est possible puisque tous les paramètres sont connus.

La même valeur de densité apparente de sol devra être utilisée tout au long des différents survols. L'uniformité des paramètres utilisés pour différents survols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée d'un même site est une condition indispensable à la bonne réalisation de cette procédure. Elle permettra la soustraction des effets de l'humidité du sol sur le taux de comptage en utilisant la même courbe abaque.

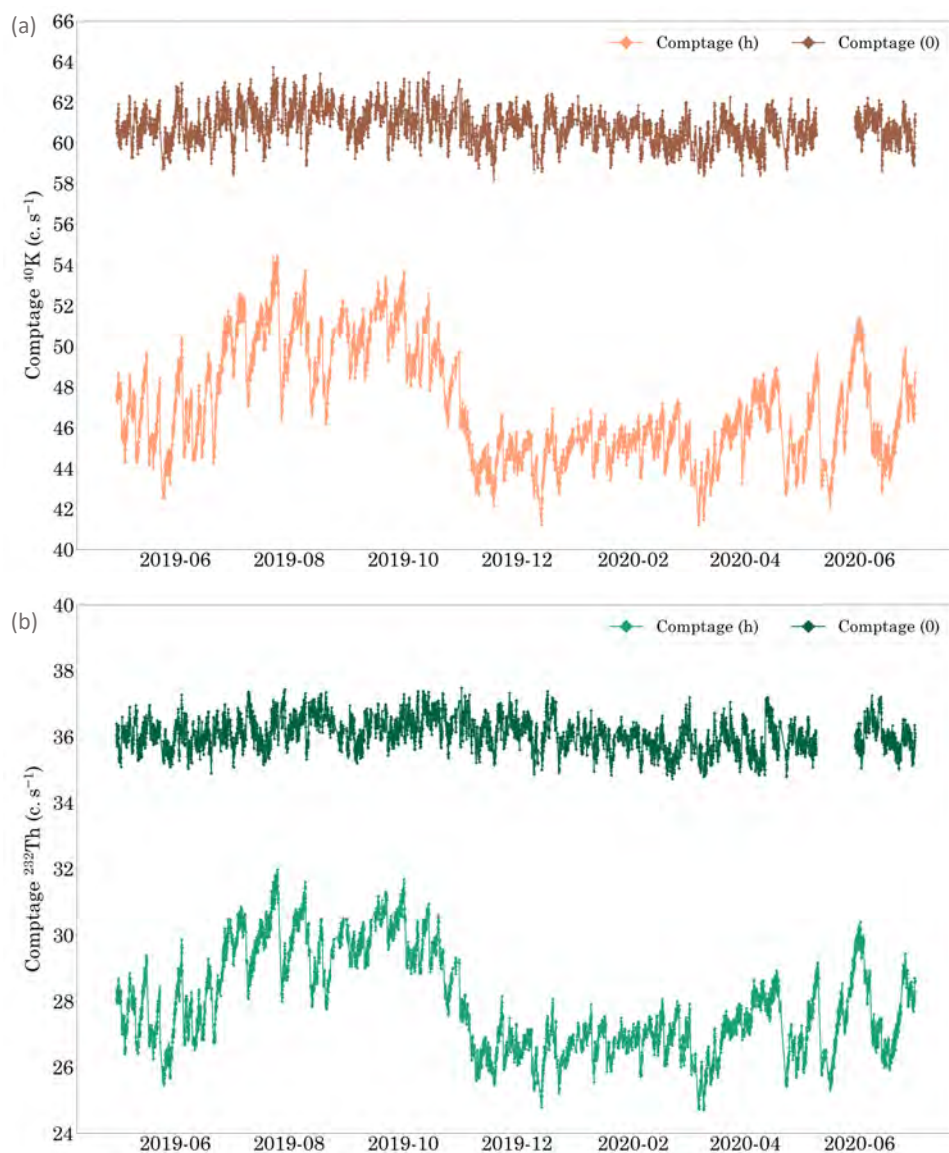


Figure 6.12 – Évolution temporelle des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0)) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique.



Ce protocole de correction de la teneur en eau volumique sur le signal  $\gamma$  mesuré pour une humidité nulle, est appliqué sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  (Figure 6.12) hors événements de pluie. Si cette procédure fonctionne correctement, toutes les variations temporelles significatives du signal  $\gamma$  observées sur les chroniques des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  doivent être supprimées.

Que ce soit pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  ou pour celui du  $^{232}\text{Th}$ , la correction par prise en compte de la teneur en eau volumique permet de s'affranchir des variations temporelles observées sur les taux de comptage non corrigés. En effet, la gamme de variation des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  ou du  $^{232}\text{Th}$  non corrigés est d'environ 33% sur cette chronique. La correction permet de réduire cette étendue à moins de 8% sur les données traitées pour ces deux radionucléides. Ces pourcentages résiduels peuvent être induits par des incertitudes sur la mesure de la teneur en eau volumique mais également par la dispersion statistique.

**L'application de cette procédure de correction remplit donc son objectif initial d'atténuer voire éliminer les variations temporelles des taux de comptage en fonction de la teneur en eau volumique du sol.** Projeter tous les taux de comptage mesurés à une humidité nulle offre donc de solides perspectives quant à des analyses sur l'évolution spatio-temporelle des concentrations de radionucléides dans le sol à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

#### 6.3.4 Comparaison entre simulations Geant-4 et mesures obtenues au P2OA-CRA

Une simulation des taux de comptage pour un sol sec a été réalisé avec Geant-4 en prenant en compte l'ensemble du protocole expérimental mis en place sur le site P2OA-CRA de Lannemezan.

Ce code de simulation a déjà fait ses preuves dans cette thèse notamment sur l'étude de la comparaison des efficacités de détection mesurées et simulées pour le spectromètre désormais déployé sur la tour instrumentée. L'objectif de cette précédente simulation était de valider la géométrie et les matériaux du détecteur construit dans Geant-4 par l'intermédiaire d'une comparaison avec des mesures de calibration.

Les résultats satisfaisants de cette simulation permettent d'utiliser le détecteur NaI(Tl) modélisé dans Geant-4 pour des simulations en conditions environnementales. Si ces taux de comptage simulés coïncident avec ceux estimés par les courbes d'ajustement théorique alors **il sera possible de déterminer un coefficient de conversion entre une activité massique de  $1 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et le taux de comptage associé pour chaque radionucléide.**

#### La simulation de l'environnement du site P2OA-CRA

Dans le cas de ces travaux, la reconstitution de l'environnement dans lequel a été installé le spectromètre NaI(Tl) et qui est observé sur le site P2OA-CRA va conditionner la bonne réalisation des simulations. Ainsi, tout le travail de caractérisation qui a été réalisé dans les chapitres précédents que ce soit pour la détermination des activités massiques des radionucléides, l'homogénéité des sols en place ou encore la validation de la géométrie simulée du détecteur vont être utilisées dans ces simulations.



La simulation par Geant-4 doit permettre de **déterminer le taux de comptage mesuré par le spectromètre installé à une hauteur de 50 mètres, exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ , à partir des rayonnements  $\gamma$  émis depuis le sol à une énergie caractéristique fixée pour une activité massique du radionucléide déterminée dans le sol.** Ces photons  $\gamma$  sont émis dans et à la surface d'un sol de profondeur 30 cm qui constitue l'épaisseur de sol responsable de plus de 95 % du signal  $\gamma$ .

Les différentes caractéristiques retenues et modélisées au sein de la géométrie de l'environnement du P2OA-CRA, construite dans Geant-4, sont recensées et observables sur la figure 6.13 :

- La simulation s'opère au sein d'une **demi-sphère** découpée en deux parties : le sol contenant le radionucléide responsable des photons  $\gamma$  émis et l'atmosphère qui participe activement à l'atténuation des rayonnements  $\gamma$ ,
- La base de la demi-sphère est étendue sur un **rayon de 400 mètres** et coïncide avec l'emprise spatiale pour un signal émis depuis le sol,
- La hauteur de la demi-sphère atteint 400,30 mètres. Elle est découpée en deux parties : 0,30 mètres sont dédiés à la profondeur du sol et correspondent à l'épaisseur de sol responsable de 95 % du signal  $\gamma$  mesurable par le spectromètre, et 400 mètres sont constitués par l'atmosphère.

Cette altitude maximale de 400 mètres correspond à plus de trois fois la couche de demi-atténuation des photons  $\gamma$  dans l'air,

- Le **sol** est modélisé par une composition chimique de 100 % de  $\text{SiO}_2$  avec une **masse volumique de sol apparente de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$**  préalablement déterminée par méthode destructive et estimée suite à l'ajustement de la courbe théorique des relations entre taux de comptage et humidité du sol *in situ*. Le volume de sol est considéré comme homogène.

Les coefficients d'atténuation massique liés à un sol de 100 % de  $\text{SiO}_2$  sont directement implementés par la librairie utilisée dans la partie *physique* de Geant-4 sur la base des tables de standard NIST. Ils coïncident avec ceux utilisés dans l'ajustement des courbes théoriques précédents exploités sous le paramètre  $b$ ,

- L'**atmosphère** est modélisée avec une composition chimique simplifiée de 80 % de  $\text{N}_2$  et de 20 % d' $\text{O}_2$ . Les coefficients d'atténuation linéaire reliés à l'atmosphère aux différentes énergies caractéristiques des radionucléides étudiés sont eux aussi issus des tables de standard NIST et indiqués au sein de la partie *physique* de Geant-4,
- La tour instrumentée est située au-dessus de la surface du sol, et constitue le centre de la demi-sphère de diamètre 800 mètres. Elle est configurée sous la forme d'un cylindre creux de 60 mètres de hauteur et de 1,20 mètres de diamètre dont les parois font une épaisseur de 0,20 mètres. Le matériau utilisé pour définir ce mât est de l'aluminium.
- La **géométrie du spectromètre NaI(Tl)** qui a été validée lors de l'étude comparative des efficacités de détection est reconduite dans cette simulation. Le spectromètre est placé à une hauteur de 50 mètres dans le même sens d'installation que celui opéré sur le site P2OA-CRA.

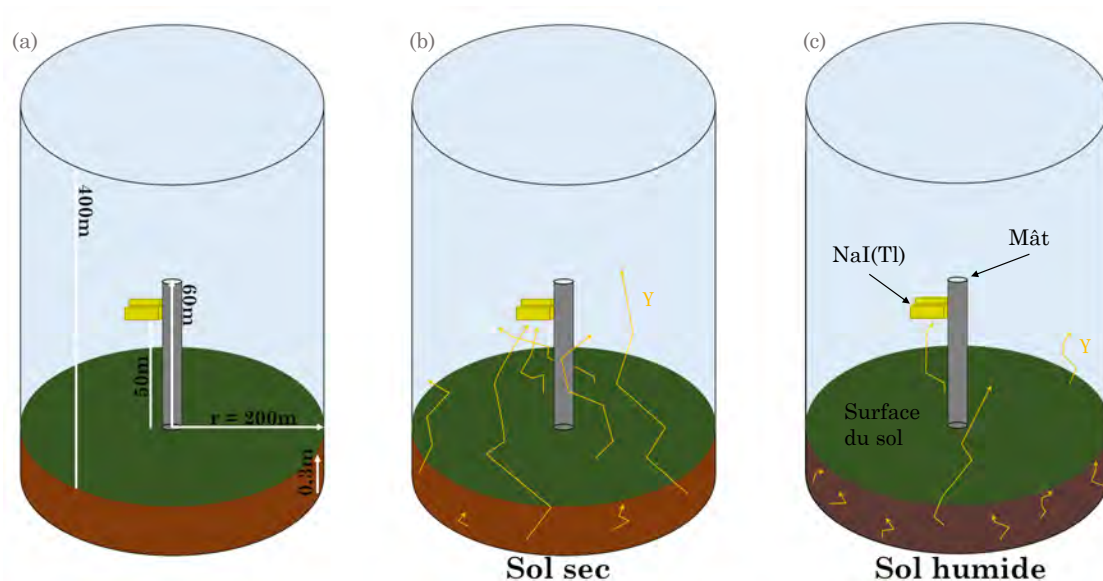


Figure 6.13 – Représentation schématique de la construction géométrique utilisée dans le cadre des simulations des taux de comptage à partir d'une source volumique homogène (a). Les graphiques (b) et (c) montrent le cheminement de quelques photons  $\gamma$  dans le sol et l'atmosphère lorsque le sol est sec ou humide.

Pour chaque radionucléide dont la simulation Geant-4 a été réalisée, l'activité massique exprimée en  $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  qui a été utilisée est la valeur moyenne déterminée par les mesures spectrométriques opérées au LAFARA (Cf. Chapitre 3 sur l'ensemble des échantillons). La valeur d'activité massique sert de référence pour le compartiment sol. La concentration du radionucléide  $y$  est donc homogène sur tout le volume de sol. Dans un premier temps, les simulations Geant-4 ont pu être réalisées pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  avec des activités massiques respectives de  $286,30 \pm 29,40 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$  et  $45,40 \pm 3,30 \text{ Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ . Les incertitudes sur les taux de comptage simulés pour un sol sec sont déterminées à partir de la gamme de variation des incertitudes des activités massiques de chaque radionucléide. La variation de l'activité massique dans le sol autour de cette valeur moyenne caractérise donc les incertitudes pour les mesures Geant-4.

### Les simulations des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ et du $^{232}\text{Th}$ pour un sol sec

Pour ces trois simulations du taux de comptage mesurés à partir d'un sol sec, la source de photons  $\gamma$  provient du sol et se caractérise comme une source volumique homogène. À partir de l'activité massique inhérente à chaque radionucléide, de la densité apparente du sol, du volume de sol considéré et de l'intensité de la raie d'émission caractéristique suivie, il est possible de reconstituer le **nombre de particules** tirées au cours de la simulation Geant-4. Ce nombre de particules, une fois calculé, a pu être modulé de sorte d'en augmenter la quantité afin d'obtenir la plus grande statistique de comptage possible. Pour un total de 15 milliards de photons  $\gamma$  simulés pour le  $^{40}\text{K}$ , la durée de la simulation dépasse les 48 heures.

Les taux de comptage simulés pour un sol sec de densité apparente de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$  pour les deux radionucléides cités précédemment, sont regroupés dans le

tableau 6.9. Les taux de comptage pour un sol sec déterminés à partir des courbes d'ajustement théorique entre taux de comptage et humidité du sol *in situ* sont également proposés comme comparatif.

Les résultats entre taux de comptage pour un sol sec issus des simulations Geant-4 et ceux déterminés par ajustement de courbe théorique montrent une très bonne concordance pour les deux radionucléides. Les différences sont inférieures à 2%. D'après les graphiques représentant l'évolution du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  (Figure 6.10 a et c), les taux de comptage simulés semblent parfaitement se positionner sur une valeur nulle d'humidité du sol associée. Les taux de comptage simulés et ceux déterminés par l'ajustement de la courbe théorique se valident mutuellement ce qui offre un degré de confiance supplémentaire à la procédure d'exploitation de cartographies de concentration de radionucléides ramenées à un sol sec.

Élément	Énergie (keV)	$N_{sec}\text{-SimG4}$ c.s <sup>-1</sup>	$N_{sec}\text{-Ajusté}$ c.s <sup>-1</sup>	$ \Delta N_{sec} $ %
$^{40}\text{K}$	1461	61,45±3,01	62,53±2,46	1,73±0,06
$^{232}\text{Th}$	2615	35,96±1,84	35,89±1,53	0,20±0,03

Tableau 6.9 – Taux de comptage pour un sol sec de masse volumique apparente 1200 kg.m<sup>-3</sup> déterminé à partir des simulations Geant-4 ( $N_{sec}\text{-SimG4}$ ) et par ajustement d'une courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol ( $N_{sec}\text{-Ajusté}$ ), exprimés en c.s<sup>-1</sup>. La différence, en pourcentage, entre les deux taux de comptage définis pour chaque radionucléide est donnée.

À partir des simulations Geant-4, il est possible de déterminer un coefficient de conversion entre ces deux variables. L'objectif est de pouvoir déterminer, à partir des taux de comptage mesurés en spectrométrie  $\gamma$ , l'activité massique exprimée en Bq.kg<sup>-1</sup>. Ainsi, en ramenant les taux de comptage simulés pour un sol sec à une activité massique de 1 Bq.kg<sup>-1</sup> pour chaque radionucléide, il est possible d'estimer ce coefficient de conversion pour une altitude de vol de 50 mètres.

En utilisant les valeurs de taux de comptage simulées pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  retrouvées dans le tableau 6.9 et les activités massiques injectées dans Geant-4, les coefficients de conversion ont été déterminés :

- Pour le  $^{40}\text{K}$ , un taux de comptage pour un sol sec de  $61,45 \pm 3,01$  c.s<sup>-1</sup> est relié à une activité massique de  $286,30 \pm 29,40$  Bq.kg<sup>-1</sup>. Il en est déduit que **pour une activité massique de 1 Bq.kg<sup>-1</sup>, le taux de comptage est de 0,2146 c.s<sup>-1</sup>. Pour convertir les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  en activité massique, il faudra donc diviser ces valeurs par un facteur de 0,2146.**
- Pour le  $^{232}\text{Th}$ , un taux de comptage pour un sol sec de  $35,96 \pm 1,84$  c.s<sup>-1</sup> est relié à une activité massique de  $45,40 \pm 3,30$  Bq.kg<sup>-1</sup>. Il en est déduit que **pour une activité massique de 1 Bq.kg<sup>-1</sup>, le taux de comptage est de 0,7920 c.s<sup>-1</sup>. Pour convertir les taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  en activité massique, il faudra donc diviser ces valeurs par un facteur de 0,7920.**

### Les coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique généralisés à toute altitude

La généralisation à toute altitude et toute énergie des mesures effectuées à l'aide du dispositif expérimental et des simulations opérées sur Geant-4 nécessite la connaissance de lois d'évolution du taux de comptage qui puissent être ajustées sur ces mesures. L'estimation de l'activité du sol à partir de ces pics d'absorption des principaux radionucléides présents dans le sol nécessite la connaissance des variations de l'aire des pics en fonction de l'altitude de détection et de l'énergie des photons.

Une approche analytique simplifiée est utilisée pour simuler la réponse spectrale issue d'une campagne de spectrométrie  $\gamma$ . Elle se base sur des émissions de photons  $\gamma$  non diffusés d'un rayonnement mono-énergétique dans un modèle double couche sol-air caractérisant la géométrie source-détecteur (Figure 6.14).

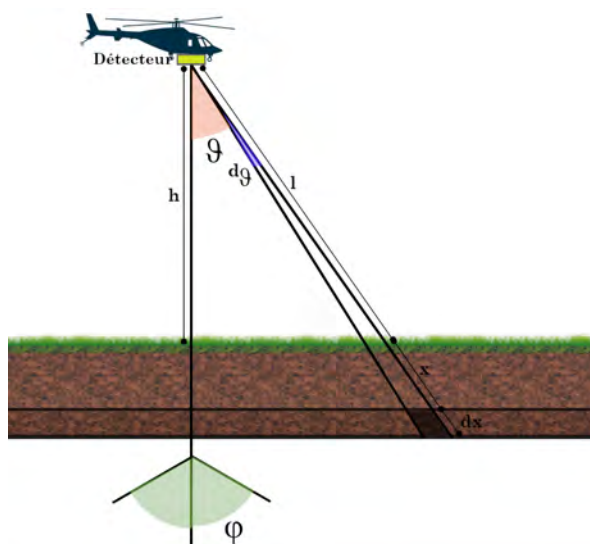


Figure 6.14 – Géométrie source-détecteur pour un modèle à deux couches air-surface terrestre.

La conversion du taux de comptage mesuré en activité requiert une hypothèse sur la distribution spatiale de la concentration du radionucléide. Dans les deux cas théoriques que constituent les distributions surfaciques et volumiques, la distribution du radionucléide est considérée comme uniforme sur la surface couverte pendant une mesure. En se basant sur l'équation 6.5 et selon que la distribution soit considérée comme surfacique ou volumique, le taux de comptage peut être exprimée de la façon suivante [Kogan et al., 1965, Grasty, 1975] :

- Activité surfacique et uniforme sur une surface plane :

$$C(h) = \frac{\varepsilon(E)n(E)h}{2} \int_{l=h}^{\infty} \frac{e^{-\mu_{(air,E)}l} dl}{l^2} \quad (6.16)$$

avec  $\varepsilon(E)$  qui est l'efficacité de détection,  $n(E)$  le nombre de photons  $\gamma$  d'énergie  $E$  émis par seconde et par  $m^2$ .

- Activité volumique, uniforme et d'extension finie :

$$C(h) = \frac{\varepsilon(E)n(E)h}{2\lambda} \int_{l=h}^{\infty} \frac{e^{-\mu_{(air,E)}l} dl}{l^2} \quad (6.17)$$

avec  $\lambda$  le libre parcours moyen des photons  $\gamma$  dans le sol. Une loi unique peut être définie à partir de ces deux expressions :

$$C(h) = \frac{\varepsilon(E)n(E)}{2} (e^{-\mu_{(air,E)}h} - \mu_{(air,E)}h E_1(\mu_{(air,E)}h)) \quad (6.18)$$

avec  $E_1$  l'intégrale exponentielle du premier ordre. Cette équation 6.18 peut s'écrire sous la forme suivante, en considérant l'intégrale exponentielle de second ordre,  $E_2(\mu_{(air,E)}h)$  :

$$C(h) = \frac{\varepsilon(E)n(E)}{2} E_2(\mu_{(air,E)}h) \quad (6.19)$$

Dans l'hypothèse d'une activité uniforme et d'extension infinie, cette loi d'évolution de comptage avec l'altitude de détection définie par l'équation 6.19 peut être présentée sous la forme :

$$C(h) = C_0 E_2(\mu_{(air,E)}h) \quad (6.20)$$

avec  $C_0$  qui définit le taux de comptage au sol, le coefficient  $\mu_{air,E}$  correspond au coefficient d'atténuation de l'air standard à l'énergie  $E$  et est issu des tables NIST,  $h$  est l'altitude de vol.

Cette loi unique permet d'obtenir très simplement une **évaluation du taux de comptage pour tout couple (E, h)**, deux paramètres connus dans le contexte de mesure en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Une source naturelle et continue spatialement et temporellement dans l'environnement est suivie dans ces travaux de thèse. Les sources ponctuelles dans l'environnement ne sont pas abordées dans ces travaux.

En utilisant l'expression analytique 6.20 donnée ci-dessus, qui décrit l'effet de l'atténuation atmosphérique, il est possible d'**extrapoler les résultats des simulations Geant-4 à une hauteur  $h = 0$  qui peut ensuite être généralisée à toute altitude**. En effet, cette équation 6.20 relie les taux de comptage mesurés à une altitude nulle et à une altitude  $h$ . La valeur de l'exponentielle intégrale  $E_2$  à ces énergies et à cette altitude peut être calculée à partir des coefficients d'atténuation dans l'air des tables NIST. Par conséquent, le coefficient de conversion au sol ( $h = 0$ ) est estimé pour ces deux radionucléides au travers de l'équation 6.20 (Tableau 6.10).

Élément	Coeff.50m (G4)	Coeff.Att	$E_2(\mu_{(air,E)})$	Coeff.0m
	c.s <sup>-1</sup> /Bq.kg <sup>-1</sup>	m <sup>2</sup> .kg <sup>-1</sup>		c.s <sup>-1</sup> /Bq.kg <sup>-1</sup>
<sup>40</sup> K	0,2146	0,005252	0,5048	0,4251
<sup>232</sup> Th	0,7920	0,003853	0,5833	1,3578

Tableau 6.10 – Coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique pour une altitude de 50m, issus des simulations Geant-4, et une altitude nulle, 0m. Les coefficients d'atténuation dans l'air du <sup>40</sup>K et du <sup>232</sup>Th et les exponentielles intégrales de second ordre associées à une altitude de 50m sont présentés.

À partir de la connaissance du coefficient de conversion au sol  $C_0$  et de l'exponentielle intégrale de seconde ordre à chaque altitude pour le radionucléide considéré, il est possible de retrouver le coefficient de conversion à toute altitude  $h$  (Figure 6.15).

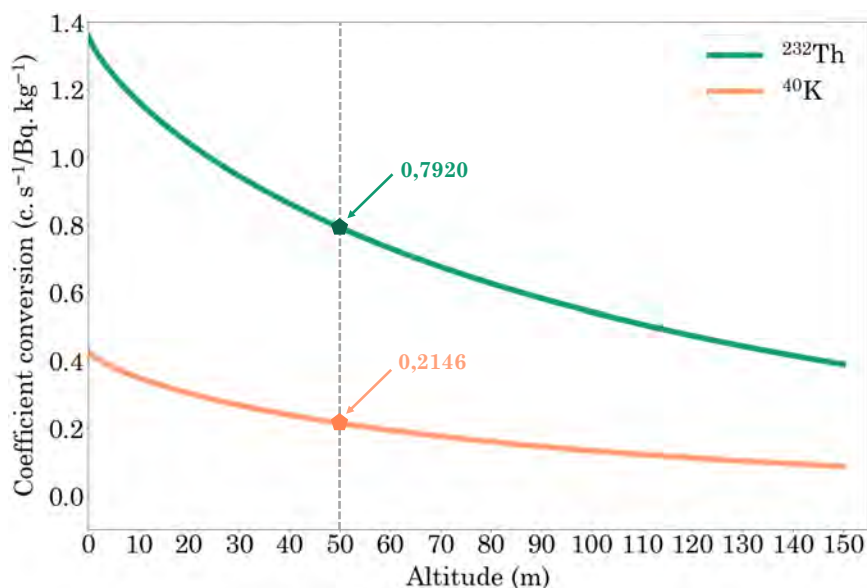


Figure 6.15 – Coefficients de conversion des taux de comptage mesurés à une altitude  $h$  (m) en activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  en fonction de l'altitude.

En associant le taux de comptage mesuré à une altitude  $h$  au facteur de conversion de même altitude, l'activité massique exprimée en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  peut être déterminée. Dans cette thèse, ces coefficients de conversion vont être appliqués aux taux de comptage mesurés en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée lors des survols du site P2OA-CRA (Cf. Chapitre 8).

### Les simulations des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ et du $^{232}\text{Th}$ pour un sol humide

Suite aux résultats concluants des simulations Geant-4 pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  associés à un sol sec de composition 100 %  $\text{SiO}_2$  et de masse volumique apparente  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ , des simulations en fonction de la teneur en eau volumique du sol ont été réalisées. L'objectif de ces simulations secondaires est de vérifier s'il est possible de retrouver les valeurs de taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  des courbes d'ajustement théorique et surtout des mesures réalisées sur le site P2OA-CRA. Cela nécessite la réalisation de simulations au sein de la gamme de variations de l'humidité du sol sur le site pilote de Lannemezan et comprise entre 18 et 43 %. Le choix qui a été fait est de procéder à trois simulations du taux de comptage pour des humidités de sol de 20, 30 et 40 % qui permettent de couvrir toute la gamme de variations d'humidité du sol *in situ* caractérisée sur le site P2OA-CRA.

Toutes les caractéristiques définies pour les simulations qui ont été réalisées pour un sol sec sont conservées dans les simulations faisant intervenir un sol humide. Toutefois, il faut ajouter une proportion d'eau dans la détermination des paramètres de construction du sol (Figure 6.13 c) afin d'obtenir les humidités de sol observées sur le terrain et initier les simulations.

Le libre parcours moyen d'un photon d'énergie caractéristique dans le sol est la distance moyenne parcourue par ce photon lorsqu'il se déplace entre deux collisions successives modifiant ainsi sa direction. Il est directement relié au coefficient d'atté-



nuation massique du matériau rencontré lors du déplacement du photon dans le sol pour cette énergie caractéristique. Ainsi, le paramètre  $b$  de la courbe d'ajustement théorique correspond à l'inverse de ce libre parcours moyen dans la phase solide du sol et le paramètre  $c$ , l'inverse du libre parcours moyen dans la phase aqueuse du sol.

En reconstituant le libre parcours moyen d'un sol humide par l'intermédiaire d'un sol sec dont la densité apparente est modifiée afin de prendre en compte cette influence de l'humidité, la simulation du taux de comptage pour un sol humide pourra être réalisée sur Geant-4. En effet, la masse volumique apparente est l'un des paramètres d'entrée proposé dans le cadre de la simulation et est appliqué uniformément sur la totalité du sol modélisé assurant son homogénéité. En prenant l'exemple du  $^{40}\text{K}$  qui présente un photon d'énergie caractéristique à 1461 keV, le libre parcours moyen dans un sol sec est calculé par l'intermédiaire de la masse volumique apparente,  $\rho_{b,sec}$ , de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$  et par le coefficient d'atténuation massique dans un sol composé de 100 % de  $\text{SiO}_2$ ,  $\hat{\mu}_s$ , de  $0,00525 \text{ m}^2.\text{kg}^{-1}$  :

$$l = \frac{1}{\hat{\mu}_s \rho_{b,sec}} = \frac{1}{0,00525 \times 1200} = 15,87 \text{ cm} \quad (6.21)$$

Pour un sol humide dont la teneur en eau volumique est de 30 %, le libre parcours moyen dans le sol pour ce photon d'énergie 1461 keV va être déterminé par l'intermédiaire de la densité apparente,  $\rho_{b,sec}$ , de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ , par le coefficient d'atténuation massique dans un sol composé de 100 % de  $\text{SiO}_2$  ( $\hat{\mu}_s = 0,00525 \text{ m}^2.\text{kg}^{-1}$ ), par la masse volumique de l'eau ( $\rho_e = 1000 \text{ kg.m}^{-3}$ , par le coefficient d'atténuation massique dans l'eau à une énergie de 1461 keV ( $\hat{\mu}_e = 0,005833 \text{ m}^2.\text{kg}^{-1}$ ) et par la teneur en eau volumique ( $w$ ) en % vol. :

$$l = \frac{1}{\hat{\mu}_s \rho_{b,sec} + \hat{\mu}_e \rho_e w} = \frac{1}{0,00525 \times 1200 + 0,005833 \times 1000 \times 0,30} = 12,42 \text{ cm} \quad (6.22)$$

Cette valeur de libre parcours moyen est donc bien réduite en présence d'eau dans le sol. En ne prenant en compte que le coefficient d'atténuation massique et la masse volumique apparente du sol, ce libre parcours moyen de 12,42 cm peut être retrouvé en appliquant à la phase solide uniquement une densité apparente de sol de  $1532 \text{ kg.m}^{-3}$ . Ainsi, dans la modélisation du sol dans Geant-4, une valeur de densité apparente de  $1532 \text{ kg.m}^{-3}$  doit être appliquée à la phase solide afin de simuler correctement le même effet que pourrait produire la présence de 30 % d'eau dans l'espace poral. Le tableau 6.11 regroupe les valeurs de masse volumique apparente qui ont été appliquées pour simuler des sols humides dont la teneur en eau volumique est de 0, 20, 30 et 40 %.

	0 % vol.	20 % vol.	30 % vol.	40 % vol.
MVA	1200	1422	1532	1644

Tableau 6.11 – Masse volumique apparente du sol (MVA), exprimée en  $\text{kg.m}^{-3}$  appliquée pour simuler l'influence dans l'espace poral de plusieurs teneurs en eau volumique. Ces valeurs sont ensuite utilisées au sein des simulations Geant-4.

Une fois ces densités apparentes déterminées pour simuler le plus correctement possible l'influence de l'atténuation des rayonnements  $\gamma$  par une présence quantifiée d'humidité d'eau dans l'espace poral, trois simulations ont été réalisées respectivement pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$ .

Ces simulations sont effectuées pour des teneurs en eau volumique de 20, 30 et 40 % afin de couvrir toute l'étendue de la gamme d'humidité du sol observée sur le site P2OA-CRA. Une comparaison avec la dispersion des taux de comptage mesurés en fonction de l'humidité du sol et la courbe théorique d'ajustement de chaque radionucléide est proposée. Les résultats des simulations Geant-4 du taux de comptage en fonction des quatre valeurs d'humidité du tableau 6.11 ainsi que la relation établie entre taux de comptage mesurés et humidité du sol *in situ* accompagnée de la courbe théorique d'ajustement sont représentés sur la figure 6.16 pour le  $^{40}\text{K}$  (a) et pour le  $^{232}\text{Th}$  (b). Les résultats montrent que les taux de comptage déterminés à partir des simulations Geant-4 pour un sol sec et ces trois valeurs d'humidité de sol de 20, 30 et 40 % volumique sont en bon accord avec la courbe théorique d'ajustement de chaque radionucléide.

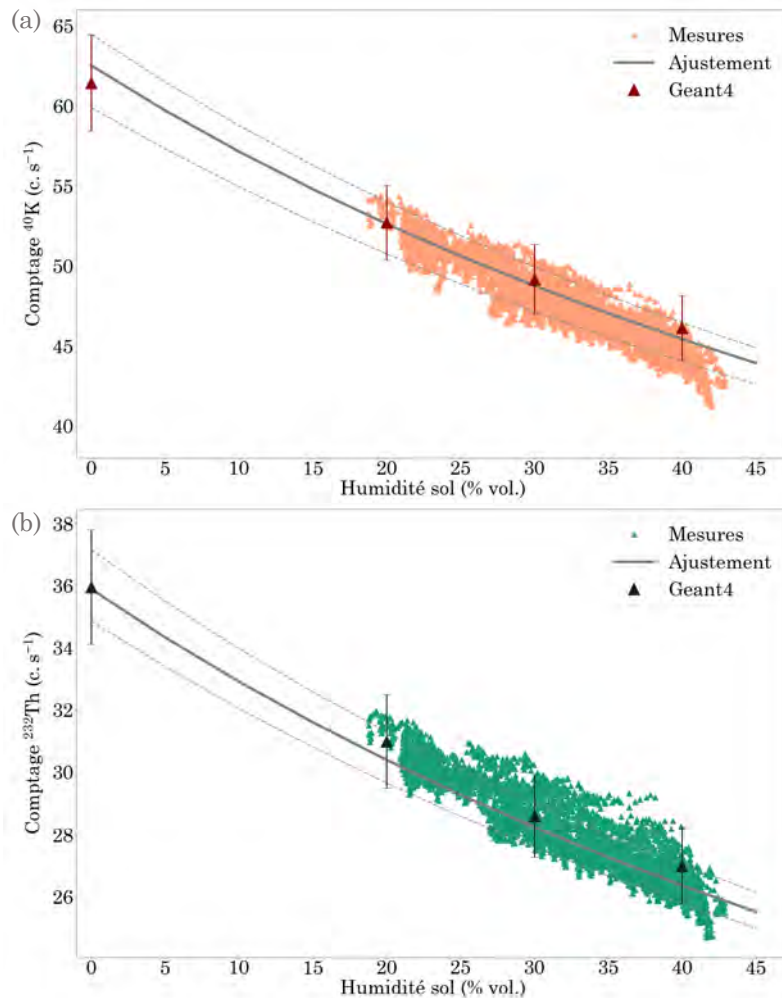


Figure 6.16 – Représentation des résultats de simulation Geant-4 du taux de comptage ( $\text{c.s}^{-1}$ ) en fonction de quatre valeurs d'humidité (% vol.) ainsi que la relation établie entre taux de comptage mesurés et humidité du sol *in situ* accompagnée de la courbe théorique d'ajustement pour le  $^{40}\text{K}$  (a) et pour le  $^{232}\text{Th}$  (b). Les lignes en pointillés représentent l'intervalle de confiance de l'ajustement théorique.

Les simulations issues des conditions environnementales modélisées valident l'ensemble des observations précédemment effectuées et de surcroît les résultats d'analyse sur les activités massiques utilisées, la densité apparente de sol mesurée et calculée, les coefficients d'atténuation employés etc. Toutefois, elles mettent également en

lumière le fait que le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  pour un sol sec est sous-estimé par rapport aux observations faites sur le terrain. Des hypothèses ont ainsi été proposées comme perspectives de travail à cette étude.

D'autres outils, comme la télédétection satellitaire, peuvent être utilisés afin d'accéder à des valeurs d'humidité du sol et ainsi faciliter les acquisitions et observations faites notamment sur les taux de comptage. Cette thématique centrée sur les données d'humidité du sol acquises par satellite, à une échelle kilométrique, est l'objet de la section suivante. Tous les sites sur lesquels les cartographies sont réalisées ne disposent pas de connaissances finies en terme d'humidité du sol. C'est pourquoi, face à cette limite, une proposition d'emploi de données satellitaires est développée.

## 6.4 L'humidité du sol par satellite : une perspective concrète de suivi

Les chroniques temporelles de l'humidité du sol *in situ* ont permis d'observer la grande influence que pouvait avoir ce paramètre, du compartiment sol, sur les signaux  $\gamma$  mesurés. La période d'acquisition de 10 minutes assure une compréhension à la fois de l'évolution diurne de l'humidité du sol et de la réponse rapide à un événement pluvieux. D'après les observations précédentes, les variations de l'humidité du sol d'une heure à l'autre sont relativement restreintes. Ce pas horaire correspond au temps de vol moyen d'un survol opéré en spectrométrie  $\gamma$  aéroporté.

En l'absence d'instrument capable de mesurer l'humidité du sol *in situ*, d'autres outils de suivi de ce paramètre sont disponibles à une échelle spatiale plus large tels que la télédétection satellitaire. Une étude comparative des données d'humidité du sol observées par satellite avec celles *in situ* a été menée pour valider leur utilisation.

### 6.4.1 Comparer les données d'humidité du sol observées *in situ* et issues de la télédétection satellitaire

Au vu des fortes variations d'humidité du sol qui peuvent être rencontrées au cours d'une journée, il est important de vérifier une bonne correspondance des valeurs d'humidité du sol *in situ* concaténées sur une base journalière avec celles issues de la télédétection satellitaire.

Les données d'humidité du sol *in situ* et celles issues de la télédétection satellitaire intègrent la même profondeur de sol à savoir la couche superficielle entre la surface du sol et une profondeur de 5 cm. Le principal point de différence entre ces deux mesures est l'emprise spatiale sur laquelle l'humidité du sol est monitorée. Il faut donc comparer les données d'humidité d'une échelle métrique (sondes TDR) à une échelle kilométrique pour les mesures satellites (dalle de résolution 9 km<sup>2</sup>). La mesure de l'humidité par télédétection satellitaire est ainsi moyennée sur cette surface au sol, incluant de nombreux types de sol.

Ce travail d'analyse, pour assurer une validité et l'emploi des données satellites, a été réalisé sur la période couvrant le **mois d'Avril 2019 au mois de Juin 2020** représentant un total de 428 mesures journalières à comparer. De nombreuses études ont adoptées différentes approches pour procéder à la comparaison entre les mesures d'humidité du sol par satellite et celles observées *in situ* [Entekhabi et al., 2010, Crow et al., 2012, Wu et al., 2016]. Dans cette étude, quatre paramètres statistiques ont été utilisés pour vérifier la précision de mesure d'humidité du sol par les produits L4 du satellite SMAP, incluant la différence moyenne (DM), la déviation à l'écart-type (RMSD), l'erreur quadratique moyenne sans biais (ubRMSE) et le coefficient de corrélation.

La différence moyenne représente le biais, à savoir la différence systématique entre les mesures de l'humidité du sol par télédétection satellitaire et celles observées *in situ*. Elle peut être calculée en utilisant la relation suivante :

$$DM = \frac{\sum_{i=1}^N (h_s(i) - h_m(i))}{N} \quad (6.23)$$

où  $h_s$  définit la valeur d'humidité du sol mesurée par satellite exprimée en  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $h_m$  caractérise la valeur d'humidité du sol *in situ* exprimée en  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $N$  représente le nombre total de valeurs et  $i$  une valeur spécifique sur la base temporelle choisie. La déviation à l'écart-type détermine la différence absolue ou la précision de mesure entre les données satellitaires et celles *in situ*. Ce paramètre statistique est déterminé par la formule suivante :

$$RMSD = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (h_s(i) - h_m(i))^2}{N}} \quad (6.24)$$

où  $h_s$  définit la valeur d'humidité du sol mesurée par satellite exprimée en  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $h_m$  caractérise la valeur d'humidité du sol *in situ* exprimée en  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ,  $N$  représente le nombre total de valeurs et  $i$  une valeur spécifique sur la base temporelle choisie.

Afin d'obtenir une estimation plus fiable de la RMSD, le biais peut être facilement éliminé en définissant l'erreur quadratique moyenne non biaisée, ubRMSE, qui caractérise l'erreur aléatoire [Entekhabi et al., 2010]

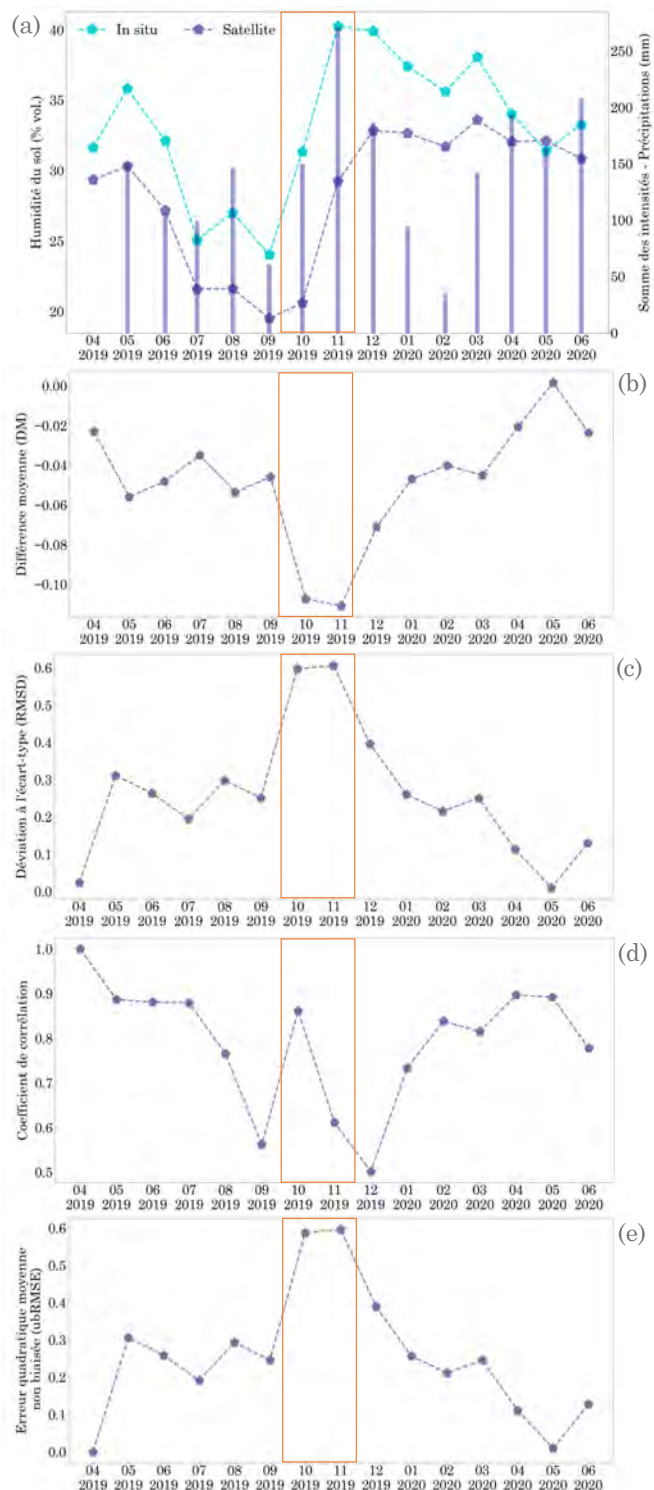
$$ubRMSE = \sqrt{(RMSD)^2 - (DM)^2} \quad (6.25)$$

Ces quatre paramètres statistiques permettent d'évaluer la qualité des produits L4 du satellite SMAP en terme d'humidité du sol par comparaison avec les valeurs mesurées *in situ*. Les données journalières et mensuelles moyennes de l'humidité du sol *in situ* et satellite acquises et traitées sur la **période d'Avril 2019 à Juin 2020** ont été utilisées pour analyser les variations temporelles des produits d'humidité du sol de télédétection satellitaire passive par micro-onde.

Le premier graphique de la figure 6.17 représente l'évolution des moyennes mensuelles des valeurs d'humidité du sol mesurées *in situ* (turquoise) et celles acquises par télédétection satellitaire (bleu gris). Le cumul de précipitations, exprimé en mm, sur une base mensuelle permet d'observer l'influence de ce paramètre sur les deux moyennes mensuelles d'humidité du sol. Les moyennes mensuelles des deux courbes

observent le même profil tout au long de la période d'étude. Un décalage entre les valeurs d'humidité du sol *in situ* et par satellite est toutefois bien marqué avec les valeurs moyennes mensuelles *in situ* supérieures aux valeurs satellites, sur 14 mois de la chronique temporelle. Ce décalage varie en proportion entre 1 et 10 % sur la période comparative. Les plus faibles variations sont observées principalement pour les mois du **printemps 2019 et 2020**.

Figure 6.17 – (a) Chronique mensuelle de l'humidité du sol mesurée *in situ* et par télédétection satellitaire (% vol.) sur la période Avril 2019 - Juin 2020. Pour les précipitations, le cumul mensuel exprimé en mm est proposée. Évolution temporelle, sur une base mensuelle, de la différence moyenne exprimée en  $m^3.m^{-3}$  (b), de la déviation à l'écart-type (RMSD) (c), des coefficients de corrélation entre les mesures d'humidité du sol *in situ* et par satellite (d) et de l'erreur quadratique moyenne non biaisée (ubRMSE) (e) sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Le rectangle orange caractérise les mois de la chronique où les écarts entre valeurs d'humidité du sol *in situ* et par satellite sont les plus importants.



Les plus grands écarts sont associés à la **période automnale de 2019** et concentrées sur les **mois d'Octobre et de Novembre**. La somme mensuelle des intensités de précipitation est multipliée par presque 300 % entre les mois de **Septembre 2019 et de Novembre 2019**. Au cours du mois de **Septembre 2019**, en fin d'été, les valeurs d'humidité du sol *in situ* et par télédétection satellitaire atteignent leur minimum. La réponse du sol sec suite à des nombreuses précipitations sur les mois d'automne est rapidement mise en évidence sur les données *in situ* à l'échelle journalière puis mensuelle. Cette réponse est moins marquée pour les observations par satellite qui prend en compte l'ensemble des sols et aménagements anthropiques sur une couverture spatiale de 9 km<sup>2</sup>.

L'évolution des quatre paramètres statistiques calculés entre les données d'humidité du sol par télédétection satellitaire et celles *in situ* sur une base journalière puis moyennée mensuellement est proposée sur la figure 6.17. Sur la période **Avril 2019 - Juin 2020**, la différence moyenne (Figure 6.17 a) exprimée en m<sup>3</sup>.m<sup>-3</sup> est toujours négative à l'exception du mois de **Mai 2020** pour une amplitude de variation comprise entre -0,02 et -0,12 m<sup>3</sup>.m<sup>-3</sup>. La variation annuelle observée sur cette base mensuelle de la déviation à l'écart-type (Figure 6.17 c) et de l'erreur quadratique moyenne non biaisée (Figure 6.17 e) est similaire pour l'ensemble de la période. Les mois d'**Octobre et de Novembre 2019** sont marqués par les valeurs de RMSD et ubRMSE les plus importantes, synonymes d'une différence notable entre les données d'humidité du sol mesurées *in situ* et celles issues de la télédétection satellitaire. Les résultats associés à ces deux profils sont du même ordre de grandeur et garantissent une absence de biais entre les deux variables.

L'évolution des coefficients de corrélation sur cette période (Figure 6.17 d) présente des différences avec les observations faites sur les variations temporelles des autres paramètres statistiques. L'amplitude de variation de ces coefficients de corrélation est de 0,50 et varie entre 0,50 pour le mois de **Décembre 2019** et 1,00 pour le mois d'**Avril 2019**. Les plus fortes corrélations positives, supérieures à 0,80, sont observées au cours des mois du **printemps 2019 et 2020** (Mars, Avril, Mai, Juin) mais également au niveau du mois d'Octobre 2019. Cette dernière observation montre que malgré cette différence moyenne de 10 % entre les valeurs d'humidité du sol mesurées *in situ* et celles acquises par télédétection satellitaire, les produits L4 de SMAP parviennent à retrouver l'évolution temporelle du signal *in situ* fortement influencée par des précipitations plus nombreuses qu'au cours du mois précédent.

Les plus faibles corrélations sont associées au mois de **Septembre** (0,57) et **Décembre 2019** (0,50). Au cours du mois de Septembre, les précipitations sont peu nombreuses sur la région comme le prouve la somme mensuelles des intensités mesurées. De plus, le sol est asséché en cette fin d'été comme le certifie les valeurs minimales d'humidité atteintes à cette date pour les deux types de mesure. La réponse du sol sec, où la végétation est peu dense, à des événements de précipitations pourra être identifiée sur les mesures *in situ* où le temps d'acquisition est de 10 minutes mais pas à l'échelle du satellite et sa mesure journalière. En ce qui concerne le mois de **Décembre 2019**, la chronique temporelle globale des précipitations présentée sur la figure 6.2 (e) montre que les événements de pluie sont très nombreux sur ce mois mais avec des intensités modérées caractérisée par une moyenne de 0,25



mm.h<sup>-1</sup> et d'une durée moyenne de 3 minutes. Il est tout à fait envisageable que les produits L4-SMAP n'arrivent pas à détecter ces variations ponctuelles.

Les coefficients de corrélation calculés pour le site P2OA-CRA dépassent la valeur de 0,80 ce qui est un résultat très satisfaisant. D'après les très nombreux travaux réalisés sur la validation des produits L4 d'humidité du sol du satellite SMAP dans de nombreuses régions du globe terrestre [Entekhabi et al., 2010, Crow et al., 2012, Wu et al., 2016, Yee et al., 2016, Colliander et al., 2017, Zhang et al., 2017], les résultats de la comparaison avec les données d'humidité du sol mesurées *in situ* par sondes TDR sur le site P2OA-CRA de Lannemezan sont tout à fait représentatifs des conclusions des études citées.

La représentation graphique entre les humidités du sol mesurées par satellite (% vol.) en fonction de celles *in situ* (% vol.) est proposé sur la figure 6.18 (a).

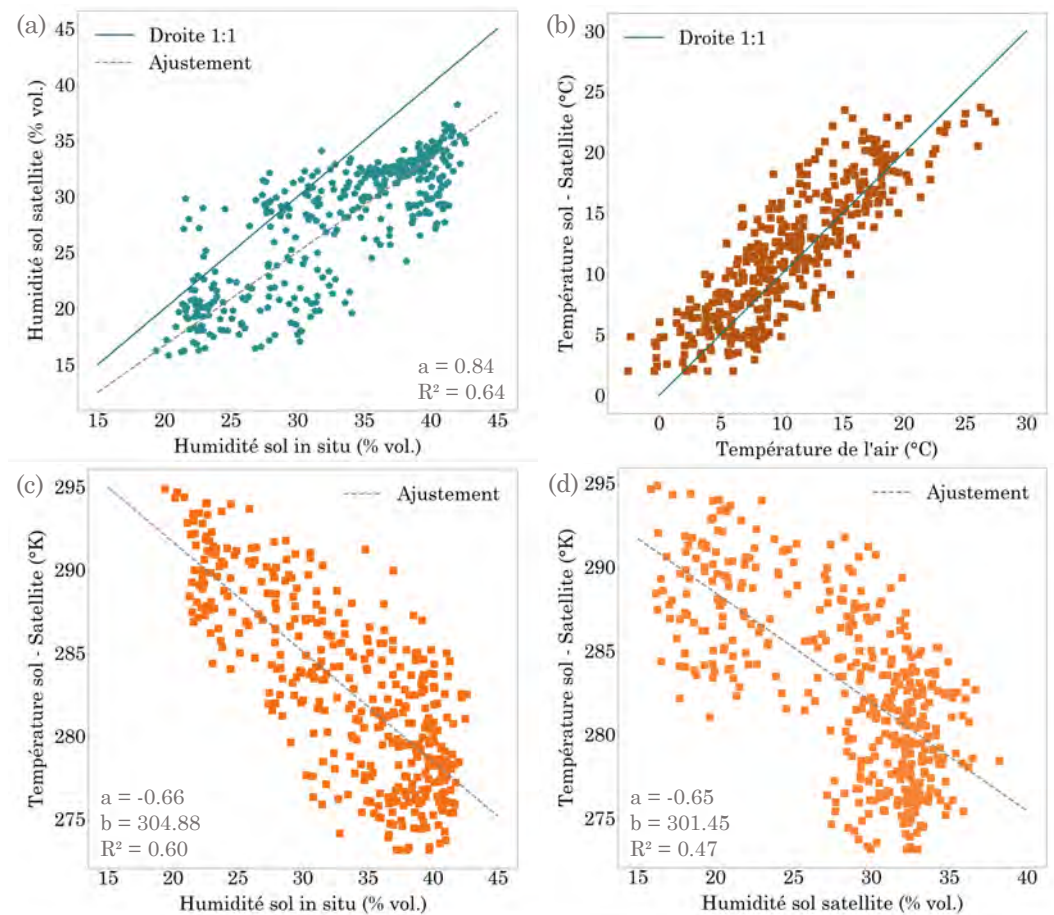


Figure 6.18 – (a) Humidité du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol *in situ*. (b) Température du sol mesurée par satellite en fonction de la température de l'air mesurée sur la tour instrumentée à une hauteur de 15 m. (c) Température du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol *in situ*. (d) Température du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol mesurée par satellite. Les graphiques ont été réalisés à partir des données cumulées journalières pour respecter la temporalité d'acquisition des données satellites. Des fonctions d'ajustement linéaire sont représentées par des droites en pointillés.

La gamme de variation de l'humidité du sol *in situ* s'étend entre 18 et 43 % volumique alors que celle de l'humidité du sol par télédétection satellitaire est plus restreinte, entre 16 et 37 % volumique (Figure 6.18 a). La droite d'ajustement entre ces deux types de mesures présente une pente inférieure à 1 de l'ordre de 0,84 et une ordonnée à l'origine nulle. Le coefficient de détermination  $R^2$  de 0,64 montre une relation positive et relativement forte entre les mesures d'humidité.

Le coefficient de corrélation de 0,81 entre ces deux variables reprend les observations faites sur l'étude comparative statistique pour ce paramètre. Les coefficients de corrélation entre les précipitations et les mesures d'humidité du sol *in situ*, 0,29, et par satellite, 0,21, permettent de déterminer une réponse relative des mesures d'humidité journalière aux événements extérieurs ponctuels comme les précipitations. Les points de mesure les plus dispersés autour de cette droite de pente 0,84 sont associés à des jours très pluvieux en fin de journée. Les mesures d'humidité du sol s'opérant à une heure fixe de 13h30, la valeur mesurée et enregistrée ne reflètera donc pas l'influence qu'ont pu avoir ces événements de pluie sur le signal d'humidité du sol. Cette hypothèse peut expliquer cet écart entre les deux jeux de données.

Une autre hypothèse pour expliquer cet écart entre ces deux variables est la prise en compte de l'influence de la température du sol. En effet, plus le sol se réchauffe par l'intermédiaire des radiations solaires et plus l'évaporation du sol en commençant par les horizons de surface est importante. Cela a pour conséquence de diminuer la teneur en eau volumique dans le sol. Les données de température du sol utilisées dans cette thèse sont uniquement issues de la télédétection satellitaire par l'intermédiaire des produits L4 de SMAP et concernent l'horizon de sol compris entre 0 et 20 cm. Ces températures de sol sont reconstruites à partir de modèles mathématiques faisant intervenir la température de brillance et ne font pas l'objet de mesures directes, y compris *in situ*. Elles sont déterminées sur une base temporelle journalière comme pour les valeurs d'humidité du sol par mesure satellite.

Les figures 6.18 (c) et (d) présentent les valeurs journalières de la température de sol exprimées en °K en fonction de celles de l'humidité du sol *in situ* (% vol.) et de celles déterminées par télédétection satellitaire (% vol.). Dans les deux cas, une corrélation négative se dessine avec des valeurs de pente similaires, -0,66 pour l'humidité *in situ* et -0,65 pour l'humidité par satellite. L'ordonnée à l'origine est également du même ordre de grandeur, 304,88°K pour l'humidité *in situ* et 301,45°K pour l'humidité par satellite. Le coefficient de détermination,  $R^2$ , est supérieur (0,60 pour 0,47) pour la relation entre température du sol et humidité du sol *in situ*. Le coefficient de corrélation total est également plus important pour cette relation (-0,77) que pour celle entre température du sol et humidité par télédétection satellitaire (-0,67). La gamme de variation des températures de sol est de 273 à 295°K. La dispersion verticale des points autour de cet ajustement linéaire la plus importante (14°K) est retrouvée pour une valeur d'humidité du sol *in situ* de 37 % mais pour une valeur d'humidité du sol par satellite de 33 %. De nouveau, cet écart de 4 % déjà observé sur le graphique présentant la relation linéaire entre les deux humidités du sol (a) est retrouvé pour ces deux relations (Figure 6.18 c) et (Figure 6.18 d). La température du sol ne semble donc pas être à l'origine de ce décalage observé et quantifié entre les deux humidités.

### 6.4.2 La relation entre les taux de comptage des radionucléides suivis sur le site P2OA-CRA et l'humidité du sol enregistrée par télédétection satellitaire

En utilisant la même équation simplifiée 6.11 à trois paramètres (a, b et c) que celle utilisée pour les mesures d'humidité du sol *in situ*, il est possible de réaliser un ajustement par la méthode des moindres carrés des taux de comptage mesurés en fonction de l'humidité du sol par télédétection satellitaire sur une base journalière. La masse volumique apparente de l'eau retenue,  $\rho_e$ , est la valeur standard de 1000 kg.m<sup>-3</sup>. Les coefficients d'atténuation massique pour le sol et l'eau associés à chaque radionucléide sont ceux du NIST regroupés dans le tableau 6.1.

L'évolution du taux de comptage, exprimé en c.s<sup>-1</sup>, pour le <sup>40</sup>K (a), le <sup>238</sup>U (b), le <sup>232</sup>Th et le <sup>137</sup>Cs en fonction de l'humidité du sol monitorée par télédétection satellitaire sur une base journalière est montrée sur la figure 6.19. Les taux de comptage sans les précipitations sont utilisés et moyennés sur cette même base temporelle de la journée. Chaque graphique présente de nouveau la courbe théorique ajustée à partir de l'équation 6.11 ainsi que l'espace de variation lié à l'ensemble des incertitudes prises en compte matérialisé par les deux courbes en pointillés. L'ensemble des paramètres et les incertitudes à 1 $\sigma$  est affiché sur chaque graphique tout comme le coefficient de détermination R<sup>2</sup>. La courbe d'ajustement théorique simulée sur toute la gamme de valeurs du taux de comptage mesuré et de celle de l'humidité du sol par télédétection satellitaire montre ici aussi un très bon accord avec les données acquises.

De nouveau, le coefficient de détermination est très marqué pour le <sup>40</sup>K (0,76) et le <sup>232</sup>Th (0,78) et caractérise une relation forte entre les données mesurées et simulées. Les coefficients de corrélation respectifs de 0,88 et 0,89 finissent de valider la courbe d'ajustement théorique simulée pour ces deux taux de comptage en fonction de l'humidité du sol. Tout comme pour les mesures d'humidité du sol *in situ*, les courbes d'ajustement pour la relation taux de comptage et humidité du sol pour le <sup>238</sup>U et le <sup>137</sup>Cs sont bien visibles avec des indicateurs de confiance comme les coefficients de détermination qui ont des valeurs de 0,20 et 0,44. Ils marquent une plus grande dispersion des points autour de la courbe simulée et est encore plus accentuée pour le <sup>238</sup>U. En effet, l'écart maximal observé est une nouvelle fois de 50 % entre le taux de comptage et l'ajustement théorique du <sup>238</sup>U et de 25 % pour le <sup>137</sup>Cs. Par comparaison, il est d'environ 10 % pour le <sup>40</sup>K et le <sup>232</sup>Th.

Le <sup>137</sup>Cs émet à basse énergie, 662 keV. Cela signifie que son libre parcours moyen dans le sol est limité à la couche superficielle entre 0 et 10 cm. C'est au niveau de cette couche que les événements ponctuels comme les précipitations vont avoir le plus d'impact. Dans le cadre d'un suivi de l'humidité du sol *in situ*, ces événements, même s'ils sont moyennés sur une base horaire, sont détectables et l'influence qu'ils ont sur l'humidité du sol est rapidement prise en compte. À l'inverse, ces événements ponctuels sont difficilement visibles sur la base d'une mesure d'humidité journalière comme c'est le cas par télédétection satellitaire. De ce fait, il semble logique que la dispersion des taux de comptage soit plus importante dans le cadre de l'utilisation d'humidité du sol par satellite. En effet, les deux jeux de données utilisées d'humidité du sol étudiés, *in situ* et télédétection satellitaire, constituent le seul paramètre variable sur la comparaison *in situ* et satellite.

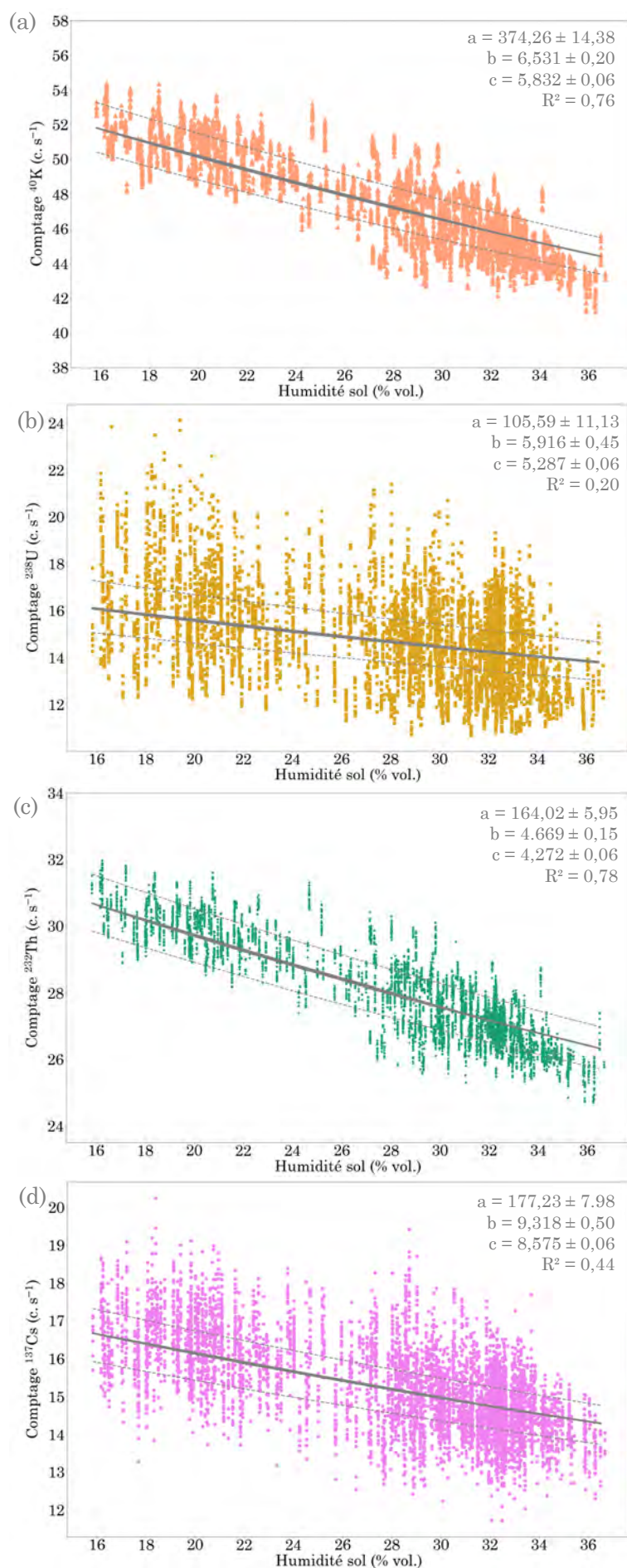


Figure 6.19 – Taux de comptage exprimé en  $c.s^{-1}$  pour le  $^{40}K$  (a),  $^{238}U$  (b), le  $^{232}Th$  (c), et le  $^{137}Cs$  (d) en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.) issue de la télé-détection satellitaire sur une base de données journalières. Sur chaque graphique, la ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'intervalle de confiance de l'ajustement théorique. Les paramètres et les incertitudes associés à  $1\sigma$  ainsi que les coefficients de détermination  $R^2$  pour chaque courbe d'ajustement sont présentés.



Le tableau 6.12 regroupe les coefficients de détermination,  $R^2$ , et les coefficients de corrélation établis pour la relation observée entre le taux de comptage d'un radionucléide avec l'humidité du sol et sa courbe d'ajustement théorique.

Élément	Énergie (keV)	$R^2_{insitu}$	$R^2_{sat}$	$\Delta R^2$ %	$r_{insitu}$	$r_{sat}$	$\Delta r$ %
$^{137}\text{Cs}$	662	0,59	0,44	-25,49	0,74	0,67	-9,46
$^{40}\text{K}$	1461	0,88	0,76	-9,09	0,95	0,88	-7,37
$^{238}\text{U}$	1764	0,24	0,20	-16,67	0,54	0,49	-9,26
$^{232}\text{Th}$	2615	0,86	0,78	-9,30	0,94	0,89	- 5,31

Tableau 6.12 – Coefficients de détermination  $R^2$  et coefficients de corrélation  $r$  exprimés pour la relation établie par mesure entre le taux de comptage d'un radionucléide et l'humidité du sol et la courbe d'ajustement théorique. Les humidités du sol *in situ* et par télédétection satellitaire ont été utilisées et sont les seuls paramètres variables pouvant expliquer les variations observées.

Les coefficients de détermination et de corrélation sont toujours supérieurs pour les relations faisant intervenir les données d'humidité du sol *in situ* avec des résultats remarquables pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Les différences entre les coefficients de détermination et celles entre les coefficients de corrélation sont en effet toutes négatives. Elles sont importantes dans les deux cas pour le  $^{137}\text{Cs}$  et le  $^{238}\text{U}$  avec des valeurs notables de -25,49 et -16,67 % pour la différence de coefficient de détermination.

En s'intéressant désormais à la masse volumique apparente du sol calculée lors de l'ajustement de la courbe théorique, le tableau 6.13 regroupe les valeurs extrapolées des paramètres  $b$  issus des ajustements avec l'humidité *in situ* et celle par satellite. La valeur mesurée sur le site par méthode destructive est de  $1204 \pm 52,5 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Élément	Énergie (keV)	$\rho_{s,sec}$ <i>in situ</i>	$\rho_{s,sec}$ satellite	$N_{sec}$ <i>in situ</i>	$N_{sec}$ satellite
$^{137}\text{Cs}$	662	$1176 \pm 42$	$1188 \pm 65$	$20,4 \pm 1,0$	$19,0 \pm 0,9$
$^{40}\text{K}$	1461	$1189 \pm 46$	$1243 \pm 38$	$62,5 \pm 2,5$	$57,3 \pm 2,2$
$^{238}\text{U}$	1764	$1182 \pm 63$	$1240 \pm 94$	$19,5 \pm 2,3$	$17,9 \pm 1,9$
$^{232}\text{Th}$	2615	$1224 \pm 26$	$1199 \pm 39$	$35,9 \pm 1,5$	$35,1 \pm 1,3$

Tableau 6.13 – Masse volumique apparente du sol sec calculée à partir des paramètres  $b$  des ajustements de courbes théoriques réalisées avec les mesures d'humidité du sol *in situ* et par télédétection satellitaire, exprimée en  $\text{kg.m}^{-3}$ . Le taux de comptage de chaque radionucléide associé à un sol sec est également déterminé pour ces deux ajustements théoriques, *in situ* et télédétection satellitaire, exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ .

Pour l'ensemble des radionucléides, les masses volumiques apparentes calculées sont du même ordre de grandeur, aux alentours de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$  pour les deux paramètres  $b$  qui ont été estimés, l'un sur les données d'humidité *in situ* et l'autre sur les données d'humidité par satellite. Les écarts relatifs entre ces densités apparentes sont inférieurs à 5 %. Les incertitudes sont légèrement plus importantes pour la densité apparente calculée à partir du paramètre  $b$  ajusté sur les données d'humidité par télédétection satellitaire. L'explication sur ces plus grandes incertitudes est une fois de plus liée à la temporalité d'acquisition des produits L4 de SMAP.

De plus, les taux de comptage pour un sol sec ont été déterminés à partir de l'équation 6.13 pour les deux courbes d'ajustement théorique dépendant de l'humidité du sol *in situ* et par télédétection satellitaire. Ils sont regroupés dans le tableau 6.13 sous l'appellation  $N_{sec}$ . Les écarts, qui peuvent être observés entre les taux de comptage à humidité nulle à partir de ces deux courbes, sont relativement minimes. La plus grande différence observée est d'environ 9 % pour le  $^{40}\text{K}$ , la plus petite pour le  $^{232}\text{Th}$  est estimée à environ 2 %. Les données issues de la télédétection satellitaire sont presque aussi robustes que les données *in situ* pour prendre en compte l'influence de l'humidité du sol par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

La figure 6.20 présente l'évolution temporelle des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0) et Sat-Comptage (0)) application du protocole, avec humidité *in situ* et par satellite.

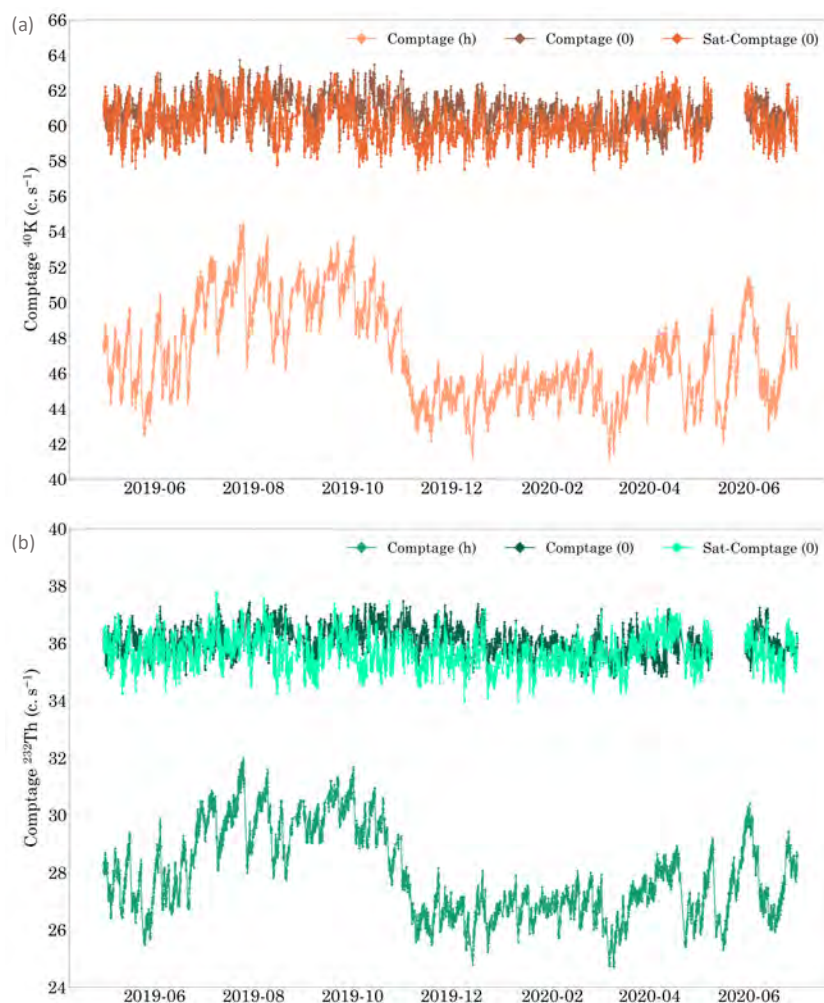


Figure 6.20 – Évolution temporelle des comptages du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0), *in situ* et Sat-Comptage (0), satellite) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique.



Sur la base de ces observations entre ajustement de la courbe théorique et données mesurées pour le taux de comptage et l'humidité du sol, les données d'humidité du sol par télédétection satellitaire semblent donc tout à fait exploitables comme produit de substitution pour déterminer la valeur d'humidité du sol de la couche superficielle dans le cadre d'une campagne de mesure aéroportée. Elles ne permettraient pas un suivi de l'évolution diurne de l'humidité du sol car une seule valeur serait associée à deux survols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, ce qui limiterait l'étude de l'influence de l'humidité du sol sur le taux de comptage. Par contre, à l'échelle de variations saisonnières, l'utilisation de ces produits satellites est tout à fait indiquée pour comparer les évolutions du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol associée.

Que ce soit pour les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  ou pour celui du  $^{232}\text{Th}$ , la correction par prise en compte de la teneur en eau volumique, mesurée par satellite, permet de s'affranchir des variations temporelles observées sur les taux de comptage non corrigés. En effet, la gamme de variation des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  ou du  $^{232}\text{Th}$  non corrigés est d'environ 33% sur cette chronique. La correction permet de réduire cette étendue à moins de 12% sur les données traitées pour ces deux radionucléides. Cet écart était d'environ 8% pour les comptages associés aux humidités du sol *in situ*. La plus grande dispersion observée avec les mesures d'humidité par satellite est expliquée par la temporalité d'acquisition sur une base journalière.

**L'application de cette procédure de correction est donc également possible en utilisant les mesures d'humidité du sol par télédétection satellitaire.** Le rôle de substitution de ce type de données est tout à fait pertinent dans le cadre d'études de surveillance environnementale.

## 6.5 Un profil de la teneur en eau dans le sol à partir de la spectrométrie $\gamma$

La correction des taux de comptage proposée au cours de cette thèse repose sur des teneurs en eau volumique mesurées sur la couche superficielle du sol (0 - 5 cm). L'hypothèse d'une distribution homogène de la teneur en eau dans les 35 premiers centimètres du sol, profondeur sondée par le spectromètre à une altitude de 50 mètres, est considérée.

Pour permettre une identification de la distribution verticale de la teneur en eau du sol sur cette couche 0 - 30 cm et ainsi adapter la valeur de la teneur en eau employée dans le protocole de correction des taux de comptage à toute la profondeur de sol sondée par le détecteur, les propriétés physiques des rayonnements  $\gamma$  sont considérées.

### Plusieurs distributions verticales de la teneur en eau possible

En fonction du profil de la teneur en eau sur les 30 premiers centimètres du sol, la proportion de rayonnements  $\gamma$  émis par chaque strate du sol peut être hétérogène malgré une concentration homogène du radionucléide considéré dans cette couche

de sol (0 - 35 cm). Ainsi, trois types de profils de teneur en eau peuvent être évoqués de manière assez simplifiée dans le cadre d'un sol de concentration homogène sur, au moins, l'épaisseur de cette couche 0 - 35 cm (Figure 6.21).

Le premier profil correspond à une teneur en eau volumique uniforme sur toute la couche de sol sondée, 0 - 35 cm (Figure 6.21 a).

Le deuxième profil montre la réponse du sol à un événement de précipitation, par exemple, et qui influe une augmentation de la teneur en eau sur les premiers centimètres du sol. Cela ne se répercute pas encore en profondeur dans le sol du fait de l'inertie associée à l'infiltration de l'eau (Figure 6.21 b). La réponse du sol en profondeur n'est pas immédiate à la différence de l'horizon de surface. En effet, il y a plus de possibilité que l'eau ruisselle à la surface du sol qu'elle ne s'infiltré dans la couche de surface du sol dont l'espace poral est déjà bien rempli, voire saturé, par une proportion d'eau importante.

Le troisième cas est inverse à celui développé dans le deuxième profil (Figure 6.21 c) et concerne toujours une distribution verticale de teneur en eau hétérogène. Dans ce cas, la couche de surface du sol présente une teneur en eau inférieure à celle observée en profondeur et répond probablement à un assèchement progressif du sol.

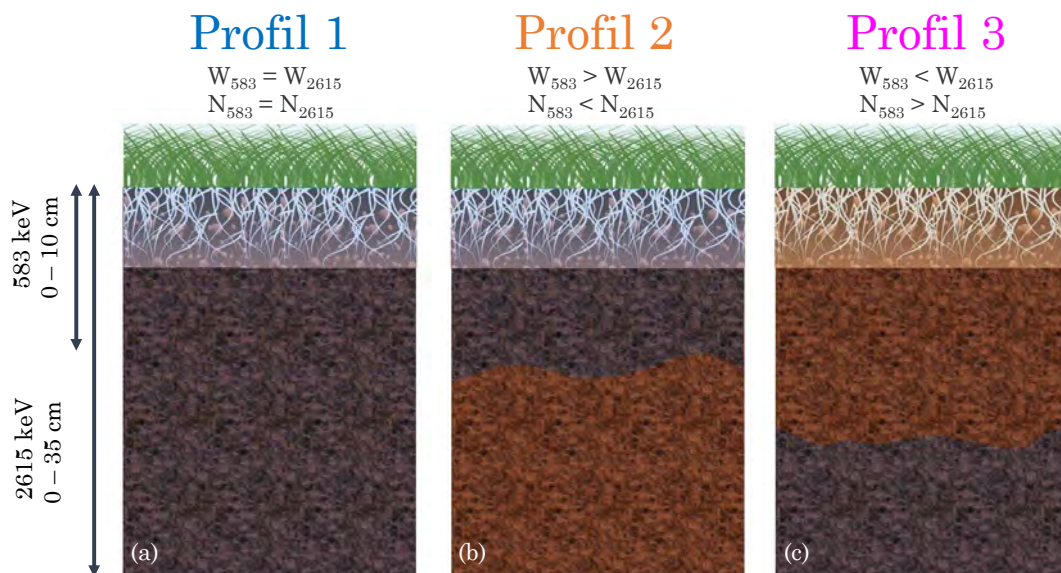


Figure 6.21 – Présentation de la distribution de la teneur en eau ( $W$ ) en fonction de la profondeur. (a) Profil de sol homogène pour la teneur en eau. Elle est uniforme sur toute la profondeur de sol investiguée par la spectrométrie  $\gamma$ . (b) La couche de surface a une teneur en eau supérieure à celle de l'horizon sous-jacent. (c) La couche de surface présente une teneur en eau inférieure à celle de l'horizon sous-jacent. La réponse attendue sur les taux de comptage ( $N$ ) est également indiquée.

En analysant les chroniques temporelles de la teneur en eau dans la couche de surface (0 - 5 cm) et de la couche profonde (0 - 40 cm) sur le site P2OA-CRA, ces trois profils devraient être retrouvés, ce qui va permettre de **tester la susceptibilité de la spectrométrie  $\gamma$  à ces différentes distributions et de proposer une technique de mesure du profil vertical d'humidité.**

La chronique temporelle de la teneur en eau volumique dans le sol au niveau de la couche de surface entre 0 et 5 cm, associée à celles des précipitations est présentée

sur la figure 6.22 pour la période **Avril 2019 - Juin 2020**. La chronique temporelle de la teneur en eau volumique dans le sol pour la couche profonde comprise entre 0 et 40 cm n'a pu être établie que pour une période plus restreinte comprise entre **Avril 2019 et Février 2020** sur une base horaire.

La chronique temporelle de la teneur en eau de la couche de surface montre que l'humidité du sol en surface est dans 80 % des cas inférieures à celle observée en profondeur. C'est lorsque la proportion en eau dans l'espace poral est déjà importante que la teneur en eau de la couche de surface peut être supérieure à celle de la couche profonde. C'est donc sur la période hivernale, entre **Novembre 2019 et Février 2020**, que ce type de profil est rencontré pour un sol relativement homogène en terme de structure, latéralement et en profondeur.

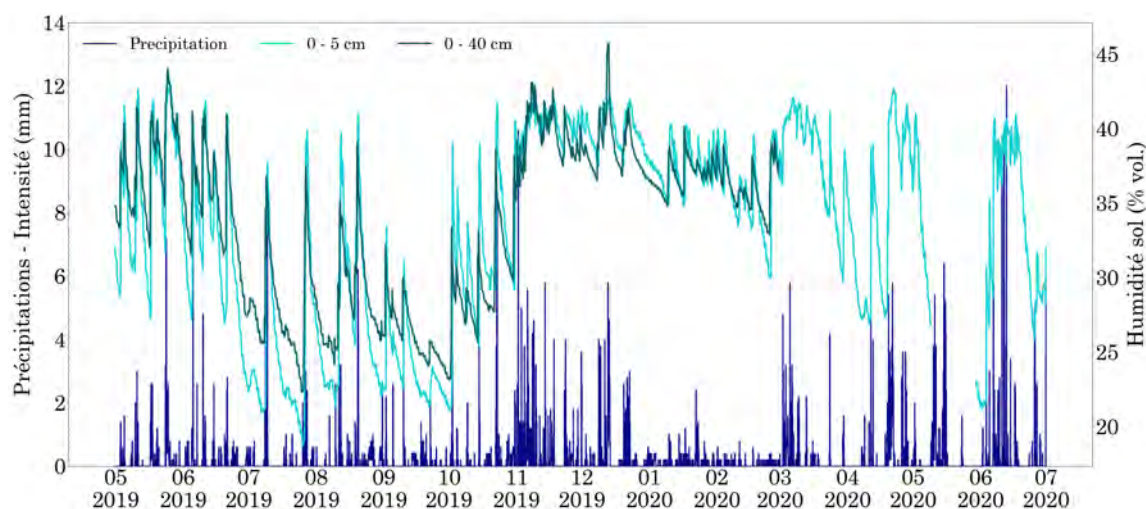


Figure 6.22 – Chronique temporelle des précipitations associée aux teneurs en eau volumique mesurée dans la couche de surface du sol (0 - 5 cm) sur une base horaire pour la période comprise entre Avril 2019 et Juin 2020. La chronique temporelle de l'humidité du sol (% vol.) pour la couche profonde de sol, entre 0 et 40 cm, est également présentée sur une base de données horaire pour une période plus réduite, entre Avril 2019 et Février 2020.

### Une méthodologie à développer

Les rayonnements  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  à 1461 keV et du  $^{232}\text{Th}$  à 2615 keV permettent de sonder des profondeurs de sol différentes : 90 % du signal collecté provient d'une profondeur de 20 cm pour le  $^{40}\text{K}$  et de 30 cm environ pour le  $^{232}\text{Th}$ , pour une masse volumique apparente de sol uniforme de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ . Comme le coefficient d'atténuation massique dans le sol est décroissant avec l'énergie, le libre parcours moyen des particules est plus court pour le  $^{40}\text{K}$  à 1461 keV que pour le  $^{232}\text{Th}$  à 2615 keV. Les profondeurs sondées par le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  vont donc dépendre de la nature et de la composition chimique du sol, lié au coefficient d'atténuation, et de sa masse volumique apparente. La composition chimique des sols du site P2OA-CRA peut être réduit à une teneur en  $\text{SiO}_2$  de 100 % sans incidence sur les coefficients d'atténuation massique. En y associant la valeur de masse volumique apparente, la profondeur de sol sondée par les photons  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  à 1461 keV va se situer autour

de 20 cm alors que celle des rayonnements  $\gamma$  émis par le  $^{232}\text{Th}$  à 2615 keV va être proche des 25 premiers centimètres du sol.

Par l'intermédiaire de ces deux radionucléides et de l'énergie de leur photon  $\gamma$  caractéristique, il est possible de sonder la teneur en eau volumique à deux profondeurs de sol. La condition principale pour pouvoir comparer les résultats inhérents à ces deux radionucléides est de s'assurer d'une très bonne homogénéité de leur abondance massique respective dans un sol sur toute la profondeur investiguée, or le potassium et le thorium peuvent avoir des distributions différentes. Par ailleurs, l'apport anthropique d'engrais potassiques peut perturber le signal  $\gamma$  naturel. Il n'est donc pas recommandé d'utiliser les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  comme possible traceur de la teneur en eau du sol. De plus, le potassium n'émet des photons  $\gamma$  qu'à l'énergie caractéristique de 1461 keV.

Pour remédier à cette situation, une solution pratique a été développée au cours de cette thèse centrée sur l'utilisation de deux photons  $\gamma$  émis à des énergies caractéristiques différentes l'une de l'autre pour un même radionucléide. Une première condition requise est qu'au moins une des deux énergies de photons émis permette de contraindre uniquement la couche superficielle de sol, entre 0 et 10 cm. Une deuxième condition est d'utiliser un radionucléide présent naturellement dans les sols, dont le suivi est possible en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, et surtout qui n'est pas affecté par une activité anthropique.

L'uranium, avec ces très nombreux descendants qui émettent des rayonnements  $\gamma$  à des énergies qui couvrent toute la gamme spectrale, pourrait répondre aux attentes posées. Toutefois, plusieurs points bloquants le rejettent en l'état. Tout d'abord, la concentration en uranium apparent dans le sol n'est pas uniforme du fait de la migration possible du gaz radon-222 dans le sol. L'équilibre séculaire n'est plus assuré entre tous les horizons de sol. De plus, l'épandage d'engrais phosphatés, contenant naturellement de l'uranium, est à considérer. Une perturbation anthropique sur la couche de surface peut donc apparaître ce qui empêche l'utilisation de l'uranium comme traceur robuste de la teneur en eau.

