



Etude expérimentale et numérique de la dégradation de la mesure nucléaire d'aérosols radioactifs prélevés avec des filtres de surveillance

Tony GERYES
Septembre 2009
ISRN/IRSN-2010/123

Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols

**UNIVERSITE PARIS-EST
FACULTE DES SCIENCES DE CRETEIL**

THESE DE DOCTORAT

présentée en vue d'obtenir le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PARIS-EST

Spécialité : Sciences de l'Ingénieur

Par

Tony GERYES

**ETUDE EXPERIMENTALE ET NUMERIQUE DE LA DEGRADATION DE LA
MESURE NUCLEAIRE D'AEROSOLS RADIOACTIFS PRELEVES AVEC DES
FILTRES DE SURVEILLANCE**

soutenu le 22 septembre 2009 devant le jury

Président	D. THOMAS	Professeur, Université Henri Poincaré, Nancy
Rapporteurs	A. NOURREDDINE	Professeur, Université Pasteur, Strasbourg
	G. TYMEN	Professeur, Université de Bretagne Occidentale, Brest
Examineurs	Ph. CASSETTE	Expert international au CEA, Gif sur Yvette
	Ph. BEGUINEL	Docteur, Chercheur au CEA, Gif sur Yvette
	Y. CANDAU	Professeur, Université Paris-Est
Directeur de thèse	E. GEHIN	Professeur, Université Paris-Est
Encadrant de thèse	C. MONSANGLANT	Docteur, Chercheur à l'IRSN, Gif-Sur Yvette

IRSN, DSU, Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et en
Confinement, 91192 Gif-sur-Yvette, France

J'adresse tout d'abord mes remerciements à Monsieur Jean-Claude Laborde, chef du SERAC (Service d'Etudes et de Recherches en Aérodispersion des polluants et Confinements), pour m'avoir accepté dans son service et permis de faire mes preuves.

Je remercie également Monsieur François Gensdarmes, chef du LPMA (Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols), pour son accueil au sein de son laboratoire.

Ce travail a été sous la direction de Madame le professeur Evelyne Gehin, qui a su m'orienter et répondre à mes questions tout au long de cette thèse. Je la remercie très respectueusement.

Je remercie vivement et sincèrement l'encadrant de cette thèse Madame Céline Monsanglant-Louvet, ingénieur-chercheur au LPMA, tout d'abord pour m'avoir conseillé, soutenu et accompagné tout au long de cette thèse. Merci aussi pour le temps que tu as consacré aux différentes étapes de ma rédaction. Je ne peux bien sûr pas oublier Monsieur Jacques Vendel, Ex-chef du LPMA, ingénieur-chercheur à l'IRSN qui m'a fait profiter de ses conseils, de son expertise, éclairés par des années de professionnalisme au LPMA. Merci pour tous les conseils que vous m'avez donnés.

Je suis également reconnaissant envers Monsieur Philippe Cassette, ingénieur-expert au CEA/LNHB (Laboratoire National Henri Becquerel), pour m'avoir ouvert les portes de son laboratoire afin d'y réaliser des mesures par la technique de scintillation liquide. Je vous remercie également, pour avoir relu ce manuscrit.

Je remercie vivement mes collègues de l'IRSN Monsieur Cédric Aubert, Jean-Christophe Sabroux et Monsieur Lionel Berger. Lionel, merci pour tes conseils scientifiques stimulants et ton implication au niveau du code MCNPX. Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur Andreas Wiegmann de l'institut de Fraunhofer (ITWM) d'avoir mis à notre disposition une version gratuite de GeoDict, pour sa confiance et pour les discussions enrichissantes que nous avons pu mener.

Merci à Monsieur Dominique Thomas Professeur à l'université Henri Poincaré de Nancy pour avoir accepté la présidence de ce jury de thèse. Merci aux Messieurs Abdel-mjid Nourreddine, Professeur de l'université Louis Pasteur de Strasbourg et Georges Tymen, Professeur à l'université de Bretagne Occidentale de Brest pour m'avoir fait l'honneur d'être rapporteurs pour ma thèse.

Je veux également remercier Monsieur Philippe Béguinel, ingénieur-expert au CEA/SPR et Monsieur Yves Candau professeur de l'université Paris Est, pour avoir fait partie de ce jury.

Ces remerciements ne seraient pas complets sans mentionner Messieurs Josef Bechara (Faculté de Sciences Fanar- Liban) ainsi que Antoine Gauche (American University of Bierut) pour l'orientation professionnelle qu'ils ont assurée 4 ans auparavant.

Mes remerciements vont également à tous les membres du SERAC que j'ai pu côtoyer lors de mes 3 ans de thèse, à Nathalie, FiX, Apero, Laurent, Alexandra, Guy, GG, Catherine, à tous les techniciens qui m'ont aidé dans la mise en place des manipulations, notamment Nadia Sébastien, Audrey, Aurélie (SPR), DOM, Mika et Sylvain², à tous les doctorants notamment Clothilde, Charles, Marjo, Jérôme, Roger, P-Y, Aurélie, Pascal, Christophe, Philippe, Denis... ainsi qu'aux stagiaires Pauline, Thomas², Claire, Emilie, Thibaut,... Merci à tous ceux qui ont fait de ma thèse un agréable moment de part leur bonne humeur et leur sympathie.

J'aimerais remercier également mes amis «internationaux» : Wissam, Etienne², Steve, Roger, MT, Georges, David, Wassim, Charly, Mariana, Maroun, Samer et tous ceux que j'ai rencontrés en France... Je vous souhaite tout le meilleur pour l'avenir.

Enfin, et pas les moindres, j'adresse un grand merci à mes parents, mes frères et Bouchra qui ont su toujours m'encourager pendant les moments difficiles. Merci pour votre soutien tout au long de ces années !

Table des matières

TABLE DES MATIERES	5
Introduction générale.....	9
Chapitre I. Contexte de l'étude et état de l'art.....	13
1. Introduction	13
2. Introduction sur la radioactivité α	14
3. Etudes bibliographiques sur la dégradation de la radioactivité mesurée dans les filtres	15
3.1. L'auto-absorption de l'énergie des rayonnements α dans les aérosols porteurs des radionucléides	15
3.1.a. Définition des aérosols	15
3.1.b. Dégradation de la mesure nucléaire des α dans les aérosols porteurs des radionucléides	16
3.2. L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans la matière constituant le filtre.....	18
3.2.a. Généralité sur la filtration	18
3.2.b. Les types de filtres.....	19
3.2.c. Dégradation de la mesure nucléaire dans les filtres.....	21
3.3. L'absorption de l'énergie des rayonnements α due à l'enfouissement des aérosols radioactifs en profondeur dans le filtre.....	24
3.3.a. Mécanismes de capture en filtration	24
3.3.b. Dégradation de la mesure nucléaire due aux mécanismes de capture.....	24
3.4. L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans les masses d'aérosols non-radioactifs accumulés dans/sur le filtre	25
3.4.a. Modes de dépôt d'aérosols en fonction du temps de prélèvement.....	25
3.4.b. Dépôt d'aérosols en profondeur du filtre	26
3.4.c. Dépôt d'aérosols en surface du filtre	27
3.5. L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans l'air séparant la source du détecteur	28
4. Mesure de la radioactivité α sur les filtres.....	29
4.1. Compteur proportionnel à gaz.....	29
4.2. Détecteur à semi-conducteur.....	31
4.3. Méthode de référence de mesure de la radioactivité α sur les filtres	32
4.3.a. Principe de la scintillation liquide	32
4.3.b. Réponse lumineuse dans un liquide scintillateur	33
4.3.c. Principe de la mesure par scintillation liquide	34
4. Conclusion	36
Chapitre II. Élaboration expérimentale de filtres radioactifs de référence	37
1. Introduction	37

2.1.	Description du banc d'essais ICARE.....	38
2.2.	Montage expérimental.....	39
2.2.a.	Principe de la pulvérisation ultrasonore.....	39
2.2.b.	Production d'aérosols radioactifs.....	41
2.2.c.	Contrôle de la granulométrie.....	42
2.2.d.	Etude à l'aide de l'impacteur Andersen Mark II.....	42
2.2.e.	Etude à l'aide de l'impacteur LPI.....	45
2.3.	Contrôle de l'activité volumique.....	47
2.4.	Optimisation du prélèvement de la veine principale.....	48
2.5.	Porte-filtre utilisé dans les expériences.....	49
2.6.	Homogénéité du dépôt surfacique d'aérosols sur les filtres.....	50
3.	Préparation des filtres radioactifs de référence.....	51
3.1.	Préparation des filtres radioactifs de référence faiblement chargés en masse d'aérosols.....	51
3.2.	Préparation des filtres radioactifs de référence chargés en masse d'aérosols.....	53
3.3.	Déroulement des expériences.....	57
4.	Conclusion.....	58
Chapitre III. Détermination expérimentale des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant.....		59
1.	Introduction.....	59
2.	Facteurs de correction expérimentaux en fonction des conditions de filtration. Cas de filtres non chargés en masse d'aérosols.....	60
2.1.	Expériences avec des aérosols de DAMA égal à 4 μm	63
2.2.	Expériences avec des aérosols de DAMA égal à 0,4 μm	65
3.	Étude de la pénétration des aérosols en profondeur dans les filtres de surveillance.....	67
3.1.	Etat de l'art sur la pénétration des aérosols dans les filtres à fibres.....	67
3.2.	Compacité des particules dans le filtre.....	68
3.3.	Matériels et méthodes.....	69
3.4.	Pénétration des aérosols en profondeur des filtres ; effet sur la spectrométrie des rayonnements α	73
3.4.a.	Expériences avec des aérosols de DAMA de 4 μm	73
3.4.b.	Expériences avec des aérosols de DAMA = 0,4 μm	79
3.5.	Discussion sur les résultats obtenus par spectrométrie α : exemple pour des filtres non-chargés en masse d'aérosols.....	84
4.	Résultats des facteurs de correction de l'activité mesurée en fonction des conditions de filtration. Etude de l'effet sur les filtres chargés en masse d'aérosols.....	86

4.1.	Caractéristique du dépôt de masse d'aérosols	86
4.2.	Description du point de transition	87
4.3.	Résultats et interprétations de la dégradation de la mesure nucléaire.....	89
5.	Étude de la dégradation du spectre en énergie des filtres préparés avec un mélange de masses d'aérosols radioactifs et non-radioactifs.....	92
6.	Conclusions	95
Chapitre IV. Détermination numérique des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant.....		97
1.	Simulation numérique de la filtration	98
1.1.	Modélisation de la géométrie d'un filtre poreux plan avec GeoDict.....	99
1.2.	Simulation de la dynamique des fluides dans le code GeoDict.....	101
1.3.	Transport des particules dans le code GeoDict	105
1.3.a.	Principe des méthodes lagrangiennes du suivi des particules	105
1.3.b.	Généralités	105
1.3.c.	Forces s'exerçant sur une particule isolée.....	106
1.4.	Validation des simulations de la filtration avec GeoDict.....	110
1.5.	Étude numérique de la pénétration des aérosols dans les filtres à l'aide de GeoDict.....	116
1.6.	Conclusion	120
2.	Simulation par calcul Monte Carlo (MC)	121
2.1.	Les méthodes Monte Carlo.....	122
2.1.a.	Principe de la méthode Monte Carlo	122
2.1.b.	Variables aléatoires.....	123
2.1.c.	Simulation du transport des particules alpha	123
2.2.	Le code MCNPX.....	124
2.2.a.	Définition des surfaces	125
2.2.b.	Définition des cellules	125
2.2.c.	Définition des données	126
2.2.c.a.	Définition des sources	126
2.2.c.b.	Définition de la source utilisée dans cette étude	126
2.2.d.	Définition des « tallies »	127
2.3.	Définition des matières.....	128
2.4.	Définition des énergies	128
2.5.	Calcul d'incertitude du code MC	128
2.6.	Procédure de simulation	129

2.7. Validation des options physiques des rayonnements α	129
2.8. Evaluation de la modélisation d'un filtre (géométrie cylindrique) avec un dépôt homogène des α dans tout le cylindre	131
2.9. Modélisation d'un filtre avec tirage α biaisé dans tout le cylindre non-chargé en masses d'aérosols	133
2.10. Modélisation de filtre chargé en masses d'aérosols sur la surface	137
2.11. Simulation numérique du taux de détection pour les géométries d'un filtre C357 avec tirage biaisé dans tout le cylindre	140
2.12. Conclusion	141
3. Application des simulations GeoDict et MCNPX à l'étude numérique de l'auto-absorption des rayonnements α dans les filtres de surveillance de la radioactivité	142
3.1. Simulation GeoDict du profil de pénétration des aérosols dans les filtres	142
3.2. Simulation MCNPX de la spectrométrie α de la radioactivité du filtre	143
3.3. Mesures expérimentales	144
3.4. Détermination de facteurs de correction de la radioactivité pour le filtre C577	146
4. Conclusion	146
CONCLUSIONS GENERALES	147
RÉFÉRENCES	151
ANNEXE A	159
ANNEXE B	163
ANNEXE C	171
ANNEXE D	173
ANNEXE E	175
LISTE DE PUBLICATIONS ET DES COMMUNICATIONS	179
LISTE DES FIGURES	182
LISTE DES TABLEAUX	187
LISTE DES SYMBOLES	189
Acronymes	193
RESUME	195

Introduction générale

La radioactivité à laquelle est exposé l'être humain provient de deux sortes de sources : les sources naturelles et les sources artificielles (figure 1).

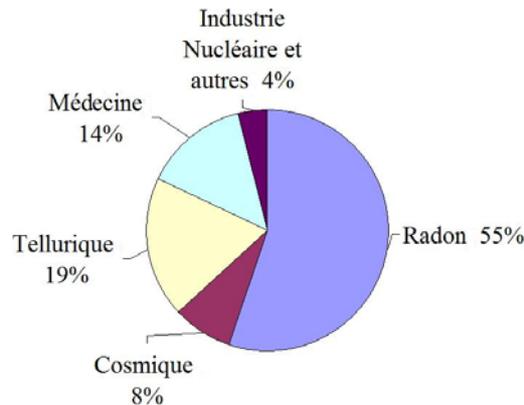


Figure 1 : Sources de radioactivité (CIPR 1994).

La radioactivité naturelle est due principalement :

- aux rayonnements cosmiques, de très haute énergie cinétique, qui créent dans les couches supérieures de l'atmosphère des noyaux légers comme le ^7Be , ^{22}Na , etc.
- à la désintégration de l'uranium et des descendants du gaz radon et du thoron provenant de la famille de l'uranium contenus dans la terre. Il s'agit de noyaux lourds tels que le ^{218}Po , ^{214}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , etc.

La radioactivité anthropogénique est plus variée. Elle provient essentiellement des retombées des essais nucléaires atmosphériques, des accidents de réacteurs nucléaires ainsi que, dans une moindre mesure, des rejets d'effluents radioactifs dans l'environnement. Les essais aériens d'armes nucléaires effectués entre 1945 et 1980 (par les Etats-Unis, l'Union soviétique, le Royaume-Uni, la France et la Chine) ont provoqué, à l'échelle planétaire, des retombées de radionucléides artificiels étalées sur plusieurs années. Les produits de fission sont nombreux et constituent des noyaux lourds comme le ^{137}Cs , ^{131}I , ^{90}Sr , ^{55}Fe , ^{45}Ca , etc.

A titre d'exemple, le suivi du ^{137}Cs effectué en France dans l'atmosphère au cours du temps est présenté à la figure 2. Nous constatons que tous les tirs et les accidents survenus dans le monde ont été détectés sur le territoire français. Cette figure montre une hausse significative de l'activité volumique atmosphérique entre les années 1958 et 1980 suite aux tirs d'essais des bombes nucléaires, mais toutefois avec une tendance baissière après les tirs russes et américains. En outre, plusieurs accidents majeurs dans le nucléaire civil ont aussi marqué

l'histoire avec des activités en ^{137}Cs parfois 100 fois plus élevées que les tirs de bombes. Cependant, depuis l'interdiction des essais des armes nucléaires (TICE), l'activité volumique du ^{137}Cs dans l'air a diminué progressivement pour passer au dessous de $1 \mu\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$.

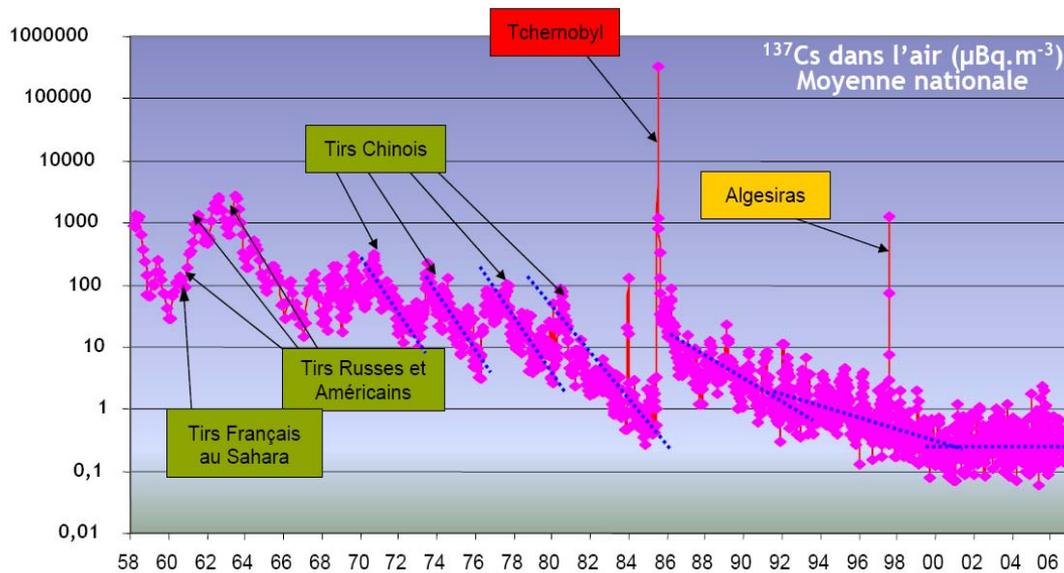


Figure 2 : Suivi du Césium-137 atmosphérique pendant les 50 dernières années sur le territoire français (Réseau OPERA, IRSN).

Les centres nucléaires assurent une surveillance systématique de leurs sites et de leur environnement immédiat par un contrôle continu de leurs rejets. Ils rendent compte de leurs mesures aux autorités de tutelle en charge de la santé, de l'industrie et de l'environnement. En outre, l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN) assure, à l'aide de ces réseaux de surveillance à proximité des sites, une surveillance permanente de la radioactivité de l'environnement. Sur l'ensemble du territoire français, la surveillance de l'état radiologique de l'environnement est assurée afin de détecter aussi rapidement que possible et de caractériser toute élévation anormale de la radioactivité pouvant par exemple résulter d'un accident. Cette surveillance contribue également à évaluer la distribution spatiale et temporelle de la radioactivité ainsi que l'exposition de la population. Cette surveillance est assurée par un suivi de l'exposition gamma ambiante ainsi que par des mesures sur des prélèvements de la radioactivité des particules atmosphériques, des cours d'eaux et de la chaîne alimentaire.

Afin de réaliser ce suivi, l'IRSN réalise la surveillance atmosphérique tout au long de l'année à l'aide de réseaux de télésurveillance (Téléray, SARA) ainsi que la surveillance par des mesures effectuées a posteriori à l'aide des réseaux de prélèvement d'air au sol (AS) et de l'observatoire permanent de la radioactivité dans l'environnement (OPERA). Ce dernier,

fonctionnant depuis 1959, permet la détection de la radioactivité alpha (α) et bêta (β) à très bas niveau (Calmet *et al.* 1994, Charmasson 1999, Barker *et al.* 2001).

Généralement, la surveillance de la radioactivité α et β (rayonnements ionisants de faible parcours dans l'air) dans l'environnement se fait à l'aide de prélèvements séquentiels sur filtres et/ou en prélèvement continu par des balises. Le prélèvement sur filtres, à grand débit volumétrique, assure le suivi des événements radioactifs naturels ou artificiels de bas niveau, mais aussi des rejets et des événements de faible radioactivité situés au niveau du bruit de fond. Le système de balises, à plus faible débit volumétrique, assure par télésurveillance le suivi en continu et en temps réel des événements majeurs et des rejets de radioactivité à proximité des usines nucléaires. Ce système de télésurveillance permet ainsi de déclencher une alerte en cas d'augmentation anormale de la radioactivité ambiante.

La mesure de la radioactivité α échantillonnée sur filtre se fait généralement par comptage des rayonnements ionisants à l'aide de compteurs proportionnels ou de spectromètres α . Toutefois, la mesure de la radioactivité α déposée sur les filtres demeure une difficulté majeure en raison de la dégradation d'une partie de cette radioactivité par absorption dans le filtre lui-même et dans les amas de particules (aérosols) accumulés en surface du filtre. Cette contrainte agit sur le rendement de détection des rayonnements par le détecteur nucléaire et peut conduire à une sous-estimation de la radioactivité d'un facteur ~ 2 d'après les études antérieures (Parnianpour 1967, Higby 1984, Luetzelschwab *et al.* 2000, Grivaud *et al.* 2004). D'autres méthodes plus précises de la mesure de la radioactivité α et β déposée sur les filtres existent et peuvent servir comme mesure de référence pour déterminer la radioactivité réelle dans les filtres. Il s'agit de l'analyse par radiochimie ou par scintillation liquide (SL). Ces méthodes, souvent très longues et difficiles à mettre en œuvre, ne permettent pas de conserver l'échantillon pour l'archivage (méthodes destructives).

Dans ce contexte, l'objectif de ce travail porte sur deux aspects principaux. Le premier concerne l'étude expérimentale, par des méthodes de mesures non-destructives, de la dégradation de la radioactivité α face aux mécanismes de dépôt des aérosols dans divers types de média filtrants. Cette étude a nécessité la préparation de filtres radioactifs de référence simulant le plus possible les conditions réelles afin de déterminer expérimentalement des facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité dans les média filtrants. Le second aspect concerne la mise au point d'une nouvelle méthode de détermination numérique de ces facteurs de correction permettant de s'affranchir de la nécessité de préparation de filtre de référence très lourde à mettre en œuvre.

Le premier chapitre présente un bref aperçu des principales lois physiques auxquelles sont soumis les aérosols lors de la filtration des radioéléments dans l'air ainsi que de la littérature sur les facteurs physiques dégradant la mesure de la radioactivité α artificielle par les détecteurs nucléaires. Les méthodes de mesures nucléaires sont également décrites.

Le deuxième chapitre décrit le banc d'essais utilisé dans cette étude pour élaborer les filtres de référence. Les expériences préliminaires effectuées sur ce banc, afin de contrôler et de valider les paramètres liés à la bonne production des filtres radioactifs de référence, sont également décrites. Des grilles d'expériences sont ensuite présentées et commentées. Elles permettent d'élaborer les filtres radioactifs de référence nécessaires à la validation des différents mécanismes entrant en jeu dans la dégradation de la mesure de la radioactivité dans un filtre (granulométrie, type de filtre, etc.).

Le troisième chapitre est consacré à la détermination expérimentale des facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité dans les filtres. Une étude de l'influence des mécanismes de dépôt des aérosols radioactifs dans les filtres sur la mesure de la radioactivité est ainsi présentée. La première partie concerne les problématiques de mesures nucléaires avec des détecteurs de rayonnements α . La deuxième partie de ce chapitre étudie la pénétration des aérosols dans le médium filtrant. La troisième partie étudie un des paramètres les plus importants, à savoir l'influence des masses d'aérosols prélevés, en profondeur puis en surface du filtre, sur la dégradation de la mesure nucléaire. La dernière partie évalue, par la spectrométrie α , la dégradation de la radioactivité dans les filtres et les masses d'aérosols accumulés.

Le quatrième chapitre propose une méthode numérique de détermination des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans les filtres de prélèvement en simulant la dégradation de la mesure de la radioactivité dans ces filtres. Il s'agit de coupler la simulation GeoDict (code de dynamique des fluides) avec la simulation Monte Carlo (MC) MCNPX (code de simulation du transport des rayonnements) afin de déterminer ces facteurs. La première partie décrit le code GeoDict utilisé pour simuler la filtration et le profil de pénétration des aérosols dans un médium. La seconde partie de ce chapitre décrit le code MCNPX utilisé pour simuler la dégradation d'énergie des rayonnements α dans un médium filtrant. La dernière partie expose les résultats de la méthode de détermination numérique des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant en couplant les simulations GeoDict avec les simulations MCNPX.

Chapitre I. Contexte de l'étude et état de l'art

1. *Introduction*

Outre les essais nucléaires, les accidents des centrales électronucléaires comme Tchernobyl et Three mile Island ont été les sources majeures de rejets de radionucléides artificiels. Lorsqu'ils sont rejetés dans l'atmosphère, les radionucléides artificiels sous forme de gaz et d'aérosols se propagent dans l'environnement avec le vent pour se retrouver finalement dans le sol, dans les cours d'eau et dans la chaîne alimentaire.

Les radionucléides artificiels sont des substances potentiellement dangereuses pour les êtres vivants, surtout si leur demi-vie est longue. Etant donné qu'ils émettent des radiations, ces radionucléides risquent de développer des problèmes de santé lors de l'exposition interne et/ou externe à ces radiations (NCPR 1987, Turner 1995). Dans le cas de radionucléides émetteurs α , l'exposition interne est la plus nocive pour les tissus en raison du faible parcours de ce rayonnement. Des organismes, comme le CIPR, EURATOM et NCPR, estiment des seuils d'exposition pour la population et pour les travailleurs en zone contrôlée en mettant en œuvre des modèles complexes du corps humain. Ces seuils dépendent de la nature du radionucléide et du mode d'incorporation (inhalation ou ingestion).

La réglementation pour la protection contre les radiations ionisantes est fondée sur trois recommandations fondamentales, à savoir la justification, l'optimisation et la limitation de l'irradiation. Ces réglementations sont appliquées sur le terrain à travers la surveillance régulière de la radioactivité de l'air. La surveillance de la radioactivité α dans l'environnement ou dans les zones de travail est assurée par des prélèvements en continu d'aérosols atmosphériques sur des filtres suivis par des mesures nucléaires. Certains paramètres liés à la physique des aérosols et à la détection des rayonnements peuvent engendrer des sous-estimations d'un facteur 2 de la valeur réelle de la radioactivité collectée.

Ce chapitre décrit les principales lois physiques auxquelles sont soumis les aérosols lors de la filtration des radioéléments dans l'air ainsi que lors de la mesure nucléaire sur filtre. Un aperçu de la littérature, sur les facteurs physiques dégradant la mesure de la radioactivité artificielle, le rendement de détection et les spectres en énergie des rayonnements α , est ensuite présenté. Les détecteurs nucléaires utilisés dans cette étude ainsi que les méthodes de mesures nucléaires sont également décrits.

2. Introduction sur la radioactivité α

La mesure de la radioactivité dans l'environnement est généralement effectuée, soit par la mesure des rayonnements α ou β sur un filtre, soit par la détection des émissions secondaires γ et/ou X émises par des noyaux fils en état excité. Pour certains radionucléides, il s'avère inefficace de détecter leurs émissions γ et/ou X quand elles sont de faibles intensités. Les émissions α ou β sont souvent quant à elles de fortes intensités. Ces dernières sont toutefois difficiles à détecter à cause de leur faible parcours dans la matière. Le paragraphe suivant rappelle les bases de la radioactivité des interactions rayonnements-matière ainsi que les principales techniques de détection des rayonnements.

La radioactivité α est une forme de désintégration radioactive où un noyau atomique père (de $Z > 82$) éjecte un noyau d'hélium (He^{2+}) en se transformant en un noyau fils plus léger. Les particules chargées α (ou rayonnements α) émises ont généralement une énergie cinétique assez élevée comprise entre 4 et 9 MeV.

Les particules chargées interagissent avec la matière suivant divers processus. Qu'elles soient lourdes ou légères, très ou peu énergétiques, les particules chargées interagissent principalement par collisions avec le cortège électronique des atomes constituant le milieu traversé. Ces collisions conduisent, selon l'énergie transmise, à l'excitation ou à l'ionisation de l'atome. Ce processus de perte d'énergie est très probable, continu et rend les particules chargées facilement détectables. Il est important de préciser que l'énergie déposée par la particule incidente dans la matière est en moyenne proportionnelle au nombre de paires électron-ion créées par ionisation.

Une manière de quantifier le transfert d'énergie d'une particule consiste à définir son pouvoir d'arrêt (S). Cette notion représente l'énergie moyenne transférée à la matière par unité de longueur de la trajectoire de la particule et dépend d'une part des caractéristiques de la particule (son énergie cinétique E et sa charge Ze) et d'autre part de la nature du milieu traversé (son nombre de masse A et son numéro atomique Z_i) contenant N atomes/cm³. Le pouvoir d'arrêt S est donné par la formule de Bethe (Siegbahn 1966, Knoll 2000) :

$$S = -\frac{dE}{dx} = -NZ_i \frac{4\pi e^2 Z e^2}{m_e V^2} \left[\ln\left(\frac{2m_e V^2}{I}\right) - \ln\left(1 - \frac{V^2}{c^2}\right) - \frac{V^2}{c^2} \right] \quad (\text{I. 1})$$

où V est la vitesse de la particule chargée,

m_e est la masse au repos de l'électron,

c est la célérité de la lumière dans le vide et

I est le potentiel d'ionisation du milieu traversé.

La particule α possède une trajectoire pratiquement rectiligne dans la matière. Son parcours (R) décrit donc la longueur de pénétration de la particule dans la matière avant d'être totalement absorbée. Il est donné par :

$$R = \int_{E_{ion}}^0 dx = \int_0^{E_{ion}} \frac{dE}{(-dE/dx)} = \int_0^{E_{ion}} \frac{dE}{S} \quad (\text{I. 2})$$

Cependant, les particules ne sont pas toutes arrêtées par une même épaisseur d'un écran. Il y a une certaine dispersion des parcours due au processus aléatoire du ralentissement. Cette fluctuation des énergies est couramment appelée « straggling ». Elle est responsable de la résolution des spectres en énergie couramment nommée FWHM (acronyme anglais de Full Width at Half Maximum) (Knoll 2000).

3. Etudes bibliographiques sur la dégradation de la radioactivité mesurée dans les filtres

L'estimation de la dégradation nucléaire, lors de la surveillance de la radioactivité α collectée sur un filtre, demande la connaissance des phénomènes qui entrent en jeu lors de la collecte d'aérosols atmosphériques sur les filtres et lors de la détection de la radioactivité. Cette partie trace une revue de la littérature sur l'étude de la dégradation de l'énergie des rayonnements α tout au long de leur parcours dans les matériaux constituant les filtres de prélèvement et les systèmes de détection. Les principaux atténuateurs des rayonnements α recensés sont :

- les aérosols porteurs des radionucléides,
- la matière constituant le filtre,
- les masses d'aérosols non-radioactifs accumulés dans/sur le filtre et
- l'espace d'air séparant le détecteur du filtre.

Les dégradations cumulées dans ces atténuateurs affaiblissent les énergies des rayonnements α arrivant au détecteur, dégradant ainsi le spectre en énergie et faussant donc la mesure de la radioactivité.

3.1. L'auto-absorption de l'énergie des rayonnements α dans les aérosols porteurs des radionucléides

3.1.a. Définition des aérosols

Le mot aérosol définit un ensemble de particules, solides ou liquides, en suspension dans un milieu gazeux, présentant une vitesse de chute négligeable. Les aérosols atmosphériques, radioactifs ou non, présentent des spectres granulométriques poly-dispersés. Les tailles

majoritaires d'aérosols atmosphériques appartiennent au mode dit « accumulation ». Ces aérosols sont généralement formés par coagulation de particules de plus petites tailles. Ils sont relativement stables et tendent à persister dans une masse d'air (Boulaud 1998). Il est à noter que dans la littérature deux tailles de particules sont retrouvées (Dorrian *et* Bailey 1995, Naureen *et al.* 2006) : les aérosols de spectre granulométrique centré à $5\ \mu\text{m}$, qui sont représentatifs des particules dispersées en zone contrôlée ou surveillée. Les aérosols de spectre granulométrique centré à $0,5\ \mu\text{m}$, qui sont représentatifs des aérosols atmosphériques.

3.1.b. Dégradation de la mesure nucléaire des α dans les aérosols porteurs des radionucléides

La plupart des systèmes de surveillance de la radioactivité α prélèvent des aérosols ambiants sur des filtres, quel que soit leur diamètre physique. Certains systèmes comprennent des séparateurs granulométriques, avant l'étape filtration, pour permettre la mesure de la radioactivité d'une gamme granulométrique spécifique. Quelle que soit la méthode de prélèvement, l'absorption des rayonnements α dans les aérosols est toujours existante.

La figure I.1 montre le spectre granulométrique des aérosols radioactifs artificiels et naturels et illustre le phénomène d'auto-absorption d'un rayonnement α par un aérosol. Afin de comprendre l'impact de l'auto-absorption des rayonnements α sur la mesure de la radioactivité, les différents facteurs physiques dégradant l'énergie cinétique des rayonnements α (tels que le diamètre physique, la densité et la forme des aérosols) ont été étudiés.

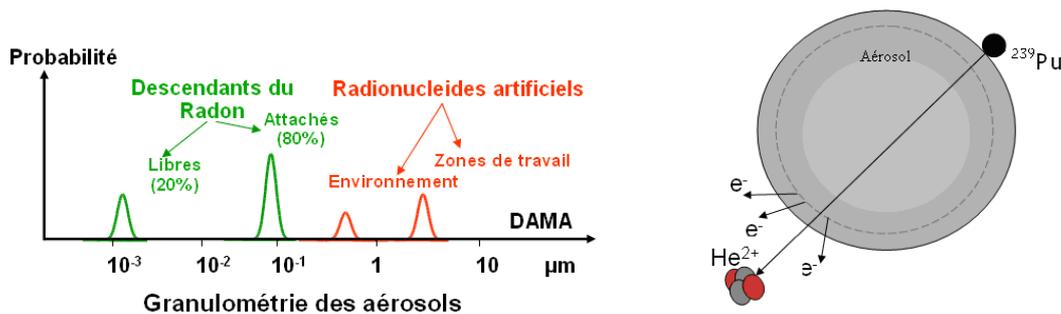


Figure I.1 : A gauche, spectre granulométrique des aérosols radioactifs. A droite, illustration d'un rayonnement α émis du ^{239}Pu qui est fixé sur un aérosol.

L'influence du diamètre physique de l'aérosol sur la dégradation de la réponse nucléaire a été mesurée expérimentalement par plusieurs auteurs. Moore *et al.* (1993) ont évalué la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α d'énergie initiale de $4,78\ \text{MeV}$, dans des aérosols d'acétate d'uranium de diamètre physique de $1,2 - 2,7 - 6,1$ et $8\ \mu\text{m}$ séparément. Les dégradations ont été évaluées en terme de résolution exprimée en FWHM (figure I.2).

Leur étude a montré que les aérosols de petite taille dégradent la FWHM du spectre de $(241 \pm 22 \text{ keV})$ tandis que les gros aérosols provoquent une dégradation jusqu'à $(1011 \pm 77 \text{ keV})$.

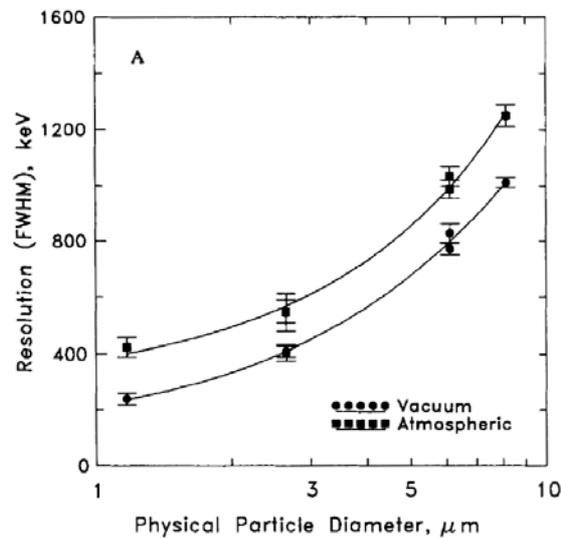


Figure I.2 : Effet du diamètre physique des aérosols sur la résolution du spectre (Moore *et al.* 1993).

Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).

Des simulations numériques des processus de dégradation en énergie des rayonnements α dans les aérosols ont été également réalisées par Pickering (1984) à l'aide d'un calcul Monte Carlo (principe décrit dans le chapitre IV). Il a évalué la dégradation de la résolution des spectres en fonction du diamètre physique et de la forme des aérosols. La figure I.3 donne des exemples de simulations de spectre en énergie pour des aérosols sphériques de rayons $r = 0,2 \mu\text{m}$ et $r = 1 \mu\text{m}$ ainsi que des aérosols sphéroïdiques allongés. Pickering (1984) a montré que l'élargissement de la FWHM de ces spectres est bien lié au parcours additionnel des rayonnements α à travers les aérosols.

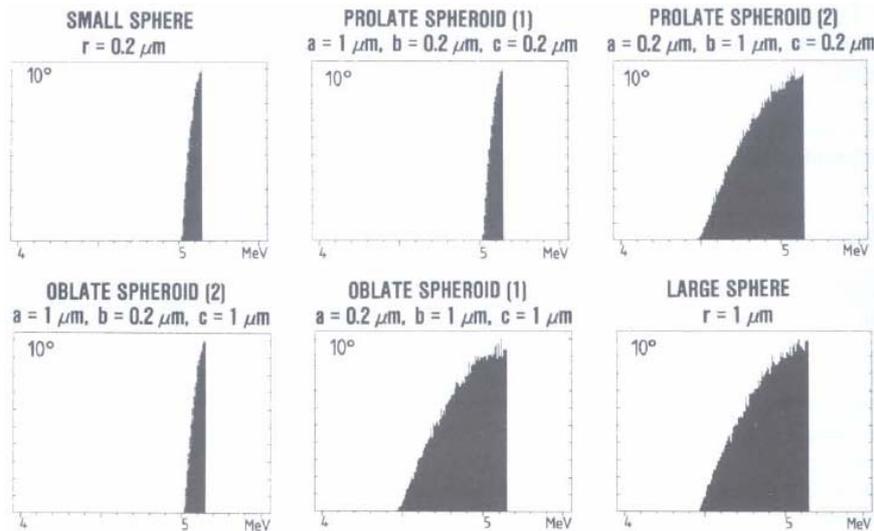


Figure I.3 : La dégradation des spectres en énergie des rayonnements α passant dans les aérosols en fonction de leur forme : sphérique ou sphéroïdique (Pickering 1984).

Ces études ont permis d'évaluer l'effet des aérosols sur la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α et par conséquent sur la dégradation de la radioactivité dans les aérosols. De ce fait, nous distinguons deux sortes d'aérosols à étudier séparément par la suite, à savoir les aérosols $> 1 \mu\text{m}$, représentatifs des particules dispersées en zone contrôlée ou surveillée, dégradant les énergies au maximum d'une valeur de l'ordre de 1 MeV, et les aérosols $< 1 \mu\text{m}$, représentatifs des aérosols atmosphériques, dégradant les énergies des rayonnements α au maximum d'une valeur d'environ 500 keV.

3.2. *L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans la matière constituant le filtre*

La dégradation des spectres en énergie des rayonnements α est dépendante de la profondeur du dépôt des aérosols dans les filtres et de la nature des média filtrants prélevant les aérosols.

3.2.a. *Généralité sur la filtration*

L'efficacité de filtration caractérise la collecte des aérosols par le filtre. Elle peut s'exprimer expérimentalement, sous la forme de trois rapports :

- le rendement de collecte. Il exprime le rapport de la quantité d'aérosols retenus par le filtre sur la quantité d'aérosols incidents :

$$E = \frac{n_2 - n_1}{n_2} \quad (\text{I. 3})$$

où n_2 et n_1 représentent respectivement les concentrations en nombre d'aérosols par unité de volume en amont et en aval du filtre.

- le rapport n_1/n_2 donne une grandeur physique appelée la perméance.
- le coefficient d'épuration CE . Il s'agit de l'inverse de la perméance.

L'efficacité de filtration d'un médium d'épaisseur z s'exprime aussi en fonction de l'efficacité totale des fibres individuelles et du diamètre équivalent des fibres d_f :

$$E = 1 - \exp\left[\frac{-4\alpha_f z \eta}{\pi(1 - \alpha_f)d_f}\right] \quad (\text{I. 4})$$

où α_f est la compacité du filtre définie dans la suite du chapitre,

η est l'efficacité totale de collecte d'une fibre. Il s'agit de la somme de toutes les efficacités partielles des mécanismes décrits dans le paragraphe précédent. Les équations qui permettent d'obtenir ces efficacités partielles sont développées dans l'annexe A.

Par ailleurs, la perte de charge du filtre correspond à la résistance qu'offre le filtre au passage de l'air (de viscosité μ_g) à travers le médium à une vitesse frontale U_0 . La perte de charge est donnée par l'expression suivante (Payet *et al.* 1991) :

$$\Delta P = \frac{16\mu_g \alpha_f z U_0}{Ku d_f^2} \quad (\text{I. 5})$$

où Ku est le facteur hydrodynamique de Kuwabara (cf. Annexe A).

3.2.b. *Les types de filtres*

Nous distinguons deux catégories de média filtrants généralement utilisés pour l'étude de la radioactivité dans l'air, à savoir les membranes et les filtres à fibres.

Les membranes comme le Nuclepore (polycarbonate de Whatman Corp.) offrent un seuil de filtration absolu pour les aérosols dont la taille est supérieure à la taille des pores (Spurny *et al.* 1969, Manton 1978 et 1979). Ce type de filtre est largement utilisé pour la surveillance de la radioactivité dans les laboratoires ou les salles propres où la quantité d'aérosols dans l'air est réduite (quelque dizaines de $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Cependant, hormis leur prix élevé, l'incompatibilité de ces filtres avec les prélèvements atmosphériques est due à l'encrassement rapide par les masses d'aérosols qui conduit à des pertes de charge élevées et à une faible durée de vie lors de leur utilisation (Kinouchi *et al.* 2001, Charreau *et* Letourneau 1993).

Par ailleurs, les filtres à fibres sont les plus utilisés dans le domaine de la surveillance de la radioactivité dans l'air (Charuau *et* Letourneau 1993, Kinouchi *et al.* 2001). Ils permettent de filtrer un volume d'air important avant le colmatage. Ces filtres permettent donc des prélèvements de grandes quantités volumiques d'air dans le but de surveiller, avec une basse limite de détection, les radioéléments dans l'atmosphère.

Les filtres à fibres sont constitués d'un enchevêtrement de fibres de différentes natures (verre, cellulose, PTFE (polytétrafluoroéthylène),...). La figure I.4 montre un exemple d'observation au microscope électronique à balayage d'un filtre constitué d'un enchevêtrement de fibres de verre. Les aérosols collectés sont retenus en profondeur et en surface du médium filtrant.

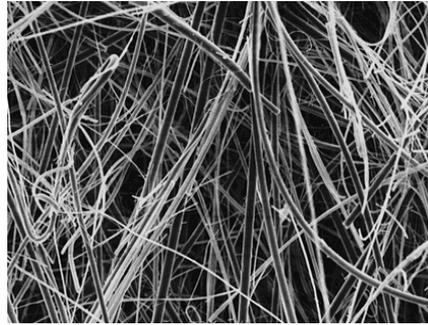


Figure I.4 : Fibres de verre vues par microscope électronique (échelle $\times 2000$ fois) (Pénicot-Bauge 1998).

Selon les caractéristiques du filtre à fibre, l'efficacité de filtration et la perte de charge vont être différentes. Un filtre à fibres est caractérisé par plusieurs paramètres physiques :

- le grammage (G) exprimé en g.m^{-2} . Il s'agit du rapport entre la masse du médium (m_f) et sa surface (S_f). Il dépend de la masse volumique des fibres et de la compacité du filtre.

$$G = \frac{m_f}{S_f} \quad (\text{I. 6})$$

- l'épaisseur (z) qui est en partie responsable de la perte de charge et de l'efficacité de filtration du médium.
- la compacité (α_f) qui exprime le rapport du volume des fibres (V_{fibre}) sur le volume du filtre total (V_{filtre}).

$$\alpha_f = \frac{V_{\text{fibre}}}{V_{\text{filtre}}} = \frac{G}{\rho_{\text{fibre}} \cdot z} \quad (\text{I. 7})$$

- le diamètre des fibres (d_f). Il est souvent mesuré par microscopie électronique ou déterminé par une méthode semi-empirique. Parmi ces méthodes, le modèle de Davies (1963) qui permet de définir un diamètre fictif d_{Davies} (ou diamètre de Davies) :

$$d_{\text{Davies}} = 2\sqrt{\frac{16\mu_g z \alpha_f^{3/2} (1 + 56\alpha_f^3)}{K}} \quad (\text{I. 8})$$

où μ_g est la viscosité du fluide,

K est la constante de Darcy. Elle est déterminée expérimentalement par le rapport entre la perte de charge et la vitesse frontale de l'air U_0 (Milikan 1923, Happel 1959).

3.2.c. Dégradation de la mesure nucléaire dans les filtres

Premièrement, la profondeur du dépôt des aérosols dans un filtre à fibres est un facteur aggravant la dégradation en énergie des rayonnements α émis dans la matrice du filtre. Si l'émission a lieu sur la couche superficielle du filtre, le spectre en énergie émergent de la source est un spectre fin de raie d'énergie E . Si l'émission du rayonnement α se fait à une certaine profondeur (z) dans le filtre, l'absorption par les fibres superposées se traduit par une dégradation d'énergie $\Delta E = \int_0^z \frac{dE}{dx} dz$ et l'énergie finale détectée se distribue ainsi entre une énergie E_i et une énergie $E_{apparente} = E_i - \Delta E$. Si la désintégration a lieu dans les couches les plus profondes du filtre, la perte d'énergie $\Delta E' \gg \Delta E$ est proportionnelle à l'épaisseur totale des fibres superposées. Les énergies sont réparties d'une façon continue, non reproductible d'une épaisseur à l'autre jusqu'à l'énergie zéro, en constituant un flanc gauche sur le pic (traîne) comme le montre la figure I.5. Cette dernière montre que contrairement aux filtres fibreux, les membranes présentent une bonne résolution du spectre. Ceci est dû principalement à la collecte surfacique des aérosols émetteurs des rayonnements α . Au contraire, en prélèvements atmosphériques, l'encrassement rapide des membranes par les masses d'aérosols cause de fortes pertes de charge et une faible durée de vie, ce qui empêche leur utilisation. Les filtres à fibres sont plus adaptés aux prélèvements atmosphériques, mais nous verrons plus tard que des corrections sur les mesures de la radioactivité sur les filtres sont à prévoir.

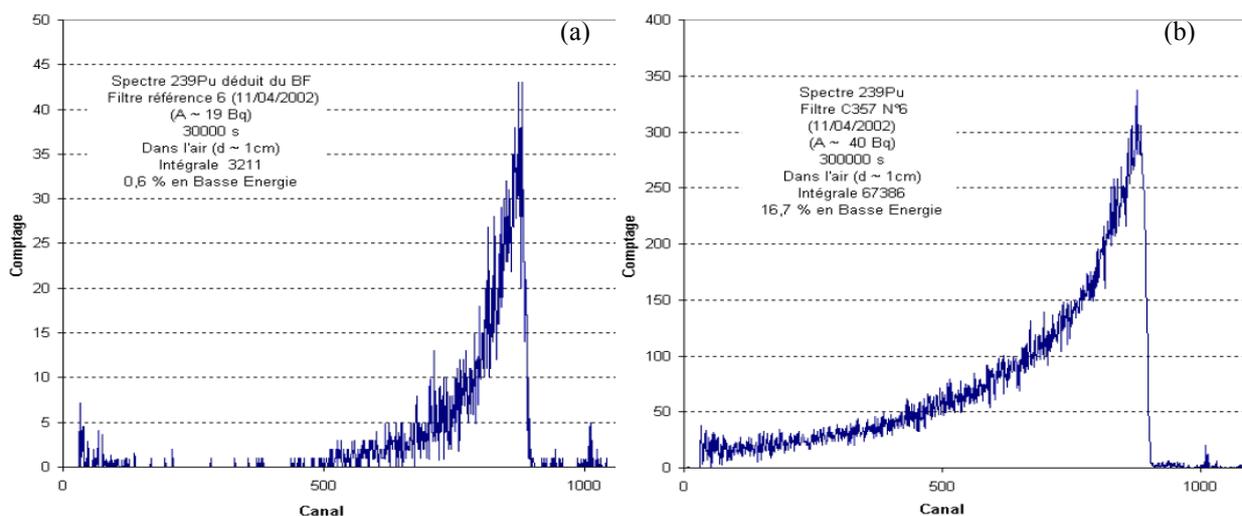


Figure I.5 : Comparaison de la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α émis d'une membrane (a) et d'un filtre à fibres de verre (b) (Grivaud *et al.* 2004).

Une étude intéressante sur la dégradation de l'énergie des rayonnements α , émis d'une source solide ^{241}Am , par transmission à travers un filtre Millipore type AA (membrane d'acétate de cellulose de pore $0,8\ \mu\text{m}$ et d'épaisseur égale à $150\ \mu\text{m}$) a été réalisée par Hayes *et Jonassen* (1974). De la même manière, ils ont étudié l'effet de la transmission en superposant des membranes type TAWP d'épaisseur $25\ \mu\text{m}$ pour disposer facilement de différentes épaisseurs successives. Ces membranes possèdent les mêmes propriétés que les filtres type AA mais de plus faible épaisseur. Les résultats de transmission, présentés à la figure I.6, ont montré que pour un filtre d'épaisseur inférieure à $100\ \mu\text{m}$, le pouvoir d'arrêt est de l'ordre de $0,03\ \text{MeV}/\mu\text{m}$. Lorsque le parcours du rayonnement α dans le filtre est de l'ordre de l'épaisseur du filtre, le comptage des rayonnements α arrivants au détecteur tend vers zéro.

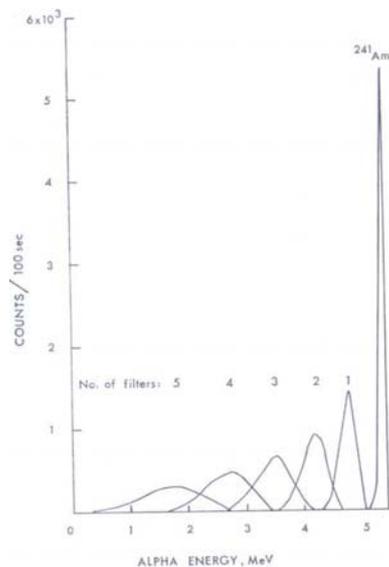


Figure I.6 : Dégradation des spectres en énergie des rayonnements α suivant le nombre de filtres superposés (Hayes *et Jonassen* 1974).

Deuxièmement, l'influence de la nature du filtre sur la dégradation de l'énergie des rayonnements α a été aussi étudiée par Moore *et al.* (1993). Ils ont mesuré, à l'aide d'un détecteur silicium Canberra modèle M7400A équipé d'une chambre utilisable sous vide ou sous pression atmosphérique, la résolution de cinq types de filtres de diamètre $47\ \text{mm}$ contenant des aérosols d'acétate d'uranium de diamètre physique de $1,2\ \mu\text{m}$. La figure I.24 présente la comparaison des largeurs à mi-hauteur (FWHM) des spectres en énergie pour les cinq types de filtres étudiés ainsi que pour une source solide.

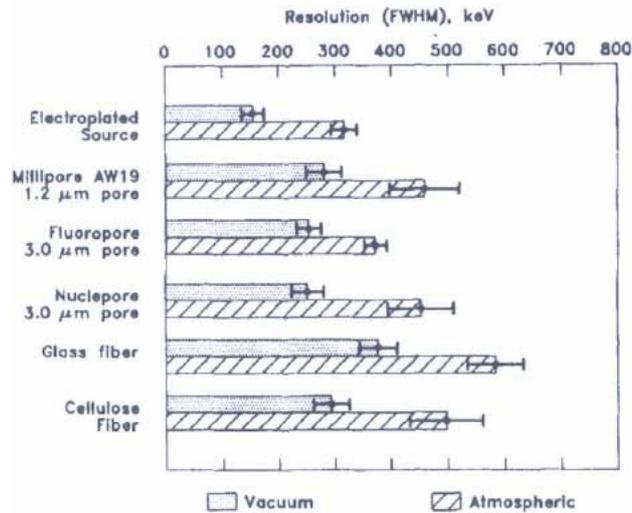


Figure I.7 : Comparaison entre les résolutions des spectres en énergie α pour cinq types de filtres (Moore *et al.* 1993). Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).

Par ailleurs, Luetzelschwab *et al.* (2000) ont comparé la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α d'énergie initiale 5,49 MeV à travers deux matériaux de même densité surfacique mais de composition différente : une feuille d'aluminium et un filtre à fibres de verre (réf. LB-5211A). Les résultats sont illustrés à la figure I.8. Ils ont montré que, contrairement à la feuille d'aluminium, les filtres présentent une non-uniformité de la densité surfacique. D'après eux, cette non-uniformité est due aux différentes formes d'enchevêtrement des fibres imposant aux rayonnements α de passer par des régions de densité surfacique aléatoire, puis d'émerger du filtre avec une gamme en énergie dispersée allant de 1 à 5 MeV.

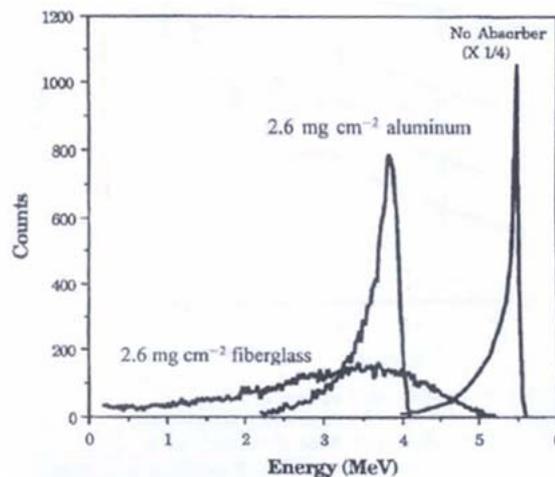


Figure I.8 : Comparaison entre l'atténuation du spectre de l'américium 241 dans l'aluminium et dans le filtre à fibres de verre (Luetzelschwab *et al.* 2000).

3.3. *L'absorption de l'énergie des rayonnements α due à l'enfouissement des aérosols radioactifs en profondeur dans le filtre*

3.3.a. *Mécanismes de capture en filtration*

La filtration est la méthode la plus répandue pour collecter des aérosols à partir d'un écoulement d'air. La figure I.9 montre que la collecte des aérosols sur les filtres s'effectue par l'action simultanée de différents mécanismes :

- la diffusion Brownienne pour les aérosols de $d_p < 0,1 \mu\text{m}$,
- l'interception pour les aérosols de taille supérieure à $0,1 \mu\text{m}$,
- l'impaction inertielle pour les aérosols de taille supérieure à $1 \mu\text{m}$,
- la sédimentation pour les aérosols de grande taille $d_p > 10 \mu\text{m}$,
- les mécanismes électrostatiques (toutes tailles d'aérosols).

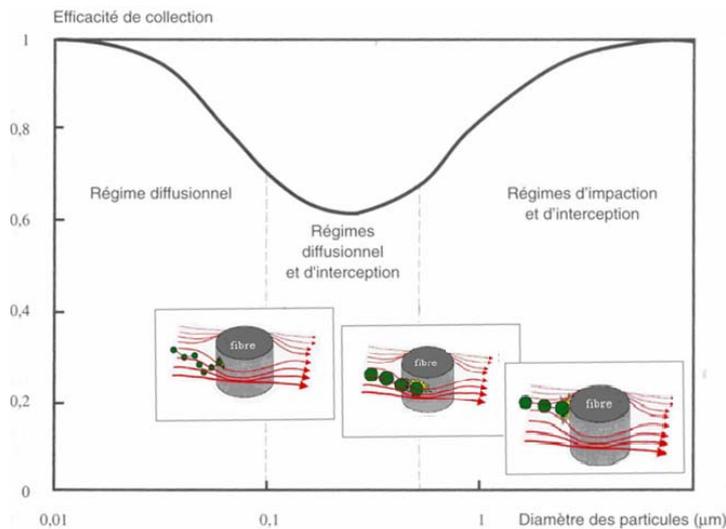


Figure I.9 : Fraction des aérosols, collectés sur les fibres d'un filtre, relative à l'influence de divers mécanismes en fonction du diamètre physique des aérosols exprimé en μm .

L'importance de ces mécanismes est fonction de plusieurs paramètres relatifs à taille des aérosols filtrés.

3.3.b. *Dégradation de la mesure nucléaire due aux mécanismes de capture*

La dégradation de la résolution des spectres en énergie, en fonction de deux diamètres physiques d'aérosols mono-dispersés, diverses vitesses de prélèvement et divers types de filtres à fibres de verre, a été étudiée par Higby (1984). Il ressort de cette étude les résultats suivants :

Pour des aérosols de diamètre physique de $0,66 \mu\text{m}$ (figure I.10- a et b), le phénomène d'interception est dominant (Annexe A) et il favorise un dépôt très profond dans les filtres.

Par conséquent, les rayonnements α parcourent plus de distance dans la matière et donc le nombre de rayonnements α qui émergent du filtre est ainsi diminué.

Pour des aérosols de diamètre physique égal à $3,07 \mu\text{m}$ (figure I.10- c et d), le phénomène d'impaction inertielle est dominant (Annexe A) et il favorise un dépôt peu profond dans les filtres. Le nombre de rayonnements α qui émergent du filtre augmente et le spectre est moins dégradé. Pour une vitesse frontale de l'ordre de $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, l'efficacité totale d'une fibre unitaire augmente et favorise ainsi la collecte des aérosols sur une faible profondeur du filtre ce qui favorise la détection des rayonnements α . Dans la figure I.10, la dégradation des rayonnements dans un filtre est évaluée par le rapport de correction « R » entre la radioactivité mesurée par spectrométrie α et celle mesurée par spectrométrie γ .

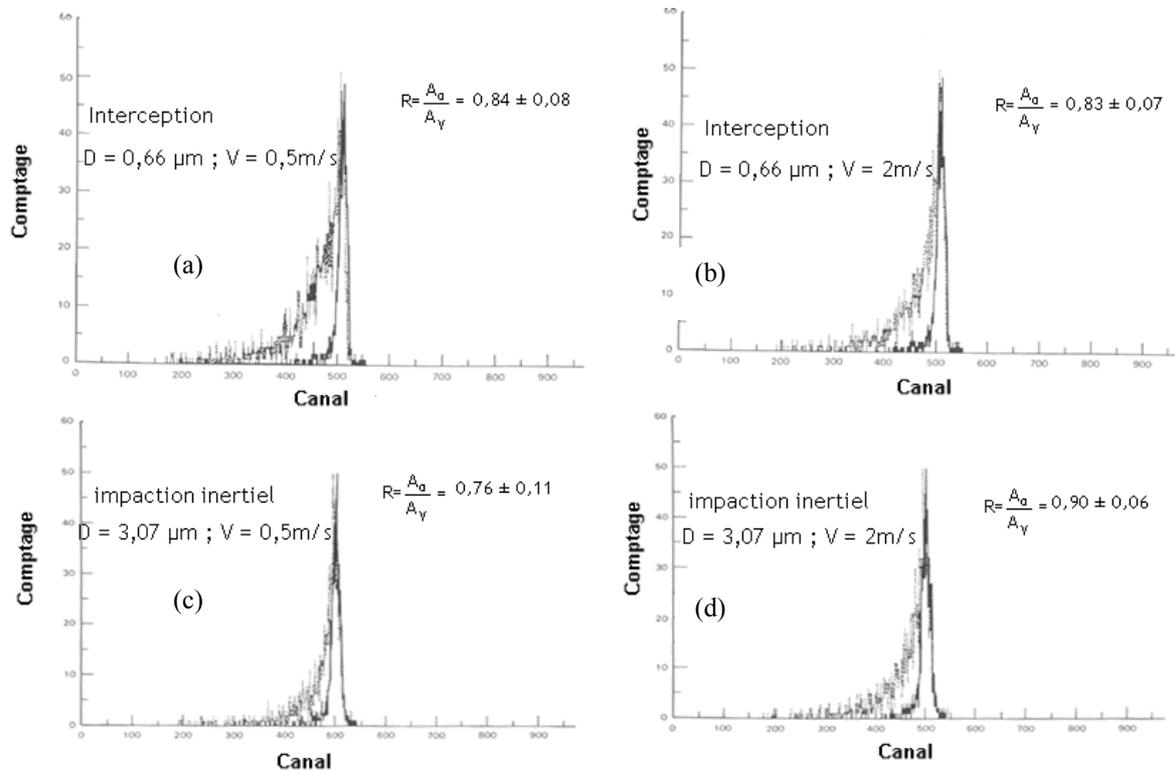


Figure I.10 : Spectres en énergie α des aérosols $^{239}\text{PuO}_2$ de diamètre $0,66 \mu\text{m}$ (a et b) et $3,07 \mu\text{m}$ (c et d) déposés sur un filtre à fibres de verre, pour des vitesses de filtration de $0,5 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ respectivement (Higby, 1984).

3.4. *L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans les masses d'aérosols non-radioactifs accumulés dans/sur le filtre*

3.4.a. *Modes de dépôt d'aérosols en fonction du temps de prélèvement*

Le comportement du filtre au cours d'un échantillonnage comprend deux phases distinctes en fonction du temps de prélèvement : une phase statique et une phase dynamique.

En phase statique, les masses d'aérosols capturés sur le filtre sont négligeables. La perte de charge et l'efficacité de collecte ne sont donc pas affectées.

En phase dynamique, l'accumulation des aérosols provoquent la formation d'amas. Ces derniers modifient l'efficacité de collecte et la perte de charge du filtre car les aérosols viennent se déposer sur des particules déjà présentes dans le filtre. Au cours du temps, deux types de dépôt dans les media sont à distinguer, à savoir le dépôt en profondeur lorsque les aérosols pénètrent à l'intérieur du filtre et le dépôt en surface lorsque les aérosols sont collectés sur la surface du filtre pour former un amas d'aérosols (ou « gâteau ») d'épaisseur croissante au fur et à mesure de la filtration.

3.4.b. Dépôt d'aérosols en profondeur du filtre

Dans le cas d'un dépôt en profondeur, la dégradation de l'énergie dans les aérosols déposés sur des filtres de prélèvement a été quantifiée dans plusieurs études. Moore *et al.* (1993) ont étudié la résolution spectrale en fonction des masses d'aérosols d'uranium ($d_p = 2,7 \mu\text{m}$) allant de 13,7 jusqu'à $1270 \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ déposées sur une membrane type FSLW. La figure I.11 montre que l'élargissement des largeurs à mi-hauteur (FWHM) (dans l'air) peut atteindre les 800 keV avec des grandes masses déposées.