Sur les trois radionucléides naturels suivis en spectrométrie  $\gamma$ . Contrairement au potassium et à l'uranium, le thorium n'est présent qu'en faible quantité dans les engrais phosphatés et ne sera pas à l'origine d'une perturbation du signal  $\gamma$  naturel [Shishkunova et al., 1989, Porntepkasemsan et al., 2018]. Le thorium, tout comme l'uranium, dispose de nombreux descendants au sein de sa chaîne de décroissance radioactive qui émettent des photons à des énergies caractéristiques couvrant la totalité de la gamme spectrale des émissions naturelles. Ainsi, le  $^{208}\text{Tl}$  qui est déjà utilisé pour son photopic à 2615 keV en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, présente une seconde raie avec une intensité d'émission de 85 % à 583 keV. Ces deux photopics du  $^{208}\text{Tl}$  sont séparés par plus de 2000 keV et les deux photopics couvrent les basses et les hautes énergies. Le coefficient d'atténuation massique à 583 keV dans un sol à 100 % de  $\text{SiO}_2$  est 2,1 fois supérieur à celui des photons qui émettent à 2615 keV. Ces deux raies du  $^{208}\text{Tl}$  vont donc avoir un libre parcours moyen dans le sol  $\text{SiO}_2$  suffisamment différents pour permettre de suivre l'humidité du sol dans la couche de surface, entre 0 et 10 cm, par l'intermédiaire du signal  $\gamma$  émis à 583 keV, et pour une couche d'une profondeur plus importante, entre 0 et 35 cm, pour le signal  $\gamma$  émis à 2615 keV.

### Extraction des aires de raie à 583 et 2615 keV par la méthode de la ligne de base

Si le photopic du  $^{232}\text{Th}$  à 2615 keV est suffisamment isolé dans la gamme spectrale des hautes énergies pour ne pas subir l'influence d'un photopic à une énergie très proche de la sienne, ce n'est pas le cas du signal  $\gamma$  émis à 583 keV. Du fait de la résolution en énergie dégradée, la raie d'énergie à 583 keV est partiellement superposée à celle du  $^{214}\text{Bi}$ , à 609 keV et potentiellement à celle du  $^{137}\text{Cs}$  à 662 keV. Pour extraire l'aire de raie à 583 keV, il faut donc s'assurer d'isoler correctement le photopic associé au  $^{232}\text{Th}$  au sein de ce triplet de raies d'énergies caractéristiques de trois radionucléides.

Pour réaliser cette opération qui conditionne la validité du suivi de la teneur en eau dans le sol à deux profondeurs distinctes, une routine de traitement numérique a été développée afin d'appliquer le même protocole à tous les spectres. Cette procédure permet de reconstituer, au sein de ce triplet de raies, la forme du photopic à 583 keV.

Le **centroïde** détecté automatiquement, la **résolution d'énergie** déterminée au cours de la calibration du détecteur NaI(Tl) avec une source pure de thorium à 583 keV (cf Chapitre 2) et la **forme initiale de la gaussienne** sont les paramètres utilisés pour reconstruire le photopic à 583 keV (Figure 6.23). Cette méthode est celle souvent développée dans les logiciels commerciaux spécialisés dans le traitement et l'analyse spectrale. Cette procédure a bien évidemment fait l'objet d'un développement numérique avec phase de test sur des spectres acquis en environnement contrôlé. La validation des résultats préliminaires, non présentés ici, a permis une utilisation généralisée de cette méthodologie de reconstruction spectrale sur

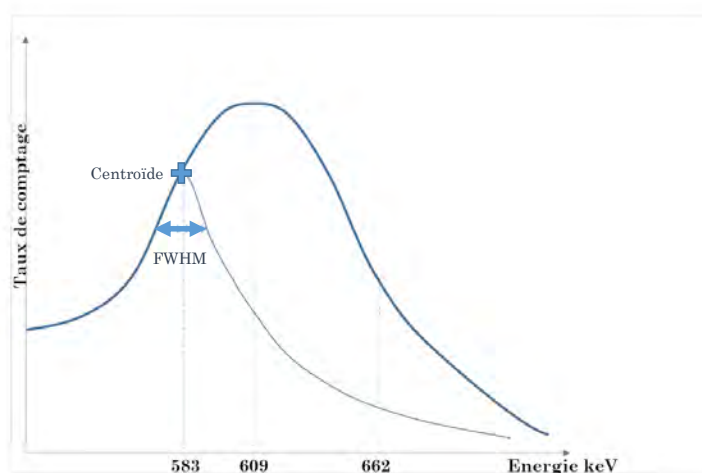


Figure 6.23 – Méthodologie de reconstruction spectrale du photopic associé à un photon  $\gamma$  émis par le  $^{232}\text{Th}$  ( $^{208}\text{Tl}$ ) à une énergie de 583 keV. Le centroïde correspond au maximum de taux de comptage centré sur l'énergie caractéristique. La FWHM détermine la largeur à mi-hauteur de la raie associée à la résolution d'énergie.

Le code de traitement faisant intervenir la méthode de la ligne de base pour extraire les aires de raie est utilisé (Cf. Chapitre 3) sur les photopics à 583 keV et



2615 keV. En sortie de ce code de traitement, les taux de comptage bruts exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$  sont déterminés pour le photopic à 583 keV et aussi à 2615 keV. Sur ces aires de raie brutes sont ensuite soustraites l'influence du bruit de fond instrumental à chaque énergie. Dans ce cas précis, les bruits de fond instrumentaux extraits le sont avec la méthode de la ligne de base toujours dans un but d'harmonisation des procédures appliquées aux jeux de données.

### Un profil de la teneur en eau du sol par spectrométrie $\gamma$ aéroportée

Pour rappel, les photons  $\gamma$  émis à 2615 keV peuvent permettre de sonder environ 35 cm de sol. De ce fait, il est nécessaire d'étudier les variations de la teneur en eau volumique pour la couche de sol comprise entre 0 et 40 cm de profondeur. La couche de surface du sol entre 0 et 5 cm, utilisée dans les études précédentes, est quant à elle désormais associée à la raie d'énergie 583 keV.

Désormais en possession des taux de comptage, nettoyés de l'influence de paramètres extérieurs et exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$ , calculés pour les photopics à 583 et 2615 keV, la relation avec la teneur en eau volumique en surface et en profondeur peut être envisagée. En effet, même si l'étude des chroniques temporelles a permis de montrer l'existence des trois types de profil de teneur en eau dans le sol sur le site P2OA-CRA, il est important d'observer la réponse des taux de comptage du photopic à 583 keV et ceux mesurés à 2615 keV par rapport aux valeurs de teneurs en eau volumique respectives (Figure 6.24).

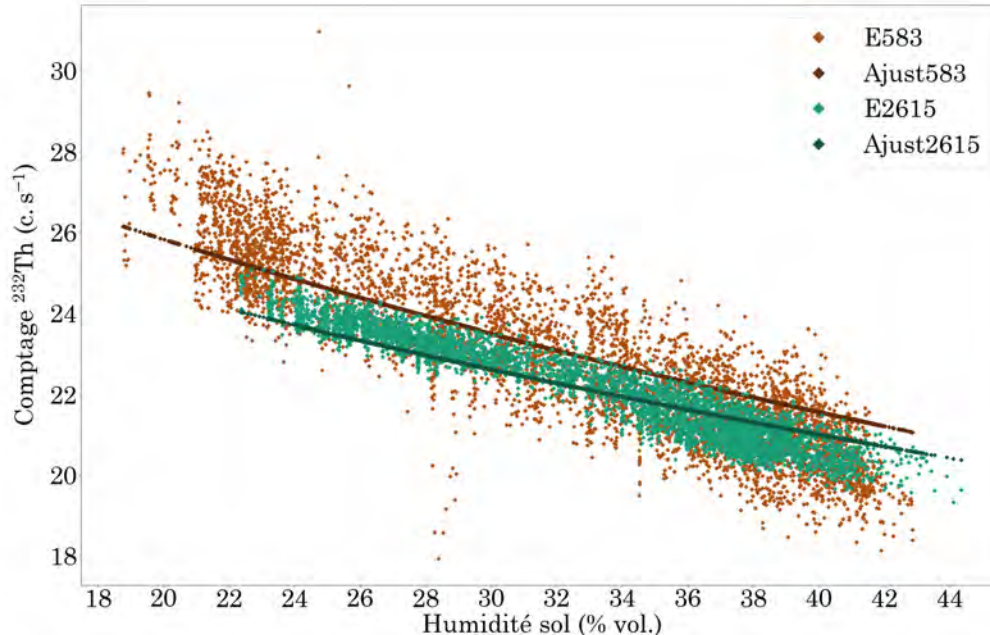


Figure 6.24 – Taux de comptage ( $\text{c.s}^{-1}$ ) pour les photopics à 583 et 2615 keV en fonction de l'humidité du sol (% vol.) de chaque profondeur de couche. Les courbes théoriques d'ajustement issues de la résolution de l'équation 6.11 sont également présentées pour chaque raie d'énergie. Les coefficients d'atténuation massique dans l'eau et le sol (100 %  $\text{SiO}_2$ ) sont ceux issus des standards NIST aux énergies correspondantes. La masse volumique apparente de la couche de surface est toujours de  $1204 \pm 53 \text{ kg.m}^{-3}$  et celle utilisée pour la couche profonde,  $1350 \pm 59 \text{ kg.m}^{-3}$ .



La gamme de variation de la teneur en eau dans la couche de sol profond (0 - 40 cm) est réduite d'environ 5 % par rapport à celle présente dans la couche de surface (0 - 10 cm) pour ce sol homogène. Les teneurs en eau varient entre 23 et 43 % pour la couche profonde et entre 18 et 43 % pour la couche de surface. Les 5 % de différence se concentrent en période sèche. La couche de surface est davantage soumise aux radiations solaires que les horizons plus profonds, impliquant une plus grande évaporation du sol au niveau de cette couche superficielle. Associés à ces 20 % et 25 % de variations de la teneur en eau, les taux de comptage du photopic à 2615 et 583 keV montrent un écart entre valeurs minimale et maximale de 18 % (20,5 - 24 c.s<sup>-1</sup>) et de 28 % (21 - 27 c.s<sup>-1</sup>) respectivement.

La dispersion des taux de comptage à 583 keV en fonction de la teneur en eau volumique de la couche de surface du sol est plus importante que celle du taux de comptage à 2615 keV en fonction de la teneur en eau volumique de la couche profonde, 4 c.s<sup>-1</sup> contre 1,5 c.s<sup>-1</sup>. Cette dispersion plus importante est probablement due à la succession de traitement du spectre permettant de reconstituer le photopic à 583 keV et de l'isoler du triplet de raies. Les courbes théoriques d'ajustement calculées à partir de l'équation 6.11 retrouvent correctement la forme du nuage de points associés à chaque taux de comptage. Cela montre une nouvelle fois la robustesse de cette équation développée dans les sections précédentes. Les coefficients d'atténuation massique dans l'eau et le sol (100 % SiO<sub>2</sub>) à chaque énergie ont été utilisés dans la résolution d'équation correspondante. Une différence sur la masse volumique apparente appliquée est à signaler. Si la couche de surface conserve la valeur de  $1204 \pm 53 \text{ kg.m}^{-3}$ , la nécessité de prendre en compte la compaction dans la couche de profondeur 40 cm fait que la densité apparente pour cette couche à  $1350 \pm 59 \text{ kg.m}^3$ .

La superposition d'une partie des taux de comptage du photopic à 2615 keV sur ceux extraits à 583 keV confirme qu'entre 37 et 42 % d'humidité de sol, les taux de comptage de la raie à 2615 keV sont complètement absorbés dans la gamme de variation des taux de comptage de la raie à 583 keV, en étant supérieurs dans 20 % des cas. Pour un sol homogène comme celui du site P2OA-CRA, la teneur en eau en fonction de la profondeur de la couche va influencer les taux de comptage des deux photopics suivis. Ainsi, le rapport entre les taux de comptage mesurés à 583 et 2615 keV a été calculé tout comme celui entre les teneurs en eau volumique de surface et en profondeur. Pour vérifier s'il est possible de conclure qualitativement sur le profil type de la teneur en eau dans le sol en cours d'investigation. La distribution du rapport entre les taux de comptage en fonction de celle du rapport entre les teneurs en eau est présentée sur la figure 6.25. L'étude des résultats se fait sur la base d'un repère orthonormé de base 1 qui montre la proximité des rapports calculés entre eux.

À partir des valeurs de chaque rapport, quatre domaines de variation ont été représentés sur la figure 6.25. Le premier cadre, en haut à gauche, marque une teneur en eau volumique de la couche profonde supérieure à celle observée en surface et où les taux de comptage calculés à 583 keV sont supérieurs à ceux déterminés à 2615 keV. Il s'agit d'un profil de teneur en eau hétérogène où l'horizon de surface est plus sec que l'horizon plus profond.

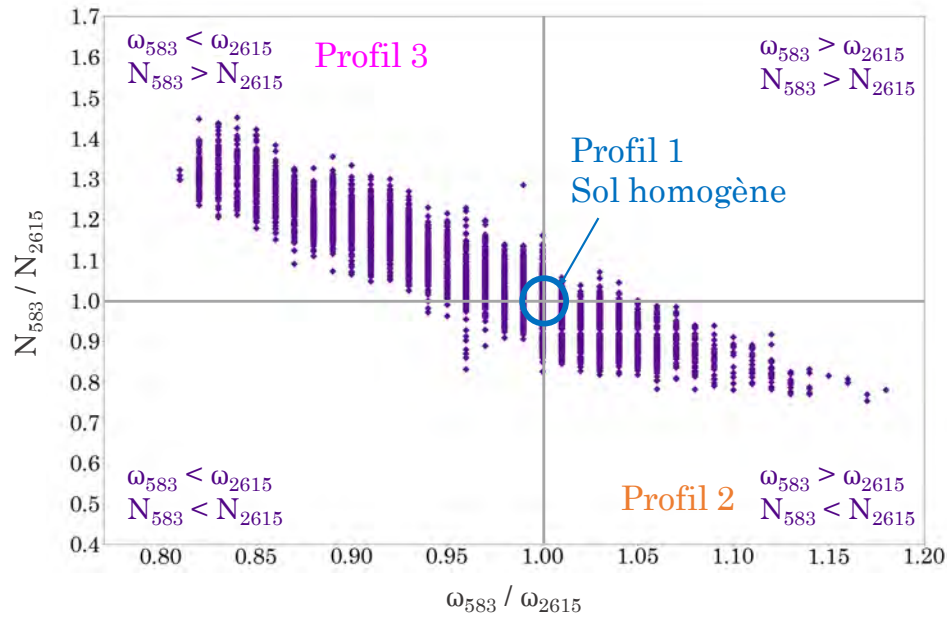


Figure 6.25 – Rapport des taux de comptage calculés dans les fenêtres d'énergie à 583 et 2615 keV en fonction du rapport des teneurs en eau volumique dans la couche de surface (0 - 10 cm) et celle en profondeur (0 - 40 cm) dans un sol homogène.

Plus la valeur du rapport entre les taux de comptage augmente et plus celle du rapport entre les teneurs en eau volumique diminue (Profil 3, figure 6.21). Ce rapport des taux de comptage peut donc signaler si le profil de la teneur en eau dans le sol est homogène ou hétérogène, avec un assèchement progressif vers la surface. La proportion de points dans ce domaine y est d'ailleurs la plus importante par rapport aux autres domaines et concerne environ 70 % des données horaire.

Le deuxième domaine d'intérêt est celui identifié par un rapport de teneur en eau supérieur à 1 qui correspond une humidité du sol en surface plus importante que celle en profondeur (Profil 2, figure 6.21). Le rapport des taux de comptage associé y est inférieur à 1 et montre que le taux de comptage de photons  $\gamma$  émis à 2615 keV est supérieur à celui enregistré à 583 keV. Malgré la plus forte présence d'eau dans la couche de surface, les photons  $\gamma$  de haute énergie sont beaucoup moins atténués que les photons  $\gamma$  de plus basse énergie. De ce fait, même si leur nombre est atténué par cette couche de surface plus humide que la couche profonde, ils sont en nombre supérieur à ceux émis à 583 keV atténués plus fortement par ces nouvelles teneurs en eau. Ce profil de teneur en eau dans le sol est généralement observé en saison hivernale d'après les chroniques temporelles. De nouveau, le rapport des taux de comptage a été capable d'identifier cette différence de teneur en eau entre la couche de surface et celle plus profonde. Ce profil représente environ 25 % des données horaire.

Les deux derniers domaines marquent des relations contraires entre les rapports des teneurs en eau et les taux de comptage. Ils représentent environ 5 % des données horaires et sont principalement concentrés autour de la valeur de 1. La présence de points de mesure dans ces cadrans est liée à la dispersion des points selon les axes  $x$  et  $y$  reflétant les biais inhérents aux différents traitements.

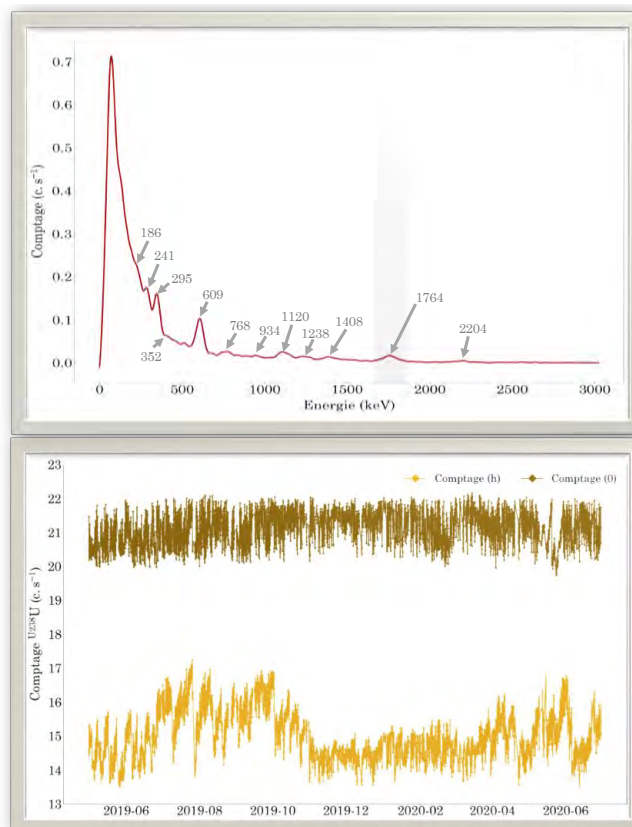
Ainsi, le rapport entre deux taux de comptage issus de photons  $\gamma$  à basse et haute énergie pour un même radionucléide, ici le  $^{208}\text{Tl}$  apparenté au  $^{232}\text{Th}$ , va être relié au profil de variation de la teneur en eau dans le sol. Par conséquent, pour un sol de structure homogène où la concentration en thorium est uniformément répartie, il est possible de suivre l'évolution de la teneur en eau de manière qualitative. La relation linéaire qui est montrée dans cette étude permet d'identifier la présence d'un sol homogène ou hétérogène en terme de distribution de la teneur en eau avec la profondeur. La valeur du rapport des taux de comptage est également capable de montrer si la différence entre les teneurs en eau en surface et en profondeur est importante ou non. De plus, en connaissant la valeur de la teneur en eau volumique au sein de la couche de surface ainsi que les deux taux de comptage à 583 et 2615 keV, il est possible de déterminer la valeur de la teneur en eau dans la couche profonde.

Cette étude sur le profil de la teneur en eau peut s'insérer facilement dans le cadre de travaux de plus grande ampleur, par exemple sur l'agriculture de précision et le besoin en irrigation des champs cultivés (Annexe H). Pour le moment, cette caractérisation de la relation linéaire entre les deux rapports a été effectuée sur un sol relativement homogène en structure et en abondance d'éléments. Il faudrait renouveler cette analyse sur des sols hétérogènes qui caractérisent un peu mieux les sols agricoles marqués par la présence d'une croûte de battance aux alentours d'une profondeur de 15 cm. Cette croûte qui se met en place suite au labour régulier du sol est relativement imperméable en fonction de la nature du sol en place. Ainsi, il serait intéressant de voir si la spectrométrie  $\gamma$  par l'intermédiaire de cette étude du signal  $\gamma$  à deux énergies est capable d'identifier la présence de cette spécificité des terrains agricoles (Annexe H).

# 7

## Les effets atmosphériques sur le signal $\gamma$ mesuré

*"Le ciel vient toujours au secours de ceux qui ne lui laissent pas tout à faire" (Proverbe japonais).*



## Sommaire

---

<b>7.1</b>	<b>Le compartiment atmosphérique : source de bruit de fond du signal <math>\gamma</math> tellurique</b>	<b>257</b>
<b>7.2</b>	<b>La pression atmosphérique</b>	<b>258</b>
7.2.1	Un effet visible sur le signal $\gamma$ mesuré	259
<b>7.3</b>	<b>Le rayonnement cosmique : un bruit de fond qui vient de loin</b>	<b>261</b>
7.3.1	La détermination du bruit de fond d'origine cosmique	261
7.3.2	L'influence de la pression atmosphérique	266
<b>7.4</b>	<b>Les précipitations, un facteur d'influence éphémère</b>	<b>267</b>
7.4.1	Précipitations et taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , une relation admise	268
7.4.2	Convertir la variation du taux de comptage en activité surfacique	270
<b>7.5</b>	<b>Le radon atmosphérique, un bruit de fond du signal <math>\gamma</math> tellurique</b>	<b>272</b>
7.5.1	La basse atmosphère et la couche limite atmosphérique	272
7.5.2	Les variations temporelles du $^{222}\text{Rn}$ sur le site P2OA-CRA	274
7.5.3	L'influence du radon-222 atmosphérique sur le taux de comptage de l'uranium-238	286
7.5.4	Mesure du radon-222 atmosphérique par spectrométrie $\gamma$	295
7.5.5	Développement d'une méthode de mesure du radon-222 atmosphérique à partir de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée	297
7.5.6	L'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ calculée par spectrométrie $\gamma$ aéroportée	308
<b>7.6</b>	<b>Correction de l'effet du radon-222 sur le signal <math>\gamma</math> de l'uranium-238</b>	<b>313</b>
7.6.1	Le protocole de correction	313
7.6.2	Les variations temporelles des taux de comptage corrigés du $^{238}\text{U}$	314
7.6.3	L'évolution du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ en fonction de l'humidité des sols	316
7.6.4	La simulation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ pour un sol sec	319
<b>7.7</b>	<b>Conclusion sur les effets environnementaux sur le signal <math>\gamma</math> mesuré</b>	<b>322</b>

---



## 7.1 Le compartiment atmosphérique : source de bruit de fond du signal $\gamma$ tellurique

La caractérisation et la compréhension de l'influence de la teneur en eau du sol sur le signal  $\gamma$  mesuré émis par le compartiment sol a permis de proposer une méthodologie pour prendre en compte ce phénomène en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Si cette première proposition de correction d'un effet environnemental sur la mesure  $\gamma$  s'est avérée concluante pour les fenêtres d'énergie du  $^{40}\text{K}$  et de  $^{232}\text{Th}$ , cette dernière a montré ses limites sur les signaux du  $^{238}\text{U}$  et du comptage total. Les nombreuses observations faites sur les chroniques temporelles confirment cette problématique additionnelle sur le signal du  $^{238}\text{U}$ .

Si l'influence des compartiments sol (Chapitre 6) et instrumental (Chapitre 3) a été étudié dans les chapitres précédents, les effets du compartiment atmosphérique n'ont été abordés que sous forme d'hypothèses pour expliquer certaines observations.

Il est donc nécessaire de s'intéresser aux différentes influences exercées par le compartiment atmosphérique sur le signal  $\gamma$  total mesuré par le spectromètre afin de **proposer une méthodologie** permettant d'en soustraire les effets. L'influence de ce compartiment sur le signal  $\gamma$  total mesuré n'est pas constante dans le temps et l'espace. Le protocole de correction issu du compartiment atmosphérique doit donc prendre en compte cette variabilité afin de permettre une utilisation en toute période et en tout lieu.

Pour le signal  $\gamma$  total mesuré par le spectromètre, le **découplage des signaux**  $\gamma$  issus des différents compartiments est possible et est évolutif entre deux campagnes de mesure de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Ce découplage va permettre de suivre uniquement l'évolution de la radioactivité dans le compartiment atmosphérique induite par la présence du  $^{222}\text{Rn}$  et de ses descendants. Avec son temps de demi-vie relativement long de 3,82 jours, ce gaz est fréquemment utilisé dans les études atmosphériques [Zahorowski et al., 2004, Williams et al., 2011, Florea and Dului, 2012, Botha et al., 2018, Hulin et al., 2019]. Pouvoir mesurer le  $^{222}\text{Rn}$  à l'échelle d'un site pourrait donc permettre de produire des cartographies de l'évolution du  $^{222}\text{Rn}$  dans le temps à partir du signal  $\gamma$  mesuré par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Le compartiment atmosphérique se caractérise, lui aussi, par la présence d'un signal  $\gamma$  dont l'origine est double : le rayonnement cosmique ainsi que le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique et ses descendants. La dynamique de l'atmosphère au cours du temps n'étant pas constante, plusieurs variables caractéristiques de cette enveloppe telles que la pression atmosphérique doivent rentrer en compte dans les paramètres environnementaux à suivre.

Ce chapitre s'intéresse donc à **l'influence du compartiment atmosphérique** sur les données acquises de spectrométrie  $\gamma$  à partir du détecteur NaI(Tl) installé à 50 mètres de hauteurs sur la tour instrumentée du site P2OA-CRA. Les données relatives au radon-222 atmosphérique, aux paramètres météorologiques ainsi qu'au rayonnement cosmique sont présentées au sein des sections suivantes. Un protocole de correction des effets de cette composante atmosphérique est également développé au cours de cette thèse et une application concrète sur le signal  $\gamma$  mesuré de l'uranium est éprouvée.

## 7.2 La pression atmosphérique

En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, l'air est présent entre la surface terrestre et le spectromètre NaI(Tl) embarqué par un aéronef. Les photons  $\gamma$  émis depuis la surface du sol de façon isotrope, doivent donc traverser ce matériau avant d'interagir ou non avec le système de détection. **L'air va donc être une source d'atténuation pour ces photons  $\gamma$** , matérialisée par un coefficient d'atténuation dépendant de l'énergie du photon émis.

### Une influence sur l'atténuation des photons $\gamma$

La valeur du coefficient d'atténuation linéaire dans l'air augmente avec la pression atmosphérique [Davis, 1992, De Figueiredo et al., 2011, Wantoro et al., 2017]. Il n'est pas donc constant dans le temps. Ce phénomène est contrôlé par la densité de l'air et les variations de pression vont donc exercer une influence sur les rayonnements  $\gamma$  en modulant cette atténuation.

L'épaisseur d'air traversée par les rayonnements  $\gamma$  va également participer à leur atténuation. Ainsi, à pression ambiante, l'atténuation de l'air augmente de 7 % tous les 10 mètres [IAEA, 1991, Minty, 1997].

### Une variabilité temporelle à différentes échelles

La figure 7.1 représente l'évolution temporelle de la pression atmosphérique, exprimée en mbar, mesurée à 30 m de hauteur au niveau de la tour instrumentée à une fréquence de 0,1 Hz. Les valeurs utilisées pour réaliser cette chronique sont les données concaténées sur un pas de temps horaire où les précipitations sont incluses.

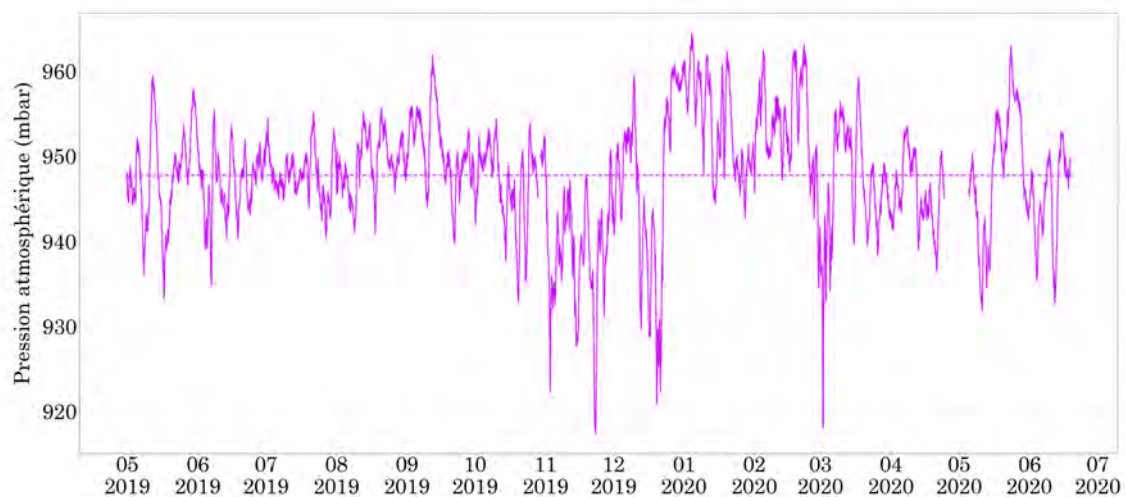


Figure 7.1 – Chronique temporelle de la pression atmosphérique, exprimée en mbar, pour la période Avril 2019 - Juin 2020. La droite en pointillés représente la valeur moyenne annuelle.

La valeur moyenne de pression atmosphérique sur le site P2OA-CRA, qui est à une altitude de 580 mètres dans le piémont pyrénéen, est de 947,8 mbar. La gamme de variation s'étend entre 917,4 et 964,2 mbar. Les amplitudes de variation

de pression autour de la valeur moyenne de ces 14 mois de données sont relativement contenues entre les **mois d'Avril et d'Octobre 2019** et se caractérisent par une moyenne inférieure à 2 %. Les mois de **Novembre et Décembre 2019** montrent des valeurs de pression presque toutes inférieures à la valeur moyenne. Les mois de Janvier et Février 2020 observent une nette augmentation de la pression atmosphérique avec une stabilisation à un niveau supérieur à la moyenne des valeurs enregistrées sur cette période. Les derniers mois de la chronique retrouvent une amplitude de variation limitée autour de la valeur moyenne des données.

La pression atmosphérique ne présente donc pas de variations saisonnières très marquées sur cette période d'acquisition en continu de 14 mois. La pression atmosphérique se caractérise plutôt par ses variations horizontales qui permettent de suivre les systèmes météorologiques que définissent les zones de dépression et d'anticyclone.

Une analyse du spectre de Fourier de la pression atmosphérique (Figure 7.2), révèle la présence d'un cycle semi-diurne très marqué également présent sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Cette corrélation entre les trois spectres de Fourier est une piste à privilégier pour expliquer l'augmentation du signal  $\gamma$  perçu sur le créneau horaire nocturne, 2h - 4h, pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  (Figure 6.6).

Le spectre de pression présente également des fréquences caractéristiques avec des périodes de 8 et 6 heures, qui semblent être trop faibles pour induire des variations détectables du signal  $\gamma$ . Les périodes de 24, 12, 8 et 6 heures vues dans ces spectres résultent de marées thermiques atmosphériques, qui sont connues pour être riches en harmoniques [Hagan et al., 2003].

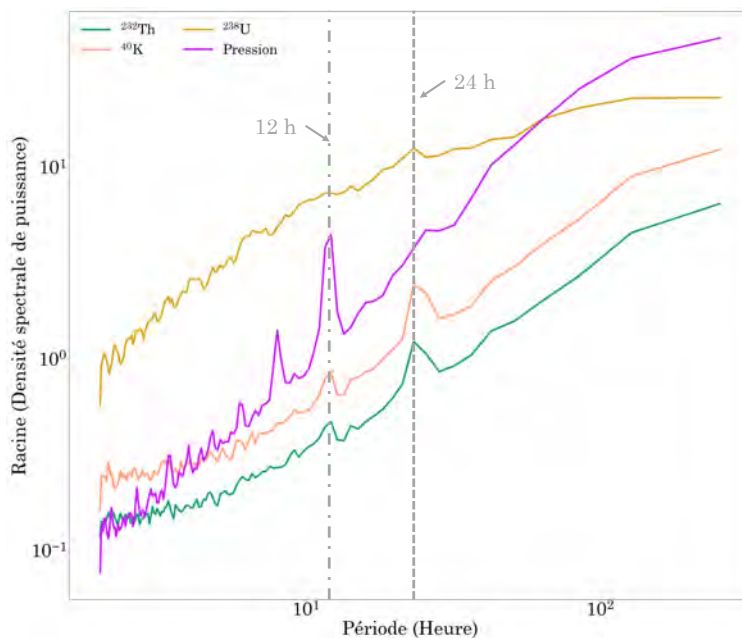


Figure 7.2 – Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et la pression atmosphérique.

### 7.2.1 Un effet visible sur le signal $\gamma$ mesuré

D'après la chronique temporelle de la pression atmosphérique mesurée sur le site P2OA-CRA (Figure 7.1), ce paramètre évolue constamment. Toutefois, l'ordre de grandeur de variation de la pression atmosphérique au cours du temps sur le site

est relativement restreint autour de 50 mbar. D'après l'équation et les coefficients proposés par [Wantoro et al., 2017], cette variation de pression aura un impact très limité sur le coefficient d'atténuation linéaire. De ce fait, la pression atmosphérique ne va pas être le paramètre environnemental dominant sur l'évolution des taux de comptage.

Cependant, les spectres de Fourier relatifs aux taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  montrent un cycle semi-diurne qui n'est retrouvé que sur le spectre de Fourier de la pression atmosphérique (Figure 7.2). Ainsi, pour vérifier si le cycle semi-diurne de la pression atmosphérique a une influence sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , une représentation graphique des cycles diurnes de la journée composite moyenne calculée à partir de l'ensemble des données a été réalisée (Figure 7.3). En complément, il est rappelé l'évolution de la teneur en eau volumique au cours de cette même journée composite.

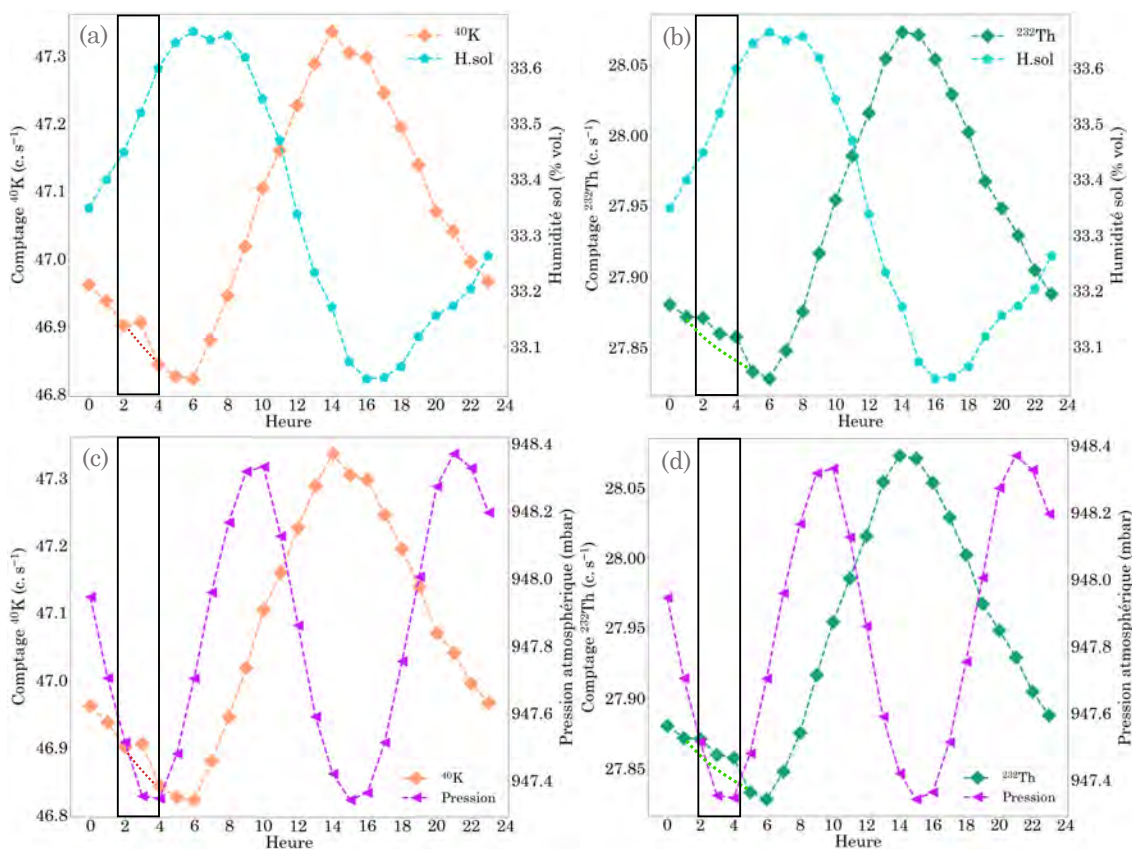


Figure 7.3 – Comparaison des cycles diurnes et semi-diurnes des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$ , de l'humidité du sol et de la pression atmosphérique. Le cadre noir représente l'horaire où la pression influence le plus le signal  $\gamma$ .

Sur cette journée composite, le cycle semi-diurne de la pression atmosphérique (courbe violette) est très nettement visible avec des minima locaux, entre 3h et 4h et entre 15h et 16h, et deux maxima locaux, entre 9h et 10h et entre 21h et 22h.

Les valeurs minimales de pression atmosphérique sur le créneau 15h - 16h coïncident avec celles de la teneur en eau volumique et avec le taux de comptage maximum observé pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . Les deux points maximum observés sur le cycle semi-diurne de la pression atmosphérique bornent le créneau horaire 15h - 16h où le

taux de comptage est maximal. L'atténuation dans l'air est donc maximal mais les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  sont en augmentation du fait d'une diminution en continu de la teneur en eau volumique du sol en relation avec le réchauffement progressif du sol par une température de l'air en augmentation. L'influence de la pression atmosphérique semble ainsi minime par rapport à l'impact que peut avoir la teneur en eau volumique au cours de la journée. Cela n'est pas surprenant en considérant l'augmentation de masse de matière que cela représente.

En se concentrant sur le créneau horaire nocturne, entre 0h et 6h, la teneur en eau volumique ne cessant d'augmenter, l'évolution des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  devrait montrer une diminution progressive et continue. Or, sur le créneau horaire 3h - 4h où la pression atmosphérique présente un minimum, une légère augmentation des taux de comptage suivis de l'ordre de 0,20 % est observée. Cette fois-ci, la diminution de l'atténuation dans l'air est dominante par rapport à l'augmentation de l'atténuation dans le sol. La divergence de sens de variation entre la teneur en eau volumique et celle de la pression atmosphérique a permis d'offrir une visibilité de l'influence de la pression atmosphérique sur le signal  $\gamma$  mesuré.

Cette quantification de l'influence de la pression atmosphérique inférieure à 0,20 % pour les deux taux de comptage suivis, sur ce créneau nocturne, doit être par analogie du même ordre de grandeur que celle non observée sur le second créneau horaire où les pressions atmosphériques sont minimales. Cet effet de la pression atmosphérique sur le signal  $\gamma$  mesuré est donc assez minime.

## 7.3 Le rayonnement cosmique : un bruit de fond qui vient de loin

En spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, tous les rayonnements qui ne proviennent pas de la surface terrestre sont généralement considérées comme des bruits de fond à la mesure [IAEA, 1991]. Cette section concerne l'effet du rayonnement cosmique sur le signal  $\gamma$  mesuré qui a été abordé au chapitre 1.

### 7.3.1 La détermination du bruit de fond d'origine cosmique

Les photons  $\gamma$  et muons de très haute énergie, issus des interactions entre le rayonnement cosmique et l'atmosphère, peuvent être détectés par un spectromètre de type NaI(Tl). Puisque les rayons  $\gamma$  émis par les radionucléides de la chaîne de décroissance radioactive du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , ainsi que celui du  $^{40}\text{K}$  ont des énergies inférieures à celle du  $^{208}\text{Tl}$  à 2615 keV, tous les comptages mesurés dans la plage d'énergie de 2900 à 3066 keV du spectromètre NaI(Tl) sont imputables à ce type d'interactions. Quelques rayons  $\gamma$  du  $^{214}\text{Bi}$  aux rendements extrêmement faibles sont présents dans cette fenêtre d'énergie mais peuvent être considérés comme négligeables par rapport à ceux issus des interactions avec les particules secondaires. La fenêtre d'énergie du spectromètre NaI(Tl) entre 2900 et 3066 keV est donc référencée comme la fenêtre de comptage cosmique.



### La méthode standard

Traditionnellement, les taux de comptage dus au rayonnement cosmique augmentent de façon exponentielle avec la hauteur au-dessus du niveau moyen de la mer dans toutes les fenêtres spectrales considérées [Allkofer et al., 1971, IAEA, 1991, Minty, 1992, Baldoncini et al., 2018b].

La fonction exponentielle qui est ainsi déterminée dans chaque fenêtre d'énergie, entre une altitude nulle et une altitude de 5000 mètres, peut être utilisée pour corriger les données relatives aux perturbations induites par les rayonnements cosmiques en fonction de l'altitude. Cependant, une méthode plus aboutie est de considérer cette fenêtre de comptage cosmique qui enregistre toutes les particules incidentes au-dessus de 2900 keV, notamment les rayons  $\gamma$ . Les taux de comptage dans la fenêtre des rayons cosmiques sont reliés aux comptages dus aux radiations cosmiques dans les diverses fenêtres spectrales par la fonction linéaire [IAEA, 1991] :

$$N = a + bC \tag{7.1}$$

avec  $N$  qui définit le taux de comptage dans la fenêtre spectrale d'énergies considérées,  $a$  est le bruit de fond du système aéroporté (hélicoptère inclus) dans chaque fenêtre d'énergie,  $b$  est le rapport de déconvolution cosmique qui correspond au nombre de coups enregistrés dans une fenêtre d'énergie en fonction du nombre de coups enregistrés dans la fenêtre d'énergie des cosmiques.

Les valeurs de  $a$  et  $b$  peuvent être déterminées expérimentalement au moyen d'une série de vols à des altitudes données. Ces vols doivent être effectués au-dessus de la mer en période de brise marine de sorte que la contribution du radon-222 atmosphérique soit négligeable. Une série convenable de vols inclut des vols à des altitudes comprises entre 1500 à 3500 m à des intervalles de 300 m avec un temps de mesure de 10 minutes [IAEA, 1991]. Les taux de comptage moyens dans la fenêtre cosmique et dans les autres fenêtres d'énergie peuvent ainsi être obtenus à chaque hauteur. La régression linéaire des taux de comptage dans chaque fenêtre par rapport à ceux enregistrés dans la fenêtre cosmique fournit les valeurs de  $a$  et  $b$ . La détermination de l'influence des rayons cosmiques dépend donc de nombreux facteurs et notamment du détecteur utilisé. Pour assurer des valeurs cohérentes à chaque spectromètre, il est nécessaire de réaliser des vols dans les conditions décrites pour estimer ces paramètres  $a$  et  $b$ . Cependant, les vols réalisés en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée s'effectuent généralement entre 15 et 100 mètres. Il faut donc déduire de ces vols de calibration au-dessus de la mer, la contribution cosmique entre 0 et 1500 mètres afin de pouvoir interpoler correctement ces données en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. Des codes de simulation sous Monte-Carlo [Baldoncini et al., 2018b] ont par exemple été proposés dans ce cadre. Cette calibration de l'influence des comptages cosmiques est donc ponctuelle et spécifique à un instrument. Toutefois, il est de coutume d'appliquer les coefficients déterminés par ces vols au-dessus de la mer *via* l'équation 7.1 à tous les vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sans tenir compte du site d'étude ou encore de l'instrument.

### Une approche plus locale de la contribution cosmique

Pour prendre en compte la contribution du rayonnement cosmique dans les fenêtres d'énergie des radionucléides considérés sans passer par des vols de calibration,



il est proposé à travers ces travaux **une nouvelle approche de détermination du bruit de fond cosmique à partir d'un spectromètre NaI(Tl) de 16 L**. L'objectif est de réussir à estimer les bruits de fond cosmiques dans chaque fenêtre d'énergie investiguées à partir de la seule fenêtre d'énergie des comptages cosmiques au cours d'un vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. De ce fait, la contribution cosmique sur les comptages du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  serait directement prise en compte sans avoir à passer par des coefficients estimés à partir de survols marins réalisés quelques années auparavant.

Cette méthodologie part du constat que la contribution du rayonnement cosmique décroît avec l'énergie. Un découpage de la fenêtre d'énergie 2900 - 3066 keV en 10 classes de même nombre de canaux ou de même étendue en énergie est ainsi préconisé (Figure 7.4). Ce nombre de points importants, sur cette plage d'énergie, permet d'extraire la relation entre énergie et rayons cosmiques par une fonction puissance. Les valeurs de bruit de fond cosmique peuvent ainsi être déterminées dans chaque fenêtre d'énergie considérée.

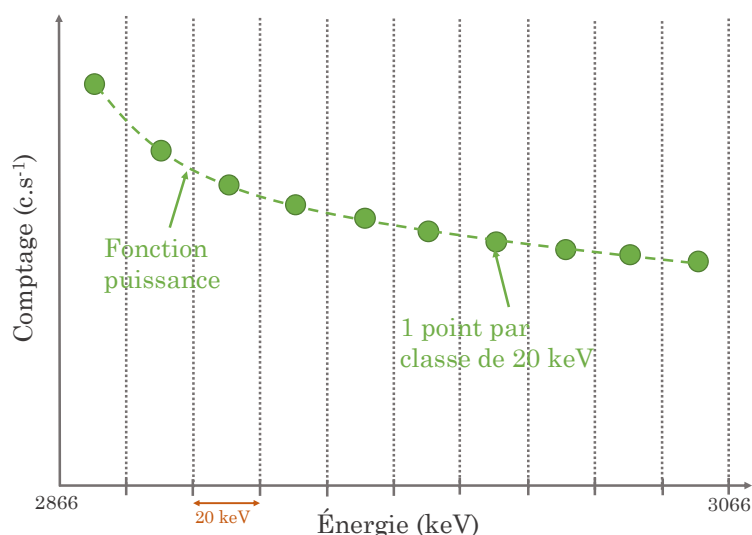


Figure 7.4 – Procédure schématique de détermination des bruits de fond cosmiques dans les fenêtres d'énergie des radionucléides considérés à partir des spectres enregistrés par le spectromètre NaI(Tl) du site P2OA-CRA.

Dans un but d'optimisation de ce découpage en classes d'énergie équivalentes les unes aux autres, la fenêtre d'énergie dédiée à l'étude des comptages cosmiques est agrandie entre 2866 et 3066 keV. La fenêtre d'énergie associée au  $^{232}\text{Th}$  s'étend jusqu'à 2810 keV. De ce fait, le risque de superposition des fenêtres étant limité, cette fenêtre d'énergie cosmique peut être étendue. Ce nouveau bornage permet en effet un découpage plus aisé en 10 classes de pas équivalent à 20 keV chacune de la fenêtre d'énergie de comptage cosmique.

Ces 10 classes vont donc être caractérisées par 10 points de mesure additionnant les taux de comptage associés à une plage d'énergie de 20 keV. Cette dispersion de 10 points sur une étendue de 200 keV d'énergie est suffisamment représentative en terme statistique pour permettre d'en extrapoler une fonction de type puissance associant taux de comptage cosmique et énergie. À partir de cette relation, la détermination par calcul de l'influence du rayonnement cosmique sur les plages d'énergie du  $^{40}\text{K}$

(1470 - 1570 keV), du  $^{238}\text{U}$  (1660 - 1860 keV), du  $^{232}\text{Th}$  (2410 - 2810 keV) et aussi du  $^{137}\text{Cs}$  (544 - 761 keV) est rendue possible. Ces bruits de fond sont exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$ . Afin de calculer la contribution totale du bruit de fond cosmique dans chaque fenêtre d'énergie ( $C_{B_{inf}-B_{sup}}$ ), il va être nécessaire de multiplier la valeur calculée au niveau du photopic caractéristique ( $C_{E_X}$ ) par l'étendue de la fenêtre d'énergie du radionucléide ( $B_{inf} - B_{sup}$ ) et de la diviser par la taille de la classe en énergie qui a permis le découpage dans la fenêtre des hautes énergies. L'équation suivante résume le procédé employé :

$$C_{B_{inf}-B_{sup}} = \frac{C_{E_X} \times (B_{sup} - B_{inf})}{K} \quad (7.2)$$

avec  $B_{inf}$  et  $B_{sup}$  les bornes inférieures et supérieures de la fenêtre d'énergie (keV),  $E_X$  qui définit l'énergie du photopic du radionucléide,  $K$  la taille de classe (keV).

Cette méthodologie de détermination de la fonction puissance à partir de 10 classes dans la fenêtre de hautes énergies a été appliquée à l'ensemble des 10152 spectres horaires. Dans les conditions d'un survol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le temps de vol moyen est d'une heure. Le bruit de fond cosmique dans la fenêtre d'énergie des comptages cosmiques sera donc déterminé à partir d'un spectre moyen acquis sur une période d'environ 1 heure.

D'après l'analyse qui a été faite sur la période de 14 mois d'acquisition, la fonction puissance moyenne applicable sur le site P2OA-CRA, à une altitude de détection de 650 mètres au-dessus de la mer est la suivante :

$$C_{E_X} = 593,70 \times E_X^{-0,733} \quad (7.3)$$

Cette fonction puissance moyenne a ensuite permis de déterminer le bruit de fond cosmique moyen, exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$  dans chaque fenêtre d'énergie des radionucléides considérés, toujours sur cette période d'Avril 2019 à Juin 2020. Les résultats sont présentés dans le tableau 7.1 avec des incertitudes de  $1 \sigma$ . Ce sont ces valeurs moyennes qui ont ensuite été soustraites à tous les spectres bruts enregistrés sur cette campagne de mesure.

Élément	Énergie (keV)	Fenêtre d'énergie (keV)	BDF Cosmique $\text{c.s}^{-1}$
$^{137}\text{Cs}$	662	544 - 761	$5,09 \pm 0,21$
$^{40}\text{K}$	1461	1370 - 1570	$2,85 \pm 0,18$
$^{238}\text{U}$	1764	1660 - 1860	$2,48 \pm 0,16$
$^{232}\text{Th}$	2615	2410 - 2810	$1,87 \pm 0,12$

Tableau 7.1 – Bruits de fond induits par le rayonnement cosmique dans les fenêtres d'énergie du  $^{137}\text{Cs}$ , du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Ces valeurs sont soustraites des spectres bruts tout comme les bruits de fond instrumentaux du spectromètre.

Un des points qui doit être soulevé concerne l'application objective d'un bruit de fond cosmique moyen sur une période d'acquisition de 14 mois. La grande variabilité

des taux de comptage des radionucléides au cours de cette période a montré que l'utilisation d'une valeur moyenne peut engendrer des biais dans une analyse des variations temporelles. Ainsi, une analyse de l'évolution des comptages enregistrés dans la fenêtre des hautes énergies est proposée.

Pour chaque spectre horaire qui compose la base de données générale, les coups enregistrés sur la fenêtre d'énergie 2866 - 3066 keV sont sommés afin d'obtenir une seule valeur de comptage cosmique. Ainsi, comme pour les taux de comptage des radionucléides, 10152 valeurs horaires sur la période **Avril 2019 - Juin 2020** sont disponibles pour étudier les variations temporelles de ces comptages cosmiques. Si les variations sont minimales à l'échelle de la saison et à l'échelle diurne, alors il n'y a aucun inconvénient à utiliser les bruits de fond cosmique moyens générés précédemment. La figure 7.5 présente la chronique temporelle du taux de comptage cosmique sur la période d'Avril 2019 - Juin 2020.

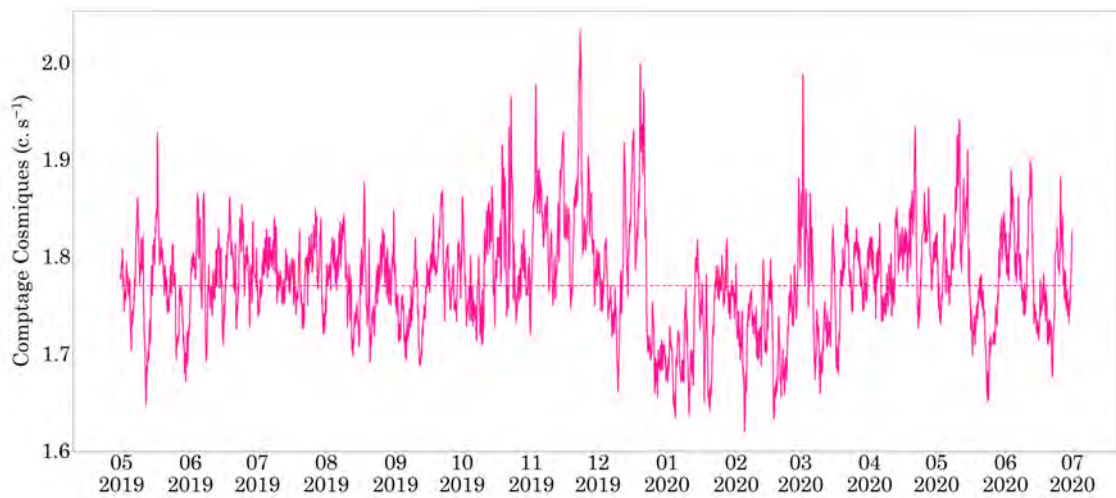


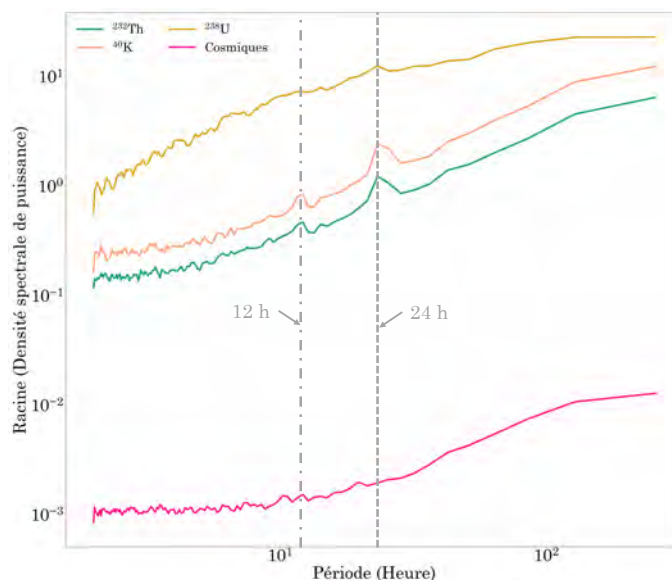
Figure 7.5 – Chronique temporelle du taux de comptage cosmique, exprimé en  $c.s^{-1}$  pour la période Avril 2019 - Juin 2020. Le taux de comptage cosmique représenté est la somme des coups enregistrés dans la fenêtre de hautes énergies 2866 - 3066 keV. La droite en pointillés représente la valeur moyenne annuelle.

L'évolution du taux de comptage cosmique sur la période d'acquisition de 14 mois ne présente pas de variations saisonnières notables. Le taux de comptage moyen observé est de  $1,78 \pm 0,14 c.s^{-1}$  et la gamme de variation entre les valeurs minimale ( $1,59 \pm 0,15 c.s^{-1}$ ) et maximale ( $2,07 \pm 0,19 c.s^{-1}$ ) est de  $0,48 \pm 0,08 c.s^{-1}$ . Cet écart relatif représente une variation possible du taux de comptage cosmique d'environ 13 % autour de la valeur moyenne. 10 mois sur les 14 que compte cette chronique se caractérisent par des amplitudes de variation inférieures à 10 % et des valeurs proches de celle de la valeur moyenne aux incertitudes près. Une période de deux mois et demi entre la fin du mois d'Octobre 2019 et le mois de Décembre 2019, au plein cœur de l'automne, se démarque avec des taux de comptage supérieurs à la valeur moyenne. À l'inverse, les mois de Janvier et Février 2020 observent des taux de comptage très majoritairement inférieurs à celui de la valeur moyenne.

Au vu de la variation très limitée du taux de comptage cosmique sur cette période de 14 mois, l'emploi de la valeur moyenne semble tout indiqué pour les données enregistrées sur la période Avril 2019 - Juin 2020. Le bruit de fond cosmique moyen au sein de chaque fenêtre d'énergie caractéristique est ainsi soustrait du spectre brut.

En se basant sur le spectre de Fourier du rayonnement cosmique (Figure 7.6), aucune périodicité caractéristique n'est observée pour ce paramètre. Ainsi, le spectre des comptages cosmiques ne présente pas de pic caractéristique d'un cycle semi-diurne, diurne ou saisonnier et a des amplitudes de variations très limitées ce qui va dans le sens d'utilisation d'une valeur moyenne.

Figure 7.6 – Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et des rayonnements cosmiques.



Cette nouvelle méthode de détermination du bruit de fond cosmique, initiée à partir du spectromètre NaI(Tl) utilisé en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, est tout à fait exploitable à l'échelle d'une campagne de vol. **Cette méthode a l'avantage d'utiliser directement les données acquises par le spectromètre sur le site étudié et offre donc l'opportunité de prendre en compte l'influence locale du rayonnement cosmique.** Elle ne fait pas intervenir des coefficients ou des abaques paramétrés sur d'autres sites.

### 7.3.2 L'influence de la pression atmosphérique

Plusieurs variables peuvent influencer sur l'intensité du signal  $\gamma$  de hautes énergies, comme l'activité solaire, la pression atmosphérique, la localisation et l'altitude du détecteur. Les deux derniers paramètres sont constants au cours de cette étude. Les chroniques temporelles de la pression atmosphérique (Figure 7.1) et du taux de comptage cosmique (Figure 7.5) présentent une forte anti-corrélation d'après les observations qui ont été faites. Ainsi, cette campagne de 14 mois permet d'analyser comment les variations de pression atmosphérique peuvent avoir un impact sur le bruit de fond cosmique (Figure 7.7).

Une forte corrélation linéaire négative est observée entre le taux de comptage cosmique ( $\text{c.s}^{-1}$ ) et la pression atmosphérique (mbar) avec un coefficient de corrélation de Pearson de 0,76. Cette corrélation négative bien documentée est appelée *l'effet barométrique* [Myssowsky and Tuwim, 1926, de Vries, 2012]. Une augmentation de la pression atmosphérique de 50 mbar entraîne une diminution d'environ 0,4  $\text{c.s}^{-1}$  dans la fenêtre des comptages cosmiques. Autrement dit, une augmentation de 5,5 % de la pression est responsable de la baisse de 25 % du signal dans la fenêtre des comptages cosmiques. Ces gammes de variation correspondent aux variabilités maximales observées sur les chroniques temporelles respectives de ces deux paramètres.

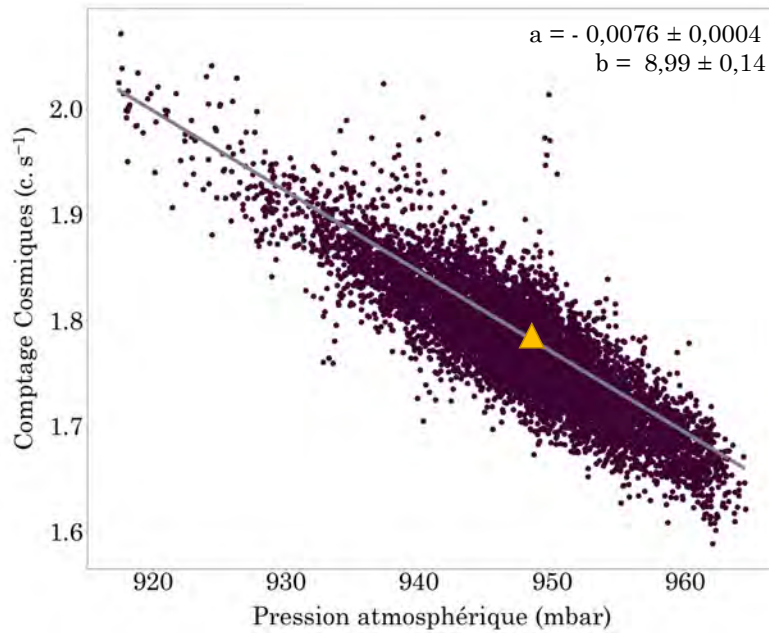


Figure 7.7 – Taux de comptage cosmique en  $c.s^{-1}$  dans la fenêtre d'énergie 2866 - 3066 keV en fonction de la pression atmosphérique en mbar. Une forte corrélation négative est observée avec un coefficient de détermination de 0,76. Un ajustement linéaire est représenté par la droite grise. Le triangle orange représente le point de coordonnées pression atmosphérique moyenne (947,8 mbar) et comptages cosmiques moyens ( $1,78 \pm 0,14 c.s^{-1}$ ).

Le triangle orange sur la figure 7.7 correspond au point de coordonnées de la pression atmosphérique moyenne (947,8 mbar) des comptages cosmiques moyens ( $1,78 \pm 0,14 c.s^{-1}$ ). Ce point se situe au niveau de la droite de corrélation linéaire entre les deux paramètres. Sur cette plage d'énergie, 2866 - 3066 keV, chaque cristal de la composante *Down* du détecteur a mesuré approximativement les mêmes comptages cosmiques avec une valeur moyenne de  $0,45 c.s^{-1}$ .

Une augmentation de pression, et donc d'atténuation, entraîne une baisse du bruit de fond cosmique. Toutefois, **ces variations sont suffisamment faibles pour être négligées**. La méthode proposée dans cette thèse pour déterminer le bruit de fond cosmique dans les fenêtres d'énergie des radionucléides à partir des spectres acquis sur le site survolé permet de prendre en compte cette variabilité induite par la pression atmosphérique.

## 7.4 Les précipitations, un facteur d'influence éphémère

Les précipitations sont des événements éphémères qui sont reliées aux variations synoptiques de pression atmosphérique. La quantité de précipitations tout comme la vitesse de chute et la taille des gouttes de pluie dans l'atmosphère sont variables d'un épisode de pluie à un autre.



### 7.4.1 Précipitations et taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , une relation admise

Sur la période de mesure d'**Avril 2019 à Juin 2020**, 2517 données horaires ont été associées à un événement de précipitation et identifiées par le pluviomètre. Cela représente 24,8% du volume total de données horaires. Différents profils de précipitations sont observés au cours de ces 14 mois d'acquisitions : de courtes pluies intenses, des événements longs aux intensités réduites, des orages, une succession de légères bruines pendant plusieurs heures etc.

Ainsi, la figure 7.8 présente les chroniques temporelles des précipitations et du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  acquises sur la période d'**Avril 2019 à Juin 2020**, sur une base horaire. L'intensité des précipitations affichées reflète donc la somme des intensités mesurées par le pluviomètre sur un créneau d'une heure.

Les augmentations brutales des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sont associées à des événements de précipitations aux intensités variables. La plus forte influence de ce paramètre météorologique sur le taux de comptage entraîne une augmentation de plus de 500% du signal  $\gamma$  mesuré dans la fenêtre énergétique du  $^{238}\text{U}$ . À la vue de ces chroniques, il semble que l'intensité des pluies soit corrélée à cette augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ .

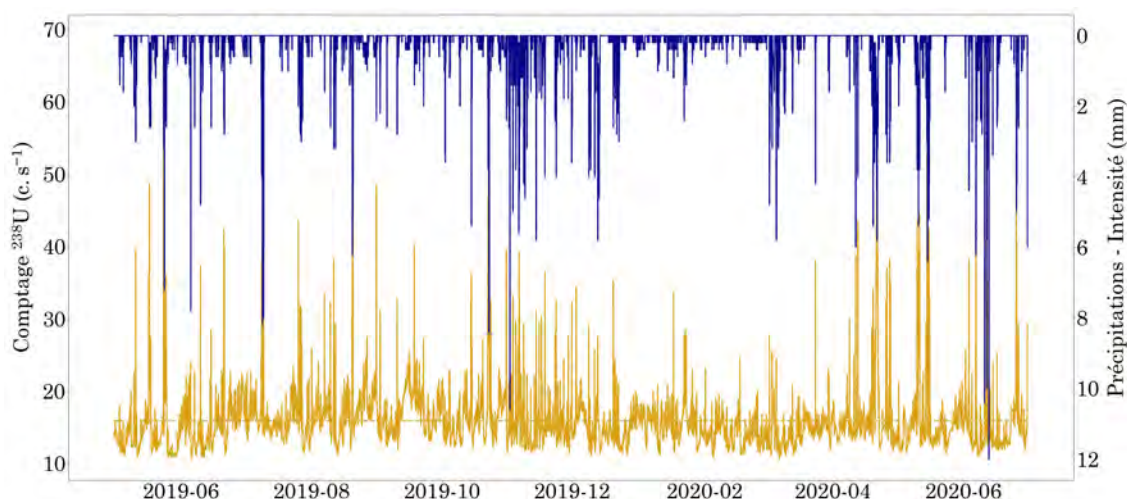


Figure 7.8 – Chroniques temporelles du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$  et des événements de précipitations, exprimés en intensité ( $\text{mm.h}^{-1}$ ) pour la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Les données utilisées sont les moyennes horaires.

Cette relation de coïncidence dans le temps entre précipitations et taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est relativement bien connue et documentée [Minato, 1980, Fujinami, 1996, Horng and Jiang, 2003, Takeyasu et al., 2006, Bottardi et al., 2020].

Comme vu précédemment, le  $^{222}\text{Rn}$  peut migrer du sol vers l'atmosphère et se disperser par advection et diffusion dans ce compartiment. D'après son schéma de désintégration radioactive, il va être à l'origine de plusieurs descendants solides incluant le  $^{218}\text{Po}$ , le  $^{214}\text{Pb}$  et le  $^{214}\text{Bi}$ . Ils peuvent rester libres dans l'atmosphère (fraction libre) ou se fixer à des aérosols atmosphériques (fraction attachée).

Lors d'un événement de pluie, les produits de désintégration du  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère sont déposés de l'atmosphère sur la surface du sol par le phénomène

de rabatement engendré par les gouttes de pluie. Ce phénomène provoque une augmentation significative de l'intensité des rayonnements  $\gamma$  à la surface du sol, allant de plusieurs pour cent à plusieurs dizaines de pour cent d'intensité par rapport à l'état sec, sans pluie. Cette couche de surface est temporaire du fait des temps de demi-vie inférieurs à 30 minutes pour ces descendants du radon. Ainsi, il est admis qu'au bout de 3 heures, l'effet additionnel des ces émissions  $\gamma$  n'existe plus. Il s'agit du temps nécessaire pour éliminer les descendants à vie courte du radon-222.

La réponse du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  à un évènement météorologique comme la pluie est facilement identifiable sur un évènement de précipitation unique (Figure 7.9). Cet épisode pluvieux, en date du 20 Juin 2019, présente une augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sur toute la durée de l'évènement. Ainsi, en moins de 30 minutes, le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  a augmenté de plus de 80%, pour une intensité totale de précipitations de 3,8 mm. Le pic maximum pour le taux de comptage est atteint à 1h du matin, s'ensuit une décroissance progressive sur une période approximative de 3 heures. Le signal  $\gamma$  perturbé atteint alors un niveau inférieur à celui mesuré avant l'évènement de pluie en raison d'une augmentation persistante de l'humidité du sol associée aux précipitations.

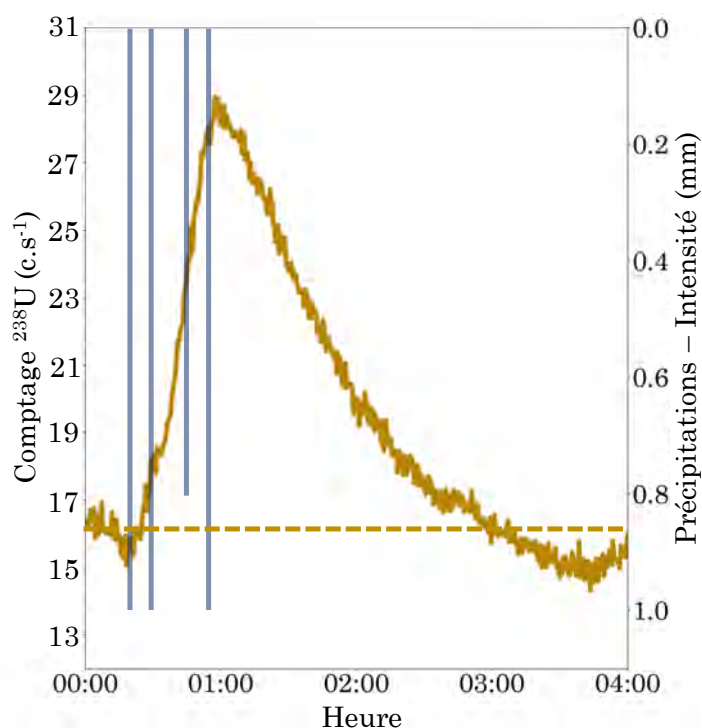
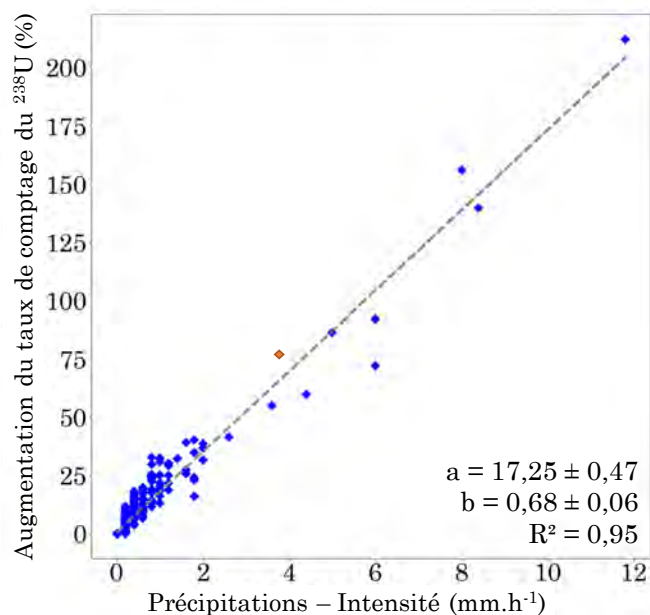


Figure 7.9 – Évènement de précipitation individuelle, daté du 20 Juin 2019, avec une rapide augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $^{214}\text{Bi}$ ) suivi d'une période de décroissance des descendants à vie courte du  $^{222}\text{Rn}$  d'environ 3 heures. La ligne en pointillés représente la valeur moyenne du taux de comptage avant l'évènement de pluie.

La figure 7.10 montre une relation positive entre l'intensité des précipitations ( $\text{mm.h}^{-1}$ ) et l'augmentation du taux de comptage de l'uranium-238 en pourcentage. Cette tendance est établie à partir de l'analyse de 278 épisodes de pluie individuels. Elle reflète l'augmentation de l'efficacité du rabatement des descendants du radon-222 ( $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ ) avec l'intensité de la pluie, qui semble être linéaire ( $R^2 = 0,95$ ) sur cette gamme d'intensité de pluie ( $0 - 12 \text{ mm.h}^{-1}$ ). L'évènement de pluie du 20 Juin 2019, présenté sur la figure 7.9, est matérialisé par un point orange pour une intensité de  $3,8 \text{ mm.h}^{-1}$  et une augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  de 78,9%.

Figure 7.10 – Pourcentage d'augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en réponse à un événement de précipitation unique en fonction de l'intensité de l'événement en  $\text{mm.h}^{-1}$  ( $R^2 = 0,95$ ). Le point orange correspond à l'événement de pluie présenté sur la figure 7.9 en date du 20 Juin 2019.



Sur l'ensemble du jeu de données, un effet de pluie typique sur le taux de comptage dans la fenêtre de l'uranium-238 est observé et pourrait conduire à une surestimation de la concentration de l'uranium dans le sol par un facteur allant de 10 à 300%. La valeur moyenne de cette surestimation est de l'ordre de 30% pour un terrain contenant une abondance moyenne d'uranium de  $38,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Une surestimation de plus de 2000% de la concentration de l'uranium dans le sol a été observée par [Charbonneau and Darnley, 1970].

Cette composante surfacique qui se crée lors des événements de pluie influence donc de manière non négligeable le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Cette première étude sur les événements de pluie est complétée par une simulation Geant-4 permettant d'exprimer cette variation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en activité surfacique. En estimant l'influence du rabattement des aérosols sur le sol, la campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pourrait continuer même lors d'un épisode de pluie.

## 7.4.2 Convertir la variation du taux de comptage en activité surfacique

Au cours d'un vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, un événement de pluie peut se déclencher et ainsi entraîner une forte augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . La campagne de mesure ne va pas s'arrêter du fait de ces conditions météorologiques capricieuses. Ainsi, pour estimer l'étendue de la contamination surfacique à partir des augmentations du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , une simulation Geant-4 est proposée. Celle-ci va permettre d'associer un comptage à une activité surfacique de  $^{214}\text{Bi}$  (1764 keV) de  $1 \text{ Bq.m}^{-2}$ .

Cette nouvelle simulation s'effectue dans les mêmes conditions environnementales simulées que celles réalisées précédemment pour le site P2OA-CRA. Les principales caractéristiques de l'environnement modélisé sont rappelées sur la figure 7.11. La géométrie du détecteur NaI(Tl) validée au cours de la calibration de l'efficacité de détection est toujours la même. La seule différence repose sur la géométrie de la source qui est ici une surface et non plus un volume.

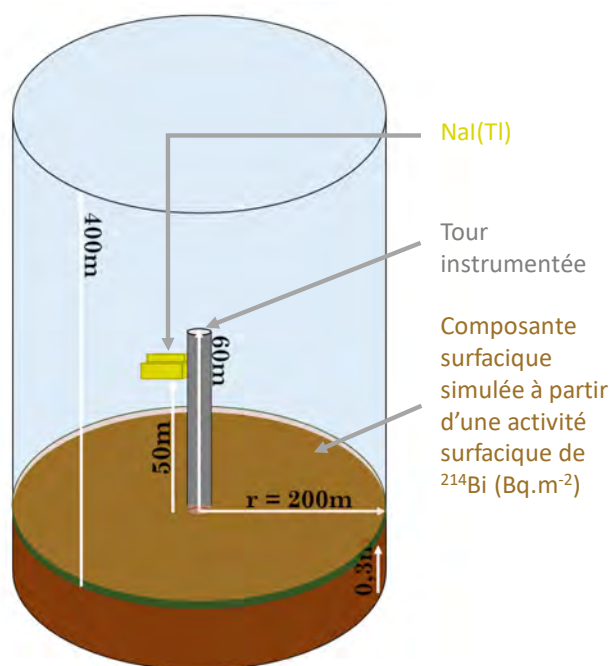


Figure 7.11 – Représentation schématique de l'environnement modélisé sous Geant-4 pour procéder à une simulation de la réponse du détecteur NaI(Tl) à une activité surfacique de  $^{214}\text{Bi}$ , en  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ .

En supposant une activité massique en uranium de  $60 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  sur 5 centimètres de profondeur, l'activité massique injectée dans la simulation est de  $3600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . En modifiant de manière proportionnelle toutes les variables pour obtenir une statistique de comptage la plus importante possible pour un temps de simulation raisonnable, le nombre de coups enregistrés par le détecteur offre un résultat viable.

D'après les résultats de cette simulation, en réponse à une contamination surfacique de  $3600 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ , le détecteur NaI(Tl) enregistre un taux de comptage dans la fenêtre du  $^{214}\text{Bi}$  de  $10,2 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ainsi, il est possible d'exprimer un taux de comptage ( $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$ ) en fonction d'une activité surfacique de  $^{214}\text{Bi}$  ramenée à  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . **Pour une augmentation de l'activité en surface du sol de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ , l'augmentation du taux de comptage associée dans la fenêtre de l'uranium-238 est de  $0,00287 \pm 0,00013 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$ .**

À partir de l'évolution du taux de comptage durant un événement de pluie, il est désormais possible d'estimer la contribution surfacique des fractions libre et attachée des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  qui ont été rabattues en surface du sol. En reprenant l'événement de pluie étudié sur la figure 7.9, le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  a augmenté de 78,9%, correspondant à une différence de  $12,7 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$ , entre les valeurs observées avant l'épisode de pluie et le pic maximum de comptage atteint lors de cet événement. En utilisant le facteur de conversion, cette augmentation de  $12,7 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$  correspond à une activité surfacique additionnelle à la surface du sol de  $4425 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}$ . **L'intérêt de cette conversion entre taux de comptage et activité surfacique repose sur le fait que ces valeurs sont directement liées à l'intégrale du profil atmosphérique de  $^{214}\text{Bi}$ .**

Les pluies fines, dont l'intensité n'est pas suffisamment importante pour être détectées avec le pluviomètre, vont par ailleurs participer à la mise en place d'une composante surfacique par rabattement des descendants du  $^{222}\text{Rn}$ .

Alors que le pluviomètre, qui a une sensibilité de 0,2 mm, n'est pas capable de

détecter ces événements, les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  montrent une augmentation liée à ces épisodes. Ainsi, le spectromètre  $\gamma$ , installé en position stationnaire sur le site P2OA-CRA, est à la fois capable d'offrir la possibilité de suivre l'humidité du sol et de détecter tous les événements de pluie, peu importe leur intensité. L'intérêt de la spectrométrie  $\gamma$  pour ces deux procédures de suivi temporel de ces deux paramètres environnementaux est indéniable. Le dimensionnement d'une station  $\gamma$  plus limitée en taille et volume permettrait son utilisation comme pluviomètre et sondes d'humidité du sol à différentes échelles spatiales.

## 7.5 Le radon atmosphérique, un bruit de fond du signal $\gamma$ tellurique

La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée cherche, en première application, à suivre uniquement l'évolution des abondances des radionucléides au sein du compartiment sol-roche. Ainsi, le radon atmosphérique et ses descendants ne peuvent être considérés que sous la forme d'un bruit de fond du signal  $\gamma$  mesuré qu'il est nécessaire de qualifier et quantifier pour éliminer son influence. En isolant, le signal  $\gamma$  atmosphérique du signal  $\gamma$  tellurique, de nombreuses applications issues de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pourraient être envisagées en considérant le radon et ses descendants.

### 7.5.1 La basse atmosphère et la couche limite atmosphérique

L'atmosphère est soumise à plusieurs types d'excitations extérieures qui peuvent être cycliques ou plus complexes associées à des irrégularités comme les interactions avec la surface du sol. En réaction, des circulations se mettent en place, en général dans le sens d'une homogénéisation de l'état fluide pour un retour vers l'équilibre. Ces circulations ont des dimensions spatiales et des périodes temporelles diverses.

L'atmosphère présente une structure verticale découpée entre l'atmosphère libre et la couche limite atmosphérique (CLA) qui est en contact avec la surface terrestre. Les gaz du sol qui migrent vers l'atmosphère sont donc exhalés dans cette couche limite. Le temps de réponse à un forçage  $y$  est court, de l'ordre de l'heure. Le mouvement de l'air a un caractère turbulent qui existe de façon presque continue. D'un point de vue thermique, la CLA est la zone de l'atmosphère dans laquelle la variation diurne du rayonnement solaire est directement perceptible. Son épaisseur varie dans le temps et dans l'espace et une valeur usuelle d'un kilomètre lui est attribuée [Garratt, 1994]. L'épaisseur de la couche limite atmosphérique suit la variation diurne de température dans la couche de surface.

Pendant la journée, le sol se réchauffe et l'augmentation de température se transmet depuis la couche de surface vers l'inversion de température (couche stable) au sommet de la couche limite atmosphérique. Le processus de transfert est convectif ce qui produit des turbulences vigoureuses donnant une couche bien mélangée (Zone C, figure 7.12) au-dessus de la couche de surface et en même temps fait croître l'épais-



seur de la couche limite atmosphérique. Les grandeurs associées au fluide telles que les gaz, la température, les quantités de mouvement sont donc homogénéisées au cours de la journée dans la CLA.

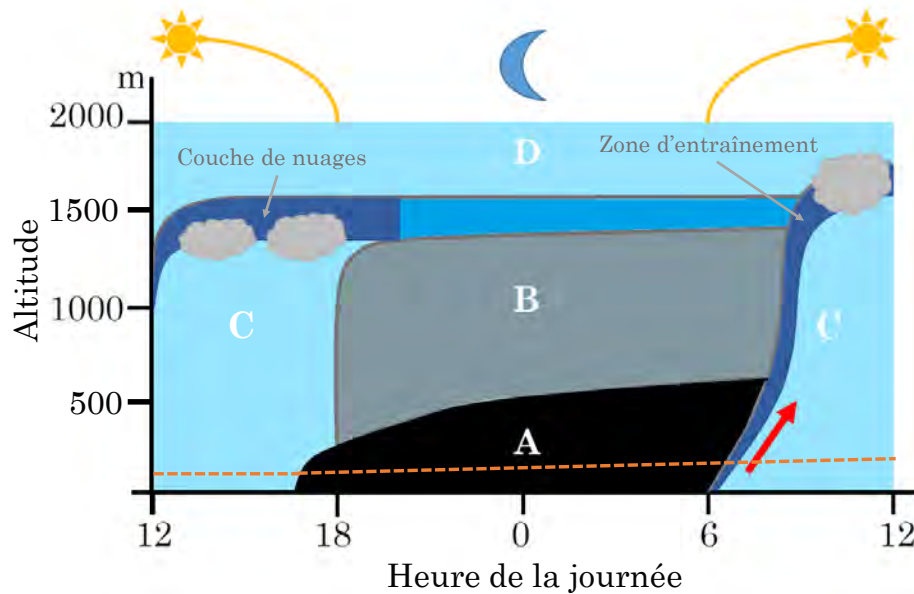


Figure 7.12 – Variation journalière de la composition de la CLA convective. La ligne orange en pointillés démarque la couche de surface. A et B définissent les zones résiduelles, C est la couche de mélange et D l'atmosphère libre.

Vers le coucher du soleil, la turbulence se dissipe et la couche mélangée, au-dessus de la couche de surface, se transforme en une couche résiduelle dont l'état moyen initial est celui de la couche mélangée avec stratification quasi neutre (Zones A et B, figure 7.12).

Pendant la nuit, grâce à l'inversion nocturne de température, la couche de surface devient stable par contact avec la surface refroidie par radiation et s'épaissit. La CLA nocturne est donc mince et caractérisée par une turbulence faible voire nulle. Il en résulte que les polluants et autres gaz émis au sein de cette couche stagnent et s'accumulent. L'air qui se trouve près du sol ne peut pas s'élever pendant la nuit, car il n'a pas assez d'énergie pour le faire. Cette énergie revient avec le lever du soleil. Dès lors, le sol puis l'air se réchauffent (flèche rouge, figure 7.12) et la couche qui était stable durant la nuit se disperse. L'air s'élève du sol vers le sommet de la CLA (Zone d'entraînement, figure 7.12) et permet à toutes les couches d'air de se mélanger de nouveau pendant la journée (Zone C, figure 7.12).

Le rayonnement solaire permettant de réchauffer le sol puis l'air n'est pas constant dans le temps et présente une variabilité saisonnière marquée en plus de la variabilité diurne. Ainsi, au cours d'une année, la CLA atteint sa valeur maximale en été (entre 1000 et 1500 mètres) et son minimum en hiver, aux alentours de 200 mètres [Hennemuth and Lammert, 2006, Liu and Liang, 2010]. La couche de mélange est donc plus réduite en hiver qu'en été et peut avoir une incidence sur la concentration en gaz. Le radon va donc suivre ces différentes dynamiques diurne et saisonnière de la CLA avec une accumulation la nuit se traduisant par des valeurs d'activité volumique plus importantes que celles de la journée [Feichter and Crutzen, 1990, Zahorowski et al., 2004, Williams et al., 2011, Florea and Dului, 2012, Botha et al., 2018].

## 7.5.2 Les variations temporelles du $^{222}\text{Rn}$ sur le site P2OA-CRA

Le suivi de l'activité volumique en  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère par les trois moniteurs de radon installés à 1 m, 30 m et 60 m sur la tour instrumentée a débuté le 29 Novembre 2018 et est encore actif. Il couvre donc désormais plus de deux ans de mesures sur le site P2OA-CRA.

La chronique temporelle a été réduite à la période couverte par les mesures de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée qui s'étend entre les mois d'**Avril 2019 et de Juin 2020** pour optimiser les analyses.