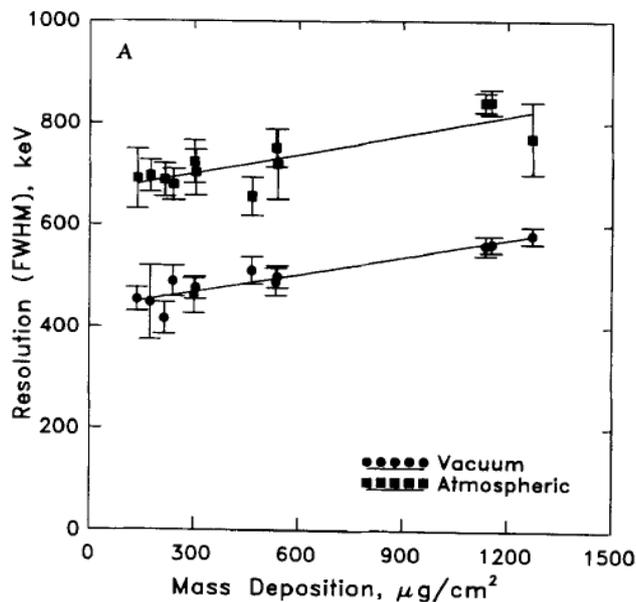


Figure I.11 : Evolution de la résolution du spectre en énergie en fonction des masses d'aérosols déposés sur la membrane FSLW (Moore *et al.* 1993). Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).

3.4.c. Dépôt d'aérosols en surface du filtre

Les aérosols se déposent sur ceux déjà capturés et sur la surface des fibres, pour former des amas. Ces derniers causent la formation rapide d'un « gâteau » d'épaisseur croissante avec le temps de la filtration et rendent la collecte des aérosols sur le filtre plus efficace.

En outre, la taille des aérosols collectés va avoir une incidence sur la compacité de la couche d'aérosols formée sur la surface du filtre. En effet, la géométrie du dépôt diffère selon la taille des aérosols. Pour des aérosols submicroniques, le dépôt d'aérosols est dendritique (figure I.12), alors que pour des aérosols micrométriques, le dépôt se présente sous forme d'agglomérats (figure I.13).

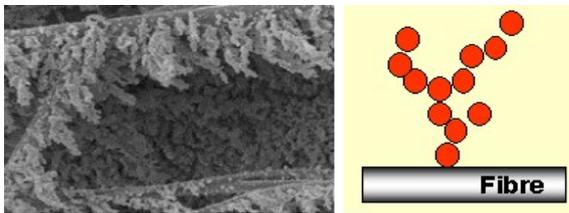


Figure I.12 : Amas d'aérosols solides submicroniques sur fibre (Thomas 2001).

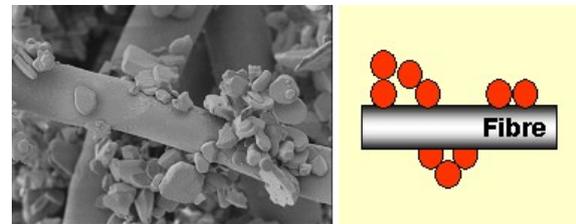


Figure I.13 : Amas d'aérosols solides micrométriques sur fibre (Thomas 2001).

La dégradation des spectres en énergie des rayonnements α , émis par le ^{214}Po fixé sur des aérosols d'or, a été étudiée par Huang *et al.* (2002) pour différents types d'encrassement en surface des filtres par dépôt de masses de sel (NaCl). Les résultats sont illustrés sur la figure I.14.

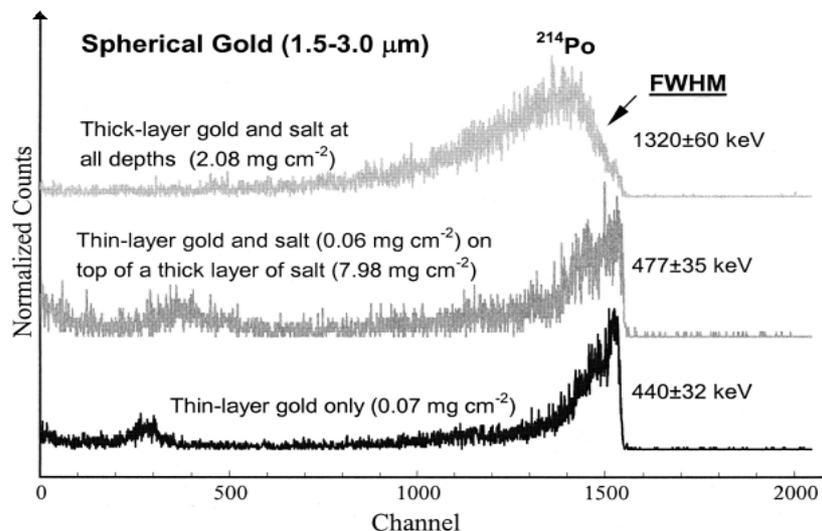


Figure I.14 : Spectres en énergie pour une couche composée d'un mélange d'or porteur de ^{214}Po et du sel NaCl non-radioactif (en gris clair). Cas de la même couche superposée à une autre couche de sel (en gris). Cas d'une couche d'or porteur de ^{214}Po seul (en noir) (Huang *et al.* 2002). Les masses des couches ainsi que les FWHM des spectres sont indiquées sur la figure.

Cette figure démontre que l'encrassement par des masses de sel au-dessous de la couche où les aérosols porteurs de ^{214}Po sont déposés, a une faible influence sur la résolution en énergie. Alors qu'une couche épaisse d'aérosols mélangés à du sel (de $2,08 \text{ mg.cm}^{-2}$) entraîne une dégradation de la résolution jusqu'à $\sim 1320 \text{ keV}$.

3.5. L'absorption de l'énergie des rayonnements α dans l'air séparant la source du détecteur

Dans la chambre du détecteur et en présence de l'air, la distance entre la source et le détecteur est un facteur qui dégrade l'énergie des rayonnements. Cette dégradation s'accroît avec l'augmentation de l'espace séparant la source du détecteur. La chambre du détecteur peut être mise soit sous vide contrôlé, soit à pression atmosphérique. Sous vide, l'absorption des α dans la distance traversée est annulée. La dégradation de la largeur à mi-hauteur FWHM est donc minimale (figure I.15).

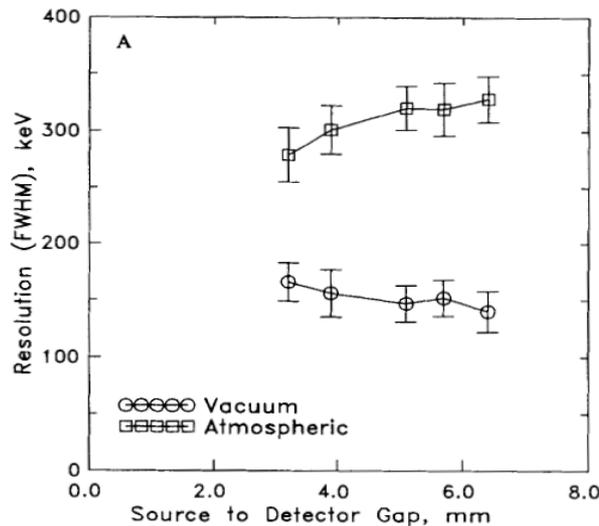


Figure I.15 : Evolution de la résolution en énergie en fonction de la distance source-détecteur.

Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric) (Moore *et al.* 1993).

4. *Mesure de la radioactivité α sur les filtres*

Les principaux détecteurs utilisés dans cette thèse fonctionnant par collecte de charges produites par ionisation sont décrits par la suite. La technique de scintillation liquide qui est une référence pour la mesure de la radioactivité dans les filtres est aussi exposée.

4.1. *Compteur proportionnel à gaz*

Le compteur proportionnel est constitué d'une enceinte métallique (cathode) de rayon b , portée à un potentiel $-V_0$ au centre de laquelle est tendu un fil (anode) de rayon a porté à un potentiel $+V_0$. Cette enceinte contient un gaz sous une pression qui peut aller de quelques Pa à plusieurs fois la pression atmosphérique. L'énergie effective (W) à fournir pour créer une paire électron-ion est fonction du gaz et est généralement d'une trentaine d'électronvolts. L'intensité du champ électrique, créé par la différence de potentiel, est fonction de la distance r à l'anode. Ce champ permet de séparer et de collecter les paires électron-ion créées par le passage d'une radiation. Après un temps typique de 10 μ s, les électrons atteignent l'anode alors que les ions ne se sont pratiquement pas déplacés. L'énergie déposée dans le gaz par la particule incidente est en moyenne proportionnelle au nombre de paires électron-ion créées par ionisation.

Nous distinguons plusieurs régimes en fonction de V_0 comme le montre la figure I.16. Le régime proportionnel est le plus utilisé pour le comptage des rayonnements α et β . Les électrons acquièrent, du fait du champ électrique important, une énergie suffisante pour ioniser à leur tour le gaz. Il y a multiplication de la charge mais celle-ci reste proportionnelle à la charge créée initialement par le passage de la particule ionisante. Le gain de cette multiplication peut atteindre 10^8 (Bourgeois 1994).

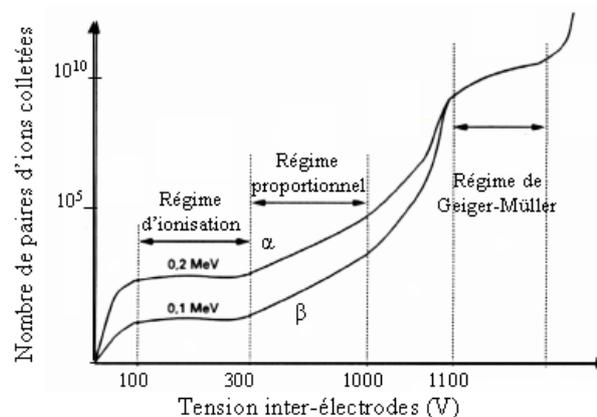


Figure I.16 : Mode de fonctionnement des détecteurs à gaz en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes.

Le compteur proportionnel utilisé dans notre laboratoire est le modèle MINI20 fabriqué par Eurisys measurements Corporation. Il est constitué de quatre cellules de mesure comprenant chacune un détecteur ayant une fenêtre composée de Mylar métallisé, de densité $450 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ et de diamètre 59 mm. Le gaz utilisé dans le compteur est l'argon méthane (Ar à 90 % ; $W = 26,3 \text{ eV}$). La cellule de mesure comprend aussi une tirette porte-échantillons coulissant à l'aide de deux glissières télescopiques, recevant un chargeur amovible. Ce chargeur comporte quatre logements pour échantillons de diamètre 49 mm, et est prévu pour recevoir des supports de type « coupelles standard ». Ce système de détection fonctionne en régime proportionnel à très bas bruit de fond pour les mesures de faibles activités α et/ou β . En effet, le bruit de fond provenant des rayonnements cosmiques et des gammas ambiants est réduit par, d'une part, le blindage qui est constitué de briques de plomb des quatre cotés de l'appareil et d'autre part, par des compteurs de « garde » de rejet de coups par coïncidence. Le bruit statistique irréductible provenant de la détection du signal lui-même est expliqué dans l'annexe B. L'ensemble de détection regroupant les deux détecteurs de garde et les détecteurs de mesure, est relié à la carte électronique qui comporte des préamplificateurs, des amplificateurs, des discriminateurs, des séquenceurs et une distribution de l'alimentation haute tension (Manuel MINI20). Le nombre de coups mesurés par un détecteur (D) peut être écrit de la façon suivante :

$$(Cp/s)_D = (Cp/s)_{int} - (Cp/s)_{bdf} \quad (\text{I. 9})$$

où $(Cp/s)_{int}$ est le taux de comptage ou le nombre de coups par seconde indiqués par l'instrument de mesure en présence de l'échantillon,

$(Cp/s)_{bdf}$ est le nombre de coups par seconde indiqués par l'instrument de mesure en l'absence de l'échantillon mais dans les mêmes conditions.

avec comme incertitude type :

$$\frac{u(Cp/s)_D}{(Cp/s)_D} = \sqrt{\left(\frac{u(Cp/s)_{inst}}{(Cp/s)_{inst}}\right)^2 + \left(\frac{u(Cp/s)_{bdf}}{(Cp/s)_{bdf}}\right)^2} \quad (\text{I. 10})$$

Par ailleurs, le temps de comptage conditionne le nombre d'impulsions observées et donc l'incertitude sur ce nombre. Nous pouvons considérer en première approximation que le nombre brut d'impulsions mesurées suit une loi de poisson, donc que sa variance est égale à sa moyenne. L'incertitude sur un comptage $u(Cp/s)$ sera donc approximativement égale à $Cp^{1/2}/s$ (Knoll 2000).

4.2. Détecteur à semi-conducteur

Comme pour les détecteurs gazeux, les détecteurs à semi-conducteur fonctionnent grâce à l'ionisation provoquée par le passage des particules incidentes et à la collecte des charges ainsi créées. Ils présentent plusieurs avantages par rapport au milieu gazeux. Leur densité est en effet plus élevée que celle du gaz. Pour une épaisseur équivalente en gaz, leur pouvoir d'arrêt est donc plus important. Il est en conséquence plus facile d'arrêter et donc de caractériser des particules énergétiques. L'énergie W de création d'une paire électron-trou est également plus faible dans les semi-conducteurs. Pour le silicium W est de 3,6 eV.

Le principe de fonctionnement d'un détecteur à semi-conducteur consiste en la génération de paires électron-trou, directement ou indirectement, par le rayonnement ionisant dans une zone particulière du détecteur. Cette zone est formée par l'application d'un champ électrique, de temps de réponse typique de l'ordre de 100 ns, sur une jonction de deux types de semi-conducteur. Typiquement, la tension de fonctionnement est de l'ordre de quelques dizaines de volts. La méthode d'implantation passivée planaire (ou Passivated Implanted Planar Silicon, PIPS) permet de réaliser des détecteurs performants ayant des « zones mortes » d'épaisseur inférieures à 50 nm. Ceci est particulièrement utile pour la spectrométrie des particules peu pénétrantes comme les rayonnements α . La résolution du spectre en énergie est de l'ordre de 15 keV pour des rayonnements α de 5,5 MeV (soit 0,3 %), sachant qu'elle peut atteindre 85 keV (1,5 %) pour un détecteur ayant une surface de 50 cm². Les électrons, générés par les rayonnements α qui ionisent le milieu, créent ainsi le signal utile. La figure I.17 montre que la chambre de détection est reliée à une chaîne d'amplification du signal composée d'un préamplificateur, d'un amplificateur et d'un analyseur d'acquisition d'impulsions à multi-canaux.

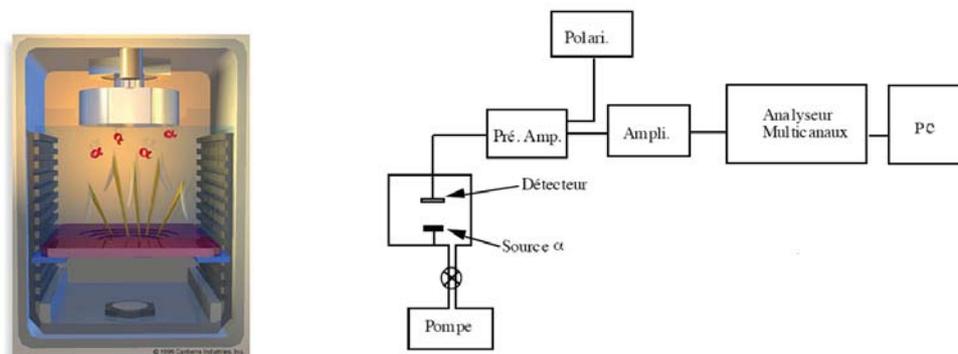


Figure I.17 : Illustrations montrant, à gauche, la chambre de détection (ORTEC) et, à droite, le diagramme simplifié du système de détection utilisé.

Le spectromètre utilisé dans notre laboratoire est un modèle fabriqué par ORTEC Corporation (réf. Soloist alpha spectrometer model). Le dispositif expérimental comporte une enceinte portée sous vide à l'aide d'une pompe à air. Dans cette enceinte, de 5 cm de diamètre et de 44 cm de hauteur, un détecteur PIPS est placé au-dessus d'une plaque de nickel amovible tenant les échantillons à mesurer. Le détecteur est de type PIPS model U-035-1200-100 de surface active de 1200 mm² et de 100 µm d'épaisseur. Le détecteur est relié à une chaîne d'amplification du signal composée d'un préamplificateur, d'un amplificateur, d'un polarisateur et d'un analyseur d'acquisition d'impulsions à multi-canaux.

L'analyse spectrométrique est effectuée par le fait que l'amplitude des impulsions électriques est liée à l'énergie perdue par le rayonnement dans le détecteur. L'étalonnage du spectromètre est détaillé dans l'annexe B. L'outil de spectrométrie « AlphaVisu » de la société ORTEC permet le pilotage du détecteur, le comptage des rayonnements α dans chacun des 1024 canaux et la visualisation de la surface totale du spectre en énergie. La déconvolution des spectres et le dépouillement des radioéléments sont possibles à l'aide d'une librairie pré-enregistrée. Afin de quantifier les radioéléments présents dans les filtres, une base de données intégrée dans le logiciel « AlphaVisu » permet d'ajuster les spectres selon une gaussienne corrélée à deux traînes de chaque spectre élémentaire.

Le comptage $(Cp/s)_{int}$ est déterminé à l'aide de l'équation I.9, à partir de l'évaluation de la surface nette du pic. Cette surface résulte de l'intégration du spectre entre l'énergie « zéro » et la limite droite de pic qui tend vers zéro.

Idéalement, un spectre en énergie α est constitué de raies d'énergie correspondant aux différentes transitions α et ayant une amplitude proportionnelle à l'activité de la source initiale. En réalité, le spectre α énergétique comporte un pic presque gaussien caractérisé par une largeur à mi-hauteur également appelée la FWHM.

4.3. Méthode de référence de mesure de la radioactivité α sur les filtres

4.3.a. Principe de la scintillation liquide

La technique de scintillation liquide (SL) est une méthode de détection des rayonnements α qui diffère des deux méthodes précédemment citées. La technique de détection par SL, schématisée sur la figure I.18, est une technique destructive puisqu'elle consiste à mélanger l'échantillon radioactif à mesurer avec un liquide scintillant. Son principe est de transformer les rayonnements ionisants, consécutifs aux désintégrations radioactives, en lumière détectable et quantifiable par un photomultiplicateur (PM).

Parmi les milieux scintillants, nous distinguons les matériaux organiques (molécules aromatiques type toluène (Ultima Gold AB[®] Perkin Elmer[®]), utilisés dans cette étude, qui ont un Z équivalent faible et sont donc appropriés à la détection des rayonnements α .

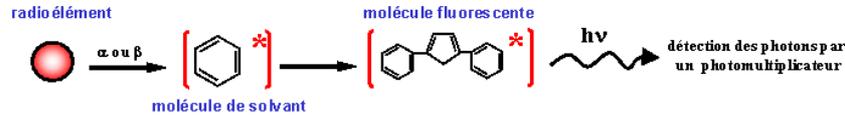


Figure I.18 : Illustration montrant le principe de la SL.

Un scintillateur organique est souvent composé d'un solvant, d'un soluté primaire responsable de la scintillation et d'un soluté secondaire ou « wave-length-shifter ». Le rôle de ce dernier est d'absorber la lumière émise à des petite longueurs d'onde et de la réémettre avec des longueurs d'onde différentes. Ce décalage de la longueur d'onde est utile pour une détection plus efficace par le détecteur de lumière (ou le PM) et pour minimiser les auto-absorptions dans le liquide scintillant.

4.3.b. Réponse lumineuse dans un liquide scintillateur

Une fraction de l'énergie cinétique perdue par une particule chargée dans le scintillateur est convertie en énergie fluorescente. Mais l'essentiel est dissipé sous forme thermique, par exemple par vibration moléculaire. Cette fraction dépend du type de la particule et de son énergie. Par exemple dans la même solution de scintillateur, le rapport de la réponse de la lumière fluorescente pour un électron et pour un rayonnement α d'énergie équivalente est une constante égale à 10. Pour le liquide scintillateur organique, La quantité de lumière, L , est décrite par la relation :

$$\frac{dL}{dx} = \delta \frac{dE}{dx} \quad (\text{I. 11})$$

où δ est le rendement du scintillateur en photons par unité d'énergie absorbée et dE/dx est la transfert d'énergie linéique de la particule chargée.

L'introduction d'un échantillon dans la solution du liquide scintillant réduit la lumière émise par rapport à celle émise d'une solution pure. Ce phénomène est connu sous le nom quenching d'ionisation. Birks (1958) a décrit la probabilité de ce phénomène comme suit :

$$\frac{dL}{dx} = \frac{\delta \frac{dE}{dx}}{1 + kB \frac{dE}{dx}} \quad (\text{I. 12})$$

où kB est une caractéristique du scintillateur. La valeur de kB est généralement comprise entre 0,005 et 0,018 cm.g/MeV.

Pour les rayonnements α , la formule de Birks est approximée par :

$$\left. \frac{dL}{dx} \right|_{\alpha} = \frac{\delta}{kB} \quad (\text{I. 13})$$

Pour des grandes pertes d'énergie, une saturation de l'estimation de l'émission de la lumière est obtenue. En effet après intégration sur x de l'équation I.13, la quantité de lumière émise est donnée par (Cassette 2001) :

$$L(E) = \frac{\delta}{kB} R(E) \quad (\text{I. 14})$$

où $R(E)$ est le parcours de la particule dans le scintillateur à l'énergie considérée.

4.3.c. Principe de la mesure par scintillation liquide

La détection de la lumière se fait à l'aide de deux PM du compteur « Wallac-Guardian » utilisé au Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB) qui transforment la lumière émise par le scintillateur en électrons. La figure I.19 schématise le principe du PM. Le nombre d'électrons collectés sur l'anode d'un PM est proportionnel au nombre de photons reçus par le PM qui lui-même est proportionnel à la quantité de rayonnements émis dans le liquide scintillant.

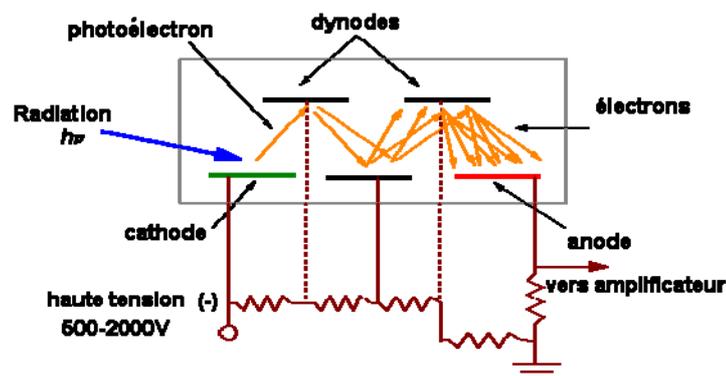


Figure I.19 : Schéma de principe du photomultiplicateur.

En effet, les rayonnements ionisants excitent le liquide scintillant qui émet des photons détectables et quantifiables. Ces phénomènes conduisent à des impulsions lumineuses plus longues pour le rayonnement α que pour les électrons. La considération de la durée de l'impulsion permet donc de discriminer les événements provenant de désintégrations α de ceux provenant de désintégrations β ou de désexcitations nucléaires ou atomiques. Les méthodes de réduction du bruit de fond sont fondées sur des blindages passifs en plomb et sur

des systèmes d'anti-coïncidence à garde active. L'électronique de comptage est en mesure de traiter des signaux dont la durée est de quelques nanosecondes. Ce compteur du LNHB comporte une possibilité d'analyse spectroscopique. Son principal intérêt est de visualiser le spectre du radionucléide à mesurer et de permettre l'ajustement de fenêtres de comptages spécifiques.

Afin d'optimiser la technique pour mesurer la radioactivité α dans les filtres, un protocole de mesure est appliqué. L'efficacité de comptage de la technique de SL est déterminée à l'aide d'une solution étalon de ^{239}Pu . La valeur moyenne obtenue est de 100 % pour une valeur moyenne du quenching $k\beta$ égale à 299. La figure I.20 montre un exemple d'un spectre de ^{239}Pu , où la fenêtre du comptage des impulsions est choisie entre les canaux 256 et 600. Le temps de comptage est fixé en fonction du niveau de l'activité à déterminer.

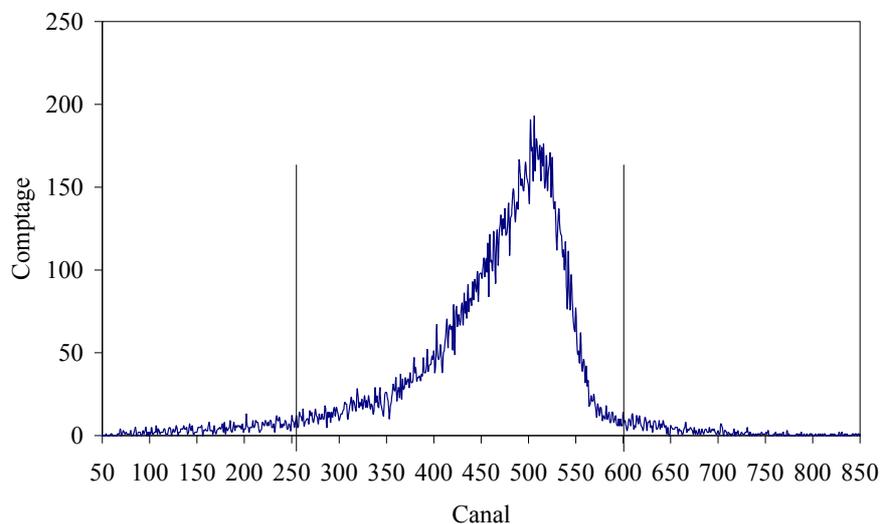


Figure I.20 : Exemple d'un spectre de SL montrant la fenêtre du comptage.

En changeant les fenêtres de comptage nous avons calculé l'incertitude sur la mesure due à la définition des canaux qui est de l'ordre de 1,5 %. Dans notre cas, le temps de comptage est de 60 minutes. Un essai à blanc avec un filtre vierge est effectué dans les mêmes conditions pour la détermination du bruit de fond. Cette valeur est soustraite de la mesure de l'échantillon. Le seuil de décision (SD) et la limite de détection (LD), donnés dans l'annexe B (par les équations B.8, B.9 et B.10), sont respectivement de l'ordre de 0,01 Bq et de 0,02 Bq.

Les principaux avantages de la SL sont : la facilité de préparation des sources radioactives, l'efficacité géométrique de détection (4π), l'absence de barrière physique entre le radionucléide à mesurer et le détecteur ainsi que la faible auto-absorption autorisant ainsi la détection de rayonnements de faible énergie. La SL est utilisée comme méthode de référence de mesure de la radioactivité (Cassette 2001).

4. Conclusion

Les bases physiques des phénomènes survenus lors des prélèvements d'aérosols radioactifs et de la détection des rayonnements α ont été présentées dans ce chapitre. Les méthodes de mesures nucléaires des rayonnements α ont également été décrites. Ce chapitre a détaillé aussi les différents paramètres référencés dans la littérature qui influencent la mesure nucléaire.

Les constatations suivantes ont été mises en évidence:

- le diamètre physique, la forme et la densité des aérosols générés causent une auto-dégradation de l'énergie des rayonnements α non négligeable, d'autant plus grande que le diamètre et la densité sont élevés.
- l'épaisseur, la nature du filtre et la densité des matériaux le constituant sont les facteurs essentiels pour prédire la dégradation d'énergie dans la structure du filtre. Il a été démontré qu'en cas de dépôt surfacique du filtre, les spectres en énergie des rayonnements détectés ont généralement une résolution meilleure que ceux relatifs à un dépôt en profondeur du filtre.
- les mécanismes de collecte des aérosols par les fibres d'un filtre régissent l'enfouissement des aérosols dans les filtres. Ces mécanismes varient suivant le diamètre physique des aérosols et la vitesse de prélèvement. Ils ont une forte influence sur la dégradation de l'énergie.
- les masses d'aérosols accumulés sur les filtres forment d'importants atténuateurs. Cette masse dépend du temps de prélèvement, de la granulométrie des aérosols filtrés et du type de filtre utilisé. Il a été constaté que la dégradation de la résolution augmente avec la masse d'aérosols accumulés sur le filtre.
- l'espace d'air séparant le filtre du détecteur est un facteur important de l'atténuation de l'énergie. Il est donc préférable lors de la détection de procéder dans le vide ou de réduire l'espace séparant le filtre du détecteur.

Inspirés de cette étude bibliographique, les expériences réalisées dans le cadre de ce travail de thèse sont optimisées pour étudier chacun des paramètres influents. Nous décrirons, dans le prochain chapitre, les expériences réalisées pour la quantification de la dégradation de l'énergie des rayonnements dans les matériaux constituant les systèmes de prélèvement et les systèmes de détection.

Chapitre II. Élaboration expérimentale de filtres radioactifs de référence

1. Introduction

La mesure de la radioactivité α dans les filtres de surveillance se fait à l'aide de détecteurs de rayonnements ionisants. Cette mesure est toutefois biaisée par la dégradation de la radioactivité dans les filtres liée aux mécanismes décrits précédemment dans le chapitre I. En effet, l'absorption de l'énergie des rayonnements α dans un filtre constitue un enjeu de première importance qui peut conduire à une sous-estimation de la radioactivité d'un facteur 2 (Parnianpour 1967, Higby 1984, Luetzelschwab *et al.* 2000, Grivaud *et al.* 2004).

Des facteurs de correction de la radioactivité α dans les filtres, permettant de relier l'activité mesurée à l'activité vraie, sont donc à déterminer. La préparation de filtres radioactifs de référence va être alors indispensable pour déterminer ces facteurs qui dépendent du dépôt radioactif, des conditions aérauliques de prélèvement ainsi que du type de filtre et du détecteur utilisé.

Dans ce contexte, l'objectif de ce chapitre est de préparer expérimentalement des filtres de référence adaptés aux conditions réelles de prélèvement. Cette étude a été réalisée à l'aide du banc d'essais ICARE (Installation de Calibration à l'aide d'Aérosols Radioactifs Etalons). Cette installation, unique en Europe, est dédiée à la caractérisation des performances des instruments de mesure de la contamination atmosphérique dans des conditions réelles d'utilisation. Ce banc est également utilisé pour l'élaboration de filtres de référence, représentative des prélèvements d'aérosols ambiants sur un filtre dédiés aux comparaisons entre les laboratoires de surveillance de la radioactivité (Grivaud *et al.* 2004).

La première partie de ce chapitre décrit le banc d'essais ICARE qui a servi à élaborer les filtres radioactifs de référence. Cette partie détaille également les procédures de vérification et de contrôle de la granulométrie et de l'activité des aérosols produits. La seconde partie présente les grilles d'expériences choisies pour définir une base de données étendue sur tous les paramètres influençant la mesure de la radioactivité. Cette partie a permis de produire des filtres radioactifs de référence faiblement chargés en masse d'aérosols radioactifs. La dernière partie décrit la préparation de filtres radioactifs de référence chargés d'un mélange d'aérosols radioactifs et non-radioactifs dont les masses prélevées sont maîtrisées.

2.1. Description du banc d'essais ICARE

Les travaux expérimentaux sont réalisés sur le banc d'essais ICARE (figure II.1) (Ammerich 1989, Ruzer *et* Harley 2005). ICARE permet, tout particulièrement, de tester les performances d'un système de prélèvement, en tenant compte des phénomènes liés à la granulométrie des aérosols (mécanismes de filtration, colmatage, auto-absorption α , rétention sur les parois, etc.).