### Le traitement des données brutes

Le suivi de l'**activité volumique du radon-222 atmosphérique** par l'intermédiaire des trois détecteurs de radon-222 installés sur la tour instrumentée s'opère par diffusion sur une base de mesure horaire. La calibration des bruits de fond instrumentaux (cf. Chapitre 3), qui a été réalisée en environnement contrôlé pour chaque moniteur de radon-222, est appliquée sur les données brutes horaires enregistrées. De plus, dans un souci d'harmonisation des données avec les autres instruments, une valeur enregistrée à 12 heures par le détecteur de radon-222 correspond aux mesures de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  opérées sur le créneau horaire 12h - 13h. Au cours de ces deux années d'acquisition, aucune perte de données n'est à recenser.

Dans les graphiques de ce chapitre, les appellations *radon-222 et  $^{222}\text{Rn}$*  font référence à la moyenne par heure des valeurs des trois détecteurs de  $^{222}\text{Rn}$  installés sur le site. Cette opération permet d'associer une seule valeur d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à la colonne d'air comprise entre le compartiment sol et le détecteur. Toutefois, les mesures indépendantes sont conservées pour permettre d'étudier la dynamique du profil de radon-222 atmosphérique au sein de cette couche de la basse atmosphère compris entre 0 et 60 mètres. Les dénominations *radon-1, radon-30 et radon-60* font référence à la hauteur d'installation du détecteur sur le mât météorologique.

### La chronique temporelle du $^{222}\text{Rn}$

La chronique temporelle du  $^{222}\text{Rn}$  est consultable sur la figure 7.13. Les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  présentent une grande variabilité au cours de cette période de mesure entre les mois d'**Avril 2019 et de Juin 2020** et se caractérisent par une valeur moyenne de  $3,69 \pm 0,16 \text{ Bq.m}^{-3}$ . La gamme de variation s'étend entre 0 et  $14 \text{ Bq.m}^{-3}$  et confirme une tendance régulièrement observée sur des sols épais où en présence de roches sédimentaires dont la concentration en uranium est inférieure à  $50 \text{ Bq.kg}^{-1}$  [Demongeot, 1997, Zahorowski et al., 2004, Girault, 2011, Florea and Dului, 2012, Botha et al., 2018].

Une variation saisonnière de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  mesurée semble se dégager avec des activités volumiques supérieures à la moyenne de la période plus régulières sur les saisons estivale et hivernale. Les occurrences de dépassement de la valeur de  $8 \text{ Bq.m}^{-3}$ , qui correspond presque au double de la valeur moyenne, sont également plus nombreuses sur cet intervalle de temps compris entre **fin Juin 2019 et Octobre 2019** (rectangle vert). L'activité volumique moyenne sur cette période

estivale est de  $4,57 \pm 0,24 \text{ Bq.m}^3$  soit environ 25% de plus que la moyenne annuelle. Les valeurs d'humidité du sol sont les plus faibles (Figure 7.14) et les flux de radon mesurés au cours de cette période étaient les plus élevés (Cf. Chapitre 5).

En ce qui concerne la période hivernale (rectangle jaune figure 7.13) :

- La moyenne hivernale est de  $3,72 \pm 0,15 \text{ Bq.m}^{-3}$ , similaire à celle annuelle.
- Entre les mois de **Décembre 2019 et Février 2020**, 61 % des activités volumiques mesurées sont supérieures à la moyenne annuelle avec une proportion non négligeable d'événements supérieurs à  $8 \text{ Bq.m}^{-3}$ .
- Le mois de **Janvier 2020** se caractérise par des activités volumiques presque toujours supérieures à la valeur moyenne annuelle.

En hiver, l'humidité du sol présente une moyenne saisonnière la plus élevée de l'année (Figure 7.14) et les mesures de flux de radon-222 réalisés sur le site se caractérisent par des valeurs minimales.

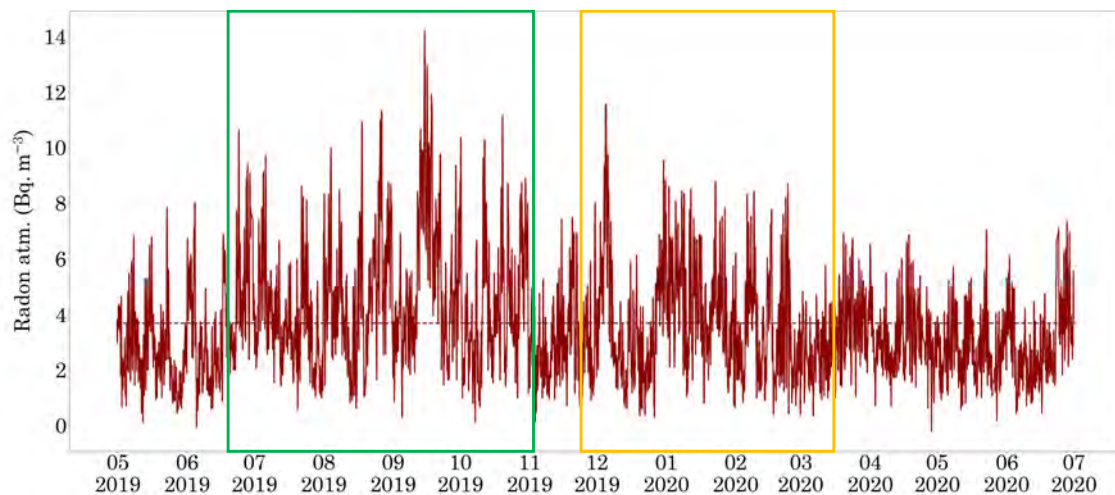


Figure 7.13 – Chronique temporelle de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  moyenne telle qu'enregistrée par les trois détecteurs de radon-222 installés à 1, 30 et 60 mètres sur la tour instrumentée, pour la période Avril 2019 - Juin 2020, sur une base horaire.

Si un sol plus sec semble favoriser une augmentation de flux de radon et tend à expliquer la moyenne saisonnière estivale élevée, ce n'est pas le cas pour la saison hivernale. En effet, lorsque la proportion d'eau au sein de l'espace poral est beaucoup plus importante que celle dédiée à l'air, le  $^{222}\text{Rn}$  qui migre dans le sol, est de plus en plus freiné. La proportion de  $^{222}\text{Rn}$  produit dans le sol qui peut atteindre l'atmosphère est ainsi réduite. Ce phénomène affecte l'influence de la production locale de  $^{222}\text{Rn}$  sur l'activité volumique mesurée dans le compartiment atmosphérique. En l'absence d'une contribution régionale de radon-222, les mesures d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique effectuées en présence de valeurs élevées d'humidité du sol doivent donc être minimisées par rapport à celles observées pour un sol plus sec. Ainsi, une explication plus régionale pourrait être privilégiée pour expliquer ces importantes valeurs de radon-222 observées sur cette période hivernale, par l'intermédiaire de déplacement des masses d'air plus chargées en radon-222 par les vents dominants. L'épaisseur de la couche limite atmosphérique moins épaisse en hiver peut aussi être à l'origine d'une augmentation de l'activité volumique de

$^{222}\text{Rn}$  proche de la surface et ainsi compenser la diminution du flux de  $^{222}\text{Rn}$  liée à une humidité du sol plus grande.

En analysant la chronique complète du  $^{222}\text{Rn}$ , les mois du printemps (**Mars à Juin**) pour les deux années 2019 et 2020 montrent une moyenne saisonnière inférieure à la moyenne annuelle :  $2,79 \pm 0,20 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . La différence entre les moyennes estivale et printanière dépasse les 50 %. Les teneurs en eau volumique sont élevées sur toute la période (Figure 7.14) et semblent toujours influencer le flux de radon-222 mesuré (Cf. Chapitre 5). La contribution régionale est limitée sur le site, soit à cause d'une vitesse moyenne de vent faible qui influe sur le déplacement des masses d'air, soit les vents dominants ne sont pas autant chargés en radon-222 que pour les saisons estivale et hivernale.

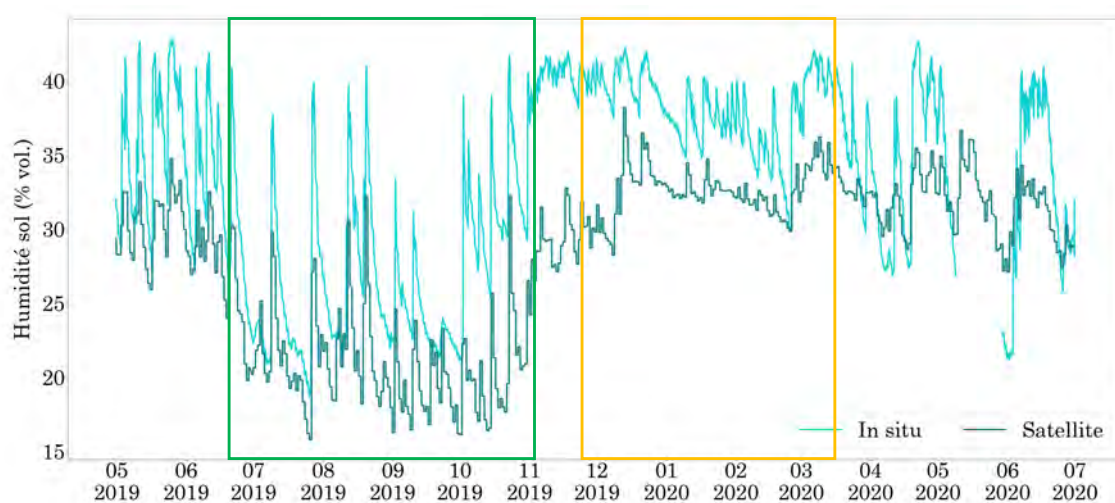


Figure 7.14 – Chronique temporelle des humidités du sol issues des mesures *in situ* et de la télédétection satellitaire exprimées en % volumique sur la période Avril 2019 - Juin 2020. La chronique *in situ* est réalisée à partir des mesures intégrées sur une base horaire et celle du satellite sur une base journalière. Les mesures varient entre 18 et 43 % vol. (*in situ*) et entre 16 et 38% (satellite).

Cette analyse au premier ordre sur la chronique temporelle de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  permet de montrer une certaine variabilité saisonnière au cours de ces 14 mois d'acquisition concentrés sur la période **Avril 2019 - Juin 2020**. Si la période estivale entre **Juillet et Octobre 2019**, où les valeurs maximales sont très régulièrement atteintes, semble être synchronisée des observations faites sur l'augmentation de la moyenne des taux de comptage, ce n'est pas le cas de la saison hivernale. Cela implique la présence d'autres mécanismes ou facteurs à prendre en compte pour expliquer ces valeurs élevées sur ces deux périodes.

La rose des vents du radon-222 atmosphérique mesurée par les détecteurs de radon AlphaGUARD® à partir de la direction des vents mesurée à 15 m sur le mât météorologique du site P2OA-CRA (Figure 7.15), montre que les vents d'Ouest sont dominants, puis viennent les vents du Nord-Ouest et enfin du Sud. Les vents du Sud, en provenance des Pyrénées, ont une activité volumique moyenne en  $^{222}\text{Rn}$  supérieure à celle des vents d'Ouest puis des vents du Nord-Ouest.



En comparant ces valeurs à la carte de concentration de l'uranium, exprimée en ppm, dans la couche de sol de surface (0 - 5 cm) (Figure 7.15 b), les vents du Sud proviennent des Pyrénées qui présentent les teneurs en uranium les plus élevées, dans cette zone géographique autour du site de Lannemezan. Les vents du Sud sont donc naturellement plus chargés en radon-222 que les vents d'Ouest, eux-aussi continentaux, ou les vents du Nord-Ouest. Ces derniers, en provenance de l'Océan Atlantique, circulent en premier lieu au niveau d'une zone où la teneur en uranium dans les sols est faible.

D'après [Hulin et al., 2019], des phénomènes de brises thermiques entre les Pyrénées et le piémont pyrénéen se mettent en place tout au long de l'année avec une fréquence augmentée l'été et l'automne, ce qui explique la relative importance des vents de direction Sud mesurés sur le site P2OA-CRA. Une étude détaillée sur ces problématiques de dynamique et circulation du radon-222 atmosphérique entre les Pyrénées (détecteur de radon-222 atmosphérique sur le site P2OA du Pic du Midi) et le site P2OA-CRA a été encadrée durant cette thèse (Stage de M2 de Gabriela Galdamez, en collaboration avec le Laboratoire d'Aérodologie). Une comparaison avec un modèle de circulation globale du  $^{222}\text{Rn}$  a également été réalisée.

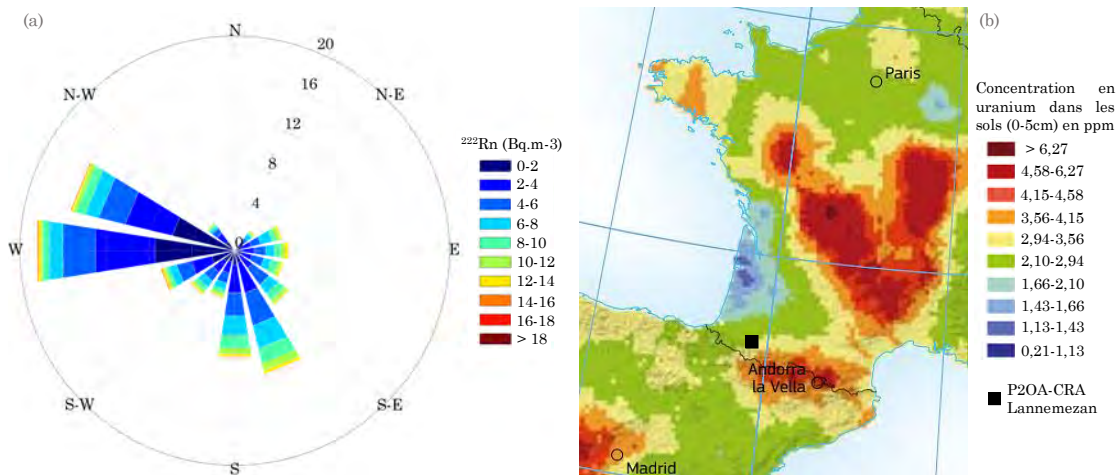
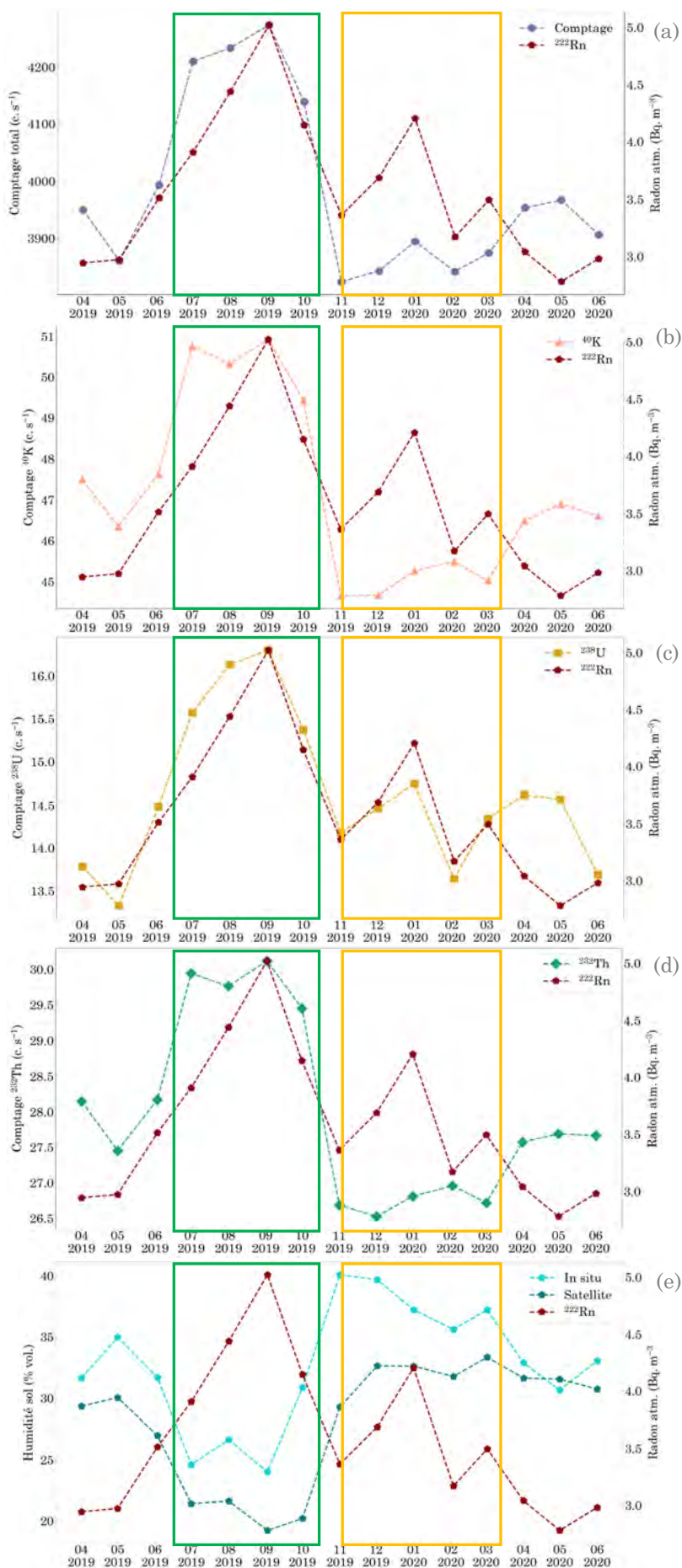


Figure 7.15 – (a) Rose des vents du radon-222 atmosphérique d'après les données d'activité volumique mesurées par les AlphaGUARD® et les mesures de direction des vents à une hauteur de 15 m réalisées sur le mât météorologique du site P2OA-CRA. (b) Carte de concentration en uranium dans les sols (0-5 cm), exprimée en ppm, d'après [European Commission. Joint Research Centre., 2019].

Les variations saisonnières de  $^{222}\text{Rn}$  sur la période Avril 2019 - Juin 2020 se dessinent sur les chroniques des **moyennes mensuelles** (Figure 7.16). Les données liées aux précipitations ont été exclues afin de ne pas prendre en compte le biais de mesure issu de la composante surfacique d'émissions de photons  $\gamma$  créée lors du rabattement des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  dans les fenêtres d'énergie du comptage total et du  $^{238}\text{U}$ . En ôtant ce jeu de données reliées aux événements pluvieux, ces augmentations soudaines de taux de comptage ne sont plus prises en compte dans le calcul des moyennes mensuelles. De ce fait, il est plus facile d'observer l'évolution du  $^{222}\text{Rn}$  de la composante atmosphérique et son impact éventuel sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et par conséquent sur celui du comptage total.



Figure 7.16 – Chroniques des moyennes mensuelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $c.s^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du  $^{40}K$  ( $c.s^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du  $^{238}U$  ( $c.s^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du  $^{232}Th$  ( $c.s^{-1}$ ), (e) de l'humidité du sol in situ et par satellite (% vol.). Le radon-222 est représenté sur chaque chronique. La zone encadrée en vert représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants tout comme l'activité volumique de  $^{222}Rn$ . Au niveau de la zone encadrée en jaune, les taux de comptage sont les moins élevés.



Les variations saisonnières mensuelles à l'échelle estivale puis hivernale sont d'abord présentées. Les observations faites sur la saison estivale (rectangle vert) indiquent que :

- Une augmentation en début de période et une diminution rapide en fin de période sont observées sur tous les graphiques associés aux taux de comptage et au  $^{222}\text{Rn}$ , l'inverse est avéré pour les données de teneur en eau volumique.
- L'ensemble des taux de comptage présente des valeurs maximales sur toute la période estivale mais atteignent leur apogée respective pour le mois de **Septembre 2019** : 4273,99 c.s<sup>-1</sup> pour le comptage total (a), 53,77 c.s<sup>-1</sup> pour le  $^{40}\text{K}$  (b), 16,30 c.s<sup>-1</sup> pour le  $^{238}\text{U}$  (c), 30,12 c.s<sup>-1</sup> pour le  $^{232}\text{Th}$  (d).
- L'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  atteint également sa valeur maximale au niveau du mois de Septembre 2019, 5,02 Bq.m<sup>-3</sup>.
- Les humidités du sol *in situ* et par télédétection satellitaire montrent chacune une valeur minimale de 24,03 % et 19,49 %.

De nouveau, les faibles valeurs d'humidité observées sont associées aux plus fortes activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  et semblent confirmer l'influence grandissante du compartiment tellurique sur les valeurs d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique mesurées sur cette période.

En ce qui concerne la saison hivernale représentée par un rectangle jaune sur la figure 7.16, plusieurs observations générales peuvent être faites :

- Entre les mois de **Novembre 2019 et Janvier 2020**, les trois chroniques du  $^{238}\text{U}$ , du comptage total et du  $^{222}\text{Rn}$  montrent une augmentation synchrone de leur signal respectif associée à une valeur d'humidité du sol très élevée (38% vol.).
- Le mois de **Janvier 2020** caractérise le pic maximum atteint par ces trois chroniques sur cette période hivernale.
- L'augmentation du taux de comptage total sur cette période est corrélée uniquement à celle du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  étant stables sur les mois investigués.

Une seconde augmentation de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est observée entre les mois de **Février et Mars 2020**. Celle-ci est synchrone de celles visibles sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et du comptage total ainsi que de la teneur en eau volumique du sol, mais pas sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Sur cette période, la baisse du taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  est induite par une augmentation de l'atténuation dans le sol par une humidité en constante augmentation. Ce phénomène n'est toutefois pas observé sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . La compétition entre les effets induits par teneur en eau volumique et activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est à l'avantage du compartiment atmosphérique par rapport au compartiment sol lorsque l'évolution de la teneur en eau du sol est relativement modérée.

En s'intéressant à la période **Avril-Mai 2019**, qui est marquée par les valeurs minimales d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sur une constante d'environ 3 Bq.m<sup>-3</sup>, il peut être noté une diminution du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  d'environ 3,68 %. Parallèlement, les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  sont également marqués par une diminution de 2,49 et 2,55 % respectivement. Cette baisse des taux de comptage

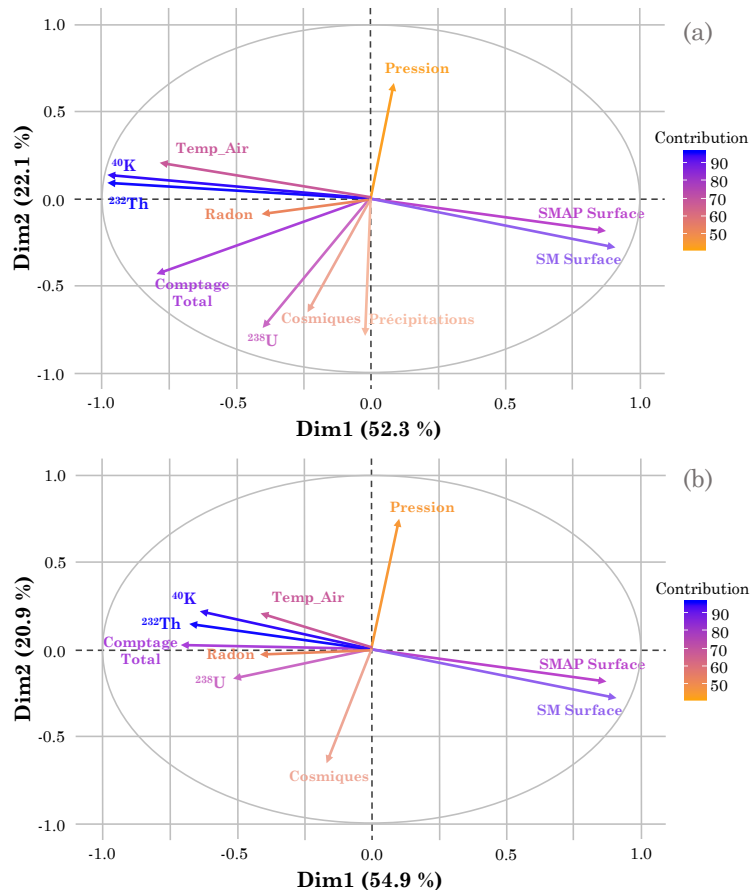
est reliée à une augmentation synchrone de la teneur en eau volumique de 3,33 %. Dès lors que l'activité volumique en  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique ne varie pas, l'influence sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  se révèle constante. L'effet d'une variation de la teneur en eau volumique dans le sol peut donc s'observer également sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  comme elle peut être marquée sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ .

En l'absence des événements de précipitations qui influencent les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et par conséquent le comptage total, la compétition entre les variations de la teneur en eau volumique du sol et l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique est plus facilement identifiable. En présence d'une valeur constante de  $^{222}\text{Rn}$ , la variation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en fonction de celle de la teneur en eau volumique du sol peut être observée et quantifiée tout comme celles des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Dans le chapitre précédent, il était difficile sur les chroniques temporelles de parvenir à cette conclusion.

### Une analyse en composantes principales

Suite à cette étude sur les chroniques temporelles, deux analyses en composantes principales ont été réalisées et présentées sur la figure 7.17. La première ACP a utilisé le jeu de données total où les événements de pluie sont inclus (Figure 7.17 a). La base de données filtrées des précipitations est associée à la seconde ACP (Figure 7.17 b). En plus des variables précédemment citées, ces deux ACP ajoutent les paramètres météorologiques que sont la pression atmosphérique et la température de l'air ainsi que le taux de comptage associé aux rayons cosmiques.

Figure 7.17 – (a) Les deux dimensions de l'ACP permettent d'expliquer 74,4 % des variations. (b) L'ACP réalisée sur la base de données filtrées des événements de précipitation montrent deux dimensions qui expliquent 75,8 % des variations.



La première ACP montre deux dimensions très marquées qui expliquent 74,4% des variations observées. Les deux dimensions de la seconde ACP expliquent 75,8% des variations observées avec une dispersion des variables moins visible. Ces deux ACP permettent de confirmer plusieurs points préalablement envisagés :

- Effet de l'humidité du sol sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et sur le  $^{222}\text{Rn}$  (anti-corrélation) pour des raisons propres à chaque variable : atténuation des rayons  $\gamma$  dans un cas et incidence sur la diffusion du  $^{222}\text{Rn}$  dans les pores du sol.
- Le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est piloté à la fois par l'humidité du sol, les précipitations et le  $^{222}\text{Rn}$ . L'influence de l'humidité du sol et celle du  $^{222}\text{Rn}$  sont encore plus marquées quand les précipitations sont retirées de l'analyse.
- Les précipitations, et donc les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et du comptage total, sont anti-corrélés à la pression atmosphérique puisque les phénomènes de dépression sont associés aux événements de pluie.
- La pression atmosphérique et le rayonnement cosmique sont anti-corrélés.

La grande variabilité de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  observée sur cette période d'acquisition de 14 mois montre une influence notable au cours du temps sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  mais vient après l'effet des précipitations en terme d'impact.

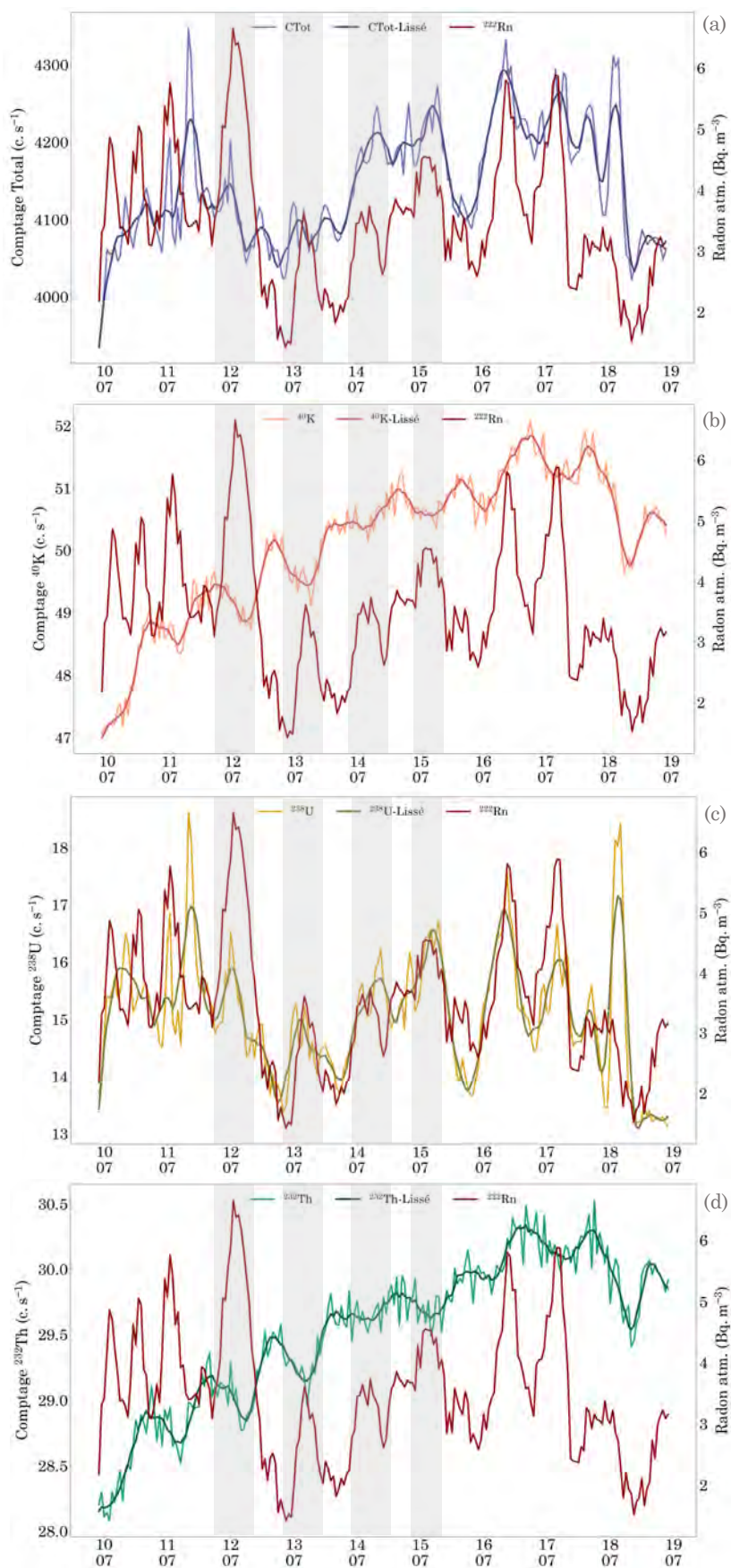
### L'analyse du cycle diurne

Les variations du signal  $\gamma$  sont étudiées sur une période de 9 jours entre le 10 et 19 Juillet 2019 (Figure 7.18) parallèlement à celles du  $^{222}\text{Rn}$ . Au cours de cette période de la saison estivale, un seul événement de précipitation est enregistré au cours de la journée du 18 Juillet 2019. Il est important de rappeler que sur cette même période, la teneur en eau volumique mesurée *in situ* diminue de 10 % en présentant un cycle diurne très marqué où les valeurs maximales sont atteintes la nuit et les valeurs minimales en milieu d'après-midi. Sur cette période étudiée dans un but de caractérisation d'un cycle diurne du  $^{222}\text{Rn}$  et de son effet associé sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , les observations qui peuvent être faites sont :

- La courbe du  $^{222}\text{Rn}$  montre un cycle diurne marqué avec une valeur maximale retrouvée la nuit, entre 20 heures et 6 heures du matin, et une valeur minimale caractérisée plutôt en milieu d'après-midi, vers 16 heures.
- Les courbes représentant l'évolution du taux de comptage total, du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et celle de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  sont relativement similaires mais avec des gammes de variation différentes.
- L'augmentation de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est de 133 % entre le 12 et le 13 Juillet quand elle n'est que de 12 % pour le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sur une période d'environ 8 heures. Une diminution des deux signaux s'ensuit de 75 % pour l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  et de 7,5 % pour le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , sur une période d'environ 10 heures. Ces variations sont particulièrement observables sur tous les rectangles gris présents sur la figure 7.18.
- Sur ce même créneau horaire, les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  présentent une baisse notable d'environ 1,20 %. Cette diminution du taux de comptage pour ces deux radionucléides, observées la nuit, sont associées au cycle diurne de la teneur en eau volumique dans le sol comme discuté au sein du chapitre 6



Figure 7.18 – Chroniques temporelles centrées sur la période du 10 au 19 Juillet 2019 en l'absence d'événements de pluie pour le taux de comptage total (a), le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (b), le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  (c) et du taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  (d). Un lissage sur 12 heures a été opéré pour limiter les perturbations statistiques (courbes de couleur foncée). Dans chaque graphique, la courbe de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sur la même période est présentée.





L'influence du  $^{222}\text{Rn}$  est bien marquée sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et semble dominer entièrement l'évolution temporelle du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  par rapport à l'effet de l'humidité du sol. À l'inverse, seule la teneur en eau volumique semble affecter le signal  $\gamma$  aux énergies caractéristiques du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . L'anti-corrélation diurne montrée par la figure 7.18 entre les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  avec l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  tend à le confirmer. Cette période d'analyse d'une dizaine de jours permet de mettre en avant **la présence d'un cycle diurne de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$** .

Par l'étude de l'évolution des taux de comptage des radionucléides, couplée à celle de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sur cette période du **10 au 19 Juillet 2019**, il a été possible de confirmer que l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  observait la même évolution que celle du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Cette remarque tend à considérer le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique comme le facteur encore responsable des différences d'évolution entre le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et ceux du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . L'évolution de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est très variable au cours d'une période donnée avec des ordres de grandeur pouvant passer du simple au double même sur un cycle diurne. Au regard de ces variations très rapides identifiées sur l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$ , le compartiment atmosphérique montre un côté très versatile. Le compartiment atmosphérique est une zone de mélange où des turbulences sont observées en continu et marquée par la présence de vents ou de cellules thermiques. Ainsi, d'une journée à l'autre ou même entre le matin et l'après-midi, les conditions atmosphériques ne sont pas constantes. L'impact sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est donc variable et cette variabilité doit pouvoir être prise en compte à l'échelle diurne et saisonnière au sein d'un protocole de correction de cet effet.

La reconstitution d'une **journée composite** sur la base des 10152 données horaires acquises durant cette campagne de mesure permet d'observer l'évolution des taux de comptage total, du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  sur la figure 7.19 (a, c, e, g, i). Ce travail a également été réalisé sur le jeu de données filtrées des événements de précipitations pour les mêmes paramètres (Figure 7.19 b, d, f, h, j). L'objectif de ce filtrage est toujours d'éliminer l'influence des précipitations sur le taux de comptage total et celui du  $^{238}\text{U}$  afin de pouvoir observer la présence d'autres effets sur ces signaux  $\gamma$  mesurés.

Le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  présente un cycle diurne corrélé à celui de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  (Figure 7.19 e, f, i, j). Les valeurs maximales sont observées la nuit, notamment entre 1h et 6h, alors que les valeurs minimales sont concentrées en milieu d'après-midi, entre 14 h et 18 h. Ces cycles diurnes sont également corrélés avec celui de la teneur en eau volumique dans le sol. Si les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  présentent un cycle diurne anti-corrélé à celui de l'humidité du sol *in situ*, alors le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  devrait également observer une anti-corrélation avec ce paramètre. D'après les analyses faites dans le chapitre 4, cette anti-corrélation diurne avec la teneur en eau volumique n'est pas visible sur le cycle diurne composite du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . L'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  semble être un facteur d'influence dominant sur le signal  $\gamma$  du  $^{238}\text{U}$ . En éliminant cet effet indésirable du compartiment atmosphérique, l'anti-corrélation entre taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et teneur en eau volumique devrait ressortir et donc servir de point de vérification à la correction proposée.

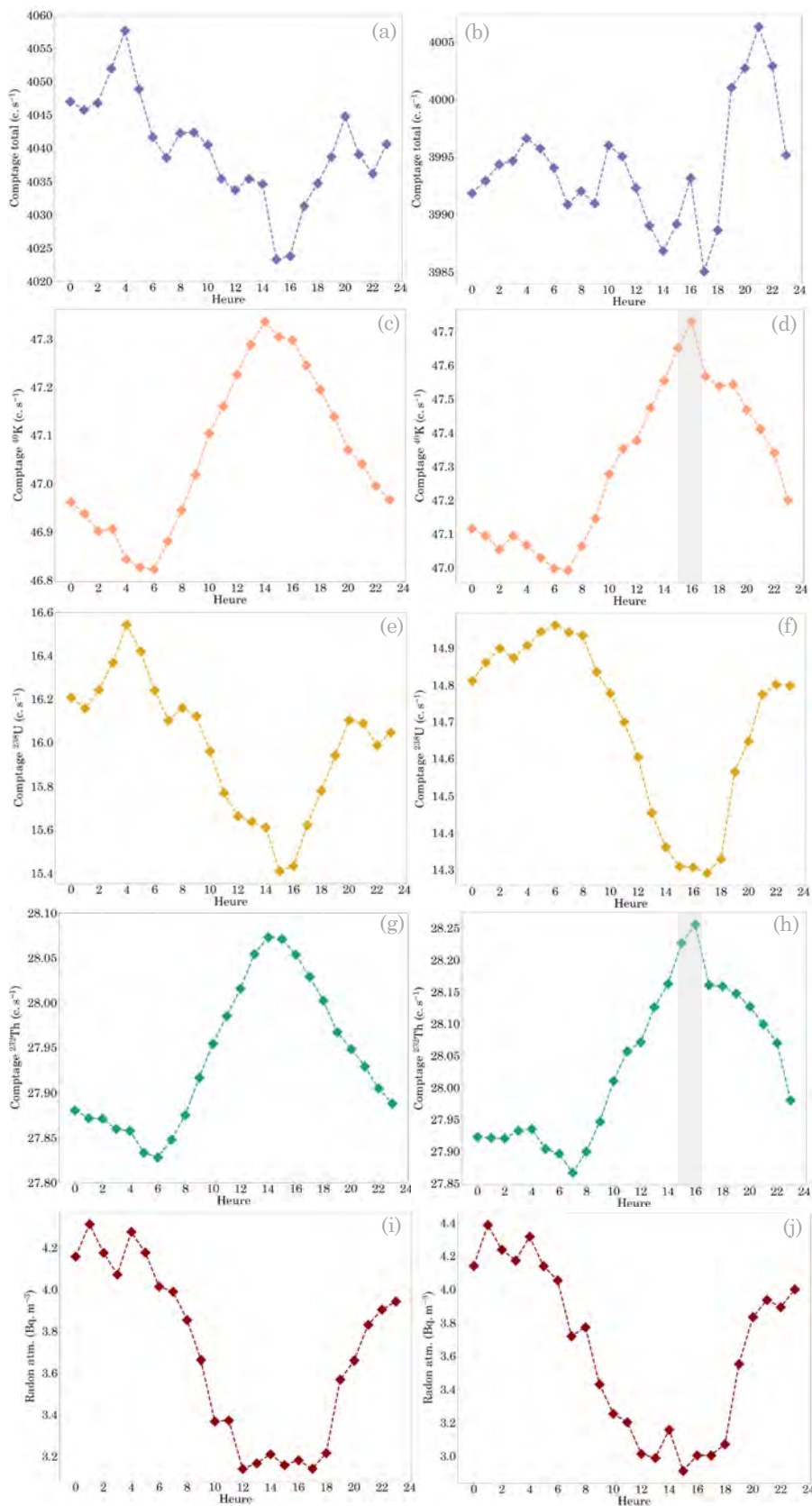


Figure 7.19 – Évolution diurne sur une base composite des 10152 acquisitions horaires des taux de comptage total (a),  $^{40}\text{K}$  (c),  $^{238}\text{U}$  (e),  $^{232}\text{Th}$  (g) et de l'activité du  $^{222}\text{Rn}$  (i). Le cycle diurne sur une base composite des données filtrées des événements de précipitations est proposé pour le taux du comptage total (b),  $^{40}\text{K}$  (d),  $^{238}\text{U}$  (f),  $^{232}\text{Th}$  (h) et de l'activité du  $^{222}\text{Rn}$  (j).

Les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  marquent un cycle diurne anti-corrélé à celui de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$ . L'accumulation nocturne de  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère suite à l'effondrement de la couche limite n'est toutefois pas associable à l'augmentation de la teneur en eau volumique dans le sol et donc de l'atténuation sur cette même période qui diminue les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . La comparaison entre les cycles diurnes de ces taux de comptage établis à partir de la base de données totale et celle filtrée des événements de pluie, montre des courbes similaires avec des valeurs supérieures pour le jeu de données filtrées. L'influence de la pression atmosphérique, observée sur le créneau horaire 2h-4h sur les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (Figure 7.19 c, d) et du  $^{232}\text{Th}$  (Figure 7.19 i, j), est clairement identifiable sur le créneau 15h-16h pour le jeu de données filtrées des précipitations (rectangle gris).

### La périodicité des signaux atmosphériques par analyse de Fourier

Une analyse du spectre de Fourier de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  (Figure 7.20), révèle la présence d'un cycle diurne très marqué également présent sur tous les taux de comptage des radionucléides. Le cycle diurne du  $^{222}\text{Rn}$  est associée à celui de la couche limite atmosphérique avec une accumulation du  $^{222}\text{Rn}$  la nuit lorsqu'il n'y a plus de mélange entre la couche de surface et les autres couches résiduelles de la basse atmosphère.

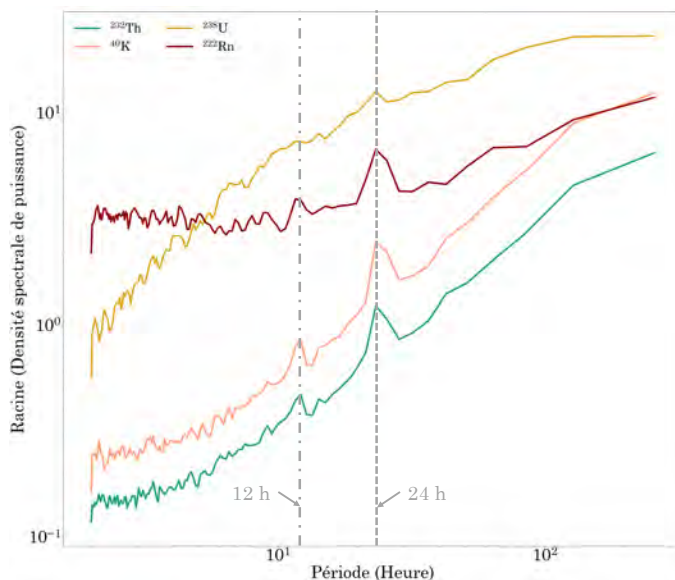


Figure 7.20 – Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{238}\text{U}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$ .

En plus d'un cycle diurne associé à celui de l'humidité du sol ou de la dynamique de la couche limite pour le radon-222, les spectres de Fourier révèlent la présence d'un cycle semi-diurne sur ceux de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . La ressemblance entre les spectres des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  avec celui de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  peut être considérée comme indirecte et reliée uniquement à la pression atmosphérique puisque le  $^{222}\text{Rn}$  n'a aucune influence sur ces taux de comptage.

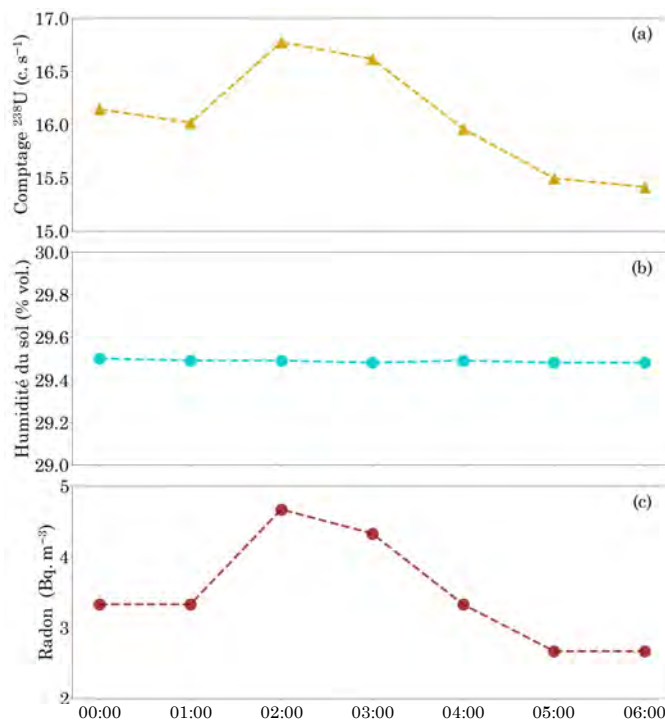
### 7.5.3 L'influence du radon-222 atmosphérique sur le taux de comptage de l'uranium-238

Afin d'observer et de caractériser l'influence du radon-222 atmosphérique sur la mesure du taux de comptage de l'uranium-238 au sein de la chronique temporelle, les variations de ce taux de comptage, de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  et de l'humidité du sol ont été étudiées, d'abord sur la période 00h à 06h. En effet, si une augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est observée pendant cette période, alors que l'humidité du sol demeure constante, cette augmentation peut être attribuée au radon-222 atmosphérique. Il est nécessaire de s'assurer que les précipitations ne sont pas en cause avant de conclure sur un effet du  $^{222}\text{Rn}$ . Dans le cas où toutes ces conditions sont réunies, cette augmentation est associée à un *événement radon*.

#### Les événements radon, une composante additionnelle au signal $\gamma$

La figure 7.21 présente un exemple d'événement typique du radon-222, observé le 02 Mai 2019 sur la période 0h - 06h. Elle compare le taux de comptage moyen horaire du  $^{238}\text{U}$  en  $\text{c.s}^{-1}$  (a), la teneur en eau volumique du sol *in situ* en pourcentage volumique (b) et l'activité du radon-222 atmosphérique en  $\text{Bq.m}^{-3}$  (c). Aucun événement de précipitation n'est à signaler sur un créneau de 24 heures encadrant cette période d'étude.

Figure 7.21 – Évolution sur la période 0h - 06h du 02 Mai 2019 (a) du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en  $\text{c.s}^{-1}$ , (b) de l'humidité du sol en % vol. et (c) de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  en  $\text{Bq.m}^{-3}$ . Les courbes du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{222}\text{Rn}$  sont très proches, alors que celle de l'humidité du sol est constante sur toute la durée de l'événement.



La teneur en eau du sol est constante sur toute la période de 6 heures avec une valeur moyenne de 29,5% vol. et une dispersion de 0,01% vol. pendant cet événement. Les tendances du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  sont très semblables, avec une valeur maximale observée à 1h du matin (16,8  $\text{c.s}^{-1}$  et 4,7  $\text{Bq.m}^{-3}$ , respectivement), suivie d'une diminution constante jusqu'à 6h du matin. Une perte de 1,36  $\text{c.s}^{-1}$  est associée à une diminution de l'activité volumique

du radon-222 atmosphérique de  $2 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Une augmentation de 40% de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère ( $1,33 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) entraîne une augmentation de 5% du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $0,75 \text{ c.s}^{-1}$ ) entre 1h et 2h du matin.

Ce protocole d'étude a été appliqué sur la période d'**Avril 2019 à Février 2020** pour toutes les augmentations du taux de comptage dont l'humidité du sol ou les précipitations n'étaient pas responsables. Après plusieurs vérifications, **au moins 350 événements liés au radon-222 ont été recensés sur cette période temporelle**. 54,5% de ces événements, soit 191 au total, sont associés à la période nocturne comprise entre 20h et 07h. 45,5% des événements, soit 159 sur les 350 reportés, le sont en période diurne entre 08h et 19h. Une petite majorité d'événements radon est donc retrouvée la nuit lorsque la turbulence dans la couche de mélange est quasi nulle et permet l'accumulation du radon dans une couche de surface proche de la surface du sol. Sur une échelle saisonnière, 75% des événements radon identifiés sont concentrés sur les mois de **Mai à Septembre 2019**. Sur la chronique temporelle du radon-222 (Figure 7.13), cette période est associée à des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  plus importantes que le reste de l'année du fait d'un sol plus sec.

Ainsi, ce sont 223 profils d'augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  induite par une augmentation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  qui ont été étudiés suivant ce protocole. Sur les 350 profils annoncés précédemment, le choix a été fait de simplifier la gamme de 0 à  $2 \text{ Bq.m}^{-3}$  et d'exclure une partie des événements redondants. Pour ces 223 événements radon, les augmentations des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en fonction de l'augmentation synchrone de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sont présentées sur la figure 7.22, pour les composantes *Down* et *Up* du spectromètre.

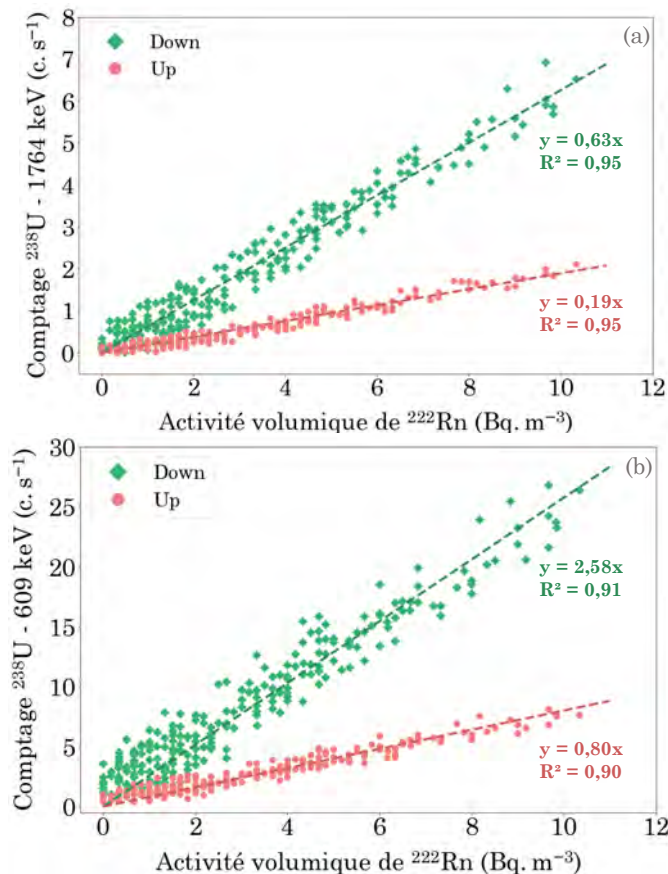


Figure 7.22 – Augmentation des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV (a) et pour celle du photopic à 609 keV (b) en fonction de l'augmentation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée par les AlphaGUARD®. Les composantes *Down* et *Up* présentent des corrélations linéaires positives entre ces deux variables. Les droites de corrélation permettent d'identifier l'augmentation du taux de comptage dont est responsable  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  de  $^{222}\text{Rn}$ . La composante *Down* se compose de 4 cristaux.



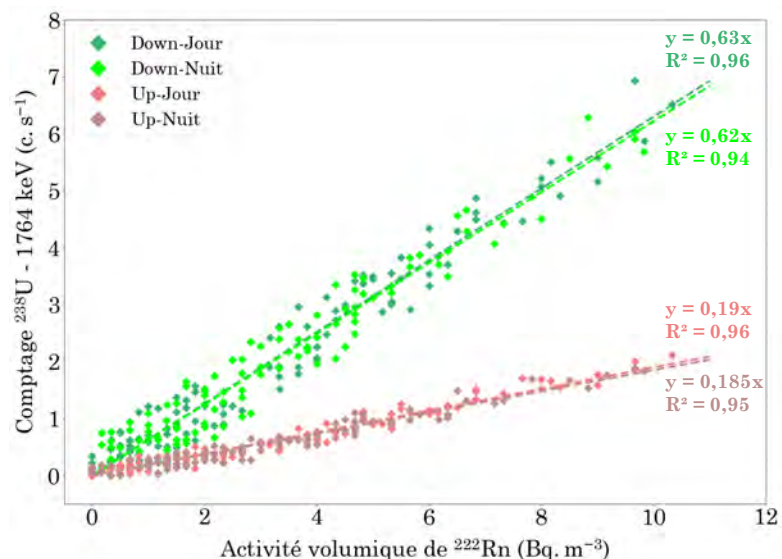
Le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  dans la fenêtre d'énergie préconisée par l'AIEA [IAEA, 1991] à 1764 keV (a) a été extrait par la méthode des fenêtres (Cf. Chapitre 4). Le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  dans la fenêtre d'énergie à 609 keV (b) a été extrait par la méthode de la ligne de base développée dans cette thèse (Cf. Chapitre 4). La gamme de variation de l'augmentation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , pendant ces *événements radon*, s'étend de 0 à  $10,5 \text{ Bq.m}^{-3}$ , pour des mesures de radon-222 effectives comprises entre 0 et  $18,33 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Que ce soit pour les composantes *Down* et *Up*, aux deux énergies, les augmentations du taux de comptage en  $^{238}\text{U}$  et de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  montrent de très fortes corrélations linéaires positives avec des coefficients de détermination supérieurs à 0,9 dans tous les cas de figure.

À partir des pentes des droites linéaires de corrélation, une estimation graphique permet de dire que pour chaque  $\text{Bq.m}^{-3}$  de radon supplémentaire détecté dans l'atmosphère, le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  (1764 keV) augmente de  $0,63 \pm 0,06 \text{ c.s}^{-1}$  pour la composante *Down* et de  $0,19 \pm 0,02 \text{ c.s}^{-1}$  pour la composante *Up*. En normalisant la composante *Down* par son nombre de détecteur, la pente de chaque cristal de la composante *Down* est inférieure à celle de la composante *Up* :  $0,158 \pm 0,015 \text{ c.s}^{-1}$ . Le détecteur *Up* est donc plus sensible au radon-222 atmosphérique que ceux de la composante *Down*.

Les mêmes observations sont faites pour les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  pour la raie à 609 keV avec une pente de  $0,65 \pm 0,04 \text{ c.s}^{-1}$  pour un détecteur de la composante *Down* par rapport à la valeur de pente de  $0,80 \pm 0,06 \text{ c.s}^{-1}$  pour le détecteur *Up*.

L'augmentation des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  pour les événements radon diurnes (08h - 20h) et nocturnes (20h - 08h) montrent des dispersions très similaires (Figure 7.23). Sur les 223 profils d'événements radon étudiés, 112 le sont en période diurne et 111 en période nocturne. Les relations linéaires entre taux de comptage et activité volumique de radon sont confirmées pour ces deux périodes. Les variations de coefficients de pente associés à ces deux périodes pour une activité volumique de radon sont inférieures à 2%.

Figure 7.23 – Augmentation des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  pour les événements radon diurnes (08h - 20h) et nocturnes (20h - 08h).



Ces observations montrent que la relation entre une activité volumique de 1  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  de radon et un taux de comptage associé du  $^{238}\text{U}$ , dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV, de  $0,63 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$  est effective de jour comme de nuit.

En conclusion, en prenant en compte le taux de comptage moyen du  $^{238}\text{U}$  de  $15,98 \text{ c}\cdot\text{s}^{-1}$  sur le site P2OA-CRA, le radon-222 atmosphérique influence donc le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  par un facteur de  $3,94\% / \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Cette valeur est obtenue pour une activité massique moyenne dans le sol de  $38,9 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Étant donné que les contributions des composantes de sub-surface et atmosphérique du signal  $\gamma$  de l'uranium-238 sont indépendantes les unes des autres et sont additionnées, cette influence peut être normalisée par la concentration d'uranium moyenne mesurée sur le site P2OA-CRA ( $38,90 \pm 5,70 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ). **Ainsi, cet effet atmosphérique du radon sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  pourra être extrapolé à tout site dont la concentration en uranium-238 est connue. Cela donne une influence de  $153\% / \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  pour un sol contenant  $1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$  d'uranium-238, ou  $153\% / \text{Bq}\cdot\text{m}^{-3} / \text{kg}\cdot\text{Bq}^{-1}$  (U), car la contribution relative du compartiment atmosphérique diminue à mesure que la concentration d'uranium-238 dans le sol augmente.**

Pour démontrer l'importance que peut avoir le compartiment atmosphérique sur le signal  $\gamma$  mesuré et donc la nécessité de procéder à la mise en place d'une correction, la figure 7.24 présente la part du signal atmosphérique dans le signal  $\gamma$  du  $^{238}\text{U}$  mesuré en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ . Cette contribution de l'atmosphère associée au radon-222, exprimée en pourcentage, est déduite des événements radon par l'intermédiaire des augmentations de taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ .

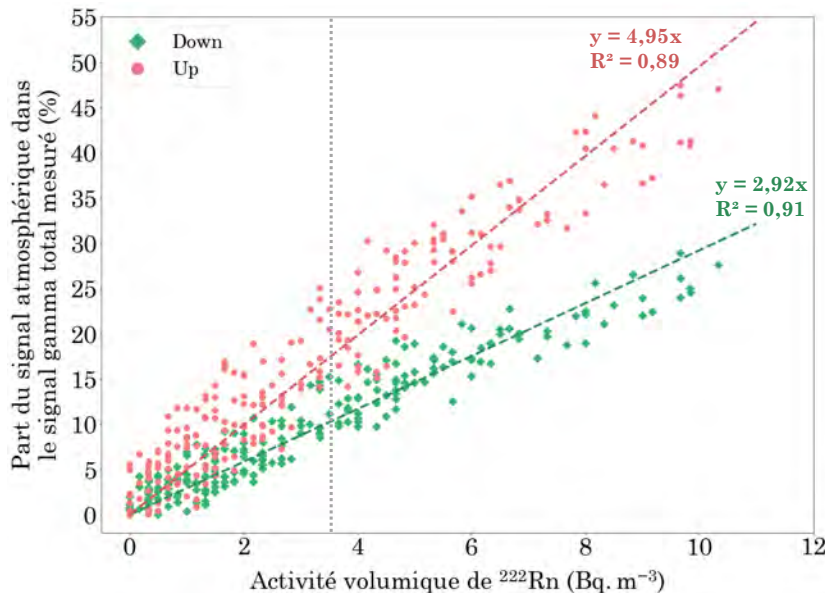


Figure 7.24 – Part du signal atmosphérique dans le signal  $\gamma$  mesuré dans la fenêtre d'énergie du photopic du  $^{238}\text{U}$ . La ligne pointillée représente la valeur moyenne d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sur le site P2OA-CRA.

Plus l'activité volumique de radon-222 dans l'atmosphère est importante et plus la part du signal atmosphérique dans le signal  $\gamma$  total est forte. Pour la composante *Down* du spectromètre, cette contribution varie entre 0 et 30% environ pour une gamme d'activité volumique de radon comprise entre 0 et  $10,5 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Pour la composante *Up* du spectromètre, cette contribution varie entre 0 et 48% environ

pour une gamme d'activité volumique de radon comprise entre 0 et  $10,5 \text{ Bq.m}^{-3}$ . La composante *Up* est, en partie, écrantée du sol par la composante *Down* du spectromètre. Ainsi, il est normal d'observer une contribution du signal atmosphérique plus grande pour cette partie du détecteur. Sur la figure 7.24 est représentée par une ligne en pointillée la valeur d'activité volumique moyenne mesurée sur le P2OA-CRA pour la période **Avril 2019 - Juin 2020** :  $3,68 \pm 0,21 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Cette activité volumique de radon engendre donc une contribution atmosphérique de 10,75% dans le signal  $\gamma$  total mesuré dans la fenêtre de l'uranium-238, pour la composante *Down*. Cette contribution atteint 18,22% pour la composante *Up*.

Pour deux vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée réalisés en présence d'une activité volumique de radon de  $2 \text{ Bq.m}^{-3}$  (5,84%) et de  $8 \text{ Bq.m}^{-3}$  (23,36%), la part du signal atmosphérique sur le signal  $\gamma$  total du  $^{238}\text{U}$  verrait une différence de presque 18%. Ce pourcentage d'évolution du signal  $\gamma$  détecté par le spectromètre ne serait pas dû à une évolution de la concentration en uranium dans le sol mais uniquement à celle de la contribution atmosphérique.

Cet exemple concret sur un événement radon, en date du 02 Mai 2019, et généralisé à 223 événements radon, a permis de montrer la relation positive existante entre l'augmentation de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  et celle liée au taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . En partant de cette analyse et par la quantification de ces augmentations, il est donc possible de relier une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée à une différence de taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{c.s}^{-1}$ ). Cet écart caractérise la variation de ce taux de comptage entre une valeur minimale définie en amont de l'événement radon et une valeur maximale correspondant au pic maximum de radon-222 mesuré. Ainsi, en extrayant un spectre différentiel, issu des spectres associés à ces valeurs maximale et minimale, et en le combinant à l'augmentation de radon entre ces deux valeurs extrêmes, il est possible d'associer à une augmentation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , une augmentation fixe du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Ce spectre différentiel correspond à un spectre pur associé au radon atmosphérique et matérialise l'influence de cette composante additionnelle sur le taux de comptage dont le radon est responsable. À partir de ce spectre différentiel, il est tout à fait envisageable d'associer à une augmentation de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ , une valeur d'augmentation moyenne du taux de comptage dans la fenêtre de l'uranium.

Ainsi en déployant des détecteurs de radon de type AlphaGUARD® au moment des mesures de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, il sera alors possible de proposer une correction dans la fenêtre de l'uranium en se basant sur cette relation entre  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  et le taux de comptage ( $\text{c.s}^{-1}$ ) associé. Une solution globale serait d'appliquer une correction spectrale sur tout le spectre en proposant de soustraire un spectre radon associé à l'activité volumique de radon mesurée dans l'atmosphère. Toutefois, il n'existe pas de spectre radon préalablement déterminé dans la littérature. Dans cet objectif, une méthode de détermination de cette composante radon associée à  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  a été développée dans cette thèse.

### **La méthode de détermination du spectre radon associé à une activité volumique de $1 \text{ Bq.m}^{-3}$**

La méthode de détermination de la composante radon-222 repose sur les chroniques temporelles couplées entre celle des moniteurs de radon et celle du spectromètre  $\gamma$ . Une période d'étude de 14 mois permet de mettre en avant la grande

diversité des profils observés de ce spectre de radon-222 en fonction de son activité volumique et d'obtenir une statistique importante favorisant une validation de la méthode.

À partir de l'exemple de l'événement radon en date du 02 Août 2019 sur le créneau horaire 3h - 7h du matin, la méthode de détermination du spectre radon est présentée sur la figure 7.25. Sur cette période, une relative stabilité de l'humidité du sol (25,6% vol.) est observée (b) et aucun événement de précipitations 24 heures avant ou après cette période n'est à signaler. L'événement radon se matérialise ici par une augmentation brutale de l'activité volumique de  $3,3 \text{ Bq.m}^{-3}$  (66%) entre 3h et 4h du matin (a). Le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  subit une influence positive de  $2,4 \text{ c.s}^{-1}$ , soit 13,04% (c).

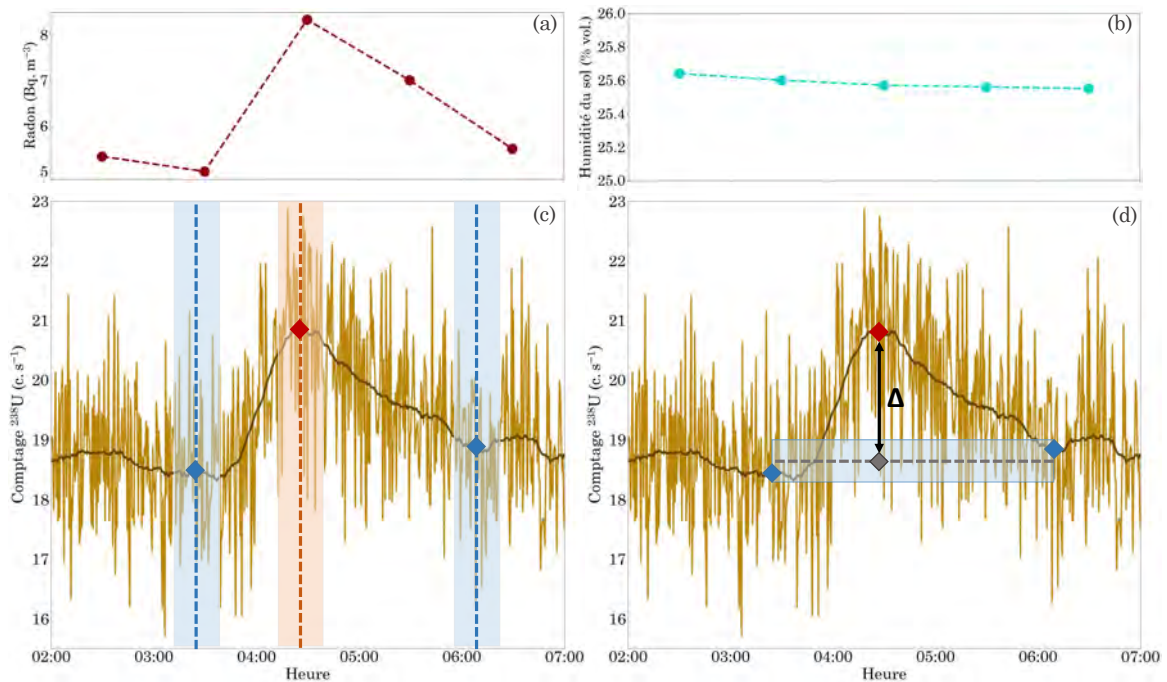


Figure 7.25 – Méthode de détermination du spectre radon pour l'événement radon du 02 Août 2019, entre 2h et 7h. (a) Profil de l'activité volumique du radon-222 ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ). (b) Profil de la teneur en eau volumique dans le sol sur la durée de l'événement. (c) Identification du point maximal du taux de comptage associé à celui du radon (losange rouge) et des points d'inflexion minimum avant et après l'événement (losange bleu). (d) Détermination du spectre de radon ( $\Delta$ ) entre le spectre maximum (losange rouge) et le spectre minimum moyen (losange gris) définie par la ligne en pointillés gris dans le cadre bleu.

La méthode de détermination du spectre radon, une fois l'événement radon identifié, s'effectue en deux temps comme le montre les figures 7.25 (c) et (d) et passe par la caractérisation de spectres  $\gamma$  maximum et minimum synchrones de l'événement.

Dans un premier temps, l'identification du point maximal du taux de comptage associé à celui de l'activité volumique du radon est réalisée. Une vérification de la synchronicité entre ces deux maximum est effectuée. Les points d'inflexion minimum en amont et en aval de l'événement radon sont déterminés et permettent de borner son influence sur le signal  $\gamma$ . Ces points reflètent les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  extraits à partir d'un spectre  $\gamma$  accumulé sur 30 secondes. Pour diminuer les fluc-

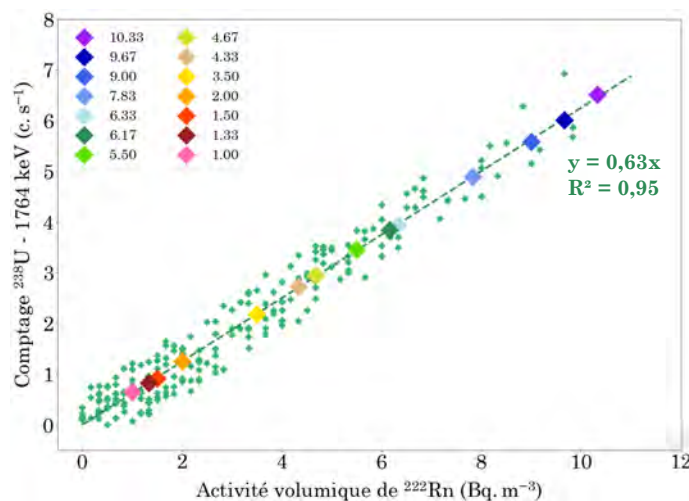


tuations statistiques, le choix est fait de moyenniser l'ensemble des spectres sur une période de 30 minutes (60 spectres). Les points maximum et minimum constituent le centre de ce bornage de 30 minutes. Ainsi, un spectre  $\gamma$  synchrone de l'activité volumique maximale de radon et deux spectres  $\gamma$  contemporains des activités minimales sont reconstitués. La méthode se base donc sur ces trois spectres  $\gamma$  moyennés.

Une fois les trois spectres déterminés, la seconde étape débute par l'établissement d'un spectre minimum composite résultant de la moyenne des deux spectres associés aux points d'inflexion minimum en début et en fin d'événement radon. La ligne en pointillés gris dans le cadre bleu (Figure 7.25 d) représente la moyenne des spectres minimum sur toute la gamme d'énergie. Ces deux spectres sont utilisés pour borner l'influence du radon sur la période considérée de l'événement. Dès lors que le spectre moyen minimum est paramétré (losange gris), la différence entre le spectre maximum et le spectre moyen minimum est réalisée ( $\Delta$ ). **Cette différence spectrale permet d'établir le spectre de la composante radon** à l'origine de l'augmentation du taux de comptage observée et associée à une activité volumique de radon mesurée par les détecteurs de radon. Un spectre radon caractérisant cette composante additionnelle de comptage peut donc être établi pour chaque événement radon répertorié sur la chronique temporelle.

**La détermination d'un spectre radon, associé à une activité volumique de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , sur toute la gamme d'énergie de la spectrométrie  $\gamma$  n'a encore jamais été réalisée.** Ce spectre radon est en réalité un spectre des descendants du radon,  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$ . Afin de réaliser cet objectif, pour en établir les fondements d'une correction des spectres  $\gamma$ , les couples présents sur la droite de corrélation liant les augmentations du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  et de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  sont étudiés (Figure 7.26).

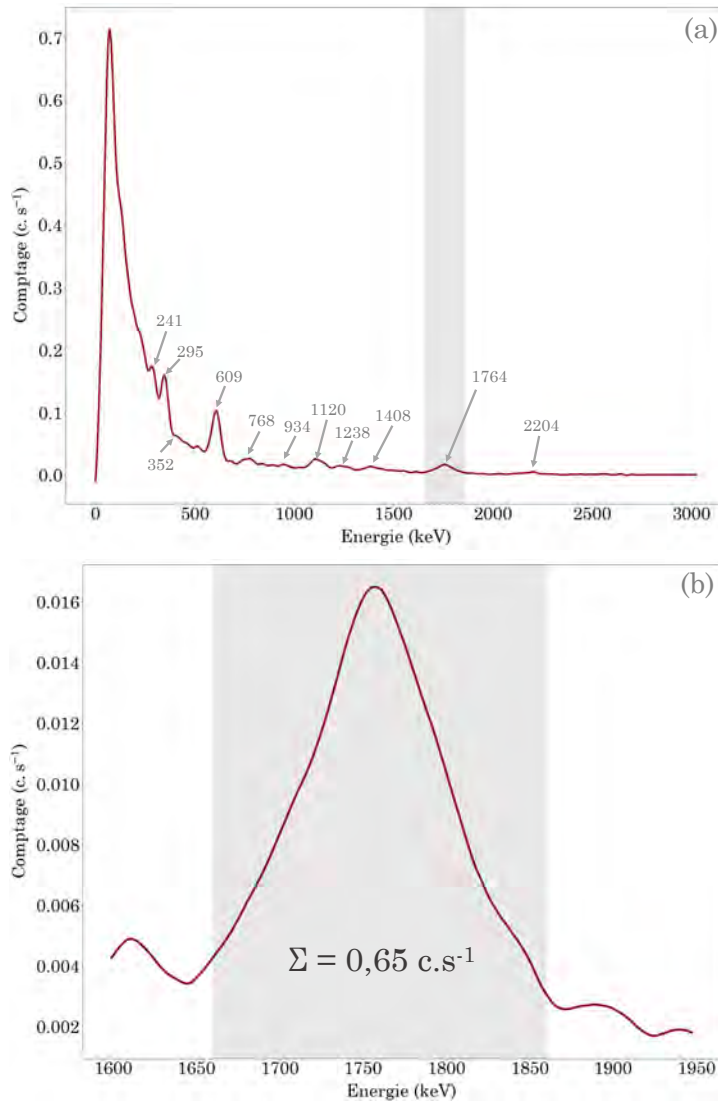
Figure 7.26 – Augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , dans la fenêtre d'énergie du photo-pic à  $1764 \text{ keV}$ , en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ . 14 couples de valeurs se retrouvent superposés sur la droite de corrélation.



Les 14 couples recensés, pour une même humidité de sol, vont être caractérisés par un spectre radon associé à une valeur d'activité volumique de  $1,00$  à  $10,33 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Ce nombre important va permettre, au travers de la comparaison de la forme ou de l'amplitude des spectres, de valider la qualité de ces spectres radon. La déduction du spectre radon unitaire passe par la moyenne des 14 spectres radon ramenés à une activité volumique de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Cette opération est effectuée en divisant les comptages enregistrés dans chaque canal par la valeur de l'activité



volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée. Ainsi, un total de 14 spectres équivalents à une activité volumique de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  est obtenu, réduisant ainsi les fluctuations statistiques. Ces 14 spectres unitaires ( $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) sont ensuite moyennés pour qu'il en résulte un spectre radon unique correspondant à une activité volumique de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  et présenté sur la figure 7.27).



Sur ce spectre total de radon (a), de très nombreuses raies d'énergies caractéristiques des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  sont désormais clairement identifiables. Ce sont celles qui ont une intensité d'émission les plus importantes notamment la raie à 609 keV (45,49%). Pour ce spectre, une absence totale de photopic à 1461 keV (raie du potassium-40) et à 2615 keV (raie du thorium-232) est observée. Le fait que ces deux photopics ne sont pas remarqués sur le spectre total de radon confirme la *pureté* du spectre et donc sa méthode de détermination.

Un des derniers points de vérification, sur la validité du spectre radon, repose sur le nombre de comptage enregistrés dans la fenêtre d'intégration du  $^{238}\text{U}$  (b). La droite de corrélation linéaire de pente 0,63 nous indique que pour une activité volumique de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ ,  $0,63 \text{ c.s}^{-1}$  (Figure 7.27) sont détectés dans cette fenêtre pour ce radionucléide.

La réalisation d'un spectre caractéristique du radon-222 et de ses descendants n'avait encore jamais été proposée. Le spectre radon déterminé dans ces travaux permet d'associer à une activité volumique de radon-222 de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ , un taux de comptage à soustraire dans toutes les fenêtres d'intégration choisies par l'opérateur. Bien sûr ce taux de comptage associé à un spectre radon de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  doit d'abord être multiplié par l'activité volumique de radon-222 mesurée. L'effet du radon-222 atmosphérique sur le signal  $\gamma$ , qui peut atteindre presque 50% sur le site P2OA-CRA, pourra ainsi être corrigé. Ce travail de correction a été réalisé pour les 223 événements radon recensés sur la période **Avril 2019 - Février 2020**. Plusieurs exemples centrés sur le mois de Mai 2019 sont proposés sur la figure 7.28.

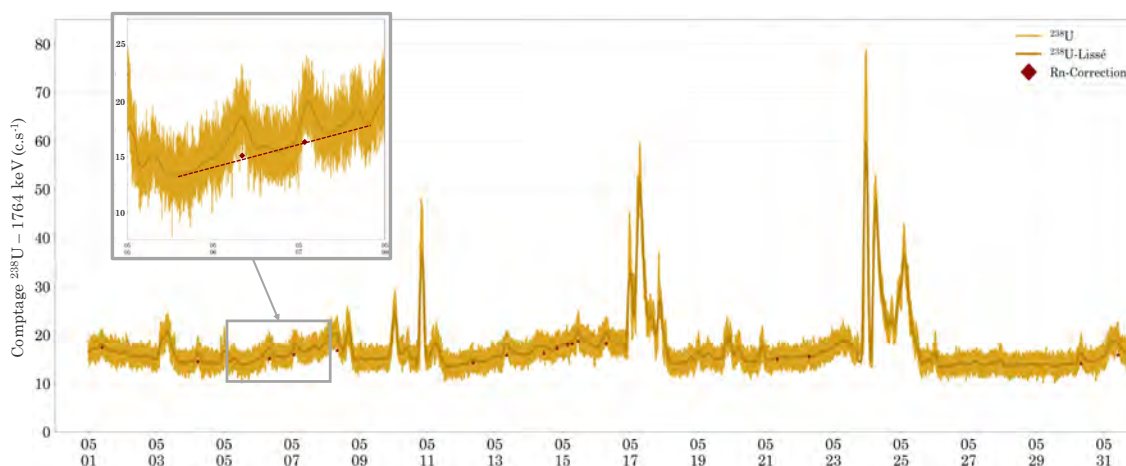


Figure 7.28 – Application de la correction liée à la présence de radon atmosphérique dans la fenêtre d'intégration du  $^{238}\text{U}$  sur 17 événements radon du mois de Mai 2019. La correction du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , au niveau du pic maximal de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  est matérialisée par un point rouge.

Ces 17 corrections des taux de comptage de la fenêtre de l'uranium-238, appliquées sur les 17 événements recensés pour le mois de Mai 2019, permettent dans tous les cas de supprimer la contribution du signal atmosphérique sur le signal  $\gamma$  de l'uranium. Deux exemples concrets dans la nuit respective du 06 et du 07 Mai sont mis en avant.

En se concentrant d'abord sur l'événement radon du **06 Mai 2019**, une augmentation du taux de comptage de  $1,93 \text{ c.s}^{-1}$ , soit 12,43% du taux de comptage mesuré, est observée. Par application du facteur de conversion de  $0,63 \text{ c.s}^{-1}$  en une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  de  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ , ce taux de comptage de  $1,93 \text{ c.s}^{-1}$  permet de déterminer une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  de  $3,06 \text{ Bq.m}^{-3}$ . L'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée est de  $3,00 \text{ Bq.m}^{-3}$ . La différence entre les deux activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$ , mesurée et calculée, est inférieure à 1%. L'événement radon du 07 Mai 2019 a été abordé de la même manière. Une augmentation de comptage de  $2,28 \text{ c.s}^{-1}$  est observée au niveau du maximum de l'événement. Ce taux de comptage correspond à une activité volumique calculée de  $^{222}\text{Rn}$  de  $3,62 \text{ Bq.m}^{-3}$  et mesurée de  $3,67 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Une nouvelle fois la différence entre les deux activités volumiques est inférieure à 1%. Les taux de comptage corrigés de l'influence du radon atmosphérique sont représentés par un losange rouge sur la figure 7.28. Pour les deux événements radon du **06 et 07 Mai 2019**, la projection de ces taux de comptage atteint la droite théorique d'évolution du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  en fonction de

la diminution progressive de l'humidité du sol. Entre les deux taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  corrigés (15,52 et 15,99 c.s $^{-1}$ ) une variation de 3,03% est observée quand la variation de la teneur en eau volumique du sol est de 3% sur cette même période.

**Ainsi, les taux de comptage nettoyés de cette influence atmosphérique reflètent bien, désormais, uniquement la contribution du compartiment sol et son évolution dépendante de la teneur en eau volumique.**

### **Conclusion sur la méthode de détermination du spectre radon associé à une activité volumique de 1 Bq.m $^{-3}$**

Par conséquent, la détermination d'un spectre  $\gamma$  du radon-222 à partir d'une mesure de spectrométrie  $\alpha$  par l'intermédiaire des moniteurs AlphaGUARD® et des spectres  $\gamma$  acquis par le détecteur NaI(Tl) a été rendue possible dans cette thèse. Cette méthode suppose un équilibre séculaire entre le radon-222 qui est mesuré par les AlphaGUARD®, et son descendant  $^{214}\text{Bi}$  à l'origine du signal  $\gamma$  à 1764 keV détecté par le spectromètre NaI(Tl). La conversion entre activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  de 1 Bq.m $^{-3}$  et taux de comptage en c.s $^{-1}$  (0,63) associé a montré toute sa robustesse quant à la comparaison entre activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée et calculée à partir du signal  $\gamma$ . Ces observations ont tendance à certifier un équilibre séculaire entre le radon et son descendant.

Pour utiliser cette méthode de correction de la contribution atmosphérique sur le signal  $\gamma$  total mesuré lors d'une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, il est indispensable de disposer de détecteurs de radon de type AlphaGUARD. La mesure de radon-222 doit être conduite sur toute la campagne de survol pour permettre de caractériser l'évolution du radon-222 sur toute la période à considérer.

Pour optimiser le coût matériel d'une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, la suite de cette thèse va se consacrer à la mise en place d'une procédure de détermination de l'activité volumique de radon-222 à partir de la spectrométrie  $\gamma$  et donc du détecteur NaI(Tl) lui-même.

#### **7.5.4 Mesure du radon-222 atmosphérique par spectrométrie $\gamma$**

Exploiter les possibilités de la spectrométrie  $\gamma$  pour en déterminer l'activité volumique de radon-222, au travers de son descendant ( $^{214}\text{Bi}$ ) et y associer la procédure de correction de la contribution atmosphérique rendrait inutile l'emploi de détecteurs de radon. En effet, avec l'ensemble des procédures de correction proposées, à l'avenir, le détecteur NaI(Tl) pourrait suffire à lui seul pour procéder à une auto-correction de l'influence du radon atmosphérique.

Un autre objectif est de pouvoir extraire des valeurs d'activité volumique de radon-222 au cours de chaque vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et d'en établir des cartographies du radon-222 à une échelle locale. La contribution principale des différentes sources de rayonnements ionisants à la dose efficace est l'exposition au radon. Un suivi de son activité volumique entrerait parfaitement dans les applications de la surveillance radiologique du territoire.

### Des méthodes déjà existantes en spectrométrie $\gamma$ aéroportée ?

Le  $^{222}\text{Rn}$  présent dans le compartiment atmosphérique est considéré comme un bruit de fond à soustraire dans le signal  $\gamma$  mesuré, toujours dans un but d'isoler les signaux  $\gamma$  émis par le sol uniquement. Cette problématique liée au  $^{222}\text{Rn}$  est bien connue et documentée depuis les prémices de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée [Kogan et al., 1965, Grasty, 1975, Carroll, 1981, IAEA, 1991, Minty, 1992].

Ainsi, trois procédures ont été développées afin d'éliminer le bruit de fond atmosphérique lié au  $^{222}\text{Rn}$ . La *méthode du rapport spectral* [Minty et al., 1998] et *l'analyse du spectre total* [Minty, 1992] utilisent la forme du spectre  $\gamma$  pour estimer la concentration de radon-222 atmosphérique afin de la soustraire au signal  $\gamma$  total. Ces deux premières méthodes ne peuvent toutefois pas être employées sur des spectres  $\gamma$  acquis dans l'hémisphère nord où la contamination des sols en  $^{137}\text{Cs}$  est importante. La présence dans les sols de ce radionucléide artificiel est marquée par une raie caractéristique supplémentaire dans le spectre total à 662 keV. Ce photopic lié au  $^{137}\text{Cs}$  est à proximité immédiate de la raie caractéristique de 609 keV ( $^{214}\text{Bi}$ ), utilisée en spectrométrie  $\gamma$  pour identifier la présence de  $^{222}\text{Rn}$ . La résolution d'énergie dégradée des spectromètres NaI(Tl) fait que ces deux raies d'énergie associées à celle d'un descendant du  $^{232}\text{Th}$  à 583 KeV ( $^{208}\text{Tl}$ ) vont constituer un triplet de raies qui se matérialise sur le spectre par la présence unique d'une raie de centroïde 609 keV. Ce triplet de photopic est difficilement exploitable avec les méthodes d'analyses spectrales standards de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

La dernière approche consiste à utiliser des spectromètres avec un détecteur à visée ascendante [IAEA, 1991]. L'instrument se compose ainsi de deux composantes, *Down* et *Up*, comme le NaI(Tl) utilisé sur le site P2OA-CRA dans le cadre de cette étude. Ce type de détecteurs donne au spectromètre une sensibilité directionnelle capable de distinguer le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique et les sources de rayonnements terrestres. Cette dernière méthode est présentée plus en détails dans le paragraphe suivant.

**La méthode du détecteur à visée ascendante :** La méthode du détecteur à visée ascendante utilise un cristal NaI(Tl) additionnel (*Up*), puisqu'il est partiellement isolé des rayonnements du sol en surplomb des 4 autres cristaux (*Down*). Il donne au système une sensibilité directionnelle et la capacité de discriminer les rayonnements  $\gamma$  qui proviennent du sol de ceux provenant de l'atmosphère.

La contribution du  $^{222}\text{Rn}$  dans la fenêtre d'énergie de l'uranium au sein de la composante *Down* de l'instrument qui regroupe les 4 cristaux de NaI(Tl) constituant le détecteur principal est ainsi donnée par :

$$U_r = \frac{u - a_1U - a_2T + a_2b_t - b_u}{a_u - a_1 - a_2a_t} \quad (7.4)$$

avec  $U_r$  qui définit l'influence du radon atmosphérique dans la fenêtre d'énergie de l'uranium de la composante *Down* du détecteur,  $u$  correspond au taux de comptage dans la fenêtre d'énergie de l'uranium de la composante *Up*,  $U$  et  $T$  sont les taux de comptage dans la fenêtre d'énergie de l'uranium et du thorium de la composante *Down*. Les coefficients  $a_1$ ,  $a_2$ ,  $a_u$ ,  $a_t$ ,  $b_u$  et  $b_t$  sont dérivés d'une calibration appropriée. Ces constantes sont des coefficients de régression qui permettent de mettre en relation le bruit de fond lié au  $^{222}\text{Rn}$  dans la fenêtre d'énergie de l'uranium de

la composante  $Up$  à celui dans la fenêtre d'énergie de l'uranium de la composante  $Down$  par l'équation :

$$u_r = a_u U_r + b_u \quad (7.5)$$

Ils associent également le bruit de fond inhérent au radon dans la fenêtre d'énergie du thorium de la composante  $Down$  à celui présent dans la fenêtre d'énergie de l'uranium de la composante  $Down$  par l'intermédiaire de la relation :

$$T_r = a_t U_r + b_t \quad (7.6)$$

Ces coefficients sont déterminés par soustraction des bruits de fond instrumentaux et cosmique de vols opérés au-dessus d'une étendue d'eau pour différentes activités volumiques de radon. Les régressions linéaires donnent les coefficients de calibration  $a_u$ ,  $a_t$ ,  $b_u$  et  $b_t$ .