Les aérosols radioactifs artificiels sont produits à l'aide de pulvérisation d'une solution aqueuse par des pulvérisateurs ultra-soniques qui sont confinés dans une boîte à gants. Pour produire des aérosols radioactifs, nous utilisons généralement une solution mère de chlorure de césium (CsCl) non-radioactive dans laquelle nous ajoutons une solution contenant l'élément radioactif désiré, principalement du ^{239}Pu . Le sel de CsCl a été choisi car il est faiblement hygroscopique et favorise ainsi l'évaporation rapide des microgouttelettes. La solution aqueuse est pulvérisée en brouillard qui, desséché par un débit d'air sec, donne des aérosols solides dont la taille (de 0,1 jusqu'à 10 μm) est fonction de celle des gouttelettes et de la concentration en sel de la solution de départ.

L'activité volumique et donc la concentration des aérosols produits par les pulvérisateurs à ultrasons sont stables pendant plusieurs heures. Par exemple, pour le ^{239}Pu il est possible de produire une activité volumique comprise entre 8×10^{-2} et 12 Bq par m^3 d'air prélevé.

Des sources d' ^{241}Am sont placées en aval des générateurs afin de produire un « bain » d'ions bipolaires permettant de neutraliser l'aérosol, c'est-à-dire d'imposer un état de charge électrique de particules proche de l'équilibre de Boltzmann. Cette étape permet de minimiser les effets électrostatiques pouvant conduire à un dépôt de particules dans les conduits. Par ailleurs, les phénomènes d'auto-chargement pour les aérosols radioactifs émetteurs α produits dans ICARE sont négligeables compte tenu de la faible activité spécifique de particules produites (de l'ordre de 10^{-4} Bq par particule) (Gendarmes *et al.* 2001).

ICARE est composé d'un conduit de ventilation dans lequel un débit d'air régulé et filtré de $60 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$ circule. Les aérosols marqués par du ^{239}Pu , calibrés en taille, en concentration et en activité, sont acheminés dans ce conduit. En aval de la veine principale, les aérosols radioactifs artificiels sont extraits, en parallèle, à l'aide de trois points de prélèvement. Les points sont éloignés suffisamment l'un de l'autre afin de réduire les perturbations sur les prélèvements (Ammerich 1989). Les prélèvements sont réalisés à l'aide de sondes isocinétiques dimensionnées pour prélever à des débits compris entre $10 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ et $300 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$ compte tenu du débit circulant dans la veine aéraulique.

Des porte-filtres cylindriques, assurant le support du filtre à tester et l'étanchéité, sont raccordés aux différentes sondes prélevant au cœur du conduit principal. Sur chacune des voies, la vitesse de filtration à travers un porte-filtre est contrôlée par un débitmètre massique associé à d'autres porte-filtres. Des manomètres mesurant la perte de charge P en amont et aval des porte-filtres, des vannes de régulation ainsi que des pompes à air sont également associés au banc ICARE. Il est important de préciser que les systèmes de collecte sur tous les points du montage sont soumis aux mêmes conditions expérimentales, à savoir même diamètre du tube, même débit et même durée de prélèvement. La voie de production des aérosols radioactifs naturels n'est pas utilisée dans cette étude.

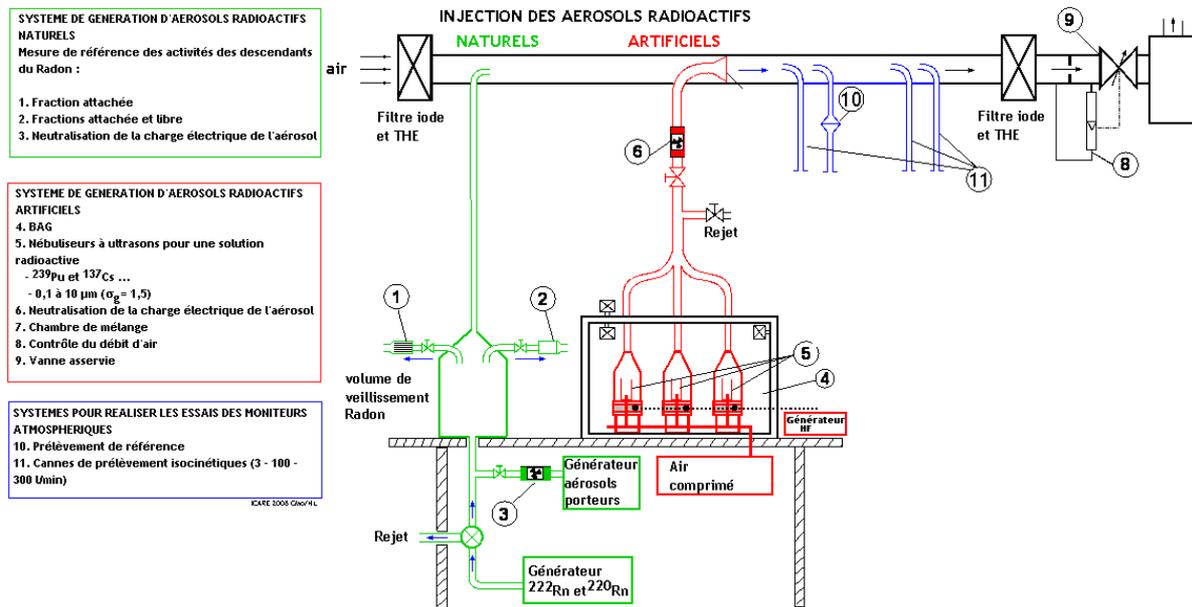


Figure II.1: Vue du banc d'essais ICARE comprenant, les générateurs d'aérosols artificiels (en rouge), la veine principale ainsi que les voies de prélèvement (en bleu).

2.2. Montage expérimental

2.2.a. Principe de la pulvérisation ultrasonore

La production ultrasonore d'aérosols est fondée sur le comportement d'une couche de liquide en contact avec une surface vibrante (une céramique piézoélectrique dans cette étude) comme le montre la figure II.2. Au-delà d'une certaine amplitude vibratoire, une fontaine ultrasonique se forme et des gouttelettes sont arrachées à la surface du liquide. Le diamètre d_g des gouttelettes est en relation avec la fréquence ultrasonore et les caractéristiques du fluide (tension superficielle, densité et viscosité).

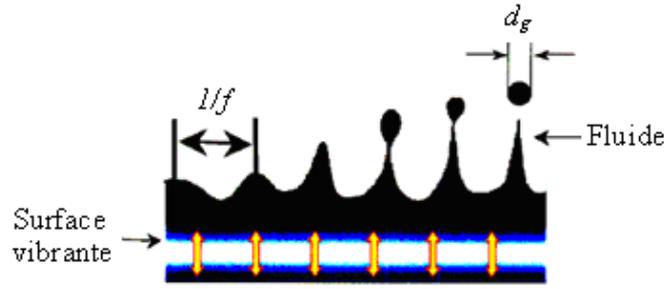


Figure II.2 : Illustration montrant le principe de la production d'aérosols par pulvérisation ultra sonore.

Le principe de la pulvérisation ultrasonore repose sur la relation entre la fréquence f (Hz) de vibration et le diamètre d_g (μm) des gouttelettes.

$$d_g = \kappa \left(8\pi \frac{\gamma_s}{\rho} \right)^{\frac{1}{3}} f^{-\frac{2}{3}} \quad (\text{II. 1})$$

où γ_s est la tension superficielle de la solution,

ρ est la masse volumique de la solution et

κ est une constante expérimentale liée au générateur ultrasonore.

La gouttelette pulvérisée est asséchée par un flux d'air pour devenir un aérosol. La relation entre le diamètre d_g (μm) de la gouttelette et le diamètre équivalent en volume d_{ev} (μm) de l'aérosol sec s'exprime par :

$$d_{ev} = d_g \left(\frac{C_m}{\rho_s} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{II. 2})$$

où C_m ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) est la concentration massique du sel et

ρ_s ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) est la masse volumique du sel.

Pour caractériser l'aérosol sec prélevé sur les filtres, le concept de diamètre aérodynamique doit être introduit. Ce diamètre est défini comme étant le diamètre d'une particule sphérique ayant la même vitesse de chute que la particule considérée et de masse volumique de $1 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$.

$$d_a = \sqrt{\frac{\rho_s}{\chi \rho_e}} d_{ev} \sqrt{\frac{Cu(d_{ev})}{Cu(d_a)}} \quad (\text{II. 3})$$

où d_a (μm) est le diamètre aérodynamique.

χ est le facteur de forme de la particule : il est égal à 1 si la particule est sphérique.

D'après Fuchs (1958), χ est égal à 1,07 pour des cristaux cubiques (CsCl).

ρ_s ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$) est la masse volumique du sel.

ρ_e ($\text{g} \cdot \text{cm}^{-3}$) est la masse volumique de l'eau.

Cu est le facteur de Cunningham qui prend en considération le régime d'écoulement présent autour de la particule. Dans le cas d'un flux d'air à température ambiante

(293 K), il est défini par l'intermédiaire de la pression et du diamètre concerné (Baron *et Willeke* 2001) :

$$Cu(d_i) = 1 + \frac{1}{P_a d_i} [15,6 + 7 \exp(-0,006 \times P_a d_i)] \quad (\text{II. 4})$$

où P_a est la pression atmosphérique (101,3 kPa) et

d_i (μm) est le diamètre équivalent en volume (d_{ev}) ou aérodynamique (d_a) de la particule sèche.

La mesure du diamètre aérodynamique est ainsi effectuée à l'aide d'appareils de classification de taille fonctionnant par le principe d'impaction inertielle. L'écart-type géométrique (σ_g) d'une distribution log-normale de la granulométrie renseigne sur le caractère monodispersé ou polydispersé de l'aérosol. Le DAM est le diamètre aérodynamique médian qui divise les granulométries des aérosols en deux parties également réparties de part et d'autre de la médiane. Les mesures du diamètre aérodynamique médian en activité (DAMA) s'effectuent à l'aide de l'analyse des données de mesure de l'activité.

Dans le domaine de la surveillance de la radioactivité dans l'air, la communauté scientifique a adopté des hypothèses fondées sur des données expérimentales. En zone de travail, le DAMA suit une loi log-normale de valeur médiane de 4 μm avec un écart-type géométrique (σ_g) de 1,4. Dans l'environnement, cette distribution est considérée comme ayant une valeur médiane de 0,4 μm avec σ_g de 1,4 (Cheng *et al.* 2004, Perrin 1985, Georgi 1987).

2.2.b. Production d'aérosols radioactifs

Avec les générateurs d'aérosols (GA) conçus à l'IRSN, il est possible d'utiliser une grande variété de sels, de différentes compositions chimiques et densités, suivant l'application envisagée. Dans cette étude, le sel de CsCl non-radioactif (de densité 3,99 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$) est choisi car il favorise l'évaporation rapide des microgouttelettes marquées avec le plutonium-239. Le tableau II.1 regroupe les caractéristiques choisies pour générer ces tailles d'aérosols. Le débit de séchage et le débit de dispersion balayant les GA sont choisis de façon à réduire la dispersion du diamètre des aérosols générés et d'avoir une stabilité de la granulométrie et de la concentration (Maquenhem *et al.* 2005, Ammerich 1989). La figure II.3 schématise le principe de deux GA, l'un de 80 kHz et l'autre de 2400 kHz utilisés dans cette étude pour produire des aérosols ayant des granulométries théoriquement centrées sur 4 et 0,4 μm respectivement.

Tableau II.1 : Caractéristiques choisies pour la production des aérosols avec les GA dans notre cas d'étude.

Générateur d'aérosols GA (kHz)	Quantité de sel CsCl (mg) dans 1 L d'eau	Granulométrie théorique (μm)	Débit de séchage ($\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$) TPN	Débit de dispersion ($\text{L}\cdot\text{min}^{-1}$) TPN
80	2018	4	220	-
2400	1671	0,4	80	20

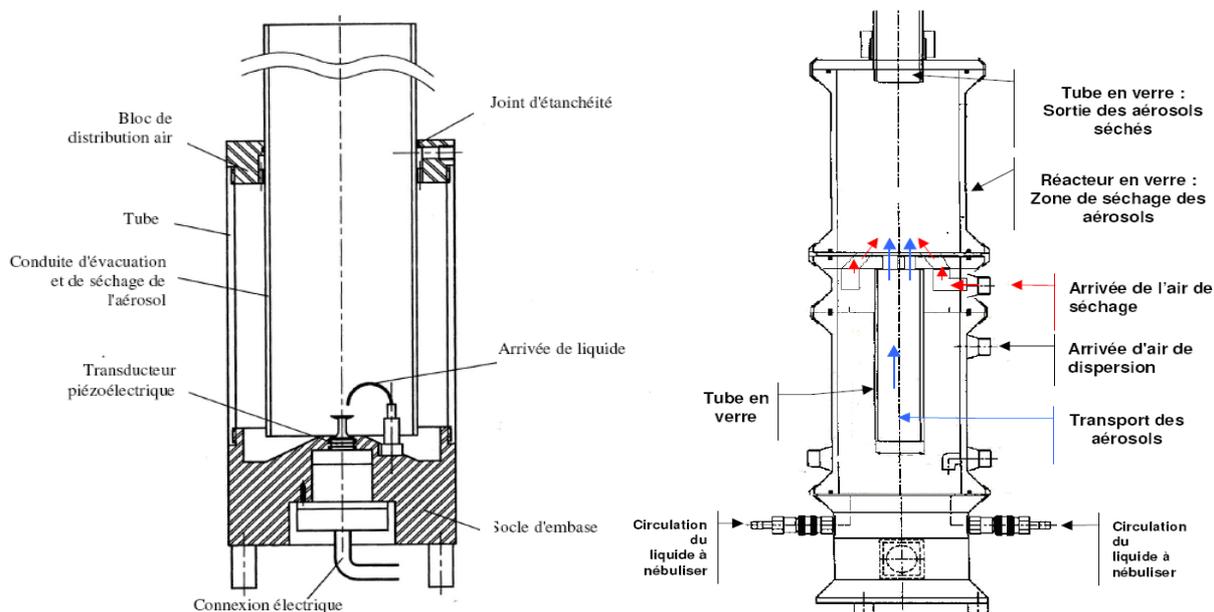


Figure II.3 : Schémas de principe du générateur d'aérosols GA 80 (à gauche) et du générateur d'aérosols GA 2400 (à droite).

2.2.c. *Contrôle de la granulométrie*

Avant la préparation des filtres de référence, il est nécessaire de vérifier la granulométrie des aérosols produits par les GA. En effet, ce paramètre aura une grande incidence sur nos facteurs de correction. Des mesures de DAMA sont ainsi effectuées à l'aide d'impacteurs suivies des mesures d'activité par étages. Dans cette étude, un impacteur Andersen Mark II et un impacteur à basse pression LPI (acronyme anglais de Low Pressure Impactor) sont utilisés respectivement pour des aérosols de taille micrométrique et submicronique.

2.2.d. *Etude à l'aide de l'impacteur Andersen Mark II*

L'impacteur Andersen en cascade Mark II (Thermo Electron Corporation) est utilisé pour mesurer le diamètre aérodynamique des aérosols produits par le GA 80. Le principe de fonctionnement est le suivant : un flux d'air est amené à des vitesses croissantes à travers une succession d'orifices et de plaques d'impaction (figure II.4). Les aérosols à grande inertie sont impactés sur les premiers étages de l'impacteur. Les aérosols à faible inertie sont quant à eux impactés sur les supports situés plus en profondeur du dispositif (Hinds 1998). Les aérosols

sont ainsi séparés et collectés par gamme de taille décroissante sur des filtres à fibres de verre (réf. Environmental Tisch Corp. Ref. TE-20-301). L'impacteur Andersen est conçu pour travailler avec un débit d'air de 1 ACFM (Air Cubic Feet per Minute) équivalent à $28,3 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ dans les conditions de température et de pression normales. L'impacteur est raccordé successivement sur les trois voies de prélèvement d'ICARE afin de vérifier la granulométrie des aérosols qui sont produits pour nos expériences. Le débit d'air circulant dans le dispositif est contrôlé à l'aide d'un rotamètre étalonné.



Figure II.4 : Photographie de l'Andersen en cascade Mark II montrant une succession d'étages.

Normalement, pour déterminer la distribution granulométrique des aérosols prélevés sur chaque étage de l'impacteur, les masses d'aérosols prélevés sur les filtres sont mesurées avant et après les expériences (la limite d'erreur tolérée, LET, de la balance est de 0,01 mg). Cependant, pour des faibles masses prélevées sur un filtre comme c'est le cas sur le banc ICARE, l'incertitude sur la mesure est grande. La méthode de calcul de l'incertitude sur la masse pesée est détaillée dans l'annexe C.

Une autre méthode de détermination de la distribution granulométrique des GA fondée sur la mesure de la radioactivité de chaque étage de l'impacteur permet aussi de remonter au DAMA dans le cas où les aérosols prélevés sont radioactifs (Dorrian *et* Bailey 1995, Naureen *et al.* 2006). Pour cela, les filtres prélevés sur les étages sont dissous dans des flacons de 20 mL de liquide scintillant et ensuite sont mesurés avec le compteur « Wallac-Guardian » du LNHB. Trois essais ont été faits à l'aide de l'impacteur Andersen sur le banc ICARE. Le tableau II.2 montre, à titre d'exemple, les valeurs du comptage mesuré à la première voie d'ICARE par la technique de scintillation liquide (SL). L'incertitude sur les mesures et l'incertitude systématique sur la SL sont calculées (cf. relation I.10). La figure I.5 présente le nombre de coups par seconde (normalisé %) mesuré avec le compteur par étage de

l'impacteur sur le banc d'essai ICARE. Cette figure montre pour les trois cas étudiés un maximum de comptage pour les aérosols de 3,3 μm .

Tableau II.2 : Etude de la granulométrie des aérosols prélevés sur la première voie à l'aide de l'impacteur Andersen. Les résultats de la SL sont présentés pour chaque étage de l'impacteur.

Étage de l'impacteur Andersen	d_a (μm) à 50 % d'efficacité de collecte	Comptage _{SL} (%) par étage	Incertitude (k=1) sur le comptage _{SL}
1	9	2,82	0,17
2	5,8	5,21	0,23
3	4,7	9,38	0,31
4	3,3	42,65	0,66
5	2,1	31,92	0,57
6	1,1	4,60	0,22
7	0,7	1,59	0,13
8	0,4	0,801	0,093
9	0,1	1,04	0,10

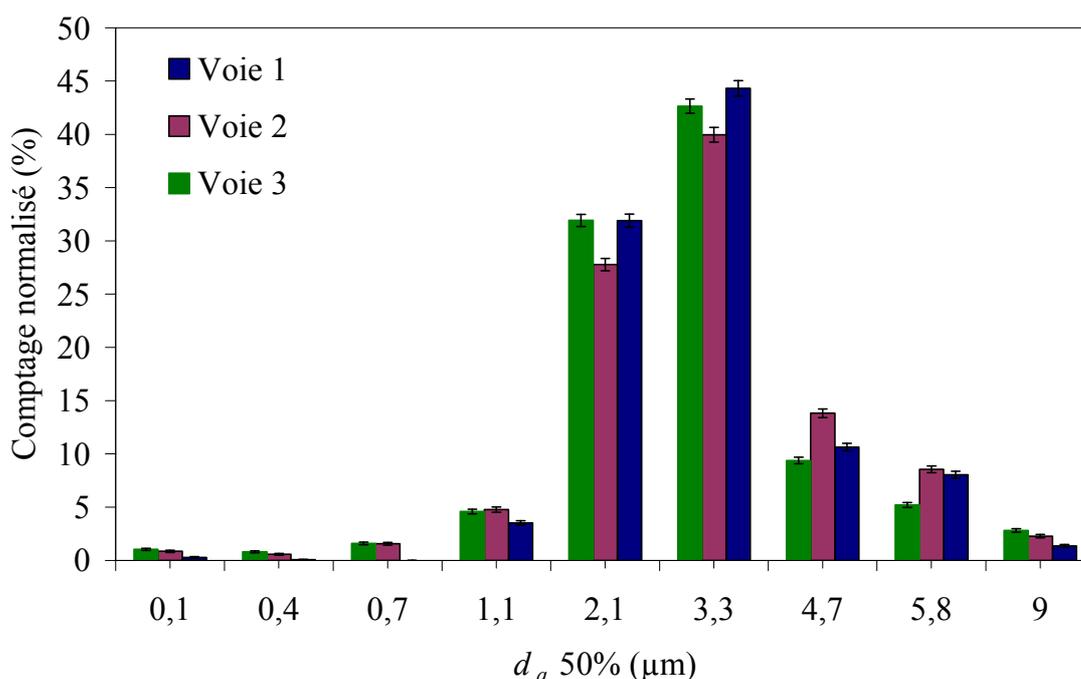


Figure II.5 : Histogramme de la distribution granulométrique des aérosols de 4 μm produits par la GA80 sur la première voie du banc ICARE. Le comptage (%) et les incertitudes associées sont représentés en fonction des d_a 50% de coupure des étages de l'impacteur.

Dans notre laboratoire, un programme d'analyse a été développé sous le logiciel MathCad (Gensdarmes *et* Pontreau 2007) pour déterminer le diamètre médian en activité et son σ_g en ajustant la distribution granulométrique mesurée suivant une loi log-normale. Il s'agit de faire une régression linéaire sur les points expérimentaux exprimés en fractile afin de déterminer la

droite de Henry pour un domaine de fractiles choisi. Le DAMA et σ_g sont déterminés simplement à l'aide d'une droite. La figure II.6 illustre un exemple de cet ajustement.

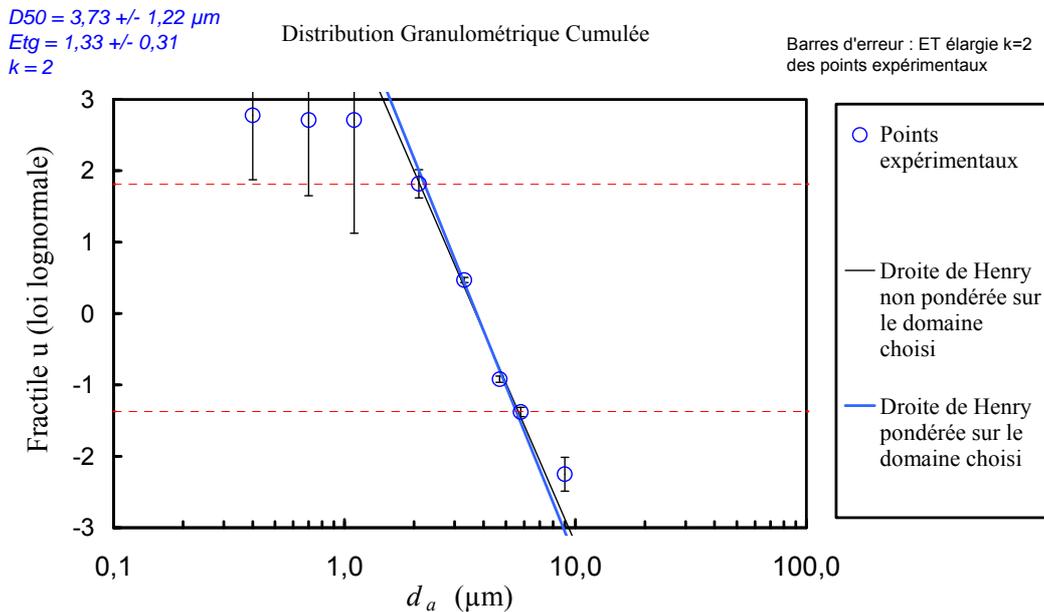


Figure II.6 : Exemple d'ajustement de la droite de Henry (domaine de fractiles [-2 ; 2]) sur des mesures effectuées sur la première voie du banc d'essai ICARE en fonction de l'échelle des fractiles.

Pour une meilleure estimation du diamètre médian, le domaine log-normal retenu est réduit à [-2 ; +2], ce qui correspond à un domaine de fractions cumulées comprises dans l'intervalle [2 % ; 98 %], soit 96 % de l'activité totale.

Dans le cas de la première voie d'ICARE, le DAMA vaut donc 3,73 μm avec un σ_g de 1,33. Cette valeur est donc comparable à la valeur théorique de 4 μm . Pour les autres voies d'ICARE, le DAMA calculé vaut 3,66 μm avec un $\sigma_g = 1,36$ (voie 2) et 3,48 μm avec un $\sigma_g = 1,41$ (voie 3). La valeur moyenne pour ces trois DAMA est de 3,62 μm et le σ_g est de 1,36. Ces résultats démontrent que les aérosols produits par les GA80 d'ICARE sont peu dispersés et sont donc comparables à la valeur théorique, du DAMA centrée à 4 μm , initialement calculée. Il n'y a donc aucun biais dû au prélèvement et il est possible de se fier au calcul théorique réalisé pour nos expériences.

2.2.e. Etude à l'aide de l'impacteur LPI

L'impacteur LPI (Dekati Corp.) permet de caractériser les aérosols dont le diamètre aérodynamique est compris entre 30 nm et 10 μm . Le LPI utilisé dans notre étude est un modèle commercialisé par la société Dekati. La figure II.7 montre le LPI et son principe de fonctionnement. Le principe est fondé sur la classification par impaction inertielle à basse

pression avec un débit d'échantillonnage de $10 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Compte tenu des faibles masses prélevées ainsi que de l'utilisation des filtres FSLW pour collecter les particules, la méthode de mesure de la radioactivité sur les filtres fait appel aux détecteurs à gaz (MINI20).



Figure II.7 : Photographie du LPI (à gauche) et schéma de principe du fonctionnement par impaction (à droite).

En supposant que l'effet de l'impaction sur les parois du banc d'essai est minimal pour les aérosols fins, les essais ont été effectués à l'aide du LPI sur une seule voie de prélèvements du banc ICARE. Le tableau II.3 montre les comptages par seconde (Cp/s) mesurés sur les filtres prélevés par étages du LPI à la première voie du banc d'essais ICARE.

Tableau II.3 : Exemple d'une étude de la granulométrie produite par GA2400 du banc ICARE. Le comptage et l'incertitude associée sont déterminés pour chaque étage du LPI.

Étage du LPI	d_g de la particule à 50 % d'efficacité de collecte évaluée théoriquement (μm)	Comptage % par étage du LPI	Incertitude ($k=1$) sur le comptage
13	10	0,00	0,00
12	6,8	0,083	0,072
11	4,4	0,33	0,14
10	2,5	2,84	0,42
9	1,6	3,33	0,45
8	1,0	10,27	0,79
7	0,65	21,6	1,2
6	0,40	42,5	1,6
5	0,26	15,6	0,98
4	0,17	2,34	0,38
3	0,108	0,45	0,17
2	0,06	0,041	0,052
1	0,030	0,00	0,00

La figure II.8 présente la distribution granulométrique des aérosols produits par la GA2400 sur le banc ICARE et mesurée par le LPI. Cette figure montre un maximum pour les aérosols de $0,4 \mu\text{m}$.

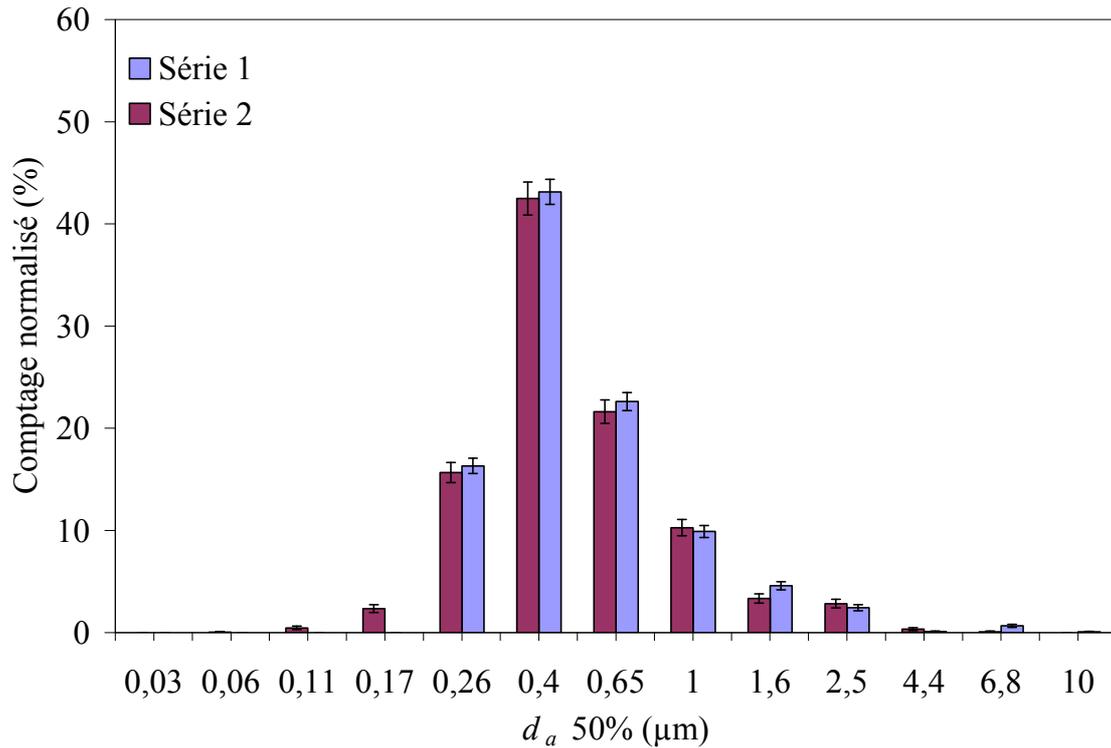


Figure II.8 : Histogramme de la distribution granulométrique des aérosols de 0,4 μm produits par le GA2400 du banc d'essai ICARE. Le comptage et les incertitudes associées sont représentés en fonction des d_a 50 % de coupure des étages du LPI.

Comme pour l'impacteur Andersen, un ajustement par régression linéaire des données expérimentales de comptage est effectué afin de connaître la granulométrie de l'aérosol radioactif généré par le générateur (GA2400). La distribution granulométrique obtenue possède un DAMA moyen égal à 0,5 μm et un σ_g moyen de 1,56. Les aérosols produits par les générateurs GA2400 d'ICARE sont peu dispersés. Cette valeur est comparable à la valeur théorique centrée sur 0,4 μm .

2.3. Contrôle de l'activité volumique

Au cours des expériences, il est nécessaire de contrôler l'activité volumique portée par les aérosols dans l'ensemble aéraulique de l'installation, de manière à contrôler les prélèvements. Pour cela, un moniteur (MGP réf. ABPM 201-L) est utilisé pour effectuer un prélèvement en continu des aérosols radioactifs produits à l'aide d'ICARE. Ce moniteur permet d'enregistrer la variation relative de l'activité volumique des aérosols au cours de l'essai. L'évolution de l'activité produite par les GA est ainsi connue en intégrant sur des intervalles de temps prédéfinis. L'étude de la stabilité en activité des deux types de GA utilisés est effectuée pendant les expériences pour mieux appréhender tous les paramètres de production des

aérosols radioactifs. La figure II.9 montre la stabilité en activité dans la veine de prélèvement lors d'un essai.

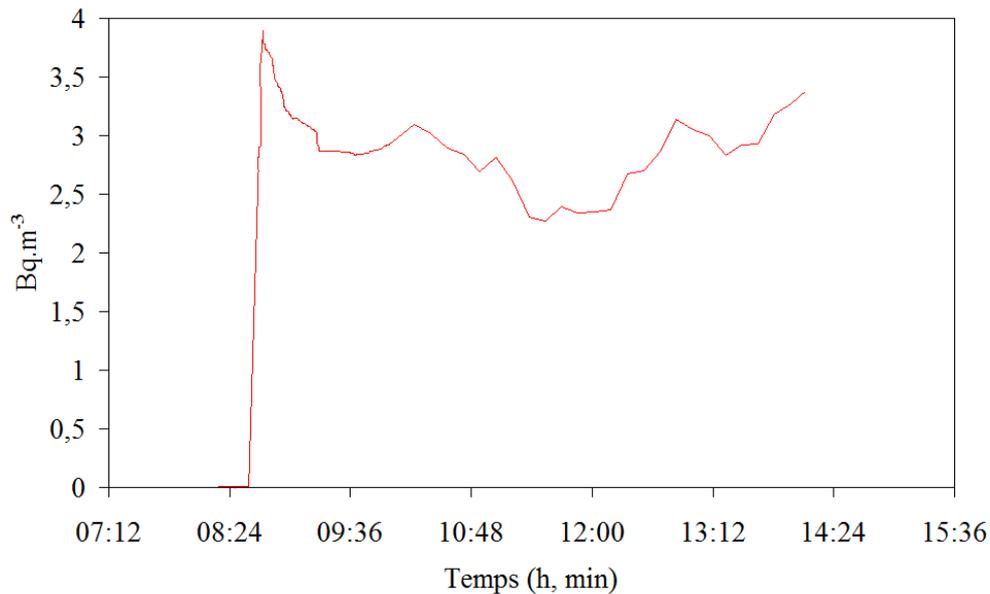


Figure II.9 : Exemple de suivi de l'activité volumique d'aérosols du ²³⁹Pu lors d'un essai.

2.4. Optimisation du prélèvement de la veine principale

Le prélèvement des aérosols radioactifs produits sur le banc d'essais ICARE est assuré à travers trois sondes de prélèvement isocinétiques, à des vitesses de filtration allant de 5 à 200 cm.s⁻¹. Les principales grandeurs d'influence concernant l'efficacité du prélèvement d'aérosols sont contrôlables avec ces sondes de prélèvement (figure II.10).

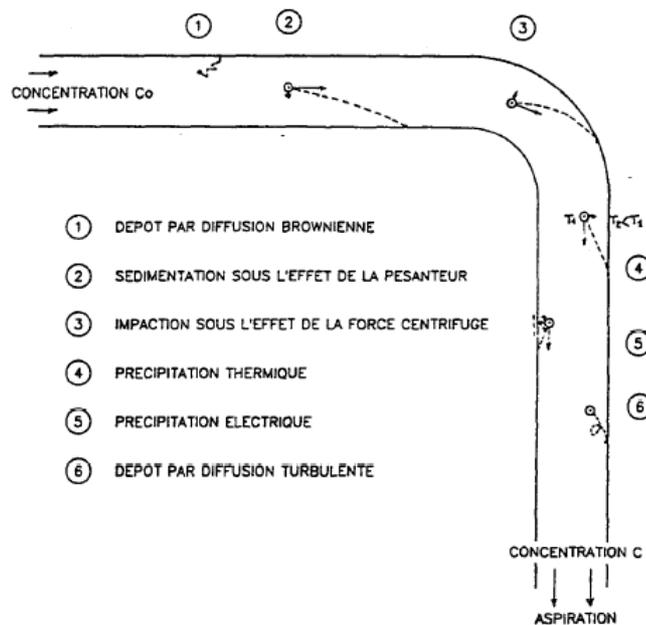


Figure II.10 : Principaux mécanismes de dépôt des aérosols dans les sondes de prélèvement (figure d'après Ammerich 1989). La fraction pénétrante est le rapport entre la concentration en amont et en aval de la sonde.

Les caractéristiques de prélèvement sur ICARE sont décrites dans les travaux d'Ammerich (1989) :

- le nombre de Reynolds de la circulation de l'air est maintenu à moins de 2000 pour éviter la turbulence dans les tuyaux,
- le débit d'air dans les tuyaux est optimisé pour réduire les pertes par sédimentation dans les sections horizontales (débit trop faible) et les pertes par effet centrifuge ayant un impact dans les coudes (débit trop élevé),
- le diamètre des tuyaux est assez large pour réduire les dépôts par diffusion Brownienne des aérosols,
- les conduites métalliques ont une surface intérieure lisse et une continuité de masse électrique entre chaque section, évitant ainsi les dépôts par précipitation électrostatique des aérosols chargés,
- la température des conduits est à la même température que l'air ambiant, évitant ainsi les dépôts d'aérosols fins par précipitation thermique,
- les changements brusques de diamètre des tuyaux sont affaiblis en utilisant des faibles angles de convergence au sommet, évitant ainsi les dépôts par impaction inertielle.

2.5. Porte-filtre utilisé dans les expériences

Le porte-filtre est formé d'une grille en inox qui porte le filtre et laisse passer le flux d'air. Des rondelles et des joints toriques assurent l'étanchéité entre l'intérieur du porte-filtre et l'extérieur (figure II.11).

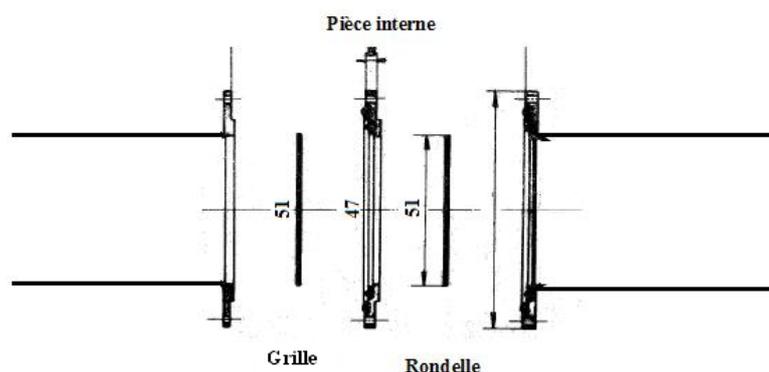


Figure II.11 : Schéma du porte-filtre utilisé. Les dimensions des pièces internes sont indiquées.

Le porte-filtre force le fluide vecteur à passer au travers du médium filtrant. Les porte-filtres utilisés dans cette étude sont de forme cylindrique afin de réduire les turbulences de l'air sur la surface du filtre et de réduire les dépôts sur les parois par la diffusion Brownienne des aérosols. Les filtres utilisés ont un diamètre de 47 mm. Cette géométrie cylindrique assure une

homogénéisation du flux d'air sur la surface du filtre. En amont et en aval du porte-filtre se trouvent des sorties de prise de pression de façon à effectuer un suivi de la variation de la perte de charge du filtre en fonction de son colmatage. Le débit d'échantillonnage choisi à travers les filtres est représentatif de celui mesuré en continu dans les zones de travail et de l'environnement soit de 10 à 200 L.min⁻¹. Pour les équipements destinés à la mesure en continu, le volume d'échantillonnage est généralement exprimé dans les conditions de température et de pression normales (TPN).

2.6. Homogénéité du dépôt surfacique d'aérosols sur les filtres

L'homogénéité du dépôt surfacique d'aérosols avec le banc d'essais ICARE est déterminée par mesure de radioactivité avec un appareil d'auto-radiographie. Un maillage de 40×40 mm² permet de couvrir 92 % de la surface du filtre à fibres. L'homogénéité est obtenue en comparant différentes régions de la surface du filtre et en calculant l'écart-type relatif des distributions en activité.

Pour un dépôt classique de solution radioactive effectué goutte à goutte manuellement, l'homogénéité du dépôt surfacique d'aérosols se situe entre 23 % et 40 % (Monsanglant *et* Liatimi 2005). Pour un dépôt réalisé avec ICARE, cette homogénéité varie entre 4,5 % et 10,2 % selon le type de filtre. A titre d'illustration, la figure II.12 montre une auto-radiographie de deux filtres préparés selon les deux méthodes. Cette figure confirme la différence d'homogénéité entre les deux dépôts.

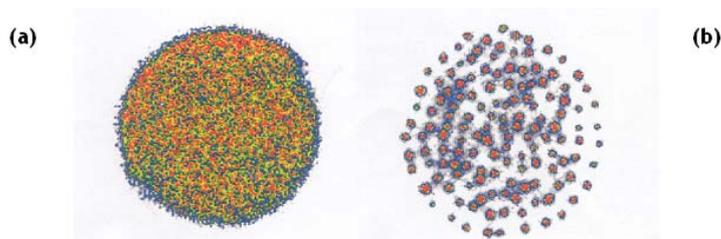


Figure II.12 : Auto-radiographie de l'activité sur deux filtres à fibres de cellulose type B132, montrant la différence entre un dépôt d'aérosols radioactifs préparé avec ICARE (a) et un dépôt manuel de goutte à goutte d'une solution radioactive (b) (Monsanglant *et* Liatimi 2005).

3. Préparation des filtres radioactifs de référence

Les expériences sur le banc ICARE visent à produire des filtres de référence en activité en tenant compte des conditions aérauliques de prélèvement. Les expériences réalisées au cours de ces travaux se divisent selon deux axes principaux :

- le premier axe concerne l'étude de la dégradation de la mesure nucléaire en fonction de la pénétration des aérosols dans le médium filtrant. Il s'agit de réaliser des filtres radioactifs de référence, avec de faibles masses d'aérosols, dans lesquels différents niveaux de pénétration seront obtenus en faisant varier divers paramètres tels que la nature du filtre, les conditions aérauliques de filtration et la granulométrie des aérosols. Cette étude permettra d'évaluer le profil de pénétration des aérosols dans la profondeur du filtre ainsi que la dégradation de la radioactivité dans le filtre. Elle permettra ainsi d'établir des facteurs de correction à appliquer aux mesures de la radioactivité dans un détecteur nucléaire afin de remonter à la radioactivité vraie.
- le deuxième axe concerne l'étude de l'influence des masses d'aérosols déposés en profondeur puis en surface du filtre, sur la dégradation de la mesure nucléaire. Il s'agit, sur la base des résultats obtenus avec les filtres de référence étudiés précédemment, de suivre l'évolution de la réponse nucléaire en fonction de la masse d'aérosols déposés sur le filtre. L'encrassement par des aérosols non-radioactifs sera étudié simultanément avec le dépôt de radioactivité. Cette étude permettra d'évaluer la dégradation de la radioactivité dans les filtres et les masses d'aérosols accumulés et d'établir ainsi des facteurs de correction à prendre en compte en fonction de l'encrassement du filtre.

3.1. Préparation des filtres radioactifs de référence faiblement chargés en masse d'aérosols

Dans les installations nucléaires en zones contrôlées/surveillées ayant une ventilation forcée, les aérosols sont beaucoup moins présents que dans l'environnement. Par conséquent, dans la première série d'expériences, des filtres radioactifs de références faiblement chargés en masses d'aérosols sont préparés. En effet la masse des filtres préparés, pesés avant et après les expériences, reste négligeable.

Les expériences réalisées dépendent de nombreux paramètres physiques. Afin d'aider à hiérarchiser la démarche, nous avons eu recours à une grille d'expérience présentée dans le tableau II.4. Celle-ci permet en effet d'optimiser le choix des essais à réaliser et d'aider à

l'interprétation des résultats. Nous pourrions ainsi minimiser le nombre d'essais tout en obtenant des résultats pertinents dans une gamme fixée de paramètres physiques.

En s'inspirant des travaux antérieurs présentés dans le premier chapitre, l'élaboration des filtres de référence est réalisée selon les caractéristiques suivantes :

- le radionucléide utilisé est le ^{239}Pu . Il est facilement marqué sur le sel CsCl (Ammerich 1989). Il est émetteur de rayonnements α dans la bande d'énergie entre 4 et 8 MeV, la plus recherchée pour la surveillance de la radioactivité artificielle.
- les trois types de filtres testés sont tous de diamètre 47 mm, du fabricant Bernard DUMAS. Il s'agit des filtres suivants :
 - filtre réf. C357, de couleur blanc, fabriqué en pure fibres de verre. Il est utilisé dans les balises environnementales BFSAB du CEA et OPERA de l'IRSN,
 - filtre réf. C569, de couleur jaune, fabriqué d'un mélange à moitié fibres de verre et à moitié fibres de cellulose. Il est aussi utilisé dans les balises AS de l'IRSN,
 - filtre réf. B132, de couleur bleu, fabriqué de fibres de cellulose. Il est utilisé dans les balises d'EDF.

Plus de détails sur les caractéristiques des filtres utilisés sont rapportés dans l'annexe D.

- le DAMA théorique des aérosols produits est centré à $0,4\ \mu\text{m}$ et à $4\ \mu\text{m}$. Ces tailles sont représentatives des aérosols en zone de travail et dans l'environnement respectivement.
- les vitesses frontales de filtration à travers les filtres sont de l'ordre de $0,22\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $0,66\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$, $1\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ et $1,25\ \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Elles sont obtenues par un rapport du débit sur la surface filtrante, de façon à se rapprocher le plus possible des valeurs utilisées dans les balises d'installations (basses vitesses) et dans les balises environnementales (hautes vitesses).
- la durée d'exposition est variable en fonction du volume total voulu qui correspond dans notre cas à une activité entre 0,01 et 10 Bq. Le dépôt surfacique en masses d'aérosols est très faible $\sim 1\ \mu\text{g}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour ces premières campagnes d'expériences, ce qui permet de n'avoir sur les filtres qu'un nombre restreint de particules.

Une deuxième série de filtres de référence avec encrassement par des masses variables sera présentée dans le prochain paragraphe.

Tableau II.4 : Grille expérimentale réalisée avec la solution CsCl marquée au ^{239}Pu .

Marqueur	DAMA et (σ_g)	Type de filtre	Vitesse au niveau du filtre (cm.s^{-1})
^{239}Pu	4 μm (1,4)	C357	22
		C569	66
			100
		B132	125
^{239}Pu	0,4 μm (1,4)	C357	22
		C569	
			125
		B132	

Les résultats de cette étude expérimentale seront présentés et analysés dans le chapitre III.

3.2. Préparation des filtres radioactifs de référence chargés en masse d'aérosols

Lors de prélèvements d'aérosols atmosphériques, les filtres sont souvent chargés par des masses de particules. La nature de ces particules varie largement et elle est dépendante de plusieurs paramètres chimiques et physiques.

En générale, les aérosols atmosphériques sont de tailles et de natures chimiques très variées. D'après les premières expériences, et en s'inspirant de la littérature, le choix des conditions de prélèvement est orienté vers l'étude des masses du sel avec des tailles $< 1 \mu\text{m}$. Les aérosols utilisés dans la littérature pour ce genre d'expérience sont majoritairement du chlorure de sodium. Ce dernier est choisi d'une part pour la facilité de son utilisation et d'autre part de sa représentativité des particules atmosphériques ayant une densité moyenne de l'ordre de 2 g.m^{-3} (Schery 2001).

Pour étudier l'effet de ces masses d'aérosols sur la dégradation de l'énergie des rayonnements α dans les filtres de prélèvement, différents types d'encrassement d'aérosols sont possibles. Des études menées par Alcantara *et al.* (2000) et Huang *et al.* (2002) ont montré que le type d'encrassement d'aérosols sur le filtre, représentatif de la réalité, est celui obtenu en considérant la production mélangée d'aérosols radioactifs et non-radioactifs. Dans cette étude, une production identique d'aérosols est effectuée.

Matériels et méthodes

Dans cette étude, un générateur d'aérosols (GA) ultra-sonique GA2400S (Sinaptec Corp.) externe du banc ICARE est utilisé. Ce GA est relié directement au conduit principal d'ICARE. La solution pulvérisée contient de l'eau désionisée et filtrée ainsi que du sel NaCl.

Ce type de générateur est conçu d'une façon à générer des masses d'aérosols élevées. En aval de la veine principale d'ICARE dont le débit d'air est de $60 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$, la production des aérosols non-radioactifs se fait simultanément à la production des aérosols radioactifs. En amont de la veine principale, le prélèvement du mélange d'aérosols se fait sur deux voies : le filtre à préparer et le néphélomètre (moniteur d'aérosols de type DataRam4 de Thermo Scientific). Le moniteur de la radioactivité est également relié sur le banc afin de réaliser un suivi en temps réel de l'activité dans la veine. La figure II.13 montre le principe du montage mis en place pour cette étude.

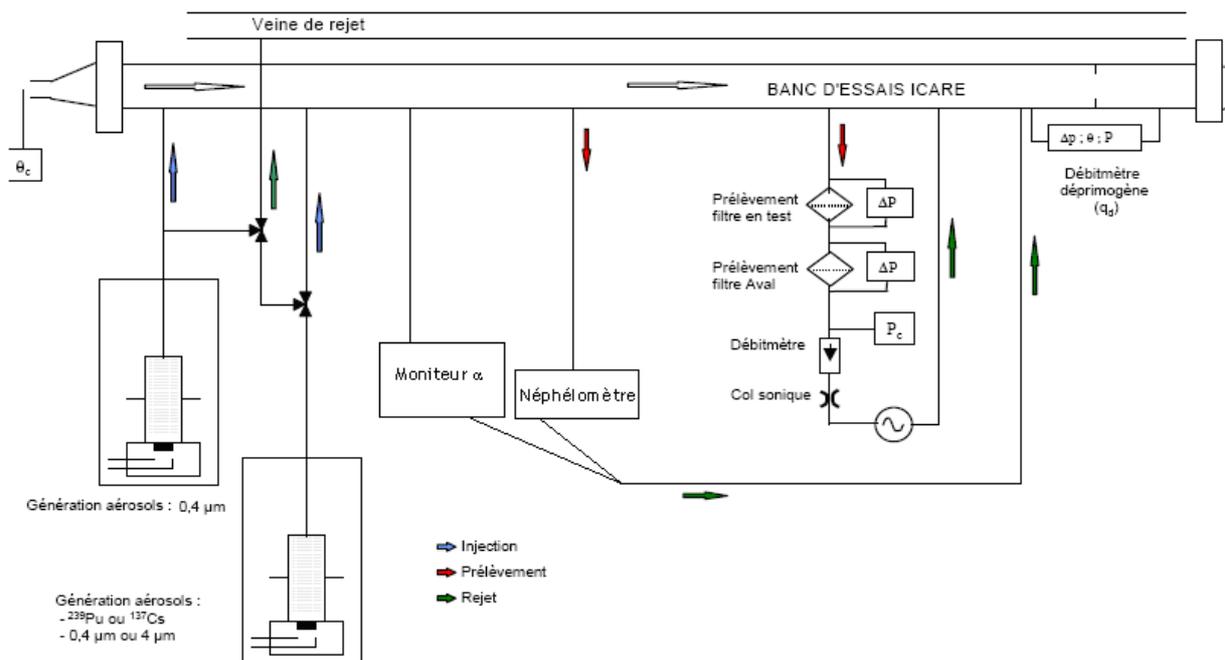


Figure II.13 : Schéma du principe des essais sur le banc ICARE avec un circuit fermé comportant des vannes de régulation, des filtres, des rotamètres ou débitmètres et des pompes.

Le réglage du générateur GA2400S est effectué de façon à avoir théoriquement une distribution granulométrique des aérosols centrée sur $0,4 \mu\text{m}$. Les paramètres du réglage sont :

- la puissance de la céramique à 85 %,
- la fréquence à 2,4 MHz,
- le débit de séchage de $80 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$,
- le débit de dispersion de $20 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$.

La concentration massique produite par le GA2400S est contrôlée pendant les expériences à l'aide du néphélomètre de façon à conserver une stabilité de la masse en fonction du temps. La taille des aérosols est aussi indiquée en continue par le néphélomètre. Ce dernier comporte un compteur optique de particules qui est fondé sur la mesure de l'intensité diffusée par une

particule. Un faisceau laser est focalisé sur un volume de mesure à travers lequel les particules en suspension passent une par une. La quantité de lumière diffusée à un angle θ est alors mesurée par une photodiode (figure II.14). Des algorithmes sont ensuite utilisés afin d'obtenir la taille de l'aérosol en connaissant son spectre de diffusion angulaire.

Avant utilisation pour analyse gravimétrique, l'étalonnage est effectué comme suit : les masses produites passent par le néphélomètre, puis sont prélevées sur un filtre de 47 mm de diamètre en PTFE (polytétrafluoroéthylène) pour le pesage. Ce pesage sert de référence.

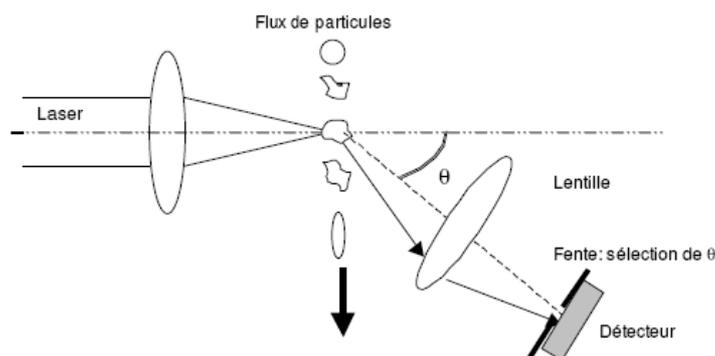


Figure II.14 : Schéma du principe de mesure d'un compteur optique.

Le néphélomètre utilisé a un diamètre minimal de coupure de $0,01 \mu\text{m}$ (les diamètres mesurés sont donc des diamètres « optiques » qui ne sont pas linéairement proportionnels aux diamètres géométriques ou aérodynamiques des aérosols). Il permet de mesurer jusqu'à $100\,000 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ de particules. Les résultats sont classés dans 31 canaux dans une gamme de mesure allant de $0,001$ à $100 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$. Ce modèle compte jusqu'à $2\,000\,000$ particules. L^{-1} sans dilution.

Pendant les expériences de préparation des filtres radioactifs chargés en masse d'aérosols, un enregistrement des mesures est effectué toutes les 10 secondes. La moyenne est ensuite calculée sur un temps d'échantillonnage de l'ordre de 5 min. La figure II.15 montre l'évolution de la masse et de la taille des aérosols prélevés par le néphélomètre à travers une sonde de prélèvement isocinétique d'ICARE. Nous remarquons que la génération est stable en taille et en masse après 30 à 45 minutes de production. La granulométrie moyenne des aérosols produits de $0,4 \mu\text{m}$ est proche de la valeur trouvée avec le LPI et donc de même ordre de grandeur de la valeur théorique.

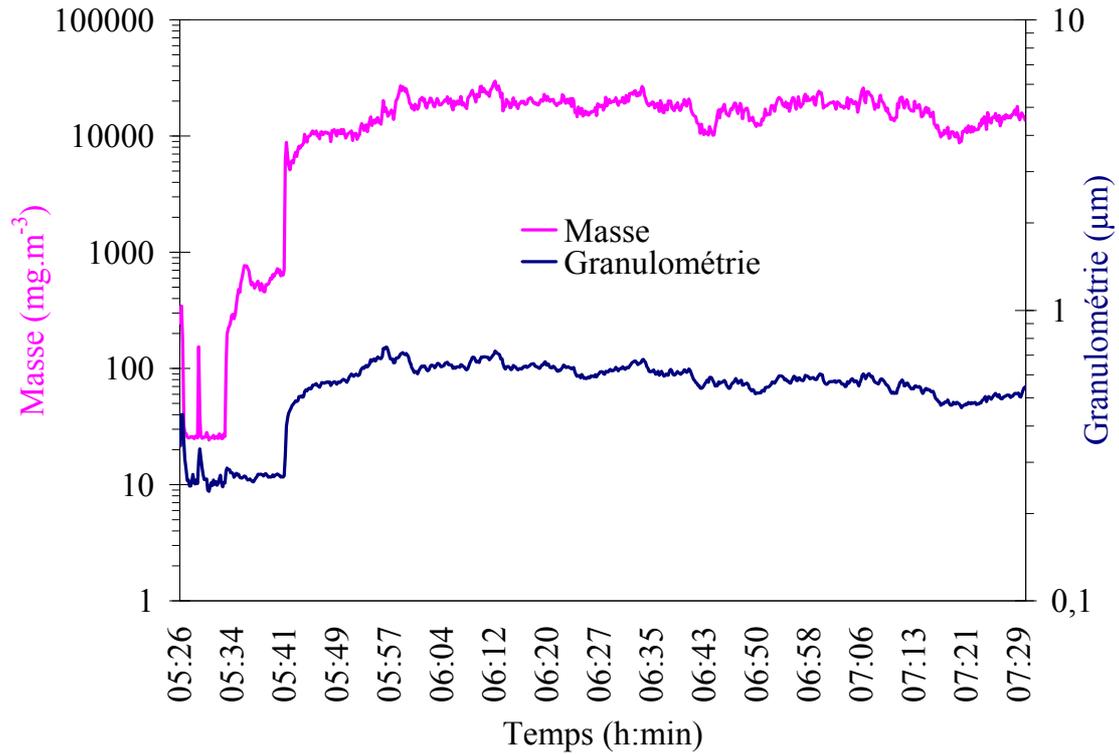


Figure II.15 : Exemple de suivi des valeurs de la masse et de la granulométrie au cours d'une expérience sur le banc ICARE.

Le tableau II.5 montre la grille d'expériences réalisée afin de préparer des filtres de référence chargés en masse d'aérosols.

Tableau II.5 : Grille expérimentale réalisée montrant les masses d'aérosols de NaCl chargées sur les filtres.

Marqueur	DAMA et (σ_g)	V (cm.s ⁻¹)	Type de filtre	Δ Masse (mg.cm ⁻²)
²³⁹ Pu	0,4 µm (1,4)	100	B132	0,20
				0,27
				0,53
				0,90
				1,20
				1,70
				1,90
				2,51
				3,52
				²³⁹ Pu
0,07				
0,27				
0,55				
0,90				
1,55				
2,65				
3,01				
3,53				

Les résultats de cette étude expérimentale seront présentés et analysés dans le chapitre III.

3.3. *Déroulement des expériences*

La démarche expérimentale suivie pour la préparation des filtres de référence est la suivante :

- Préparation de la solution liquide avec de l'eau déminéralisée (ultra pure) du sel CsCl et du marquage radioactif ^{239}Pu . L'activité mise dans la solution est égale à $\sim 40 \text{ kBq.L}^{-1}$.
- Cas de la deuxième grille d'expériences où les filtres sont chargés en masse d'aérosols. Préparation de la solution liquide avec de l'eau déminéralisée (ultra pure) du sel NaCl pour alimenter le GA2400S externe du banc ICARE.
- Préparation de la circulation des solutions dans les GA à l'aide d'une pompe péristaltique.
- Réglage de la fréquence et de la puissance de la céramique piézoélectrique du générateur puis préchauffage de 30 min avant le démarrage de l'expérience. Réglage des débits de séchage et de dispersion à travers le générateur (cf. tableau II.1).
- Etalonnage des rotamètres effectué en prélevant de l'air en série avec des débitmètres de référence.
- Préparation des circuits de prélèvement sur les trois voies d'ICARE comportant, en série, un porte-filtre (accueillant le filtre à tester), un autre porte-filtre en aval (ou pré-filtre), un rotamètre (ou débitmètre), une vanne de régulation.
- Début de la génération, ouverture des vannes permettant l'injection des aérosols à la veine principale d'ICARE.
- Mesure de l'activité en continue avec le moniteur d'activité.
- Mesure de la masse en continu avec le moniteur de masse. Les mesures à l'aide du néphélomètre 30 à 45 min après le démarrage de la génération montrent une stabilité de la production d'aérosols en taille et en masse.
- Mesure la perte de charge à travers des filtres pendant les essais à l'aide des manomètres.
- Conservation de l'hygrométrie de la pièce à 30 % et la température à 20°C pendant les essais effectués. Reconditionnement des filtres après les mesures nucléaires.
- Mesure des filtres à tester et des pré-filtres successivement par des compteurs proportionnels à gaz (MINI20) et par spectrométrie (PIPS).
- Mesure de l'activité vraie déposée dans les différents filtres choisis, au LNHB, par la technique de SL.

Au total, 36 expériences en faisant varier plusieurs paramètres sont réalisées sur le banc ICARE suivant cette démarche expérimentale. Pour chaque expérience, neuf filtres de

référence ont été préparés. Six filtres ayant des activités très proches sont ensuite choisis pour des études poussées. Les résultats sont détaillés au chapitre III.

4. Conclusion

Ce chapitre a détaillé les procédures de vérification et de contrôle des différentes parties d'ICARE. Il a présenté les expériences qui visent à élaborer des filtres de référence en radioactivité, en premier lieu sans masses d'aérosols significatives déposées sur les filtres et en deuxième lieu avec masses déposées, en tenant compte de l'influence des différents phénomènes régissant la filtration.

Ce chapitre a mis en évidence les points suivants :

- le diamètre aérodynamique médian en activité ou en masse des aérosols radioactifs générés est reproductible et constant au cours du temps. Ces aérosols sont faiblement poly-dispersés indépendamment de la voie de prélèvement sur ICARE.
- les aérosols radioactifs sont répartis avec homogénéité sur la surface des média filtrants utilisés. Les conditions de filtration sont contrôlées lors des prélèvements afin de préparer des filtres radioactifs de référence.
- les masses d'aérosols prélevés sont maintenues négligeables dans les premières séries d'expériences et donc ne contribuent pas à la dégradation de la mesure de l'activité.
- les masses d'aérosols prélevés sont bien contrôlées dans les deuxièmes séries d'expériences afin de contribuer à la dégradation de la mesure de l'activité.

Le prochain chapitre portera sur l'analyse des résultats afin d'étudier la pénétration des aérosols dans les filtres et d'estimer les facteurs de correction de la dégradation de radioactivité suivant les paramètres d'expériences pris en compte.

Chapitre III. Détermination expérimentale des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant

1. Introduction

La préparation des filtres radioactifs de référence selon des grilles d'expériences a été décrite dans le chapitre précédent. Ces filtres de référence sont nécessaires pour déterminer expérimentalement des facteurs de correction permettant de relier l'activité mesurée à l'activité vraie et de valider la méthode numérique décrite dans le chapitre IV.

La première partie de ce chapitre traite les problématiques de mesure nucléaire à l'aide des détecteurs de rayonnements α (MINI20 et PIPS). Des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité sont établis pour chacun des filtres de référence faiblement chargés en masse et préparés pour diverses conditions de prélèvement.

La deuxième partie concerne l'étude de la pénétration des aérosols dans le médium filtrant. Il s'agit d'étudier le dépôt des aérosols en profondeur dans le filtre à l'aide d'une technique expérimentale permettant d'explorer la radioactivité dans les couches profondes du filtre. Dans cette étude, les filtres radioactifs de référence non-chargés en masse sont utilisés. Afin de comprendre l'effet des mécanismes de dépôt sur la dégradation de la radioactivité, plusieurs niveaux de pénétration dans le médium filtrant sont obtenus en variant les paramètres les plus influents tels que la nature du filtre, les vitesses de filtration et la granulométrie des aérosols.

La troisième partie concerne l'étude de l'influence des masses d'aérosols, prélevés en profondeur puis en surface du filtre, sur la dégradation de la mesure nucléaire et donc sur le facteur de correction. Il s'agit de suivre l'évolution de la réponse nucléaire en fonction de la masse d'aérosols déposés sur le filtre. L'encrassement par des aérosols non-radioactifs est étudié simultanément avec le dépôt de radioactivité. Cette étude permet également d'établir des facteurs de correction à prendre en compte en fonction de l'encrassement du filtre.

La dernière partie est consacrée à l'évaluation des dégradations de la mesure de la radioactivité par spectrométrie α dans les filtres et les masses d'aérosols accumulés. Par cette

méthode, l'effet des conditions aérauliques de prélèvement sur la dégradation des spectres en énergie sont visibles et facilement quantifiables.

2. Facteurs de correction expérimentaux en fonction des conditions de filtration. Cas de filtres non chargés en masse d'aérosols

La mesure de la radioactivité présents dans les filtres est souvent sous-estimée du fait de la dégradation et de l'absorption de l'énergie des rayonnements α dans la matière absorbante. Les corrections nécessaires dépendent de l'atténuation des rayonnements α dans le filtre. La correction globale (F) s'écrit de la façon suivante :

$$F = \frac{(Cp/s)_{SL} / (T_{\alpha})_{SL}}{(Cp/s)_D / (T_{\alpha})_D} \quad (\text{III. 1})$$

où $(Cp/s)_D$ est le nombre de coups par seconde des rayonnements α présents dans le filtre et mesuré au niveau du détecteur (MINI20 ou PIPS),

$(Cp/s)_{SL}$ est le nombre de coups par seconde des rayonnements α présents dans le filtre et mesuré par la technique de SL au LNHB. C'est donc la valeur de référence.