La deuxième étape de cette procédure de calibration est de relier les taux de comptage mesurés dans le fenêtre d'énergie de l'uranium des composantes  $Up$  et  $Down$  pour les rayonnements  $\gamma$  émis par l'uranium contenu dans le sol ou la roche survolée. Ces composantes sont reliées par l'équation :

$$u_g = a_1 U_g + a_2 T_g \quad (7.7)$$

avec  $u_g$ ,  $U_g$  et  $T_g$  définissant les composantes du sol et  $a_1$  et  $a_2$  les coefficients de calibration. La méthode pour estimer  $a_1$  et  $a_2$  se fait à partir des données corrigées des bruits de fond acquises sur des lignes de vol transversales survolant à la fois des sols et une étendue d'eau. La section de la ligne de vol opérée sur l'étendue d'eau est utilisée pour soustraire le bruit de fond total et permet de donner une estimation de  $u_g$ ,  $U_g$  et  $T_g$  pour une gamme de concentrations de la source  $\gamma$  du sol.

**Cette méthode définit donc l'influence du radon-222 atmosphérique dans la fenêtre d'énergie de l'uranium mais ne permet pas de déterminer concrètement une activité volumique de radon-222 exprimée en  $\text{Bq.m}^{-3}$ . Elle ne répond donc pas aux besoins et objectifs exprimés sur la caractérisation de l'activité volumique du radon-222 pour offrir des possibilités d'études complémentaires à la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée. En outre, elle nécessite le survol d'un plan d'eau étendu.**

### 7.5.5 Développement d'une méthode de mesure du radon-222 atmosphérique à partir de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée

La méthode de mesure du radon-222 atmosphérique, telle qu'envisagée dans cette étude repose sur la présence d'un cristal NaI(Tl) additionnel à visée ascendante. Le spectromètre NaI(Tl), installé sur le site pilote P2OA-CRA, est un détecteur de type RSX-5 disposant de ce cinquième cristal, la composante  $Up$ , en surplomb des 4 autres cristaux constituant la composante  $Down$  (Figure 7.29). Comme évoqué précédemment, ce cinquième cristal est isolé en partie du compartiment sol. Sa sensibilité directionnelle fait que la contribution atmosphérique dans le signal  $\gamma$  mesuré est plus importante que pour la composante  $Down$ .



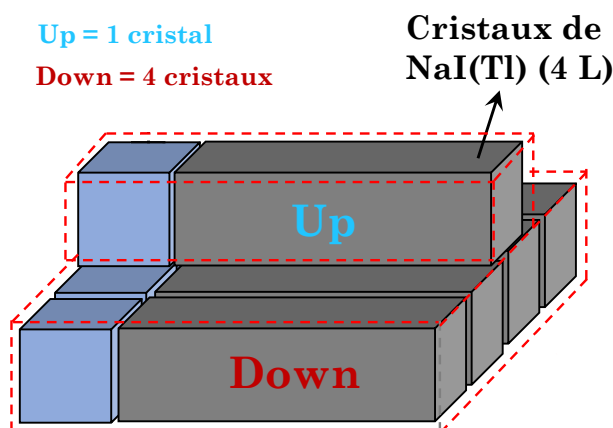


Figure 7.29 – Composante *Down* et *Up* du détecteur *RSX-5*.

Ainsi, en utilisant à la fois les composantes *Down* et *Up* du spectromètre, une méthodologie de calcul pour déterminer les activités volumiques en radon-222 atmosphérique à partir du signal  $\gamma$  mesuré par le spectromètre installé sur le site pilote P2OA-CRA à une hauteur stationnaire de 50 mètres est développée. **Cette méthodologie passe par la mise en place d'une équation reliant plusieurs paramètres estimables à partir des spectres  $\gamma$  acquis par le détecteur NaI(Tl).**

Ce protocole repose sur l'utilisation des taux de comptage dans la fenêtre de l'uranium-238 pour les deux composantes, qui ont été extraits par la méthode des fenêtres préconisée par l'AIEA [IAEA, 1991]. La procédure de traitement des données spectrales acquises par l'équipe Hélinuc® du CEA exige l'application de ces fenêtres d'intégration.

Dans la suite de cette section, les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  des composantes *Down* ( $C_D$ ) et *Up* ( $C_{Up}$ ) font référence aux aires intégrées sur les fenêtres AIEA de l'uranium (1660 - 1860 keV) nettoyées de l'influence de la présence de la raie du thorium-232 à 2615 keV. Le bruit de fond intrinsèque au spectromètre couplé à celui des rayonnements cosmiques constitue le bruit de fond global pour les composantes *Down* ( $BDF_D$ ) et *Up* ( $BDF_{Up}$ ). L'efficacité de détection du spectromètre pour les photons  $\gamma$  en provenance des compartiments sol et atmosphérique est représentée par le symbole général  $\eta$ .

### **Le calcul de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ : une équation à mettre en place**

Le calcul de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , développé dans cette thèse, dépend de la relation entre le signal  $\gamma$  mesuré par la composante *Down* et celui mesuré par la composante *Up*. Le signal  $\gamma$  mesuré correspond à la somme des contributions du sol, de l'atmosphère et du bruit de fond global. Chaque taux de comptage extrait du signal  $\gamma$  est donc le reflet de ce signal composite. Le signal  $\gamma$  détecté, dont chaque compartiment a une part de responsabilité, dépend de l'efficacité de détection du détecteur inhérente aux photons  $\gamma$  émis par dans chaque compartiment.

Ainsi, les taux de comptage mesurés par les composantes *Down* ( $C_D$ ) et *Up* ( $C_{Up}$ ) peuvent être retranscrits par l'intermédiaire des équations suivantes 7.8 et 7.9 :

$$C_D = \eta_D^{Sol} \times {}^{238}U_{Sol} + \eta_D^{Atm} \times {}^{222}Rn + BDF_D \quad (7.8)$$

$$C_{Up} = \eta_{Up}^{Sol} \times {}^{238}U_{Sol} + \eta_{Up}^{Atm} \times {}^{222}Rn + BDF_{Up} \quad (7.9)$$

avec  ${}^{238}U_{Sol}$  qui correspond à l'activité massique d'uranium-238 en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  dans le sol,  ${}^{222}Rn$  qui définit l'activité volumique en radon-222 dans l'atmosphère,  $\eta^{Sol}$  et  $\eta^{Atm}$  caractérisent les efficacités de détection associées au signal  $\gamma$  des compartiments sol et atmosphère.

Ainsi, ces deux équations 7.8 et 7.9 ont en commun l'activité massique du  ${}^{238}U$  dans le sol et l'activité volumique de  ${}^{222}Rn$  qui est la variable à estimer. Dans ces formules, l'équilibre entre le  ${}^{222}Rn$  et son descendant,  ${}^{214}Bi$ , est supposé. En prenant en compte l'activité massique moyenne en  ${}^{238}U$  du site pilote P2OA-CRA,  $38,90 \pm 5,70 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et les taux de comptage extraits du signal  $\gamma$  mesuré par le spectromètre, seules les efficacités de détection sont encore inconnues. En effet, les valeurs de bruit de fond globaux qui sont dépendantes de chaque composante, ont été préalablement déterminées dans cette thèse pour toutes les fenêtres d'intégration en énergie.

Les efficacités de détection inhérentes à chaque compartiment sont une caractéristique du spectromètre difficile à déterminer en conditions non contrôlées comme en laboratoire. Si des simulations de type Geant-4 peuvent s'en approcher, une estimation empirique des rapports d'efficacité de détection entre les composantes *Up* et *Down* pour les compartiments sol et atmosphère permet de simulations assez lourdes.

Pour réaliser cette caractérisation et ainsi s'affranchir de la connaissance individuelle de chaque efficacité de détection, il est nécessaire de considérer les équations 7.8 et 7.9 dans deux cas de figure. En effet, l'estimation du rapport d'efficacité passe donc par la mise en relation des taux de comptage pour lesquels une activité volumique de  ${}^{222}Rn$  est présente dans l'atmosphère et d'autres où l'activité volumique de  ${}^{222}Rn$  est considérée comme négligeable donc nulle. Ces taux de comptage sont dépendants de la teneur en eau volumique du sol ( $s_w$ ). L'équation 7.10 permet d'appréhender cette explication de manière concrète pour le rapport d'efficacité de détection du compartiment atmosphérique :

$$\frac{C_{Up,Rn}^{s_w} - C_{Up,Rn=0}^{s_w}}{C_{D,Rn}^{s_w} - C_{D,Rn=0}^{s_w}} = \frac{\eta_{Up}^{Atm}}{\eta_D^{Atm}} = \chi_{Atm} \quad (7.10)$$

Ce rapport d'efficacité de détection, dénommé  $\chi_{Atm}$ , est caractéristique de la contribution atmosphérique au signal  $\gamma$ . Il est donc indépendant de la teneur en eau volumique dans le sol et du compartiment sol.

Pour déterminer le rapport d'efficacité de détection associé au signal  $\gamma$  du compartiment sol, les conditions atmosphériques ( ${}^{222}Rn$ ) ne doivent pas être à l'origine d'une contribution additionnelle au signal  $\gamma$  mesuré. Ainsi, il est nécessaire de procéder à la caractérisation de ce rapport en conditions environnementales où **l'activité**

**volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est nulle.** Ainsi, pour toute activité volumique de radon-222 nulle, les équations 7.8 et 7.9 deviennent :

$$C_D - BDF_D = \eta_D^{sw} \times^{238}U_{Sol} \rightarrow U_D^{AIEA} = \eta_D^{sw} \times^{238}U_{Sol} \quad (7.11)$$

$$C_{Up} - BDF_{Up} = \eta_{Up}^{sw} \times^{238}U_{Sol} \rightarrow U_{Up}^{AIEA} = \eta_{Up}^{sw} \times^{238}U_{Sol} \quad (7.12)$$

avec  $U_D^{AIEA}$  et  $U_{Up}^{AIEA}$  les taux de comptage nets dans la fenêtre de l'uranium-238 déterminés à partir des spectres  $\gamma$  acquis sur le site pilote et des mesures de bruit de fond instrumental et cosmique. Ces aires sont celles utilisées dans l'étude des variations temporelles des signaux  $\gamma$  sur la période **Avril 2019 - Juin 2020**. Le rapport des efficacités de détection des composantes *Down* et *Up* du compartiment sol à partir des équations 7.11 et 7.12, peut donc être établi en utilisant le rapport des taux de comptage nets entre les deux composantes :

$$\frac{U_{Up}^{AIEA}}{U_D^{AIEA}} = \frac{\eta_{Up}^{sw}}{\eta_D^{sw}} = \chi_{Sol} \quad (7.13)$$

Ainsi, **pour toute activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ ,** les équations 7.8 et 7.9 peuvent être retranscrites sous la forme d'un système double permettant de relier le taux de comptage de la composante *Up* et l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  au travers de la composante *Down* :

$$C_{Up} - BDF_{Up} = \eta_{Up}^{Sol} \times^{238}U_{Sol} + \eta_{Up}^{Atm} \times^{222}\text{Rn} \quad (7.14)$$

$$^{238}U_{Sol} = \frac{C_D - BDF_D - \eta_D^{Atm} \times^{222}\text{Rn}}{\eta_D^{Sol}} \quad (7.15)$$

En remplaçant l'activité massique  $^{238}\text{U}_{Sol}$  dans l'équation 7.14 par la formule développée dans l'équation de la composante *Down* 7.15, celle-ci devient :

$$C_{Up} - BDF_{Up} = \frac{\eta_{Up}^{Sol}}{\eta_D^{Sol}} \left[ C_D - BDF_D - \eta_D^{Atm} \times^{222}\text{Rn} \right] + \eta_{Up}^{Atm} \times^{222}\text{Rn} \quad (7.16)$$

En cherchant à isoler l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  dans la deuxième partie de l'équation 7.16, cette dernière évolue en :

$$C_{Up} - BDF_{Up} = \frac{\eta_{Up}^{Sol}}{\eta_D^{Sol}} [C_D - BDF_D] + \left[ \frac{-\eta_{Up}^{Sol}}{\eta_D^{Sol}} \times \eta_D^{Atm} + \eta_{Up}^{Atm} \right] \times^{222}\text{Rn} \quad (7.17)$$

**Ainsi, l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , calculé à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée peut s'écrire :**

$$\boxed{^{222}\text{Rn} = \frac{C_{Up} - BDF_{Up} - \chi_{Sol}^{sw} \times (C_D - BDF_D)}{\eta_{Up}^{Atm} \times \left( \frac{-\chi_{Sol}^{sw}}{\chi_{Atm}} + 1 \right)}} \quad (7.18)$$

Au sein de cette équation 7.18, plusieurs paramètres sont connus tels que les taux de comptage bruts dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  ( $C_D$ ,  $C_{Up}$ ) ainsi que les bruits de fond globaux ( $\text{BDF}_D$ ,  $\text{BDF}_{Up}$ ) pour les composantes *Down* et *Up* respectivement.

Les trois derniers paramètres,  $\chi_{Sol}^{sw}$ ,  $\chi_{Atm}$  et  $\eta_{Up}^{Atm}$ , sont des constantes et restent à déterminer au travers de différentes procédures permettant l'utilisation de cette formule générale de calcul de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ .

**Détermination de  $\chi_{Atm}$  :** Cette constante est équivalente au rapport des efficacités de détection des composantes *Down* et *Up* centré sur le compartiment atmosphérique. D'après l'équation 7.10, ce rapport est relié aux taux de comptage bruts mesurés par les deux composantes du détecteur en présence et en absence de radon-222 atmosphérique pour une teneur en eau volumique identique.

Ainsi, pour parvenir à estimer cette constante d'après les chroniques temporelles sur une base horaire de la période **Avril 2019 - Février 2020**, il faut donc identifier deux horaires distincts où :

- Les teneurs en eau volumique de la couche de surface (0 - 5 cm) sont identiques entre elles d'après les mesures opérées par les sondes TDR *in situ*.
- Les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  mesurées par les détecteurs de radon AlphaGUARD ® sont différentes et l'une d'entre elles est considérée comme nulle, c'est-à-dire ayant une valeur inférieure à  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  d'après le critère de recherche établi.
- Aucun événement de précipitation n'est venue perturber le signal  $\gamma$  mesuré et donc les taux de comptage bruts, 6 heures avant l'horaire sélectionné.

Ces deux créneaux horaires peuvent être distants de 6 mois si l'ensemble des critères énoncés sont scrupuleusement respectés.

Sur cette période d'**Avril 2019 à Février 2020**, un total de 29 événements considérés comme ayant une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  quasi nulle, a pu être identifié. Les teneurs en eau volumique rencontrées s'étendent entre 19,35 et 44,22  $\text{Bq.m}^{-3}$  ce qui couvre toute la gamme d'humidité du sol observée sur le site P2OA-CRA. Ces 29 événements sont associés à des taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$ ,  $C_{Up,Rn=0}^{sw}$  et  $C_{D,Rn=0}^{sw}$ . Pour appliquer l'équation 7.10 et ainsi déterminer cette constante  $\chi_{Atm}$ , il est désormais nécessaire d'associer ces événements *sans radon* à des événements où le radon-222 est présent pour la même teneur en eau volumique dans le sol. Ce travail comparatif a été réalisé sur le jeu de données constitué par les 350 événements radon isolés et recensés dans le cadre de l'étude de l'influence du radon sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ .

Les taux de comptage bruts dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$ , associés à ces différents événements radon et *sans radon*, sont désormais tous connus et l'équation 7.10 qui reflète le rapport des efficacités de détection des deux composantes du détecteur peut ainsi être utilisée. Un exemple concret de calcul de  $\chi_{Atm}$  est donné par l'événement *sans radon* du 12 Mai 2019 à 01h du matin et celui avec présence de radon, le 30 Mai 2019 à 07h du matin. Les principales caractéristiques associées à chaque événement sont centralisées dans le tableau 7.2.

Nature	Date	Humidité sol (% vol.)	$^{222}\text{Rn}$ (Bq.m $^{-3}$ )	Comptage Up c.s $^{-1}$	Comptage Down c.s $^{-1}$
Sans radon	12/05/2019	40,93	0,67	14,02	1,72
Avec radon	30/05/2019	40,92	7,00	16,93	2,71

Tableau 7.2 – Principales caractéristiques recensées pour les événements sans radon et avec radon pour l'exemple de calcul de  $\chi_{Atm}$  à partir de l'équation 7.10.

L'application de l'équation 7.10 à partir des taux de comptage bruts du  $^{238}\text{U}$  de cet exemple donne une valeur de  $\chi_{Atm}$  pour une humidité du sol de 40,93% vol. :

$$\chi_{Atm} = \frac{C_{Up}^{Rn} - C_{Up}^0}{C_D^{Rn} - C_D^0} = \frac{2,71 - 1,72}{16,93 - 14,02} = 0,34 \quad (7.19)$$

Cette procédure de détermination de  $\chi_{Atm}$  est ensuite reproduite sur les 28 événements restants. Cette analyse est réalisée pour vérifier la dispersion des valeurs de  $\chi_{Atm}$  calculées en fonction des teneurs en eau volumique et donc bien s'assurer que ce paramètre est indépendant de l'humidité du sol.

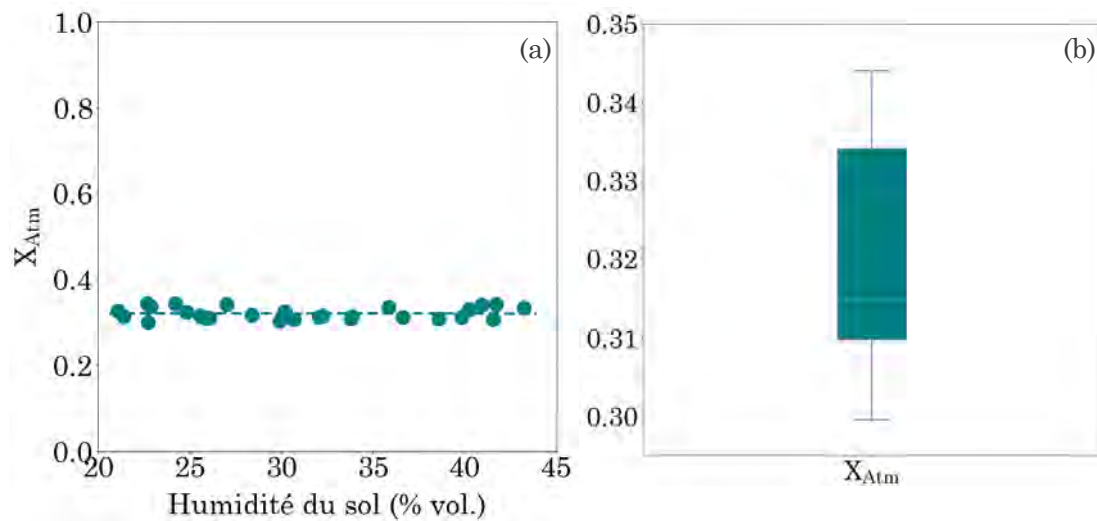


Figure 7.30 – (a) Évolution de  $\chi_{Atm}$  calculé en fonction de l'humidité du sol (% vol.). La droite en pointillés représente la valeur moyenne. (b) Boîte à moustaches représentant la distribution des valeurs de  $\chi_{Atm}$ .

La figure 7.30 présente l'évolution des valeurs calculées de  $\chi_{Atm}$  en fonction de la teneur en eau volumique du sol (a) ainsi qu'un graphique en boîte à moustache permettant de mieux appréhender la distribution statistique (b). Les valeurs calculées de  $\chi_{Atm}$  montrent une distribution verticale très recentrée, entre 0,30 et 0,345, et se concentrent autour d'une valeur moyenne de 0,321 avec une médiane de 0,315. Ceci confirme que ce paramètre est bien constant sur les 29 événements radon. La distribution horizontale confirme une indépendance de ce paramètre aux teneurs en eau volumique du sol, ce qui était attendu.



Dans l'équation 7.18, la valeur attribuée à la constante  $\chi_{Atm}$  est la valeur moyenne des 29 événements radon identifiés :

$$\boxed{\chi_{Atm} = 0,32} \quad (7.20)$$

La détermination de  $\chi_{Atm}$  étant désormais actée, le paramètre  $\chi_{Sol}^{sw}$  est la prochaine constante investiguée.

**Détermination de  $\chi_{Sol}^{sw}$  :** Ce paramètre se définit comme le rapport des efficacités de détection des composantes *Up* et *Down* pour le compartiment sol uniquement. **L'équation 7.13 montre que pour estimer cette constante, l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  au moment de la mesure du signal  $\gamma$  doit être nulle.** Ainsi, seule la contribution atmosphérique est conservée dans le signal  $\gamma$  mesuré et le rapport des efficacités de détection pour le compartiment sol peut être déterminé.

Par conséquent, en s'intéressant de nouveau aux 29 événements *sans radon* identifiés précédemment pour la détermination de  $\chi_{Atm}$ , le rapport entre les taux de comptage nets de l'uranium-238 peut être réalisé. En effet, les bruits de fond instrumental ( $2,70 \pm 0,12 \text{ c.s}^{-1}$ ) et cosmique ( $2,48 \pm 0,16 \text{ c.s}^{-1}$ ) dans la fenêtre d'intégration du  $^{238}\text{U}$  sont connus et peuvent donc être appliqués au taux de comptage brut. Ces rapports de taux de comptage nets permettent de caractériser le rapport des efficacités de détection des composantes *Down* et *Up* pour le compartiment sol,  $\chi_{Sol}$ . Ces 29 rapports ont également été calculés sur la base de teneur en eau volumique variable et inhérente à chaque événement enregistré.

La figure 7.31 représente l'évolution de  $\chi_{Sol}$  en fonction de la teneur en eau volumique du sol (a) et la distribution statistique des valeurs de  $\chi_{Sol}$  des 29 événements *sans radon* recensés par une boîte à moustache (b). La répartition des points sur le premier graphique montre une légère dépendance des valeurs de  $\chi_{Sol}$  à la teneur en eau volumique du sol en se basant sur une régression exponentielle de la forme :

$$\chi_{Sol} = 0,189 \times \exp(-0,010 \times S_m) \quad (7.21)$$

avec  $S_m$  qui définit l'humidité du sol en % vol.

$\chi_{Sol}$  semble donc subir un effet limité de la variation de la teneur en eau volumique. L'humidité du sol a une influence unique sur l'atténuation des photons  $\gamma$  dans le sol. Elle ne devrait pas affecter le rapport des efficacités de détection. Cette légère dépendance à l'humidité du sol, de l'ordre de 25%, reste à investiguer.

Ainsi, pour calculer l'activité volumique du radon-222 par l'intermédiaire de ce paramètre  $\chi_{Sol}$ , deux procédures sont possibles :

- Au regard de l'observation de cette dépendance restreinte à l'humidité du sol de  $\chi_{Sol}$ , cette variation est prise en compte. Elle va associer à chaque rapport des taux de comptage nets entre les composantes *Down* et *Up* une valeur d'humidité du sol mesurée *in situ*. Cela nécessite d'enregistrer la teneur en eau volumique en parallèle de la mesure  $\gamma$ . Cette méthode est donc réaliste pour les données acquises sur le site P2OA-CRA.
- En faisant le choix d'appliquer une valeur standard à ce paramètre  $\chi_{Sol}$ , le suivi de l'humidité du sol n'est plus nécessaire. En effet, cette option d'associer

une constante à  $\chi_{Sol}$  est tout à fait envisageable puisqu'à l'échelle temporelle d'un survol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée (environ 1h), la variation d'humidité du sol peut être considérée comme négligeable. Ainsi, pour définir la valeur de  $\chi_{Sol}$ , il suffit de sélectionner un rapport entre les taux de comptage nets des composantes  $Down$  et  $Up$  à une humidité standard représentative d'un climat tempéré. Dans cette configuration, et à partir des données du site P2OA-CRA, l'humidité du sol standard choisit est de 30% volumique, ce qui correspond à une valeur moyenne de  $\chi_{Sol}$ , pour tous les rapports  $Up/Down$  étudiés, de 0,1402.

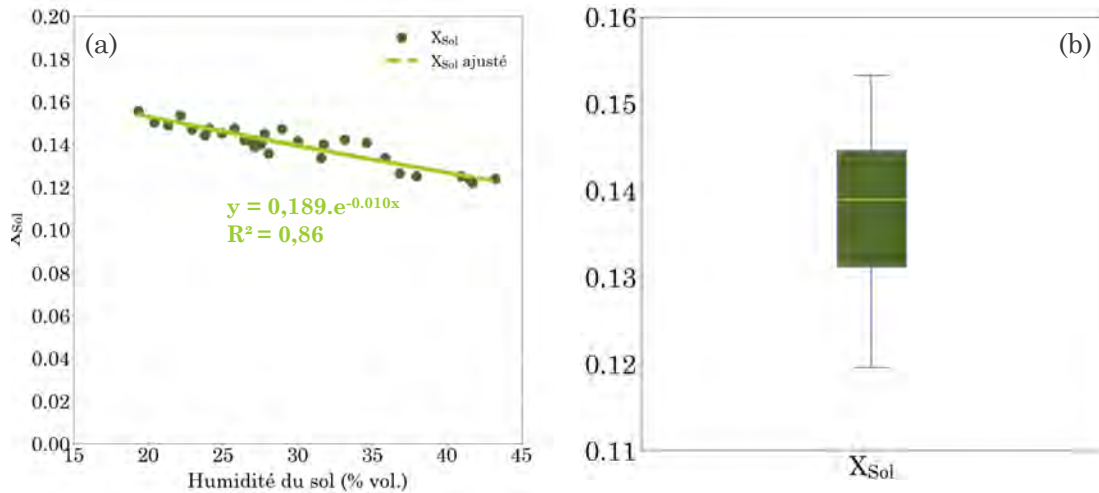


Figure 7.31 – (a) Évolution de  $\chi_{Sol}$  calculé en fonction de l'humidité du sol (% vol.). Une légère dépendance à l'humidité du sol est ajustée par une fonction de type exponentielle ( $R^2 = 0,86$ ). (b) Boîte à moustaches représentant la distribution des valeurs de  $\chi_{Sol}$ .

Le choix d'utiliser une valeur constante, sans nécessité de déploiement de matériel, semble être l'option la plus raisonnable. Ainsi, la valeur déterminée pour le paramètre  $\chi_{Sol}$  pour une teneur en eau de 30% volumique est :

$$\boxed{\chi_{Sol} = 0,14} \quad (7.22)$$

La valeur de  $\chi_{Sol}$  est inférieure à celle de  $\chi_{Atm}$ . Pour une quantité de photons  $\gamma$  identique émis par les compartiments sol et atmosphère, la composante  $Up$  ou cristal à visée ascendante du détecteur est plus sensible aux photons dans l'atmosphère.

Deux des trois paramètres flottants sont désormais caractérisés par des valeurs fixes. Il ne reste donc plus qu'à estimer  $\eta_{Up}^{Atm}$  avant de pouvoir utiliser l'équation 7.18 permettant de déterminer l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

**Détermination de  $\eta_{Up}^{Atm}$  :** Pour déterminer l'efficacité de détection de la composante  $Up$  liée uniquement au compartiment atmosphérique, il est nécessaire de procéder à un découplage du signal  $\gamma$  mesuré et d'isoler le signal  $\gamma$  atmosphérique ou alors de procéder à une mesure de spectrométrie  $\gamma$  de ce compartiment. En effet,

en l'absence de signal  $\gamma$  du compartiment sol, le taux de comptage net enregistré par la composante  $Up$  est directement relié à l'efficacité de détection de ce cristal et de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  par l'équation :

$$C_{Up} - BDF_{Up} = \eta_{Up}^{Atm} \times ^{222}\text{Rn} \quad (7.23)$$

Cette équation 7.23 peut être simplifiée sous la forme  $y = ax + b$  où la pente,  $a$ , est caractérisée par l'efficacité de détection de la composante  $Up$  pour le compartiment atmosphérique,  $\eta_{Up}^{Atm}$ . Ainsi, en pouvant associer des mesures d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  (AlphaGUARD®) avec des taux de comptage nets extraits uniquement du signal  $\gamma$  atmosphérique, le paramètre  $\eta_{Up}^{Atm}$  pourra être estimé.

Une déconvolution de spectre ne permettrait pas d'atteindre le niveau de certitude espéré pour la détermination de ce paramètre. L'option privilégiée est donc de procéder à une mesure du signal  $\gamma$  émis par le compartiment atmosphérique avec le spectromètre NaI(Tl) pour conserver une base instrumentale commune.

Cette mesure de bruit de fond atmosphérique a été réalisée en amont de l'installation du spectromètre NaI(Tl) sur la tour instrumentée du site P2OA-CRA. Une importante logistique a dû être mise en place pour réaliser cette expérience sur le site pilote. En effet, pour obtenir une mesure purement atmosphérique, il faut impérativement que le spectromètre NaI(Tl) soit isolé du compartiment sol tout en laissant la composante  $Up$  mesurer le compartiment atmosphérique.

Ainsi, le spectromètre NaI(Tl) a été installé au sol, sur le site P2OA-CRA en périphérie de la tour instrumentée. Le détecteur a été isolé du compartiment sol par une dalle constituée de briques de plomb sur une épaisseur de 15 cm et par des doubles murs en plomb de 10 cm d'épaisseur (Figure 7.32 a). Pour protéger le détecteur, les câbles de connectique et les alimentations électriques des intempéries ou des perturbations animalières, un couvercle d'aluminium de 2 mm d'épaisseur, utilisé ensuite sur la tour instrumentée, a été déposé sur la structure en plomb (Figure 7.32 b). En faisant l'hypothèse qu'avec cette structure en plomb, tous les détecteurs sont isolés des signaux  $\gamma$  émis par le sol, avec une atténuation de 99,9% à 2614 keV pour 15 cm de plomb, seule la contribution atmosphérique est mesurée.

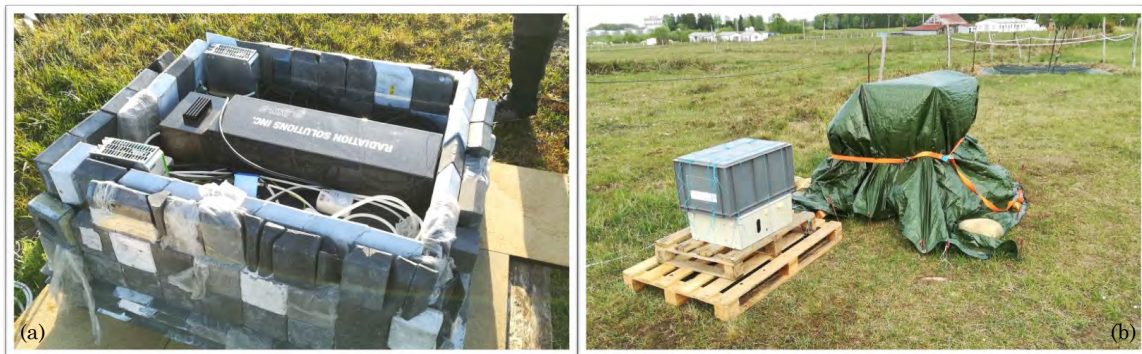
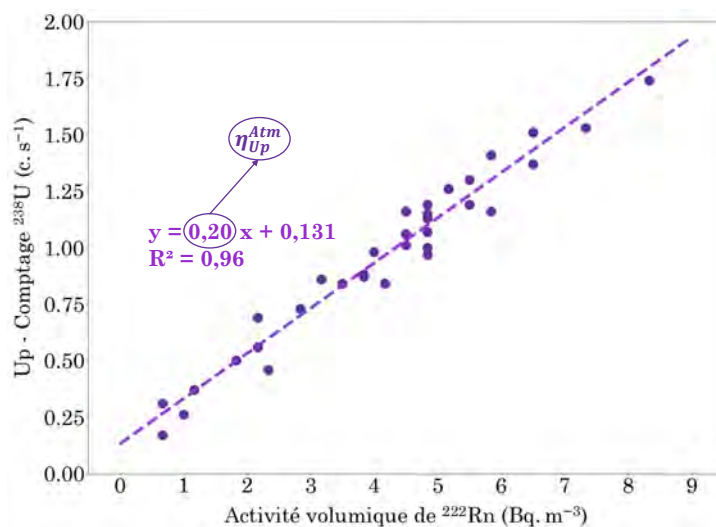


Figure 7.32 – (a) Protocole d'installation du spectromètre NaI(Tl) lors de la mesure de bruit de fond atmosphérique. L'isolement du compartiment atmosphérique est réalisé avec des briques de plomb (atténuation de 99,9% à 2614 keV pour 15 cm de plomb). (b) Système de protection aux avaries météorologiques et animales.

L'acquisition de la mesure de bruit de fond atmosphérique a été réalisée sur une période d'un mois entre le **29 Mars 2019 et le 29 Avril 2019** avec des spectres enregistrés toutes les 30 secondes. Cela permet d'obtenir une statistique de taux de comptage représentatif de la dynamique atmosphérique.

À partir de la chronique temporelle des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  de la composante  $Up$  acquise durant cette expérimentation, il est également possible de déterminer des événements radon où l'augmentation du taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  est uniquement due à sa seule présence. Sur cette période du 29 Mars au 29 Avril 2019, 35 événements radon ont pu être identifiés et ont permis d'établir le graphique reliant le taux de comptage net du  $^{238}\text{U}$  de la composante  $Up$  à l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  synchrone de l'événement radon considéré (Figure 7.33).

Figure 7.33 – Taux de comptage net extraits de la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  en  $\text{c.s}^{-1}$  en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée en  $\text{Bq.m}^{-3}$ . La droite de régression linéaire est représentée par une ligne en pointillés. La pente de la droite de 0,20 correspond à la valeur de  $\eta_{Up}^{Atm}$ .



Le taux de comptage net du  $^{238}\text{U}$  de la composante  $Up$  et l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  observent une relation linéaire représentée par la **droite de régression de pente  $0,20 \text{ c.s}^{-1}/\text{Bq.m}^{-3}$**  et un coefficient de détermination,  $R^2$ , de 0,96. Cette valeur de pente coïncide avec l'efficacité de détection de la composante  $Up$  pour le compartiment atmosphérique,  $\eta_{Up}^{Atm}$ , ainsi déterminée. L'ordonnée à l'origine montre un décalage de  $0,131 \text{ c.s}^{-1}$  qui pourrait être associé à l'influence des rayonnements cosmiques ou un faible résidu du signal tellurique.

Une vérification de cette estimation de la valeur de  $\eta_{Up}^{Atm}$  est possible. En effet, les données des 350 événements radon identifiés sur la chronique temporelle du  $^{238}\text{U}$  acquise par le spectromètre NaI(Tl) installé sur la tour instrumentée doivent permettre de retrouver cette valeur, à l'écrantage près du détecteur. La figure 7.34 présente ainsi le taux de comptage net extraits de la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  en  $\text{c.s}^{-1}$  en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée en  $\text{Bq.m}^{-3}$  pour les 350 événements radon référencés sur les spectres de la tour instrumentée. Une relation linéaire est observée avec une estimation de pente de  $0,19 \text{ c.s}^{-1}/\text{Bq.m}^{-3}$  pour un  $R^2$  de 0,92. L'ordonnée à l'origine est ici de 1,772 et correspond au signal provenant du sol, partiellement écranté par le détecteur *Down*.

Les deux pentes calculées à partir de deux jeux de données différents sont presque identiques et certifient la relation entre taux de comptage net du  $^{238}\text{U}$  et activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ . Un écart d'environ 5% est observé entre ces deux valeurs, ce qui peut être considéré comme négligeable.

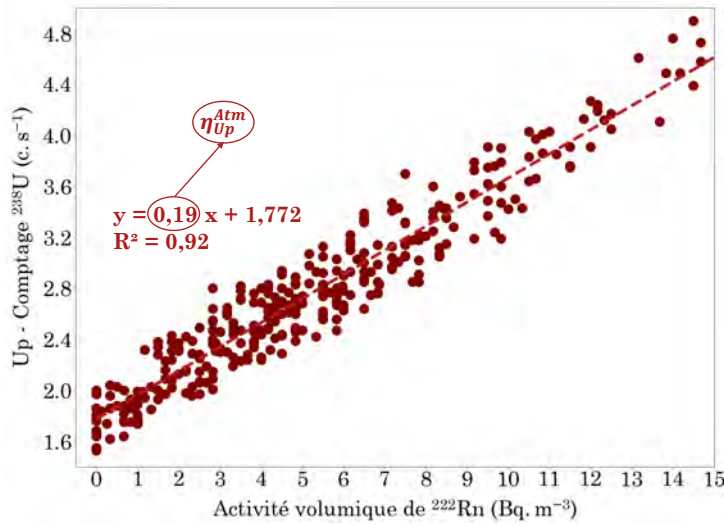


Figure 7.34 – Taux de comptage net extraits de la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  en  $\text{c.s}^{-1}$  en fonction de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  mesurée par les AlphaGUARD® en  $\text{Bq.m}^{-3}$  pour les 350 événements radon. La droite de régression linéaire est représentée par une ligne en pointillés. La pente de la droite de 0,19 correspond à la valeur de  $\eta_{Up}^{Atm}$ .

Ainsi, après cette vérification de la valeur de  $\eta_{Up}^{Atm}$  déterminée en premier lieu sur les mesures de bruit de fond atmosphérique, l'efficacité de détection de la composante  $Up$  pour le compartiment atmosphérique est :

$$\boxed{\eta_{Up}^{Atm} = 0,19} \quad (7.24)$$

Le choix est fait d'utiliser la deuxième valeur calculée plutôt que la première puisqu'elle prend en compte les 50 mètres d'air sous le détecteur.

Par conséquent, dans le but de calculer l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, l'équation 7.18 mettait en avant la nécessité d'estimer trois paramètres constants. La détermination de ces trois paramètres s'est faite en fonction d'une procédure propre à chacun et a permis d'associer une valeur à chaque constante de l'équation 7.18 :

- $\chi_{Atm} = 0,32$
- $\chi_{Sol} = 0,14$
- $\eta_{Up}^{Atm} = 0,19$

La caractérisation étant désormais réalisée, l'équation 7.18 peut donc désormais être appliquée à l'ensemble des données acquises par le spectromètre NaI(Tl) installé sur le site P2OA-CRA. Avant, de se concentrer sur ces résultats, un petit aparté sur le bruit de fond instrumental du potassium-40 est proposé.

**Petit aparté sur le bruit de fond instrumental du  $^{40}\text{K}$  :** L'absence de potassium dans l'atmosphère terrestre couplée à un isolement du spectromètre NaI(Tl) du compartiment sol permet au travers des mesures de bruit de fond atmosphérique de s'intéresser de nouveau au bruit de fond instrumental du  $^{40}\text{K}$ . En effet, la calibration des bruits de fond instrumentaux associés à chaque radionucléide a été réalisée en laboratoire sous sarcophage de plomb avec une épaisseur de plomb de 10 cm, alors qu'en environnement extérieur, 15 cm de plomb ont pu être utilisés pour atténuer le signal tellurique.



Ainsi, tous les spectres acquis en conditions environnementales par des mesures de bruit de fond atmosphérique, sur la période du **29 Mars 2019 au 29 Avril 2019**, ont été analysés pour la raie d'énergie caractéristique du  $^{40}\text{K}$ . L'extraction des aires de raie a été réalisée par la méthode de la ligne de base qui a déjà été utilisée dans la précédente étude de détermination de bruit de fond instrumental. Cette méthode permet de découpler le bruit de fond instrumental du bruit de fond associé au rayonnement cosmique qui ne présente pas de raies et est donc supprimé par soustraction du continuum. La figure 7.35 présente ainsi l'évolution temporelle des taux

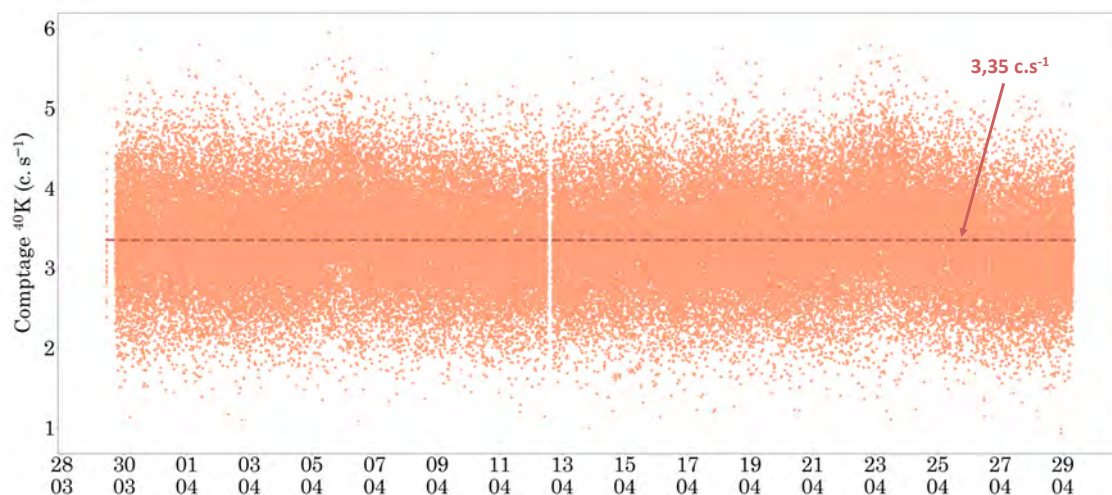


Figure 7.35 – Évolution temporelle des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  extraits par la méthode de la ligne de base sur la période de mesures du bruit de fond atmosphérique entre le 29 Mars 2019 et le 29 Avril 2019. La ligne en pointillés représente la valeur moyenne de  $3,35 \text{ c.s}^{-1}$ .

Au cours de cette période du **29 Mars 2019 au 29 Avril 2019**, les taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  montrent une relative stabilité avec une gamme de variation entre 2 et  $5 \text{ c.s}^{-1}$  et centrée sur une **moyenne de  $3,35 \text{ c.s}^{-1}$** . Cette valeur moyenne est représentative du bruit de fond instrumental lié à la présence de  $^{40}\text{K}$  dans les matériaux du détecteur. En comparaison avec la valeur de bruit de fond déterminée en conditions de laboratoire ( $7,67 \text{ c.s}^{-1}$ ), le bruit de fond instrumental du  $^{40}\text{K}$  est divisé par un facteur de 2,3. Ainsi, ces mesures de bruits de fond atmosphérique ont permis également une nette amélioration de la valeur de bruit de fond instrumental du  $^{40}\text{K}$ .

### 7.5.6 L'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ calculée par spectrométrie $\gamma$ aéroportée

Suite à cet aparté et au développement de la méthodologie de calcul permettant de déterminer les activités volumiques en radon-222 atmosphérique à partir du signal  $\gamma$ , l'équation 7.18 est utilisée sur tous les taux de comptage en base horaire du  $^{238}\text{U}$  incluant également les données acquises lors des événements de précipitations. L'objectif est d'identifier si cette méthode de calcul de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  est fonctionnelle et si elle peut s'appliquer en toutes conditions météorologiques.

Ainsi, en remplaçant dans l'équation 7.18 les trois paramètres constants, préalablement déterminés, par leur valeur respective celle-ci devient :

$${}^{222}\text{Rn} = \frac{C_{Up} - BDF_{Up} - 0,1402 \times (C_D - BDF_D)}{0,20 \times \left( \frac{-0,1402}{0,3207} + 1 \right)} \quad (7.25)$$

avec  $C_D$  et  $C_{Up}$  qui représentent les taux de comptage bruts dans la fenêtre d'intégration du  ${}^{238}\text{U}$  selon la méthode AIEA [IAEA, 1991] pour les composantes *Down* et *Up* du détecteur.

Pour chaque composante du spectromètre, les bruits de fond instrumentaux (cf. Chapitre 4 et en relation avec les rayonnements cosmiques (cf. Chapitre 7) ont été estimés. Ainsi, dans le cas du spectromètre NaI(Tl) installé sur le site P2OA-CRA, la valeur de bruit de fond total pour les composante *Down* et *Up* est de :

- $BDF_D = 5,18 \text{ c.s}^{-1}$
- $BDF_{Up} = 0,78 \text{ c.s}^{-1}$

Par conséquent, au sein de l'équation 7.25, seuls les taux de comptage bruts dans la fenêtre du  ${}^{238}\text{U}$  restent variables au cours du temps. Grâce au jeu de données de 10152 valeurs horaires de taux de comptage pour les deux composantes du détecteur, une application d'envergure de cette équation peut être réalisée.

Un exemple d'application est donné par l'intermédiaire des taux de comptage moyen enregistrés sur le créneau horaire 19h - 20h en date du **30 Avril 2019**. Le taux de comptage brut dans la fenêtre du  ${}^{238}\text{U}$  pour la composante *Up* ( $C_{Up}$ ) est de  $3,10 \text{ c.s}^{-1}$ , et de  $19,81 \text{ c.s}^{-1}$  pour la composante *Down*. En injectant l'ensemble de ces valeurs dans l'équation 7.25, l'activité volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$  calculée pour la date du **30 Avril 2019** entre 19h et 20h est donc de  $2,39 \text{ Bq.m}^{-3}$  :

$${}^{222}\text{Rn} = \frac{3,10 - 0,78 - 0,1402 \times (19,81 - 5,18)}{0,20 \times \left( \frac{-0,1402}{0,3207} + 1 \right)} = 2,39 \text{ Bq.m}^{-3} \quad (7.26)$$

La valeur moyenne mesurée par les AlphaGUARD® sur ce même créneau horaire est de  $2,33 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Ce premier calcul d'activité volumique est dans le même ordre de grandeur que celui mesuré par les moniteurs de radon. Toutefois, une seule application ne permet pas de conclure sur la validité et la robustesse de cette équation. La généralisation du calcul de l'activité volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$ , à tous les taux de comptage du  ${}^{238}\text{U}$  de la base de données horaires acquises entre les mois d'Avril et de Juin 2020, a donc été réalisée. Les résultats associés à l'ensemble des calculs d'activité volumique sont présentés sous la forme d'une chronique temporelle sur la période investiguée et accompagnés de la chronique relative à l'activité volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$  mesurée par les détecteurs de radon (Figure 7.36).

Les deux chroniques temporelles des activités volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$  sont concordantes entre elles sur toute la période d'étude. Toutefois, leur sensibilité diffère lors de certains événements bien démarqués avec l'activité volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$  calculée qui se montre plus sensible que celle mesurée par les moniteurs de radon. Cela tend à influencer la moyenne générale à la hausse de l'activité volumique de  ${}^{222}\text{Rn}$  calculée ( $4,83 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) comparée à celle des activités mesurées ( $3,93 \text{ Bq.m}^{-3}$ ) en conservant des valeurs assez proches l'une de l'autre.

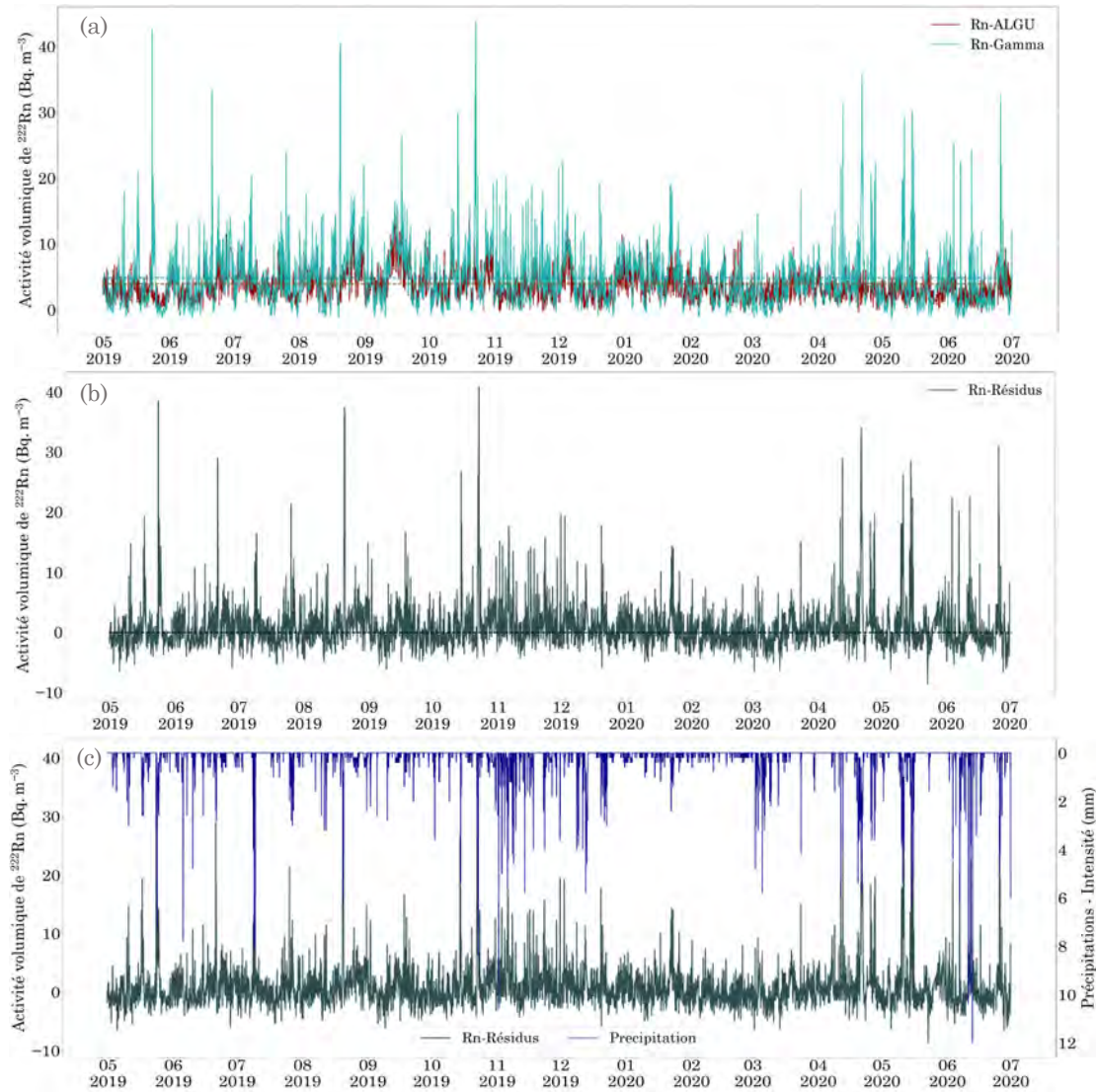


Figure 7.36 – (a) Chroniques temporelles des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  mesurées et calculées à partir de l'équation 7.25, exprimées en  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ , sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Les lignes en pointillés représentent les valeurs moyennes. (b) Résidus calculés entre les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées (Rn-Gamma) et celles mesurées par les AlphaGUARD® (Rn-ALGU), exprimés en  $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ . (c) Chroniques temporelles des résidus calculés et des précipitations sur la même période.

Ces événements avec une augmentation sur un temps très court sont bien compris. Sur la chronique temporelle des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , les précipitations étaient le facteur prépondérant pour en expliquer la cause. Le calcul de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  dépend des taux de comptage bruts enregistrés dans la fenêtre énergétique du  $^{238}\text{U}$ . Il est donc logique que les épisodes de pluie affectent également le calcul des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  sachant que la mesure passe par celle du Bi-214 rabattu par les précipitations. La figure 7.36 (c) compare la chronique des événements de pluie à celles des résidus entre activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées. Ces deux chroniques sont en phase temporelle. Les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  ne sont pas affectées par les précipitations, le radon-222 étant un gaz inerte, seuls ses descendants solides vont être concernés.

En excluant les données concernées par les épisodes de pluie, les deux chroniques temporelles des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées sont toujours superposées sur toute la période d'étude (Figure 7.37).

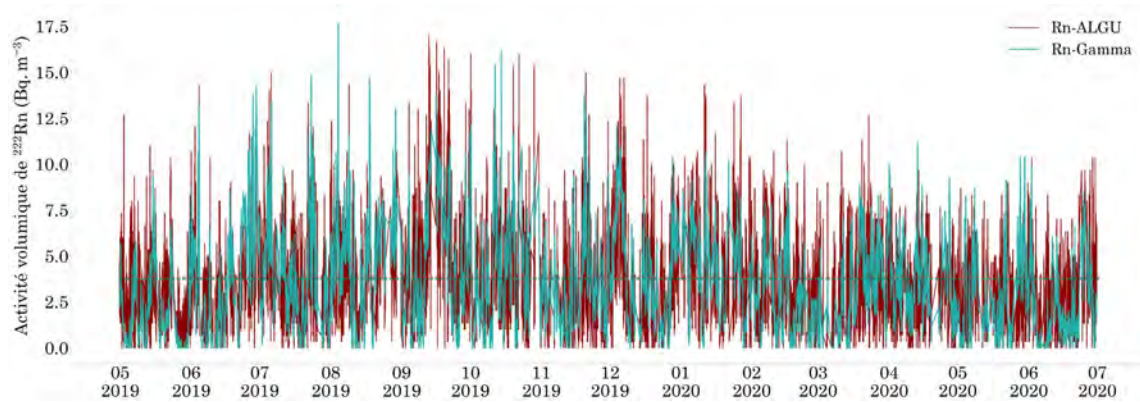


Figure 7.37 – Chroniques temporelles des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  mesurées et calculées ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ), sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020, précipitations exclues. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des activités calculées et mesurées.

Les augmentations brutales d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  ne sont plus présentes, ce qui confirme l'influence des précipitations sur ces événements. La moyenne générale de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  calculée ( $3,74 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) est comparable à celle des activités mesurées ( $3,85 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ). Les valeurs maximales atteintes sont du même ordre de grandeur pour les deux chroniques d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ .

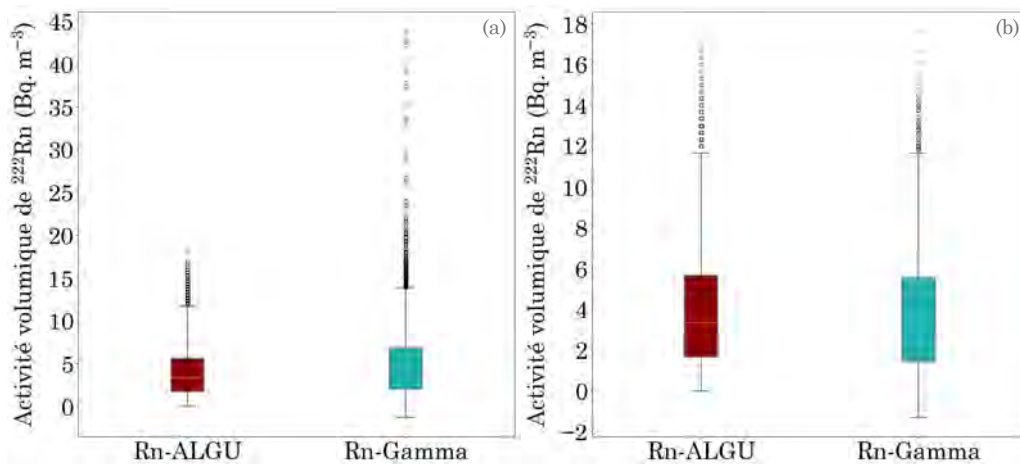


Figure 7.38 – Dispersion statistique en boîte à moustaches pour les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées sur le jeu de données total (a) et sur celui filtré des événements de précipitations (b).

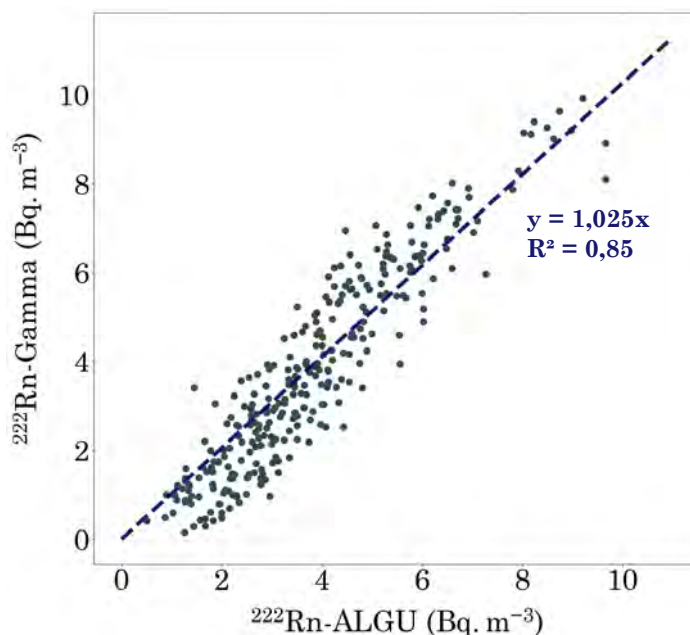
Les représentations statistiques en boîte à moustache des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées pour la totalité du jeu de données et pour celui filtré des événements de pluie sont présentées sur la figure 7.38 (a) et (b). La dispersion des activités volumiques calculées de  $^{222}\text{Rn}$  est plus importante que celle des activités mesurées pour le jeu de données total. La gamme de variation s'étend environ entre 0 et  $44 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Cette dispersion est effacée dès lors que le jeu de données filtrées est pris en considération. Les deux types d'activité volumique présentent alors des



étendues similaires comprises entre 0 et  $18 \text{ Bq.m}^{-3}$  associées à des valeurs de médiane et moyenne de même ordre de grandeur. Ces dernières observations confirment la concordance entre les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées sur les chroniques temporelles.

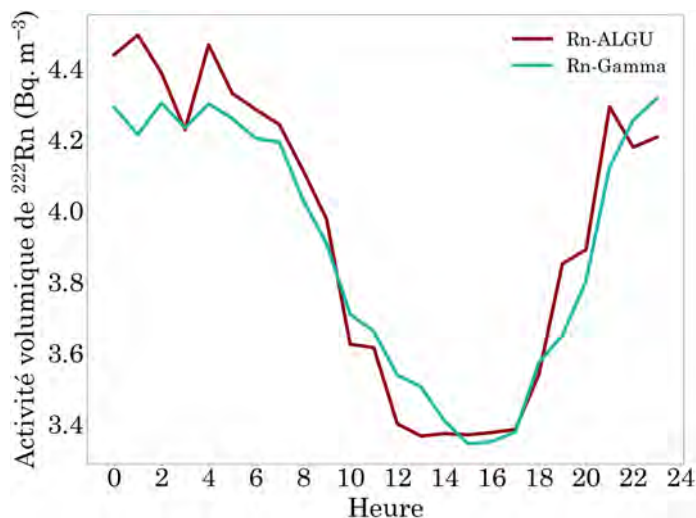
En comparant les activités volumiques du  $^{222}\text{Rn}$  calculées et mesurées ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ), après avoir été moyennées sur une base journalière, une relation linéaire se dégage très clairement avec un coefficient de détermination de 0,85 (Figure 7.39). La pente de la droite de régression est de  $1,025 \pm 0,031$  ce qui est très proche de la valeur attendue de 1.

Figure 7.39 – Activités volumiques du  $^{222}\text{Rn}$  calculées moyennées sur une base journalière ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) en fonction des activités volumiques du  $^{222}\text{Rn}$  mesurées également moyennées sur une base journalière. Une relation linéaire se dessine entre ces deux activités avec un  $R^2$  de 0,85.



Les cycles diurnes composites du  $^{222}\text{Rn}$  mesuré par les AlphaGUARD® et calculé par spectrométrie  $\gamma$  sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour les données filtrées des événements de pluie sont présentés sur la figure 7.40. La superposition de ces deux cycles diurnes composites renforce la validité de l'équation proposée et permet d'envisager des applications concrètes à la mesure du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Figure 7.40 – Cycle diurne composite du  $^{222}\text{Rn}$  mesuré par les AlphaGUARD® (Rn-ALGU) et calculé par spectrométrie  $\gamma$  (Rn-Gamma) sur la période Avril 2019 - Juin 2020.





D'après toutes ces observations, l'équation 7.18 développée au cours de cette thèse afin d'estimer l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  à partir de la spectrométrie  $\gamma$  a montré toute l'étendue de son potentiel. À l'exception des périodes de précipitations, pour lesquelles des propositions de correction sont en cours de recherche, le calcul de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  s'est avéré concluant. Les estimations de l'activité du  $^{222}\text{Rn}$  sont effectuées sur un pas de temps horaire permettant de limiter les fluctuations statistiques des taux de comptage acquis normalement sur une durée de une seconde. Un vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée dure environ 1 heure. En moyennant l'ensemble des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  acquis, il est possible d'en déduire une valeur d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  fiable et constante sur toute la surface survolée. À l'échelle du kilomètre, le radon-222 atmosphérique peut tout à fait être considéré comme stable et constant sur une période temporelle courte [Zahorowski et al., 2004, Florea and Dului, 2012, Botha et al., 2018]. Cette relation entre taux de comptage de l'uranium-238 et l'activité volumique du radon-222 atmosphérique était déjà bien connue. Toutefois, aucune méthode quantitative ne permettait de déterminer directement une valeur effective d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir de spectres  $\gamma$  ni de la mettre en œuvre de façon routinière. Bien sûr, la méthode développée dans cette thèse nécessite un spectromètre équipé d'un cristal à visée ascendante.

L'intérêt de déterminer l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir de la spectrométrie  $\gamma$  est de pouvoir proposer une correction interne de l'influence du compartiment atmosphérique sur le signal  $\gamma$  de l'uranium-238. En effet, il est possible, à partir des activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  calculées par l'équation 7.18 et de la relation entre  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  de  $^{222}\text{Rn}$  et les taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  associés de  $0,63 \text{ c.s}^{-1}$  pour la composante *Down* et de  $0,19 \text{ c.s}^{-1}$  pour la composante *Up*, de corriger cet effet du signal  $\gamma$  atmosphérique. Ainsi, le taux de comptage restant dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  est dû uniquement au signal  $\gamma$  tellurique dépendant de la teneur en eau volumique du sol. La même procédure de traitement de correction de l'effet de l'humidité du sol, que celle proposée pour les taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$ , pourrait dès lors être appliquée aux taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Cette application concrète du calcul des activités volumiques du  $^{222}\text{Rn}$  fait l'objet de la section suivante.

## 7.6 Correction de l'effet du radon-222 sur le signal $\gamma$ de l'uranium-238

L'ensemble des études précédentes, dont le  $^{222}\text{Rn}$  était le thème central, a permis de comprendre, qualifier et quantifier l'effet que peuvent avoir ses descendants sur le signal  $\gamma$  mesuré du  $^{238}\text{U}$ .

### 7.6.1 Le protocole de correction

La méthode de calcul de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$ , basée sur la durée d'un vol de spectrométrie  $\gamma$ , peut être appliquée à différentes échelles temporelles. La

recommandation faite dans cette thèse est de spécifier une seule valeur d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  par vol opéré en spectrométrie  $\gamma$  afin de limiter les fluctuations statistiques des taux de comptage.

Ainsi, un protocole de correction de cet effet atmosphérique est proposé afin de ne conserver que le signal  $\gamma$  émis par la composante tellurique :

- À partir des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  directement extraits des spectres  $\gamma$  acquis par la méthode des fenêtres d'intégration, le calcul de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  par l'équation 7.18 peut être réalisé. Dans le cas du site pilote P2OA-CRA, ce sont 10152 valeurs horaires qui ont pu être calculées. Pour un vol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, une seule valeur est déterminée pour tout le site.
- En partant de ces valeurs d'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  calculées ( $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ), la conversion de cet effet atmosphérique en taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$ ) est réalisée grâce à la relation : 1  $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  de  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère équivaut à un taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  de 0,63  $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$  pour la composante *Down* et de 0,19  $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$  pour la composante *Up*.
- Une fois cette conversion effective, la procédure de soustraction de ces taux de comptage correspondant à l'influence atmosphérique sur le signal  $\gamma$  total, peut être appliquée sur les taux de comptage brut du  $^{238}\text{U}$ , en plus de celles liées aux bruits de fond instrumentaux et cosmiques.
- Les taux de comptage dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  sont désormais représentatifs du signal  $\gamma$  émis par le compartiment sol uniquement. Le signal  $\gamma$  émis par le compartiment atmosphérique est déconvolué du signal  $\gamma$  total et peut donc faire l'objet d'études dédiées.

En fonction de l'objectif de la campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, ce protocole peut être appliqué directement sur les spectres acquis ou en post-traitement.

### 7.6.2 Les variations temporelles des taux de comptage corrigés du $^{238}\text{U}$

En ce qui concerne cette étude, cette procédure de correction a été appliquée sur la base de données filtrées des événements de précipitations, des taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  acquis sur le site P2OA-CRA sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020. La chronique temporelle qui en résulte est présentée sur la figure 7.41.

Les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , après correction atmosphérique, sont en phase avec les taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$ , radionucléide non perturbé par la présence du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, sur toute la chronique étudiée.

Les variations saisonnières, précédemment identifiées sur les chroniques temporelles du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$  mais pas sur celle du  $^{238}\text{U}$ , sont désormais bien visibles. Les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sur la période estivale (rectangle rouge) présentent une moyenne supérieure de 0,84  $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$  par rapport à la moyenne de la période totale (15,06  $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$ ). À l'inverse, la moyenne saisonnière des taux de comptage pour la période hivernale (rectangle bleu) est inférieure de 0,51  $\text{c}\cdot\text{s}^{-1}$ . Ces variations saisonnières sont bien anti-corrélées avec les teneurs en eau volumique.

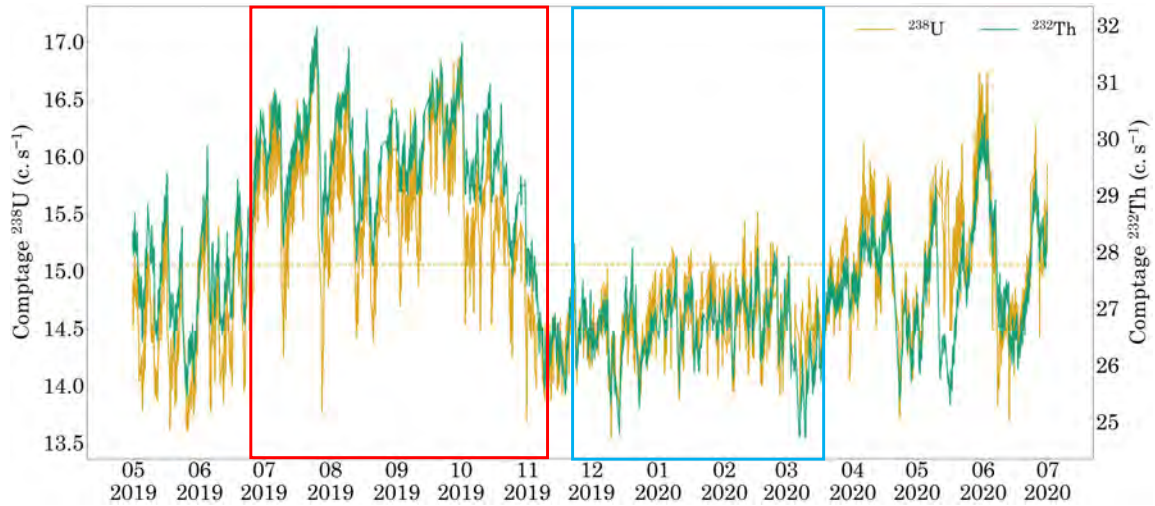


Figure 7.41 – Chronique temporelle des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$  après application de la correction du radon-222 atmosphérique comparée à celle du  $^{232}\text{Th}$  ( $\text{c.s}^{-1}$ ), radionucléide non perturbé par la présence de  $^{222}\text{Rn}$  dans l'atmosphère. Les données liées aux événements de pluie ont été exclues.

Les coefficients de corrélation entre les taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$  avec ceux de la fenêtre d'énergie du  $^{238}\text{U}$  étaient de 0,59 et 0,60 respectivement, précipitations exclues. Après correction de l'effet du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, ces coefficients atteignent des valeurs de 0,85 et 0,87. La forte amélioration des coefficients de corrélation confirme que les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  observent les tendances saisonnières. Toutes ces observations sont encourageantes quant à la validité de la procédure de correction atmosphérique.

### Le cycle diurne des taux de comptage corrigés du $^{238}\text{U}$

La figure 7.42 permet de montrer l'impact de la correction atmosphérique sur le cycle diurne composite du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . En effet, le premier graphique (a) présente le cycle diurne du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  avant l'application de la correction atmosphérique. Ce cycle diurne est concordant avec celui du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique (c), or il devrait être anti-corrélé à celui de l'humidité du sol (d), ce qui n'est pas le cas. Le cycle diurne composite du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  après que la correction atmosphérique a été appliquée révèle une forme de courbe inverse à celle avant l'utilisation de la correction. Le maximum du taux de comptage est atteint en début d'après-midi, 14h, lorsque l'humidité du sol est à son minimum. Il est désormais anti-corrélé au cycle diurne du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, comme les cycles diurnes des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . L'amplitude de variation entre les valeurs minimale et maximale du cycle diurne des taux de comptage corrigés est de 1,45 %. Elle est associée, en parallèle, à une diminution de 1,60% de la teneur en eau volumique.

La correction atmosphérique appliquée sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  permet d'identifier l'influence du cycle semi-diurne de la pression atmosphérique sur le créneau horaire 2h - 4h qui avait été préalablement observé sur les cycles diurnes des taux de comptage du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$ . La détection de cette influence sur le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  montre une sensibilité améliorée.

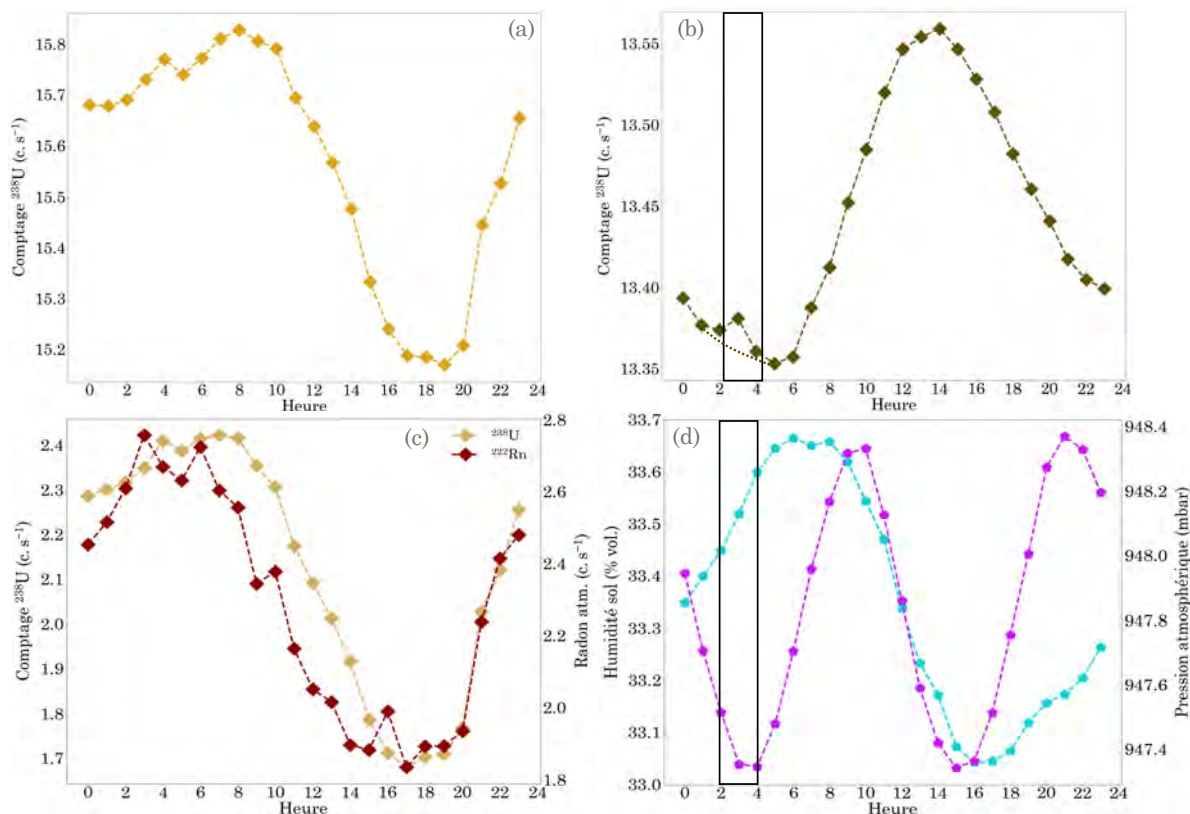


Figure 7.42 – Cycle diurne du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  sans correction du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique ( $\text{c.s}^{-1}$ ) (a) et avec correction du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique ( $\text{c.s}^{-1}$ ) (b). (c) Cycles diurnes de la différence des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  non corrigés et corrigés et de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  ( $\text{c.s}^{-1}$ ). (d) Cycle diurne de la teneur en eau volumique (% vol.) et cycle semi-diurne de la pression atmosphérique (mbar). Les cycles diurnes sont des composites des données filtrées des épisodes de pluie. Le rectangle noir identifie l'effet de la pression sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ .

Au vu de ces résultats concluants sur les variations temporelles des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  corrigés des effets du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, à la fois pour les variations saisonnières et diurnes, ces taux de comptage semblent donc bien être associés uniquement au signal  $\gamma$  émis par le compartiment sol. Ainsi, l'évolution de ces taux de comptages en fonction de l'humidité des sols peut de nouveau être abordée.

### 7.6.3 L'évolution du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ en fonction de l'humidité des sols

En s'intéressant à l'évolution des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  corrigés des effets atmosphériques en fonction de l'humidité du sol et de l'ajustement théorique associé par l'intermédiaire de l'équation 6.11, la figure 7.43 (b) montre une dispersion autour de cet ajustement de  $1,1 \text{ c.s}^{-1}$  à humidité constante. Cette dispersion était de  $5,5 \text{ c.s}^{-1}$  pour les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  avant l'application de la correction atmosphérique (Figure 7.43 a). Ainsi, pour une humidité de 30%, la dispersion des taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  est d'environ 10% quand elle est de 9% pour le  $^{40}\text{K}$  et



de 10,5% pour le  $^{232}\text{Th}$ . Elle était initialement de 62,5% sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  non corrigés de l'effet du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique. Cette dernière observation confirme que seuls les photons  $\gamma$  émis par le compartiment sol constituent le signal  $\gamma$  mesuré.

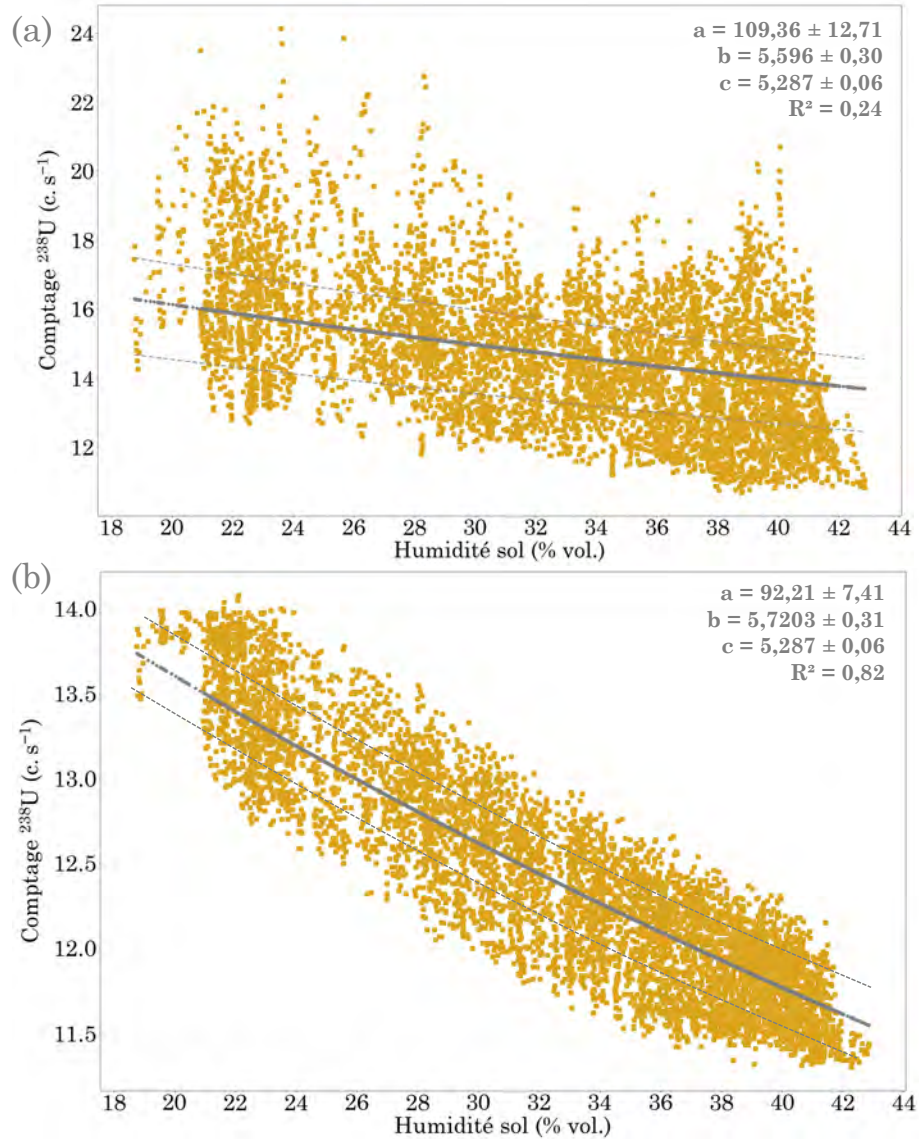


Figure 7.43 – Taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{c.s}^{-1}$ ) avant (a) et après correction (b) de l'influence du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.). La ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'espace de variation de l'ensemble des incertitudes prises en compte. Les paramètres et les incertitudes associés à  $1\sigma$  ainsi que le coefficient de détermination  $R^2$  sont présentés. Les données sont filtrées des épisodes pluvieux.

Cette dispersion recentrée autour de la courbe d'ajustement théorique se matérialise par un coefficient de détermination  $R^2$ , en nette amélioration, de 0,82 par rapport à 0,24 initialement obtenu sans la correction atmosphérique. Cette meilleure précision sur les résultats obtenus a engendré une évolution des paramètres  $a$  et  $b$  de l'équation 6.11. Le paramètre  $a$  est passé d'une valeur de 109,36 à 92,21 et le



paramètre  $b$ , de 5,596 à 5,7203. L'augmentation de la valeur du paramètre  $b$  entraîne *de facto* une évolution positive de la densité volumique du sol de  $1175 \pm 63 \text{ kg.m}^{-3}$  à  $1201 \pm 65 \text{ kg.m}^{-3}$ . Cette dernière valeur est très proche de celle obtenue in situ,  $1200 \pm 50 \text{ kg.m}^{-3}$ .

Le rapport entre les paramètres  $a$  et  $b$  détermine le taux de comptage du radio-nucléide pour un sol sec. Avant la correction atmosphérique, ce taux de comptage calculé pour le  $^{238}\text{U}$  était de  $19,54 \pm 1,98 \text{ c.s}^{-1}$ . La prise en compte de la correction de l'effet du  $^{222}\text{Rn}$  amène à un taux de comptage pour un sol sec réduit à  $16,12 \pm 0,88 \text{ c.s}^{-1}$ .

En utilisant le protocole de correction de la teneur en eau volumique sur le signal  $\gamma$  mesuré, qui permet de ramener un taux de comptage d'une humidité  $x$  à celui équivalent à une humidité nulle, sur les taux de comptage corrigés du  $^{238}\text{U}$ , l'évolution temporelle des taux de comptage pour un sol sec peut être observée (Figure 7.44). La correction par prise en compte de la teneur en eau volumique du sol permet de s'affranchir des variations temporelles observées sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  non corrigés. En effet, la gamme de variation des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  non corrigés est d'environ 26% quant elle est de 10% sur les données corrigées.

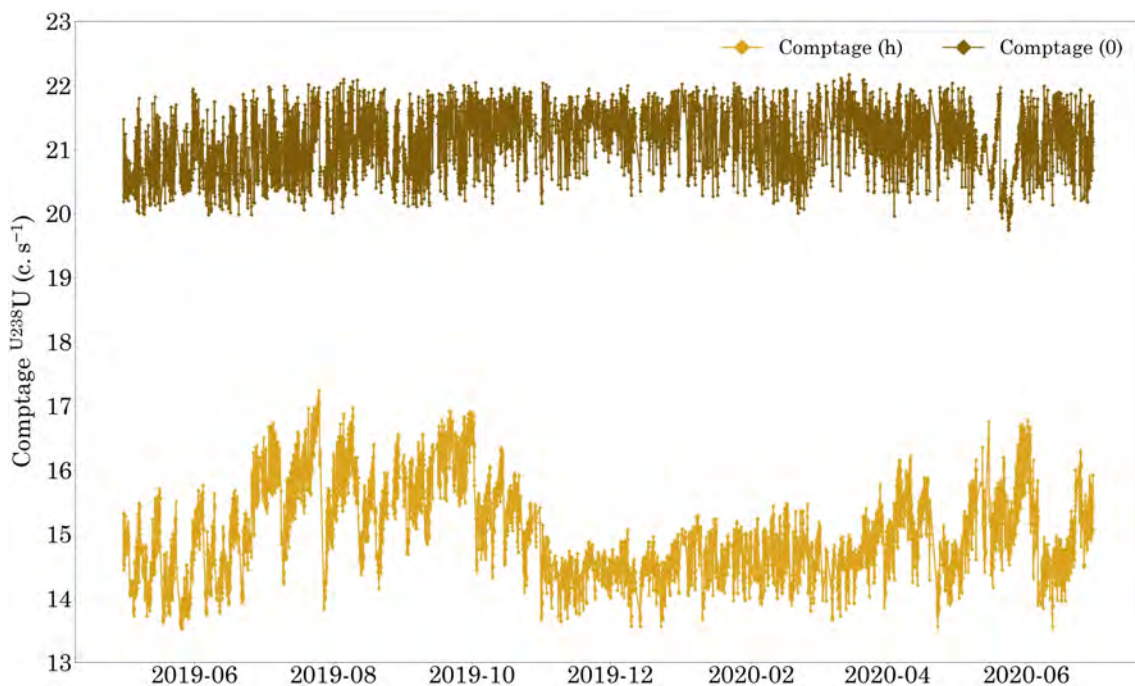


Figure 7.44 – Évolution temporelle des taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  corrigés des effets du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0)) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique du sol.

L'application de cette procédure de correction liée à l'influence de la teneur en eau volumique du sol, en plus de celle associée au  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, a permis de déterminer des taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  pour un sol sec. L'absence de variations temporelles comme celles observées sur les données non corrigées montrent que cette combinaison de corrections est très efficace pour traiter les taux de comptage brut du  $^{238}\text{U}$ .

### 7.6.4 La simulation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ pour un sol sec

La validation des deux corrections proposées pour le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  permet désormais d'envisager une simulation par Geant-4 de même nature que celle effectuée pour le  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{40}\text{K}$ .

L'objectif de cette simulation est d'estimer le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  mesuré par le spectromètre NaI(Tl), installé à une hauteur de 50m, à partir des rayonnements  $\gamma$  émis depuis le sol à une énergie de 1764 keV pour une activité massique de  $^{238}\text{U}$ , homogénéisée en profondeur et latéralement, de  $38,90 \pm 5,70 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . La profondeur de sol, paramètre d'entrée de la simulation, est toujours de 30 cm.

Cette simulation, comme celles de  $^{40}\text{K}$  et  $^{232}\text{Th}$ , devraient permettre de configurer les coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique de  $^{238}\text{U}$  pour un sol sec.

Le taux de comptage simulé pour un sol sec de masse volumique apparente de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$  pour l'uranium-238, est présenté dans le tableau 7.3. Le taux de comptage pour un sol sec déterminé à partir de la courbe d'ajustement théorique entre taux de comptage et humidité du sol *in situ* est également proposé comme comparatif.

Élément	Énergie (keV)	$N_{sec}\text{-SimG4}$ c.s $^{-1}$	$N_{sec}\text{-Ajusté}$ c.s $^{-1}$	$ \Delta N_{sec} $ %
$^{238}\text{U}$	1764	$12,03 \pm 1,95$	$16,12 \pm 0,88$	$25,37 \pm 0,87$

Tableau 7.3 – Taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  pour un sol sec de masse volumique apparente  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$  et pour une activité massique homogène de  $38,90 \text{ Bq.kg}^{-1}$  déterminé à partir des simulations Geant-4 ( $N_{sec}\text{-SimG4}$ ) et par ajustement d'une courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol ( $N_{sec}\text{-Ajusté}$ ). La différence entre les deux taux de comptage pour chaque radionucléide est proposée.

Le résultat entre ces deux taux de comptage mesuré et simulé montre une différence importante de  $25,37 \pm 0,87 \%$ , en comparaison des  $1,73 \pm 0,06\%$  du  $^{40}\text{K}$  et des  $0,20 \pm 0,03\%$  du  $^{232}\text{Th}$ . La valeur simulée,  $12,03 \pm 1,95 \text{ c.s}^{-1}$  est inférieure à celle calculée par l'ajustement de la courbe théorique,  $16,12 \pm 0,88 \text{ c.s}^{-1}$ .

Le désaccord entre les mesures sur la réponse à une distribution atmosphérique de radon et les simulations Geant-4 peut s'expliquer par un dépôt sec continu des fractions attachées et libres des descendants solides à vie courte du radon qui aboutit à une source surfacique (variable mais permanente) qui vient se superposer au signal atmosphérique et au signal provenant du sol. L'écart entre les taux de comptage mesuré et simulé pour un sol sec, qui est de  $4,09 \text{ c.s}^{-1}$ , peut être converti en activité surfacique par l'intermédiaire du coefficient proposé dans la section traitant des *Précipitations* dans ce chapitre 7 :  $1425 \text{ Bq.m}^{-2}$ .

Cette contribution surfacique supplémentaire, dont l'origine est imputable au dépôt du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$  atmosphériques, va entraîner une augmentation de la teneur en  $^{210}\text{Pb}$  dans les premiers centimètres du sol.

L'étude du facteur d'équilibre, qui cherche à qualifier l'état de déséquilibre entre les descendants à vie courte du radon-222 présents dans un volume et le radon-222, permettrait de quantifier la proportion de descendants solides qui se déposent au niveau du sol. La valeur moyenne de ce facteur mesuré à une hauteur de 1 m grâce à l'AlphaPM (Chapitre 4), sur la période **Septembre 2020 - Décembre 2020**, est de 0,45 et montre donc un déséquilibre important associé à un dépôt des descendants du radon à la surface du sol.

Le dépôts des aérosols atmosphériques, sur lesquels sont retrouvés les descendants solides à vie courte du  $^{222}\text{Rn}$ , vont entraîner un large excès de  $^{210}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Pb}$  supporté) dans les couches superficielles du sol [Balkanski et al., 1993, Preiss et al., 1996]. En effet, sans ce rabat de la fraction attachée voire de la fraction libre, la diffusion du radon dans l'atmosphère aurait tendance à appauvrir les premiers centimètres du sol en descendants. Ainsi, la distribution dans le sol du  $^{210}\text{Pb}$ , connue par l'intermédiaire des mesures d'activités massiques réalisées sur les échantillons de sol au LAFARA, est donc tout indiquée pour investiguer cette hypothèse.

Le profil de sol en  $^{210}\text{Pb}$  total,  $^{210}\text{Pb}$  supporté +  $^{210}\text{Pb}$  non supporté [Pourchet et al., 2000], établi à partir des données d'activités massiques mesurées sur les 82 échantillons de sol par spectrométrie  $\gamma$  de laboratoire est présenté sur la figure 7.45 (a). Un enrichissement notable de l'activité spécifique en  $^{210}\text{Pb}$  est observé au sein de la couche superficielle de sol comprise entre la surface et une profondeur de 10 cm par rapport à la moyenne du  $^{210}\text{Pb}$  supporté, en équilibre séculaire avec le  $^{238}\text{U}$ , de  $38,90 \pm 5,70 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . La couche superficielle (0 - 10 cm) présente une valeur d'activité massique en  $^{210}\text{Pb}$  de  $55,07 \pm 4,36 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . La couche profonde du sol caractérisée entre 40 et 50 cm de profondeur, quant à elle, se caractérise par une valeur inférieure à celle observée au niveau des couches comprises entre 10 et 40 cm (environ  $40 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ) et se rapproche de la valeur du  $^{238}\text{U}$ .

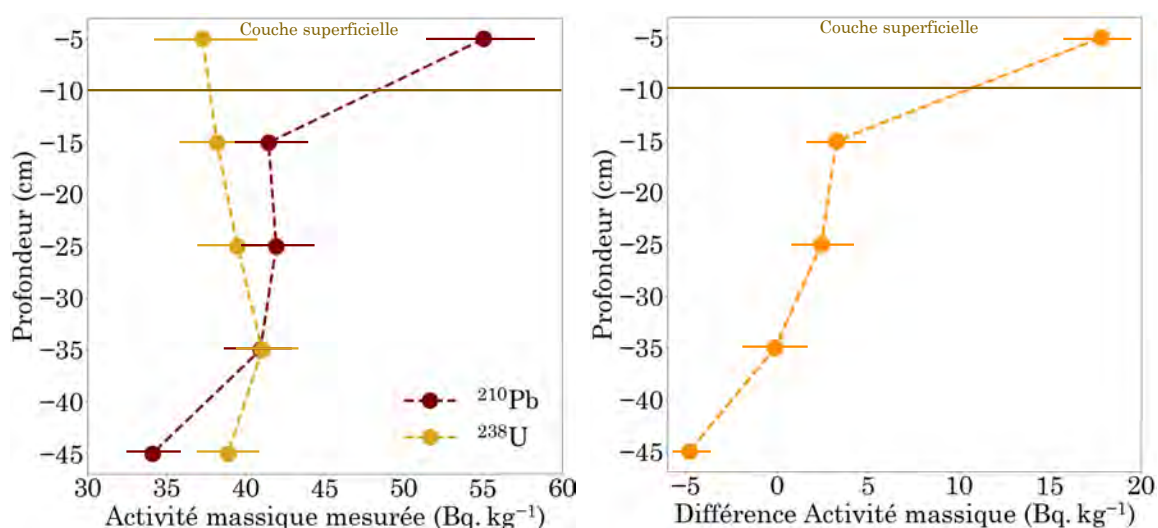


Figure 7.45 – (a) Profils de l'activité massique en  $^{210}\text{Pb}$  total et en  $^{238}\text{U}$  ( $^{210}\text{Pb}$  supporté) établis entre la surface du sol et une profondeur de 50 cm, d'après l'ensemble des échantillons de sol analysés par le LAFARA. (b) Profil du  $^{210}\text{Pb}$  non supporté, correspondant à la différence entre les activités massiques du  $^{210}\text{Pb}$  total et du  $^{210}\text{Pb}$  supporté.

La figure 7.45 (b) montre la différence entre les profils de  $^{210}\text{Pb}$  total et du  $^{210}\text{Pb}$  supporté (équivalent au  $^{238}\text{U}$ ) et correspond au profil de  $^{210}\text{Pb}$  non supporté. Si les différences sont relativement faibles (-5 à +5  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) entre les profondeurs 10 et 50 cm, la couche superficielle de sol montre une différence très importante d'environ 18  $\text{Bq.kg}^{-1}$ . Elle marque un enrichissement en  $^{210}\text{Pb}$  de cette couche superficielle par l'intermédiaire du  $^{210}\text{Pb}$  non supporté issu des dépôts des aérosols atmosphériques [Mélières et al., 2003]. Cet enrichissement en  $^{210}\text{Pb}$  de la couche superficielle, suite aux dépôts secs et humides des aérosols atmosphériques est donc de 16,17  $\text{Bq.kg}^{-1}$  soit environ  $2000 \text{ Bq.m}^{-2}$  en considérant une profondeur de sol de 10 cm et une masse volumique apparente de sol de  $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ .

La différence observée entre l'activité surfacique additionnelle en  $^{210}\text{Pb}$  estimée à partir des échantillons de sol ( $2000 \text{ Bq.m}^{-2}$ ) et celle déterminée par les écarts entre les taux de comptage mesurés et simulés pour un sol ( $1425 \text{ Bq.m}^{-2}$ ) est donc de  $575 \text{ Bq.m}^{-2}$ . Toutefois, les dépôts humides (précipitations) n'ont pas été considérés dans le calcul de l'activité surfacique entre taux de comptage mesurés et simulés.

En moyenne sur le site P2OA-CRA, un épisode pluvieux entraîne une augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  d'environ  $5 \text{ c.s}^{-1}$  ce qui amène à une différence de  $9,09 \text{ c.s}^{-1}$  ou  $3167 \text{ Bq.m}^{-2}$  avec la simulation Geant-4 réalisée pour un sol sec. Les précipitations représentent 25% du jeu de données. Ainsi, en considérant les dépôts humides et les dépôts secs, l'activité surfacique additionnelle n'est plus de  $1425 \text{ Bq.m}^{-2}$  mais de  $1861 \text{ Bq.m}^{-1}$ . Cette valeur ne présente qu'un écart de 7% avec celle estimée par les mesures de  $^{210}\text{Pb}$  des échantillons de sol.

Dans tous les cas, il semble indispensable de prendre en compte ce facteur d'enrichissement en  $^{210}\text{Pb}$  dans les simulations pour vérifier si le taux de comptage simulé serait toujours largement inférieur à celui calculé à partir des mesures opérées dans l'environnement. Un modèle de sol hétérogène, avec addition d'une source surfacique à une source volumique, tend à être plus adéquat pour simuler le taux de comptage pour un sol sec du  $^{238}\text{U}$ .

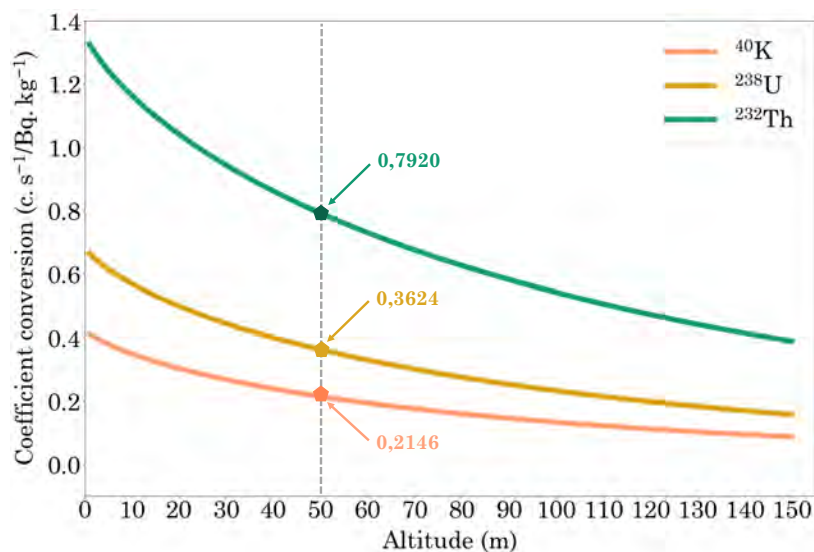


Figure 7.46 – Coefficients de conversion des taux de comptage, mesurés à une altitude  $h$  (m), en activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  en fonction de l'altitude de vol, en mètres.

Devant la très bonne concordance des résultats simulés et calculés pour les deux autres radionucléides,  $^{40}\text{K}$  et  $^{232}\text{Th}$ , un coefficient de conversion entre activité massique et taux de comptage associé peut être estimé pour une altitude de 50 mètres.

Le taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  pour un sol sec est donc cette fois-ci celui qui a été calculé par l'intermédiaire de la courbe d'ajustement théorique :  $16,12 \pm 0,88$  c.s $^{-1}$ . Ainsi, **le taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  relié à une activité massique de 1 Bq.kg $^{-1}$  est de 0,3624**. Les coefficients de conversion des taux de comptage en activité massique, à toute altitude de vol  $h$ , pour le  $^{238}\text{U}$  sont présentés sur la figure 7.46. Ils découlent de l'équation 6.20.

En conclusion, l'ensemble des procédures de corrections proposées et appliquées sur les taux de comptage extraits du signal  $\gamma$  mesuré a permis d'éliminer progressivement l'influence des effets atmosphériques et de la teneur en eau volumique pour l'ensemble des radionucléides suivis. Des coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique ont pu être mis en place pour trois radionucléides et validés par des simulations Geant-4 pour au moins deux d'entre eux. Ces coefficients permettront d'établir des cartographies des activités massiques de chaque radionucléide suite à un survol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

L'effet, considéré comme négligeable, de la pression atmosphérique sur le signal  $\gamma$  a pu être identifié sur un créneau horaire nocturne (2h-4h) et en milieu d'après-midi (14h-16h). Toutefois, aucune proposition de correction n'est proposée pour ce paramètre environnemental.

## 7.7 Conclusion sur les effets environnementaux sur le signal $\gamma$ mesuré

Cette partie consacrée à la caractérisation des effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré a permis de quantifier l'influence :

- De l'humidité du sol,
- De la pression atmosphérique,
- Du rayonnement cosmique,
- Des précipitations,
- Du radon atmosphérique.

En se basant sur ces observations, des corrections adaptées à chaque effet environnemental ont ainsi pu être proposées et appliquées sur les chroniques du signal  $\gamma$  acquises sur cette période de 14 mois, entre Avril 2019 et Juin 2020.

Les tableaux 7.4 et 7.5 présentent les gammes de variation des influences environnementales, hors précipitations, sur le signal  $\gamma$  mesuré de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ , pour un pas de temps horaire, avant et après les corrections déduites de ces travaux de thèse. Pour chaque radionucléide, les fluctuations statistiques ont été déterminées suivant la loi de Poisson,  $\sqrt{N}/N$ . L'écart-type relatif indique la part de variation observé sur le signal  $\gamma$  mesuré imputable aux effets environnementaux sus-nommés.



## 7.7. Conclusion sur les effets environnementaux sur le signal $\gamma$ mesuré

Élément	Fluctuation statistique	Humidité du sol	Pression atm.	Rayons cosmiques	Radon atm.	Écart-type relatif
$^{40}\text{K}$	$\pm 0,2\%$	$\pm 0 - 25\%$	$<1\%$	$\pm 0,8\%$	$\pm 0 - 5\%$	5,8%
$^{238}\text{K}$	$\pm 0,4\%$	$\pm 0 - 25\%$	$<1\%$	$\pm 3,0\%$	$\pm 0 - 70\%$	28,5%
$^{232}\text{Th}$	$\pm 0,3\%$	$\pm 0 - 25\%$	$<1\%$	$\pm 1,1\%$	$\pm 0\%$	5,5%

Tableau 7.4 – Gammes de variation des influences environnementales, hors précipitations, sur le signal  $\gamma$  mesuré de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  pour un pas de temps horaire, avant les corrections proposées. Les fluctuations statistiques ont été déterminées suivant la loi de Poisson,  $\sqrt{N}/N$ .

Avant les différentes corrections, un cumul des effets environnementaux dominé par l'influence du radon atmosphérique peut entraîner une augmentation de presque 100 % du signal  $\gamma$  du  $^{238}\text{U}$ .

Pour le signal du  $^{232}\text{Th}$  et de  $^{40}\text{K}$ , ce cumul se situe aux alentours de 25 à 30 % avec une influence dominante de l'humidité du sol. Un effet limité du radon atmosphérique est observé sur le signal du  $^{40}\text{K}$ . Ceci est dû à la méthode d'analyse spectrale employée couramment en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée où le comptage calculé dans la fenêtre du  $^{40}\text{K}$  dépend de celui déterminé dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$ . En effet, La déconvolution spectrale par la méthode des fenêtres préconisée par l'AIEA [IAEA, 1991] en est à l'origine, le  $^{40}\text{K}$  étant caractérisé par un photon  $\gamma$  d'énergie inférieure à celle du photon  $\gamma$  du  $^{214}\text{Bi}$  utilisé en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour définir le  $^{238}\text{U}$  (1461 keV contre 1764 keV). L'effet limité de la pression atmosphérique, du rayonnement cosmique et des fluctuations statistiques a également pu être déterminé.

Élément	Variations résiduelles
$^{40}\text{K}$	$\pm 1,7\%$
$^{238}\text{K}$	$\pm 2,4\%$
$^{232}\text{Th}$	$\pm 1,9\%$

Tableau 7.5 – Variations résiduelles, hors précipitations, observées sur le signal  $\gamma$  mesuré de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  pour un pas de temps horaire, après les différentes corrections proposées.

L'écart-type relatif déterminé avant la phase de correction proposée pour le signal  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  et celui du  $^{232}\text{Th}$  est relativement similaire et proche d'une valeur de 6 %. Suite à la correction de l'effet de l'humidité du sol, les variations résiduelles observées sur ces deux signaux ont été caractérisées à hauteur de 2 % ce qui représente une diminution de 300 % de l'influence environnementale.

L'écart-type relatif avant correction pour le signal  $\gamma$  du  $^{238}\text{U}$  atteint une valeur proche de 30 %. Suite aux corrections de l'effet de l'humidité du sol et du radon

atmosphérique, l'influence environnementale est réduite à une valeur de 2,5 %, du même ordre de grandeur que celle caractérisée pour les signaux  $\gamma$  du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$ .

Les variations résiduelles observées après les différentes corrections des influences environnementales sur le signal  $\gamma$  mesuré indiquent que des effets mineurs sont encore présents. Par exemple, l'analyse de l'effet de l'humidité du sol sur le signal  $\gamma$  s'est concentrée sur la teneur en eau des 5 premiers centimètres du sol. Or, les photons  $\gamma$  du  $^{232}\text{Th}$  provenant des 25 premiers centimètres du sol sont détectés par le spectromètre à une altitude de 50 mètres. L'absence de prise en compte du profil d'humidité du sol peut probablement intégrer ces variations résiduelles qui restent à caractériser.

Le prochain chapitre se concentre sur les données d'un survol de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée qui a été réalisée sur le site pilote P2OA-CRA de Lannemezan en Septembre 2020. L'application des corrections développées dans cette thèse vont pouvoir être testée en conditions réelles d'une campagne d'acquisition.

# D

PARTIE

Une campagne de  
spectrométrie  $\gamma$  aéroportée  
sur le site pilote P2OA-CRA



# 8

## La reproductibilité des cartes expérimentée sur une échelle diurne

---

*"N'oubliez pas les leçons du passé, elles seront votre guide  
pour l'avenir" (Proverbe chinois).*

---





## Sommaire

---

<b>8.1</b>	<b>La campagne de spectrométrie <math>\gamma</math> aéroportée de Septembre 2020</b>	<b>329</b>
8.1.1	Les caractéristiques de la campagne de survols effectués sur le site P2OA-CRA	329
8.1.2	Le protocole de correction PASTHEL, développé dans cette thèse	333
<b>8.2</b>	<b>Les cartographies réalisées pour étudier la répétabilité diurne</b>	<b>339</b>
8.2.1	$^{40}\text{K}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	341
8.2.2	$^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	342
8.2.3	$^{238}\text{U}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	343
8.2.4	Étude des cartographies de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements	344
<b>8.3</b>	<b>Les cartographies ultra-localisées réalisées à proximité du mât météorologique</b>	<b>347</b>
8.3.1	$^{40}\text{K}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	349
8.3.2	$^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	350
8.3.3	$^{238}\text{U}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL	351
8.3.4	Étude des cartographies ultra-localisées de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements	352
8.3.5	Comparaison Hélinuc® - PASTHEL à une échelle semi-diurne	352
<b>8.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>353</b>

---

## 8.1 La campagne de spectrométrie $\gamma$ aéroportée de Septembre 2020

L'étude des variabilités temporelles du signal  $\gamma$  mesuré par un vol stationnaire et la caractérisation des effets engendrés par plusieurs facteurs environnementaux sur ce signal ont permis de qualifier et quantifier cette influence. Deux campagnes de survols de site pour cartographier en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée ont été programmées dans cette thèse afin de l'appliquer à l'étude environnementale du site P2OA-CRA.

L'objectif initial de ces survols est donc de vérifier la **reproductibilité temporelle et spatiale** des cartes d'activité massique des radionucléides sur des périodes où l'influence environnementale est différente. Le principal paramètre environnemental conditionnant la distinction de ces périodes est la teneur en eau volumique du sol qui influence directement le signal  $\gamma$  émis par le compartiment sol. Ainsi, grâce aux données acquises par les sondes TDR de suivi de l'humidité du sol, le mois qui présente l'humidité du sol moyenne la plus importante dans la couche de surface est observé en Avril, alors que le mois le plus sec est le mois de Septembre. Les deux campagnes de survol, qui nécessitent une importante logistique, ont donc été préparées pour ces deux mois. Les variations diurnes, par l'intermédiaire de deux vols, sont également investiguées.

Malheureusement, la campagne d'Avril 2020 n'a pu être réalisée en raison de la COVID-19. Cette campagne doit être programmée de nouveau pour l'année 2021, si les conditions le permettent. Par contre, la campagne de Septembre 2020 a pu être réalisée sur deux journées dédiées sur le site pilote de Lannemezan, les 07 et 08 Septembre 2020. À défaut d'étudier la répétabilité saisonnière qui fera donc l'objet d'une étude postérieure à la thèse, la répétabilité diurne ainsi que la vérification du protocole de correction mises en place dans le cadre de ces travaux vont pouvoir être analysées. La sensibilité diurne aux effets environnementaux est plus difficile à observer. Ainsi, si la superposition de cartes réalisées à partir du protocole de correction à deux horaires différents d'une même journée est validée, cela signifie que les corrections proposées sont bien applicables en l'état. Le spectromètre NaI(Tl) installé sur le mât du site pilote pourra servir de point de référence. Les principales caractéristiques de la campagne de survols sont abordées dans un premier temps avant de s'intéresser plus en détails aux cartes réalisées par l'intermédiaire du traitement standard d'Hélinuc® et celles par le protocole de correction PASTHEL.

### 8.1.1 Les caractéristiques de la campagne de survols effectués sur le site P2OA-CRA

À cause des contraintes temporelles et de disponibilité d'un hélicoptère pouvant être équipé d'un spectromètre du même type que celui du mât (RSX-5), le système Hélinuc a été monté sur un hélicoptère de type Écureuil. Le module de détection est donc composé d'un spectromètre NaI(Tl) de 16 litres, de type RSX-4, habituellement utilisé pour les cartographies de référence par l'équipe Hélinuc®. Le détecteur dédié à la quantification de l'influence du radon-222 atmosphérique n'est donc pas présent sur le spectromètre dont est équipé l'hélicoptère. La détermination de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique sur un survol complet d'un site ne peut donc être testée en conditions réelles de vol.

La campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur le site P2OA-CRA a donc été réalisée les **07 et 08 Septembre 2020**. Deux vols, l'un le matin et l'autre l'après-midi de la journée du 07 Septembre 2020, avaient pour but de tester la répétabilité diurne des cartographies des radionucléides grâce aux mêmes plans de vol et des spécifications techniques associées. Le deuxième jour était consacré à des activités inhérentes à l'équipe Hélinuc®. Toutefois, les données associées à l'exercice du matin du 08 Septembre 2020 ont pu être étudiées et renforcent l'analyse sur l'application du protocole de correction PASTHEL.

La figure 8.1 donne un aperçu du vol matinal réalisé le 07 Septembre 2020 avec en toile de fond le mât météorologique et la localisation des deux spectromètres utilisés.



Figure 8.1 – Dispositif de mesure de spectrométrie  $\gamma$  embarqué sur un hélicoptère de type Écureuil. Un spectromètre  $\text{NaI(Tl)}$ , RSX-4, est utilisé dans le cadre du survol du site P2OA-CRA. Un spectromètre  $\text{NaI(Tl)}$ , RSX-5, est installé sur la tour instrumentée à une altitude de 50 mètres.

### Les paramètres et le plan de vol

Pour assurer des cartographies répétables et comparables spatialement, il est nécessaire que le plan de vol et tous les paramètres associés soient identiques entre les deux sessions. Le système Hélinuc® effectue généralement des vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur une surface au sol de 4 km<sup>2</sup>. La zone d'emprise spatiale du spectromètre RSX-5 installé sur le mât est de l'ordre de 0,125 km<sup>2</sup>. Dans un premier temps, il faut donc délimiter une zone à survoler en respectant le cahier des charges du pilote sur les conditions de vol.

Ainsi, la zone qui a été choisie est orientée Nord-Est/Sud-Ouest et est présentée sur la figure 8.2. La surface couverte est d'environ 4 km<sup>2</sup> avec des longueurs de

ligne de vol atteignant 4 km approximativement. **L'intérêt de cette configuration repose sur l'hétérogénéité des terrains survolés** basée sur des contrastes géologiques et topographiques. La totalité du P2OA-CRA, des cultures céréalières, des prairies, des bosquets forestiers, des routes, autoroute et bâtiments ainsi que des petits lacs de gravière en bordure méridionale sont intégrées dans cette zone. Le bord extérieur Est clôture la zone survolée en périphérie de quartiers résidentiels et d'un centre pénitentiaire. La faible urbanisation est donc un atout important pour éviter les perturbations anthropiques sur le milieu naturel. L'emprise spatiale du spectromètre NaI(Tl) installé sur le mât du site P2OA-CRA est représentée par un cadre noir sur la figure 8.2.

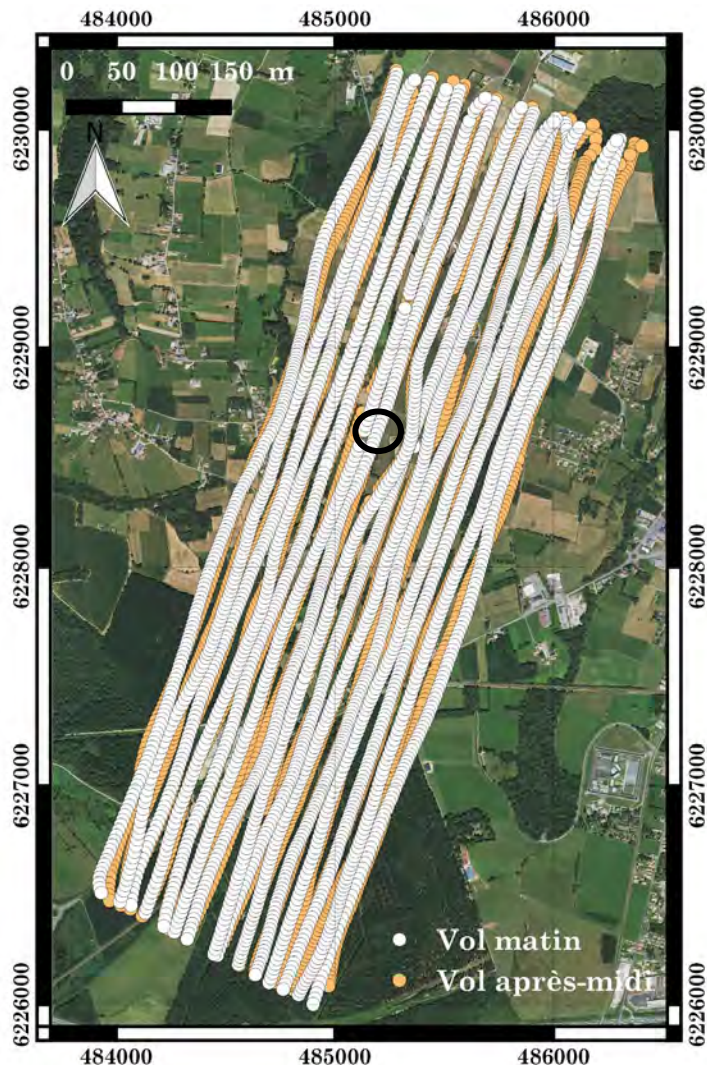


Figure 8.2 – Trajectoires de vol effectuées au cours des sessions du matin (11h - 12h15) et de l'après-midi (16h15 - 17h30) du 07 Septembre 2020, sur le site P2OA-CRA et ses alentours.

Les trajectoires de vol effectuées au cours du vol matinal du 07 Septembre 2020, entre 11h et 12h15, et celui de l'après-midi, entre 16h15 et 17h30, sont indiquées sur la figure 8.2. Celles-ci sont presque reproduites à l'identique et montrent la fiabilité des acquisitions dans le cadre d'une mesure de répétabilité temporelle.

Une synthèse des spécifications techniques est indiquée dans le tableau 8.1. À la suite de ces deux survols de la zone P2OA-CRA, les altitudes moyennes, mesurées par radiosonde, pour les trajectoires du matin et de l'après-midi sont de 51,17 mètres et 49,13 mètres respectivement.

Zone de survol - P2OA-CRA	4,0 km <sup>2</sup>
Temps de chaque vol total	1h15
Nombre de lignes de vol	15
Longueur moyenne des lignes de vol	4000 m
Écart entre les lignes de vol	80 m
Altitude de vol	50 m (similaire à celle du RSX-5 du mât)
Vitesse moyenne	70 km.h <sup>-1</sup>
Temps acquisition	1 s

Tableau 8.1 – Principales spécifications techniques relatives aux vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée opérés sur le site P2OA-CRA pour la date du 07 Septembre 2020.

### Les paramètres environnementaux

Si les paramètres de vol et instrumentaux sont restés constants entre les différents survols, ce n'est pas le cas des paramètres environnementaux mesurés sur le site P2OA-CRA pendant la durée des survols ont été analysés. Les conditions climatiques ont été relativement similaires d'un jour à l'autre de la campagne avec un ciel clair et dégagé et des températures estivales l'après-midi. Aucun épisode de pluie n'est venu perturber la campagne de mesures sur ces deux journées.

Le tableau 8.2 regroupe les valeurs mesurées, sur le créneau horaire du vol, de plusieurs paramètres environnementaux dont la teneur en eau volumique du sol et le <sup>222</sup>Rn atmosphérique.

Date	Unité	07/09/2020	07/09/2020	08/09/2020
		11h-12h15	16h15-17h30	11h-12h
Humidité sol	%	21,81	21,29	20,45
<sup>222</sup> Rn-ALGU	Bq.m <sup>-3</sup>	2,67	1,33	3,67
<sup>222</sup> Rn-Gamma	Bq.m <sup>-3</sup>	2,90	1,67	3,50
T°air	°C	15,91	17,16	18,20
Pression	mbar	955,20	954,88	955,11

Tableau 8.2 – Évolution de l'humidité du sol (% vol.) dans la couche superficielle (0-5 cm), du <sup>222</sup>Rn mesuré (ALGU) et calculé (Gamma) en Bq.m<sup>-3</sup>, de la température de l'air (°C) et de la pression atmosphérique (mbar) pour les trois survols opérés sur le site P2OA-CRA.

La teneur en eau volumique du sol ne cesse de décroître entre le premier et le dernier vol. Un assèchement de 0,42% volumique est constaté entre les deux vols du **07 Septembre 2020** et se caractérise donc par une évolution négative de la teneur en eau volumique d'environ 2,4%. Les activités volumiques de <sup>222</sup>Rn atmo-



sphérique, mesurées et calculées, révèlent la même évolution. Elles sont divisées par deux entre la matinée et l'après-midi du **07 Septembre 2020** et atteignent une valeur maximale pour le vol réalisé le matin du **08 Septembre 2020**. La pression atmosphérique est relativement stable au cours du temps ce qui permet de considérer l'influence du rayonnement cosmique comme constante sur ces trois vols pour l'ensemble des radionucléides.

Une variabilité des paramètres environnementaux ayant l'impact le plus important sur le signal  $\gamma$  mesuré est donc observée sur ces trois créneaux horaires. La répétabilité diurne des cartographies réalisées, sans prise en compte de corrections éventuelles de ces effets, ne devrait donc pas être assurée.

### **8.1.2 Le protocole de correction PASTHEL, développé dans cette thèse**

Pour bien comprendre les cartographies produites dans la suite de ce chapitre, il est important de faire un point sur le traitement des spectres réalisé par l'équipe Hélinuc® et la succession de corrections des effets environnementaux proposées dans cette thèse.

#### **Le traitement des spectres par le protocole standard, Hélinuc®**

À partir d'un spectre brut, le taux de comptage de chaque radionucléide est déterminé dans la fenêtre d'énergie d'intégration telle que préconisée par l'AIEA [IAEA, 1991]. Il s'agit de procéder à la somme des coups enregistrés dans les fenêtres respectives.

Suite à cette détermination des taux de comptage bruts, la soustraction des bruits de fond instrumental et cosmiques, obtenus par simulation, est réalisée pour définir des aires nettes. En partant de ces taux de comptage nettoyés des bruits de fond instrumental et cosmique, la méthode de déconvolution spectrale par élimination de l'influence du radionucléide de plus haute énergie dans les fenêtres de plus basses énergies est appliquée. Les coefficients de déconvolution ont également été obtenus par simulation. Cette étape permet d'extraire les aires de raie qui vont servir de base à la production cartographique.

Une correction des altitudes nulle est ensuite appliquée par linéarisation avec les valeurs précédente et suivante. Ces altitudes sont reliées à des coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique déterminés par simulation. Ces coefficients de conversion font intervenir un coefficient d'atténuation linéaire propre à chaque radionucléide mais qui ne reprend pas les valeurs des tables de standard NIST. La conversion entre taux de comptage et activité massique est l'étape finale avant la production de cartographies.

**Les cartographies réalisées avec le système de traitement Hélinuc® (protocole standard) le sont en fonction des conditions environnementales observées pendant le survol. Elles sont donc représentatives d'une teneur en eau volumique dans le compartiment sol et d'une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique, non corrigées.**

### Le protocole de traitement des spectres, PASTHEL

Le protocole d'analyse des spectres, PASTHEL pour Protocole d'Amélioration du Système de Traitement HELinuc, fait référence à l'ensemble des traitements et corrections développés dans cette thèse afin de prendre en compte l'influence des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré.

Ainsi, tout au long de la thèse, plusieurs propositions de correction des effets environnementaux ont été faites indépendamment les unes des autres. En les associant ou cumulant, un protocole de traitement des spectres acquis par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée peut ainsi être mis en œuvre. La figure 8.3 en est un schéma simplifié. Ce protocole est appliqué sur les spectres du RSX-4 (Hélicoptère) et RSX-5 (mât).

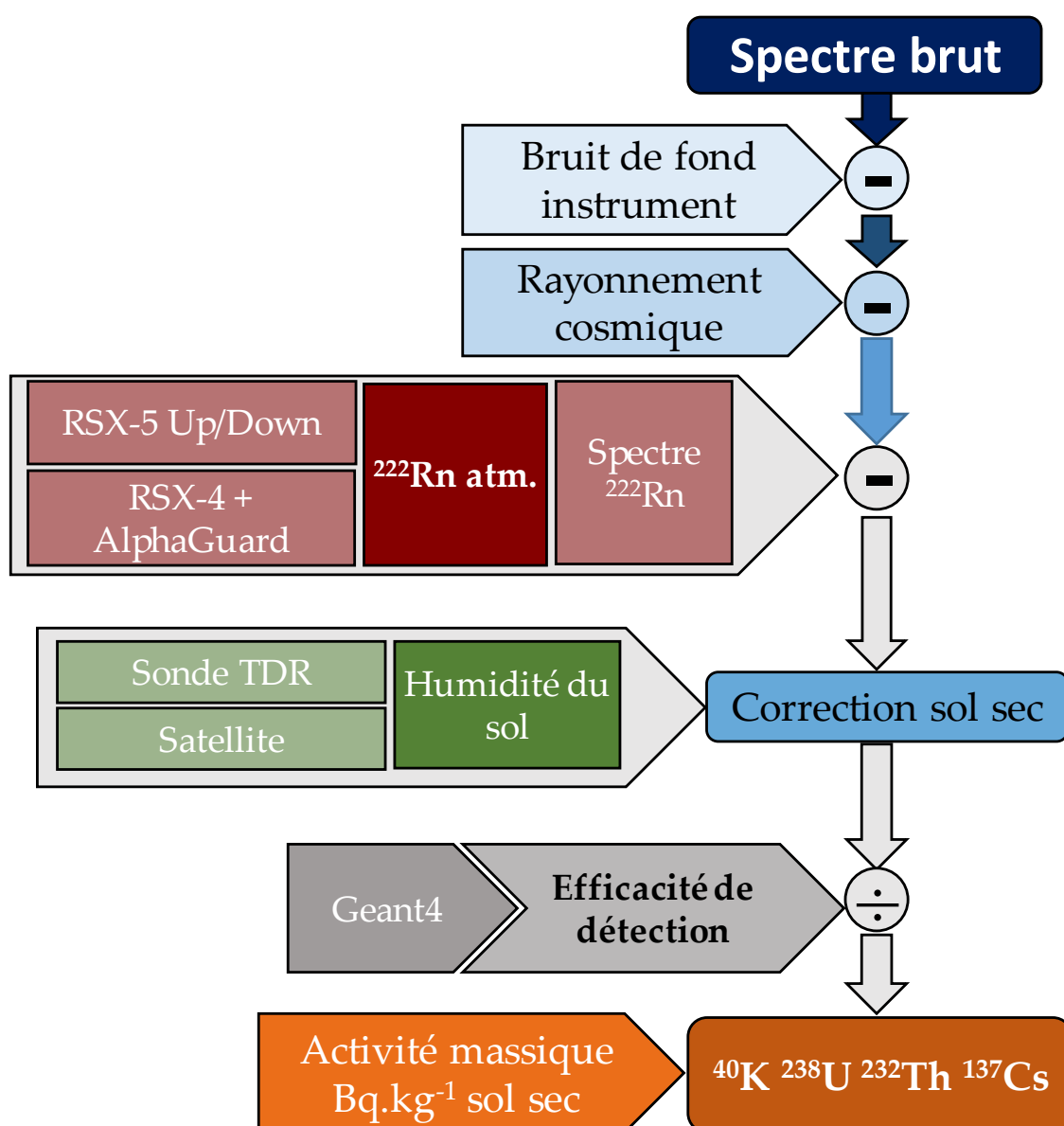


Figure 8.3 – Protocole de correction, PASTHEL, mis en place sur un spectre brut acquis en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à partir des travaux menés dans cette thèse. La prise en compte de l'influence de paramètres environnementaux permet d'isoler un spectre tellurique nettoyé des différents bruits de fond.

Le spectre brut est considéré comme étant la somme des composantes des signaux  $\gamma$  émis par les compartiments tellurique et atmosphérique mais également celles des bruits de fond instrumental et associé au rayonnement cosmique. En partant de ce spectre brut, le taux de comptage de chaque radionucléide ou somme des coups enregistrés est déterminé dans la fenêtre d'énergie d'intégration telle que préconisée par l'AIEA [IAEA, 1991].

La deuxième étape du traitement concerne la soustraction du bruit de fond instrumental, dont les valeurs ont été obtenues au cours de la calibration du spectromètre, dans chaque fenêtre de radionucléide (Tableau 8.3). La troisième étape, couplée à la deuxième, est la soustraction du bruit de fond associé au rayonnement cosmique, dans ces mêmes fenêtres, à partir de l'exploitation des coups enregistrés dans la fenêtre des cosmiques. Dans le cas des spectres acquis sur le site P2OA-CRA, il a été convenu d'appliquer la valeur moyenne observée sur la période d'acquisition de 14 mois pour chaque fenêtre d'intégration investiguée (Tableau 8.2). Après traitement, le spectre brut est baptisé spectre net.

Radionucléide	BDF <sub>Instrument</sub> (c.s <sup>-1</sup> )	BDF <sub>Cosmique</sub> (c.s <sup>-1</sup> )
<sup>137</sup> Cs	12,45	5,09 ± 0,21
<sup>40</sup> K	3,35	2,85 ± 0,18
<sup>238</sup> U	2,70	2,48 ± 0,16
<sup>232</sup> Th	3,72	1,87 ± 0,12

Tableau 8.3 – Bruits de fond instrumental et lié aux rayonnements cosmiques dans les fenêtres d'intégration en énergie du <sup>137</sup>Cs, du <sup>40</sup>K, du <sup>238</sup>U et du <sup>232</sup>Th.

La quatrième étape consiste à moyenner l'ensemble des spectres acquis durant le survol d'une durée de 1 seconde afin de limiter les fluctuations statistiques. À partir de ce spectre moyen, le calcul de l'activité volumique de <sup>222</sup>Rn atmosphérique peut être appliqué. Il permet donc d'associer une valeur d'activité volumique de <sup>222</sup>Rn à l'ensemble de la zone survolée. Une fois la quantification du <sup>222</sup>Rn atmosphérique, réalisée par la méthode du détecteur à visée ascendante (*Up/Down*), la multiplication de cette activité volumique avec le spectre associé à la composante de <sup>222</sup>Rn atmosphérique de 1 Bq.m<sup>-3</sup> permet de constituer le spectre atmosphérique. Ce dernier est soustrait au spectre net pour définir le spectre associé à la composante tellurique uniquement.

La cinquième étape se concentre sur le compartiment sol. Ce spectre tellurique va être traité suivant la méthode de déconvolution spectrale en utilisant les coefficients de déconvolution déterminés par l'équipe Hélinuc®. Les taux de comptage dans les fenêtres énergétiques de <sup>40</sup>K, <sup>238</sup>U et <sup>232</sup>Th pour un sol à une humidité  $x$  sont donc déterminés. Ces taux de comptage sont ensuite ramenés à une humidité nulle pour constituer la réponse aux photons  $\gamma$  émis par un sol sec. Une fois ces taux de comptage pour un sol sec établis, les coefficients de conversion permettant de déterminer une activité massique à partir d'un taux de comptage, validés par simulation Geant-4, sont appliqués en fonction de l'altitude associée. Ces coefficients font également intervenir les coefficients d'atténuation dans l'air des photons  $\gamma$  dont les valeurs ont été prises dans les tables de standard NIST pour chaque radionucléide.

Une correction des altitudes, par un modèle mathématique développé dans ces travaux mais non abordé ici, est également prise en compte pour les altitudes nulles et toutes celles associées à un survol du couvert forestier. En effet, la radiosonde ne permet pas de connaître l'altitude au sol lors d'un survol de bosquet forestier puisqu'elle considère la canopée comme le point bas de mesure.

La dernière étape consiste à réaliser les cartographies d'activité massique associées à chaque radionucléide. Enfin concernant l'utilisation des coefficients d'atténuation linéaire dans l'air NIST pour les radionucléides, le protocole PASTHEL prend en compte ces valeurs NIST, ce qui n'est pas le cas du CEA. Or, comme les coefficients d'atténuation linéaire dans l'air sont employés dans les coefficients de conversion appliqués entre taux de comptage et activité massique, une dernière vérification s'impose. Cela permettra également de s'assurer de la loi théorique qui relie le comptage à une altitude  $h$  ( $C_h$ ) et celui à une altitude nulle ( $C_0$ ).

**Le protocole de traitement PASTHEL corrige les spectres  $\gamma$  des effets environnementaux (humidité du sol, radon-222 atmosphérique).**

### Bilan sur les systèmes de traitement Hélinuc® et PASTHEL

Le tableau 8.4 indique quelles corrections sont appliquées sur les spectres bruts acquis lors des survols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée en fonction du protocole de traitement utilisé, Hélinuc® et PASTHEL. Ce tableau 8.4 regroupe donc les paramètres instrumentaux, de vols et environnementaux concernés.

	Hélinuc®	PASTHEL
BDF détecteur	✓	✓
BDF hélicoptère	✓	×
BDF cosmique	×	✓
Altitude	×	✓
Humidité du sol	×	✓
$^{222}\text{Rn}$ atm.	×	✓

Tableau 8.4 – Corrections appliquées sur les spectres bruts acquis en spectrométrie  $\gamma$  aéroportée en fonction du protocole de traitement employé, Hélinuc® et PASTEL. BDF : bruit de fond

Les cartographies d'activité massique des radionucléides établies à partir du système de traitement Hélinuc® sont exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  de sol humide (humidité au temps de la mesure) sans correction des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ . Celles proposées par le protocole de correction PASTHEL sont exprimées en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  de sol sec (humidité nulle) en intégrant la correction des effets des descendant du  $^{222}\text{Rn}$  sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ .

Le protocole de traitement Hélinuc® ne prend pas en compte l'influence du rayonnement cosmique, alors que PASTHEL ne dispose pas encore de valeurs de bruit de fond pour l'hélicoptère.

### Vérification des coefficients d'atténuation dans l'air de $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ et de $^{232}\text{Th}$ à partir de chandelles :

Au cours d'une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, le moyen le plus simple pour accéder rapidement aux valeurs de coefficients d'atténuation dans l'air à l'énergie  $E$  est de procéder à une chandelle avec l'hélicoptère équipé du spectromètre.

Le principe d'une chandelle repose sur l'élévation progressive du système aéroporté, entre 0 et 300 mètres classiquement, au-dessus d'un point géographique fixe, au-dessus d'une surface plane, et présentant une concentration en radionucléides homogène (Figure 8.4). Une dérive spatiale engendrerait un biais dans l'acquisition des mesures par l'hétérogénéité des terrains survolés.

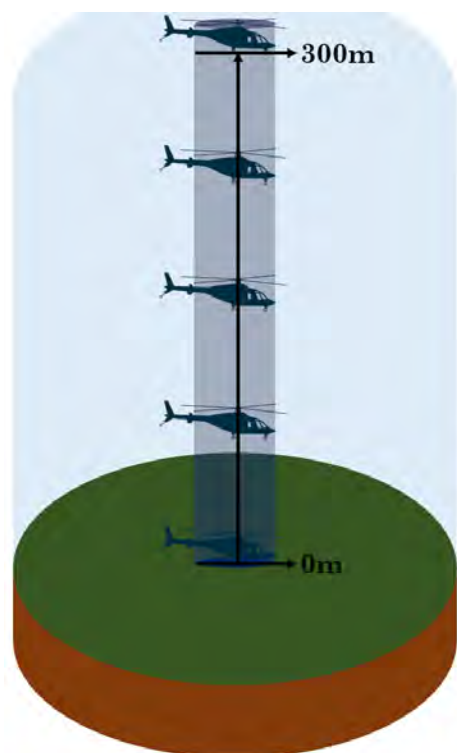


Figure 8.4 – Principe d'une chandelle réalisée pendant une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée dans le but de déterminer les coefficients d'atténuation dans l'air des principaux radionucléides. Au niveau d'un point géographique fixe, l'hélicoptère d'abord au sol atteint progressivement une altitude de 300 mètres.

Par l'intermédiaire de la loi qui permet d'obtenir une évaluation du taux de comptage pour tout couple énergie-altitude ( $E, h$ ) en fonction du taux de comptage mesuré au sol, il est donc possible d'estimer le coefficient d'atténuation dans l'air à l'énergie  $E$ . En effet, ce coefficient est présent au sein de l'exponentielle intégrale de second ordre  $E_2$  reliée aux taux de comptage suivant l'équation 6.19. La forme de l'exponentielle  $E_2$  entre les taux de comptage et l'altitude repose donc sur le coefficient d'atténuation dans l'air à l'énergie  $E$ .

Ainsi, un nouveau protocole d'exécution de chandelle a été réalisé lors de ces survols afin d'augmenter la statistique de comptage. La différence avec une chandelle classique, où l'hélicoptère s'élève sans s'arrêter entre 0 et 300 mètres à une vitesse constante, réside sur la mise en place de paliers de mesures. Le nombre de paliers d'altitude demandés, simulent un vol stationnaire, est de cinq pour un temps de mesure de 2 minutes par palier pour atteindre l'altitude finale classique, entre 300 et 400 mètres. Ces paliers permettent d'avoir un nombre de mesures plus important pour des altitudes où le RSX-5 sur le mât a enregistré des mesures ou va réaliser prochainement des mesures. Les paliers aux altitudes à 0 m, à 15 m, 30 m, 50 m



et 80 m permettent un meilleur affinage de la courbe reliant taux de comptage et altitude. La chandelle a été effectuée en 20 minutes au-dessus d'un terrain plat d'une très grande superficie qui permet de s'assurer de l'homogénéité du sol survolé, situé à proximité du mât météorologique du site P2OA-CRA.

Une autre chandelle a également été réalisée avec le spectromètre RSX-5 sur la tour instrumentée entre 0 et 55 mètres pour offrir une comparaison aux données acquises par le spectromètre embarqué. Le nombre de paliers beaucoup plus nombreux et le temps de mesure de 300 secondes par palier favorisent une meilleure statistique de comptage à chaque altitude investiguée.

Les résultats de ces deux chandelles aux protocoles d'acquisition différents, sont présentés sur le figure 8.5.

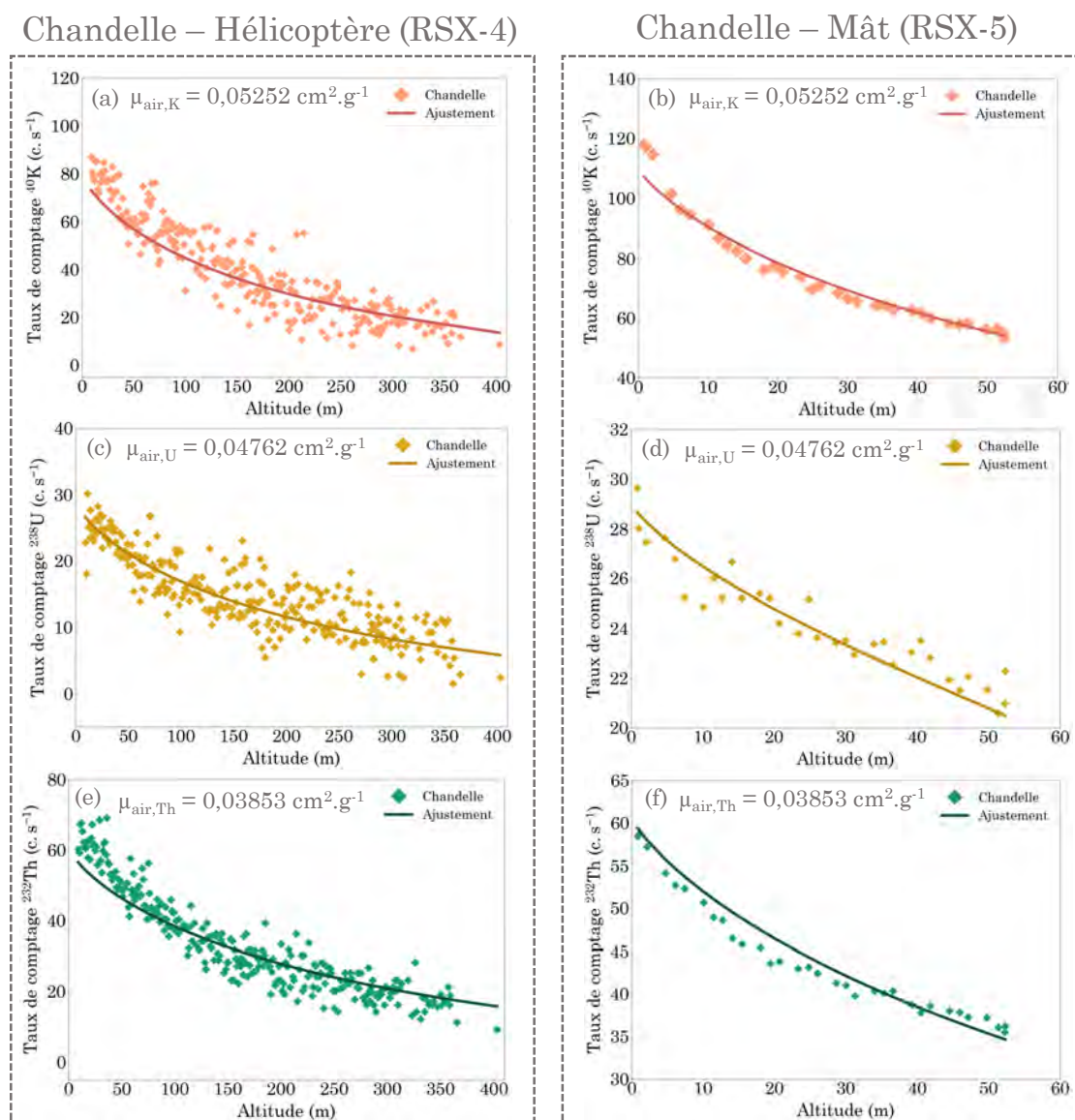


Figure 8.5 – Taux de comptage en  $\text{c.s}^{-1}$  en fonction de l'altitude en mètres du  $^{40}\text{K}$  (a), du  $^{238}\text{U}$  (c), du  $^{232}\text{Th}$  (e) pour la chandelle réalisée à partir du système RSX-4 embarqué sur hélicoptère. Taux de comptage en  $\text{c.s}^{-1}$  en fonction de l'altitude en mètres du  $^{40}\text{K}$  (b), du  $^{238}\text{U}$  (d), du  $^{232}\text{Th}$  (f) pour la chandelle réalisée à partir du système RSX-5 installé sur le mât.

Pour les taux de comptage mesurés à partir de la chandelle faite par hélicoptère, toutes les acquisitions faites à une même altitude ont été moyennées pour associer un seul taux de comptage à une altitude. Cette opération limite les fluctuations statistiques de comptage pour des spectres acquis sur un temps de 1 seconde. L'exponentielle intégrale  $E_2$  construite à partir du coefficient d'atténuation linéaire NIST pour chaque radionucléide,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ , est proposée pour chaque graphique.

Que ce soit pour les taux de comptage acquis lors de la chandelle avec système embarqué RSX-4, ou ceux de la chandelle du mât réalisée avec le spectromètre RSX-5, les fonctions exponentielles intégrales de second ordre se superposent parfaitement aux taux de comptage mesurés pour toutes les altitudes d'acquisition. La zone d'emprise spatiale du spectromètre RSX-5 du mât, se caractérise par des taux de comptage supérieurs à ceux de la chandelle réalisée au-dessus d'une prairie. En effet, le mât repose sur une dalle de béton potentiellement enrichie en potassium, ceci peut expliquer cette différence entre les taux de comptage.

Ces ajustements théoriques sont donc très satisfaisants. Les coefficients d'atténuation dans l'air issus des tables NIST sont donc fiables et validés sur le site d'étude d'après les résultats de ces chandelles. Leur emploi dans les coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique n'est donc pas remise en cause.

Suite à ces résultats, une recommandation a été faite au CEA pour procéder à des chandelles en paliers comme celle réalisée sur le site P2OA-CRA. Le nombre de paliers peut rester libre. Toutefois, dès lors que le temps de mesure est *a minima* de 2 minutes et que le nombre de paliers est le plus grand, la dispersion du nuage de points sera moins étendue.

Ce protocole de chandelle permet de valider de manière très concrète les coefficients d'atténuation dans l'air à toute énergie  $E$  et par conséquent d'appliquer des facteurs de conversion fiables, entre taux de comptage et activité massique.

## 8.2 Les cartographies réalisées pour étudier la répétabilité diurne

Cette section se consacre à la comparaison des cartographies réalisées à partir des taux de comptage extraits des campagnes de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sur deux périodes de la journée du **07 Septembre 2020**. Les cartes sont établies à partir d'une analyse géostatistique, de type krigeage, de l'ensemble des points de mesure de toutes les lignes de vol.

La figure 8.6 présente les taux de comptage total nets selon le protocole Hélinuc®, c'est-à-dire sans correction des effets des descendants du radon-222 et de l'humidité du sol, entre le vol du matin et celui de l'après-midi. Les zones d'iso-comptages sont similaires mais montrent des variations de 2% en moyenne entre les deux survols. Cependant, la surface au sol investiguée observe une hétérogénéité spatiale marquée.

Les plus faibles valeurs sont concentrées sur les couverts forestiers (inférieures à 3000 c.s<sup>-1</sup>), au Sud de la carte, et les valeurs les plus élevées au niveau de certains pâturages et bâtiments situés au Nord de la carte (supérieures à 6400 c.s<sup>-1</sup>). La

distribution surfacique des courbes d'iso-comptages sur la moitié Nord de la carte indique une importante hétérogénéité du signal mesuré. Ces terrains sont principalement des pâturages et des champs non cultivés au moment des survols et aucune observation visuelle ne permet d'identifier ces écarts. Une cause géologique à ces variations doit être considérée puisque les sols en place se sont développés sur une structure sédimentaire. D'anciens épandages d'engrais peuvent également avoir enrichis les sols en potassium, thorium et uranium. La zone de faibles taux de comptage entre les zones aux taux de comptage les plus élevées est une tourbière, plus riche en matières organiques que les sols aux alentours. La gamme de variation des taux de comptage total nets du second vol (après-midi) se distingue par une augmentation de  $200 \text{ c.s}^{-1}$  par rapport à celle du premier vol. Les humidités du sol *in situ* relevées sur la zone investiguée ont une variation de même ordre de grandeur (2%) entre matin et après-midi ce qui suppose que l'humidité est le principal facteur des écarts de taux de comptage sur une échelle diurne.

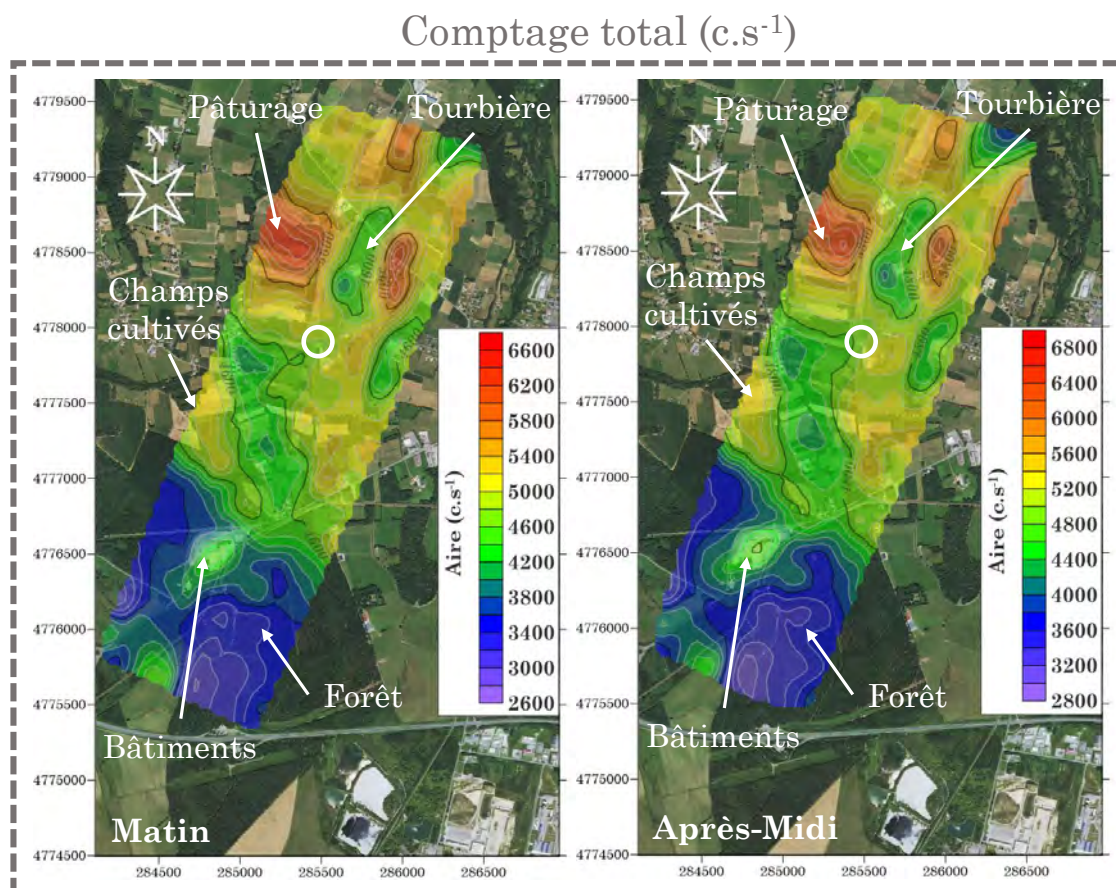


Figure 8.6 – Cartographies du comptage total net ( $\text{c.s}^{-1}$ ) réalisées à partir des sessions du matin (11h - 12h15) et de l'après-midi (16h15 - 17h30) du 07 Septembre 2020, sur le site P2OA-CRA et ses alentours, avec le protocole de traitement standard d'Hélinuc®. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc.

Les figures suivantes 8.7, 8.8, 8.9 s'intéressent aux comparaisons des cartes des activités massiques du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  établies à partir des traitements standard, Hélinuc®, et correctif, PASTHEL, pour les deux survols.



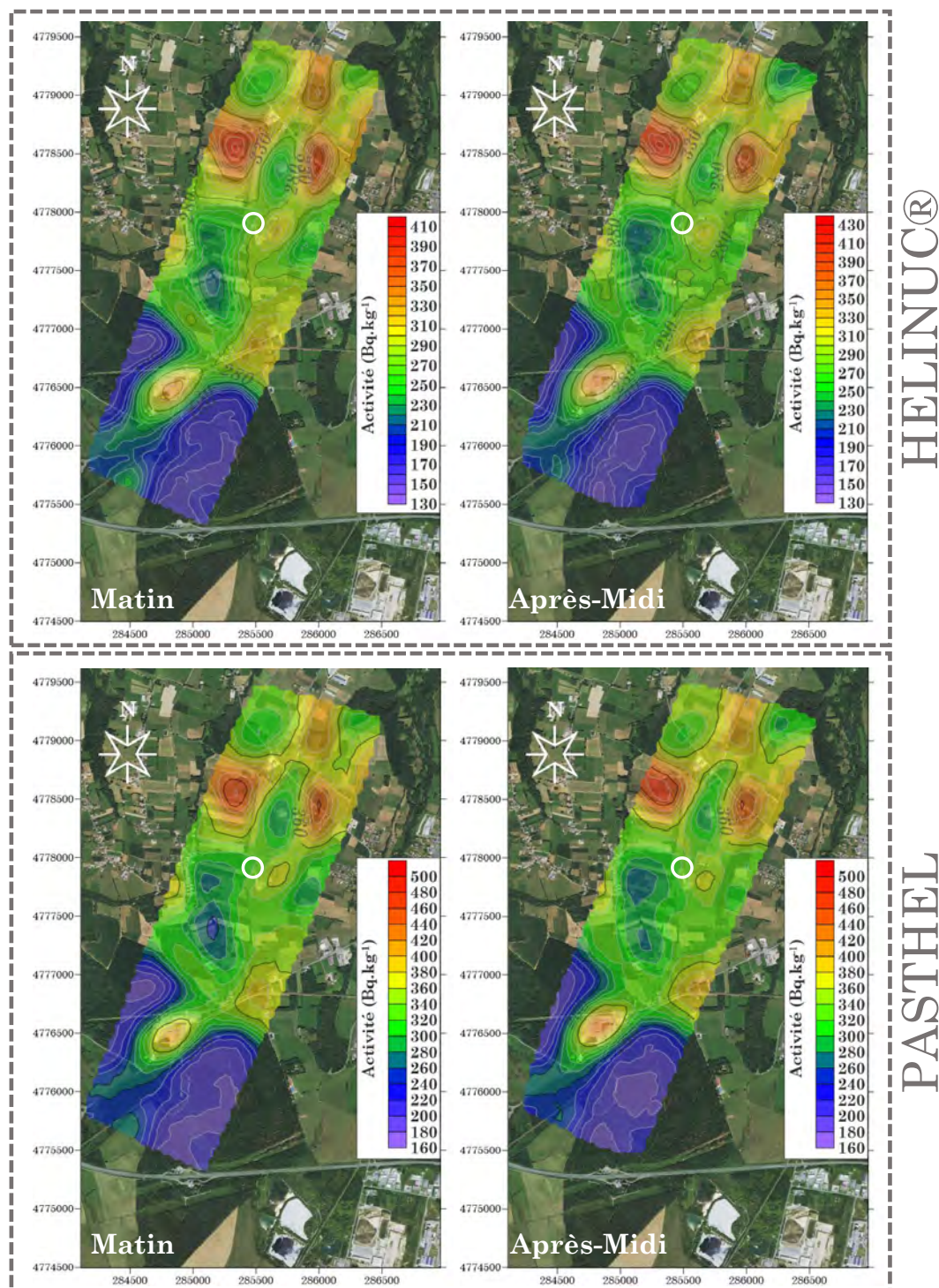
8.2.1  $^{40}\text{K}$  : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

Figure 8.7 – Cartographies de l'activité massique du  $^{40}\text{K}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) du mât météorologique est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées.



### 8.2.2 $^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

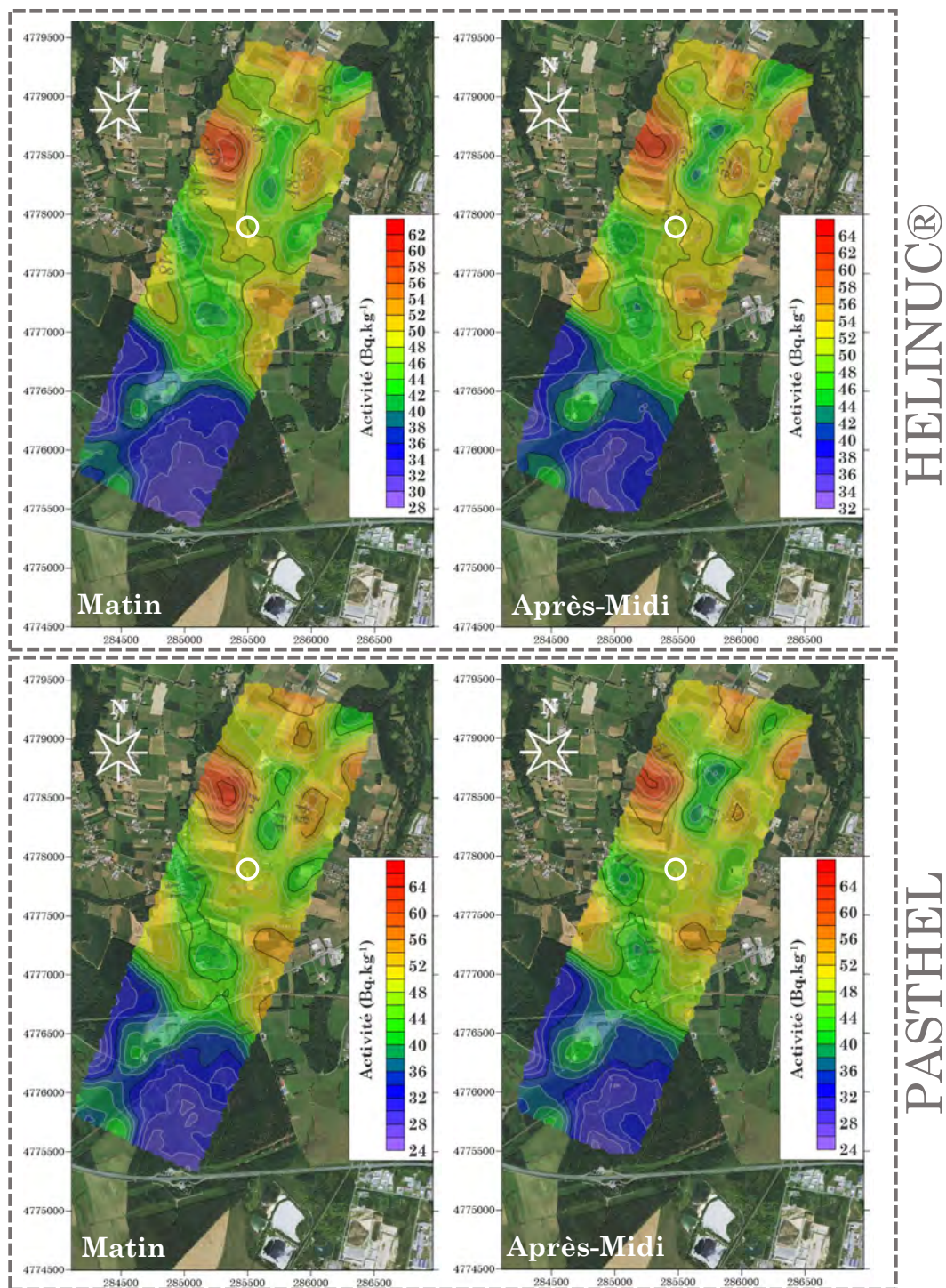


Figure 8.8 – Cartographies de l'activité massique du  $^{232}\text{Th}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées.



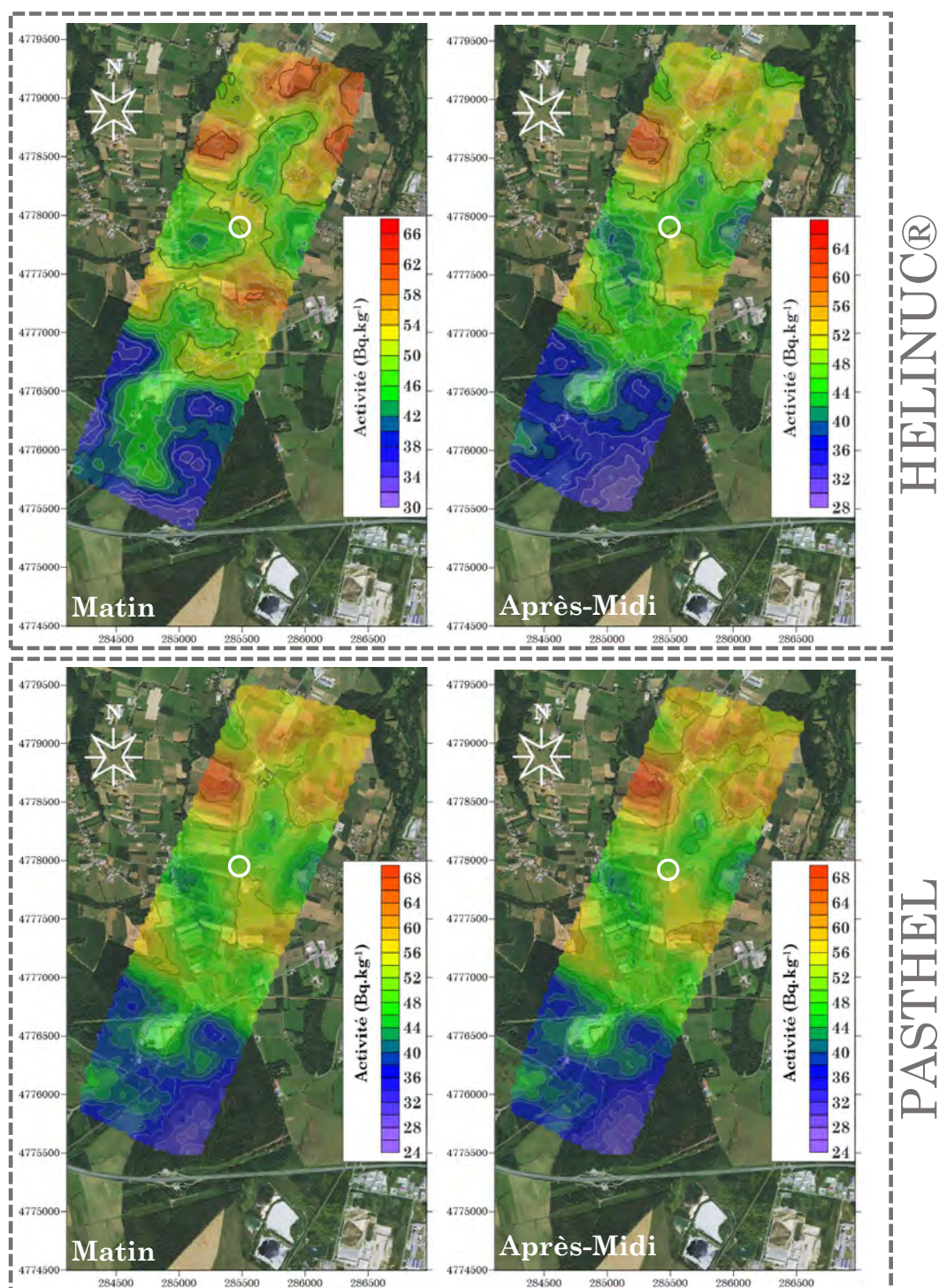
8.2.3  $^{238}\text{U}$  : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

Figure 8.9 – Cartographies de l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées.

### 8.2.4 Étude des cartographies de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements

Toutes les cartes réalisées par les protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et alternatif, PASTHEL, sont comparables entre elles en terme de distribution géographique des courbes d'iso-comptage. Ces cartes montrent des hétérogénéités spatiales similaires à celles du taux de comptage total net (Figure 8.6). Les deux cartes du  $^{238}\text{U}$  établies à partir du protocole PASTHEL se ressemblent davantage que celles réalisées à partir du traitement standard, Hélinuc®. Ces dernières peuvent indiquer une hétérogénéité de la distribution de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à l'échelle de la zone survolée.

Le tableau 8.5 indique les valeurs d'activités massiques moyennes pour toute la zone survolée ( $\sim 4 \text{ km}^2$ ) pour les deux vols du 07 Septembre 2020. Si les activités massiques moyennes calculées à partir du protocole Hélinuc® montrent des variations comprises entre -7,4 et +5,8% pour les trois radionucléides investigués, ces variations sont moindres voire négligeables pour les activités massiques moyennes établies à partir du traitement PASTHEL, -0,4 à +0,5%.

Radionucléide	RSX-4	RSX-4
	Hélinuc®	PASTHEL
$^{40}\text{K}$ (Matin)	259,1 Bq.kg <sup>-1</sup>	309,2 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ (Après-midi)	265,1 Bq.kg <sup>-1</sup>	310,8 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ ( $\neq$ )	+2,4 %	+0,5 %
$^{238}\text{U}$ (Matin)	48,5 Bq.kg <sup>-1</sup>	46,8 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ (Après-midi)	44,9 Bq.kg <sup>-1</sup>	46,6 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ ( $\neq$ )	-7,4 %	-0,4 %
$^{232}\text{Th}$ (Matin)	44,1 Bq.kg <sup>-1</sup>	44,4 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ (Après-midi)	46,8 Bq.kg <sup>-1</sup>	44,3 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ ( $\neq$ )	+5,8 %	-0,2 %

Tableau 8.5 – Activités massiques moyennes du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  sur toute la zone survolée pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin, Après-Midi) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et alternatif, PASTHEL, pour le spectromètre embarqué RSX-4.

Les activités massiques moyennes du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  augmentent entre les deux survols et sont synchrones d'une variation d'humidité du sol en surface (0 - 5cm) par sondes TDR de -2,4%. Si cette diminution de la teneur en eau volumique au cours de la journée devrait également influencer positivement les activités massiques du  $^{238}\text{U}$ , ce n'est pas le cas (-7,4%). L'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique mesuré sur le mât météorologique a diminué de presque 43% entre les deux survols (Tableau 8.2), ce qui a pu entraîner une baisse des taux de comptage de  $^{238}\text{U}$  mesuré.



Le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique s'impose comme le facteur environnemental prédominant sur les variations de l'uranium.

Ainsi, le protocole standard (Hélinuc®) qui ne prend pas en compte les effets environnementaux montre donc une variabilité diurne marquée avec une augmentation de l'activité massique pour  $^{40}\text{K}$  et  $^{232}\text{Th}$  du fait d'un sol plus asséché et une diminution de l'activité massique de  $^{238}\text{U}$  synchrone de celle identifiée pour la concentration en radon dans l'atmosphère. Cette variation diurne de l'activité massique de  $^{238}\text{U}$  est observable sur les cartes correspondantes sur la figure 8.10 (HELINUC®).

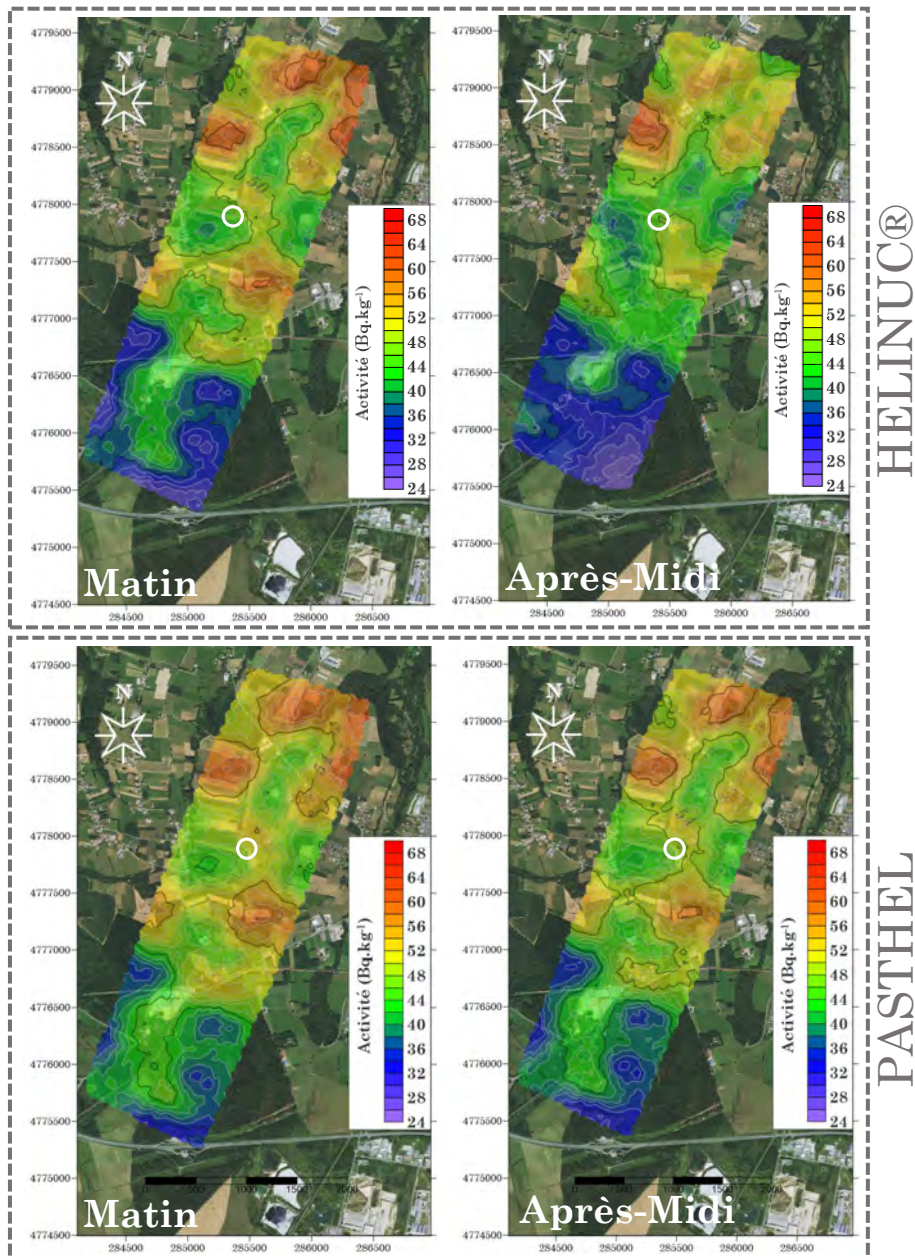


Figure 8.10 – Cartographies de l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. Les légendes des gammes de variation des activités massiques ont été harmonisées. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc.

Les données traitées par le protocole alternatif PASTHEL ne montrent pas de variabilité diurne marquée avec des variations inférieures à 1% pour les trois radio-nucléides considérés. Cette observation était attendue puisque ce protocole corrige l'influence des paramètres environnementaux sur le signal  $\gamma$ . Les cartes des variations de l'activité massique de  $^{238}\text{U}$  correspondantes sur la figure 8.10 (PASTHEL) sont pratiquement superposables entre les deux vols. Les lignes d'isocomptages et les valeurs associées sont quasiment identiques.

Le tableau 8.6 indique les valeurs d'activités massiques moyennes pour la zone d'emprise spatiale du RSX-5 installé sur le mât météorologique (cercle blanc, figures 8.6, 8.7, 8.8, 8.9, 8.10) pour les deux vols du 07 Septembre 2020. Les points de mesure aéroportés qui ont permis la réalisation des cartographies sont en périphérie de cette zone, afin d'éviter les câbles tenseurs de soutien du mât.

	RSX-4	RSX-4	RSX-5	LAFARA
Radio	Hélicoptère	Hélicoptère	Mât	
nucléide	Hélinuc®	PASTHEL	PASTHEL	
$^{40}\text{K}$ (Matin)	260 Bq.kg <sup>-1</sup>	310 Bq.kg <sup>-1</sup>	295,1 Bq.kg <sup>-1</sup>	286,3±29,4 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ (Après-midi)	260 Bq.kg <sup>-1</sup>	310 Bq.kg <sup>-1</sup>	295,2 Bq.kg <sup>-1</sup>	286,3±29,4 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ ( $\neq$ )	0 %	0 %	+0,03 %	-
$^{238}\text{U}$ (Matin)	49 Bq.kg <sup>-1</sup>	48 Bq.kg <sup>-1</sup>	43,5 Bq.kg <sup>-1</sup>	38,9±5,7 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ (Après-midi)	47 Bq.kg <sup>-1</sup>	48 Bq.kg <sup>-1</sup>	43,9 Bq.kg <sup>-1</sup>	38,9±5,7 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ ( $\neq$ )	-4 %	0 %	+0,9 %	- %
$^{232}\text{Th}$ (Matin)	49 Bq.kg <sup>-1</sup>	48 Bq.kg <sup>-1</sup>	46,9 Bq.kg <sup>-1</sup>	45,4±3,3 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ (Après-midi)	50 Bq.kg <sup>-1</sup>	48 Bq.kg <sup>-1</sup>	46,8 Bq.kg <sup>-1</sup>	45,4±3,3 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ ( $\neq$ )	2 %	0 %	-0,2 %	-

Tableau 8.6 – Activités massiques moyennes du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  sur la zone à proximité du mât (cercle blanc) pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin, Après-Midi) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® (sans correction des effets environnementaux) et PASTHEL (avec correction des effets environnementaux) pour le spectromètre RSX-4 (Hélicoptère) et RSX-5 (Mât). Les données du LAFARA sont intégrées pour comparaison (sol sec). La variation entre ces deux vols est exprimée en %.

En ce qui concerne le protocole PASTHEL, les activités massiques calculées pour un sol sec à partir des données du RSX-4 (Hélicoptère) sont supérieures à celles estimées à partir des données du RSX-5 (mât) et du LAFARA (sols sec *in situ*). Les différences entre les données aéroportées et celle du LAFARA, pour le  $^{40}\text{K}$ , peuvent s'expliquer par l'absence de prise en compte du bruit de fond de l'hélicoptère et des opérateurs (source de potassium).

Les activités massiques du  $^{232}\text{Th}$  issues des données aéroportées sont proches de celles mesurées sur les échantillons de sols analysés au LAFARA ( $\sim 5\%$  d'écart).

### 8.3. Les cartographies ultra-localisées réalisées à proximité du mât météorologique

---

La différence la plus importante entre les activités massiques établies à partir de l'aéroportée et celles du LAFARA concerne le  $^{238}\text{U}$ . La présence d'un dépôt de descendants solides, tels que le  $^{214}\text{Bi}$ , en fraction libre ou attachée sur la surface du sol pourrait être à l'origine de cet écart. L'analyse sur la distribution du  $^{210}\text{Pb}$  dans le sol tendait vers cette hypothèse. Le facteur d'équilibre entre le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique et ses descendants, mesuré par le système AlphaGUARD® à une hauteur de 1 m sur la tour instrumentée du site P2OA-CRA se caractérise par une moyenne de 0,70 sur la période de mesure Septembre-Décembre 2020. Cette valeur indique que 30% des descendants du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique ont pu se déposer sur le sol et constituer une composante de surface émettrice de rayonnements  $\gamma$  qui s'ajoute à ceux du compartiment tellurique.

Les variations d'activité massique pour les trois radionucléides investigués les plus importantes sont de nouveau associées aux cartes établies à partir du traitement Hélinuc® pour les données aéroportées. De nouveau, les activités massiques du  $^{232}\text{Th}$  présentent un écart positif entre les deux survols, ici de 2%, et celles du  $^{238}\text{U}$  une différence négative d'environ 4%. Cette dernière peut se traduire par une diminution du taux de comptage de  $2 \text{ c.s}^{-1}$ . Les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  entre les deux vols ont un écart de  $1,23 \text{ Bq.m}^{-3}$  soit  $1,95 \text{ c.s}^{-1}$ .

En fonction du degré de sensibilité environnementale recherché, les cartes réalisées à partir du protocole PASTHEL avec prise en compte des effets environnementaux présente une meilleure répétabilité des activités massiques. Ces valeurs sont exprimées pour des sols secs ce qui explique en partie les différences observées avec celles présentées par le traitement Hélinuc®.

## 8.3 Les cartographies ultra-localisées réalisées à proximité du mât météorologique

Un survol à proximité de la tour instrumentée du site P2OA-CRA sur une échelle spatiale très réduite a été réalisé. Le maillage très important sur une superficie plus restreinte permet de mieux mettre en évidence une variabilité spatiale indétectable pour un vol classique. Malgré la présence de la tour instrumentée à proximité de cette zone, l'emprise spatiale du spectromètre RSX-5 installé sur le mât de rayon 200 m (95% du signal) ne se superpose pas à celle de cette surface investiguée par hélicoptère.