T_{α} est le taux de détection des rayonnements α caractéristique de chaque détecteur. Pratiquement, $(T_{\alpha})_D$ est le rapport entre le flux mesuré au niveau du détecteur et le flux des rayonnements α émergeant de la surface du filtre. Il est fonction de l'angle solide (Ω) de détection et de la profondeur (z) dans le filtre qui varie selon le type du filtre et du profil de pénétration des aérosols. Comme nous l'avons expliqué dans le chapitre précédent pour la SL, le taux de détection des rayonnements α $(T_{\alpha})_{SL}$ caractéristique de cette méthode est égal à 99 %.

Cependant, le taux de détection $(T_{\alpha})_D$ dépend de l'étalon qui donne le flux sortant de la surface. En général, les détecteurs doivent être étalonnés à l'aide d'un filtre étalon représentatif du dépôt radioactif dans un filtre. Dans le cas d'un filtre FSLW étalon (filtre à dépôt surfacique ayant le même diamètre et la même forme que les filtres à fibres utilisés), des mesures ont permis de trouver une valeur de $(T_{\alpha})_D$ de l'ordre de 33 % dans les conditions habituelles d'utilisation du compteur proportionnel (MINI20) (Monsanglant *et* Liatimi 2005). Cette valeur ne correspond pas au rendement $(T_{\alpha})_D$ des filtres à fibres à cause de l'absorption des rayonnements α au sein du filtre. Par ailleurs, le taux de détection $(T_{\alpha})_D$ est facilement calculable, pour des filtres à fibres prélevant en profondeur, à l'aide du code Mont Carlo qui sera décrit dans le chapitre IV.

Nous pouvons alors écrire la relation III.1 de la façon suivante :

$$F = F_{\alpha}(z, d_p, V) \times (T_{\alpha})_D \quad (\text{III. 2})$$

$$\text{avec} \quad F_{\alpha}(z, d_p, V) = \frac{(Cp/s)_{SL}}{(Cp/s)_D} \quad (\text{III. 3})$$

où $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ est le facteur de correction lié à l'absorption des rayonnements α dans les filtres lors de leur parcours en direction du détecteur.

Dans cette étude, les facteurs de correction $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ sont déterminés expérimentalement chaque fois pour trois filtres préparés de la même façon. Les filtres de référence préparés sur le banc ICARE, sous diverses conditions de prélèvement, sont mesurés successivement par comptage des rayonnements α avec un compteur proportionnel MINI20 ainsi qu'avec un spectromètre PIPS, et ensuite par un comptage α avec la technique de SL au LNHB.

Les résultats des $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ sont obtenus par analyses des résultats des trois méthodes de mesures de la radioactivité (MINI20, PIPS et SL). Le tableau III.1 donne les résultats du comptage ainsi que les facteurs de correction obtenus par les différentes techniques. L'incertitude type sur $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ correspond à :

$$u^2(F_{\alpha}) = \sum_{i=1}^{i=n} \left(\frac{\partial F_{\alpha}}{\partial X_i} \times \sigma_{X_i} \right)^2 \quad (\text{III. 4})$$

où X_i représente le comptage à l'aide d'une technique de mesure.

σ_{X_i} étant l'incertitude absolue sur X_i . Pour un comptage radioactif, $\sigma_{X_i} = (X_i)^{1/2}$.

Tableau III.1 : Résultats des paramètres de filtration, des comptages par les différentes techniques de mesures, les facteurs de correction ainsi que les incertitudes associées.

DAMA en μm (σ_g)	Filtre	Vitesse (cm.s^{-1})	$(Cp/s)_{PIPS}$ et u	$(Cp/s)_{MINI20}$ et u	$(Cp/s)_{SL}$ et u	Facteur de correction Spectromètre PIPS	Facteur de correction compteur MINI20
4 (1,4)	C357	22	$0,326 \pm 0,0041$	$0,312 \pm 0,0038$	$1,04 \pm 0,13$	$3,18 \pm 0,40$	$3,32 \pm 0,42$
		66	$0,262 \pm 0,0032$	$0,245 \pm 0,0032$	$1,10 \pm 0,14$	$4,18 \pm 0,52$	$4,47 \pm 0,55$
		100	$0,252 \pm 0,0035$	$0,223 \pm 0,0036$	$0,82 \pm 0,12$	$3,27 \pm 0,47$	$3,70 \pm 0,52$
		125	$0,555 \pm 0,0048$	$0,497 \pm 0,0049$	$1,76 \pm 0,17$	$3,17 \pm 0,32$	$3,54 \pm 0,35$
4 (1,4)	C569	22	$0,263 \pm 0,0032$	$0,254 \pm 0,0032$	$0,90 \pm 0,12$	$3,42 \pm 0,47$	$3,53 \pm 0,48$
		66	$0,163 \pm 0,0038$	$0,143 \pm 0,0039$	$0,69 \pm 0,11$	$4,22 \pm 0,46$	$4,82 \pm 0,76$
		100	$0,259 \pm 0,0026$	$0,296 \pm 0,0025$	$1,24 \pm 0,14$	$4,81 \pm 0,56$	$4,20 \pm 0,49$
		125	$0,363 \pm 0,0039$	$0,355 \pm 0,0041$	$2,04 \pm 0,18$	$5,63 \pm 0,52$	$5,75 \pm 0,57$
4 (1,4)	B132	22	$0,197 \pm 0,0032$	$0,136 \pm 0,0032$	$0,71 \pm 0,11$	$3,62 \pm 0,58$	$5,25 \pm 0,81$
		66	$0,105 \pm 0,0035$	$0,084 \pm 0,0035$	$0,49 \pm 0,09$	$4,67 \pm 0,67$	$5,78 \pm 1,1$
		100	$0,227 \pm 0,0016$	$0,222 \pm 0,0017$	$1,16 \pm 0,14$	$5,09 \pm 0,62$	$5,21 \pm 0,63$
		125	$0,281 \pm 0,0031$	$0,250 \pm 0,0031$	$1,82 \pm 0,17$	$6,48 \pm 0,63$	$7,29 \pm 0,70$
0,4 (1,4)	C357	22	$0,65 \pm 0,03$	$0,67 \pm 0,03$	$2,62 \pm 0,21$	$4,03 \pm 0,41$	$3,91 \pm 0,36$
		125	$2,47 \pm 0,06$	$2,49 \pm 0,06$	$9,84 \pm 0,46$	$3,98 \pm 0,31$	$3,95 \pm 0,19$
0,4 (1,4)	C569	22	$0,65 \pm 0,04$	$0,91 \pm 0,04$	$3,50 \pm 0,24$	$5,36 \pm 0,51$	$3,86 \pm 0,30$
		125	$2,45 \pm 0,06$	$2,43 \pm 0,06$	$8,80 \pm 0,38$	$3,59 \pm 0,31$	$3,63 \pm 0,18$
0,4 (1,4)	B132	22	$0,78 \pm 0,03$	$0,82 \pm 0,03$	$3,65 \pm 0,25$	$4,66 \pm 0,41$	$4,45 \pm 0,35$
		125	$2,77 \pm 0,06$	$2,42 \pm 0,06$	$9,72 \pm 0,40$	$3,51 \pm 0,32$	$4,02 \pm 0,19$

Comme nous l'avons vu dans l'étude bibliographique, ce tableau montre que les facteurs de correction dépendent des conditions de filtration (granulométrie des aérosols, vitesse de filtration) et du type du filtre utilisé. $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ tient compte de l'absorption de l'énergie des rayonnements au cours de leur parcours dans le médium filtrant. Seuls les rayonnements α émergeant du filtre et dont l'énergie est supérieure au seuil de discrimination de l'appareil de détection sont comptés.

Lors des expériences sur l'installation ICARE, l'ensemble des paramètres (conditions de filtration, temps d'échantillonnage, perte de charge, et débit de prélèvement à travers le filtre) de collecte sont mesurés et enregistrés. Les résultats sont regroupés dans le tableau III.2. Nous remarquons que l'efficacité de filtration d'aérosols de DAMA 4 μm dans un filtre C357 est de l'ordre de 100 % tandis que celles du C569 et B132 sont légèrement plus faible. Dans le cas de DAMA de 0,4 μm , les efficacités de filtration sont nettement plus faibles (tableau III.2).

Tableau III.2: Résultats de la première grille d'expériences, paramètres et mesures obtenus aux cours des expériences. L'efficacité de filtration des aérosols sur les filtres de référence est également étudiée, c'est la différence entre les comptages détectés sur le filtre en amont et celui en aval (généralement un FSLW).

DAMA (μm)	Type de filtre	V (cm.s^{-1})	ΔP_{filtre} (mbar)	$\Delta(Cp/s)_{\text{SL}}$ (Filtre amont/ filtre aval)
4 $\sigma_g=1,4$	C357	22	30	0,99
		66	60	0,99
		100	130	0,99
		125	200	0,99
4 $\sigma_g=1,4$	C569	22	20	0,98
		66	60	0,98
		100	100	0,98
		125	160	0,98
4 $\sigma_g=1,4$	B132	22	20	0,96
		66	30	0,96
		100	50	0,97
		125	70	0,98
0,4 $\sigma_g=1,4$	C357	22	30	0,91
		125	130	0,85
0,4 $\sigma_g=1,4$	C569	22	20	0,82
		125	150	0,80
0,4 $\sigma_g=1,4$	B132	22	15	0,68
		125	80	0,67

L'ensemble des résultats de cette étude sont présentés dans les deux paragraphes séparés suivant la granulométrie produite dans ICARE. Le premier paragraphe décrit les facteurs de correction pour des filtres produits avec des aérosols de DAMA de 4 μm ($\sigma_g = 1,4$). Le deuxième paragraphe retrace les facteurs de correction pour des filtres produits avec des aérosols de DAMA de 0,4 μm ($\sigma_g = 1,4$).

2.1. Expériences avec des aérosols de DAMA égal à $4 \mu\text{m}$

Dans la première grille d'expériences, cas où les aérosols de DAMA de $4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) sont produits sur le banc ICARE, les facteurs de correction $F_\alpha(z, d_p, V)$ sont déterminés pour trois types de filtre à fibres (C357, C569 et B132) et pour quatre vitesses de filtration frontales (22, 66, 100 et $125 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$).

Pour des mesures effectuées avec le compteur MINI20, la figure III.1 montre la variation des facteurs de correction $F_\alpha(z, d_p, V)$ en fonction de la vitesse de filtration. Le facteur $F_\alpha(z, d_p, V)$ est déterminé par le rapport entre le nombre des rayonnements α contenus dans le filtre mesuré par la technique de SL et le flux des rayonnements α mesuré par le MINI20. L'augmentation de la vitesse de filtration conduit à l'augmentation du facteur de correction pour les deux types de filtre C569 et B132. Par ailleurs, le filtre C357 (à très haute efficacité, THE) ne semble pas être trop influencé par la vitesse de filtration. Il offre un meilleur compromis entre une efficacité de collecte d'aérosols de l'ordre de 100 % et un faible facteur de correction. Nous remarquons par ailleurs que les facteurs de correction sont fortement influencés par le type du filtre étudié.

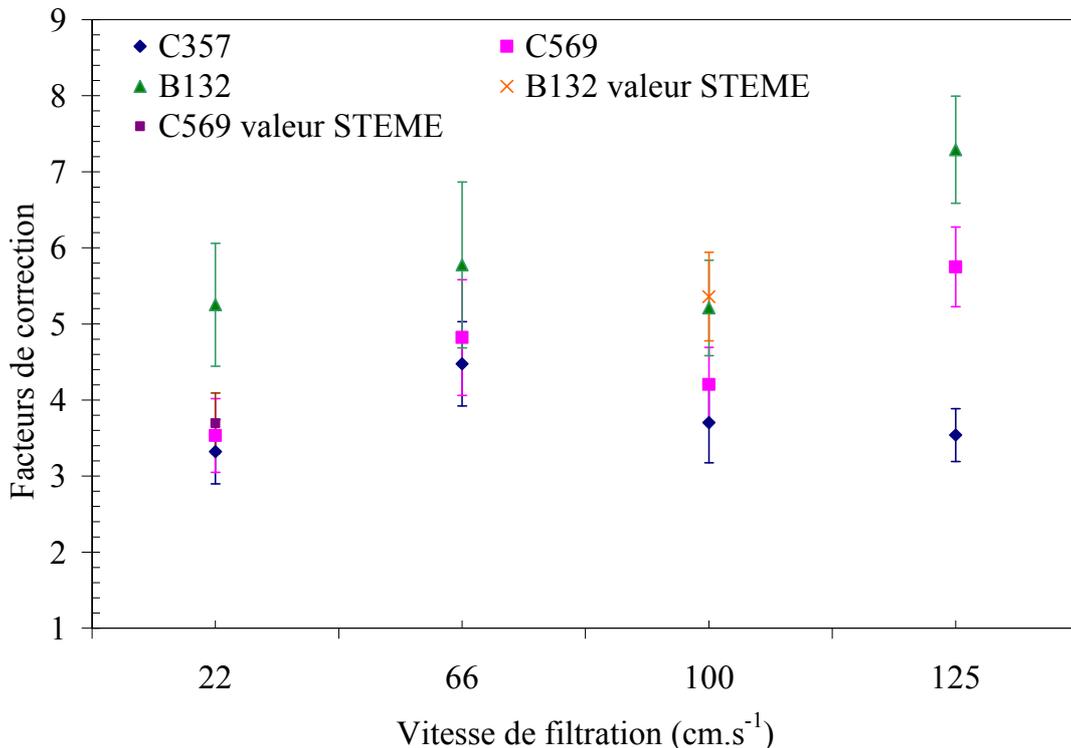


Figure III.1 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA $4 \mu\text{m}$, en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Les valeurs issues du STEME sont également présentées. Cas de détection avec le compteur MINI20.

Des valeurs de facteurs de correction d'activité, mesurées au DEI/STEME par comptage global et par la technique d'analyse par radiochimie, dédiées à l'inter-comparaison entre laboratoires nationaux, sont également présentées sur les figures en vue d'une comparaison avec nos résultats. Une bonne concordance entre les valeurs est constatée pour les deux types de filtre C569 et B132 et vient donc confirmer nos résultats. Un écart relatif inférieur à 3 % est trouvé.

Pour des mesures effectuées avec le compteur PIPS (figure III.2), les comptages sont réalisés dans la zone de déconvolution des spectres en énergie à l'aide du logiciel « Alphavisus » (cf. chapitre I). La figure III.2 représente les résultats des facteurs $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ en fonction des vitesses de filtration obtenus pour l'ensemble des filtres étudiés.

Ces facteurs sont plus petits que ceux obtenus avec le compteur MINI20 car le nombre de coups détectés par le PIPS sur la totalité du spectre est plus élevé. En effet, le comptage avec le détecteur PIPS se fait, en général, dans une gamme d'énergie plus large de celui du compteur proportionnel. De ce fait, les facteurs varient en fonction des systèmes de détection et sont indépendants de la méthode de déconvolution des spectres et du logiciel adapté dans les laboratoires de mesures.

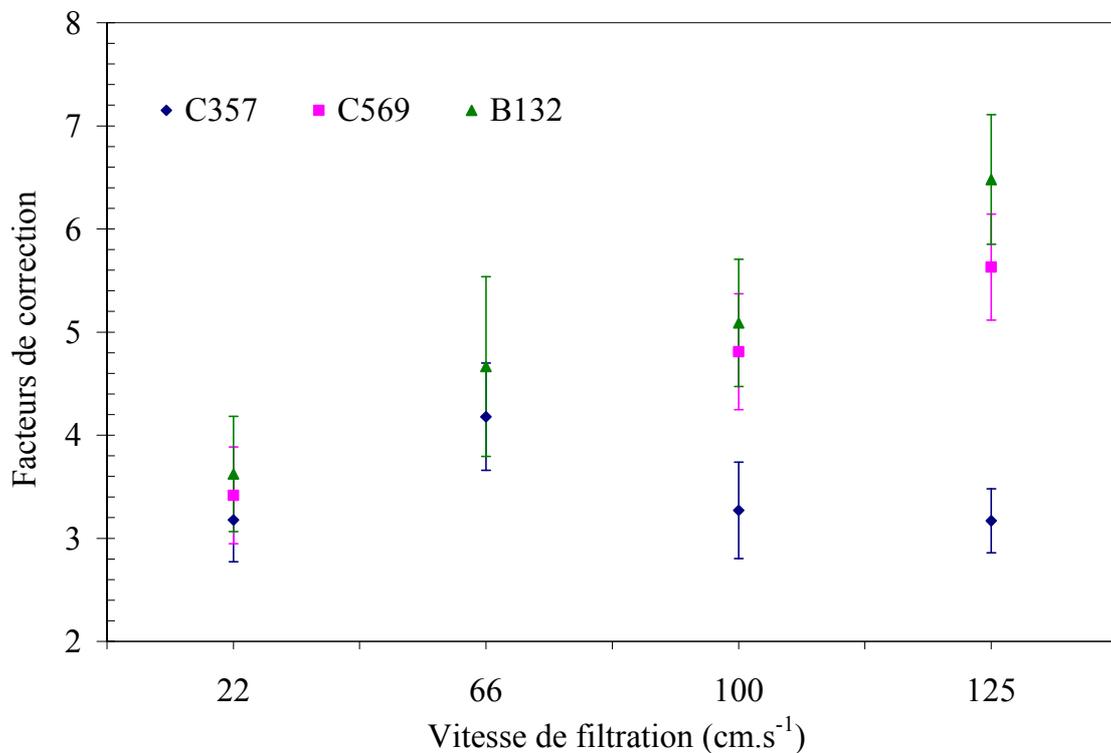


Figure III.2 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA 4 μ m, en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur PIPS.

Dans les deux cas étudiés, les valeurs de $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ sont comprises entre 3 et 6. Rappelons que ces facteurs de correction sont uniquement valables pour ces types de filtres et sous les mêmes conditions de filtration et de détection utilisées ainsi que pour de très faibles masses accumulées sur les filtres.

2.2. Expériences avec des aérosols de DAMA égal à $0,4 \mu\text{m}$

Dans la première grille d'expériences, des aérosols de DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) sont produits. Les figures III.3 et 4 illustrent les facteurs de correction $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ obtenus avec trois types de filtre à fibres (C357, C569 et B132) et pour deux vitesses de filtration (22 et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$).

Contrairement aux aérosols de DAMA de $4 \mu\text{m}$, la dégradation de l'énergie subie dans un filtre est affaiblie. Les valeurs des énergies enregistrées par le compteur MINI20 se trouvent dans la bande d'énergie du détecteur PIPS, d'où cette homogénéité entre les résultats du compteur MINI20 et du détecteur PIPS (figure III.3 et 4).

Par ailleurs, une diminution des facteurs de correction en fonction de la vitesse de filtration pour les trois types de filtre étudiés est constatée.

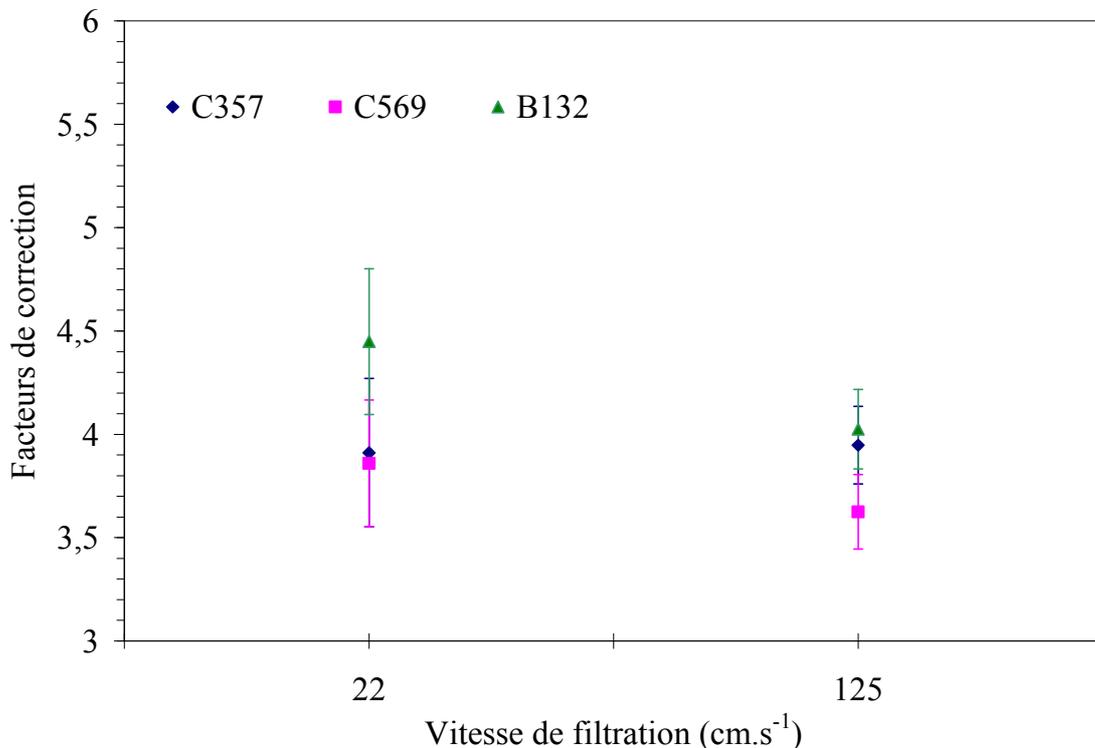


Figure III.3 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA $0,4\mu\text{m}$, en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur MINI20.

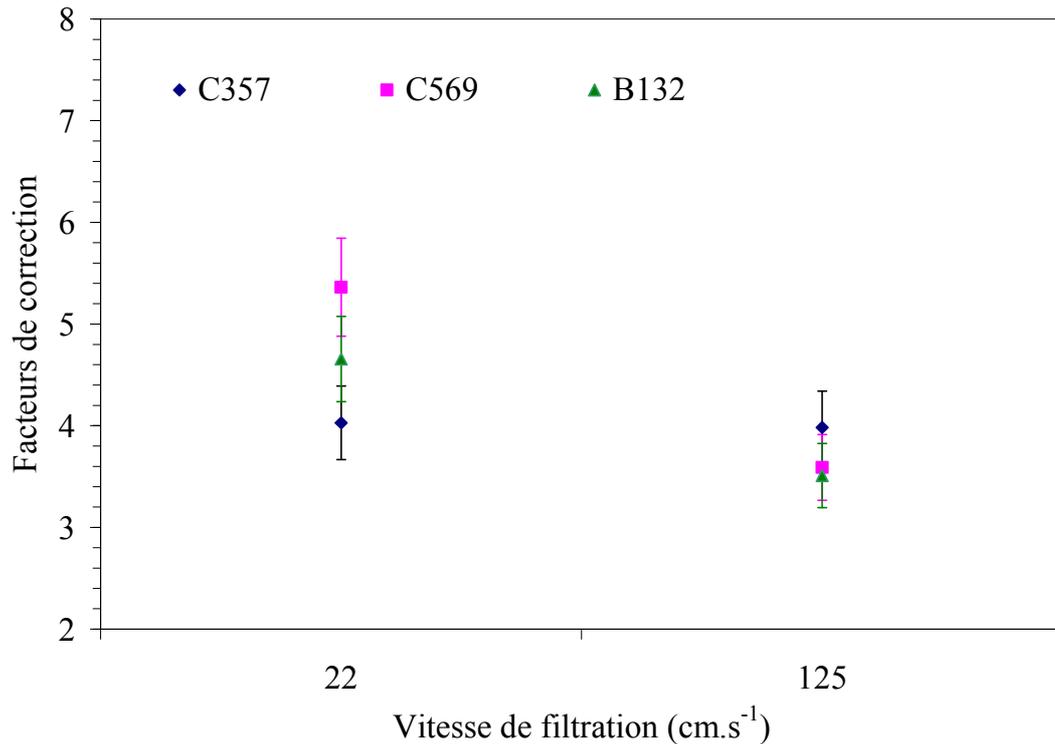


Figure III.4 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols fins, en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur PIPS.

Pour conclure, nous remarquons que la vitesse de filtration et la taille des aérosols jouent un rôle majeur dans l'atténuation de l'énergie et dans la dégradation des mesures de l'activité. Le type de filtre est aussi un facteur majeur de la dégradation de la mesure de la radioactivité.

Dans les mêmes conditions de filtration et avec le même type de filtre, les valeurs de $F_a(z, d_p, V)$ obtenues pour les aérosols de DAMA de 4 μm sont généralement deux fois supérieures à celles trouvées en prélevant des aérosols de DAMA de 0,4 μm . Ce qui implique moins de dégradation d'activité et ainsi des valeurs de facteurs de correction plus petites. Il est donc nécessaire de connaître parfaitement l'aérosol prélevé.

Il est intéressant d'étudier les phénomènes de pénétration des aérosols dans les filtres, qui sont fonction des paramètres de filtration, afin de mieux expliquer les dégradations de la mesure de l'activité.

3. Étude de la pénétration des aérosols en profondeur dans les filtres de surveillance

Dans cette étude, le sujet principal est la pénétration des aérosols radioactifs à l'intérieur de divers types de média filtrants et dans plusieurs conditions aérauliques de filtration. Dans cette étude les facteurs de correction obtenus seront mieux interprétés.

La connaissance détaillée de la pénétration et du profil du dépôt des aérosols en profondeur du médium filtrant donne des informations importantes sur la dégradation d'énergie ou l'absorption des rayonnements α dans le filtre composé de matières fibreuses. Les rayonnements α ont en effet un faible parcours dans la matière fibreuse. Par exemple, ils sont complètement absorbés dans une épaisseur supérieure à 120 μm dans le cas des filtres à fibres de verre étudié par Hayes *et* Jonassen (1974).

3.1. Etat de l'art sur la pénétration des aérosols dans les filtres à fibres

Les techniques de séparation des couches du filtre permettent de diviser l'épaisseur du filtre étudié en plusieurs épaisseurs plus fines. L'analyse nucléaire de ces couches prélevées successivement permet de connaître les profils de pénétration des aérosols radioactifs dans l'épaisseur des filtres en fonction des conditions de prélèvement.

Billard *et al.* (1960) ont étudié la répartition des aérosols radioactifs en épaisseur, en imprégnant (par trempage) la face amont du filtre d'une substance visqueuse (gomme arabique et gélatine). Le filtre se durcit au séchage et permet ainsi de détacher successivement de minces pellicules de fibres. Mais, lors de l'imprégnation, la substance visqueuse est susceptible de provoquer des changements dans la répartition du dépôt dans l'épaisseur du filtre et par suite de biaiser le profil de pénétration.

Pour pallier ce problème, Parnianpour (1967) a appliqué une méthode de pelage sur ces filtres à l'aide d'un film collant. De faibles épaisseurs de pellicules feuilletées d'environ 30 μm sont prélevées. Ces travaux ont montré que la pénétration des aérosols en fonction de la profondeur (x) dans le filtre peut être considérée comme une décroissance exponentielle (figure III.5).

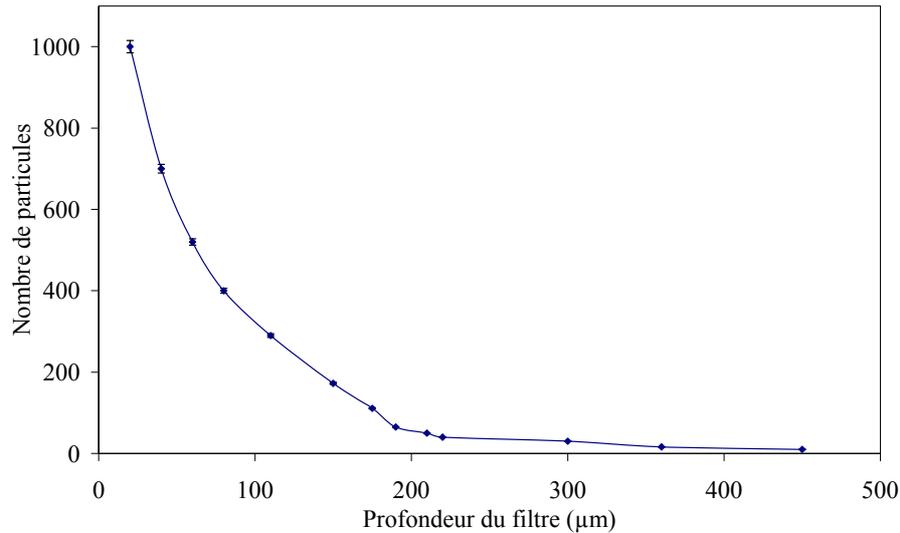


Figure III.5 : Profil de pénétration des aérosols exprimé en fonction de la profondeur du filtre.

Cas des aérosols marqués au thoron déposés sur un filtre à fibres (B. Dumas C309).

Valeurs prises des travaux de Parnianpour (1967).

La figure III.5 montre que le dépôt des aérosols en fonction de la profondeur (x) est considéré comme étant une loi décroissante exponentielle.

Cette technique est performante puisque les épaisseurs de matières fibreuses prélevées du filtre sont reproductibles (de l'ordre de 15 %) et uniformes à la surface du ruban adhésif. Les techniques de fabrication de ruban adhésif se sont améliorées ces dernières années, offrant ainsi une uniformité, de faibles épaisseurs de l'ordre de 30 µm (fabriqué par 3M Incorporated) et un large choix de la colle. Nous avons choisi d'utiliser cette méthode.

3.2. Compacité des particules dans le filtre

Dans ses études menées sur la perte de charge dans les filtres à fibres, Bergman (1978) a considéré le filtre comme constitué de deux types de collecteurs, les fibres vierges et les masses d'aérosols collectés. Les études de Davies (1963) sur les modèles de perte de charge ont permis de décrire la compacité totale qui est la somme de la compacité initiale des fibres (filtre vierge) et de la fraction de volume de filtre occupée par les aérosols collectés (Hinds 1999) :

$$\alpha = \alpha_f + \alpha_p = \frac{V_{\text{fibre}} + V_{\text{particule}}}{V_{\text{filtre}}} \quad (\text{III. 5})$$

où V_{fibre} est le volume des fibres,

V_{filtre} est le volume du filtre,

$V_{\text{particule}}$ est le volume des aérosols,

α_f est la compacité des fibres et

α_p est la compacité des aérosols. Il s'agit du rapport du volume des aérosols sur le volume du filtre V_{filtre} .

$$\alpha_p = \frac{V_p}{V_{\text{filtre}}} = \frac{m_p}{Sz\rho_p} \quad (\text{III. 6})$$

où m_p/S est la masse d'aérosols collectés par unité de surface (kg.m^{-2})

z est l'épaisseur du filtre et

ρ_p est la masse volumique des aérosols (kg.m^{-3}).

Dans l'étude menée par Letourneau *et al.* (1990) sur l'amélioration du modèle de Bergman (1963) de perte de charge, l'hypothèse d'une répartition homogène des aérosols dans le filtre a été rejetée. Ils ont intégré dans leur modèle le profil de pénétration des aérosols déterminé expérimentalement par Parnianpour (1967). Le filtre est assimilé à une succession de disques d'épaisseur dx dans lesquels la compacité $\alpha_p(x)$ est une fonction de la profondeur (x) à l'intérieur du filtre :

$$\alpha_p(x) = \frac{m}{S_f} \frac{(k \cdot \exp(-kx))}{\rho_p(1 - \exp(-kz))} \quad (\text{III. 7})$$

où k est le facteur de pénétration dans le médium filtrant (m^{-1}) qui dépend de la taille des aérosols prélevés et des caractéristiques du filtre utilisé.