La zone survolée pour le créneau horaire **11h-12h du 08 Septembre 2020** est représentée sur la figure 8.11. Le plan de vol est très recentré et le déport entre les lignes de vol est de l'ordre du mètre. L'altitude de vol est comprise entre 15 et 40 mètres. Par rapport à la journée du **07 Septembre 2020**, le sol a continué son assèchement progressif (20% vol.) et l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique présente sa valeur maximale pour ces trois survols opérés sur le site P2OA-CRA, autour de  $3,50 \text{ Bq.m}^{-3}$ . Avec cette activité, l'effet du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique doit être facilement identifiable sur le signal du  $^{238}\text{U}$ .



L'objectif des différentes cartographies présentées dans la suite de cette section est toujours d'éprouver le protocole de correction PASTHEL en conditions réelles. Ce survol du 08 Septembre 2020 permet d'étudier la reproductibilité des mesures sur cette zone avec le vol à plus grande échelle du 07 Septembre au matin, mais avec des paramètres de vol différents.

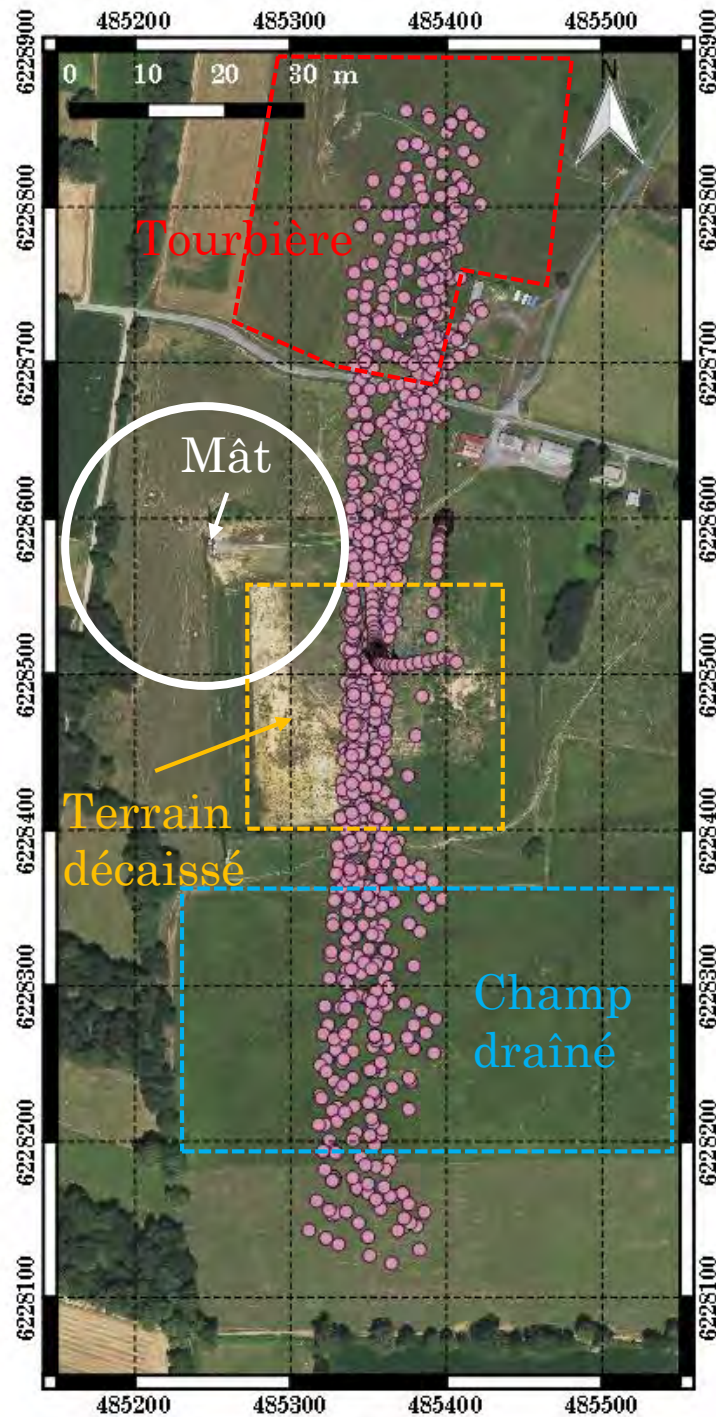


Figure 8.11 – Trajectoires de vol effectuées au cours de la session du matin (10h - 11h) du 08 Septembre 2020, à proximité du mât de 60 mètres du site P2OA-CRA. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal mesuré par le RSX-5 à hauteur de 95%.

### 8.3.1 $^{40}\text{K}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

Les cartes de l'activité massique du  $^{40}\text{K}$  présentées sur la figure 8.12 sont comparables entre elles. Hélinuc® et PASTHEL montrent des hétérogénéités spatiales similaires. Les zones d'iso-comptages sont clairement identifiables sur chaque carte. Le champ drainé au Sud de la carte et la tourbière au Nord présentent les valeurs d'activité massique les plus faibles, probablement dues à la forte proportion de matières organiques dans ces deux types de terrain associée à une probable teneur en eau volumique supérieure à celle mesurée par les sondes TDR à proximité du mât. À l'inverse, les valeurs les plus élevées sont concentrées à l'Est de la carte et se retrouvent au niveau des zones anthropisées avec présence de bâtiments et parking.

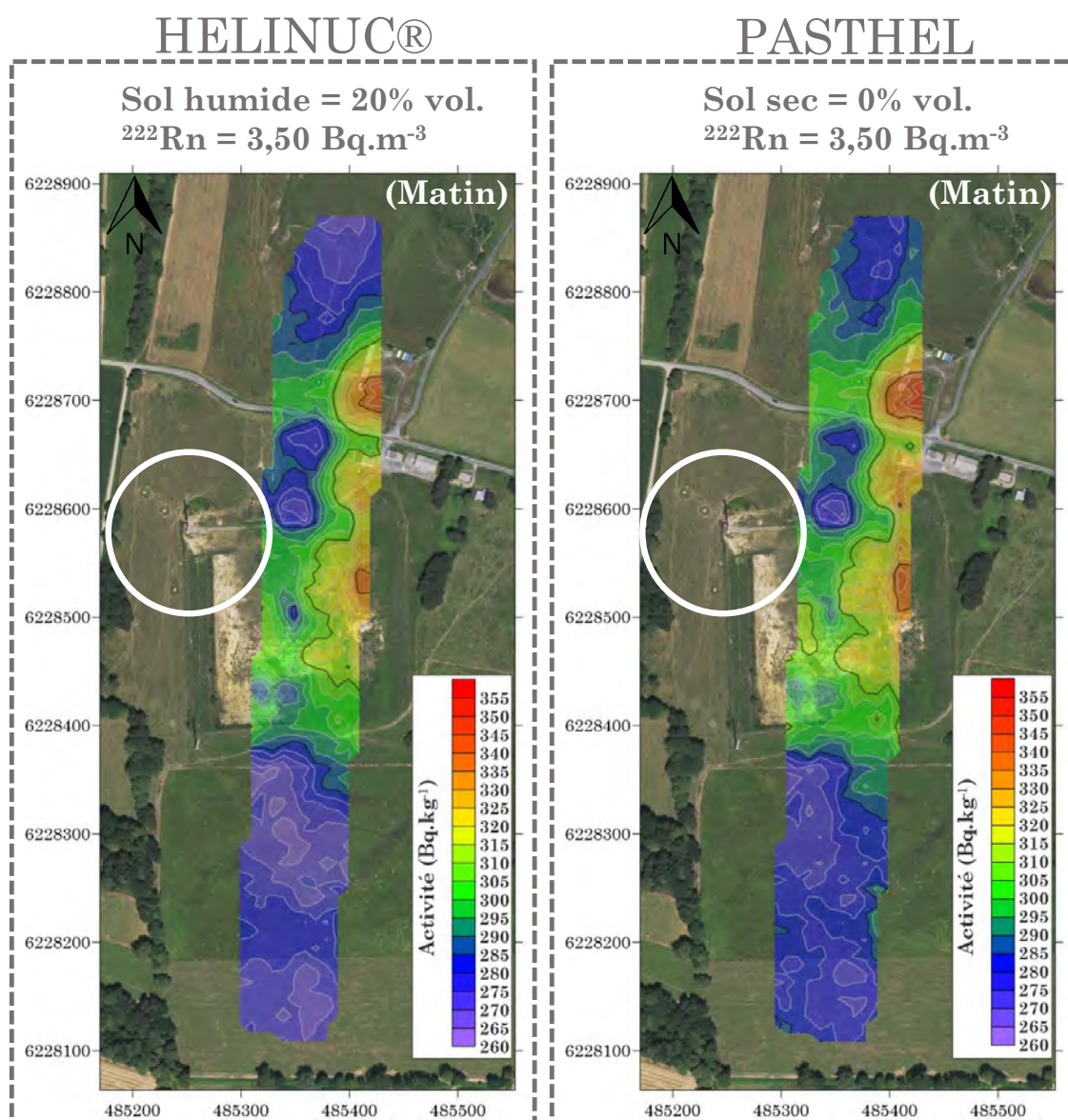


Figure 8.12 – Cartographies de l'activité massique du  $^{40}\text{K}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc.



### 8.3.2 $^{232}\text{Th}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

Les cartes de l'activité massique du  $^{232}\text{Th}$  présentées sur la figure 8.13 sont similaires entre elles. Hélinuc® et PASTHEL montrent la même distribution des zones d'iso-comptages avec des valeurs d'activité massique plus faible pour la carte réalisée à partir du protocole de correction PASTHEL. Le champ drainé au Sud de la carte et une partie de la tourbière au Nord se caractérisent par les valeurs les plus faibles. La zone de tourbière présente donc une distribution hétérogène du  $^{232}\text{Th}$  à l'inverse du  $^{40}\text{K}$ . Les valeurs les plus élevées sont concentrées à l'Est de la carte et au niveau du terrain remanié. Ces deux zones montrent un enrichissement en limons argileux (matériau parental plus riche en  $^{232}\text{Th}$ ) dans la couche superficielle de sols.

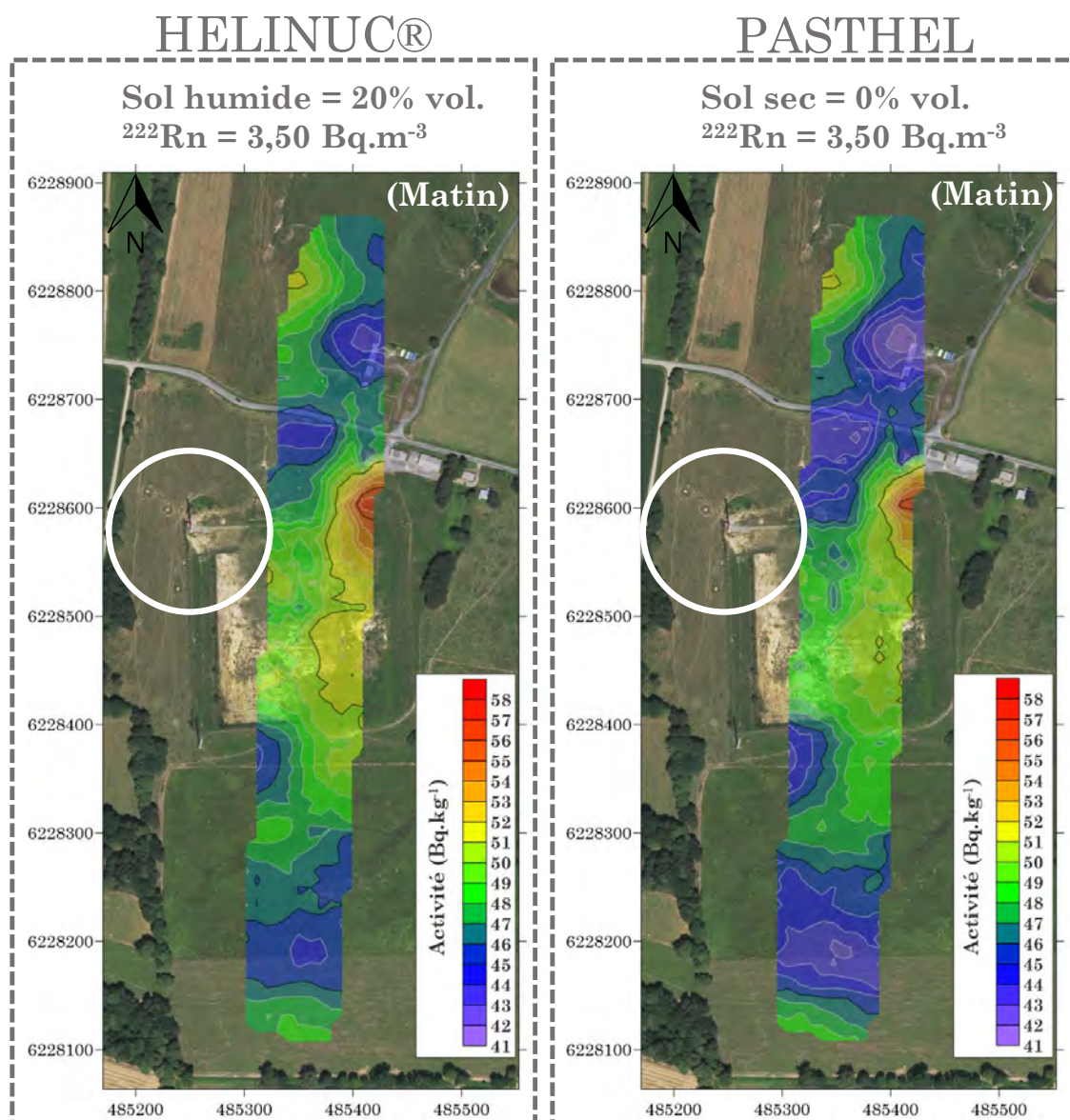


Figure 8.13 – Cartographies de l'activité massique du  $^{232}\text{Th}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc.

### 8.3.3 $^{238}\text{U}$ : comparaison Hélinuc® - PASTHEL

La répartition des zones d'iso-comptages est uniforme sur les cartes de l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  présentées sur la figure 8.14. Les valeurs les plus élevées sont situées au niveau du champ drainé et de la tourbière, contrairement à ce qui était observé pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . Le  $^{238}\text{U}$  dans les sols acides peut plus facilement se complexer avec la matière organique, ce qui peut expliquer les teneurs plus importantes dans ces zones. Le terrain remanié et la zone à proximité des bâtiments (à l'Est) présentent les valeurs les plus faibles. Les limons argileux (moins riche en  $^{238}\text{U}$ ) sont mélangés au sol *in situ* plus riches en  $^{238}\text{U}$ , ce qui peut expliquer ces valeurs moins importantes. La carte réalisée à partir du protocole PASTHEL se caractérise par des activités massiques inférieures à celles de la carte établie par le traitement Hélinuc®.

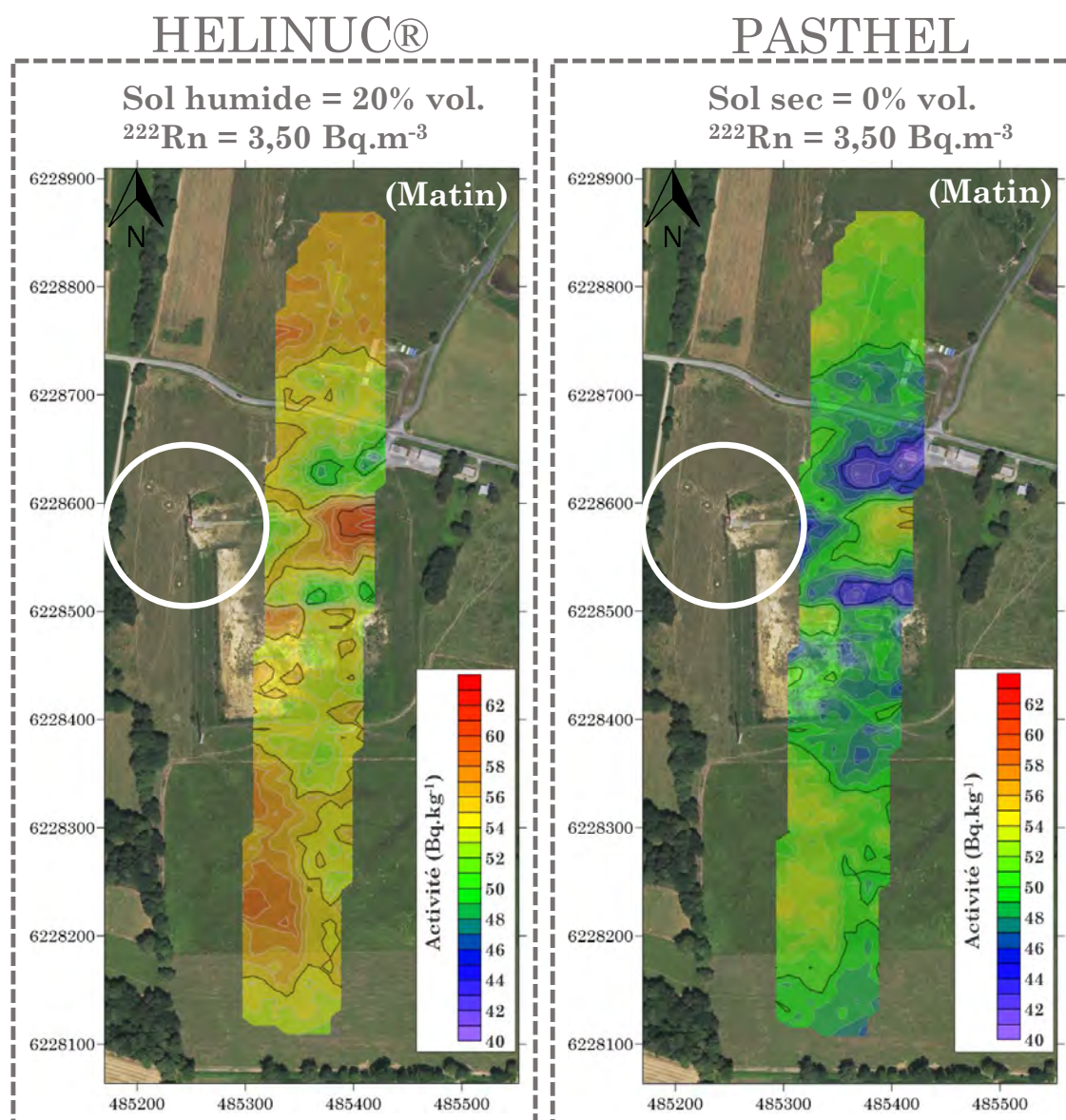


Figure 8.14 – Cartographies de l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc.

### 8.3.4 Étude des cartographies ultra-localisées de $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ réalisées à partir des deux traitements

Le tableau 8.7 indique les valeurs d'activités massiques moyennes pour toute la zone survolée du 08 Septembre 2020. Les valeurs estimées à partir du traitement Hélinuc® sont représentatives d'une humidité du sol de 20,4% et d'une activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  de  $3,50 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . Celles établies par le protocole PASTHEL s'affranchissent des effets de la teneur en eau volumique (sol sec) et du  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants.

Radionucléide	RSX-4	RSX-4
	Hélinuc®	PASTHEL
$^{40}\text{K}$	309,2 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	311,5 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$
$^{238}\text{U}$	58,1 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	52,0 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$
$^{232}\text{Th}$	52,6 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	50,4 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$

Tableau 8.7 – Activités massiques moyennes du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  sur toute la zone survolée pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® et PASTHEL pour les spectromètres RSX-4.

Les valeurs d'activité massique du  $^{40}\text{K}$  sont assez similaires entre elles avec pourtant une atténuation résiduelle de 20% du signal  $\gamma$ , due à la présence d'eau dans le sol, encore présente sur les données traitées par Hélinuc®. La même observation est faite pour les activités massiques du  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  avec des valeurs supérieures pour les données traitées par Hélinuc®. L'effet de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  sur le  $^{238}\text{U}$  est clairement identifié.

### 8.3.5 Comparaison Hélinuc® - PASTHEL à une échelle semi-diurne

La comparaison entre les activités massiques moyennes sur le site P2OA-CRA issues des deux vols du 07 Septembre 2020 et du matin du 08 Septembre 2020 a également été réalisée pour les cartes réalisées à partir des traitements Hélinuc® et PASTHEL. La zone concernée est toujours la surface réduite, ultra-localisée, à proximité du mât météorologique.

Les activités massiques des trois radionucléides sont indiquées dans le tableau 8.8. Les variations des activités massiques du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  entre les deux vols matinaux sont de 6,6% et 7,3% respectivement. Associées à ces évolutions d'activités massiques, une diminution de 6,3% de la teneur en eau volumique du sol est observée. L'évolution de la teneur en eau du sol semble donc être le facteur prédominant pour ces deux radionucléides,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ .

La variation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  ( $0,60 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ ) se traduit par une augmentation de l'influence de 1,4%, sur les taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , soit  $2,4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ . Ainsi, l'effet total des paramètres environnementaux sur l'activité massique du  $^{238}\text{U}$  est de 7,7 % sur les cartes traitées par Hélinuc®. L'influence du  $^{222}\text{Rn}$



atmosphérique représente environ 20% du cumul des effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  de l'uranium.

Radionucléide	RSX-4	RSX-4
	Hélinuc®	PASTHEL
$^{40}\text{K}$ (07-Matin)	290 Bq.kg <sup>-1</sup>	320 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ (07-Après-midi)	300 Bq.kg <sup>-1</sup>	320 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{40}\text{K}$ (08-Matin)	309,2 Bq.kg <sup>-1</sup>	311,5 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ (07-Matin)	52 Bq.kg <sup>-1</sup>	52 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ (07-Après-midi)	50 Bq.kg <sup>-1</sup>	52 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{238}\text{U}$ (08-Matin)	57,1 Bq.kg <sup>-1</sup>	52,0 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ (07-Matin)	49 Bq.kg <sup>-1</sup>	50 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ (07-Après-midi)	52 Bq.kg <sup>-1</sup>	50 Bq.kg <sup>-1</sup>
$^{232}\text{Th}$ (08-Matin)	52,6 Bq.kg <sup>-1</sup>	50,4 Bq.kg <sup>-1</sup>

Tableau 8.8 – Activités massiques moyennes du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{238}\text{U}$  sur la zone ultra-localisée pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin : 07-Matin, Après-Midi : 07-Après-midi) et du 08 Septembre 2020 (Matin : 08-Matin) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® (sans correction des effets environnementaux) et PASTHEL (avec correction des effets environnementaux) pour le spectromètre RSX-4 (Hélicoptère).

Entre les vols du 07 Septembre après-midi et 08 Septembre au matin, une diminution de l'ordre de 4,1% est quantifiée pour la teneur en eau volumique du sol et une augmentation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique de 1,9 Bq.m<sup>-3</sup> est observée. Cette dernière est responsable d'une augmentation du taux de comptage de 1,2 c.s<sup>-1</sup>, qui se traduit par une augmentation de l'activité massique de 3,84 Bq.kg<sup>-1</sup> soit un effet positif de 6,7%. La somme des deux contributions environnementales est de 10,8%, ce qui est loin d'être négligeable.

Les activités massiques des cartes établies par le traitement PASTHEL ne présentent qu'une variation négligeable, inférieure à 1%, pour le  $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . L'écart est de 2,6% pour les activités massiques du  $^{40}\text{K}$ , avec des valeurs estimées sur ce vol ultra-localisé beaucoup plus précises que sur les vols précédents.

## 8.4 Conclusion

La campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée réalisée sur le site pilote du P2OA-CRA avait pour objectif d'observer les effets environnementaux sur le signal  $\gamma$  mesuré de plusieurs radionucléides. Deux périodes, le matin et l'après-midi du 07 Septembre

2020, ont donc fait l'objet d'un survol d'environ 1h15 chacun permettant de couvrir une surface au sol de plus de 4 km<sup>2</sup>.

Les conditions météorologiques similaires sur cette journée mais avec à une évolution de la teneur en eau du sol et de l'activité volumique du <sup>222</sup>Rn ont permis de qualifier et quantifier leurs effets respectifs pour une échelle temporelle semi-diurne. Une application du protocole de correction PASTHEL (Figure 8.15) a donc pu être testée en conditions réelles.

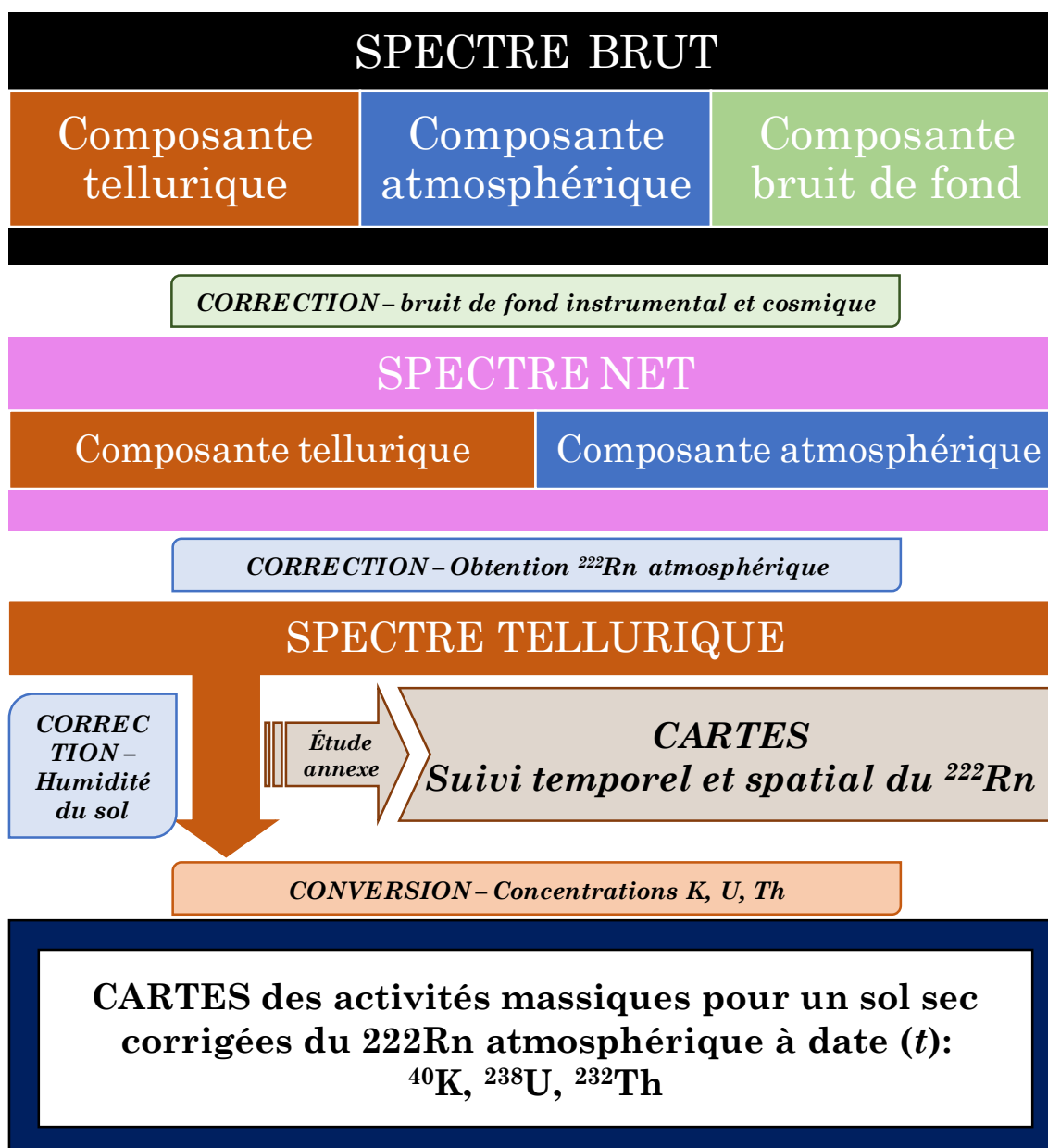


Figure 8.15 – Représentation simplifiée du protocole de correction des données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée PASTHEL (Protocole d'Amélioration du Système de Traitement d'HELinuc), mis en place dans cette thèse, pour prendre en compte les effets environnementaux (teneur en eau volumique, activité volumique de <sup>222</sup>Rn et ses descendants) sur le signal mesuré .

Le protocole de correction sur le  $^{222}\text{Rn}$  semble être fiable et robuste (Figure 8.15). Il associe une valeur unique, sur la base d'un spectre moyen, à toute la carte survolée. L'absence de vol avec le RSX-5, comme prévu à l'origine, n'a pas permis de voir si en conditions de vol, cette détermination de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  était efficace. L'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  déterminée par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée permet d'envisager l'étude de la variabilité temporelle et spatiale de ce gaz à partir des différents survols. Une nouvelle application au suivi environnemental est donc possible pour la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Si les cartes réalisées par Hélinuc® ont été sensibles à ces évolutions temporelles, les cartes établies avec le protocole PASTHEL qui s'expriment en activité massique pour un sol sec et s'affranchissent de l'influence du  $^{222}\text{Rn}$  se caractérisent par des différences négligeables, dans les incertitudes, pour tous les radionucléides. À l'exception de l'activité massique du  $^{238}\text{U}$ , les activités massiques du  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$  déterminées pour un sol sec (PASTHEL) par spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sont relativement proches de celles mesurées par spectrométrie en laboratoire (LAFARA). Le déséquilibre entre le radon-222 et ses descendants dans le compartiment atmosphérique peut entraîner un dépôt des fractions libres et attachées de ces descendants sur la surface du sol et entraîner une contribution additionnelle d'émissions  $\gamma$  dans la fenêtre d'énergie du  $^{238}\text{U}$ .



## Conclusion générale et Perspectives

L'objectif de la thèse était d'étudier les influences des effets environnementaux sur les mesures de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée et de concevoir et valider une procédure correctrice permettant d'appliquer cette technique à l'étude environnementale de sites. En effet, la **répétabilité temporelle** des cartographies proposées par le système développé par le CEA n'est pas assurée et est dépendante de facteurs externes à la mesure des rayonnements  $\gamma$  du compartiment tellurique.

Le caractère innovant de cette étude repose sur l'**acquisition couplée** de spectres  $\gamma$  environnementaux et des paramètres environnementaux pouvant les affecter sur une période temporelle de 14 mois, entre les mois d'Avril 2019 et de Juin 2020.

La simulation d'un vol stationnaire à 50 mètres d'altitude sur un mât météorologique en utilisant un spectromètre de type NaI(Tl), RSX-5, qui se présente comme le détecteur d'avenir du système CEA, est le centre de gravité de cette thèse.

Afin de visualiser de manière très concrète cette problématique de reproductibilité temporelle et spatiale de cartographies issues de données aéroportées, le site d'entraînement d'Albertville a été abordé dans le chapitre 1. À la suite de cette étude préalable et de la description du contexte scientifique, un premier état des lieux sur les effets environnementaux pouvant affecter le signal  $\Gamma$  mesuré, et les mécanismes associés a été réalisé. Cette recherche bibliographique a fait paraître de manière générale que plusieurs paramètres étaient une cause possible de biais de mesure en termes spatial et temporel. Une approche centrée sur l'étude couplée des compartiments sol et atmosphère a donc été proposée afin de faciliter la lecture qui pouvait être faite de l'influence de chaque paramètre. Ainsi, les différents milieux dans lesquels des rayonnements  $\gamma$  sont émis ont été investigués à savoir le sol, l'atmosphère et l'instrument en lui-même.

La deuxième étape de ce travail a été de comprendre le fonctionnement de ce type de détecteur à visée ascendante et d'en maîtriser les paramètres intrinsèques. Ces spectromètres NaI(Tl), de type RSX-5, n'ont fait l'objet d'aucune étude préalable dans la littérature au regard du bruit de fond de l'instrument ou d'une calibration sous  $4\pi$  stéradians. Le chapitre 2 a ainsi permis de remédier à ce manque d'information par une caractérisation du bruit de fond instrumental sous un sarcophage de plomb. Un système mécanique adapté à une calibration de l'efficacité de détection sous ces conditions a permis de procéder à une calibration complète sous plus de 80 combinaisons d'angles de combinaison entre azimuth et élévation, pour un ensemble de 14 sources radioactives. L'apport de la simulation des interactions des particules avec la matière (Geant-4) s'est avéré concluant dans le cadre de ce protocole de calibration et permet d'imaginer des usages centrés sur la simulation environnementale.



Le développement d'une nouvelle méthode d'analyse spectrale basé sur l'ajustement d'une ligne de base et l'ajustement des photopics caractéristiques accompagne cette étape de calibration du détecteur. Elle est ensuite employée de manière concrète sur des spectres acquis dans l'environnement dans le chapitre 5

Suite à cette calibration, le choix d'un site pilote pouvant accueillir la simulation d'un vol stationnaire de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée a été fait (Chapitre 3). Cette volonté de mettre en place un site instrumenté repose sur la problématique de temporalité mise en avant par l'étude des cartes d'Albertville. Le site a été choisi pour la qualité de ces installations instrumentales et le soutien logistique du personnel du P2OA-CRA. Ainsi, le détecteur RSX-5 calibré a été installé sur le site P2OA-CRA de Lannemezan au niveau d'un mât météorologique de 60 mètres. La présence de ce mât a conditionné le choix du site puisqu'il permet de répondre à la question soulevée sur le manque de données de spectrométrie acquise en continu, en accueillant le spectromètre sur une période de 14 mois, entre Avril 2019 et Juin 2020, à une hauteur fixe de 50 mètres. Le suivi des paramètres environnementaux est réalisé suite à l'installation de nombreux instruments permettant d'acquérir des chroniques temporelles couplées à celle du signal  $\gamma$  enregistré par le spectromètre. Au sein du compartiment sol cela concerne la teneur en eau volumique des sols et pour le compartiment atmosphérique, les paramètres météorologiques et le  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique.

Le but de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est de procéder à un bilan radiologique du site survolé. Ainsi, une caractérisation radiologique de la zone centrée autour de la tour instrumentée, constituant la zone d'emprise spatiale du spectromètre, a été réalisée. Un triptyque méthodologique a été utilisé : la cartographie  $\gamma$  par système pédestre, la spectrométrie  $\gamma$  de contact et la spectrométrie  $\gamma$  en laboratoire à bas bruit de fond. Les résultats présentés dans le chapitre 4 ont permis de mettre en évidence une certaine hétérogénéité radiologique spatiale ainsi que des valeurs d'activité massique moyenne pour différents radionucléides :  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{137}\text{Cs}$ . Ces activités ont ensuite été employées au sein de simulation Geant-4 permettant de mettre en place des facteurs de conversion universels entre les taux de comptage  $\gamma$  mesurés et les activités massiques (Chapitre 6).

La connaissance radiologique du site pilote actée, les effets de l'humidité du sol dans le compartiment tellurique et *de facto* sur le signal  $\gamma$  mesuré ont été mis en évidence par les chroniques temporelles couplées. La quantification de ces effets était en relation avec des études préalables sur des données acquises de manière ponctuelle. L'avantage d'une chronique en continu est la possibilité de développer une procédure de correction de cette influence robuste et fiable telle qu'elle a été développée dans le chapitre 5. Les courbes d'ajustement théorique des radionucléides mises en avant dans cette thèse, couplées aux simulations Geant-4 sur cette thématique, ont permis de supprimer les effets de l'humidité du sol. Elles offrent la possibilité d'exprimer les cartographies des activités massiques en sol sec. Cette procédure correctrice a d'abord été validée pour  $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{137}\text{Cs}$ , puis pour le  $^{238}\text{U}$  qui est également impacté par la présence variable du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique.

Les campagnes de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée sont souvent organisées sur des périodes temporelles réduites, une ou deux journées. L'idée d'utiliser des images satellites, échelle kilométrique, pour quantifier la teneur en eau du sol survolé a été

émise et validée sur les produits L4 du satellite américain SMAP. Elles offrent une possibilité intéressante d'estimer l'humidité du sol sans déploiement d'instruments lourds sur le site survolé. L'avantage principal de ces images satellites est la couverture spatiale, de l'ordre du kilomètre, proche de celle d'un survol classique de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

L'étude du profil de l'humidité du sol par des rayonnements  $\gamma$  d'un même radionucléide à différentes énergies permet de vérifier l'hypothèse d'homogénéité de la teneur en eau avec la profondeur du sol. Cela ouvre la perspective d'une correction de cet effet et ainsi améliorer l'application de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à l'étude de sol. Des perspectives d'emploi en agriculture de précision, portées sur des problématiques de gestion de l'eau, sont aussi envisagées.

L'intérêt porté à l'atmosphère, dont les rayonnements  $\gamma$  émis et les muons atmosphériques sont considérés comme bruit de fond, a permis d'aborder les effets de plusieurs facteurs environnementaux dans le chapitre 6.

La mise en place d'une fenêtre d'énergie spectrale centrée sur les rayonnements cosmiques offre la possibilité de déterminer cette influence directement à partir des spectres acquis lors de la campagne de mesures. Cela permet une meilleure prise en compte de ce bruit de fond à l'échelle d'une campagne par rapport à des valeurs constantes qui sont le résultat de simulations antérieures à ces travaux de thèse.

Le cycle semi-diurne de la pression atmosphérique s'est révélé tout à fait visible sur les spectres  $\gamma$  de  $^{40}\text{K}$ , de  $^{238}\text{U}$  et de  $^{232}\text{Th}$ , au travers d'un créneau nocturne entre 2h et 4h du matin et postméridien, entre 15h et 16h. Toutefois, l'influence de ce paramètre sur le signal  $\gamma$  mesuré est négligeable. La relation existante entre pression atmosphérique et rayons cosmiques a pu être retrouvée dans cette thèse.

Suite aux observations faites lors des épisodes de précipitations, où seul le taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  est affecté par la mise en place d'un dépôt surfacique, ce facteur a été étudié sur des profils de pluie unique aux intensités variables. L'augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$  associée présente une relation linéaire avec l'intensité des épisodes pluvieux.

Enfin, l'étude couplée des chroniques temporelles du  $^{222}\text{Rn}$  et du  $^{238}\text{U}$  a permis de mieux comprendre l'influence du radon atmosphérique et ses descendants sur la mesure du signal  $\gamma$  de l'uranium. En mettant en avant des événements où le  $^{222}\text{Rn}$  est seul responsable de l'augmentation du taux de comptage du  $^{238}\text{U}$ , un spectre pur de  $^{222}\text{Rn}$  a pu être établi pour une activité volumique de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ . La détermination du taux de comptage, associé à cette valeur de  $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ , dans la fenêtre du  $^{238}\text{U}$  permet de quantifier l'effet de la présence de radon sur le signal  $\gamma$  de l'uranium qui se traduit donc par une influence de  $148\%/\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}/\text{kg}\cdot\text{Bq}^{-1}$  ( $^{238}\text{U}$ ).

Les spectromètres à visée ascendante et leurs deux composantes *Up* et *Down* sont normalement conçus pour favoriser la correction du radon atmosphérique sur le signal  $\gamma$ . Toutefois, un rapide état de l'art sur ce sujet a montré une carence dans la méthodologie employée pour utiliser correctement ce type de détecteur. Dans cette thèse, une nouvelle méthode d'estimation de l'activité volumique de  $^{222}\text{Rn}$  à partir des composantes *Up* et *Down* et donc de la spectrométrie  $\gamma$  a été développée. Une comparaison avec le  $^{222}\text{Rn}$  mesuré a validé cette méthode. En plus de pouvoir corriger de manière directe le spectre mesuré, par l'intermédiaire du facteur de conversion dédié, les activités volumiques de  $^{222}\text{Rn}$  ainsi déduites, peuvent faire l'objet d'études dédiées. Des cartographies de l'évolution temporelle, voire spatiale,

du radon peuvent ainsi être réalisées à partir de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Suite à toutes ces observations, un protocole de correction global a été mis en œuvre, PASTHEL, et appliqué aux données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée acquises lors d'une campagne de survol sur le site pilote P2OA-CRA de Lannemezan (Chapitre 7). Les cartes d'activité massique produites à partir des spectres corrigés de toute influence environnementale considérée démontrent une très bonne répétabilité temporelle à la différence des cartes établies à partir de spectres n'ayant pas subi ces corrections. Les variations semi-diurnes et diurnes sont négligeables d'une carte à l'autre pour tous les radionucléides étudiés à savoir  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ .

La figure 8.16 rassemble l'ensemble des différentes thématiques abordées au sein de cette thèse qui ont permis d'aboutir à la mise en place d'un protocole de correction des effets environnementaux fiable et robuste.

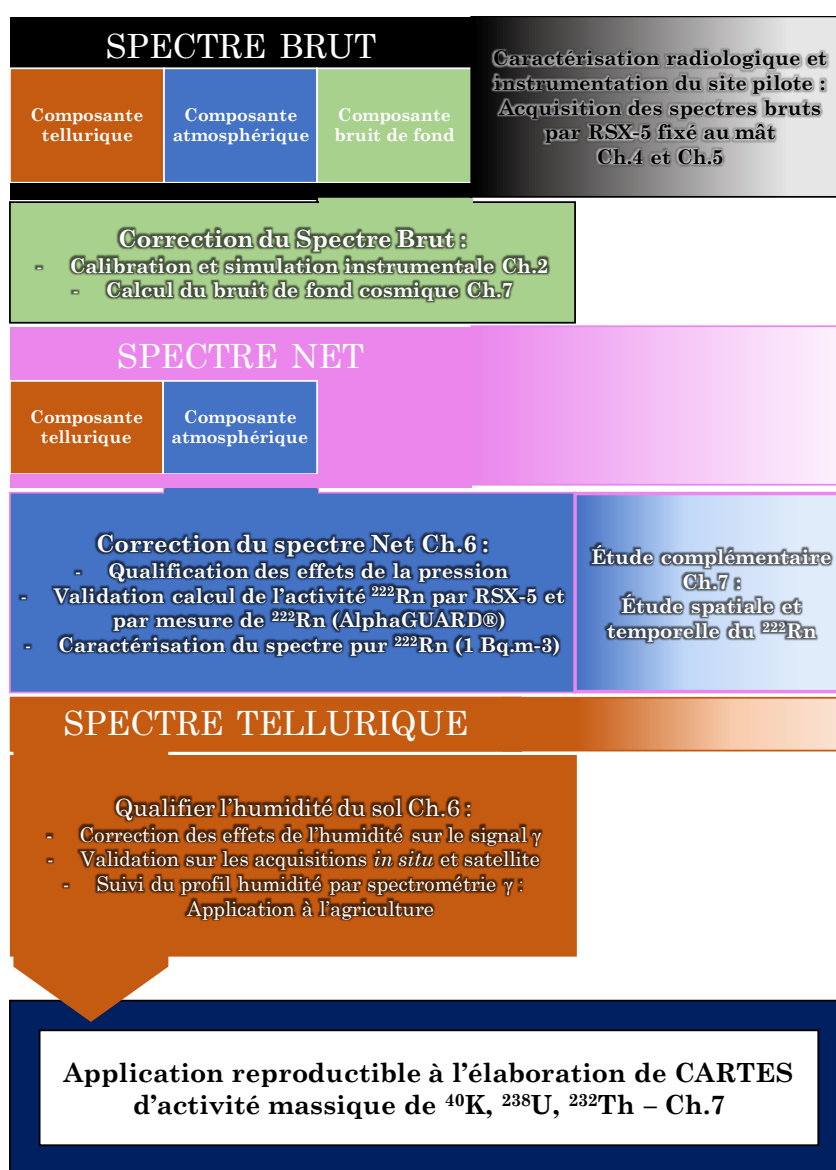


Figure 8.16 – Représentation simplifiée des différentes thématiques abordées dans cette thèse et qui ont débouchées sur un protocole de correction des données de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée permettant de prendre en compte les effets environnementaux.

En conclusion, le premier suivi annuel multi-compartiments et multi-instrumenté a permis d'évaluer et assurer la possibilité de reproductibilité temporelle des cartographies de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

Le tableau 8.17 résume les différents objectifs techniques et scientifiques initiés en début de thèse et les réponses qui ont pu être apportées pour chacun d'entre eux.

La caractérisation de l'instrument de mesure a été réalisée au travers d'un travail de laboratoire et de simulation totalement inédit pour ce type de détecteur.

L'effet de l'humidité du sol et du radon atmosphérique sur le signal  $\gamma$  pour des échelles temporelles saisonnières et diurnes a été démontré et permis de proposer des corrections adaptées à chaque facteur environnemental étudié. L'effet de la pression atmosphérique a pu être caractérisé suite aux corrections du signal  $\gamma$  des effets dominants. L'effet des rayons cosmiques sur le signal  $\gamma$  a fait l'objet d'une étude détaillée qui a abouti à la mise en place d'une méthode d'extrapolation à partir d'une fenêtre de hautes énergies.

Ces corrections ont été regroupées au sein du protocole alternatif de correction du signal  $\gamma$ , le protocole PASTHEL, qui a été validé lors d'une campagne de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée pour les radionucléides naturels  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$ .

Objectifs	Caractérisation	Correction
<b>Instrument RSX-5</b>	✓ Paramètres intrinsèques	✓ Bruit de fond Efficacité détection
<b>Effet humidité sol</b>	✓ Saisonnière, diurne	✓ Comptage sol sec
<b>Effet <math>^{222}\text{Rn}</math> atmosphérique</b>	✓ Saisonnière, diurne	✓ 1 <sup>er</sup> spectre $^{222}\text{Rn}$ ( $^{214}\text{Pb}$ + $^{214}\text{Bi}$ )
<b>Effet pression atmosphérique</b>	✓ Marées thermiques (24h, 12h)	✗
<b>Effet rayons cosmiques</b>	✓ Effet pression	✓ Fenêtre haute énergie, extrapolation
<b>Effet précipitations</b>	✓ Intensité des pluies	✗
<b>Protocole de correction</b>	✓ PASTHEL	✓ $^{40}\text{K}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{238}\text{U}$ ( $^{137}\text{Cs}$ en cours)
<b>Reproductibilité temporelle des cartes <math>\gamma</math></b>	✓ Saisonnière, diurne	✓ Diurne

Figure 8.17 – Synthèse des objectifs techniques et scientifiques établis en début de thèse et des réponses apportées qui ont débouché sur la mise en place de corrections regroupées au sein du protocole PASTHEL.

L'étude de l'influence des facteurs environnementaux sur la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée a nécessité une complémentarité entre plusieurs domaines scientifiques. Si plusieurs réponses ont pu être apportées sur la correction des spectres, de nombreuses questions ont été soulevées dans ces travaux de thèse et offrent des perspectives de recherche intéressante. Pour en citer les principales :

- En se basant sur l'analyse de raies du  $^{232}\text{Th}$  à plusieurs énergies, la perspective d'une détermination plus quantitative du profil d'humidité dans le sol est envisageable. La correction des mesures de spectrométrie  $\gamma$  en fonction d'un profil de teneur en eau hétérogène dans le sol est en cours d'investigation.

- Le suivi de l'humidité par spectrométrie  $\gamma$  implique une échelle spatiale intermédiaire entre sondes TDR et télédétection satellitaire. Il peut trouver une application dans l'étude des échanges sol-atmosphère pour valider des modèles climatiques ou encore dans l'agriculture de précision et notamment dans l'irrigation raisonnée.
- La réponse du spectromètre aux précipitations n'a été étudiée en détails que sur des événements uniques de pluie. La complexité des profils de pluie observés sur le site P2OA-CRA offre la possibilité d'une étude plus aboutie de ce paramètre environnemental. Ceci permettrait d'étudier plus finement le mélange vertical des aérosols et leur lessivage par les précipitations.
- L'activité volumique de radon-222 dans l'atmosphère à partir de la spectrométrie  $\gamma$  n'a pas pu être estimée pendant les événements de pluie. L'étude de raies du  $^{214}\text{Bi}$  ou du  $^{214}\text{Pb}$  à plusieurs énergies permettrait peut-être de compléter la couverture temporelle du  $^{222}\text{Rn}$  atmosphérique.
- L'étude des descendants du radon-222 atmosphérique et le facteur d'équilibre avec le radon-222 est également une piste d'étude afin de mieux comprendre la dynamique de dépôts secs des aérosols. L'établissement du profil de radon-222 et de ses descendants sur la colonne atmosphérique entre 0 et 60 mètres permettrait de déterminer la hauteur à laquelle un déséquilibre est observé et si ce profil a un effet marqué sur les mesures (objectif instrumental). La capacité à contraindre ce profil par spectrométrie  $\gamma$  est également une piste envisagée.
- Une première étude a été initiée sur l'étude de la couche limite atmosphérique en caractérisant le cycle diurne du radon atmosphérique, mesuré par les détecteurs AlphaGUARD® et par spectrométrie  $\gamma$ , au regard d'autres gaz tels que le  $\text{CO}_2$ . Un complément envisagé à partir de ces observations est d'étudier les mélanges verticaux des gaz.
- En se basant sur la relation entre activité volumique du radon et origine et vitesse des vents mesurés au P2OA-CRA qui reflète les différentes origines des masses d'air et la richesse des termes sources, une étude de la distribution régionale du radon atmosphérique a été réalisée. Une application concrète, déduite de ces observations, est la validation de modèles de transport.
- L'effet de la migration du radon-222 dans le sol, qui peut introduire des variations temporelles (flux) est aussi une perspective d'étude. À cet effet, pour aborder cette problématique, des sondes de mesure du radon-222 dans le sol (BARASOL) ont été installées sur le site P2OA-CRA depuis Juin 2020.
- Le radon-222 atmosphérique est responsable d'environ 40% de l'exposition moyenne humaine aux rayonnements ionisants. Un travail embryonnaire a été réalisé en parallèle de cette thèse sur la mise en place d'une relation entre le radon-222 atmosphérique mesuré sur le site P2OA-CRA et la dose suivie par une balise Téléray de l'IRSN sur Tarbes (à environ 30 km de distance). L'objectif est d'étudier plus finement l'effet du radon-222 sur les mesures de dose du réseau Téléray. Les premiers résultats sur ce sujet ont encouragé l'IRSN à procéder à l'installation d'une balise Téléray sur le site P2OA-CRA afin d'affiner cette relation entre dose et radon-222. Le réseau de balises Téléray couvrant une très grande partie du territoire français, il serait alors possible



d'observer l'évolution temporelle du radon atmosphérique sur tout le territoire couvert par ces balises.

- En ce qui concerne le  $^{137}\text{Cs}$ , la conversion des taux de comptage en activité massique ou surfacique est à l'étude à partir d'une simulation Geant-4 pour compléter le protocole de correction PASTHEL. Une comparaison avec les cartes réalisées par le traitement Hélinuc® sur le site de Lannemezan pourra être réalisée.

La base de données couplées, entre la spectrométrie  $\gamma$  et les nombreux paramètres environnementaux suivis, qui a été mise en place dans cette thèse permet d'envisager encore de nombreuses études.

En parallèle de ces ouvertures vers d'autres thématiques que la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, la réalisation d'un autre vol sur le site P2OA-CRA en saison humide (Mars-Avril) pour caractériser la répétabilité temporelle sur une échelle saisonnière est envisagée.

Enfin, une campagne de vols de spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, équipé d'un spectromètre RSX-5 sur un site d'application permettrait de valider définitivement l'étude environnementale de sites par cette technique. Le cratère de Rochechouart dans le Limousin, où la radioactivité ambiante est supérieure à celle de Lannemezan, ferait un excellent candidat comme site d'essai du fait des nombreuses thématiques scientifiques qui l'entourent.



# Bibliographie

- [Abdelbaki, 2018] Abdelbaki, A. M. (2018). Evaluation of pedotransfer functions for predicting soil bulk density for U.S. soils. *Ain Shams Engineering Journal*, 9(4) :1611–1619.
- [Agostinelli et al., 2003] Agostinelli, S., Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Araujo, H., Arce, P., Asai, M., Axen, D., Banerjee, S., Barrand, G., Behner, F., Bellagamba, L., Boudreau, J., Broglia, L., Brunengo, A., Burkhardt, H., Chauvie, S., Chuma, J., Chytracsek, R., Cooperman, G., Cosmo, G., Degtyarenko, P., Dell’Acqua, A., Depaola, G., Dietrich, D., Enami, R., Feliciello, A., Ferguson, C., Fesefeldt, H., Folger, G., Foppiano, F., Forti, A., Garelli, S., Giani, S., Giannitrapani, R., Gibin, D., Gómez Cadenas, J. J., González, I., Gracia Abril, G., Greeniaus, G., Greiner, W., Grichine, V., Grossheim, A., Guatelli, S., Gumplinger, P., Hamatsu, R., Hashimoto, K., Hasui, H., Heikkinen, A., Howard, A., Ivanchenko, V., Johnson, A., Jones, F. W., Kallenbach, J., Kanaya, N., Kawabata, M., Kawabata, Y., Kawaguti, M., Kelner, S., Kent, P., Kimura, A., Kodama, T., Kokoulin, R., Kossov, M., Kurashige, H., Lamanna, E., Lampén, T., Lara, V., Lefebvre, V., Lei, F., Liendl, M., Lockman, W., Longo, F., Magni, S., Maire, M., Medernach, E., Minamimoto, K., Mora de Freitas, P., Morita, Y., Murakami, K., Nagamatu, M., Nartallo, R., Nieminen, P., Nishimura, T., Ohtsubo, K., Okamura, M., O’Neale, S., Oohata, Y., Paech, K., Perl, J., Pfeiffer, A., Pia, M. G., Ranjard, F., Rybin, A., Sadilov, S., Di Salvo, E., Santin, G., Sasaki, T., Savvas, N., Sawada, Y., Scherer, S., Sei, S., Sirotenko, V., Smith, D., Starkov, N., Stoecker, H., Sulkimo, J., Takahata, M., Tanaka, S., Tcherniaev, E., Safai Tehrani, E., Tropeano, M., Truscott, P., Uno, H., Urban, L., Urban, P., Verderi, M., Walkden, A., Wander, W., Weber, H., Wellisch, J. P., Wenaus, T., Williams, D. C., Wright, D., Yamada, T., Yoshida, H., and Zschesche, D. (2003). Geant4—a simulation toolkit. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 506(3) :250–303.
- [Akkurt et al., 2014] Akkurt, I., Gunoglu, K., and Arda, S. S. (2014). Detection Efficiency of NaI(Tl) Detector in 511–1332 keV Energy Range. *Science and Technology of Nuclear Installations*. ISSN : 1687-6075 Pages : 5 Publisher : Hindawi Volume : 2014.
- [Al Majou et al., 2008] Al Majou, H., Bruand, A., Duval, O., Le Bas, C., and Vautier, A. (2008). Prediction of soil water retention properties after stratification by combining texture, bulk density and the type of horizon. *Soil Use and Management*, 24(4) :383–391.
- [Allkofer et al., 1971] Allkofer, O., Carstensen, K., and Dau, W. (1971). The absolute cosmic ray muon spectrum at sea level. *Physics Letters B*, 36(4) :425 – 427.

- [Allyson and Sanderson, 2001] Allyson, J. and Sanderson, D. (2001). Spectral deconvolution and operational use of stripping ratios in airborne radiometrics. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53(3) :351 – 363. Environmental Radiometrics.
- [Allyson and Sanderson, 1998] Allyson, J. D. and Sanderson, D. C. W. (1998). Monte Carlo simulation of environmental airborne gamma-spectrometry. *Journal of Environmental Radioactivity*, 38(3) :259–282.
- [Anagnostakis et al., 1996] Anagnostakis, M. J., Hinis, E. P., Simopoulos, S. E., and Angelopoulos, M. G. (1996). Natural radioactivity mapping of Greek surface soils. *Environment International*, 22 :3–8.
- [Anspaugh et al., 1988] Anspaugh, L., Catlin, R., and Goldman, M. (1988). The global impact of the chernobyl reactor accident. *Science*, 242(4885) :1513–1519.
- [Arnold et al., 2010] Arnold, D., Vargas, A., Vermeulen, A., Verheggen, B., and Seibert, P. (2010). Analysis of radon origin by backward atmospheric transport modelling. *Atmospheric Environment*, 44(4) :494 – 502.
- [Ashrafi et al., 2006] Ashrafi, S., Anvarian, S., and Sobhanian, S. (2006). Monte-Carlo modeling of a NaI(Tl) scintillator. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 269(1) :95–98.
- [Audry et al., 1972] Audry, P., Combeau, A., Humbel, F.-X., Roose, E., and Vizier, J.-F. (1972). Essai sur les études de dynamique actuelle des sols : définition, méthodologie, techniques, limitations actuelles, quelques voies de recherches possibles. Technical report, IRD.
- [Aviv and Vulcan, 1983] Aviv, R. and Vulcan, U. (1983). Airborne gamma-ray survey over Israël : the methodology of the calibration of the airborne system. Technical Report Z.D., Israel Atomic Energy Commission.
- [Baccouche et al., 2012] Baccouche, S., Al-Azmi, D., Karunakara, N., and Trabelsi, A. (2012). Application of the Monte Carlo method for the efficiency calibration of CsI and NaI detectors for gamma-ray measurements from terrestrial samples. *Applied Radiation and Isotopes*, 70(1) :227–232.
- [Balcerzyk et al., 2005] Balcerzyk, M., Moszyński, M., and Kapusta, M. (2005). Comparison of LaCl<sub>3</sub>:Ce and NaI(Tl) scintillators in  $\gamma$ -ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 537(1) :50–56.
- [Baldoncini et al., 2018a] Baldoncini, M., Albéri, M., Bottardi, C., Chiarelli, E., Raptis, K. G. C., Strati, V., and Mantovani, F. (2018a). Investigating the potentialities of monte carlo simulation for assessing soil water content via proximal gamma-ray spectroscopy. *Journal of Environmental Radioactivity*, 192 :105 – 116.
- [Baldoncini et al., 2019] Baldoncini, M., Albéri, M., Bottardi, C., Chiarelli, E., Raptis, K. G. C., Strati, V., and Mantovani, F. (2019). Biomass water content effect on soil moisture assessment via proximal gamma-ray spectroscopy. *Geoderma*, 335 :69–77.
- [Baldoncini et al., 2018b] Baldoncini, M., Albéri, M., Bottardi, C., Minty, B., Raptis, K. G. C., Strati, V., and Mantovani, F. (2018b). Airborne gamma-ray spectroscopy for modeling cosmic radiation and effective dose in the lower atmosphere. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 56(2) :823–834. arXiv : 1712.04777.

- 
- [Balkanski et al., 1993] Balkanski, Y. J., Jacob, D. J., Gardner, G. M., Graustein, W. C., and Turekian, K. K. (1993). Transport and residence times of tropospheric aerosols inferred from a global three-dimensional simulation of 210Pb. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D11) :20573–20586. \_eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/93JD02456>.
- [Barišić et al., 1992] Barišić, D., Lulić, S., and Miletić, P. (1992). Radium and uranium in phosphate fertilizers and their impact on the radioactivity of waters. *Water Research*, 26(5) :607–611.
- [Barnes et al., 2003] Barnes, E. M., Sudduth, K. A., Hummel, J. W., Lesch, S. M., Corwin, D. L., Yang, C., Daughtry, C. S., and Bausch, W. C. (2003). Remote and ground-based sensor techniques to map soil properties. *Photogrammetric Engineering & Remote Sensing*, 69(6) :619–630.
- [Barretto et al., 1972] Barretto, P., Clark, R., and Adams, J. (1972). Physical characteristics of radon-222 emanation from rocks, soils and minerals : its relation to temperature and alpha dose. Technical report, United States. CONF-720805-P2.
- [Beamish, 2013] Beamish, D. (2013). Gamma ray attenuation in the soils of Northern Ireland, with special reference to peat. *Journal of Environmental Radioactivity*, 115 :13–27. Publisher : Elsevier.
- [Beamish, 2015] Beamish, D. (2015). Relationships between gamma-ray attenuation and soils in SW England. *Geoderma*, 259-260 :174–186.
- [Berbezier et al., 1958] Berbezier, J., Blangy, J., Guiton, J., and Lallemand, C. (1958). Methods of car-borne and air-borne prospecting.
- [Bindlish et al., 2011] Bindlish, R., Jackson, T. J., Zhao, T., Cosh, M., Chan, S., O’Neill, P., Njoku, E., Colliander, A., Kerr, Y., and Shi, J. C. (2011). Evaluation of SMAP level 2 soil moisture algorithms using SMOS data. In *Evaluation of SMAP level 2 soil moisture algorithms using SMOS data*, pages 2444–2447. IEEE.
- [Blake, 1965] Blake, G. R. (1965). *Bulk Density*, chapter 30, pages 374–390. John Wiley and Sons, Ltd.
- [Botha et al., 2018] Botha, R., Labuschagne, C., Williams, A., Bosman, G., Brunke, E.-G., Rossouw, A., and Lindsay, R. (2018). Characterising fifteen years of continuous atmospheric radon activity observations at Cape Point (South Africa). *Atmospheric Environment*, 176 :30–39.
- [Bottardi et al., 2020] Bottardi, C., Albéri, M., Baldoncini, M., Chiarelli, E., Montuschi, M., Raptis, K. G. C., Serafini, A., Strati, V., and Mantovani, F. (2020). Rain rate and radon daughters’ activity. *Atmospheric Environment*, 238 :117728.
- [Breur, 2013] Breur, S. (2013). The performance of NaI(Tl) scintillation detectors. Master Thesis, Université d’Amsterdam, Amsterdam.
- [Briesmeister et al., 1985] Briesmeister, J., Godfrey, T. N. K., and Forster, R. (1985). MCNP - a general Monte Carlo code for neutron and photon transport. In Briesmeister, Alcouffe, R., Dautray, R., Forster, A., Ledanois, G., and Mercier, B., editors, *Monte-Carlo Methods and Applications in Neutronics, Photonics and Statistical Physics*, volume 240, pages 33–55. Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg. Series Title : Lecture Notes in Physics.
- [Brimo et al., 2019] Brimo, K., Gonze, M. A., and Pourcelot, L. (2019). Long term decrease of 137Cs bioavailability in French pastures : Results from 25 years of monitoring. *Journal of Environmental Radioactivity*, 208-209 :106029.
-



- [Britton, 2015] Britton, R. (2015). *Development of a Compton suppressed gamma spectrometer using Monte Carlo techniques*. PhD thesis, University of Surrey.
- [Brun et al., 2011] Brun, E., Dumonteil, E., Hugot, F. X., Huot, N., Jouanne, C., Lee, Y. K., Malvagi, F., Mazzolo, A., Petit, O., Trama, J. C., and Zoia, A. (2011). Overview of TRIPOLI-4 version 7, Continuous-energy Monte Carlo Transport Code. *Société Française d’Energie Nucléaire*.
- [Brun and Rademakers, 1997] Brun, R. and Rademakers, F. (1997). ROOT — An object oriented data analysis framework. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 389(1-2) :81–86. Publisher : North-Holland.
- [Carrier et al., 2006] Carrier, F., Bourdon, B., Pili, ., Truffert, C., and Wyns, R. (2006). Airborne gamma-ray spectrometry to quantify chemical erosion processes. *Journal of Geochemical Exploration*, 88(1) :266–270.
- [Carroll, 1981] Carroll, T. (1981). Airborne soil moisture measurement using natural terrestrial gamma radiation. *Soil Science*, 132 :358–366.
- [Casanovas et al., 2012] Casanovas, R., Morant, J., and Salvado, M. (2012). Energy and resolution calibration of NaI(Tl) and LaBr<sub>3</sub>(Ce) scintillators and validation of an EGS5 Monte Carlo user code for efficiency calculations. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 675 :78–83.
- [Cashwell and Everett, 1959] Cashwell, E. and Everett, C. (1959). *A practical manual on the Monte-Carlo method for random walk problem*. Number 1 in International Tracts Computation ScienceS Technologies. Pergamon, London, pergamon edition.
- [Charbonneau and Darnley, 1970] Charbonneau, B. and Darnley, A. (1970). Radioactive precipitation and its significance to high sensitivity gamma-ray spectrometer surveys. Paper 70-1 Part B.
- [Choppin, 1988] Choppin, G. R. (1988). Humics and Radionuclide Migration. *Radiochimica Acta*, 44-45(1) :23–28.
- [Collé and Hutchinson, 1993] Collé, R. and Hutchinson, J. (1993). Technical Notes on the Use of Standard Reference Material. Radon-222 Emanation Standard. NIST Technical Report 4968, (Radioactivity Group. National Institute of Standards and Technology. MD. USA, Etats-Unis.
- [Colliander et al., 2017] Colliander, A., Jackson, T. J., Bindlish, R., Chan, S., Das, N., Kim, S. B., Cosh, M. H., Dunbar, R. S., Dang, L., Pashaian, L., Asanuma, J., Aida, K., Berg, A., Rowlandson, T., Bosch, D., Caldwell, T., Caylor, K., Goodrich, D., al Jassar, H., Lopez-Baeza, E., Martínez-Fernández, J., González-Zamora, A., Livingston, S., McNairn, H., Pacheco, A., Moghaddam, M., Montzka, C., Notarnicola, C., Niedrist, G., Pellarin, T., Prueger, J., Pulliainen, J., Rautiainen, K., Ramos, J., Seyfried, M., Starks, P., Su, Z., Zeng, Y., van der Velde, R., Thi-beault, M., Dorigo, W., Vreugdenhil, M., Walker, J. P., Wu, X., Monerris, A., O’Neill, P. E., Entekhabi, D., Njoku, E. G., and Yueh, S. (2017). Validation of SMAP surface soil moisture products with core validation sites. *Remote Sensing of Environment*, 191 :215–231.
- [Cook et al., 1996] Cook, S., Corner, R., Groves, P., and Grealish, G. (1996). Use of airborne gamma-radiometric data for soil mapping. *Australian Journal of Soil Research*, 34 :183–194.

- 
- [Crow et al., 2012] Crow, W. T., Berg, A. A., Cosh, M. H., Loew, A., Mohanty, B. P., Panciera, R., de Rosnay, P., Ryu, D., and Walker, J. P. (2012). Upscaling sparse ground-based soil moisture observations for the validation of coarse-resolution satellite soil moisture products. *Reviews of Geophysics*, 50(2).
- [Darnley et al., 1969] Darnley, A., Bristow, Q., and Donhoffer, D. (1969). Airborne gamma-ray spectrometer experiments over the Canadian shield. In *Nuclear Techniques and Mineral Resources*, pages 165–198. International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, international atomic energy agency edition.
- [Davis, 1992] Davis, R. S. (1992). Equation for the determination of the density of moist air (1981/91). *Metrologia*, 29(1) :67–70.
- [Davisson, 1968] Davisson, C. M. (1968). Chapter II - Interaction of gamma-radiation with matter. In *Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy*, pages 37–78. Elsevier, Amsterdam.
- [De Cort et al., 1998] De Cort, M., Dubois, G., D., F., MG, G., A., I., Janssens, A., Jones, A., N., K., Knaviskova, E., I., M., M., N., YM, P., VA, S., ED, S., LY, T., and YS, T. (1998). *Atlas of Caesium 137 deposition on Europe after the Chernobyl accident. EUR 1673 EN/RU*. European Commission.
- [De Figueiredo et al., 2011] De Figueiredo, M. T. T., Guimaraes, M. C., and Da Silva, T. A. (2011). The influence of air humidity on the determination of the half-value layer of low energy X-ray reference radiation.
- [de Vries, 2012] de Vries, L. (2012). Search for a correlation between HiSPARC cosmic-ray data and weather measurements. Master’s thesis, National institute for subatomic physics, Amsterdam.
- [Deal et al., 1972] Deal, L., Doyle, J., Burson, Z., and Boyns, P. (1972). Locating the lost Athena missile in Mexico by the aerial radiological measuring system (ARMS). *Health Physics*, 23(1) :95–98.
- [Demongeot, 1997] Demongeot, S. (1997). *Recherche des differents parametres caracterisant le potentiel d’exhalation en radon des sols*. PhD thesis. Thèse de doctorat dirigée par Chambaudet, Alain Terre, océan, espace Besançon 1997.
- [Dickson and Scott, 1997] Dickson, B. and Scott, K. (1997). Interpretation of aerial gamma-ray surveys - adding the geochemical factors. *AGSO journal of Australian geology & geophysics*, 17 :187–199.
- [Dobson et al., 1985] Dobson, M. C., Ulaby, F. T., Hallikainen, M. T., and El-rayes, M. A. (1985). Microwave dielectric behavior of wet soil-part ii : Dielectric mixing models. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, GE-23(1) :35–46.
- [Duc Tam et al., 2017] Duc Tam, H., Hai Yen, N. T., Tran, L. B., Dinh Chuong, H., and Thien Thanh, T. (2017). Optimization of the Monte Carlo simulation model of NaI(Tl) detector by Geant4 code. *Applied Radiation and Isotopes*, 130 :75–79.
- [East, 1971] East, L. (1971). Precision measurement of gamma rays from 94nb decay. *Nuclear Instruments and Methods*, 93(2) :193 – 195.
- [Eilers and Boelens, 2005] Eilers, P. and Boelens, H. (2005). Baseline correction with asymmetric least squares smoothing. Technical report, Leiden University Medical Centre, Leiden University Medical Centre.
- [Endrestøl, 1980] Endrestøl, G. O. (1980). Principle and method for measurement of snow water equivalent by detection of natural gamma radiation / principe et
-

- méthode pour la mesure de l'hauteur d'eau équivalente par détection du rayonnement gamma naturel. *Hydrological Sciences Bulletin*, 25(1) :77–83.
- [Entekhabi et al., 2010] Entekhabi, D., Njoku, E. G., O'Neill, P. E., Kellogg, K. H., Crow, W. T., Edelstein, W. N., Entin, J. K., Goodman, S. D., Jackson, T. J., Johnson, J., Kimball, J., Piepmeier, J. R., Koster, R. D., Martin, N., McDonald, K. C., Moghaddam, M., Moran, S., Reichle, R., Shi, J. C., Spencer, M. W., Thurman, S. W., Tsang, L., and Van Zyl, J. (2010). The soil moisture active passive (smap) mission. *Proceedings of the IEEE*, 98(5) :704–716.
- [European Commission. Joint Research Centre., 2019] European Commission. Joint Research Centre. (2019). *European atlas of natural radiation*. Publications Office of the European Union, Luxembourg.
- [Fasso et al., 2003] Fasso, A., Ferrari, A., Ranft, J., and Sala, P. (2003). Fluka.
- [Feichter and Crutzen, 1990] Feichter, J. and Crutzen, P. J. (1990). Parameterization of vertical tracer transport due to deep cumulus convection in a global transport model and its evaluation with 222radon measurements. *Tellus B*, 42(1) :100–117.
- [Florea and Dului, 2012] Florea, N. and Dului, O. G. (2012). Eighteen years of continuous observation of Radon and Thoron progenies atmospheric activity. *Journal of Environmental Radioactivity*, 104 :14–23.
- [Fu et al., 2011] Fu, X., Shao, M., Lu, D., and Wang, H. (2011). Soil water characteristic curve measurement without bulk density changes and its implications in the estimation of soil hydraulic properties. *Geoderma*, 167-168 :1–8.
- [Fujinami, 1996] Fujinami, N. (1996). Observational study of the scavenging of radon daughters by precipitation from the atmosphere. *Environment International*, 22 :181–185.
- [Garratt, 1994] Garratt, J. R. (1994). Review : the atmospheric boundary layer. *Earth-Science Reviews*, 37(1) :89–134.
- [Gäggeler et al., 1995] Gäggeler, H., Jost, D., Baltensperger, U., Schwikowski, M., and Seibert, P. (1995). Radon and thoron decay product and 210pb measurements at jungfraujoeh, switzerland. *Atmospheric Environment*, 29(5) :607 – 616.
- [Gheusi, 2018] Gheusi, F. (2018). Plateforme Pyrénéenne d'Observation Atmosphérique (P2OA).
- [Gilmore, 2008] Gilmore, G. (2008). *Practical Gamma-Ray Spectrometry*. John Wiley & Sons, Ltd., Angleterre, seconde édition edition.
- [Girault, 2011] Girault, F. (2011). *Etude des flux de dioxyde de carbone et de radon dans l'Himalaya du Népal*. PhD thesis. Thèse de doctorat dirigée par Perrier, Frédéric Géophysique Paris 7 2011.
- [Girault and Perrier, 2012a] Girault, F. and Perrier, F. (2012a). Measuring effective radium concentration with large numbers of samples. Part I – experimental method and uncertainties. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113 :177–188.
- [Girault and Perrier, 2012b] Girault, F. and Perrier, F. (2012b). Measuring effective radium concentration with large numbers of samples. Part II – general properties and representativity. *Journal of Environmental Radioactivity*, 113 :189–202.
- [Grasty, 1975] Grasty, R. (1975). Atmospheric absorption of 2,62 mev gamma-ray photons emitted from the ground. *GEOPHYSICS*, 40 :1058–1065.

- 
- [Grasty, 1987] Grasty, R. (1987). The design, construction and application of gamma-ray spectrometer calibration pads-Thailand. *Geological Survey of Canada*, Paper 87-10 :34 pages.
- [Grasty, 1997] Grasty, R. (1997). Radon emanation and soil moisture effects on airborne gamma-ray measurements. *GEOPHYSICS*, 62 :1379–1385.
- [Grasty et al., 1982] Grasty, R., Kosanke, K., and Foote, R. (1982). Discussion on 'Inversion of gamma-ray data for element abundances' (Crossley, D.J. & Reid, A.B.). *GEOPHYSICS*, 47(6) :1737–1738.
- [Grasty and Minty, 1995] Grasty, R. and Minty, B. R. S. (1995). A guide to the technical specifications for airborne gamma-ray surveys. *AGSO Australian Geological Survey Organisation (Record 1996/60)*.
- [Grasty, 1980] Grasty, R. L. (1980). *The Search for COSMOS-954*, pages 211–220. Springer US, Boston, MA.
- [Gregory, 1960] Gregory, A. (1960). Geological interpretation of aeroradiometric data. Research report Bulletin 66, Geological Survey of Canada.
- [Gruhler, 2010] Gruhier, C. (2010). *L'humidité du sol par télédétection micro-ondes en région sahélienne*. PhD thesis, Université Paris 6. Thèse de doctorat dirigée par Rosnay, Patricia de Sciences de l'environnement Paris 6 2010.
- [Guidotti et al., 2015] Guidotti, L., Carini, F., Rossi, R., Gatti, M., Cenci, R. M., and Beone, G. M. (2015). Gamma-spectrometric measurement of radioactivity in agricultural soils of the Lombardia region, northern Italy. *Journal of Environmental Radioactivity*, 142 :36–44.
- [Guillot, 1996] Guillot, L. (1996). *Spectrométrie Gamma Aéroporté : Etudes de nouvelles méthodes de traitement spectral et de calibration permettant une interprétation qualitative et quantitative des mesures*. PhD thesis, Université de Bourgogne, Centre d'Etudes de Valduc du Commissariat à l'Energie Atomique.
- [Hagan et al., 2003] Hagan, M., Forbes, J., and Richmond, A. (2003). Atmospheric tides. In Holton, J. R., editor, *Encyclopedia of Atmospheric Sciences*, pages 159 – 165. Academic Press, Oxford.
- [Hennemuth and Lammert, 2006] Hennemuth, B. and Lammert, A. (2006). Determination of the Atmospheric Boundary Layer Height from Radiosonde and Lidar Backscatter. *Boundary-Layer Meteorology*, 120(1) :181–200.
- [Horng and Jiang, 2003] Horng, M.-C. and Jiang, S.-H. (2003). A rainout model for the study of the additional exposure rate due to rainfall. *Radiation Measurements*, 37(6) :603–608.
- [Hosoda et al., 2007] Hosoda, M., Shimo, M., Sugino, M., Furukawa, M., and Fukushima, M. (2007). Effect of Soil Moisture Content on Radon and Thoron Exhalation. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 44(4) :664–672.
- [Hulin et al., 2019] Hulin, M., Gheusi, F., Lothon, M., Pont, V., Lohou, F., Ramonet, M., Delmotte, M., Derrien, S., Athier, G., Meyerfeld, Y., Bezombes, Y., Augustin, P., and Ravetta, F. (2019). Observations of thermally driven circulations in the pyrenees : Comparison of detection methods and impact on atmospheric composition measured at a mountaintop. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 58(4) :717 – 740.
-

- [IAEA, 1991] IAEA (1991). Airborne gamma-ray spectrometer surveying. Technical report 323, International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [IAEA, 2003] IAEA (2003). Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry. Technical report Report Series, No. 136, International Atomic Energy Agency, Vienna.
- [Ielsch et al., 2017] Ielsch, G., Cuney, M., Buscail, F., Rossi, F., Leon, A., and Cushing, M. E. (2017). Estimation and mapping of uranium content of geological units in France. *Journal of Environmental Radioactivity*, 166 :210–219.
- [Ielsch et al., 2001] Ielsch, G., Thiéblemont, D., Labed, V., Richon, P., Tymen, G., Ferry, C., Robé, M. C., Baubron, J. C., and Béchenec, F. (2001). Radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) level variations on a regional scale : influence of the basement trace element (U, Th) geochemistry on radon exhalation rates. *Journal of Environmental Radioactivity*, 53(1) :75–90.
- [Jagercikova et al., 2015] Jagercikova, M., Cornu, S., Le Bas, C., and Evrard, O. (2015). Vertical distributions of  $^{137}\text{Cs}$  in soils : a meta-analysis. *Journal of Soils and Sediments*, 15(1) :81–95.
- [Jalabert et al., 2010] Jalabert, S. S. M., Martin, M. P., Renaud, J.-P., Boulonne, L., Jolivet, C., Montanarella, L., and Arrouays, D. (2010). Estimating forest soil bulk density using boosted regression modelling. *Soil Use and Management*, 26(4) :516–528. \_eprint : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1111/j.1475-2743.2010.00305.x>.
- [Jeambrun and Chareyron, 2017] Jeambrun, M. and Chareyron, B. (2017). Suivi de la contamination radioactive des sols en Rhône-Alpes. Rapport d'études 17-34, Laboratoire de la CRIIRAD, Valence.
- [Jones et al., 2004] Jones, A. S., Vukićević, T., and Vonder Haar, T. H. (2004). A Microwave Satellite Observational Operator for Variational Data Assimilation of Soil Moisture. *Journal of Hydrometeorology*, 5(1) :213–229. Publisher : American Meteorological Society.
- [Kane and Mariscotti, 1967] Kane, W. and Mariscotti, M. (1967). An empirical method for determining the relative efficiency of a ge(li) gamma-ray detector. *Nuclear Instruments and Methods*, 56(2) :189 – 196.
- [Keller and Håkansson, 2010] Keller, T. and Håkansson, I. (2010). Estimation of reference bulk density from soil particle size distribution and soil organic matter content. *Geoderma*, 154(3) :398–406.
- [Knight, 1992] Knight, J. H. (1992). Sensitivity of time domain reflectometry measurements to lateral variations in soil water content. *Water Resources Research*, 28(9) :2345–2352. \_eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/92WR00747>.
- [Knoll, 2000] Knoll, G. F. (2000). *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, Inc., University of Michigan, third edition edition.
- [Kogan et al., 1965] Kogan, R., Nazarov, I., and Fridman, S. (1965). Determination of water equivalent of snowcover by method of aerial gamma-survey. *Soviet Hydrology, Selected Papers*, 2 :183–187.
- [Kogan et al., 1971] Kogan, R., Nazarov, I., and Fridman, S. (1971). Gamma spectrometry of natural environments and formations-Theory of the method, applications to geology and geophysics. *Israel Program for Scientific Trans.*, 5778.



- 
- [Kovaltchouk and Machrafi, 2011] Kovaltchouk, V. and Machrafi, R. (2011). Monte Carlo simulations of response functions for gas filled and scintillator detectors with MCNPX code. *Annals of Nuclear Energy*, 38(4) :788–793.
- [Kumar et al., 2009] Kumar, G. A., Mazumdar, I., and Gothe, D. (2009). Experimental measurements and geant4 simulations for a comparative study of efficiencies of labr3 :ce, nai(tl), and baf2. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 610(2) :522 – 529.
- [Laroche et al., 2013] Laroche, B., Richer-de Forges, A., Saby, N. N., Martelet, G., Tourlière, B., Deparis, J., Messner, F., Wetterlind, J., Moulin, J., Froger, D., and Arrouays, D. D. (2013). Potentiel de la spectrométrie gamma aéroportée pour la cartographie des sols et du régolithe : une mini-revue et des premiers exemples en régions Centre et Limousin. *Etude et Gestion des Sols*, 20(1) :15–28.
- [Lee and Larsen, 1997] Lee, H. N. and Larsen, R. J. (1997). Vertical Diffusion in the Lower Atmosphere Using Aircraft Measurements of  $^{222}\text{Rn}$ . *Journal of Applied Meteorology*, 36(9) :1262–1270. Publisher : American Meteorological Society.
- [Levidow et al., 2014] Levidow, L., Zaccaria, D., Maia, R., Vivas, E., Todorovic, M., and Scardigno, A. (2014). Improving water-efficient irrigation : Prospects and difficulties of innovative practices. *Agricultural Water Management*, 146 :84 – 94.
- [Lin et al., 1987] Lin, Y.-M., Lin, P.-H., Chen, C.-J., and Huang, C.-C. (1987). Measurements of terrestrial  $\gamma$  radiation in taiwan, republic of china. *Health physics (1958)*.
- [Liu and Liang, 2010] Liu, S. and Liang, X.-Z. (01 Nov. 2010). Observed diurnal cycle climatology of planetary boundary layer height. *Journal of Climate*, 23(21) :5790 – 5809.
- [Loijens, 1980] Loijens, H. S. (1980). Determination of soil water content from terrestrial gamma radiation measurements. *Water Resources Research*, 16(3) :565–573.
- [Løvborg, 1984] Løvborg, L. (1984). *The calibration of portable and airborne gamma-ray spectrometers : theory, problems, and facilities*. Number 2456 in Risø-M. Risø National Library. Risø National Library, Roskilde. OCLC : 35426860.
- [Malmqvist et al., 1989] Malmqvist, L., Isaksson, M., and Kristiansson, K. (1989). Radon migration through soil and bedrock. *Geoexploration*, 26(2) :135 – 144.
- [Markkanen and Arvela, 1992] Markkanen, M. and Arvela, H. (1992). Radon Emanation from Soils. *Radiation Protection Dosimetry*, 45(1-4) :269–272. \_eprint : <https://academic.oup.com/rpd/article-pdf/45/1-4/269/25691729/269.pdf>.
- [Martelet et al., 2013] Martelet, G., Drufin, S., Tourliere, B., Saby, N. P. A., Perrin, J., Deparis, J., Prognon, F., Jolivet, C., Ratié, C., and Arrouays, D. (2013). Regional Regolith Parameter Prediction Using the Proxy of Airborne Gamma Ray Spectrometry. *Vadose Zone Journal*, 12(4). Publisher : GeoScienceWorld.
- [Martin et al., 2011] Martin, M. P., Wattenbach, M., Smith, P., Meersmans, J., Jolivet, C. C., Boulonne, L. L., and Arrouays, D. D. (2011). Spatial distribution of soil organic carbon stocks in france. *Biogeosciences*, 8(5) :1053–1065. Article en open access.
-

- [McNairn et al., 2015] McNairn, H., Jackson, T. J., Wiseman, G., Bélair, S., Berg, A., Bullock, P., Colliander, A., Cosh, M. H., Kim, S., Magagi, R., Moghaddam, M., Njoku, E. G., Adams, J. R., Homayouni, S., Ojo, E. R., Rowlandson, T. L., Shang, J., Goïta, K., and Hosseini, M. (2015). The Soil Moisture Active Passive Validation Experiment 2012 (SMAPVEX12) : Prelaunch Calibration and Validation of the SMAP Soil Moisture Algorithms. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 53(5) :2784–2801.
- [Mekongtso Nguelem et al., 2016] Mekongtso Nguelem, E. J., Moyo Ndontchueng, M., and Motapon, O. (2016). Determination of 226Ra, 232Th, 40K, 235U and 238U activity concentration and public dose assessment in soil samples from bauxite core deposits in Western Cameroon. *SpringerPlus*, 5(1) :1253.
- [Menetrez et al., 1996] Menetrez, M. Y., Mosley, R. B., Snoddy, R., and Brubaker, S. A. (1996). Evaluation of radon emanation from soil with varying moisture content in a soil chamber. *Environment International*, 22 :447–453.
- [Meslin et al., 2011] Meslin, P., Sabroux, J., Bassot, S., and Chassefière, E. (2011). Experimental study of radon production and transport in an analogue for the martian regolith. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(9) :2256 – 2270.
- [Meslin, 2008] 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*. thesis, Paris 6.
- [Meslin et al., 2010] Meslin, P.-Y., Adler, P. M., and Sabroux, J.-C. (2010). Diffusive transport of gases in wet porous media. application to radon. *Soil Science Society of America Journal*, 74(6) :1871–1885.
- [Minato, 1980] Minato, S. (1980). Analysis of time variations in natural background gamma radiation flux density. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 17(6) :461–469.
- [Minty, 1992] Minty, B. R. S. (1992). Airborne gamma-ray spectrometric background estimation using full spectrum analysis. *GEOPHYSICS*, 57(2) :279–287.
- [Minty, 1997] Minty, B. R. S. (1997). Fundamentals of airborne gamma-ray spectrometry. *AGSO Journal of Australian Geology and Geophysics*, 17 :39–50.
- [Minty et al., 1998] Minty, B. R. S., McFadden, P., and Kennett, B. L. N. (1998). Multichannel processing for airborne gamma-ray spectrometry. *GEOPHYSICS*, 63(6) :1971–1985.
- [Mittlefehldt, 1999] Mittlefehldt, D. (1999). *Potassium in Encyclopedia of Geochemistry*. Kluwer Academic Publishers, marshall cp and fairbridge rw edition.
- [Mélières et al., 2003] Mélières, M.-A., Pourchet, M., and Richard, S. (2003). Surface air concentration and deposition of lead-210 in French Guiana : two years of continuous monitoring. *Journal of Environmental Radioactivity*, 66(3) :261–269.
- [Morawska and Phillips, 1993] Morawska, L. and Phillips, C. R. (1993). Dependence of the radon emanation coefficient on radium distribution and internal structure of the material. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57(8) :1783 – 1797.
- [Moszynski et al., 2008] Moszynski, M., Swiderski, L., Szczesniak, T., Nassalski, A., Syntfeld, A., Czarnacki, W., Pausch, G., Stein, J., Lavoute, P., Lherbert, F., and Kniest, F. (2008). Study of LaBr Crystals Coupled to Photomultipliers and Avalanche Photodiodes. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 55 :1774–1780.

- 
- [Moszyński, 2003] Moszyński, M. (2003). Inorganic scintillation detectors in  $\gamma$ -ray spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 505(1) :101–110.
- [Myssowsky and Tuwim, 1926] Myssowsky, L. and Tuwim, L. (1926). Unregelmäßige intensitätsschwankungen der höhenstrahlung in geringer seehöhe. *Zeitschrift für Physik*, 39((2-3)) :146–150.
- [Nazaroff, 1992] Nazaroff, W. W. (1992). Radon transport from soil to air. *Reviews of Geophysics*, 30(2) :137–160.
- [Njoku and Entekhabi, 1996] Njoku, E. G. and Entekhabi, D. (1996). Passive microwave remote sensing of soil moisture. *Journal of Hydrology*, 184(1) :101 – 129. Soil Moisture Theories and Observations.
- [Omoniyi et al., 2013] Omoniyi, I. M., Oludare, S. M. B., and Oluwaseyi, O. M. (2013). Determination of radionuclides and elemental composition of clay soils by gamma- and X-ray spectrometry. *SpringerPlus*, 2(1) :74.
- [Papachristodoulou et al., 2007] Papachristodoulou, C., Ioannides, K., and Spathis, S. (2007). The effect of moisture content on radon diffusion through soil : assessment in laboratory and field experiments. *Health physics*, 92(3) :257—264.
- [Patin, 1967] Patin, J. (1967). L'évolution morphologique du plateau de Lannemezan. *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest*, 38(4) :325–337.
- [Pirard, 2006] Pirard, B. (2006). *Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires. Application à une mission vers Mercure*. Theses, Université Paul Sabatier - Toulouse III.
- [Porntepkasemsan et al., 2018] Porntepkasemsan, B., Kulsawat, W., and Nochit, P. (2018). Impact of phosphate fertilizers on the uranium and thorium of cultivated soils profiles, kamphaeng phet, thailand. *Journal of Physics : Conference Series*, 1144 :012072.
- [Pourchet et al., 2000] Pourchet, M., Richon, P., and Sabroux, J. C. (2000). Lead-210 and radon-222 anomalies in Mont Blanc snow, French Alps. *Journal of Environmental Radioactivity*, 48(3) :349–357.
- [Prasad et al., 2016] Prasad, M., Rawat, M., Dangwal, A., Kandari, T., Gusain, G., Mishra, R., and Ramola, R. (2016). Variability of radon and thoron equilibrium factors in indoor environment of garhwal himalaya. *Journal of Environmental Radioactivity*, 151 :238 – 243.
- [Preiss et al., 1996] Preiss, N., Mélières, M.-A., and Pourchet, M. (1996). A compilation of data on lead 210 concentration in surface air and fluxes at the air-surface and water-sediment interfaces. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D22) :28847–28862. \_eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/96JD01836>.
- [Pringle et al., 1950] Pringle, R. W., Roulston, K. I., and Brownell, G. M. (1950). Ultra-Sensitive Portable Gamma-Ray Spectrometer. *Nature*, 165(4196) :527–527.
- [Punniyakotti et al., 2020] Punniyakotti, J., Lakshmi, K. S., Meenakshisundaram, V., Manju, N., and Poonguzhali, P. (2020). Influence of fertilizers on the natural radioactivity profile of soil samples of agricultural land in Villupuram District, Tamilnadu State, India. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 325(1) :85–92.
-

- [Quarati et al., 2007] Quarati, F., Bos, A., Brandenburg, S., Dathy, C., Dorenbos, P., Kraft, S., Ostendorf, R., Ouspenski, V., and Owens, A. (2007). X-ray and gamma-ray response of a 2"×2" LaBr<sub>3</sub>:Ce scintillation detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 574(1) :115–120.
- [Quindos Poncela et al., 1994] Quindos Poncela, L., Fernández, P., Soto, J., Ródenas, C., and Gómez-Arozamena, J. (1994). Natural Radioactivity in Spanish Soils. *Health physics*, 66 :194–200.
- [Ramola et al., 2003] Ramola, R. C., Negi, M. S., and Choubey, V. M. (2003). Measurement of equilibrium factor "f" between radon and its progeny and thoron and its progeny in the indoor atmosphere using nuclear track detectors. *Indoor and Built Environment*, 12(5) :351–355.
- [Robe et al., 1996] Robe, M. C., Labed, V., Richon, P., Beneito, A., Haristoy, D., and Demongeot, S. (1996). An original method to measure the natural radioactivity in the outdoor environment by means of a mobile laboratory.
- [Robinet et al., 2018] Robinet, J., von Hebel, C., Govers, G., van der Kruk, J., Minella, J. P., Schlesner, A., Ameijeiras-Mariño, Y., and Vanderborcht, J. (2018). Spatial variability of soil water content and soil electrical conductivity across scales derived from electromagnetic induction and time domain reflectometry. *Geoderma*, 314 :160 – 174.
- [Robinson et al., 2003] Robinson, D., Jones, S., Wraith, J., Or, D., and Friedman, S. (2003). A Review of Advances in Dielectric and Electrical Conductivity Measurement in Soils Using Time Domain Reflectometry. *Vadose Zone J.*, 2.
- [Rogers and Nielson, 1991a] Rogers, V. and Nielson, K. (1991a). Correlation of Florida soil-gas permeabilities with grain size, moisture, and porosity Final report, Oct 89-Apr 90. Technical report, United States. PB-91-211904/XAB.
- [Rogers and Nielson, 1991b] Rogers, V. and Nielson, K. (1991b). Multiphase radon generation and transport in porous materials. *Health physics*, 60(6) :807—815.
- [Sakoda et al., 2010] Sakoda, A., Ishimori, Y., Hanamoto, K., Kataoka, T., Kawabe, A., and Yamaoka, K. (2010). Experimental and modeling studies of grain size and moisture content effects on radon emanation. *Radiation Measurements*, 45(2) :204–210.
- [Saleh et al., 2006] Saleh, K., Wigneron, J.-P., de Rosnay, P., Calvet, J.-C., Escorihuela, M. J., Kerr, Y., and Waldteufel, P. (2006). Impact of rain interception by vegetation and mulch on the l-band emission of natural grass. *Remote Sensing of Environment*, 101(1) :127 – 139.
- [Salvat et al., 2006] Salvat, F., Fernandez-Varea, J., and Sempau, J. (2006). PENELOPE-2006 : A code system for Monte-Carlo simulation of electron and photon transport. Workshop Proceedings 4, Nuclear Energy Agency.
- [Sanada and Torii, 2015] Sanada, Y. and Torii, T. (2015). Aerial radiation monitoring around the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant using an unmanned helicopter. *Journal of Environmental Radioactivity*, 139 :294–299.
- [Sanderson et al., 1990] Sanderson, D. C. W., Baxter, M. S., and Scott, E. M. (1990). *8. The use and potential of aerial radiometrics for monitoring environmental radioactivity*, pages 99–106. The Institution of Civil Engineers.

- 
- [Sanuki et al., 2000] Sanuki, T., Motoki, M., Matsumoto, H., Seo, E. S., Wang, J. Z., Abe, K., Anraku, K., Asaoka, Y., Fujikawa, M., Imori, M., Maeno, T., Makida, Y., Matsui, N., Matsunaga, H., Mitchell, J., Mitsui, T., Moiseev, A., Nishimura, J., Nozaki, M., Orito, S., Ormes, J., Saeki, T., Sasaki, M., Shikaze, Y., Sonoda, T., Streitmatter, R., Suzuki, J., Tanaka, K., Ueda, I., Yajima, N., Yamagami, T., Yamamoto, A., Yoshida, T., and Yoshimura, K. (2000). Precise measurement of cosmic-ray proton and helium spectra with the BESS spectrometer. *The Astrophysical Journal*, 545(2) :1135–1142.
- [Schery and Wasiolek, 1998] Schery, S. and Wasiolek, M. (1998). *Modeling radon flux from the earth's surface*. World Scientific Publishing Co Pte Ltd, Singapore.
- [Schery et al., 1984] Schery, S. D., Gaeddert, D. H., and Wilkening, M. H. (1984). Factors affecting exhalation of radon from a gravelly sandy loam. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 89(D5) :7299–7309.
- [Schmugge and Jackson, 1992] Schmugge, T. J. and Jackson, T. J. (1992). A dielectric model of the vegetation effects on the microwave emission from soils. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 30(4) :757–760.
- [Shi et al., 2002] Shi, H.-X., Chen, B.-X., Li, T.-Z., and Yun, D. (2002). Precise Monte Carlo simulation of gamma-ray response functions for an NaI(Tl) detector. *Applied Radiation and Isotopes*, 57(4) :517–524.
- [Shishkunova et al., 1989] Shishkunova, L. V., Grashchenko, S. M., and Strukov, V. N. (1989). Entry of uranium, thorium, and radium isotopes into plants from soils and fertilizers. *Sov. Radiochem. (Engl. Transl.) ; (United States)*, 30 :3.
- [Sima and Arnold, 2002] Sima, O. and Arnold, D. (2002). Transfer of the efficiency calibration of Germanium gamma-ray detectors using the GESPECOR software. *Applied Radiation and Isotopes*, 56(1) :71–75.
- [Singh et al., 2009] Singh, B. K., Jain, A., Kumar, S., Tomar, B. S., Tomar, R., Manchanda, V. K., and Ramanathan, S. (2009). Role of magnetite and humic acid in radionuclide migration in the environment. *Journal of Contaminant Hydrology*, 106(3) :144–149.
- [Stranden et al., 1984] Stranden, E., Kolstad, A., and Lind, B. (1984). The Influence of Moisture and Temperature on Radon Exhalation. *Radiation Protection Dosimetry*, 7(1-4) :55–58. \_eprint : <https://academic.oup.com/rpd/article-pdf/7/1-4/55/23718965/55.pdf>.
- [Su et al., 2011] Su, G., Zeng, Z., and Cheng, J. (2011). Monte Carlo simulation of in situ LaBr gamma-ray spectrometer for marine environmental monitoring. *Radiation Protection Dosimetry*, 146(1-3) :103–106. Publisher : Oxford Academic.
- [Sudarshan et al., 1992] Sudarshan, M., Joseph, J., and Singh, R. (1992). Full energy peak efficiency of NaI(tl) gamma detectors and its analytical and semi-empirical representations. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 25(11) :1561–1567.
- [Takeyasu et al., 2006] Takeyasu, M., Iida, T., Tsujimoto, T., Yamasaki, K., and Ogawa, Y. (2006). Concentrations and their ratio of  $^{222}\text{Rn}$  decay products in rainwater measured by gamma-ray spectrometry using a low-background Ge detector. *Journal of Environmental Radioactivity*, 88(1) :74–89.
- [Tanner, 1964] Tanner, A. B. (1964). Radon migration in the ground : A review. *Natural Radiation Environment*, pages 161–190.
-



- [Tanner, 1978] Tanner, A. B. (1978). Radon migration in the ground : a supplementary review. Scientific Report CONF-780422, Houston. Series : Open-File Report.
- [Thiébeau and Bertrand, 2016] Thiébeau, P. and Bertrand, I. (2016). Mesure de l'humidité du sol en continu en sols caillouteux à l'aide de capteurs capacitifs. *Cahier des Techniques de l'INRA*, 87 :1–17.
- [Thomas, 2019] Thomas, V. (2019). *Développement d'un système de mesure ultra-compact à coïncidences électron/photon pour la détection et la caractérisation de radionucléides du xénon*. Theses, Université Paris Saclay (COMUE).
- [Topp et al., 1980] Topp, G. C., Davis, J. L., and Annan, A. P. (1980). Electromagnetic determination of soil water content : Measurements in coaxial transmission lines. *Water Resources Research*, 16(3) :574–582. \_eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/WR016i003p00574>.
- [Tourlière et al., 2003] Tourlière, B., Perrin, J., Le Berre, P., and Pasquet, J. F. (2003). Use of airborne gamma-ray spectrometry for kaolin exploration. *Journal of Applied Geophysics*, 53 :91–102.
- [Tsuji et al., 1998] Tsuji, S., Katayama, T., Okei, K., Wada, T., Yamamoto, I., and Yamashita, Y. (1998). Measurements of muons at sea level. *Journal of Physics G : Nuclear and Particle Physics*, 24(9) :1805–1822.
- [UNSCEAR, 1988] UNSCEAR (1988). *Sources, effects and risks of ionizing radiation : 1988 report to the General Assembly, with annexes*. United Nations, New York.
- [UNSCEAR, 2000a] UNSCEAR (2000a). Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly. Annex B : Exposures from Natural Radiation Sources. Technical report, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.
- [UNSCEAR, 2000b] UNSCEAR (2000b). Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation to the General Assembly. Annex C : Exposures to the Public from Man-made Sources of Radiation. Technical report, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.
- [UNSCEAR, 1994] UNSCEAR, NY (United States), N. Y. (1994). *Sources and effects of ionizing radiation UNSCEAR 1994 report to the General Assembly, with scientific annexes*. UN, Austria.
- [Wang, 1983] Wang, J. R. (1983). Passive microwave sensing of soil moisture content : The effects of soil bulk density and surface roughness. *Remote Sensing of Environment*, 13(4) :329 – 344.
- [Wang and Schmugge, 1980] Wang, J. R. and Schmugge, T. J. (1980). An empirical model for the complex dielectric permittivity of soils as a function of water content. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, GE-18(4) :288–295.
- [Wantoro et al., 2017] Wantoro, W., Trihandaru, S., and Pattiserlihun, A. (2017). Effects of air pressure changes on gamma linear attenuation coefficient in the air. *Journal of Science & Science Education*, 1(2) :55–61.
- [Ward, 1978] Ward, R. (1978). Construction of calibration pads facility, Walker Field, Grand Junction, Colorado. Rapport technique GJBX-37(78), Field Engineering Corporation, Grand Junction - Colorado.

- [Wilford, 2002] Wilford, J. (2002). Airborne gamma-ray spectrometry. *Geophysical and Remote Sensing Methods for Regolith Exploration, CRCLEME Open File Report*, 144.
- [Wilford, 2012] Wilford, J. (2012). A weathering intensity index for the Australian continent using airborne gamma-ray spectrometry and digital terrain analysis. *Geoderma*, 183-184 :124–142.
- [Williams et al., 2011] Williams, A. G., Zahorowski, W., Chambers, S., Griffiths, A., Hacker, J. M., Element, A., and Werczynski, S. (2011). The Vertical Distribution of Radon in Clear and Cloudy Daytime Terrestrial Boundary Layers. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 68(1) :155–174.
- [Wu et al., 2016] Wu, Q., Liu, H., Wang, L., and Deng, C. (2016). Evaluation of amsr2 soil moisture products over the contiguous united states using in situ data from the international soil moisture network. *International Journal of Applied Earth Observation and Geoinformation*, 45 :187 – 199. Advances in the Validation and Application of Remotely Sensed Soil Moisture - Part 1.
- [Yang et al., 2005] Yang, Y.-x., Wu, X.-m., Jiang, Z.-y., Wang, W.-x., Lu, J.-g., Lin, J., Wang, L.-M., and Hsia, Y.-f. (2005). Radioactivity concentrations in soils of the Xiazhuang granite area, China. *Applied Radiation and Isotopes*, 63(2) :255–259.
- [Yee et al., 2016] Yee, M. S., Walker, J. P., Moneris, A., Rüdiger, C., and Jackson, T. J. (2016). On the identification of representative in situ soil moisture monitoring stations for the validation of smap soil moisture products in australia. *Journal of Hydrology*, 537 :367 – 381.
- [Zahorowski et al., 2004] Zahorowski, W., Chambers, S. D., and Henderson-Sellers, A. (2004). Ground based radon-222 observations and their application to atmospheric studies. *Journal of Environmental Radioactivity*, 76(1) :3–33.
- [Zakri, 1997] Zakri, T. (1997). *Contribution à l'étude des propriétés diélectriques de matériaux poreux en vue de l'estimation de leur teneur en eau : modèles de mélange et résultats expérimentaux*. PhD thesis, Grenoble INPG. Thèse de doctorat dirigée par Laurent, Jean-Paul Géophysique, Géochimie et Géomécanique Grenoble INPG 1997.
- [Zhang et al., 2017] Zhang, X., Zhang, T., Zhou, P., Shao, Y., and Gao, S. (2017). Validation analysis of smap and amsr2 soil moisture products over the united states using ground-based measurements. *Remote Sensing*, 9 :104.
- [Zhang et al., 2015] Zhang, Y., Li, C., Liu, D., Zhang, Y., and Liu, Y. (2015). Monte Carlo simulation of a NaI(Tl) detector for in situ radioactivity measurements in the marine environment. *Applied Radiation and Isotopes*, 98 :44–48.



# Table des figures

1	Principales missions attribuées au système Hélinuc® du CEA. La surveillance environnementale est le quatrième axe d'application de la spectrométrie $\gamma$ aéroportée. . . . .	1
2	Évolution des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ et du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ) sur une période d'acquisition de 14 mois réalisée dans cette thèse. Les lignes en pointillés représentent les valeurs moyennes calculées sur la chronique pour les trois radionucléides. . . . .	2
1.1	Schémas de désintégration simplifiés du $^{208}\text{Tl}$ (a), du $^{214}\text{Bi}$ (b), du $^{40}\text{K}$ (c) et du $^{137}\text{Cs}$ (d) avec leur énergie caractéristique utilisée en spectrométrie $\gamma$ aéroportée. . . . .	8
1.2	Spectre $\gamma$ acquis sur le site pilote par un NaI(Tl). Le comptage total, exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ sur une échelle logarithmique, est représenté en fonction de l'énergie en keV. Les raies présentées sont caractéristiques des radionucléides suivis par spectrométrie $\gamma$ aéroportée. Le temps de mesure est de 30 secondes. . . . .	8
1.3	Chaîne de filiation radioactive du thorium-232 et de l'uranium-238. . . . .	10
1.4	(a) Carte de France de la teneur en uranium dans les roches telle que proposée par [Ielsch et al., 2017] (b) Carte de France du potentiel radon des formations géologiques issue des données de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN), source : <a href="http://www.ree.developpement-durable.gouv.fr">www.ree.developpement-durable.gouv.fr</a> . La commune de Lannemezan (site pilote) est indiquée. . . . .	13
1.5	Dispositif de mesure de spectrométrie $\gamma$ embarqué sur un hélicoptère de type Écureuil lors du survol du P2OA-CRA de Lannemezan. Le module de mesure protégé dans un caisson est indiqué en rouge et le module d'acquisition, en orange, met en avant la baie de mesure fixée dans l'hélicoptère. . . . .	19
1.6	Présentation des détecteurs RSX-5 (a) et RSX-4 (b) de la société canadienne Radiations Solutions Inc et schéma détaillé du détecteur RSX-5(c). Le détecteur RSX-5 est le système utilisé dans le cadre de ces travaux de recherche alors que le RSX-4, configuration optimisée et très utilisée en spectrométrie $\gamma$ aéroportée, a été employé dans le cadre d'un survol du site pilote (cf. Chapitre 8). Source : <a href="http://www.radiationsolutions.ca">www.radiationsolutions.ca</a> . . . . .	20

1.7	Schéma explicatif d'une mesure de spectrométrie $\gamma$ aéroportée. Les lignes en pointillés représentent les lignes de vol équidistantes avec déport de 80 mètres. Les cercles roses identifient l'emprise spatiale au sol d'émission de photons $\gamma$ détectés par le spectromètre à l'altitude de vol considérée, ici 50 mètres. 95% du signal $\gamma$ provient de la zone à l'intérieur du cercle. Pour une vitesse de 70 km.h <sup>-1</sup> , la distance séparant deux points de mesures ou deux spectres enregistrés est de l'ordre de 20 mètres, avec une acquisition en continu. La profondeur de sol investiguée varie entre 15 et 30 cm en fonction de la masse volumique de la surface. . . . .	22
1.8	Pourcentage de rayonnements $\gamma$ détectés émis d'une source circulaire de rayon variable - de (a) thorium <sup>232</sup> Th ( <sup>208</sup> Tl) à une énergie de 2,615 MeV, (b) uranium <sup>238</sup> U ( <sup>214</sup> Bi) à une énergie de 1,764 MeV et (c) potassium <sup>40</sup> K à une énergie de 1,461 MeV. . . . .	24
1.9	Pourcentage de rayonnements $\gamma$ détectés émis d'une source infinie d'épaisseurs variables - de thorium <sup>232</sup> Th ( <sup>208</sup> Tl) à une énergie de 2,615 MeV, uranium <sup>238</sup> U ( <sup>214</sup> Bi) à une énergie de 1,764 MeV et potassium <sup>40</sup> K à une énergie de 1,461 MeV. La masse volumique du sol prise en compte est de 1,2 g.cm <sup>-3</sup> . . . . .	25
1.10	(a) Trajectoires suivies sur le site d'Albertville lors des sessions de maintien en compétence en Octobre 2009, 2010 et 2011. (b) Représentation 3D de la zone étudiée et du site survolé (cadre rouge) : vallée alluviale bordée par deux massifs géologiques (métamorphique et sédimentaire). . . . .	26
1.11	Cartes de l'évolution des taux de comptage total (c.s <sup>-1</sup> ) et des activités massiques du <sup>40</sup> K, du <sup>238</sup> U et du <sup>232</sup> Th (Bq.kg <sup>-1</sup> ) sur le site d'entraînement d'Albertville pour la période 2009-2011. La zone encadrée en noir et les valeurs moyennes associées montrent un problème de répétabilité. . . . .	27
1.12	Paramètres environnementaux pouvant influencer sur le signal $\gamma$ mesuré par spectrométrie aéroportée : précipitations, humidité des sols, radon-222 atmosphérique et influence anthropique (activités agricoles). Les effets de chaque paramètre sur les radionucléides sont présentés sur les graphiques reliant le taux de comptage du <sup>214</sup> Bi ( <sup>238</sup> U), <sup>40</sup> K et <sup>232</sup> Th en fonction du temps. . . . .	31
1.13	Présentation succincte des objectifs de thèse sur l'étude de l'influence des facteurs environnementaux sur la spectrométrie $\gamma$ aéroportée et l'application à la surveillance environnementale de sites. . . . .	34
1.14	Représentation simplifiée du protocole de correction des données de spectrométrie $\gamma$ aéroportée, tel qu'envisagé dans cette thèse, pour prendre en compte les effets environnementaux. . . . .	35
2.1	Schéma de l'installation instrumentale envisagée pour simuler un vol stationnaire de spectrométrie $\gamma$ aéroportée à une hauteur de 50 mètres.	42
2.2	Principe de fonctionnement d'un scintillateur inorganique de type NaI(Tl) comme utilisé en spectrométrie $\gamma$ aéroportée. . . . .	44



2.3	Spectre $\gamma$ acquis sur le site P2OA-CRA par le NaI(Tl). Le comptage total, exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ sur une échelle logarithmique, est représenté en fonction de l'énergie en keV. Les principales énergies caractéristiques y sont identifiées. Le temps de mesure est de 30 secondes. . . . .	46
2.4	Interaction des photons $\gamma$ incidents dans le volume du détecteur. . . . .	47
2.5	Spectre théorique illustrant les signatures des différents processus d'interaction des photons $\gamma$ avec le détecteur et son environnement. E représente l'énergie et le rapport $\frac{dN}{dE}$ le nombre de photons par incrément d'énergie. . . . .	48
2.6	Spectre de spectrométrie $\gamma$ aéroportée typique montrant la position des fenêtres énergétiques conventionnelles pour les radionucléides $^{40}\text{K}$ , $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{137}\text{Cs}$ ainsi que le comptage total. Une fenêtre "Cosmiques", dont la caractérisation et l'intérêt scientifique ont été développés dans ces travaux, a été ajoutée au spectre. . . . .	50
2.7	(a) Application de la méthode de la ligne de base sur la raie caractéristique du $^{137}\text{Cs}$ à 662 keV. Le spectre a été acquis en laboratoire au cours de la calibration du NaI(Tl) avec une source de $^{137}\text{Cs}$ sur une durée de 90 secondes. (b) Application de la méthode de la ligne de base sur le doublet de raies caractéristiques du $^{214}\text{Bi}$ à 609 keV et du $^{208}\text{Tl}$ à 583 keV. Le spectre a été acquis en conditions environnementales sur le site du P2OA-CRA sur une durée de 30 secondes. . . . .	54
2.8	Protocole mis en place pour la mesure de bruit de fond du détecteur RSX-5. Un château de plomb de 10 cm d'épaisseur pour sa base, ses murs et son toit permet d'isoler le détecteur de l'environnement extérieur. Une plaque en acier inoxydable permet de structurer le toit du château de plomb en protégeant le détecteur. Les photons $\gamma$ provenant de l'extérieur du sarcophage sont atténués par l'épaisseur de plomb. Seuls les photons $\gamma$ émis par le détecteur pourront être détectés déterminant le bruit de fond instrumental dans chaque fenêtre énergétique considérée. . . . .	58
2.9	Présentation des composantes Down et Up du détecteur RSX-5. . . . .	59
2.10	Exemple de résultats pour la mesure de bruit de fond instrumental pour chaque cristal dans les fenêtres énergétiques du $^{232}\text{Th}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{40}\text{K}$ . Période de mesure avec alimentation électrique incluse dans le château de plomb. . . . .	61
2.11	Calibration en énergie des 5 cristaux du NaI(Tl). Les cristaux 1 à 4 composent le détecteur <i>Down</i> et le cristal 5, le détecteur <i>Up</i> . La linéarité entre canal et énergie est assurée pour les deux composantes avec un coefficient de conversion ( $a_1$ ) entre énergie et canal d'une valeur de 3 et une valeur nulle pour $a_0$ . . . . .	63
2.12	Calibration en résolution d'énergie des composantes <i>Down</i> et <i>Up</i> du NaI(Tl). Les graphiques présentent les 46 résolutions d'énergies déterminées pour les 46 pics d'absorption totale ainsi que la courbe d'ajustement la plus adaptée aux points de calibration. Les courbes de couleur bleu représente l'enveloppe à $\pm 1 \sigma$ . . . . .	65

2.13	Système mécanique de calibration du détecteur RSX-5 développé à l'IRAP. Le détecteur est placé au centre du système de mesure sur une plaque d'aluminium de 1 cm d'épaisseur découpée à plusieurs endroits et fixé à un pied métallique. Le spectromètre est arrimé à la plaque par 4 tiges métalliques d'1 cm de diamètre. La source radioactive se place dans l'un des boîtiers de couleur vert. La distance source-géométrie varie entre 0,92 m et 1,08 m. Le système permet une calibration sous 4 $\Pi$ stéradians. . . . .	68
2.14	Exemples de mesures de calibration en efficacité de détection réalisées au cours du mois de février 2019. Ces photographies présentent le système mécanique ainsi que le protocole mis en place pour l'acquisition. Les blocs de plomb disposés au sol assurent la stabilité. . . . .	73
2.15	Spectre de $^{137}\text{Cs}$ acquis lors de la calibration en efficacité de détection. La position de la source est en azimut $0^\circ$ et en élévation $+90^\circ$ . . . . .	73
2.16	Exemple d'application de l'algorithme de calcul du comptage net sur la raie d'émission du $^{137}\text{Cs}$ d'après le spectre enregistré pour la configuration de source, azimut en $0^\circ$ et élévation en $+90^\circ$ et représenté par une ligne de couleur bleue. . . . .	74
2.17	Exemple d'application de l'algorithme de calcul du comptage net sur la raie d'émission du $^{137}\text{Cs}$ d'après le spectre enregistré pour la configuration de source, azimut en $0^\circ$ et élévation en $+90^\circ$ . . . . .	75
2.18	Graphiques polaires représentant les efficacités de détection de la composante <i>Down</i> du détecteur sur les élévations positives entre $0^\circ$ et $+90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques investiguées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection, en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation. . . . .	77
2.19	Graphiques polaires représentant les efficacités de détection de la composante <i>Up</i> du détecteur sur les élévations négatives entre $0^\circ$ et $+90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques investiguées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation. . . . .	77
2.20	Efficacité de détection calculée exprimée en % ou en logarithme en fonction de l'énergie (keV). Les courbes d'efficacité sont reliées aux variations d'élévations de $0^\circ$ à $+90^\circ$ , espacées de $15^\circ$ , pour la même valeur nulle d'azimut. . . . .	78
2.21	Graphiques polaires représentant les efficacités de détection simulées de la composante <i>Down</i> du détecteur sur les élévations positives entre $0^\circ$ et $+90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation. . . . .	85

---

2.22	Graphiques polaires représentant les efficacités de détection simulées de la composante <i>Up</i> du détecteur sur les élévations positives entre $0^\circ$ et $-90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent les efficacités de détection exprimées en %. Les résultats sont identiques pour toutes les énergies avec des efficacités de détection qui augmentent avec l'angle d'élévation.	86
2.23	Efficacité de détection simulée exprimée en % ou en logarithme en fonction de l'énergie (keV). Les courbes d'efficacité sont reliées aux variations d'élévations de $0^\circ$ à $+90^\circ$ , espacées de $15^\circ$ , pour la même valeur nulle d'azimut. Les incertitudes représentent les valeurs d'efficacité de détection simulées pour une variation de distance de $\pm 1$ cm par rapport à la distance réellement mesurée.	87
2.24	Graphiques polaires représentant les résidus exprimés en % entre les efficacités de détection simulées et calibrées de la composante <i>Down</i> du détecteur sur les élévations positives entre $0^\circ$ et $-90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent l'écart relatif exprimé en %.	88
2.25	Graphiques polaires représentant les résidus exprimés en % entre les efficacités de détection simulées et calibrées de la composante <i>Up</i> du détecteur sur les élévations positives entre $0^\circ$ et $-90^\circ$ pour toutes les énergies de raies d'émission caractéristiques considérées. Les légendes caractérisent l'écart relatif exprimé en %.	89
2.26	Représentation des efficacités de détection calculées et simulées, et des résidus, en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut $135^\circ$ et élévation nulle pour une distance source-détecteur de 96 cm. Cette configuration correspond à celle où les écarts sont les plus grands.	90
2.27	Représentation des efficacités de détection calculées et simulées, et des résidus, en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut $270^\circ$ et élévation $+30^\circ$ pour une distance source-détecteur de 104 cm.	90
2.28	Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut $90^\circ$ et élévation $+85^\circ$ pour une distance source-détecteur de 98 cm. Les résidus sur l'efficacité de détection exprimés en % y sont proposés. Cette configuration correspond à celle où les écarts sont les plus petits.	91
2.29	Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut $90^\circ$ et élévation $-75^\circ$ pour une distance source-détecteur de 92 cm. Les résidus sur l'efficacité de détection exprimés en % y sont proposés.	93
2.30	Représentation des efficacités de détection calculées et simulées en fonction de l'énergie pour la configuration en azimut $90^\circ$ et élévation $85^\circ$ pour une distance source-détecteur de 92 cm. La courbe d'ajustement proposée est validée pour les deux jeux de données avec des énergies exprimées en keV.	95

---

---

2.31	Variation de l'efficacité de détection normalisée au maximum en fonction de l'angle d'élévation sur la section transverse entre les azimut 0 et 180° (a, b, c) et celle entre les azimut 90 et 270° (d, e, f) pour trois énergies. Ces graphiques montrent une dépendance angulaire du signal $\gamma$ mesuré par le détecteur. L'angle Phi exprimé en degrés représente la valeur de l'azimut de -90° à +90° correspondant aux couples d'angles 0°-180° et 90°-270°.	96
3.1	Schéma des processus de libération du radon à l'échelle macroscopique [Tanner, 1978].	102
3.2	Schéma de principe d'une chambre d'ionisation [Demongeot, 1997].	104
3.3	Moniteurs de radon AlphaGUARD® utilisés dans cette expérience.	104
3.4	Protocole de mesure des bruits de fond instrumentaux des détecteurs radon. Un débit d'azote de 2 L.min <sup>-1</sup> est injecté dans les chambres d'ionisation des détecteurs connectés en série. En tout, 233 heures de mesure ont été réalisées.	105
3.5	Représentation de l'évolution des mesures de radon (Bq.m <sup>-3</sup> ) et d'erreur sur la mesure de radon (Bq.m <sup>-3</sup> ) pour la période du 07 Septembre 2018 à 08h00 au 04 Octobre 2018 à 18h00, pour les trois détecteurs de radon AlphaGUARD®. Les zones rosées correspondent aux périodes de mesure du bruit de fond de ces instruments.	106
3.6	Dispositif mis en place pour la calibration de l'ensemble des détecteurs de radon avant leur installation sur le site pilote. L'enceinte hermétique d'un volume de 290 L permet de contenir tous les instruments en même temps garantissant le protocole d'inter-comparaison voulu.	109
3.7	Représentations des valeurs enregistrées par les détecteurs radon au cours de l'expérience d'inter-comparaison par mesure de bruit de fond en radon de l'enceinte hermétique pour chaque paramètre mesurable.	109
3.8	Représentations des valeurs enregistrées par les détecteurs radon au cours de l'expérience d'inter-comparaison avec la source radium/radon ( <sup>226</sup> Ra/ <sup>222</sup> Rn) pour chaque paramètre mesurable. Tous les bruits de fond ont été soustraits de la mesure de radon.	110
3.9	Photographies représentant le pluviomètre à auget installé au pied du mât instrumenté et relié au PC d'acquisition du P2OA-CRA (a) et celui de la station InfoClimat (b). Le pluviomètre a une sensibilité à une pluie d'intensité minimale de 0,2 mm. En-dessous de ce seuil, l'épisode de pluie n'est pas détecté par le pluviomètre. Crédit : www.infoclimat.fr. (c) Schéma de principe du pluviomètre à augets.	112
3.10	Sonde TDR de type ThetaProbe® utilisée pour mesurer la teneur en eau volumique du sol du site pilote. <i>Source : Eijelkamp, SOil and Water.</i>	114
3.11	La première photographie présente le satellite SMAP lors de son assemblage sur la fusée Delta 2 (Source : NASA Kennedy). Le grand réflecteur est roulé pour le lancement (tube noir). La partie blanche est l'arrière du panneau solaire. La deuxième image est une vue d'artiste du satellite SMAP (Crédit : NASA).	117

---

4.1	Photographie de la topographie du Centre de Recherches Atmosphériques. La présence d'une tour instrumentée de 60 mètres est visible au centre de la photographie. Le Pic du Midi de Bigorre est situé en arrière plan. . . . .	123
4.2	(a) Mât météorologique de 60 mètres instrumenté à plusieurs niveaux avec des capteurs de pression atmosphérique, de température de l'air et des profileurs de vent. (b) Plateforme élévatrice accrochée à la tour. (c) À proximité immédiate de la tour, une cabane accueillant l'ensemble de l'architecture informatique d'acquisition nécessaire au fonctionnement des instruments est présente. Les câbles d'ancrage dans le sol sont facilement identifiables sur la photographie. . . . .	124
4.3	Localisations du site du Centre de Recherches Atmosphériques (P2OA-CRA) et du mât météorologique de 60 mètres. Le fond de carte utilisé est une ortho-photographie de résolution 1 mètre provenant de l'IGN (Géoportail). . . . .	126
4.4	Schémas représentant (a) la géomorphologie générale d'un cône de déjection et (b) du plateau de Lannemezan composé de longues digitations planes en éventails vers le Nord et l'Est. Des vallées encaissées (réseau hydrographique) segmentent ces digitations. . . . .	127
4.5	Contexte topographique à l'échelle du P2OA-CRA (a) et à proximité immédiate de la tour instrumentée (b). Les altitudes ont été extraites du Référentiel à Grande Échelle d'Altitude (RGE Alti®) avec une résolution d'1 mètre (IGN). . . . .	128
4.6	Contexte géologique général du cône de déjection caractérisant le plateau de Lannemezan bordé au Sud par les formations accidentées du relief Pyrénéen. Les digitations planes y sont clairement identifiables. Source : BRGM. . . . .	128
4.7	Coupe géologique des formations supérieures du plateau de Lannemezan. Les faciès <i>L</i> représentent les formations du Quaternaire, les faciès <i>P</i> constituent les formations Ponto-Pliocène et les faciès <i>m</i> les molasses du Secondaire [Patin, 1967]. . . . .	129
4.8	Schéma évolutif de la pédogénèse d'un sol. La nature de la roche-mère ainsi que les facteurs climatiques sont prépondérants dans la nature du sol formé. . . . .	131
4.9	Typologie et représentation schématique des sols et de ses horizons observés sur le site P2OA-CRA à proximité de la tour instrumentée représentée par un marqueur de couleur rouge. Le matériau parental à l'affleurement est caractérisé par une couleur jaune, les véracrisols profonds (60 à 100 cm) sont identifiés par une couleur verte et les véracrisols remaniés sont marqués par une couleur orange. Le chemin d'accès est représenté par une surface grise. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%. . . . .	132



4.10	Présentation des remaniements affectant principalement les véracrisols observées sur le site P2OA-CRA. La tour instrumentée est identifiée par un marqueur de couleur rouge. Les impacts anthropiques sont à l'origine des perturbations des sols naturellement en place. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%. . . . .	133
4.11	Occupation des sols et activités agricoles sur et autour du site P2OA-CRA d'après le registre parcellaire RPG de 2012 issu de la base de données européenne d'occupation biophysique des sol Corine Land Cover. Les prairies permanentes et temporaires dominant au sein du P2OA-CRA. Des activités agricoles comme la culture de céréales sont présentes à proximité du site sur des surfaces limitées. La tour instrumentée est représentée par un marqueur de couleur bleu. . . . .	134
4.12	Évolution des moyennes mensuelles sur la période 2015-2019 (a) de la pression atmosphérique (mbar), (b) de la température à 15 m (°C), des précipitations (c) et du cumul mensuel moyen des précipitations en mm. Les courbes rouges indiquent la tendance maximale observée, la courbe bleue la tendance minimale et la courbe orange, la moyenne mensuelle. (d) La carte du cumul annuel de précipitations sur la période 1976-2015 est tirée de <a href="http://www.meteopassion.com">www.meteopassion.com</a> . . . . .	136
4.13	(a) Rose des vents fréquentielle avec vitesse mesurée en $\text{m.s}^{-1}$ pour les données de la tour instrumentée à 45 mètres. Les vents continentaux d'Ouest (Espagne) et océaniques Nord-Nord-Ouest (Atlantique) sont dominants sur le P2OA-CRA. Les vents du Sud et du Sud-Est provenant des Pyrénées participent aux échanges plaines-montagnes qui font la particularité climatique de ce site. (b) Présentation schématique des cellules d'échange plaine-montagne avec notion de vents anabatique et catabatique. . . . .	137
4.14	Instrumentation mise en place sur le site du P2OA-CRA que ce soit sur la tour instrumentée de 60 mètres ou à sa base. Le spectromètre NaI(Tl) (jaune) est fixé à une hauteur de 50 mètres alors que les moniteurs de radon-222 atmosphérique (rouge) sont accrochés à la structure aux hauteurs 1, 30 et 60 mètres. Le réseau de sondes de suivi de l'humidité dans le sol (gris) est connecté à une centrale d'acquisition (violet). Des détecteurs de radon-222 dans le sol sont également installés à trois profondeurs : 30, 60 et 90 cm (bleu). Les profileurs de vent (marron) et le pluviomètre (noir) font partie des instruments déjà installés sur le site. Tous les instruments sont reliés au PC d'acquisition situé dans la cabane et peuvent être commandés à distance depuis l'IRAP de Toulouse. Échelles non respectées. . . . .	139
4.15	(a) Structure d'accroche du détecteur avec une ossature de forme parallélépipédique ouverte sur toutes les faces. Le détecteur est fixé sur cette structure. (b) Couvercle de protection du détecteur en aluminium d'épaisseur 2 mm. (c) Installation de chaînes en acier pour stabiliser le détecteur. . . . .	140

4.16	Évolution du taux de comptage, d'une source externe de $^{40}\text{K}$ , normalisé au maximum de chaque cristal et de la température de l'air en fonction du temps. Avec une amplitude de variation de $8,3^\circ\text{C}$ pour la température de l'air, le taux de comptage normalisé est constant au cours de cette période de mesure pour chaque cristal. L'amplitude de variation de température de chaque cristal est de $12^\circ\text{C}$ . . . . .	143
4.17	Coffret de protection des AlphaGUARD® pour l'installation sur la tour instrumentée à 1, 30 et 60 mètres. . . . .	145
4.18	Photographie représentant les instruments déployés sur le site du P2OA-CRA dans le cadre de ces travaux. Le boîtier AlphaGUARD® est dupliqué aux hauteurs 30 m et 60 m. . . . .	146
4.19	Photographie représentant l'ajout du moniteur AlphaGUARD® nouvelle génération accompagné du détecteur des descendants du radon, AlphaPM, sur le mât instrumenté à une hauteur de 1,50 mètres. . . .	148
4.20	Orthophotographie du site P2OA-CRA de résolution 50 cm. La tour instrumentée est marquée par un cadre rouge. Les cercles représentent les zones de mesure de la densité apparente du sol. Les cercles jaunes ont une gamme de valeur similaires y compris sur la mesure de répétabilité (environ $1,20 \text{ g.cm}^{-3}$ ). Le cercle bleu montre une densité apparente supérieure ( $1,50 \text{ g.cm}^{-3}$ ). Crédit : Solène Derrien. . . . .	150
4.21	Installation des sondes TDR ThetaProbe sur le site P2OA-CRA. Un total de 9 sondes est déployé pour permettre le suivi de la teneur en eau volumique. 3 sondes intègrent une mesure pour la couche superficielle (0-6 cm). 5 sondes sont utilisées pour mesurer l'évolution du profil de l'humidité du sol. . . . .	152
5.1	Carte interpolée (Kartotrak®) du comptage total en $\text{c.s}^{-1}$ pour la gamme d'énergie 60 - 1500 keV avec le système pédestre de suivi des rayonnements $\gamma$ CREMP®. Le site montre des variations spatiales autour du mât comprises entre 60 et $160 \text{ c.s}^{-1}$ . Les taux de comptage les plus élevés se situent au niveau des limons argileux, qui est le matériau parental des sols alentours. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal à hauteur de 95%. . . . .	159
5.2	Grille générale de mesure centrée sur la tour instrumentée (triangle blanc) servant de points de repères géographiques pour les mesures in situ effectuées avec un spectromètre de type BGO. La grille est représentée par un carré de côté 140 mètres et l'espacement entre chaque ligne est de 10 mètres. 4 sous-ensembles sont identifiées sur une carte globale du site (a) et sur une carte des typologies de sols observés sur le site autour du mât (b). . . . .	161
5.3	Spectres BGO acquis sur l'ensemble des points de mesure de 2 lignes de la grille générale. (a) Le premier graphique montre une excellente superposition des photopics d'absorption totale des spectres sur les fenêtres de canaux souhaitées. (b) Le second graphique présente un spectre en décalage pour le point de mesure 2H6. . . . .	162

5.4	Cartographies des concentrations en équivalent $^{232}\text{Th}$ en ppm (a), $^{238}\text{U}$ en ppm (b) et $^{40}\text{K}$ en % (c) réalisées à partir des mesures BGO sur l'emprise spatiale de la grille de mesure centrée autour du mât, réalisées sur QGIS 2.18. . . . .	164
5.5	Représentation cartographique de la localisation des échantillons de sols réalisés au niveau de certains points de mesure répertoriés en spectrométrie $\gamma$ in situ au contact du sol par détecteur BGO. La couleur correspond au nombre d'échantillons prélevés. . . . .	167
5.6	Le LAFARA est rattaché à la plateforme d'analyses environnementales PANGEE de l'Observatoire Midi Pyrénées (Université Toulouse III Paul Sabatier) et est labellisé comme plateforme par la Région Occitanie. Le LAFARA fait partie du réseau européen de laboratoires souterrains CELLAR (Collaboration of European Low-Level Underground Laboratories). Source : <a href="http://www.lafara.obs-mip.fr">www.lafara.obs-mip.fr</a> . . . . .	170
5.7	Courbes de tendance de l'activité en radon-222 mesurée par le détecteur de type AlphaGUARD® EF1456 dans le cadre du protocole initial proposé par le LAFARA (a) et pour le protocole ayant été validé comme celui étant le plus hermétique aux fuites de radon-222 (b). . . . .	172
5.8	Protocole de conditionnement développé avec le LAFARA . . . . .	174
5.9	(a) Activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) des trois descendants du $^{232}\text{Th}$ mesurés dans les échantillons de sols du site P2OA-CRA. Les graphiques (b), (c) et (d) montrent les relations entre le $^{228}\text{Th}$ , le $^{228}\text{Ra}$ et le $^{208}\text{Tl}$ ainsi que les droites de pente 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants représentés. . . . .	175
5.10	(a) Activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) de quatre descendants du $^{238}\text{U}$ mesurés dans les échantillons de sols du site P2OA-CRA. Le graphique (b) montre la relation entre le $^{214}\text{Bi}$ et le $^{226}\text{Ra}$ ainsi que la droites de pente 1 :1 caractérisant l'équilibre séculaire entre les deux descendants représentés sur ce graphique. Les échantillons se retrouvent positionnés à proximité immédiate de cette droite de pente 1 :1 validant l'absence de fuite de $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	177
5.11	Cartographies des activités massiques en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ (a) du $^{232}\text{Th}$ , (c) du $^{238}\text{U}$ et de (e) $^{40}\text{K}$ pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). Une représentation statistique par boîte à moustache pour l'ensemble des échantillons est proposée pour chaque radionucléide (b) $^{232}\text{Th}$ , (d) $^{238}\text{U}$ et (f) $^{40}\text{K}$ en fonction de la typologie des sols rencontrés sur le site P2OA-CRA de Lannemezan. . . . .	179
5.12	(a) Cartographie de la distribution spatiale des activités massiques en $\text{Bq.kg}^{-1} \text{ sec}$ $^{137}\text{Cs}$ pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). (b) Une représentation statistique par boîte à moustaches pour l'ensemble des échantillons est proposée en fonction de la typologie des sols. . . . .	181
5.13	(a) Distribution de l'activité massique de $^{137}\text{Cs}$ avec la profondeur sur un profil de sol effectué au sein du véracrisol profond. (b) Concentrations résiduelles (en Mai 1986) de $^{137}\text{Cs}$ provenant des essais atmosphériques d'armes nucléaires. Le site P2OA-CRA est localisé par l'intermédiaire d'un marqueur de couleur bleu. . . . .	182

5.14	(a) Comparaison entre les concentrations en $^{232}\text{Th}$ mesurées par fluorescence X en fonction de celle déterminées par spectrométrie $\gamma$ . (b) Comparaison entre les concentrations en $^{40}\text{K}$ mesurées par fluorescence X en fonction de celle déterminées par spectrométrie $\gamma$ . . . . .	186
5.15	(a) Cartographie de la distribution spatiale de l'émanation en $^{222}\text{Rn}$ en %, sur sol sec, pour les 46 échantillons de la couche superficielle (0 - 10 cm). (b) Une représentation statistique par boîte à moustaches pour l'ensemble des échantillons est proposée en fonction de la typologie des sols. . . . .	187
5.16	Protocole de mesure des flux de $^{222}\text{Rn}$ à l'interface sol-atmosphère. . . . .	189
5.17	Flux de $^{222}\text{Rn}$ , exprimé en $\text{atome.m}^2.\text{s}^{-1}$ en fonction de l'humidité du sol (% vol.). Une fonction d'ajustement est proposée en lignes pointillées. . . . .	190
6.1	Chronique temporelle du taux de comptage total exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ pour la fenêtre d'énergie 40 - 2810 keV sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour la composante Down du détecteur. La chronique est réalisée à partir des spectres moyennés sur une base horaire. La ligne pointillée représente le taux de comptage moyen, $4040 \text{ c.s}^{-1}$ . Le taux de comptage varie entre 3550 et $6500 \text{ c.s}^{-1}$ . . . . .	199
6.2	Chroniques temporelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du $^{40}\text{K}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (e) de l'intensité des précipitations (mm) et de l'humidité du sol <i>in situ</i> et par satellite (% vol.). (e) La courbe turquoise est associée à l'humidité du sol en surface et celle en vert-de-gris aux données satellites. La rectangle rouge représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants à l'inverse de l'humidité du sol. Au niveau du rectangle bleu, les taux de comptage sont les moins élevés à l'inverse des valeurs d'humidité du sol. . . . .	202
6.3	Chroniques des moyennes mensuelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du $^{40}\text{K}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (e) de l'intensité des précipitations (mm). L'humidité du sol <i>in situ</i> et par satellite (% vol.) est retrouvée sur chaque chronique. Le rectangle rouge représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants à l'inverse de l'humidité du sol. Au niveau du rectangle bleu, les taux de comptage sont les moins élevés à l'inverse des valeurs d'humidité du sol. . . . .	205
6.4	Chroniques temporelles centrées sur la période du 10 au 19 Juillet 2019 en l'absence d'événements de pluie pour le taux de comptage total (a), taux de comptage du $^{40}\text{K}$ (b), taux de comptage du $^{238}\text{U}$ (c) et taux de comptage du $^{232}\text{Th}$ (d), exprimés en $\text{c.s}^{-1}$ . Un lissage sur 12 heures a été réalisé pour limiter les fluctuations statistiques (courbes de couleur foncée). Dans chaque graphique, la courbe d'humidité du sol <i>in situ</i> exprimée en % vol. sur la même période est présentée. . . . .	208

6.5	Évolution diurne sur une base composite des 10152 acquisitions horaires des taux de comptage total (a), $^{40}\text{K}$ (c), $^{238}\text{U}$ (e), $^{232}\text{Th}$ (g) et de l'humidité du sol <i>in situ</i> (i). Le cycle diurne sur une base composite des mois d'été (Juillet, Août et Septembre) et d'hiver (Décembre, Janvier, Février) est proposé pour le taux du comptage total (b), $^{40}\text{K}$ (d), $^{238}\text{U}$ (f), $^{232}\text{Th}$ (h) et de l'humidité du sol <i>in situ</i> (j). . . . .	210
6.6	(a) Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage total et ceux du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et de l'humidité du sol <i>in situ</i> . (b) Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et de l'humidité du sol <i>in situ</i> . Les données associées aux événements de pluie sont conservées. . . . .	211
6.7	Évolution du taux de comptage du $^{40}\text{K}$ (a) et du $^{232}\text{Th}$ (b) ( $\text{c.s}^{-1}$ ) et de l'humidité du sol <i>in situ</i> (% vol.) du jour composite en fonction de l'heure. Les courbes rouge et verte interpolées (a) et (b) représentent l'évolution attendue du taux de comptage due à l'augmentation de l'humidité associée (a). Le rectangle noir indique le créneau horaire où l'influence de l'humidité ne semble plus être dominante sur le signal $\gamma$ . . . . .	212
6.8	Évolution du taux de comptage en fonction de l'humidité du sol <i>in situ</i> du $^{40}\text{K}$ (a-b), du $^{238}\text{U}$ (c-d) et du $^{232}\text{Th}$ (e-f) d'après le jeu de données total (sur une base horaire) et d'après le jeu de données filtrées des données de pluie (sur une base horaire) respectivement. Les zones encadrées et encerclées sont directement reliées à l'influence des précipitations. . . . .	214
6.9	Évolution du taux de fluence en fonction de la teneur en eau volumique dans le sol en partant d'un sol humide (40 % vol.) en absence (a) et en présence de flaques d'eau en surface (b), un sol humide (25 % vol.) (c). Les flèches jaunes décrivent la densité du flux de photons $\gamma$ qui atteint l'atmosphère. . . . .	215
6.10	Taux de comptage exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ pour le $^{40}\text{K}$ (a), $^{238}\text{U}$ (b), le $^{232}\text{Th}$ (c), et le $^{137}\text{Cs}$ (d) en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.) <i>in situ</i> sur une base de données horaires. Sur chaque graphique, la ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'intervalle de confiance. Les paramètres et les incertitudes associés à $1\sigma$ ainsi que les coefficients de détermination $R^2$ pour chaque courbe d'ajustement sont présentés. Les données sont filtrées des événements des précipitations. . . . .	220
6.11	Évolution du taux de comptage du $^{40}\text{K}$ en fonction de l'humidité du sol <i>in situ</i> . La courbe théorique d'ajustement pour ce radionucléide est également représentée. Les paramètres et incertitudes associés sont affichés. L'équation 6.11 est appliquée pour une humidité de sol nulle et une humidité de sol de 35 %. . . . .	225
6.12	Évolution temporelle des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ (a) et du $^{232}\text{Th}$ (b) avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0)) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique. . . . .	226



6.13	Représentation schématique de la construction géométrique utilisée dans le cadre des simulations des taux de comptage à partir d'une source volumique homogène (a). Les graphiques (b) et (c) montrent le cheminement de quelques photons $\gamma$ dans le sol et l'atmosphère lorsque le sol est sec ou humide. . . . .	229
6.14	Géométrie source-détecteur pour un modèle à deux couches air-surface terrestre. . . . .	231
6.15	Coefficients de conversion des taux de comptage mesurés à une altitude $h$ (m) en activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) du $^{40}\text{K}$ et du $^{232}\text{Th}$ en fonction de l'altitude. . . . .	233
6.16	Représentation des résultats de simulation Geant-4 du taux de comptage ( $\text{c.s}^{-1}$ ) en fonction de quatre valeurs d'humidité (% vol.) ainsi que la relation établie entre taux de comptage mesurés et humidité du sol <i>in situ</i> accompagnée de la courbe théorique d'ajustement pour le $^{40}\text{K}$ (a) et pour le $^{232}\text{Th}$ (b). Les lignes en pointillés représentent l'intervalle de confiance de l'ajustement théorique. . . . .	235
6.17	(a) Chronique mensuelle de l'humidité du sol mesurée <i>in situ</i> et par télédétection satellitaire (% vol.) sur la période Avril 2019 - Juin 2020. Pour les précipitations, le cumul mensuel exprimé en mm est proposée. Évolution temporelle, sur une base mensuelle, de la différence moyenne exprimée en $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ (b), de la déviation à l'écart-type (RMSD) (c), des coefficients de corrélation entre les mesures d'humidité du sol <i>in situ</i> et par satellite (d) et de l'erreur quadratique moyenne non biaisée (ubRMSE) (e) sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Le rectangle orange caractérise les mois de la chronique où les écarts entre valeurs d'humidité du sol <i>in situ</i> et par satellite sont les plus importants. . . . .	238
6.18	(a) Humidité du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol <i>in situ</i> . (b) Température du sol mesurée par satellite en fonction de la température de l'air mesurée sur la tour instrumentée à une hauteur de 15 m. (c) Température du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol <i>in situ</i> . (d) Température du sol mesurée par satellite en fonction de l'humidité du sol mesurée par satellite. Les graphiques ont été réalisés à partir des données cumulées journalières pour respecter la temporalité d'acquisition des données satellites. Des fonctions d'ajustement linéaire sont représentées par des droites en pointillés. . . . .	240
6.19	Taux de comptage exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ pour le $^{40}\text{K}$ (a), $^{238}\text{U}$ (b), le $^{232}\text{Th}$ (c), et le $^{137}\text{Cs}$ (d) en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.) issue de la télédétection satellitaire sur une base de données journalières. Sur chaque graphique, la ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'intervalle de confiance de l'ajustement théorique. Les paramètres et les incertitudes associés à $1\sigma$ ainsi que les coefficients de détermination $R^2$ pour chaque courbe d'ajustement sont présentés. . . . .	243

---

6.20	Évolution temporelle des comptages du $^{40}\text{K}$ (a) et du $^{232}\text{Th}$ (b) avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0), <i>in situ</i> et Sat-Comptage (0), satellite) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique. . . . .	245
6.21	Présentation de la distribution de la teneur en eau (W) en fonction de la profondeur. (a) Profil de sol homogène pour la teneur en eau. Elle est uniforme sur toute la profondeur de sol investiguée par la spectrométrie $\gamma$ . (b) La couche de surface a une teneur en eau supérieure à celle de l'horizon sous-jacent. (c) La couche de surface présente une teneur en eau inférieure à celle de l'horizon sous-jacent. La réponse attendue sur les taux de comptage (N) est également indiquée. . . . .	247
6.22	Chronique temporelle des précipitations associée aux teneurs en eau volumique mesurée dans la couche de surface du sol (0 - 5 cm) sur une base horaire pour la période comprise entre Avril 2019 et Juin 2020. La chronique temporelle de l'humidité du sol (% vol.) pour la couche profonde de sol, entre 0 et 40 cm, est également présentée sur une base de données horaire pour une période plus réduite, entre Avril 2019 et Février 2020. . . . .	248
6.23	Méthodologie de reconstruction spectrale du photopic associé à un photon $\gamma$ émis par le $^{232}\text{Th}$ ( $^{208}\text{Tl}$ ) à une énergie de 583 keV. Le centroïde correspond au maximum de taux de comptage centré sur l'énergie caractéristique. La FWHM détermine la largeur à mi-hauteur de la raie associée à la résolution d'énergie. . . . .	250
6.24	Taux de comptage ( $\text{c.s}^{-1}$ ) pour les photopics à 583 et 2615 keV en fonction de l'humidité du sol (% vol.) de chaque profondeur de couche. Les courbes théoriques d'ajustement issues de la résolution de l'équation 6.11 sont également présentées pour chaque raie d'énergie. Les coefficients d'atténuation massique dans l'eau et le sol (100 % $\text{SiO}_2$ ) sont ceux issus des standards NIST aux énergies correspondantes. La masse volumique apparente de la couche de surface est toujours de $1204 \pm 53 \text{ kg.m}^{-3}$ et celle utilisée pour la couche profonde, $1350 \pm 59 \text{ kg.m}^{-3}$ . . . . .	251
6.25	Rapport des taux de comptage calculés dans les fenêtres d'énergie à 583 et 2615 keV en fonction du rapport des teneurs en eau volumique dans la couche de surface (0 - 10 cm) et celle en profondeur (0 - 40 cm) dans un sol homogène. . . . .	253
7.1	Chronique temporelle de la pression atmosphérique, exprimée en mbar, pour la période Avril 2019 - Juin 2020. La droite en pointillés représente la valeur moyenne annuelle. . . . .	258
7.2	Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et la pression atmosphérique. . . . .	259
7.3	Comparaison des cycles diurnes et semi-diurnes des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ , de l'humidité du sol et de la pression atmosphérique. Le cadre noir représente l'horaire où la pression influence le plus le signal $\gamma$ . . . . .	260

---

7.4	Procédure schématique de détermination des bruits de fond cosmiques dans les fenêtres d'énergie des radionucléides considérés à partir des spectres enregistrés par le spectromètre NaI(Tl) du site P2OA-CRA. . . . .	263
7.5	Chronique temporelle du taux de comptage cosmique, exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ pour la période Avril 2019 - Juin 2020. Le taux de comptage cosmique représenté est la somme des coups enregistrés dans la fenêtre de hautes énergies 2866 - 3066 keV. La droite en pointillés représente la valeur moyenne annuelle. . . . .	265
7.6	Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et des rayonnements cosmiques. . . . .	266
7.7	Taux de comptage cosmique en $\text{c.s}^{-1}$ dans la fenêtre d'énergie 2866 - 3066 keV en fonction de la pression atmosphérique en mbar. Une forte corrélation négative est observée avec un coefficient de détermination de 0,76. Un ajustement linéaire est représenté par la droite grise. Le triangle orange représente le point de coordonnées pression atmosphérique moyenne (947,8 mbar) et comptages cosmiques moyens ( $1,78 \pm 0,14 \text{ c.s}^{-1}$ ). . . . .	267
7.8	Chroniques temporelles du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , exprimés en $\text{c.s}^{-1}$ et des événements de précipitations, exprimés en intensité ( $\text{mm.h}^{-1}$ ) pour la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Les données utilisées sont les moyennes horaires. . . . .	268
7.9	Évènement de précipitation individuelle, daté du 20 Juin 2019, avec une rapide augmentation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ ( $^{214}\text{Bi}$ ) suivi d'une période de décroissance des descendants à vie courte du $^{222}\text{Rn}$ d'environ 3 heures. La ligne en pointillés représente la valeur moyenne du taux de comptage avant l'évènement de pluie. . . . .	269
7.10	Pourcentage d'augmentation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ en réponse à un évènement de précipitation unique en fonction de l'intensité de l'évènement en $\text{mm.h}^{-1}$ ( $R^2 = 0,95$ ). Le point orange correspond à l'évènement de pluie présenté sur la figure 7.9 en date du 20 Juin 2019. . . . .	270
7.11	Représentation schématique de l'environnement modélisé sous Geant-4 pour procéder à une simulation de la réponse du détecteur NaI(Tl) à une activité surfacique de $^{214}\text{Bi}$ , en $\text{Bq.m}^{-2}$ . . . . .	271
7.12	Variation journalière de la composition de la CLA convective. La ligne orange en pointillés démarque la couche de surface. A et B définissent les zones résiduelles, C est la couche de mélange et D l'atmosphère libre. . . . .	273
7.13	Chronique temporelle de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ moyenne telle qu'enregistrée par les trois détecteurs de radon-222 installés à 1, 30 et 60 mètres sur la tour instrumentée, pour la période Avril 2019 - Juin 2020, sur une base horaire. . . . .	275
7.14	Chronique temporelle des humidités du sol issues des mesures in situ et de la télédétection satellitaire exprimées en % volumique sur la période Avril 2019 - Juin 2020. La chronique in situ est réalisée à partir des mesures intégrées sur une base horaire et celle du satellite sur une base journalière. Les mesures varient entre 18 et 43 % vol. (in situ) et entre 16 et 38% (satellite). . . . .	276

---

7.15	(a) Rose des vents du radon-222 atmosphérique d'après les données d'activité volumique mesurées par les AlphaGUARD® et les mesures de direction des vents à une hauteur de 15 m réalisées sur le mât météorologique du site P2OA-CRA. (b) Carte de concentration en uranium dans les sols (0-5 cm), exprimée en ppm, d'après [European Commission. Joint Research Centre., 2019]. . . . .	277
7.16	Chroniques des moyennes mensuelles sur la période Avril 2019 - Juin 2020 du (a) comptage total ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (b) du taux de comptage du $^{40}\text{K}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (c) du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (d) du taux de comptage du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), (e) de l'humidité du sol in situ et par satellite (% vol.). Le radon-222 est représenté sur chaque chronique. La zone encadrée en vert représente la saison où les taux de comptage sont les plus importants tout comme l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ . Au niveau de la zone encadrée en jaune, les taux de comptage sont les moins élevés. . . . .	278
7.17	(a) Les deux dimensions de l'ACP permettent d'expliquer 74,4 % des variations. (b) L'ACP réalisée sur la base de données filtrées des événements de précipitation montrent deux dimensions qui expliquent 75,8 % des variations. . . . .	280
7.18	Chroniques temporelles centrées sur la période du 10 au 19 Juillet 2019 en l'absence d'événements de pluie pour le taux de comptage total (a), le taux de comptage du $^{40}\text{K}$ (b), le taux de comptage du $^{238}\text{U}$ (c) et du taux de comptage du $^{232}\text{Th}$ (d). Un lissage sur 12 heures a été opéré pour limiter les perturbations statistiques (courbes de couleur foncée). Dans chaque graphique, la courbe de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ sur la même période est présentée. . . . .	282
7.19	Évolution diurne sur une base composite des 10152 acquisitions horaires des taux de comptage total (a), $^{40}\text{K}$ (c), $^{238}\text{U}$ (e), $^{232}\text{Th}$ (g) et de l'activité du $^{222}\text{Rn}$ (i). Le cycle diurne sur une base composite des données filtrées des événements de précipitations est proposé pour le taux du comptage total (b), $^{40}\text{K}$ (d), $^{238}\text{U}$ (f), $^{232}\text{Th}$ (h) et de l'activité du $^{222}\text{Rn}$ (j). . . . .	284
7.20	Racine carrée de la densité spectrale de puissance en fonction de la période exprimée en heure pour le taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et l'activité volumique du $^{222}\text{Rn}$ . . . . .	285
7.21	Évolution sur la période 0h - 06h du 02 Mai 2019 (a) du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ en $\text{c.s}^{-1}$ , (b) de l'humidité du sol en % vol. et (c) de l'activité volumique du $^{222}\text{Rn}$ en $\text{Bq.m}^{-3}$ . Les courbes du $^{238}\text{U}$ et du $^{222}\text{Rn}$ sont très proches, alors que celle de l'humidité du sol est constante sur toute la durée de l'événement. . . . .	286
7.22	Augmentation des taux de comptage du $^{238}\text{U}$ dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV (a) et pour celle du photopic à 609 keV (b) en fonction de l'augmentation de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ mesurée par les AlphaGUARD®. Les composantes Down et Up présentent des corrélations linéaires positives entre ces deux variables. Les droites de corrélation permettent d'identifier l'augmentation du taux de comptage dont est responsable 1 $\text{Bq.m}^{-3}$ de $^{222}\text{Rn}$ . La composante <i>Down</i> se compose de 4 cristaux. . . . .	287

---

7.23	Augmentation des taux de comptage du $^{238}\text{U}$ dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV en fonction de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ pour les événements radon diurnes (08h - 20h) et nocturnes (20h - 08h).	288
7.24	Part du signal atmosphérique dans le signal $\gamma$ mesuré dans la fenêtre d'énergie du photopic du $^{238}\text{U}$ . La ligne pointillée représente la valeur moyenne d'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ sur le site P2OA-CRA. . . . .	289
7.25	Méthode de détermination du spectre radon pour l'événement radon du 02 Août 2019, entre 2h et 7h. (a) Profil de l'activité volumique du radon-222 ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ). (b) Profil de la teneur en eau volumique dans le sol sur la durée de l'événement. (c) Identification du point maximal du taux de comptage associé à celui du radon (losange rouge) et des points d'inflexion minimum avant et après l'événement (losange bleu). (d) Détermination du spectre de radon ( $\Delta$ ) entre le spectre maximum (losange rouge) et le spectre minimum moyen (losange gris) définie par la ligne en pointillés gris dans le cadre bleu. . . . .	291
7.26	Augmentation du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , dans la fenêtre d'énergie du photopic à 1764 keV, en fonction de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ . 14 couples de valeurs se retrouvent superposés sur la droite de corrélation. . . . .	292
7.27	(a) Spectre radon associé à une activité volumique de $1 \text{ Bq.m}^{-3}$ . De nombreuses raies d'énergies caractéristiques des descendants du radon-222 ( $^{214}\text{Pb}$ , $^{214}\text{Bi}$ ) sont identifiées. (b) Photopic dans la fenêtre du $^{238}\text{U}$ à 1764 keV et sa fenêtre d'intégration (rectangle gris clair). La somme des coups enregistrés est de $0,65 \text{ c.s}^{-1}$ . Spectre lissé sur une période de 300 secondes. . . . .	293
7.28	Application de la correction liée à la présence de radon atmosphérique dans la fenêtre d'intégration du $^{238}\text{U}$ sur 17 événements radon du mois de Mai 2019. La correction du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , au niveau du pic maximal de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ est matérialisée par un point rouge. . . . .	294
7.29	Composante Down et Up du détecteur RSX-5. . . . .	298
7.30	(a) Évolution de $\chi_{Atm}$ calculé en fonction de l'humidité du sol (% vol.). La droite en pointillés représente la valeur moyenne. (b) Boîte à moustaches représentant la distribution des valeurs de $\chi_{Atm}$ . . . . .	302
7.31	(a) Évolution de $\chi_{Sol}$ calculé en fonction de l'humidité du sol (% vol.). Une légère dépendance à l'humidité du sol est ajustée par une fonction de type exponentielle ( $R^2 = 0,86$ ). (b) Boîte à moustaches représentant la distribution des valeurs de $\chi_{Sol}$ . . . . .	304
7.32	(a) Protocole d'installation du spectromètre NaI(Tl) lors de la mesure de bruit de fond atmosphérique. L'isolement du compartiment atmosphérique est réalisé avec des briques de plomb (atténuation de 99,9% à 2614 keV pour 15 cm de plomb. (b) Système de protection aux avaries météorologiques et animales. . . . .	305
7.33	Taux de comptage net extraits de la fenêtre du $^{238}\text{U}$ en $\text{c.s}^{-1}$ en fonction de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ mesurée en $\text{Bq.m}^{-3}$ . La droite de régression linéaire est représentée par une ligne en pointillés. La pente de la droite de $0,20$ correspond à la valeur de $\eta_{Up}^{Atm}$ . . . . .	306



7.34	Taux de comptage net extraits de la fenêtre du $^{238}\text{U}$ en $\text{c.s}^{-1}$ en fonction de l'activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ mesurée par les AlphaGUARD® en $\text{Bq.m}^{-3}$ pour les 350 événements radon. La droite de régression linéaire est représentée par une ligne en pointillés. La pente de la droite de 0,19 correspond à la valeur de $\eta_{Up}^{Atm}$ . . . . .	307
7.35	Évolution temporelle des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ extraits par la méthode de la ligne de base sur la période de mesures du bruit de fond atmosphérique entre le 29 Mars 2019 et le 29 Avril 2019. La ligne en pointillés représente la valeur moyenne de $3,35 \text{ c.s}^{-1}$ . . . . .	308
7.36	(a) Chroniques temporelles des activités volumiques de $^{222}\text{Rn}$ mesurées et calculées à partir de l'équation 7.25, exprimées en $\text{Bq.m}^{-3}$ , sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020. Les lignes en pointillés représentent les valeurs moyennes. (b) Résidus calculés entre les activités volumiques de $^{222}\text{Rn}$ calculées (Rn-Gamma) et celles mesurées par les AlphaGUARD® (Rn-ALGU), exprimés en $\text{Bq.m}^{-3}$ . (c) Chroniques temporelles des résidus calculés et des précipitations sur la même période. . . . .	310
7.37	Chroniques temporelles des activités volumiques de $^{222}\text{Rn}$ mesurées et calculées ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ), sur la période d'Avril 2019 à Juin 2020, précipitations exclues. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des activités calculées et mesurées. . . . .	311
7.38	Dispersion statistique en boîte à moustaches pour les activités volumiques de $^{222}\text{Rn}$ calculées et mesurées sur le jeu de données total (a) et sur celui filtré des événements de précipitations (b). . . . .	311
7.39	Activités volumiques du $^{222}\text{Rn}$ calculées moyennées sur une base journalière ( $\text{Bq.m}^{-3}$ ) en fonction des activités volumiques du $^{222}\text{Rn}$ mesurées également moyennées sur une base journalière. Une relation linéaire se dessine entre ces deux activités avec un $R^2$ de 0,85. . . . .	312
7.40	Cycle diurne composite du $^{222}\text{Rn}$ mesuré par les AlphaGUARD® (Rn-ALGU) et calculé par spectrométrie $\gamma$ (Rn-Gamma) sur la période Avril 2019 - Juin 2020. . . . .	312
7.41	Chronique temporelle des taux de comptage du $^{238}\text{U}$ , exprimés en $\text{c.s}^{-1}$ après application de la correction du radon-222 atmosphérique comparée à celle du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ), radionucléide non perturbé par la présence de $^{222}\text{Rn}$ dans l'atmosphère. Les données liées aux événements de pluie ont été exclues. . . . .	315
7.42	Cycle diurne du taux de comptage du $^{238}\text{U}$ sans correction du $^{222}\text{Rn}$ atmosphérique ( $\text{c.s}^{-1}$ ) (a) et avec correction du $^{222}\text{Rn}$ atmosphérique ( $\text{c.s}^{-1}$ ) (b). (c) Cycles diurnes de la différence des taux de comptage du $^{238}\text{U}$ non corrigés et corrigés et de l'activité volumique du $^{222}\text{Rn}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ). (d) Cycle diurne de la teneur en eau volumique (% vol.) et cycle semi-diurne de la pression atmosphérique (mbar). Les cycles diurnes sont des composites des données filtrées des épisodes de pluie. Le rectangle noir identifie l'effet de la pression sur les taux de comptage du $^{238}\text{U}$ . . . . .	316

7.43	Taux de comptage du $^{238}\text{U}$ ( $\text{c.s}^{-1}$ ) avant (a) et après correction (b) de l'influence du $^{222}\text{Rn}$ atmosphérique en fonction de la teneur en eau volumique (% vol.). La ligne grise représente la courbe d'ajustement théorique calculée à partir de l'équation 6.11. Les lignes grises en pointillés déterminent l'espace de variation de l'ensemble des incertitudes prises en compte. Les paramètres et les incertitudes associés à $1\sigma$ ainsi que le coefficient de détermination $R^2$ sont présentés. Les données sont filtrées des épisodes pluvieux. . . . .	317
7.44	Évolution temporelle des taux de comptage du $^{238}\text{U}$ corrigés des effets du $^{222}\text{Rn}$ atmosphérique avant (Comptage (h)) et après (Comptage (0)) application du protocole de correction prenant en compte l'effet de la teneur en eau volumique du sol. . . . .	318
7.45	(a) Profils de l'activité massique en $^{210}\text{Pb}$ total et en $^{238}\text{U}$ ( $^{210}\text{Pb}$ supporté) établis entre la surface du sol et une profondeur de 50 cm, d'après l'ensemble des échantillons de sol analysés par le LAFARA. (b) Profil du $^{210}\text{Pb}$ non supporté, correspondant à la différence entre les activités massiques du $^{210}\text{Pb}$ total et du $^{210}\text{Pb}$ supporté. . . . .	320
7.46	Coefficients de conversion des taux de comptage, mesurés à une altitude $h$ (m), en activité massique ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{238}\text{U}$ en fonction de l'altitude de vol, en mètres. . . . .	321
8.1	Dispositif de mesure de spectrométrie $\gamma$ embarqué sur un hélicoptère de type Écureuil. Un spectromètre NaI(Tl), RSX-4, est utilisé dans le cadre du survol du site P2OA-CRA. Un spectromètre NaI(Tl), RSX-5, est installé sur la tour instrumentée à une altitude de 50 mètres. . . . .	330
8.2	Trajectoires de vol effectuées au cours des sessions du matin (11h - 12h15) et de l'après-midi (16h15 - 17h30) du 07 Septembre 2020, sur le site P2OA-CRA et ses alentours. . . . .	331
8.3	Protocole de correction, <i>PASTHEL</i> , mis en place sur un spectre brut acquis en spectrométrie $\gamma$ aéroportée à partir des travaux menés dans cette thèse. La prise en compte de l'influence de paramètres environnementaux permet d'isoler un spectre tellurique nettoyé des différents bruits de fond. . . . .	334
8.4	Principe d'une chandelle réalisée pendant une campagne de spectrométrie $\gamma$ aéroportée dans le but de déterminer les coefficients d'atténuation dans l'air des principaux radionucléides. Au niveau d'un point géographique fixe, l'hélicoptère d'abord au sol atteint progressivement une altitude de 300 mètres. . . . .	337
8.5	Taux de comptage en $\text{c.s}^{-1}$ en fonction de l'altitude en mètres du $^{40}\text{K}$ (a), du $^{238}\text{U}$ (c), du $^{232}\text{Th}$ (e) pour la chandelle réalisée à partir du système RSX-4 embarqué sur hélicoptère. Taux de comptage en $\text{c.s}^{-1}$ en fonction de l'altitude en mètres du $^{40}\text{K}$ (b), du $^{238}\text{U}$ (d), du $^{232}\text{Th}$ (f) pour la chandelle réalisée à partir du système RSX-5 installé sur le mât. . . . .	338

8.6	Cartographies du comptage total net ( $\text{c.s}^{-1}$ ) réalisées à partir des sessions du matin (11h - 12h15) et de l'après-midi (16h15 - 17h30) du 07 Septembre 2020, sur le site P2OA-CRA et ses alentours, avec le protocole de traitement standard d'Hélinuc®. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. . . . .	340
8.7	Cartographies de l'activité massique du $^{40}\text{K}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) du mât météorologique est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées. . . . .	341
8.8	Cartographies de l'activité massique du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées. . . . .	342
8.9	Cartographies de l'activité massique du $^{238}\text{U}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. Pour présenter la gamme de variation des activités massiques issues de chaque traitement, les échelles de valeurs ne sont pas harmonisées. . . . .	343
8.10	Cartographies de l'activité massique du $^{238}\text{U}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et de correction, PASTHEL, pour les sessions du matin et de l'après-midi du 07 Septembre 2020. Les légendes des gammes de variation des activités massiques ont été harmonisées. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. . . . .	345
8.11	Trajectoires de vol effectuées au cours de la session du matin (10h - 11h) du 08 Septembre 2020, à proximité du mât de 60 mètres du site P2OA-CRA. Le cercle blanc de rayon 200 m indique la zone d'influence contribuant au signal mesuré par le RSX-5 à hauteur de 95%. . . . .	348
8.12	Cartographies de l'activité massique du $^{40}\text{K}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. . . . .	349
8.13	Cartographies de l'activité massique du $^{232}\text{Th}$ ( $\text{Bq.kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. . . . .	350

8.14	Cartographies de l'activité massique du $^{238}\text{U}$ ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) réalisées à partir des protocoles de traitement Hélinuc® et de correction PASTHEL pour la session matinale du 08 Septembre 2020. L'emprise spatiale approximative du NaI(Tl) de la tour instrumentée est représentée par le cercle blanc. . . . .	351
8.15	Représentation simplifiée du protocole de correction des données de spectrométrie $\gamma$ aéroportée PASTHEL (Protocole d'Amélioration du Système de Traitement d'HELinuc), mis en place dans cette thèse, pour prendre en compte les effets environnementaux (teneur en eau volumique, activité volumique de $^{222}\text{Rn}$ et ses descendants) sur le signal mesuré . . . . .	354
8.16	Représentation simplifiée des différentes thématiques abordées dans cette thèse et qui ont débouchées sur un protocole de correction des données de spectrométrie $\gamma$ aéroportée permettant de prendre en compte les effets environnementaux. . . . .	360
8.17	Synthèse des objectifs techniques et scientifiques établis en début de thèse et des réponses apportées qui ont débouché sur la mise en place de corrections regroupées au sein du protocole PASTHEL. . . . .	361
A.1	Exemple de désintégration de type $\alpha$ où un noyau père ( $^{226}_{88}\text{Ra}$ ) se transforme en noyau fils ( $^{222}_{86}\text{Rn}$ ) en émettant un noyau $^4_2\text{He}$ . Les cercles de couleur orange représentent les protons et les cercles de couleur violet, les neutrons. . . . .	XLVII
A.2	Exemple de désintégration de type $\beta^-$ où un noyau père ( $^{214}_{82}\text{Pb}$ ) se transforme en noyau fils ( $^{214}_{83}\text{Bi}$ ) en émettant un électron et son antiparticule, l'antineutrino. Les cercles orange représentent les protons et les cercles violets, les neutrons. L'électron est défini par le cercle de couleur vert. . . . .	XLVIII
B.1	Absorption d'un photon $\gamma$ par effet photoélectrique. Cette interaction s'opère en deux temps avec l'arrachement d'un électron lié d'un atome et le réarrangement du cortège électronique. . . . .	LI
B.2	La diffusion Compton décrit la mise en mouvement d'un électron atomique par collision avec un photon $\gamma$ . La perte d'énergie incidente n'étant pas totale, le photon est diffusé suivant un angle de diffusion $\theta$ . . . . .	LII
B.3	La création d'une paire de particules, électron-positon, résulte de l'interaction entre le photon $\gamma$ et l'électron. Cette interaction ne peut être considéré que lorsque l'énergie incidente du photon $\gamma$ dépasse une valeur seuil de 1,022 MeV. . . . .	LIII
E.1	Architecture d'un code de simulation dans Geant4. Dans ce diagramme, chaque bloc correspond à une classe. Le nom générique de la classe est donné en gras et le nom affilié par l'utilisateur est laissé en italique. Les 4 classes en gris sont obligatoires pour permettre une simulation viable, les autres sont optionnelles. . . . .	LXII

F.1 Courbe de tendance de l'activité en radon-222 mesurée par le détecteur EF2082. Le taux de fuite de l'enceinte peut être déterminée au regard de la constante de décroissance radioactive du radon-222 calculée. . . . . LXVI

G.1 Le spectre électromagnétique et l'ensemble des fenêtres spectrales qui le compose ainsi que leurs bornes déterminées par la longueur d'onde. LXVIII

G.2 Sensibilités des longueurs d'onde aux différents paramètres : humidité du sol, végétation, rugosité du sol, vapeur d'eau et eau liquide [Gruhier, 2010]. . . . . LXIX

H.1 Teneur en eau volumique calculée à partir des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) mesurés par la spectrométrie  $\gamma$ , avec une calibration ponctuelle de la teneur en eau gravimétrique, en fonction de l'humidité du sol *in situ* suivi par les sondes TDR sur la couche de surface de sol comprise entre 0 et 5 cm. . . . . LXXVIII



# Liste des tableaux

1.1	Origines et type d'émissions des principaux radionucléides artificiels présents dans l'environnement français. . . . .	15
1.2	Paramètres standards de vol et d'acquisition utilisés dans une campagne de spectrométrie gamma aéroportée. . . . .	23
1.3	Tableau récapitulatif des activités du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{137}\text{Cs}$ calculées, à partir des mesures opérées en spectrométrie $\gamma$ aéroportée, sur les périodes de vol de 2009, 2010, 2011. Le taux de comptage total pour ces trois périodes est également indiqué. . . . .	28
2.1	Fenêtres énergétiques exprimées en keV [IAEA, 1991] caractéristiques des radionucléides des trois familles naturelles et de deux radionucléides artificiels. Le comptage total sur la gamme d'énergie 40 - 2810 keV est aussi spécifié. . . . .	50
2.2	Raies caractéristiques de plusieurs radionucléides pouvant être exploitées par l'intermédiaire de la méthode de la ligne de base. . . . .	55
2.3	Valeurs moyennes, en $\text{c.s}^{-1}$ calculées à partir des comptages de chaque fenêtre énergétique pour les deux mesures de bruit de fond "RSX5" (haut de tableau) et "RSX5a" (bas de tableau). Le "Cristal-5" définit la composante $U_p$ . . . . .	60
2.4	Fonctions d'ajustement pour la calibration en énergie avec leur coefficient de détermination ajusté pour le NaI(Tl). . . . .	63
2.5	Résolution en énergie exprimée en keV et en % de raies d'émission caractéristiques de radionucléides utilisés pour la calibration en énergie du NaI(Tl). Les résultats sont donnés pour les composantes <i>Down</i> et <i>Up</i> de l'instrument. . . . .	65
2.6	Coefficients de détermination ajustés calculés pour plusieurs fonctions FWHM en fonction de l'énergie consultées dans la littérature pour les composantes <i>Down</i> et <i>Up</i> de l'instrument sur les données de calibration. Détecteur : NaI pour Iodure de Sodium, Ge pour Germanium, LaBr <sub>3</sub> pour Bromure de Lanthane et LaCl <sub>3</sub> pour Chlorure de Lanthane. . . . .	66
2.7	Activité au temps de mesure et période des sources radioactives utilisées dans le cadre de la calibration instrumentale. 14 sources ont été employées pour assurer une calibration sur tout le domaine spectral d'émission des photons $\gamma$ . . . . .	70
2.8	Énergies caractéristiques et probabilité d'émission des photons $\gamma$ des sources de radioisotopes utilisées pour la calibration. La totalité du spectre est couverte en énergie (59 à 2615 KeV). . . . .	71

2.9	Nombre de mesures et temps d'acquisition pour les sources radioactives utilisées dans le cadre de la calibration en efficacité de détection.	72
2.10	Description de la géométrie du détecteur NaI(Tl) telle que fournie par le constructeur et dimensions du local dans lequel a été réalisée la calibration expérimentale en efficacité de détection.	82
2.11	Statistiques réalisées sur les résidus des efficacités de détection calibrées et simulées pour la composante <i>Down</i> du détecteur.	92
2.12	Résultats de l'ajustement des efficacités de détection expérimentales et simulées (%) en fonction de l'énergie exprimée en MeV. Les coefficients de détermination ajustés permettent de signaler la fonction la plus pertinente à utiliser pour cette calibration. Détecteur : NaI pour Iodure de Sodium, Ge pour Germanium.	94
3.1	Caractéristiques des isotopes du radon.	103
3.2	Activité, écart-type ( $\sigma$ ) et incertitude ( $\Delta$ ) moyens mesurés et calculés de chaque instrument lors des trois mesures de bruit de fond.	107
3.3	Activité en radon mesurée par les détecteurs lors des deux expérimentations menées avec présence de la source de radium dans l'enceinte hermétique. Le résidu est exprimé entre l'activité en radon mesurée et celle déterminée préalablement pour la source radioactive de radium. Tous les bruits de fond des dispositifs ont été soustraits aux mesures. Le facteur d'émanation de la source est de 0,89 pour une température de 21°C.	111
4.1	Faciès comparés de la formation supérieure de Lannemezan.	130
5.1	Tableau bilan des activités massiques moyennes et médianes mesurées pour le $^{232}\text{Th}$ , le $^{238}\text{U}$ , le $^{40}\text{K}$ et le $^{137}\text{Cs}$ sur le site P2OA-CRA.	184
5.2	Composition chimique moyenne des cinq typologies de sol caractéristiques sur le site P2OA-CRA exprimée en pourcentage d'oxydes pour l'ensemble des échantillons.	185
5.3	Flux d'exhalaison de radon mesurés sur le site P2OA-CRA sur la période Avril 2019 - Octobre 2020. Les humidités du sol (horizon 0 - 5 cm de profondeur) et les activités volumiques de $^{222}\text{Rn}$ atmosphérique sont présentées.	189
6.1	Coefficients d'atténuation massique exprimés en $\text{cm}^2.\text{g}^{-1}$ pour un sol sec composé à 100 % de silice ( $\text{SiO}_2$ ), un sol sec de même composition chimique que ceux du site P2OA-CRA, l'eau (100 % $\text{H}_2\text{O}$ ) et de l'air (mélange de 79 % d'azote, $\text{N}_2$ et de 21 % d'oxygène, $\text{O}_2$ ). Les coefficients pour chaque radionucléide sont issus des tables du National Institute of Standards and Technology (NIST).	197
6.2	Fenêtres spectrales en énergie utilisées pour mesurer K, U et Th telles que recommandées par la méthode des fenêtres (Chapitre 2) de l'AIEA [IAEA, 1991].	200
6.3	Gamme de variation des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du comptage total sur la période Avril 2019 - Juin 2020.	203

6.4	Moyennes globales, estivales et hivernales sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour les taux de comptage total, de $^{40}\text{K}$ , de $^{238}\text{U}$ et de $^{232}\text{Th}$ ainsi que des humidités du sol <i>in situ</i> et par télédétection satellitaire. Le taux de comptage total et du $^{238}\text{U}$ excluent les données de pluie pour éviter un biais statistique. . . . .	204
6.5	Tableau de corrélation pour les comptages total (Comp.Tot), du $^{40}\text{K}$ , de $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ , des précipitations (Précip), et des humidités du sol <i>in situ</i> et par satellite (Hum.sat). L'ensemble des données horaires a été utilisé dans le cadre de cette étude sur la corrélation des paramètres étudiés. . . . .	206
6.6	Gamme de variation des taux de comptage du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ , du $^{232}\text{Th}$ et de l'humidité du sol <i>in situ</i> sur la période Avril 2019 - Juin 2020 pour les données filtrées des épisodes pluvieux. . . . .	216
6.7	Ce tableau regroupe le paramètre $b$ ( $\text{m}^{-1}$ ) issu des ajustements des courbes théoriques associées à chaque radionucléide, les coefficients d'atténuations massiques dans le sol P2OA-CRA ( $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$ ), la masse volumique apparente du sol calculée ( $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ ) et la différence en absolu entre la masse volumique apparente mesurée et celle calculée pour chaque radionucléide. . . . .	222
6.8	Taux de comptage pour un sol sec $N_{sec}$ exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ calculé à partir des paramètres $a$ et $b$ ajustés par les courbes théoriques de chaque radionucléide. Les incertitudes pour chaque paramètre sont également présentés. . . . .	224
6.9	Taux de comptage pour un sol sec de masse volumique apparente $1200 \text{ kg}.\text{m}^{-3}$ déterminé à partir des simulations Geant-4 ( $N_{sec}$ -SimG4) et par ajustement d'une courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol ( $N_{sec}$ -Ajusté), exprimés en $\text{c.s}^{-1}$ . La différence, en pourcentage, entre les deux taux de comptage définis pour chaque radionucléide est donnée. . . . .	230
6.10	Coefficients de conversion entre taux de comptage et activité massique pour une altitude de 50m, issus des simulations Geant-4, et une altitude nulle, 0m. Les coefficients d'atténuation dans l'air du $^{40}\text{K}$ et du $^{232}\text{Th}$ et les exponentielles intégrales de second ordre associées à une altitude de 50m sont présentés. . . . .	232
6.11	Masse volumique apparente du sol (MVA), exprimée en $\text{kg}.\text{m}^{-3}$ appliquée pour simuler l'influence dans l'espace poral de plusieurs teneurs en eau volumique. Ces valeurs sont ensuite utilisées au sein des simulations Geant-4. . . . .	234
6.12	Coefficients de détermination $R^2$ et coefficients de corrélation $r$ exprimés pour la relation établie par mesure entre le taux de comptage d'un radionucléide et l'humidité du sol et la courbe d'ajustement théorique. Les humidités du sol <i>in situ</i> et par télédétection satellitaire ont été utilisées et sont les seuls paramètres variables pouvant expliquer les variations observées. . . . .	244

6.13	Masse volumique apparente du sol sec calculée à partir des paramètres $b$ des ajustements de courbes théoriques réalisées avec les mesures d'humidité du sol <i>in situ</i> et par télédétection satellitaire, exprimée en $\text{kg.m}^{-3}$ . Le taux de comptage de chaque radionucléide associé à un sol sec est également déterminé pour ces deux ajustements théoriques, <i>in situ</i> et télédétection satellitaire, exprimé en $\text{c.s}^{-1}$ . . . . .	244
7.1	Bruits de fond induits par le rayonnement cosmique dans les fenêtres d'énergie du $^{137}\text{Cs}$ , du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ et du $^{232}\text{Th}$ . Ces valeurs sont soustraites des spectres bruts tout comme les bruits de fond instrumentaux du spectromètre. . . . .	264
7.2	Principales caractéristiques recensées pour les événements sans radon et avec radon pour l'exemple de calcul de $\chi_{Atm}$ à partir de l'équation 7.10. . . . .	302
7.3	Taux de comptage du $^{238}\text{U}$ pour un sol sec de masse volumique apparente $1200 \text{ kg.m}^{-3}$ et pour une activité massique homogène de $38,90 \text{ Bq.kg}^{-1}$ déterminé à partir des simulations Geant-4 ( $N_{sec}\text{-SimG4}$ ) et par ajustement d'une courbe théorique entre taux de comptage et humidité du sol ( $N_{sec}\text{-Ajusté}$ ). La différence entre les deux taux de comptage pour chaque radionucléide est proposée. . . . .	319
7.4	Gammes de variation des influences environnementales, hors précipitations, sur le signal $\gamma$ mesuré de $^{40}\text{K}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{232}\text{Th}$ pour un pas de temps horaire, avant les corrections proposées. Les fluctuations statistiques ont été déterminées suivant la loi de Poisson, $\sqrt{N}/N$ . . . . .	323
7.5	Variations résiduelles, hors précipitations, observées sur le signal $\gamma$ mesuré de $^{40}\text{K}$ , $^{238}\text{U}$ et $^{232}\text{Th}$ pour un pas de temps horaire, après les différentes corrections proposées. . . . .	323
8.1	Principales spécifications techniques relatives aux vols de spectrométrie $\gamma$ aéroportée opérés sur le site P2OA-CRA pour la date du 07 Septembre 2020. . . . .	332
8.2	Évolution de l'humidité du sol (% vol.) dans la couche superficielle (0-5 cm), du $^{222}\text{Rn}$ mesuré (ALGU) et calculé (Gamma) en $\text{Bq.m}^{-3}$ , de la température de l'air ( $^{\circ}\text{C}$ ) et de la pression atmosphérique (mbar) pour les trois survols opérés sur le site P2OA-CRA. . . . .	332
8.3	Bruits de fond instrumental et lié aux rayonnements cosmiques dans les fenêtres d'intégration en énergie du $^{137}\text{Cs}$ , du $^{40}\text{K}$ , du $^{238}\text{U}$ et du $^{232}\text{Th}$ . . . . .	335
8.4	Corrections appliquées sur les spectres bruts acquis en spectrométrie $\gamma$ aéroportée en fonction du protocole de traitement employé, Hélinuc® et PASTEL. BDF : bruit de fond . . . . .	336
8.5	Activités massiques moyennes du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{238}\text{U}$ sur toute la zone survolée pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin, Après-Midi) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement standard, Hélinuc®, et alternatif, PASTHEL, pour le spectromètre embarqué RSX-4. . . . .	344

---

8.6	Activités massiques moyennes du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{238}\text{U}$ sur la zone à proximité du mât (cercle blanc) pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin, Après-Midi) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® (sans correction des effets environnementaux) et PASTHEL (avec correction des effets environnementaux) pour le spectromètre RSX-4 (Hélicoptère) et RSX-5 (Mât). Les données du LAFARA sont intégrées pour comparaison (sol sec). La variation entre ces deux vols est exprimée en % . . . . .	346
8.7	Activités massiques moyennes du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{238}\text{U}$ sur toute la zone survolée pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® et PASTHEL pour les spectromètres RSX-4. . . . .	352
8.8	Activités massiques moyennes du $^{40}\text{K}$ , du $^{232}\text{Th}$ et du $^{238}\text{U}$ sur la zone ultra-localisée pour les vols du 07 Septembre 2020 (Matin : 07-Matin, Après-Midi : 07-Après-midi) et du 08 Septembre 2020 (Matin : 08-Matin) pour les cartes établies avec les protocoles de traitement d'Hélinuc® (sans correction des effets environnementaux) et PASTHEL (avec correction des effets environnementaux) pour le spectromètre RSX-4 (Hélicoptère). . . . .	353
C.1	Coefficients et couche de demi-atténuations dans le plomb et l'aluminium. Les couches de demi-atténuation sont les épaisseurs caractéristiques apportant un facteur d'atténuation de 2. Il faut une épaisseur 5 fois moins importante dans le cas d'une utilisation du plomb comme écran d'atténuation. . . . .	LVI







La radioactivité : les émissions de  
rayonnements ionisants

---

## A.1 La radioactivité : émission de rayonnements ionisants

Bien avant que soit connue la structure intime de l'atome, la propriété nucléaire définie sous le nom de radioactivité a été découverte. Ce phénomène qui se concentre sur l'infiniment petit fut très difficile à observer et il fallut attendre l'an 1896 pour que le physicien français Henri Becquerel le mette en lumière suite à ses travaux sur les émissions de sels d'uranium. Becquerel mit en avant les émissions spontanées de rayonnements invisibles issus de l'uranium, différents des rayons X observés depuis 1895 par Wilhelm Roentgen. En 1898, Pierre et Marie Curie, faisant suite aux travaux de Becquerel, découvrirent deux radionucléides à savoir le polonium et le radium.