Chaque disque d'épaisseur dx du filtre est uniformément peuplé avec des aérosols. La compacité des aérosols déposés sur le filtre est dépendante du temps de filtration. Ce modèle est fiable pour des vitesses de filtration comprises entre $3 < U_0 < 50 \text{ cm.s}^{-1}$ (Letourneau *et al.* 1992).

Inspirés par ces derniers résultats, nous avons affiné la méthode expérimentale de pelage du filtre avec de nouvelles techniques de pelage et de mesure de la radioactivité afin d'étudier la pénétration des aérosols en profondeur du filtre. La méthode permet, pour des aérosols radioactifs déposés sur un filtre à fibres, de connaître leur profil de pénétration dans le filtre et par suite l'effet du profil de pénétration sur la réponse nucléaire du filtre.

3.3. Matériels et méthodes

Les filtres radioactifs de référence, de la première grille d'expérience, préparée sur le banc d'essais ICARE sont utilisés dans cette étude. Ils sont préparés à l'égard du dépôt en épaisseur du filtre en faisant varier la pénétration avec divers paramètres tels que la nature des média filtrants, les conditions aérauliques de filtration et la granulométrie des aérosols.

Les filtres à fibres type C357, C569 et B132 utilisés ont des épaisseurs respectivement égale à 500, 320 et 260 μm . Ces filtres sont assez répandus dans le milieu de la surveillance de la radioactivité dans l'air mais peu étudiés. Dans la littérature, l'efficacité de collecte, dans le cas de prélèvements d'aérosols d'Uranine (norme AFNOR NF X 44-011) de taille 0,15 μm , est déterminée et est de l'ordre de 99, 80 et 60 % respectivement pour les filtres C357, C569 et B132 (cf. tableau D.1 de l'annexe D).

Nous avons effectué la méthode de pelage sur la série de filtres de référence préparés avec des masses d'aérosols prélevées négligeables (première grille d'expériences). Les aérosols de CsCl de DAMA de 4 μm ou de 0,4 μm (avec le même $\sigma_g = 1,4$) sont respectivement représentatifs de ceux prélevés lors de la surveillance de la radioactivité dans l'air en zone de travail ou dans l'environnement. Les essais ont été effectués sur le banc ICARE, dans des conditions aérauliques similaires à celles appliquées en zone de travail (ou dans l'environnement), avec des vitesses de filtration de 0,22 - 0,66 - 1 et 1,25 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ (ou 0,22 et 1,25 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) pour chaque filtre.

Le principe de la méthode de pelage utilisée repose sur l'application d'un ruban adhésif à la surface du filtre pour pouvoir le déchirer en fines couches avec une force verticale. La figure III.6 montre le principe de pelage, en appliquant une force F , de la couche à l'aide d'un ruban adhésif.

La reproduction d'identiques épaisseurs feuilletées dépend de la pression P exercée sur le ruban adhésif. Afin d'exercer à la surface du filtre une pression homogène et reproductible, une presse métallique a été fabriquée dans notre laboratoire (figure III.7). Cette presse est conçue de façon à pouvoir y mettre le filtre et à exercer à l'aide d'une vis une force de pression sur le filtre. Cette force de pression est étalonnée à l'aide d'une clé dynamométrique (figure III.7). Des faibles épaisseurs de pellicules feuilletées d'environ 40 μm sont prélevées successivement du filtre jusqu'à son épuisement.

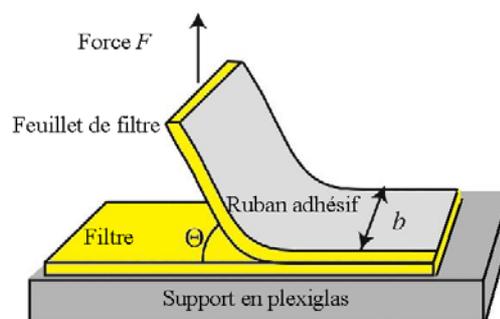


Figure III.6 : Méthode de pelage de filtre. La pression est exercée uniformément sur le ruban adhésif à la surface du filtre.

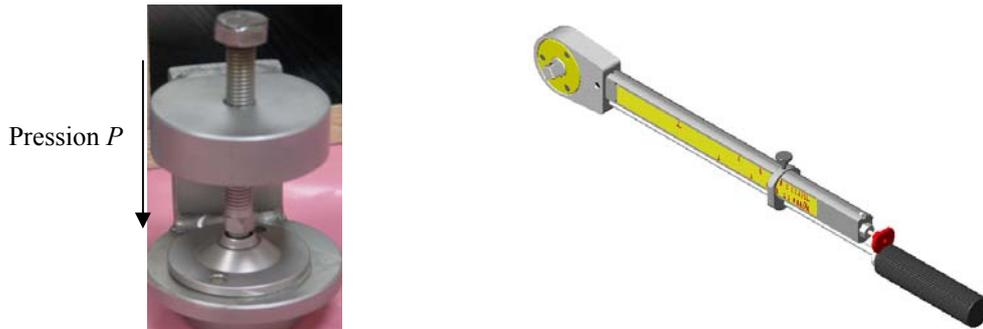


Figure III.7 : Presse (à gauche) et clé dynamométrique (à droite) utilisées pour exercer une pression uniforme sur le ruban adhésif à la surface du filtre à peler.

L'épaisseur (z') des couches peut être déterminée expérimentalement de trois manières différentes :

- une méthode (norme NF EN ISO 9073-2, 1997) qui utilise un dispositif manuel de mesure de l'épaisseur micrométrique comme le Palmer (SOMECO Corp.). En cas de grandes épaisseurs (> 1 mm), cette technique risque de comprimer le medium et peut donc entraîner une erreur systématique.
- une méthode de mesure par microscopie optique qui nécessite un nombre suffisant de mesures pour avoir un résultat statistiquement acceptable.
- une méthode par pesage qui consiste à peser le ruban adhésif avant et après application sur le filtre. Cette méthode permet de déduire le poids de la pelure prélevée du filtre et par suite l'épaisseur de chaque pelure z' par l'expression suivante :

$$z' = z \frac{m}{M} \quad (\text{III. 8})$$

où m est la masse d'une pelure,

M est la masse du filtre et

z est l'épaisseur du filtre.

L'erreur cumulée sur les masses et les épaisseurs mesurées peut entraîner une erreur systématique non négligeable.

Dans notre étude, la première méthode est retenue pour sa facilité de mise en œuvre et pour sa précision plus élevée que les deux autres méthodes.

Le choix des épaisseurs voulues lors du pelage est optimisé à l'aide d'une étude numérique. Le logiciel de calcul de la portée des rayonnements dans la matière TRIM/SRIM Version 03, d'après Ziegler *et al.* (1985), permet de connaître le transfert linéique d'énergie des rayonnements α dans des épaisseurs de densité équivalente à celle des filtres fibreux. La

valeur moyenne trouvée est de $1,33 \text{ keV} \cdot \mu\text{m}^{-1}$, elle est négligeable devant un rayonnement α de 5 MeV dans une couche d'épaisseur de fibres entre 30 à 40 μm . Par conséquent, les épaisseurs des couches pelées sont choisies de l'ordre de 30 à 40 μm . Cet ordre de grandeur permet une précision suffisante sur l'épaisseur mesurée, sur la masse pesée (de l'ordre de 0,5 mg) et par conséquent sur la masse volumique des fibres pelées. Le pesage des couches du filtre est utilisé pour la détermination de la masse volumique des fibres prélevées sur chaque pelure.

Ces épaisseurs permettent aussi d'avoir une bonne homogénéité de fibres sur une couche prélevée sur un ruban adhésif. Ceci est visible à l'œil comme le montre la figure III.8.



Figure III.8 : Trois pellicules d'un même filtre montrant l'homogénéité des couches de fibres prélevées sur la surface d'un ruban adhésif.

Afin de déterminer le profil de pénétration des aérosols radioactifs dans un filtre, le nombre de rayonnements α émergeant d'une pelure est évalué dans chaque pelure de filtre par la technique de SL. Le nombre de coups enregistrés est exprimé en Becquerel (Bq). Les essais de pelage, pour un type de filtre donné, est répété trois fois. L'incertitude sur les mesures de radioactivité ainsi que sur la répétitivité des expériences sont ainsi évaluées. Une mesure d'une éventuelle perte de la radioactivité dans les couches pelées qui se traduit par une contamination radioactive sur le paillasse lors du pelage des filtres a été réalisée. Aucune contamination significative n'a pu être détectée.

D'après nos expériences de pelage, nous avons pu constater que les couches de la surface du filtre n'ont pas la même structure et même épaisseur que la dernière couche de ce même filtre. Les premières couches sont composées de fibres plus longues. Par ailleurs, une petite quantité de résine est présente sur la face arrière des filtres pour renforcer la tenue globale des fibres. Cette résine colle fortement sur ces fibres et empêche tout pelage plus fin. Par conséquent, la dernière pelure est toujours épaisse et est de l'ordre de 100 μm .

A titre d'exemple, le tableau III.3 regroupe les valeurs moyennées mesurées de l'épaisseur, la densité et l'activité pour les couches des trois types de filtre étudiés. La totalité des résultats, de la pénétration des aérosols dans les filtres est exposé dans le prochain paragraphe sur des graphiques.

Tableau III.3 : Moyenne de l'épaisseur, de la densité et du comptage (Bq) par couche normalisé (%) pour les trois types de filtre étudiés. Cas des aérosols de 4 μm avec une vitesse de filtration de 1,25 m.s^{-1} .

Les résultats sont présentés avec une incertitude correspondante à une fois l'écart-type ($k = 1$).

Numéro de couche	Numéro de couche	Epaisseur par couche (μm)	Densité (g.cm^{-3})	Comptage par couche (%)
C357	1	53 \pm 6	0,0031 \pm 0,0021	66 \pm 9
	2	43 \pm 6	0,0015 \pm 0,0018	15 \pm 4
	3	42 \pm 6	0,0011 \pm 0,0012	4,42 \pm 2,7
	4	37 \pm 6	0,0013 \pm 0,0014	3,22 \pm 2,1
	5	38 \pm 6	0,0012 \pm 0,0012	2,62 \pm 1,6
	6	40 \pm 6	0,0011 \pm 0,0011	1,91 \pm 1,4
	7	40 \pm 6	0,0011 \pm 0,0013	1,81 \pm 1,4
	8	37 \pm 5	0,0011 \pm 0,0015	1,62 \pm 1,3
	9	37 \pm 5	0,0010 \pm 0,0016	1,53 \pm 1,2
	10	135 \pm 15	0,0042 \pm 0,0023	4,31 \pm 2,3
C569	1	42 \pm 6	0,0015 \pm 0,0019	29,41 \pm 6,5
	2	27 \pm 6	0,0011 \pm 0,0012	13,51 \pm 4,2
	3	27 \pm 6	0,0011 \pm 0,0013	11,72 \pm 3,7
	4	30 \pm 6	0,0013 \pm 0,0012	8,85 \pm 2,9
	5	30 \pm 6	0,0012 \pm 0,0011	6,65 \pm 2,6
	6	33 \pm 6	0,0012 \pm 0,0015	4,96 \pm 2,4
	7	33 \pm 6	0,0012 \pm 0,0016	4,87 \pm 2,4
	8	28 \pm 5	0,0011 \pm 0,0016	2,64 \pm 1,2
	9	28 \pm 5	0,0010 \pm 0,0015	2,66 \pm 1,6
	10	85 \pm 9	0,0025 \pm 0,0022	1,31 \pm 1,1
B132	1	32 \pm 6	0,0011 \pm 0,0019	17,44 \pm 6,1
	2	27 \pm 6	0,0010 \pm 0,0013	10,55 \pm 4,2
	3	22 \pm 5	0,0008 \pm 0,0012	8,73 \pm 3,7
	4	27 \pm 6	0,0010 \pm 0,0012	7,88 \pm 2,9
	5	27 \pm 6	0,0010 \pm 0,0011	8,69 \pm 2,6
	6	32 \pm 6	0,0011 \pm 0,0013	7,95 \pm 2,4
	7	32 \pm 6	0,0011 \pm 0,0012	5,81 \pm 2,2
	8	20 \pm 5	0,0008 \pm 0,0014	5,62 \pm 1,2
	9	75 \pm 7	0,0022 \pm 0,0021	2,34 \pm 1,3

3.4. Pénétration des aérosols en profondeur des filtres ; effet sur la spectrométrie des rayonnements α

Les résultats de cette étude sont présentés dans les deux paragraphes selon la granulométrie produite dans ICARE. Le premier paragraphe décrit la pénétration des aérosols de DAMA de 4 μm ($\sigma_g = 1,4$) dans les filtres. Le deuxième paragraphe décrit la pénétration des aérosols de DAMA de 0,4 μm ($\sigma_g = 1,4$) dans les filtres.

3.4.a. Expériences avec des aérosols de DAMA de 4 μm

Les résultats de la pénétration des aérosols au sein des filtres, obtenus pour les trois types de filtre sont transcrits sur les figures III.9, III.11 et III.13. Ces dernières présentent la variation du nombre de coups des rayonnements α normalisé (en %) par rapport au nombre total de

coups détectés en fonction de la profondeur au sein du filtre. Les incertitudes types ($k = 1$) sur les mesures de l'épaisseur et du nombre de coups sont également représentées sur les courbes.

En général, le profil de pénétration dépend des mécanismes de capture des aérosols sur les fibres. Nous avons vu que les aérosols de DAMA = $4 \mu\text{m}$ sont collectés à $\sim 100\%$ dans les trois types de filtre (cf. tableau III.2). Avec de telles conditions aérauliques, le processus de filtration qui devrait dominer, surtout pour les fortes vitesses, est la captation par impaction inertielle. L'analyse de ces figures montre que le profil de pénétration des aérosols dans les filtres, jusqu'à une certaine profondeur, suit la loi exponentielle. La relation de la pénétration décrite par l'équation III.7 par Letourneau *et al.* (1990), prévoit que l'efficacité de filtration des fibres individuelles décroît exponentiellement dans toute la profondeur du médium. La compacité et la profondeur dans le filtre figurent dans la relation (III.7). Mais, c'est surtout la granulométrie et la vitesse de filtration qui sont responsables de la variation du facteur de pénétration K .

Pour les filtres C357, les aérosols sont capturés à $\sim 100\%$ mais les profils exponentiels du dépôt d'aérosols (figure III.9) ne sont pas valables sur toute l'épaisseur du filtre de $500 \mu\text{m}$. Nous remarquons que l'effet de la diminution des vitesses de filtration entraîne une diminution du dépôt surfacique et permet ainsi de diminuer la probabilité des rayonnements α émis vers le détecteur nucléaire.

La figure III.10 présente l'effet de la vitesse de filtration sur les spectres en énergie, ces spectres sont représentés séparément afin de visualiser les différents paramètres de spectrométrie décrits dans le tableau III.4. Ces spectres sont plus dégradés à faibles qu'à fortes vitesses de filtration. Ainsi les aérosols n'étant pas enfouis dans le médium filtrant, une bonne résolution en énergie des spectres est conservée. Le spectre du filtre C357 à $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ montre une meilleure résolution spectrale comparé aux autres spectres de différents filtres et des vitesses de filtration (cf. figure III.10).

Pour les filtres C569, les aérosols sont également capturés à $\sim 100\%$ mais plus profondément dans la matrice du filtre que dans le cas précédant (figure III.11). Nous remarquons que l'augmentation de la vitesse de filtration amplifie le dépôt en surface. Compte tenu de la profondeur du dépôt (c'est-à-dire plus de 50% des aérosols prélevés se trouvent parfois à une profondeur plus grande que $120 \mu\text{m}$), les rayonnements α émis sont absorbés dans le filtre. Cette pénétration dégrade la mesure des spectres (cf. tableau III.4) ainsi que la mesure de la radioactivité. La figure III.12 montre cette dégradation des spectres en énergie des rayonnements α obtenus.

Pour les filtres B132, les aérosols sont aussi capturés à $\sim 100\%$ mais uniformément en profondeur du filtre (figure III.13). Lorsque la vitesse de l'aérosol augmente, les mécanismes de dépôt s'accroissent légèrement (variation plus grande que l'incertitude associée au nombre de coups mesurés) et les aérosols sont répartis d'une manière homogène dans le filtre. Compte tenu qu'au moins 35 % des aérosols prélevés se trouvent parfois à une distance plus profonde que $120\ \mu\text{m}$, les rayonnements α émis sont beaucoup plus absorbés dans ce filtre que dans les deux autres précédemment présentés (figure III.14). Cette pénétration dégrade considérablement la mesure des spectres (cf. tableau III.4) et par conséquent les facteurs de correction sont maximaux.

Plusieurs paramètres de spectrométrie sont évalués afin de quantifier les dégradations des spectres subis dans les filtres : la largeur totale à mi-hauteur du spectre (ou FWHM), la forme de la traîne du spectre (ou PSP, acronyme anglais de Peak Shape Parameter) et le décalage du spectre vers les basses énergies (ou Peak Shift en anglais). Les valeurs de ces paramètres sont regroupées dans le tableau suivant pour les trois types de filtre étudiés.

Tableau III.4 : Comparaisons des caractéristiques du spectre expérimental pour les trois types de filtre étudiés.
Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées sont également indiquées.

Filtre	Vitesse de filtration (m.s^{-1})	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
C357	0,22	182 ± 20	229 ± 20	150 ± 12
	0,66	170 ± 19	230 ± 21	150 ± 12
	1	180 ± 19	300 ± 21	150 ± 12
	1,25	143 ± 18	248 ± 21	150 ± 12
C569	0,22	181 ± 19	248 ± 21	243 ± 21
	0,66	180 ± 19	255 ± 21	243 ± 21
	1	166 ± 19	260 ± 22	243 ± 21
	1,25	163 ± 18	277 ± 23	243 ± 21
B132	0,22	230 ± 20	390 ± 36	300 ± 32
	0,66	220 ± 21	360 ± 35	300 ± 32
	1	210 ± 21	330 ± 32	300 ± 32
	1,25	200 ± 20	310 ± 32	300 ± 32

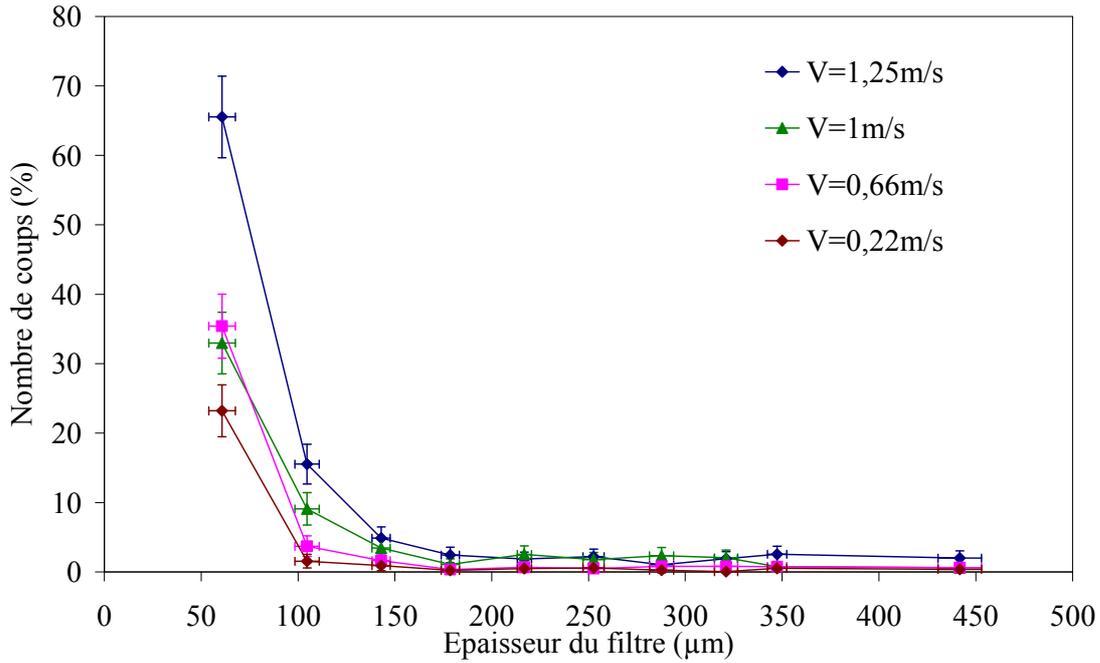


Figure III.9 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C357 en fonction des vitesses de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu).

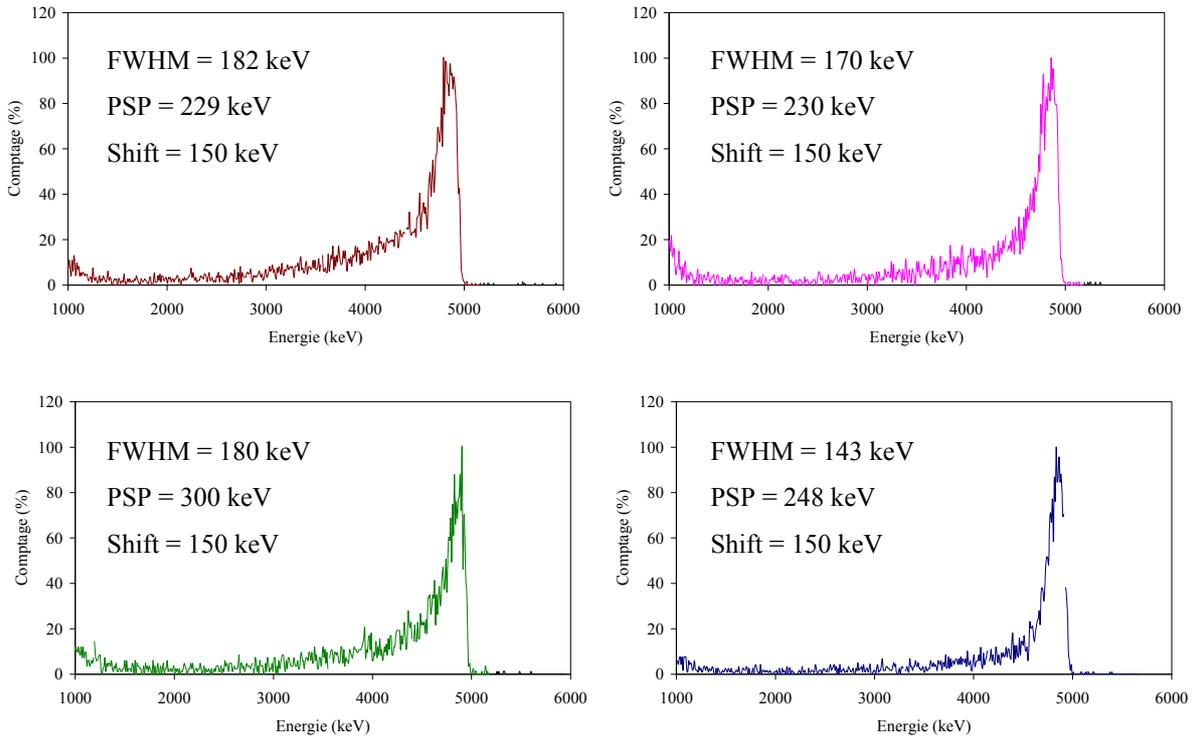


Figure III.10 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C357.

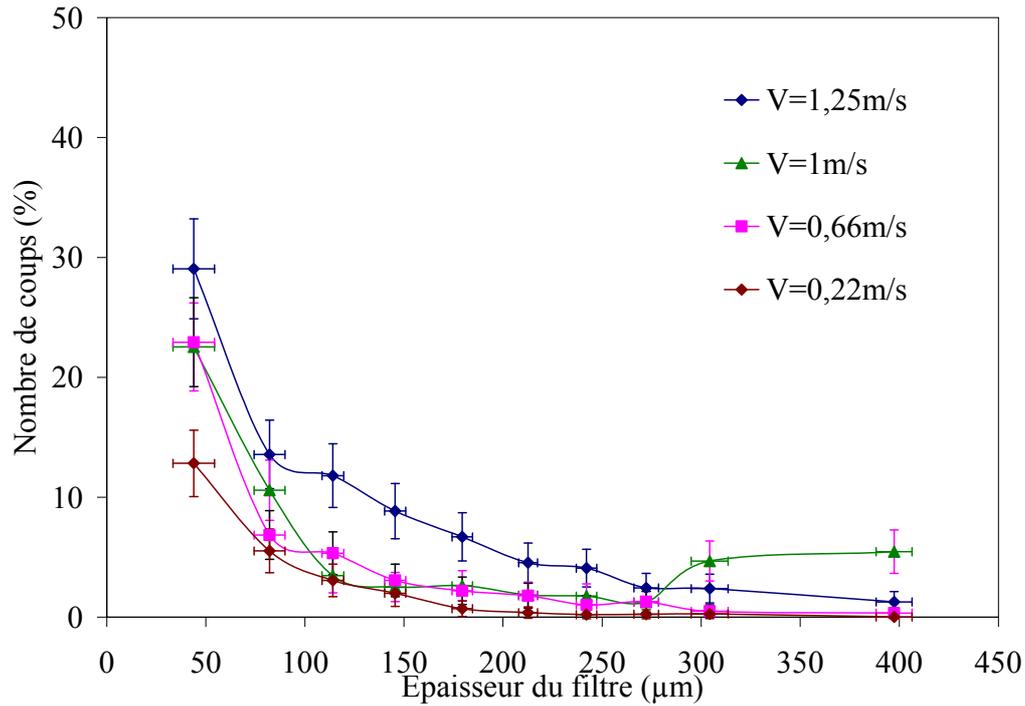


Figure III.11 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C569 en fonction de la vitesse de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu).

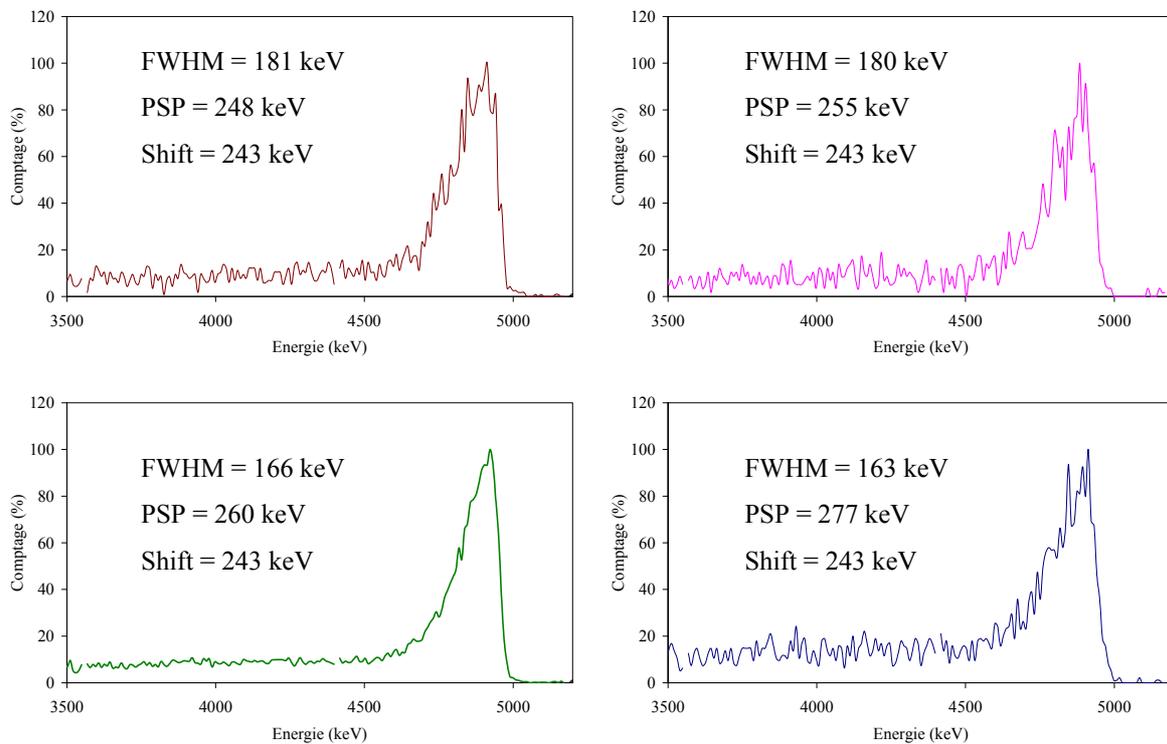


Figure III.12 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C569.

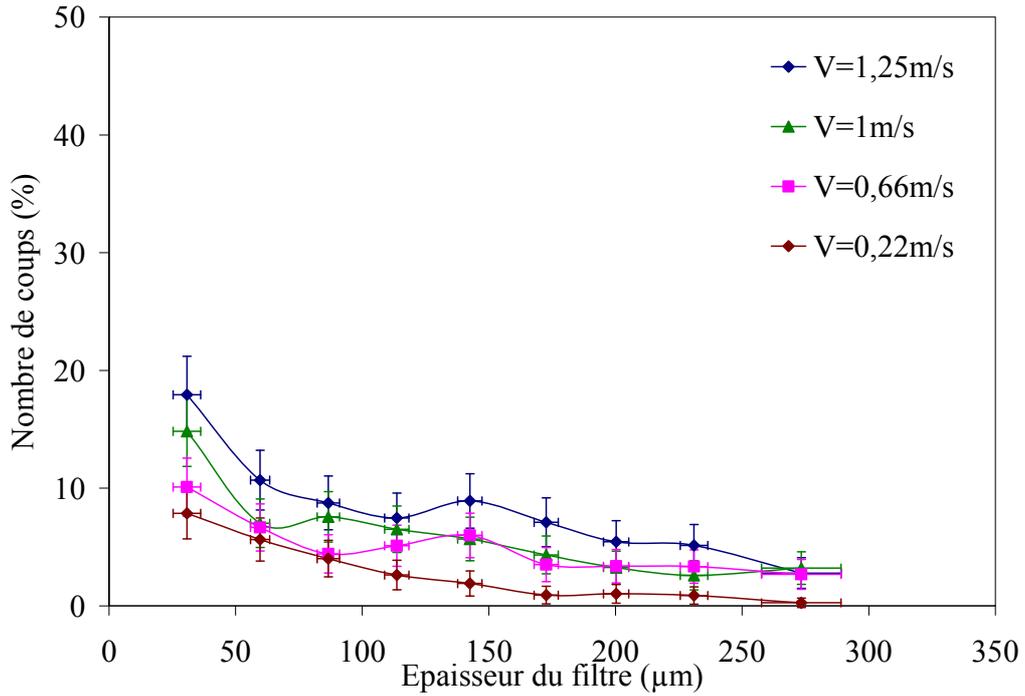


Figure III.13 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres B132 en fonction des vitesses de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu).