## A.2 Émission de rayonnements ionisants

### A.2.1 Généralités

Un noyau instable, c'est-à-dire présentant un excès de protons, de neutrons ou de nucléons ou un déséquilibre entre le nombre de protons et de neutrons, va se transformer en noyau plus stable lors d'une transformation nucléaire, en émettant une ou plusieurs particules. La désintégration radioactive est un processus aléatoire, spontanée, inéluctable et indépendante des paramètres de pression et de température au cours duquel le nombre de charge  $Z$ , le nombre de masse  $A$  et l'équivalence masse-énergie seront conservés. La conservation de l'énergie lors d'une désintégration radioactive implique que l'énergie de masse du noyau père, initialement immobile, est égale à la somme de l'énergie de masse du noyau fils et des particules émises auxquelles s'ajoute l'énergie libérée.

Différents processus de désintégration, caractéristiques du radionucléide, existent. Ces mécanismes d'émission de particules peuvent entraîner une modification de la structure interne du noyau par une fission spontanée ou une désintégration de type  $\alpha$  ou  $\beta$ . Ces types de rayonnements émis font intervenir les forces fortes, faibles et électromagnétiques présentes dans le noyau. Ce dernier va ainsi évoluer vers un état plus stable en émettant un rayonnement de particules matérielles, comme un noyau d'Hélium  ${}^4_2\text{He}$ , un positon ( $\beta+$ ) ou un électron ( $\beta-$ ), ou des photons de haute énergie, les rayons  $\gamma$ .

### A.2.2 Émission $\alpha$

La radioactivité de type  $\alpha$  concerne surtout les noyaux lourds en excès de nucléons. Le plus lourd observé dans la nature est celui du  ${}^{238}\text{U}$  comportant 92 protons et 136 neutrons. Dans le but de se rapprocher d'une certaine stabilité, ces noyaux pères  ${}^A_Z X$  considérés comme instables vont émettre une particule  $\alpha$  c'est-à-dire un noyau léger d'Hélium,  ${}^4_2\text{He}$ , afin de devenir moins volumineux et donner naissance à un noyau fils  ${}^{A-4}_{Z-2} Y$ . Il en résulte une équation de désintégration radioactive du

type :



Au cours d'une désintégration  $\alpha$ , l'énergie est libérée sous forme d'énergie cinétique partagée entre la particule alpha qui emporte environ 98% de l'énergie initiale et le noyau de recul qui conserve le reste de l'énergie. L'énergie libérée associée à la particule  $\alpha$  est propre à une désintégration donnée. La désintégration du Radium-226 en Radon-222, deux radionucléides de la chaîne de désintégration de l'Uranium-238, est un exemple type de l'émission de particules  $\alpha$  (Figure A.1). Le Radon-222, gaz radioactif, est lui-même un émetteur  $\alpha$ .

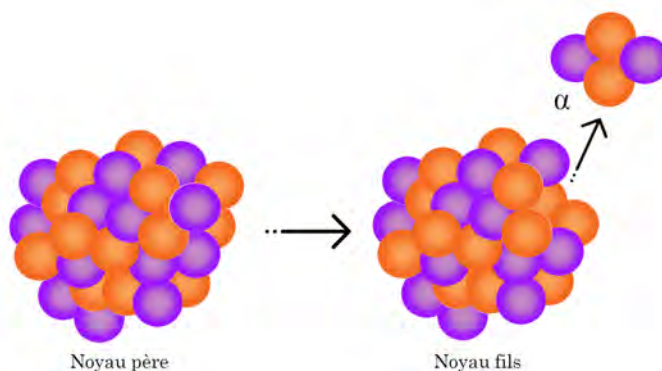


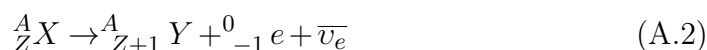
Figure A.1 – Exemple de désintégration de type  $\alpha$  où un noyau père ( ${}^{226}_{88} Ra$ ) se transforme en noyau fils ( ${}^{222}_{86} Rn$ ) en émettant un noyau  ${}^4_2 He$ . Les cercles de couleur orange représentent les protons et les cercles de couleur violet, les neutrons.

### A.2.3 Émission $\beta$

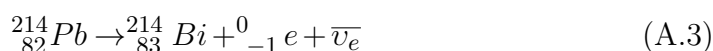
La radioactivité de type  $\beta$  est une transformation nucléaire isobarique. Les changements de composition dans le noyau ne modifient pas le nombre de masse  $A$ .

La présence de forces faibles dans le noyau permet de transformer un nucléon d'une espèce à une autre. Sous l'égide de ces forces, un neutron peut devenir proton et un proton peut devenir neutron n'affectant pas le nombre de nucléons initial. En réponse au changement de charge électrique induit par cette transformation, un électron ou un positon va être expulsé du noyau. Un anti-neutrino, positon neutre, accompagne l'émission de l'électron alors qu'un neutrino, électron neutre, est associé à l'émission d'un positon. Il existe deux types de radioactivités  $\beta$  :

- La radioactivité  $\beta^-$  concerne les noyaux en excès de neutrons. Il s'agit d'une transformation d'un neutron en proton avec émission d'un électron et d'un anti-neutrino. L'équation de réaction générique peut s'écrire :

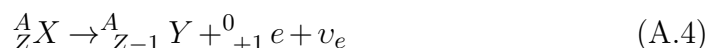


Un exemple concret de ce type de transformation est la désintégration du Plomb-214 en Bismuth-214, deux radionucléides de la chaîne de désintégration de l'uranium (Figure A.2) :



Ce type de radioactivité intéresse particulièrement la spectrométrie  $\gamma$  des radionucléides artificiels car la plupart des produits de fission se désintègrent suivant ce mode.

- La radioactivité  $\beta^+$  est caractéristique des noyaux en excès de protons. L'émission d'un positon et d'un neutrino accompagne la transformation d'un proton en neutron. L'équation de transformation générique peut s'écrire :



La transmutation du Carbone-11 en Bore-11 est un exemple direct de désintégration de type  $\beta^+$  :



Dans le cas d'une transformation nucléaire  $\beta$ , l'énergie libérée est sous forme d'énergie cinétique et se partage entre l'énergie de recul du noyau fils, un électron (ou positon) et un anti-neutrino (ou neutrino). L'énergie du noyau qui recule peut être considérée comme négligeable dans la très grande majorité des cas. De ce fait, l'énergie disponible va se concentrer sur les deux particules restantes en proportion variable. Dans la nature, les noyaux radioactifs présentant un excès de neutrons sont plus fréquents que ceux avec un excès de protons. La radioactivité  $\beta^-$  est donc la transformation de type  $\beta$  dominante.

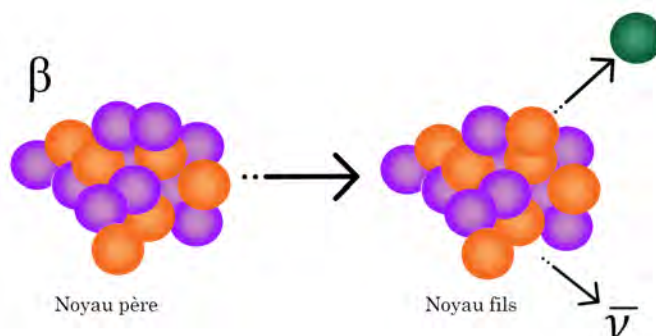


Figure A.2 – Exemple de désintégration de type  $\beta^-$  où un noyau père ( ${}^{214}_{82}\text{Pb}$ ) se transforme en noyau fils ( ${}^{214}_{83}\text{Bi}$ ) en émettant un électron et son antiparticule, l'antineutrino. Les cercles orange représentent les protons et les cercles violets, les neutrons. L'électron est défini par le cercle de couleur vert.

#### A.2.4 Capture électronique

La capture électronique concerne les noyaux en excès de protons. C'est une alternative, plus rare, à la désintégration de type  $\beta^+$ , notamment privilégiée pour les atomes lourds. Ce mécanisme est dû aux interactions existantes entre le noyau et le cortège électronique. Un électron du cortège électronique est capturé par le noyau, un proton est alors transformé en neutron. Ce processus s'accompagne de l'émission d'un neutrino :



La capture électronique s'accompagne d'un rayonnement de désexcitation (rayons X) dû au réarrangement du nuage électronique



# B

Interaction des particules neutres avec la  
matière

---

Plusieurs mécanismes d'interaction des photons avec la matière sont possibles et dépendent de l'énergie du photon et des propriétés du matériau. Ces différentes interactions des photons avec des milieux comme l'air ou un détecteur permettent la détection de ce type de rayonnement et sert de base à la spectrométrie gamma. En effet, l'examen des interactions entre les photons  $\gamma$  et le milieu traversé est indispensable pour comprendre le signal détecté. Dans la gamme d'énergie considérée par la spectrométrie gamma (10 keV - 3 MeV), trois principaux mécanismes d'interaction entre photons et matière existent : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paire. Un quatrième effet, à très basses énergies (quelques eV), peut également entrer en jeu : la diffusion élastique d'un photon sur un électron du milieu, sans perte d'énergie mais avec une modification de la direction de propagation. Cette diffusion élastique peut être de deux types : la diffusion de Rayleigh entre un photon et un électron libre et la diffusion de Thomson entre un photon et un électron lié.

## B.1 L'effet photoélectrique

Au sein de la matière traversée, l'effet photoélectrique conduit à la disparition complète du photon  $\gamma$  lors d'une collision avec un électron du cortège électronique d'un atome. Le photon incident cède toute son énergie à cet électron qui va être expulsé du cortège électronique de l'atome avec une énergie cinétique correspondant à la différence entre l'énergie cinétique du photon et l'énergie de liaison de l'électron :

$$E_{c,e^-} = E_{c,\gamma} - E_{L,e^-} \quad (\text{B.1})$$

Cet effet se matérialise dès que le photon incident possède une énergie supérieure à l'énergie de liaison. En dessous de cette valeur, la probabilité d'arracher un électron (section efficace) de cette couche est nulle. Au fur et à mesure que l'énergie du photon dépasse le seuil de l'énergie de liaison, le photon interagit tour à tour avec les couches de plus en plus profondes de l'atome (K, L). C'est à partir de quelques dizaines de keV que l'effet photoélectrique se produit essentiellement avec la couche K du cortège électronique.

Suite à cette collision et à l'expulsion de l'électron de sa couche, un réarrangement du cortège électronique s'opère conduisant à l'émission de photons de fluorescence X ou d'électrons Auger caractéristique de l'atome. C'est la différence d'énergie entre les différentes couches atomiques participant à cette réorganisation qui est à l'origine de ces émissions et caractérise le phénomène de relaxation atomique. S'il est émis au sein d'une matière dense, le rayon X sera absorbé après un court parcours. La figure B.1 présente de manière schématique l'effet photoélectrique.

La probabilité d'interaction d'une particule avec la matière qu'elle traverse est définie par une section efficace,  $\sigma$ . Elle s'apparente à une surface rapportée en *barn*, son unité de mesure usuelle ( $1b = 10^{-24} \text{cm}^2$ ). C'est une surface fictive qui ne dépend pas de la taille du noyau mais qui dépend de la nature et de l'énergie de la particule incidente. Il n'existe qu'une approximation de la relation empirique décrivant l'évolution de la section efficace de l'effet photoélectrique sur l'ensemble de la gamme

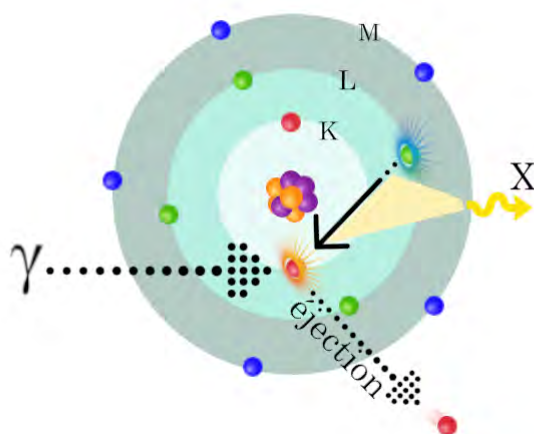


Figure B.1 – Absorption d’un photon  $\gamma$  par effet photoélectrique. Cette interaction s’opère en deux temps avec l’arrachement d’un électron lié d’un atome et le réarrangement du cortège électronique.

d’énergie et des numéros atomiques  $Z$  existants [Davisson, 1968]

$$\sigma_{PE} \simeq \frac{Z^n}{E_i^3} \quad (\text{B.2})$$

La valeur de  $n$  est de 4 lorsque  $E_i$  est inférieur au MeV. Pour une même énergie, la probabilité d’interaction d’un photon  $\gamma$  augmente avec le numéro atomique du matériau traversé. En spectrométrie gamma, l’une des propriétés du détecteur est de posséder un numéro atomique élevé tel qu’il est retrouvé dans les scintillateurs inorganiques comme le NaI(Tl). Ceci lui confère une plus grande sensibilité.

## B.2 La diffusion Compton

Comme l’effet photoélectrique, la diffusion Compton intervient lors de la collision d’un photon  $\gamma$  avec un électron. Dans ce cas de figure, le photon ne transfère à l’électron d’une couche externe qu’une partie de son énergie et rebondit sur l’électron cible. À la suite de la collision, l’électron est mis en mouvement et le photon repart suivant une direction déviée d’un angle  $\theta$  par rapport à la direction d’incidence. Comme le photon  $\gamma$  n’est pas absorbé lors de la collision, l’énergie initiale se partage entre l’électron de la couche externe mis en mouvement et le photon diffusé, c’est-à-dire qui émerge après la collision. Le photon  $\gamma$  diffusé va poursuivre sa propagation dans la matière et pourra donner lieu à d’autres diffusion Compton, s’échapper du milieu ou être complètement absorbé par effet photoélectrique (Figure B.2). Par conservation de l’énergie et de la quantité de mouvement, l’énergie après la collision et l’angle de diffusion sont liés par l’expression :

$$E_{\gamma'} = \frac{E_{\gamma}}{1 + \frac{E_{\gamma}}{m_0 c^2} (1 - \cos(\theta))} \quad (\text{B.3})$$

Avec :

- $E_{\gamma'}$ , l'énergie du photon diffusé (MeV)
- $E_{\gamma}$ , l'énergie du photon incident (MeV)
- $\theta$ , angle entre les directions d'incidence et de diffusion du photon
- $m_0$ , la masse de l'électron au repos ( $9,109 \cdot 10^{-31} kg$ )
- $c$ , la célérité de la lumière  $3 \cdot 10^8 m \cdot s^{-1}$
- $m_0 c^2$ , l'énergie de l'électron au repos ( $0,511 meV$ )

L'énergie du photon diffusé est donc maximale lorsque l'angle  $\theta$  est égal à 0 signifiant une absence d'interaction et une diffusion vers l'avant. Elle est minimale lorsque l'angle  $\theta$  tend vers  $180^\circ$ , ce qui caractérise une rétrodiffusion. En moyenne, le photon  $\gamma$  ne transfère qu'une faible partie de son énergie à l'électron mais subit un changement de direction important avec un angle de diffusion variant de  $30$  à  $45^\circ$ . D'une façon générale, plus l'énergie du photon incident est élevée, plus la probabilité d'avoir un angle de diffusion faible augmente.

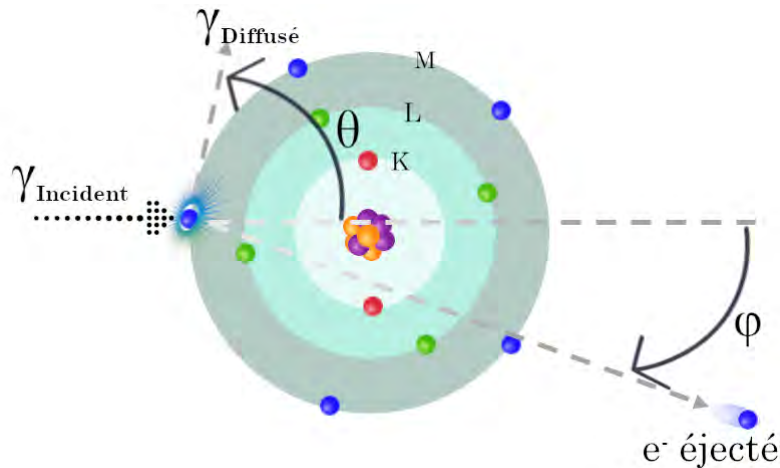


Figure B.2 – La diffusion Compton décrit la mise en mouvement d'un électron atomique par collision avec un photon  $\gamma$ . La perte d'énergie incidente n'étant pas totale, le photon est diffusé suivant un angle de diffusion  $\theta$ .

La diffusion Compton est dominante aux énergies intermédiaires, entre 200 keV et 6 MeV [Knoll, 2000]. À partir d'une valeur seuil d'énergie du rayon  $\gamma$ , 1,022 MeV, la diffusion Compton commence à être concurrencée par le phénomène de création de paire ou d'effet de matérialisation du photon  $\gamma$ .

### B.3 La création de paire

Le troisième type d'interaction entre photons  $\gamma$  et matière est la création d'une paire de particules, un électron et un positon, son antiparticule. Le photon incident d'énergie supérieure à deux fois l'énergie de l'électron au repos (1,022 MeV) peut

se matérialiser en une paire électron-positon pour laquelle chaque particule dispose d'une énergie au repos,  $m_0c^2$ , de 0,511 MeV (Figure B.3). Cet effet se produit lorsque le photon pénètre dans le champ coulombien d'un noyau, qui sert ainsi de catalyseur. L'énergie électromagnétique est alors convertie en énergie de masse et en énergie cinétique. L'énergie de l'électron ( $E_{e^-}$ ) et du positon ( $E_{e^+}$ ) sont données par la relation :

$$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2m_0c^2 \quad (\text{B.4})$$

Suite à la cession de son énergie cinétique, le positon s'annihile rapidement par la rencontre d'un électron pour matérialiser deux photons  $\gamma$  d'énergie  $E_\gamma = 0,511 \text{ MeV}$  émis à environ  $180^\circ$  l'un par rapport à l'autre.

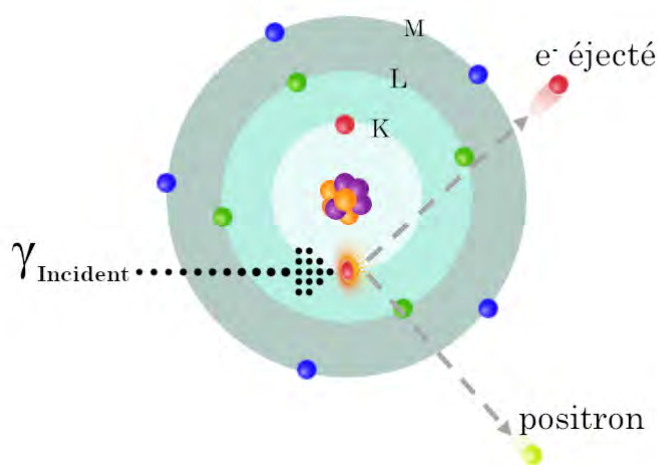


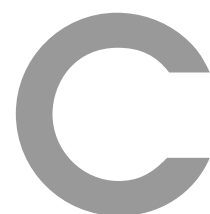
Figure B.3 – La création d'une paire de particules, électron-positon, résulte de l'interaction entre le photon  $\gamma$  et l'électron. Cette interaction ne peut être considérée que lorsque l'énergie incidente du photon  $\gamma$  dépasse une valeur seuil de 1,022 MeV.

Les photons  $\gamma$  de haute énergie se matérialisent principalement en passant à proximité de la charge électrique des noyaux avec lesquels ils interagissent. L'effet de matérialisation du photon  $\gamma$  devient donc dominant pour des énergies supérieures à 6 MeV [Knoll, 2000]. Aux énergies étudiées en spectrométrie gamma comprises entre 0,04 et 3 MeV, correspondant à la gamme d'énergies des rayonnements telluriques, la probabilité de créer des paires électron-positon ( $\sigma_{PP}$ ) est marginale. Elle est proportionnelle au logarithme de l'énergie incidente et au carré du numéro atomique  $Z$  du milieu traversé :

$$\sigma_{PP} \simeq Z^2 \ln(E_\gamma) \quad (\text{B.5})$$







Protocole du bruit de fond instrumental  
du RSX-5

---

## C.1 Le protocole de mesure du bruit de fond instrumental du RSX-5

### C.1.1 Le choix du matériau "écran" et de son épaisseur

L'énergie des photons  $\gamma$  pénétrant dans le matériau écran conditionne l'interaction entre particule et matière. Que le photon  $\gamma$  soit seulement atténué (diffusion Compton) ou totalement absorbé par l'écran (effet photoélectrique), le nombre de photons  $\gamma$  diminue avec l'épaisseur d'écran traversée. L'atténuation ou l'absorption sont caractérisées par un coefficient dépendant de l'énergie. Elles seront d'autant plus importantes que ce coefficient, inverse de la longueur d'atténuation, est élevé. Cette longueur caractéristique d'atténuation varie beaucoup avec la nature de l'écran et l'énergie du photon  $\gamma$ .

Les écrans doivent être constitués de matériaux denses, à numéro atomique  $Z$  élevé tel que le fer ou le **plomb** ( $d = 11,6$ ). Ce sont des noyaux lourds dont la propriété est de favoriser l'effet photoélectrique entraînant l'absorption totale du photon  $\gamma$  à basse énergie dans le matériau. Les performances du plomb pour les  $\gamma$  plus énergiques font qu'il est suffisant de disposer d'un écran de 1,2 cm pour absorber 50% du flux de photon  $\gamma$  de 1 MeV. Il faudrait des épaisseurs 10, 20 ou 100 fois plus élevées pour des absorbeurs légers comme l'eau ou l'aluminium. Les longueurs d'atténuation dans le plomb de masse volumique  $11,6 \text{ g.cm}^{-3}$  et dans l'aluminium de masse volumique  $2,7 \text{ g.cm}^{-3}$  des radionucléides naturels et artificiels sont données dans le tableau C.1 :

Radionucléide	$^{137}\text{Cs}$	$^{40}\text{K}$	$^{214}\text{Bi}$	$^{208}\text{Tl}$
Énergie (MeV)	0,662	1,461	1,764	2,615
$\mu_{Pb}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	1,28	0,62	0,56	0,51
$CDA_{Pb}$ (cm)	0,54	1,12	1,24	1,36
Énergie (MeV)	0,662	1,461	1,764	2,615
$\mu_{Al}$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	0,20	0,14	0,12	0,10
$CDA_{Al}$ (cm)	3,47	4,95	5,78	6,94

Tableau C.1 – Coefficients et couche de demi-atténuations dans le plomb et l'aluminium. Les couches de demi-atténuation sont les épaisseurs caractéristiques apportant un facteur d'atténuation de 2. Il faut une épaisseur 5 fois moins importante dans le cas d'une utilisation du plomb comme écran d'atténuation.

Le nombre de photons  $\gamma$  capable de traverser l'écran est considéré comme négligeable pour une épaisseur *dixième*. La valeur de l'épaisseur *moitié* est égale à 0,3 fois celle de l'épaisseur *dixième* ( $\log(2)/\log(10)$ ). Il faut donc environ 2 cm de plomb pour diminuer de moitié le nombre de photons  $\gamma$  d'énergie 2,615 MeV mais 6,5 cm pour obtenir un facteur de transmission de 1 pour 10.

## C.2 La construction de l'écran - Un château fort de plomb !

Un écran en plomb d'épaisseur environ 6,5 cm entourant le détecteur semble donc être la solution la plus intéressante pour réaliser une mesure de qualité du bruit de fond de l'instrument. Du fait de ses activités spatiales, l'IRAP dispose de très importantes ressources en matériau de radioprotection. Ainsi, en fouillant tous les recoins du laboratoire et ceux de l'observatoire, plus de **380 briques de plomb archéologique** non utilisées et imbriquables ont été recensées. Toutes les briques de plomb sont de dimension 10 cm x 10 cm et ont une épaisseur de 5 cm.

Les dimensions du détecteur, enveloppe et électronique incluses, sont de 69 cm x 57,3 cm x 28,8 cm. Un rapide calcul permet de dire qu'environ 170 briques seraient nécessaires pour créer un écran de 5 cm d'épaisseur capable d'entourer en totalité le détecteur.

Le calcul réalisé en amont recommande un minimum de 6,5 cm d'épaisseur pour l'écran. Avec 380 briques de plomb disponibles, la construction de l'écran est finalement d'une épaisseur de 10 cm autour du détecteur. Elle garantit donc un facteur de transmission des photons  $\gamma$  de l'extérieur de l'écran vers le détecteur négligeable, de l'ordre de 0,35% pour le  $^{214}\text{Bi}$ . La mesure de bruit de fond s'opère dans un local où les matériaux de construction émettent des photons  $\gamma$ . Il est donc indispensable de prévoir une architecture atténuant de manière optimale les photons  $\gamma$ .

Avec une expertise indéniable en jeux de construction, la forme de l'écran envisagée s'est rapidement matérialisée en château de plomb ou sarcophage. Le déroulé de la construction est présenté sur la figure 2.13 et dans les points qui suivent :

- Une **dalle** de double épaisseur composée de 48 briques pour chaque étage constitue la fondation du château de plomb. Elle permet d'isoler le détecteur des matériaux de construction (carrelage, béton) constituant le sol du local. Une fois la mise en place de la dalle effectuée, le détecteur RSX-5 est apporté dans le local et placé dessus.
- Une fois le détecteur mis en place sur la dalle, la construction de **4 murs** de double épaisseur entourant l'instrument peut commencer. Les murs doivent légèrement dépasser le cinquième cristal afin de pouvoir fermer le château de plomb par un toit. L'association de 3 briques de plomb permet d'atteindre une hauteur de 30 cm supérieure au 28,8 cm du détecteur.
- Lorsque les murs sont stabilisés afin qu'aucune brique ne vienne s'écrouler sur le détecteur, les alimentations électriques du spectromètre sont installées. Elles font partie intégrante de la mesure de bruit de fond du détecteur. En effet, dans le cadre de l'utilisation en environnement extérieur, le détecteur sera toujours accompagné par ces deux alimentations branchées en parallèle. Il est donc important de se rapprocher au maximum des conditions expérimentales des futures mesures en les plaçant dans le château de plomb. Une brique de plomb percée aux diamètres des **câbles** assurant l'alimentation électrique du détecteur ainsi que la communication avec un PC d'acquisition permet le fonctionnement de l'instrument.
- La dernière étape de cette construction est l'installation d'un **toit** sur les murs afin d'isoler totalement le détecteur de l'influence photonique extérieure. L'ob-

jectif premier est de s'assurer que le toit ne s'effondrera pas sur l'instrument sous le poids du plomb, chaque brique pesant plus de 5 kg. Pour ce faire, afin de procéder à la jonction entre les 4 murs, une plaque inox de 3 mm d'épaisseur est installée. Sur cette plaque, la suite des briques de plomb est disposée de la même manière que celles constituant la dalle. Un mur de cerclage de ce toit permet le contreponds sur la plaque inox avec les briques situées plus au centre.

# D

Cahier des charges du système mécanique  
de calibration du RSX-5.

---

## D.1 Spécifications techniques du cahier des charges à respecter

Voici quelques spécifications techniques du cahier des charges à respecter pour la calibration du spectromètre RSX-5 utilisé dans le cadre de cette thèse :

- **Stabilité** du détecteur : le support du détecteur doit pouvoir soutenir en toute stabilité une charge fixe de 115 kg aux dimensions du détecteur RXS-5.
- **Dimensions** du système : la base de l'instrument doit être positionnée à une hauteur minimum de 1,30 m d'après les dimensions du local dans lequel est réalisée cette calibration.
- **Écrantage** du signal : la structure du support doit écranter le moins possible l'angle solide entre la source radioactive et le volume du détecteur. Il faut minimiser au maximum la quantité de matière entre source et détecteur sous 4 stéradians.
- **Position fixe des sources** : le système de positionnement des sources doit permettre de fixer le porte-source avec écrans de plomb pour radioprotection, à une distance minimale de 90 cm de l'origine du repère qui est le centre de gravité du détecteur. **Rotation des sources** : le système de positionnement des sources doit permettre de déplacer le porte-source de façon sphérique autour de l'origine du repère de l'instrument avec deux degrés de liberté, l'azimut et l'élévation, de façon à caractériser la réponse du détecteur sous  $4\pi$ . **Pas de mesure** du système source : le centre des disques constituant les sources doit pouvoir être fixé par intervalles de  $15^\circ$  d'azimut et  $15^\circ$  d'élévation autour de l'origine du repère, avec une précision de  $1^\circ$ . Le jeu de la structure ne doit pas permettre une variation de la position de la source durant la mesure ( 5 minutes) de plus de  $1^\circ$ . Il est donc nécessaire d'avoir une connaissance de la valeur des angles avec une précision de  $1^\circ$ . **Contrainte du système source** : les disques constituant les sources doivent être positionnés de façon tangentielle à la sphère, pour que la même face soit toujours présentée vers le détecteur. La demande porte sur une rotation des sources et non une translation circulaire. Ainsi, des rapporteurs de type cercle entier doivent être collés sur la structure d'accueil au niveau des deux systèmes de blocage des angles pour déterminer la valeur des angles en azimuth et en élévation pour lesquelles la mesure est effectuée.
- **Installations** : l'assemblage de la structure doit pouvoir être réalisé dans le local dédié à la mesure. Le système de fixation du détecteur doit être pérennisé et sa mise en place sur le support facilitée.



# E

Architecture générale d'un code de simulation développée sous Geant-4.

---

## E.1 L'architecture générale de Geant-4

La figure E.1 montre l'architecture minimale que doit posséder un programme Geant4 pour fonctionner correctement [Pirard, 2006]

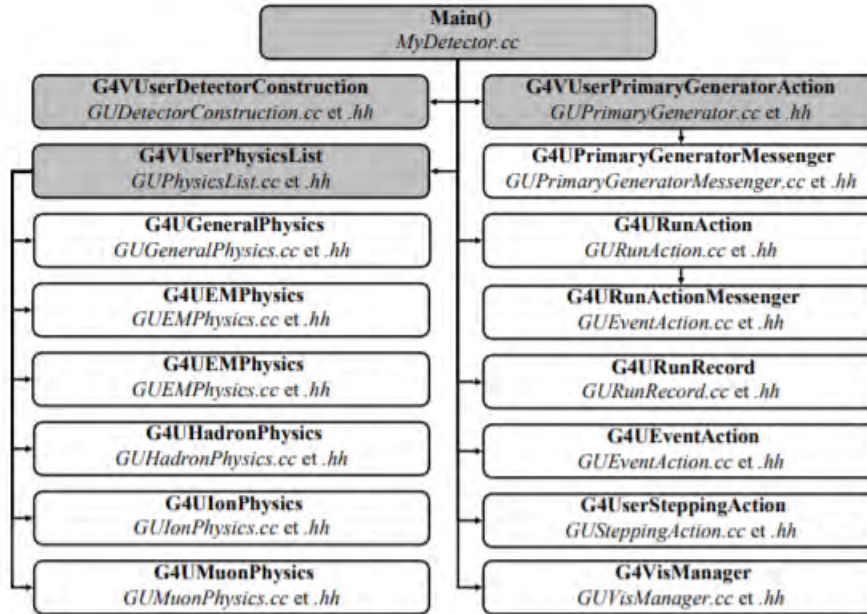


Figure E.1 – Architecture d'un code de simulation dans Geant4. Dans ce diagramme, chaque bloc correspond à une classe. Le nom générique de la classe est donné en gras et le nom affilié par l'utilisateur est laissé en italique. Les 4 classes en gris sont obligatoires pour permettre une simulation viable, les autres sont optionnelles.

Dans la configuration nominale du code pour la simulation des interactions entre particule et matière, 4 classes abstraites correspondant à 7 fichiers doivent être spécifiées :

- Une classe *main* qui est le fichier principal. Il peut être exécuté en passant en argument des macros, dans lesquelles sont par exemple définies la nature de la particule à simuler, son énergie, le nombre d'événements à simuler etc.
- Une classe ***G4UserDetectorConstruction*** contenant la description de la géométrie du système de mesure à simuler : les volumes, les formes, les matériaux, les propriétés électromagnétiques et optiques, la sensibilité, les paramètres de visualisation comme les couleurs, la transparence etc. La géométrie d'un détecteur est composé par un certain nombre de volumes imbriqués. Le volume de départ, "World" contient tous les autres volumes définissant le système de détection ou la source radioactive utilisée. Au sein de ce volume, l'environnement du détecteur aux caractéristiques propres (matériau alentour, pression, température) peut être modélisé. Le volume solide décrit la forme d'un volume comme un cristal NaI à travers le concept de solide qui caractérise un objet géométrique par rapport à ses dimensions fixées. La géométrie d'un détecteur seule ne suffit pas. Ses propriétés physiques comme l'ensemble des matériaux constitutifs, les éléments sensibles, l'environnement intérieur (air, vide) doivent également être prises en compte. Le **volume logique** contient

le volume solide et les propriétés physiques. Le positionnement géographique du volume logique au sein du volume "World" est à définir. Cette opération consiste à placer une copie du volume logique dans l'environnement "World" en créant un volume physique.

- Une classe ***G4VUserPhysicsList*** contenant la description de la physique : particules, processus, modèles physiques affectés à chaque particule etc. Tous les processus électromagnétiques sont définis dans cette classe tout comme les modèles de transport et d'interaction des particules, de décroissance radioactive, de fluorescence X, d'émission d'électrons d'Auger, etc. Le choix des processus à utiliser dans le cadre de la simulation est laissé libre à l'utilisateur. Celui-ci peut donc activer ou désactiver les processus qu'il considère comme optionnels ou inexistantes dans le cadre de la simulation. Dans le cadre de simulation de transport et d'interaction de photons  $\gamma$ , les listes physiques proposées par défaut par Geant4 sont les listes `G4DecayPhysics`, `G4RadioactiveDecayPhysics` et `G4EmStandardPhysics`.
- Une classe ***G4VUserPrimaryGeneratorAction*** qui contient les informations nécessaires à la génération des particules primaires. L'utilisateur doit décrire l'état initial de l'événement primaire à travers le type de particule (photon, neutron, ions), son énergie (keV, MeV), sa position dans le volume *World*, sa direction d'émission (isotrope, anisotrope) ainsi que son moment angulaire. Lors de l'initiation de chaque événement, cette classe fait appel à un générateur de particule qui utilise l'ensemble des paramètres de description de l'état initial de la particule, la méthode `GeneratePrimaries()`.

Des classes optionnelles comme celles non grisées sur la figure E.1 peuvent également être spécifiées par l'utilisateur. L'objectif de ces classes secondaires est de pouvoir modifier par exemple la modélisation des processus physiques ou la récupération des informations spécifiques durant la simulation. Voici quelques exemples de classes utilisées dans le cadre de la simulation du scintillateur RSX-5 :

- La classe *G4UserRunAction* traite les informations relatives à une exécution (*run*) ou à une collection d'événements.
- La classe *G4UserEventAction* gère les informations concernant chaque événement (*event*). Au commencement d'un processus en cours, un événement contient les particules primaires.
- La classe *G4VisManager* gère les fichiers en sortie et les outils de visualisation de façon à vérifier la géométrie et la trajectoire des particules.

En programmation C++, chaque classe créée par l'utilisateur se décline en un fichier *.hh* dans un répertoire */include* et un fichier *.cc* dans un répertoire */src*, à l'exception du programme principal.

Divers formats et niveaux de détail peuvent être choisis pour les données en sortie de la simulation. L'utilisateur peut choisir une représentation en histogramme permettant de visualiser le spectre linéaire de la particule simulée. Dans ces travaux et sur les conseils de [Thomas, 2019], l'outil d'analyse de données ROOT [Brun and Rademakers, 1997] qui possède une interface avec Geant4 a été choisi pour visualiser et traiter les fichiers de sortie. Cet outil a également été développé par le CERN.



F

Le taux de fuite de l'enceinte

---

## F.1 Le taux de fuite de l'enceinte

La mesure du taux de fuite de l'enceinte est nécessaire pour permettre une bonne estimation du plateau final de la courbe de l'activité volumique du  $^{222}\text{Rn}$  en fonction du temps, dans l'enceinte. L'inter-comparaison réussie entre les activités de radon mesurées avec présence de la source dans l'enceinte et l'activité théorique de la source dans le volume connu de l'enceinte en est une première approche.

La modélisation d'une courbe de tendance de l'activité en radon mesurée par chaque détecteur en se basant sur l'équation F.1 permet de déterminer le taux de fuite de l'enceinte.

$$A = C_{inf} \times (1 - e^{(-\lambda_{eff} \times t)}) + C_0 \times e^{(-\lambda_{eff} \times t)} + BDF \quad (\text{F.1})$$

avec :  $A$  l'activité mesurée en  $\text{Bq.m}^{-3}$ ,  $C_{inf}$  l'activité en radon à l'équilibre en  $\text{Bq.m}^{-3}$ ,  $C_0$  l'activité en radon à  $t=0$  en  $\text{Bq.m}^{-3}$ ,  $\lambda_{eff}$  la constante de décroissance effective qui est la somme de la constante de désintégration du radon et du taux de fuite et  $BDF$  le bruit de fond de l'instrument.

Un exemple concret de cette modélisation issue de l'équation F.1 est présenté sur la figure F.1 pour le détecteur EF2082. Avec un coefficient de détermination  $R^2$  de 0,989, l'activité atteinte à l'équilibre est de  $1247 \pm 85 \text{ Bq.m}^{-3}$  et celle du temps initial,  $t_0$  de  $0 \text{ Bq.m}^{-3}$  vu que tous les bruits de fond ont été soustraits. La constante effective du radon calculée par la modélisation est de l'ordre de  $2,055 \times 10^{-6} \pm 2 \times 10^{-8} \text{ s}^{-1}$  alors que la constante de désintégration du radon-222 est de  $2,111 \times 10^{-6} \text{ s}^{-1}$  dans la littérature.

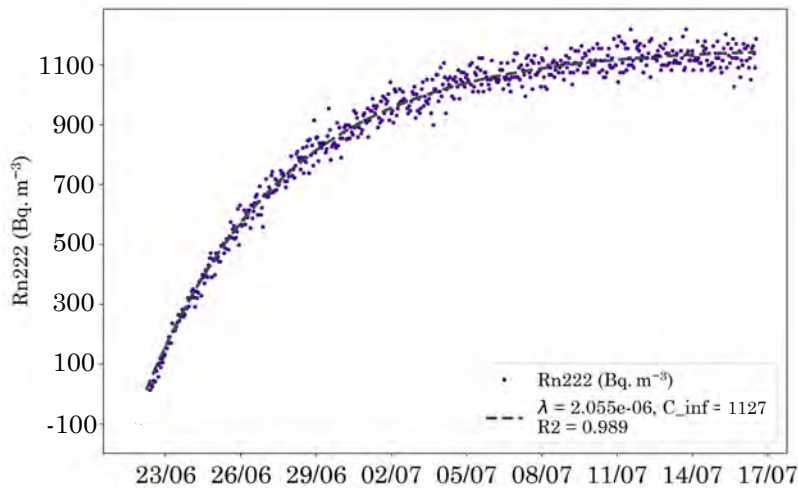


Figure F.1 – Courbe de tendance de l'activité en radon-222 mesurée par le détecteur EF2082. Le taux de fuite de l'enceinte peut être déterminée au regard de la constante de décroissance radioactive du radon-222 calculée.

Le rapport entre ces deux valeurs indique que 98% du radon émané par la source radium est resté dans l'enceinte. Pour les quatre détecteurs, la tendance est la même avec un taux de fuite mesuré de l'enceinte variant entre 2 et 4%, que l'on peut considérer comme significatif vis-à-vis des incertitudes.





La télédétection satellitaire pour suivre  
l'humidité des sols.

---

## G.1 Les radiomètres à micro-ondes et la télédétection passive

Ces instruments sont des charges utiles embarquées à bord de satellite qui se déplacent autour de la Terre selon une orbite précise, déterminée selon les besoins des observations. L'orbite polaire à environ 800 km d'altitude est l'orbite principalement utilisée pour des satellites dont la mission est l'observation de la surface terrestre. Elle permet d'obtenir une couverture régulière grâce à un cycle orbital héliosynchrone régulier composé de phases alternées ascendantes où le satellite effectue sa course de l'hémisphère sud à l'hémisphère nord et descendantes lorsque la course est inverse. Le capteur enregistre l'énergie reçue sous forme d'ondes électromagnétiques. Dans le cadre de la mesure de l'humidité des sols par télédétection spatiale, les micro-ondes qui ont une longueur d'onde allant de 1 millimètre à 1 mètre sont utilisées (Figure G.1). Au sein de cette fenêtre spectrale, des bandes de fréquence sont déterminées et nommées par une lettre. La bande L qui s'étend de 1 à 2 GHz pour des longueurs d'onde de 30 à 15 centimètres est celle utilisée par le capteur radiomètre du satellite SMAP (Soil Moisture Active Passive, NASA) à 1,41 GHz.

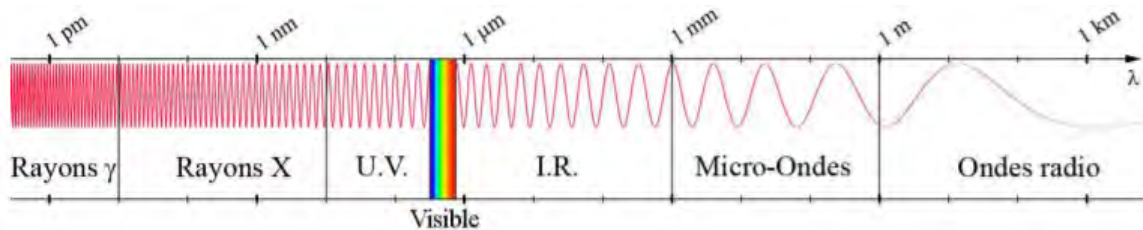


Figure G.1 – Le spectre électromagnétique et l'ensemble des fenêtres spectrales qui le compose ainsi que leurs bornes déterminées par la longueur d'onde.

La **télédétection passive** enregistre la quantité d'énergies électromagnétiques naturellement émise par tout corps ayant une température supérieure à 0°Kelvin [Njoku and Entekhabi, 1996]. Cette quantité d'énergie émise dépend essentiellement de la température et de la composition du corps et n'est pas équivalente dans toutes les longueurs d'ondes. Dans la fenêtre spectrale des micro-ondes, la quantité d'énergie émise par la Terre est très faible, inférieure d'un facteur quatre environ à l'émissivité maximale de la surface terrestre située dans le domaine spectral des infra-rouges. Le signal enregistré par le capteur en télédétection passive est ensuite ramené à une **température de brillance** exprimée en Kelvin. Elles résultent du produit de la température physique et de l'émissivité de l'objet ou de la surface observée selon l'équation :

$$TB_{\lambda} = e_{\lambda} \times T_{\lambda} \quad (\text{G.1})$$

où  $TB_{\lambda}$  est la température de brillance (Kelvin) d'un corps de température  $T$  en Kelvin ayant une émissivité  $e_{\lambda}$ , le tout à une longueur d'onde  $\lambda$ . Au cours de ces travaux, les données et produits d'humidité utilisés sont basés sur des mesures acquises par le capteur radiomètre de fréquence 1,41 GHz du satellite SMAP.

### G.1.1 La contribution des autres paramètres de surface

L'émissivité reçue par un radiomètre est le produit des contributions et atténuations provenant des différentes couches traversées, qu'il s'agisse du sol, de la végétation ou de l'atmosphère. Il est donc essentiel de comprendre la contribution de chacune afin d'en dissocier les informations et déterminer leur influence sur un biais de mesure de l'humidité du sol.

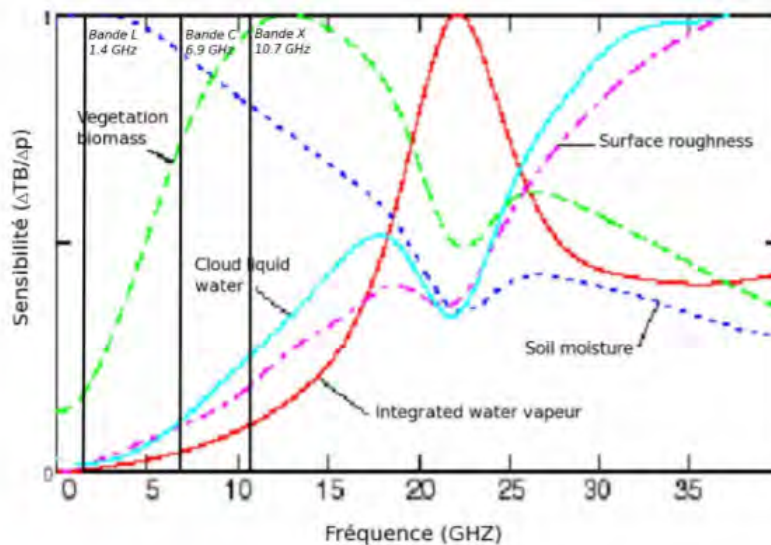


Figure G.2 – Sensibilités des longueurs d'onde aux différents paramètres : humidité du sol, végétation, rugosité du sol, vapeur d'eau et eau liquide [Gruhier, 2010].

L'**atmosphère** ne présente qu'un faible impact sur le signal micro-ondes puisqu'en télédétection passive, le signal est peu affecté par les composants gazeux de l'atmosphère à l'exception de l'influence de la vapeur d'eau et des molécules d'oxygène. Toutefois, les bandes d'absorption de l'oxygène se situent à des fréquences beaucoup plus élevées que celles utilisées par le radiomètre pour la détection des micro-ondes (Figure G.2). Les effets atmosphériques peuvent être négligés jusqu'à 10 GHz et considérés comme très faibles pour les longueurs d'onde inférieures à 15 GHz [Gruhier, 2010].

La **végétation** influence largement le signal micro-onde [Schmugge and Jackson, 1992]. Cependant, elle n'a que peu d'impact sur le signal en bande de fréquence L mais celui-ci augmente rapidement jusqu'à 12 GHz où la sensibilité est maximale (Figure G.2). L'impact de l'eau interceptée par la végétation n'est pas négligeable dans le cas de mesures micro-ondes de l'humidité du sol en raison de son influence sur l'augmentation de l'épaisseur optique de la végétation [Saleh et al., 2006].

Le sol notamment par sa topographie peut affecter le signal micro-onde. La **rugosité** qui désigne les irrégularités d'une surface a généralement pour effet d'augmenter l'émissivité de la surface mais également de réduire la sensibilité de l'émissivité aux variations de l'humidité du sol [Wang, 1983].

## G.2 Les différents niveaux de produit de SMAP

: De nombreux traitements doivent se succéder pour permettre de convertir des températures de brillance enregistrées par l'instrument à une image journalière, hebdomadaire ou mensuelle globale de l'humidité du sol. L'élimination du bruit, l'inversion de l'humidité ou l'utilisation de différentes grilles en sont des exemples concrets. Des procédures de calibration antérieures au lancement et l'utilisation de modèles hydrologiques permettent également de fournir des produits de niveau plus élaboré. L'ensemble des éléments techniques des algorithmes de traitement peut être trouvé dans les informations relatives à chaque produit. Au total, la mission SMAP génère 24 produits de données distribuables représentant quatre niveaux de traitement.

Au premier niveau, le L1, les températures de brillance sont reconstruites. Il s'agit d'un produit fourni par orbite selon la grille EASE-2 de résolution 9 kilomètres. Le niveau L2 marque l'application de l'algorithme d'inversion des températures de brillance. Le niveau L2 est donc un produit d'humidité du sol fourni par orbite selon la grille EASE-2 de résolution 9 kilomètres. Le niveau L3 concerne les produits d'humidité du sol développés par la NASA. Ce sont des produits de synthèse temporelle journalière extrapolés à partir des données acquises tous les 2 ou 3 jours.

## G.3 L'analyse des produits L4 de SMAP

Pour chaque jour, le niveau de produit L4 se décompose en 8 fichiers horaires commençant par celui des données d'humidité du sol estimées à 01h30 du matin et se termine avec le fichier à 22h30. Un pas horaire de 3 heures sépare chaque fichier du suivant. Il a été choisi de ne garder qu'une valeur journalière pour limiter les téléchargements chronophages du fait d'une variation négligeable de  $0,05 \text{ m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$  par jour. Un seul fichier est téléchargé et traité afin d'extraire une valeur d'humidité du sol moyenne pour chaque journée : le fichier de 13h30.

La procédure de téléchargement des fichiers journaliers de l'horaire 13h30 a été opéré sur toute la base de données consultable sur le site internet du *Distributive Active Archive Center* (DAAC) du *National Snow and Ice Data Center* (NSIDC) et couvre donc la période du 31 Mars 2015 au 31 Octobre 2020 pour le dernier fichier téléchargé et traité. Dans un premier temps, il faut s'assurer que des données sont exploitables pour les latitudes et les longitudes de la grille EASE-2 dans laquelle est situé le P2OA-CRA, ce qui est le cas. Dès lors, une routine de traitement a été développée en langage Python permettant à la fois de :

- Procéder au téléchargement automatique du fichier de données *13h30* de chaque journée à partir du site DAAC NSIDC. Une vérification automatique de l'horaire permet de s'assurer que le fichier souhaité est téléchargé.
- Lire le fichier de données au format *.h5* afin d'en extraire les valeurs des paramètres souhaités pour toutes les grilles EASE-2 de résolution 9 kilomètres utilisées par SMAP sur une emprise mondiale à savoir :
  - L'humidité du sol de la couche superficielle (0 - 5 cm) en  $\text{m}^3 \cdot \text{m}^{-3}$ ,

- L'humidité du sol au niveau de la zone racinaire (0 - 20 cm) en  $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ ,
  - L'humidité du sol pour un profil de sol de la surface à 1 mètre de profondeur en  $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ ,
  - La pression atmosphérique en mbar,
  - Les températures du sol déduites d'un modèle à 6 couches en Kelvin.
- Extraire les données des paramètres souhaités uniquement pour la grille EASE-2 sur laquelle est situé le site du P2OA-CRA. L'utilisation des latitude et longitude du site ( $43^\circ 07' 26''\text{N}$ ,  $0^\circ 22' 44''\text{E}$ ) a permis de procéder à la sélection de la grille de résolution 9 kilomètres.
  - Établir une base de données regroupant les valeurs de ces paramètres en fonction de la date de mesure pour la grille du site P2OA-CRA.
  - Faire une représentation cartographique pour chaque paramètre mesuré pour le site P2OA-CRA avec un fond de carte géographique correspondant à une ortho-photographie de résolution 20 cm provenant de l'*Institut national de l'information géographique et forestière* (IGN).

Cette routine de traitement permet de rapidement avoir accès à une valeur d'humidité du sol fonction de la grille EASE-2 utilisée par le satellite SMAP sur laquelle se situe le site étudié. Aucune procédure de calibration n'est nécessaire pour utiliser ces données ce qui peut être un compromis suffisant dans le cadre d'une campagne de mesures aéroportées qui se déroule sur un temps court d'une ou deux journées. Elles peuvent être favorisées dans le cas d'une impossibilité de déploiement technique ou humain (coût financier, confinement).







Application environnementale *via* la  
relation entre spectrométrie  $\gamma$  et humidité  
du sol.

---

## H.1 La relation entre spectrométrie $\gamma$ et humidité du sol à différentes échelles spatiales

La teneur en eau volumique du sol est une variable de la couche de surface du sol qui permet de suivre les échanges en eau réalisés entre la surface du sol, le compartiment atmosphérique et la biomasse. Son suivi permet d'étudier les processus hydrologiques dans cette couche de surface sur de larges échelles spatiales et temporelles et fournit donc des informations essentielles pour une compréhension plus approfondie des principaux processus d'échanges hydrologiques, biogéochimiques et énergétiques au sein du sol.

Ainsi, avoir des techniques de mesure aux échelles spatiales prédominantes, telles que la spectrométrie  $\gamma$ , dans le secteur agricole permettrait une agriculture de précision où l'efficacité de l'utilisation de l'eau est un enjeu mondial à l'heure du réchauffement climatique [Levidow et al., 2014]. Par conséquent, les avancées technologiques et méthodologiques pour des mesures précises de la variabilité spatiale, à l'échelle hectométrique, et temporelle de la teneur en eau du sol sont activement désirées [Robinet et al., 2018, Baldoncini et al., 2019].

### H.1.1 La spectrométrie $\gamma$ pour le suivi de l'humidité du sol à une échelle hectométrique, vers une agriculture de précision

Les capteurs de sol proximaux et distaux, à une altitude inférieure à 100 mètres, sont en plein développement pour comprendre les propriétés des sols et les processus hydrogéologiques en agriculture de précision. D'un côté, ils offrent une couverture spatiale relativement plus large que les capteurs *in situ* installés ponctuellement comme les sondes TDR et de l'autre, ils sont moins sujets aux facteurs d'interférence (effets atmosphériques, intensité de direction d'éclairage) par rapport aux méthodes traditionnelles de télédétection basées sur des images spectrales satellitaires [Barnes et al., 2003].

C'est dans ce cadre d'activité de l'agriculture de précision que les stations de mesure de spectroscopie  $\gamma$  installée en permanence à proximité du sol ou à plus haute altitude, par exemple 50 mètres, pourraient avoir tout leur sens. En termes d'exigences actuelles pour réduire la consommation en eau par irrigation, ces stations de mesure de la teneur en eau du sol par spectrométrie  $\gamma$  correspondent parfaitement au but à atteindre. Cette méthode de suivi est non-invasive et non-destructive et maintient donc la structure du sol intacte pendant la prise de données. Elles peuvent fonctionner de façon continue, comme le spectromètre déployé sur le site P2OA-CRA a pu le démontrer sur une période de 14 mois consécutifs, pour permettre une caractérisation de la dynamique temporelle de la teneur en eau volumique. Enfin, elles permettent d'intégrer des mesures à l'échelle spatiale hectométrique qui correspond à la taille standard d'un champ. La couverture spatiale réduite des stations de mesure de spectrométrie  $\gamma$  par rapport à celle de la télédétection satellitaire permet de gagner en précision.

Les propriétés physico-chimiques et le contenu radioactif naturel des sols agricoles peuvent être considérés comme quasi stables, ou du moins suffisamment maîtrisés et connus. C'est par exemple l'hypothèse qui a été retenue pour le site P2OA-CRA

étendu sur des prairies permanentes et temporaires où l'activité massique de plusieurs radionucléides à différentes énergies à été caractérisée.

Considérant que, dans la gamme énergétique des émissions  $\gamma$  naturelles habituellement surveillées par des mesures radiométriques ( $\simeq 1$  MeV), les éléments minéraux ont des coefficients d'atténuation massique comparables [Løvborg, 1984] qui sont différents de ceux de l'eau, il est possible de découpler ce système en une phase solide et une phase liquide.

Dans la gamme d'énergie mentionnée, l'interaction dominante des rayons  $\gamma$  est la diffusion Compton, dont la section efficace est essentiellement proportionnelle à la densité d'électrons  $Z/A$ . Comme les principaux constituants du sol ( $Z < 30$ ) ont des valeurs  $Z/A$  proches de 0,50 et considérant que l'eau a un  $Z/A$  fixe = 0,556, il s'avère que la valeur typique du rapport entre le coefficient d'atténuation massique de la partie solide et celui de l'eau est de 0,90. Cette dernière valeur correspond à la valeur adoptée par [Carroll, 1981, Grasty, 1997] dans le traitement de signaux issus des photopics aux énergies caractéristiques du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  provenant de relevés radiométriques aéroportés.

La relation entre l'humidité du sol et le signal  $\gamma$  est le point clé suggérant que la spectrométrie de rayons  $\gamma$  peut être une méthode opératoire utile pour en déduire la teneur en eau volumique du sol [Carroll, 1981, Grasty, 1997, Beamish, 2015]. Au moyen de simulations Monte-Carlo, une validation de principe de l'efficacité et de la fiabilité de la spectrométrie  $\gamma$  proximale et distale pour la détermination de l'humidité du sol a été proposée dans ces travaux et également investiguée par une étude de [Baldoncini et al., 2018a]. La relation entre humidité du sol et taux de comptage issus de la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée à une altitude de 50 mètres a, par exemple, montré toute sa robustesse pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{232}\text{Th}$  comme expliquée préalablement. D'une manière générale, la teneur en eau du sol  $w$  au temps  $t$  peut être déduite à partir de mesures de spectrométrie  $\gamma$ , à condition qu'une calibration du détecteur soit effectuée sur une base totalement indépendante de la teneur en eau du sol. C'est exactement le type de calibration qui a été réalisé dans cette thèse pour le spectromètre NaI(Tl) déployé sur le site P2OA-CRA.

La clé de l'évaluation de la teneur en eau du sol est donc le rapport entre le signal  $\gamma$  mesuré au moment de la calibration,  $N_{cal}$  exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ , pour lequel la teneur en eau,  $w^{cal}$  en  $\text{kg.kg}^{-1}$  est connue, et le signal  $\gamma$  mesuré au moment  $t$ ,  $N_t$  exprimé en  $\text{c.s}^{-1}$ . En considérant que le signal  $\gamma$  mesuré dans un photopic d'une énergie donnée est directement proportionnel à l'abondance du radionucléide et inversement proportionnel au coefficient d'atténuation massique du sol, l'équation suivante pour déterminer la teneur en eau du sol peut être utilisée [Carroll, 1981, Grasty, 1997, Baldoncini et al., 2018a]

$$w(t) = \frac{N_{cal}}{N_t} \times (0,90 + w_{cal}) - 0,90 \quad (\text{H.1})$$

avec la teneur en eau  $w$ , exprimée en  $\text{kg.kg}^{-1}$ , qui définit le rapport entre la masse d'eau (kg) sur celle de la phase solide sèche (kg).

La masse d'eau dans le sol peut être décomposée en deux termes : la masse d'eau remplissant les pores de la matrice de la phase solide et la masse d'eau structurale,

c'est-à-dire celle incorporée dans la formation de minéraux présents dans le sol. La distinction de la teneur en eau du sol sur la base de la répartition de l'eau permet de se concentrer sur deux aspects distincts. D'un côté, il est pertinent de reconnaître que l'agriculture de précision, visant à optimiser les ressources en eau, traite de l'eau distribuée dans les pores du sol et disponible pour le système racinaire. Deuxièmement, il devient clair que, selon la définition de la teneur en eau du sol exprimée en  $\text{kg.kg}^{-1}$ , l'équation H.1 ne peut être calibrée qu'au moyen de mesures gravimétriques traditionnelles opérées sur un échantillon de sol. En effet, comme ces dernières sont généralement effectuées par séchage de l'échantillon à  $105\text{ }^\circ\text{C}$  pendant 24 heures, l'échantillon sec comprendra toujours la masse d'eau structurale qui n'est pas évaporée à ces basses températures de chauffage. Dans cette perspective, des formules générales prêtes à l'emploi qui peuvent être facilement adoptées en agriculture de précision et, en même temps, facilement calibrées, vont faire intervenir les taux de comptage des photons  $\gamma$  dans les fenêtres des photopics des énergies caractéristiques du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ . Ces deux radionucléides présentant des relations avec l'humidité du sol tout à fait remarquables et préalablement étudiées, les équations s'écriront respectivement :

$$w_t^{40K} = \frac{N_{cal}^{40K}}{N_t^{40K}} \times [(0,901 \pm 0,009) + w_{cal}] - (0,901 \pm 0,009) \quad (\text{H.2})$$

avec le facteur  $0,901 \pm 0,009$  calculé à partir du rapport entre les coefficients d'atténuation massique, exprimés en  $\text{m}^2.\text{g}^{-1}$ , dans un sol de 100 %  $\text{SiO}_2$  et l'eau issus des tables NIST pour une énergie de 1461 keV.

$$w_t^{232Th} = \frac{N_{cal}^{232Th}}{N_t^{232Th}} \times [(0,911 \pm 0,011) + w_{cal}] - (0,911 \pm 0,011) \quad (\text{H.3})$$

avec le facteur  $0,911 \pm 0,011$  calculé à partir du rapport entre les coefficients d'atténuation massique, exprimés en  $\text{m}^2.\text{g}^{-1}$ , dans un sol de 100 %  $\text{SiO}_2$  et l'eau issus des tables NIST pour une énergie de 2615 keV.

Les équations H.2 et H.3 fournissent respectivement la teneur gravimétrique en eau du sol qui est déduit des signaux  $\gamma$  du photopic d'énergie 1461 keV pour le  $^{40}\text{K}$  et du photopic 2615 keV pour le  $^{232}\text{Th}$ . Les termes  $N_{cal}$  et  $N_t$ , exprimés en  $\text{c.s}^{-1}$ , sont, pour chaque fenêtre d'énergie, les taux de comptage enregistrés dans le photopic respectivement au moment de la calibration signal  $\gamma$ -humidité et au temps de la mesure environnementale  $t$ .  $w_{cal}$  et  $w_t$  sont respectivement la teneur gravimétrique en eau du sol au moment de la calibration signal  $\gamma$ -humidité et au moment de la mesure environnementale  $t$ .

### H.1.2 Application du suivi de l'humidité du sol par spectrométrie $\gamma$ sur le site P2OA-CRA

Suite aux relations établies entre signal  $\gamma$  et humidité du sol sur le site P2OA-CRA, une étude complémentaire a été initiée centrée sur l'utilisation du NaI(Tl) comme sonde de suivi de l'humidité pour une échelle spatiale hectométrique sur cette période de 14 mois.

Les mesures de teneur en eau gravimétrique ont été réalisées au sein de cette campagne instrumentale de 14 mois pour permettre une vérification des valeurs

d'humidité mesurées dans la couche de surface du sol par les sondes TDR. Ces prélèvements d'échantillon ont également été utilisés pour vérifier la constance de la densité apparente du sol sec au cours de la période.

Pour utiliser les équations H.2 et H.3, il est nécessaire d'avoir procédé au préalable à une calibration du signal  $\gamma$  avec la teneur en eau gravimétrique correspondant. Bien sûr, la teneur en eau gravimétrique mesurée est ponctuelle spatialement et est appliquée à toute la zone d'emprise du détecteur. L'hypothèse d'un sol homogène latéralement et sur un horizon de sol atteignant les 30 cm de profondeur est considérée. Ainsi, trois mesures gravimétriques sur toute la surface couverte par le spectromètre NaI(Tl) ont été réalisées la même journée, le 17 Juin 2019, à environ 1 heure d'intervalle entre les trois prélèvements d'échantillons. Ces échantillons de sol ont été prélevés selon les normes en vigueur, pesés puis séchés dans un four pendant 24 heures à une température constante de 105 °C. Les masses des échantillons secs connues, les teneurs en eau gravimétrique ont été calculées puis moyennées pour appliquer une valeur unique de teneur en eau sur la zone de mesure au sol du spectromètre placé à 50 m de hauteur. Associés à cette teneur en eau gravimétrique, les taux de comptage enregistrés sur la période de prélèvement des échantillons de sol ont également été moyennés dans le but d'obtenir une valeur unique du signal  $\gamma$  de  $^{40}\text{K}$  et de  $^{232}\text{Th}$ .

Les valeurs des différents paramètres nécessaires à la calibration sont :

- $w_{cal} = 0,367 \text{ kg.kg}^{-1} = 0,306 \text{ m}^3.\text{m}^{-3}$
- $N_{cal}^{40K} = 48,14 \text{ c.s}^{-1}$
- $N_{cal}^{232Th} = 28,42 \text{ c.s}^{-1}$

Ainsi, la calibration du signal  $\gamma$  des deux radionucléides cités avec la teneur en eau gravimétrique est mise en place pour le site P2OA-CRA. Un autre point à aborder avant d'utiliser les équations H.2 et H.3, est le résultat donné par ces formules. Les teneurs en eau gravimétriques qui résultent de ces équations sont exprimées en  $\text{kg.kg}^{-1}$ . Les sondes TDR mesurent en continu les teneurs en eau volumique *in situ*, exprimées en % volumique, à différentes profondeurs dans le sol.

Pour comparer les valeurs de teneur en eau obtenues avec les mesures *in situ* réalisées par les sondes TDR, exprimées en %, et celles calculées par les équations de suivi de l'humidité par les signaux  $\gamma$ , il va falloir convertir les teneurs en eau gravimétrique en teneur en eau volumique. Les teneurs en eau gravimétrique déterminées par les deux équations, du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , ainsi converties en teneurs en eau volumique (% vol.) vont pouvoir être comparées à celles mesurées *in situ* par les sondes TDR.

Les teneurs en eau gravimétrique qui ont été calculées à partir des signaux  $\gamma$  dans les photopics du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  mesurés par le spectromètre sur une base horaire à partir des équations H.2 et H.3 ont ensuite été exprimées en teneur en eau volumique (% vol.). Le jeu de données utilisé est celui filtré des précipitations. À partir de ces valeurs calculées, deux représentations graphiques comparant ces humidités du sol déterminées par les signaux  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b), exprimées en  $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ , en fonction des humidités du sol mesurées *in situ* pour la couche de surface du sol (0 - 5 cm), exprimées en  $\text{m}^3.\text{m}^{-3}$ , sont indiquées sur la figure H.1.

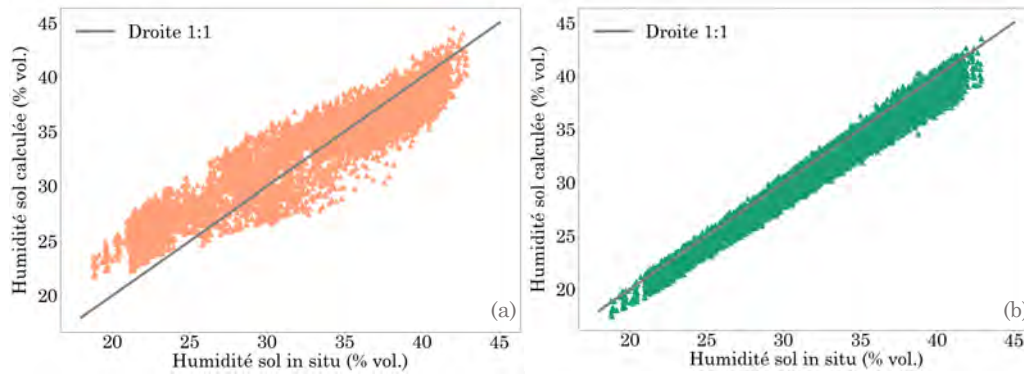


Figure H.1 – Teneur en eau volumique calculée à partir des taux de comptage du  $^{40}\text{K}$  (a) et du  $^{232}\text{Th}$  (b) mesurés par la spectrométrie  $\gamma$ , avec une calibration ponctuelle de la teneur en eau gravimétrique, en fonction de l’humidité du sol *in situ* suivi par les sondes TDR sur la couche de surface de sol comprise entre 0 et 5 cm.

Pour le photopic du  $^{40}\text{K}$  à 1461 keV (Figure H.1 a), les teneurs en eau volumique calculées présentent une gamme de variation de 21,8 % à 44,6 % vol. et les teneurs en eau volumique mesurées *in situ*, 18,8 à 42,9 % vol. Les bornes minimales et maximales observées sont proches. Un décalage positif d’environ 3 % est constaté entre les valeurs minimales. Cet écart est plus restreint pour les valeurs maximales, 1,7 %. La dispersion des points se fait autour d’une droite 1 :1 avec toutefois une visibilité sur ce décalage décrit précédemment au niveau des plus faibles valeurs. Le coefficient de corrélation atteint la valeur de 0,97 ce qui montre une très bonne relation positive entre ces deux jeux de données.

Sur la figure H.1 (b) pour le photopic du  $^{232}\text{Th}$  à 2615 keV, le coefficient de corrélation est de 0,99 et valide la relation existant entre les données mesurées et calculées de teneur en eau. Les teneurs en eau volumique calculées par l’équation H.3 ont une gamme de variation comprise entre 17,5 et 43,6 % vol, légèrement supérieure à celle des données mesurées ( $\sim 2$  % vol.). La dispersion des points se fait autour d’une droite 1 :1 avec un écart moyen de 2 % pour une valeur d’humidité du sol mesurée *in situ* constante.

D’après ces observations, le décalage sur les valeurs minimales observées sur le graphique du  $^{40}\text{K}$  n’est pas visible sur le graphique du  $^{232}\text{Th}$ . Il semble que les valeurs calculées de teneur en eau à partir des signaux  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  au cours de période sèche soient surestimées par rapport à celles mesurées *in situ*.

La cause principale à privilégier est un profil de teneur en eau volumique ou de potassium hétérogène entre la surface et la profondeur puisque les photons  $\gamma$  de  $^{40}\text{K}$  et de  $^{232}\text{Th}$  n’ont pas les mêmes énergies.

Dès lors qu’un sol présente des propriétés physico-chimiques et un contenu radioactif naturel constant et homogène dans le temps, par l’intermédiaire des signaux  $\gamma$  du  $^{40}\text{K}$  et du  $^{232}\text{Th}$  mesurés par spectrométrie  $\gamma$ , le suivi de la teneur en eau gravimétrique du sol pourra être réalisé. Cette technique non invasive et non destructive pour les sols et qui couvre l’emprise spatiale d’un champ peut permettre d’aider l’agriculture à se tourner vers une consommation d’eau plus raisonnée. En effet, le système de culture est soumis à un développement très dynamique généra-



lement affecté par des conditions climatiques variables et des pratiques de gestion de l'irrigation pour assurer son approvisionnement en eau souvent dépendantes des mesures de suivi de l'humidité dans le sol.

Les sondes TDR sont coûteuses à installer, et sont invasives, mais permettent d'intégrer l'humidité un peu en profondeur, ce qui fait sens en agriculture. En revanche, la télédétection satellitaire ne sonde que la couche superficielle du sol, jusqu'à 5 cm en fonction des terrains. La spectrométrie  $\gamma$  intègre aussi à quelques dizaines de centimètres de profondeur dans le sol. Il s'agit donc d'un atout important pour l'agriculture car l'eau dans la zone racinaire des plantes peut être estimée jusqu'à une profondeur de 50 cm environ en fonction des paramètres du sol.

Cette technique à mi-chemin entre les mesures ponctuelles en contact du sol, *in situ*, et les mesures kilométriques à distance, par satellite, nécessite désormais une adaptation à ce type d'application. Un volume de détecteur moins important, réduisant de fait son poids et son coût, permettrait une plus grande généralisation de ce type de suivi de l'humidité du sol dans des champs cultivés. Une première étude sur ce sujet a été proposée pour assurer le suivi de la teneur en eau gravimétrique d'un champ de plants de tomates par spectrométrie  $\gamma$  proximal avec un cristal de NaI(Tl) de 1 L, en Italie [Baldoncini et al., 2019], et pour comprendre également l'influence de la biomasse sur le signal  $\gamma$  mesuré. En effet, l'un des points soulevés dans cette étude est l'impact que peut avoir une biomasse croissante, ce qui est le cas des cultures, sur les taux de comptage mesurés par spectrométrie utilisés dans la détermination de la teneur en eau gravimétrique. Une proposition de coefficient correcteur en fonction du stade de développement des plants fait d'ailleurs partie des conclusions proposées.



# Étude de l'influence des facteurs environnementaux sur la spectrométrie gamma aéroportée et application à la surveillance environnementale de sites.

Julien Amestoy - 2021

Thèse de l'Université de Toulouse III Paul Sabatier sous la direction de Pierre-Yves Meslin et David Baratoux.

---

## Résumé

---

La spectrométrie  $\gamma$  aéroportée est une technique de mesure efficace pour établir un bilan radiologique ponctuel d'un site de grande étendue. Son application à la surveillance environnementale nécessite une répétabilité temporelle des mesures de concentration des radionucléides dans le sol. L'objectif de la thèse est de s'affranchir des différents biais de mesure pour isoler le signal  $\gamma$  émis depuis le sol. Une campagne de spectrométrie  $\gamma$  simulant un vol stationnaire d'une durée de 14 mois été entreprise sur un site pilote instrumenté pour caractériser les facteurs environnementaux influant sur les mesures  $\gamma$ . Un protocole de correction prenant en compte le bruit de fond instrumental, l'influence des rayonnements cosmiques, du radon-222 atmosphérique, des précipitations et de l'humidité du sol, est proposé. Ce protocole permet d'assurer la reproductibilité temporelle des mesures de concentration des radionucléides dans le sol via la spectrométrie  $\gamma$  aéroportée.

**Mots clés :** Spectrométrie  $\gamma$  aéroportée, surveillance environnementale, scintillateur NaI(Tl), Uranium-Thorium-Potassium-Césium, humidité du sol,  $^{222}\text{Rn}$ .

---

## Abstract

---

Airborne  $\gamma$ -ray spectrometry is an efficient technique to carry out the radiological assessment of a site of large spatial extent. Its application to environmental monitoring requires temporal repeatability of radionuclides' concentration measurements in the soil. The objective of the thesis is to overcome various measurement biases in order to isolate the  $\gamma$  signal emitted from the ground. A 14 month-long campaign simulating an airborne hover was undertaken on an instrument study site to characterize the influence of environmental factors affecting the measurement. A correction protocol taking into account the instrumental background, the influence of cosmic radiation, atmospheric radon-222, rain events and soil moisture, is proposed. This protocol, validated by observations and simulations, makes it possible to ensure the temporal reproducibility of soil radionuclides concentration measurements.

**Keywords :** Airborne  $\gamma$ -ray spectrometry, environmental survey, NaI(Tl) scintillator, Uranium-Thorium-Potassium-Caesium, soil moisture,  $^{222}\text{Rn}$ .