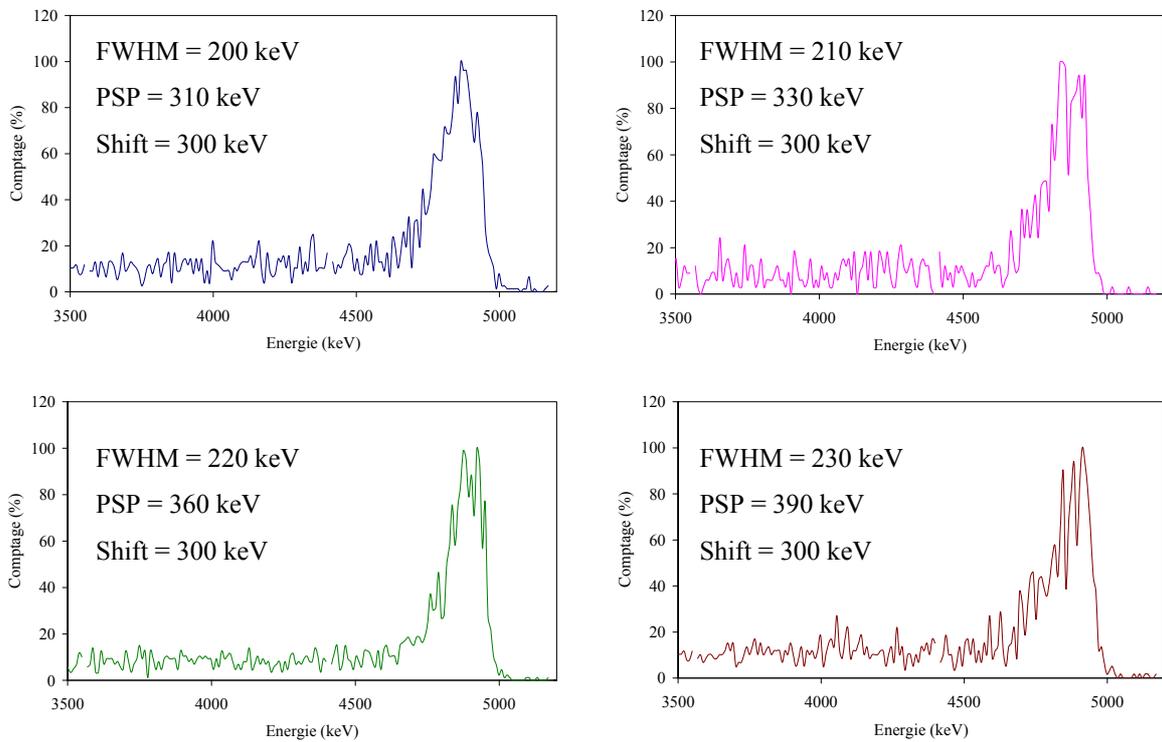


Figure III.14 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de $0,22 \text{ m.s}^{-1}$ (en rouge), $0,66 \text{ m.s}^{-1}$ (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres B132.

L'allure des profils de pénétration des aérosols dans les filtres met en évidence que la probabilité de collecte des aérosols décroît exponentiellement avec la distance par rapport à la surface jusqu'à une profondeur de 150-250 μm pour le C357 et 150-240 μm pour le C569. Pour le B132, la pénétration a lieu sur toute l'épaisseur du filtre. Le facteur de pénétration K de l'exponentielle varie légèrement en fonction de la vitesse de prélèvement. La variation de la pénétration des aérosols en fonction de la vitesse de filtration montre que :

- pour une faible vitesse de 0,22 m.s^{-1} , la pénétration est pratiquement la plus élevée,
- pour les vitesses plus importantes de 0,66 et 1 m.s^{-1} , la pénétration des aérosols en profondeur du filtre diminue,
- pour une vitesse de 1,25 m.s^{-1} , le dépôt est presque surfacique dans le médium filtrant.

3.4.b. *Expériences avec des aérosols de DAMA = 0,4 μm*

Nous avons effectué le pelage sur la série de filtres de référence préparés avec des masses d'aérosols de DAMA de 0,4 μm ($\sigma_g = 1,4$). Tous les essais ont été effectués dans des conditions identiques (même volume d'air prélevé, même hygrométrie, etc.). Les trois types de filtres C357, C569 et B132 sont étudiés pour différentes conditions de filtration. Les vitesses de filtration choisies sont limitées à 0,22 et 1,25 m.s^{-1} . Les processus de filtration les plus dominants sont la captation par interception et par diffusion brownienne.

En générale, le profil de pénétration dépend des mécanismes de collecte des aérosols sur les fibres. Nous avons vu que les aérosols de DAMA de 0,4 μm sont collectés à ~ 88 % dans le filtre C357, à ~ 81 % dans le filtre C569 ainsi qu'à ~ 68 % dans le filtre B132 (cf. tableau III.2). Les profils de pénétration sont normalisés (en %) par rapport à ces pourcentages d'aérosols collectés. Ces profils sont illustrés sur les figures III.15, III.17 et III.19. Nous constatons que l'allure générale des courbes est différente de celle obtenue précédemment avec le DAMA de 4 μm . Le maximum de la courbe de pénétration est plus prononcé pour les aérosols de DAMA égal à 0,4 μm et se situe à la surface du filtre.

En effet, pour les très faibles vitesses et pour des aérosols de DAMA inférieur à 1 μm , le mécanisme susceptible d'intervenir dans la captation est l'interception. Mais au fur et à mesure que la vitesse augmente, il y a apparition d'un régime turbulent donc d'une captation des aérosols par diffusion turbulente sur la surface des fibres. Il n'est guère possible, en effet, de parler d'impaction pour des aérosols si petits puisque l'épaisseur croissante de la partie non exponentielle en fonction de la vitesse serait due à la longueur d'établissement du régime laminaire pur. Les deux facteurs de pénétration augmentent avec la vitesse montrant ainsi une

diminution de l'efficacité du filtre. Comme pour l'étude avec un DAMA de 4 μm , les spectres en énergie (figures III.16, III.18 et III.20) sont dépendants de la pénétration en profondeur dans le filtre. Le dépôt en profondeur augmente la dégradation des spectres. Par exemple, pour le filtre C357 plus de 95 % des aérosols radioactifs collectés sont dans les deux premières couches du filtre. Le spectre du filtre C357 à 1,25 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ montre une meilleure résolution spectrale comparé aux autres spectres des différents filtres et vitesses de filtration (cf. tableau III.5).

Pour les filtres C569, les aérosols sont collectés à 81 % mais les profils de pénétration sont pratiquement exponentiels jusqu'à une épaisseur de 120 μm de profondeur, qui augmente légèrement avec la vitesse. Ce facteur K se réduit dans les couches les plus profondes du filtre. Au moins 80 % des aérosols radioactifs capturés se trouve dans les deux premières couches du filtre. Les spectres en énergie sont donc peu dégradés.

Pour les filtres B132 (figure III.19), les aérosols sont collectés à 68 % mais les profils de pénétration sont pratiquement exponentiels avec un facteur de pénétration K qui augmente légèrement avec la vitesse. Au moins 80 % des aérosols radioactifs sont capturés dans les deux premières couches du filtre. Même avec cette profondeur de pénétration, les spectres en énergie sur la figure III.20 sont plus dégradés que les spectres du filtre C357 de la première grille d'expérience.

Les valeurs des paramètres de spectrométrie sont regroupées dans le tableau III.5 pour les trois types de filtre et les deux vitesses de filtration étudiés.

Tableau III.5 : Comparaisons des caractéristiques du spectre expérimental pour les trois types de filtre étudiés. Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées sont également indiquées.

Filtre	Vitesse de filtration ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$)	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
C357	0,22	219 ± 27	294 ± 33	100 ± 12
	1,25	211 ± 29	266 ± 32	100 ± 12
C569	0,22	203 ± 26	342 ± 35	150 ± 14
	1,25	167 ± 23	288 ± 32	150 ± 14
B132	0,22	230 ± 31	342 ± 35	290 ± 31
	1,25	197 ± 19	330 ± 34	290 ± 31

L'allure des profils de pénétration des aérosols dans l'épaisseur du filtre montre que la probabilité de pénétration des aérosols décroît exponentiellement avec la distance par rapport à la surface jusqu'à une épaisseur de 100 à 150 μm pour les 3 types de filtre. Au-delà de ces profondeurs le nombre d'aérosols arrêtés est très faible.

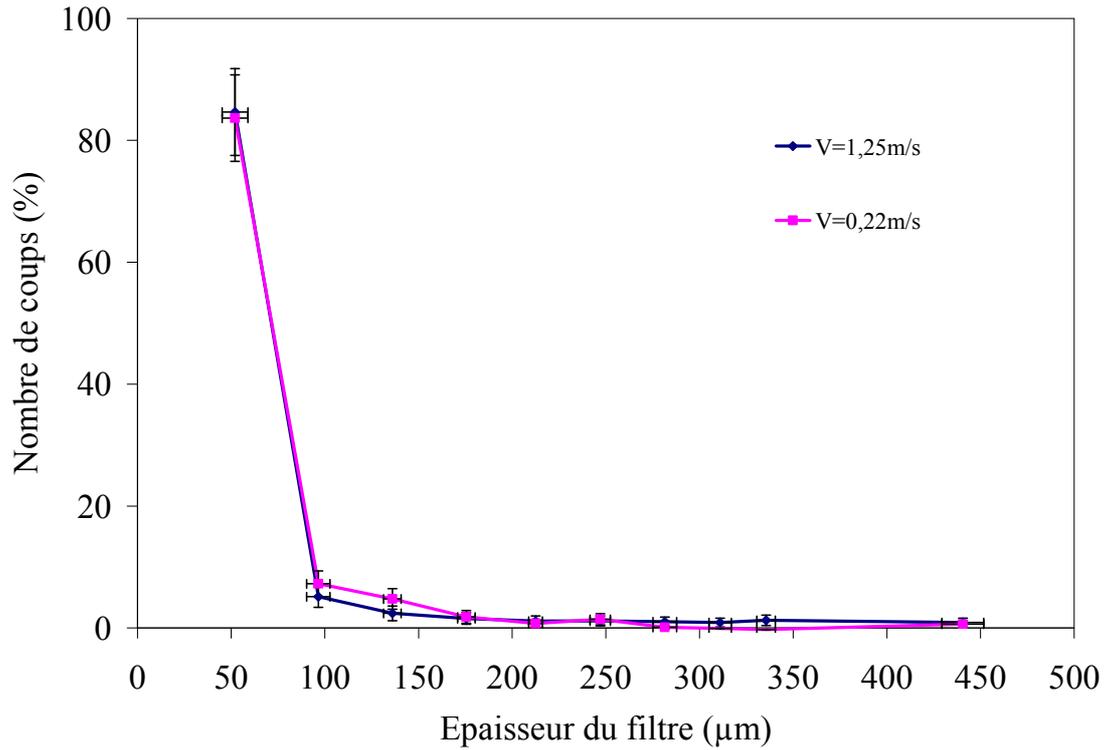


Figure III.15 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C357 en fonction de la vitesse de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu).

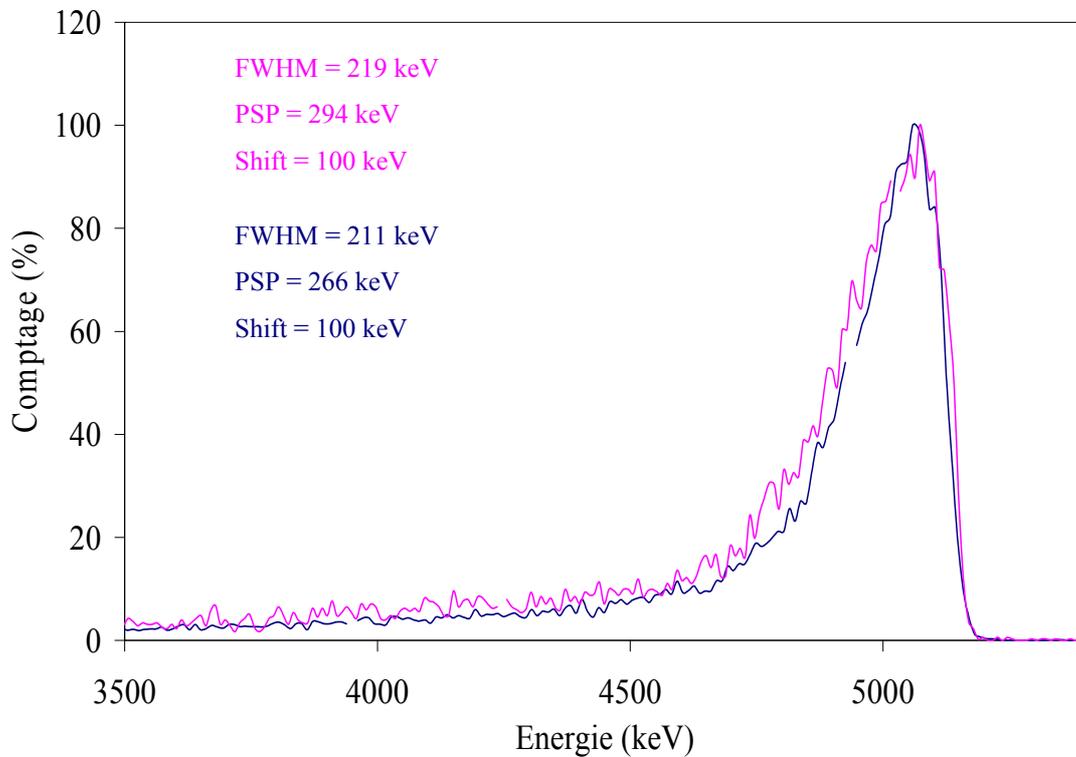


Figure III.16 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu). Cas du filtre C357.

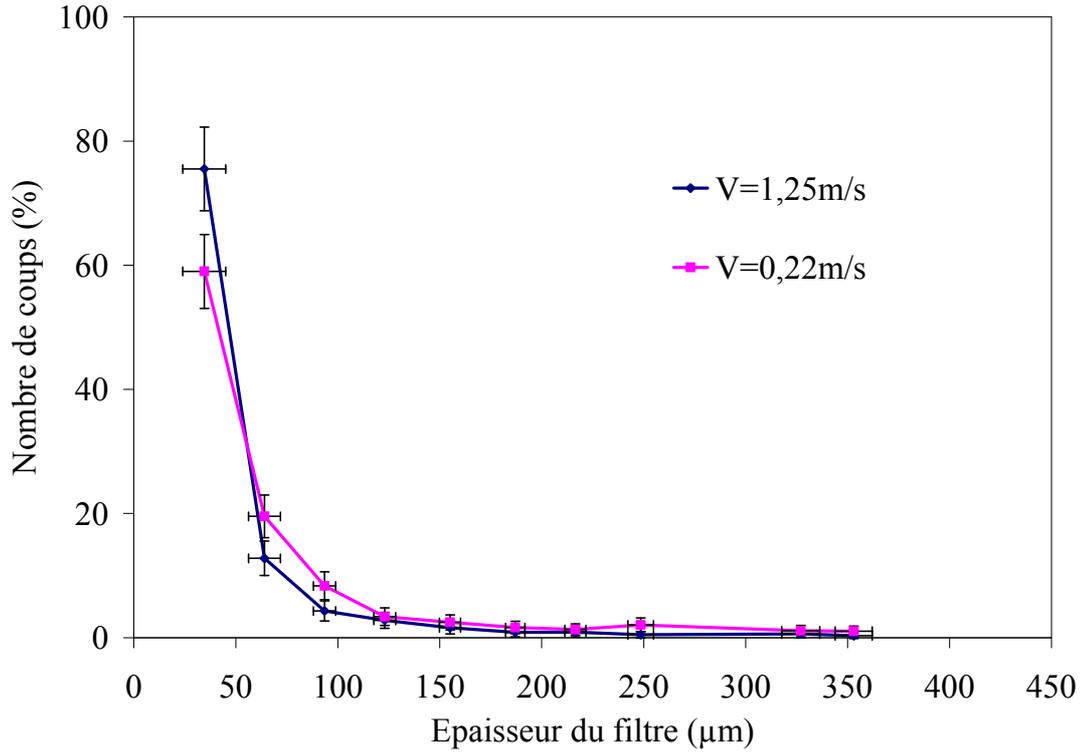


Figure III.17 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C569 en fonction de la vitesse de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu).

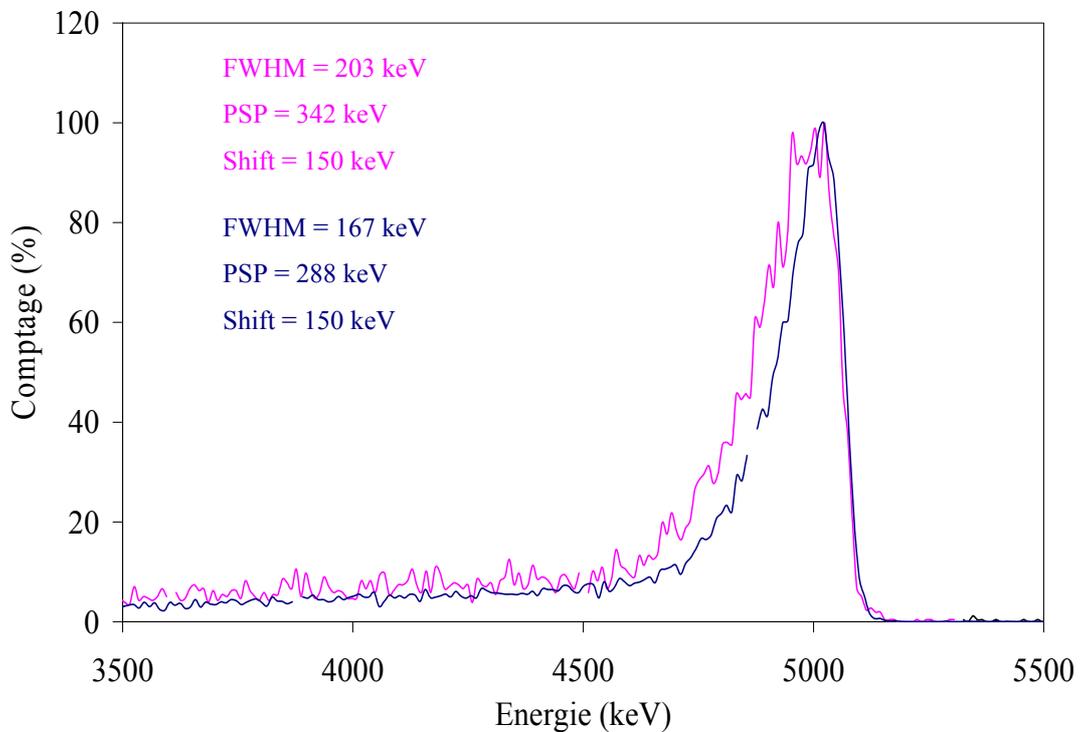


Figure III.18 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu). Cas du filtre C569.

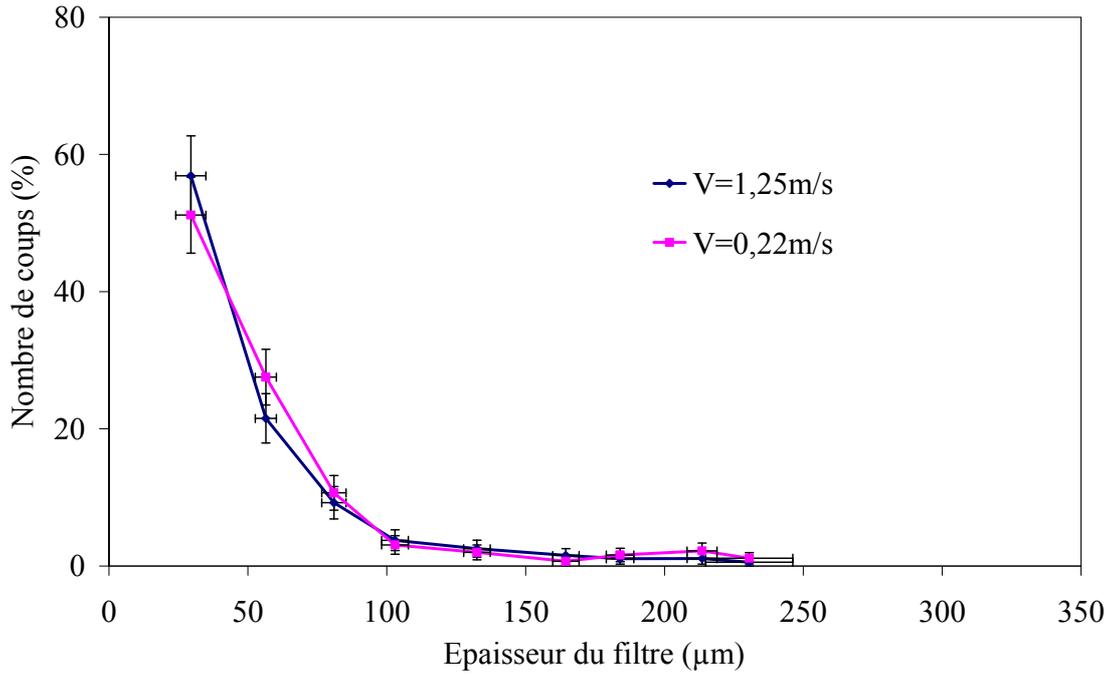


Figure III.19 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres B132 en fonction de la vitesse de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu).

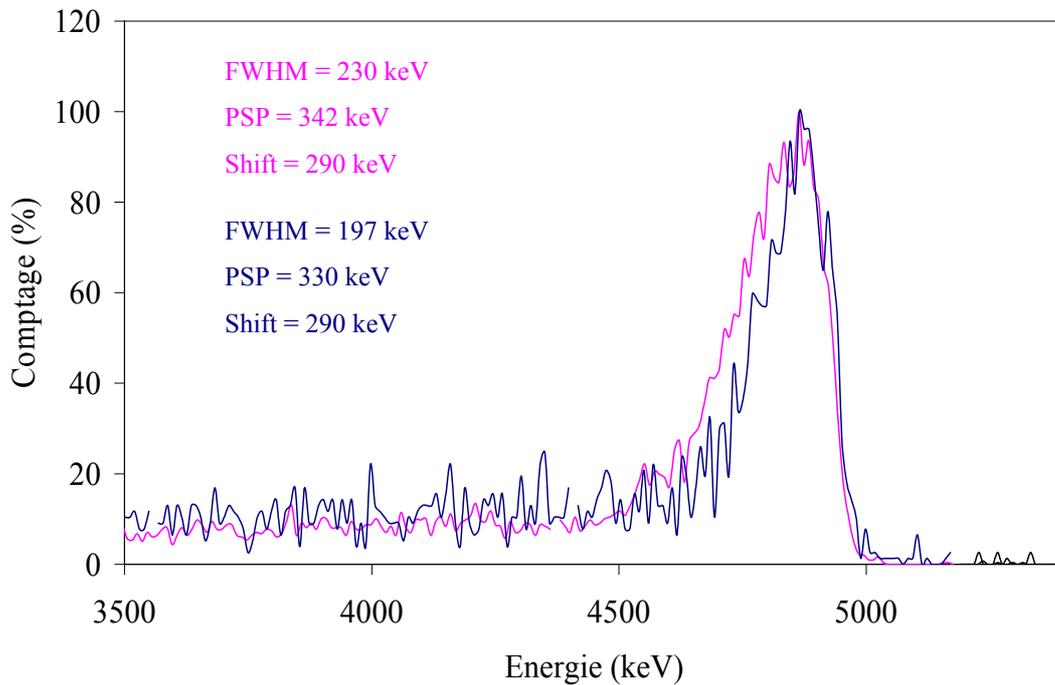


Figure III.20 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de $0,22 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en rose) et $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ (en bleu). Cas du filtre B132.

3.5. Discussion sur les résultats obtenus par spectrométrie α : exemple pour des filtres non-chargés en masse d'aérosols

Dans le cas où les aérosols se déposent dans la profondeur du filtre, la matière fibreuse forme l'obstacle qui influence majoritairement la mesure de la radioactivité. Le comptage par des détecteurs est alors biaisé suite à l'absorption d'une partie des rayonnements α dans cette matière.

La figure III.21 montre des spectres en énergie de quatre sources de géométries différentes. La source solide électrodéposée surfacique dégrade la FWHM du spectre en énergie de 80 keV. Cette dégradation est causée par l'absorption dans l'épaisseur de la matière électrodéposée formant la source ainsi que la rétrodiffusion sur le support et les bords.

En comparaison, les rayonnements α issus des filtres subissent beaucoup plus de dégradation d'énergie dans l'épaisseur de la matière du filtre. Par conséquent, les spectres en énergie sont largement dégradés. Par exemple, pour les filtres C357 formés de fibres de verre, la FWHM du spectre atteint (211 ± 29) keV. Cette dégradation provient non seulement de l'effet de pénétration des aérosols dans le filtre, étudié dans le paragraphe précédent, mais aussi de la densité élevée de la matière constituant les fibres de verre ($2,58 \text{ g.cm}^{-3}$). Pour les filtres B132 et C569, la structure du filtre fait que les aérosols pénètrent plus en profondeur. Mais l'effet de la dégradation en énergie causée par le parcours additionnel est compensé par l'effet de la densité de la cellulose ($1,49 \text{ g.cm}^{-3}$) qui est plus faible que celle des fibres de verre. La dégradation de l'énergie, présentée par la FWHM, atteint alors (197 ± 19) keV pour le B132 et (167 ± 23) keV pour le C567.

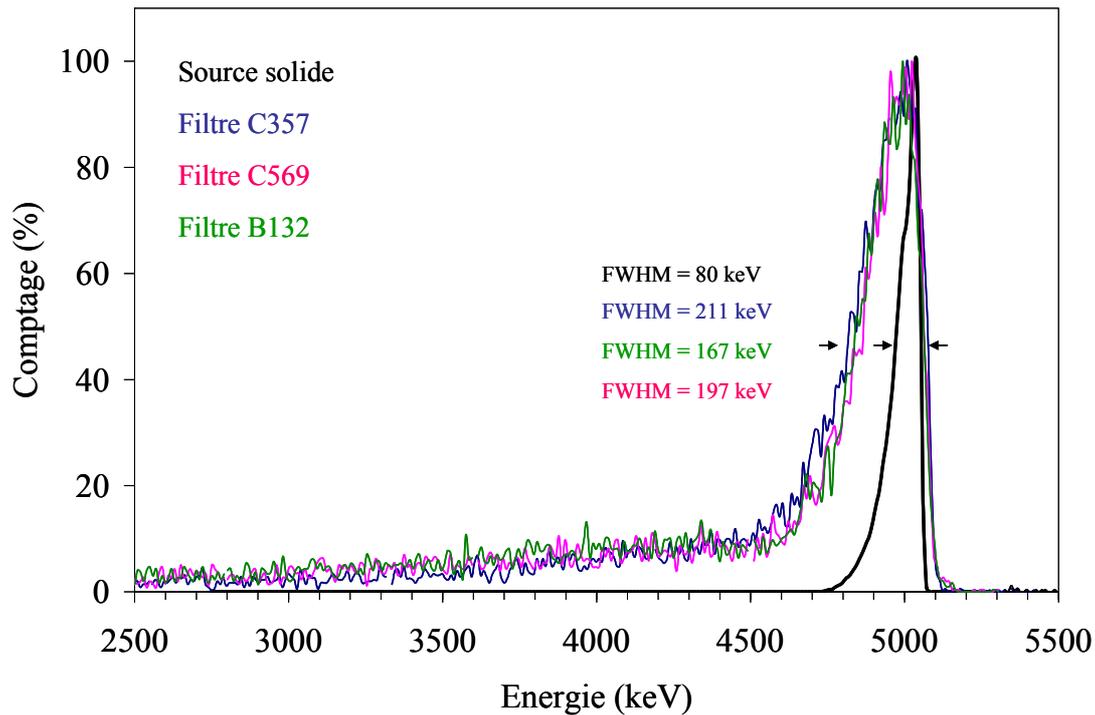


Figure III.21 : Comparaison des spectres en énergie des rayonnements α , sous vide, pour une source solide ainsi que pour trois types de filtre préparés à l'aide d'aérosol de DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) et filtrés à $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et non-chargés en masse.

Conclusion :

Cette étude met en évidence les constatations suivantes :

- le dépôt d'aérosols à la surface et par conséquent l'activité sur la surface dépendent du type du filtre. Plus le filtre est efficace, plus la pénétration des aérosols en profondeur est réduite et moins le spectre est dégradé.
- les aérosols de DAMA de l'ordre de $4 \mu\text{m}$ sont beaucoup plus arrêtés que ceux avec un DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ dans les média filtrants du fait de l'effet prépondérant de l'impaction inertielle. En conséquence, les dégradations dans les mesures de la radioactivité lors de la surveillance des zones de travail sont moins importantes que lors de la surveillance de l'environnement.

Il ressort de cette étude une nécessité de trouver un modèle plus réaliste que la pénétration exponentielle pour décrire la pénétration des aérosols dans les filtres. Dans le prochain chapitre, nous faisons appel à une méthode numérique afin de simuler la pénétration des aérosols dans les filtres.

4. Résultats des facteurs de correction de l'activité mesurée en fonction des conditions de filtration. Etude de l'effet sur les filtres chargés en masse d'aérosols

4.1. Caractéristique du dépôt de masse d'aérosols

La nature des particules accumulées sur les filtres de surveillance de l'environnement varie largement en fonction de plusieurs paramètres chimiques et physiques. L'étude de l'effet de ces particules a été entreprise pour établir un lien entre les données de colmatage des filtres et le processus d'atténuation de l'énergie des rayonnements α au cours de leur parcours vers le détecteur.

L'évaluation des facteurs correctifs nécessite une connaissance la plus exhaustive possible des conditions d'exposition des filtres et des paramètres liés à leur mesure. L'accès à ces données est souvent difficile et a nécessité, dans notre cas, la prise en compte d'hypothèses :

- les caractéristiques physiques des aérosols sont supposées constantes au cours du prélèvement,
- le dépôt d'aérosols est considéré homogène sur la surface du filtre,
- l'élévation de la quantité de masse sur les filtres se fait par l'augmentation du temps de prélèvement,
- les conditions d'humidité relative des filtres sont faibles ($< 30\%$),
- l'activité massique des aérosols retenus par le filtre est considérée constante et est proportionnelle à la variation de la masse d'aérosols,
- en début de filtration, les aérosols se répartissent de façon décroissante dans la profondeur du filtre, comme nous l'avons évoqué dans les paragraphes précédents,
- la masse surfacique critique dépend de la taille des particules, du diamètre des fibres et de la compacité du filtre,
- après dépassement de la masse critique en filtration, la vitesse n'a pas d'influence sur la manière dont se déposent les aérosols, dans la gamme étudiée (20 à 125 cm.s⁻¹),
- la compacité des particules au sein du gâteau est corrélée à leur diamètre.

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre précédent, la production des aérosols non-radioactifs par le générateur GA2400S (d'une solution de NaCl pulvérisée) se fait simultanément avec la production des aérosols radioactifs à l'aide du banc d'essais ICARE.

Les filtres utilisés sont des filtres à fibres de diamètres 47 mm (fournisseur B.DUMAS). Le dépôt est effectué sur les deux types de filtre, B132 et C569 qui, contrairement au type C357, prélèvent les aérosols en profondeur avant la phase de colmatage. La technique de pelage

n'est pas appliquée sur ces filtres, parce que nous nous intéressons à la dégradation de la mesure nucléaire sur les filtres chargés en masse d'aérosols sans lien avec la pénétration.

La mesure de la radioactivité dans les filtres est réalisée à l'aide du compteur proportionnel MINI20 et de la SL. Dans la SL, l'effet du quenching dû au dépôt de masse est évalué à 277 et est pris en compte dans le calcul de l'activité.

4.2. Description du point de transition

La figure III.22 illustre l'évolution de la perte de charge en fonction de la masse d'aérosols prélevés sur un filtre. Elle montre qu'il existe un point de transition à partir duquel la perte de charge augmente rapidement en fonction de la masse d'aérosols prélevés. Ce point de transition décrit le passage de la filtration d'aérosols en profondeur vers la filtration en surface. Une relation empirique a été développée, par Pénicot-Bauge (1998), pour prédire cette transition W_T (en g.m^{-2}) suivant la taille des aérosols :

$$W_T = 3,82 d_p \quad (\text{III. 9})$$

Relation valide pour des distributions de granulométrie comprises entre $0,18 \mu\text{m} \leq d_p \leq 0,4 \mu\text{m}$.

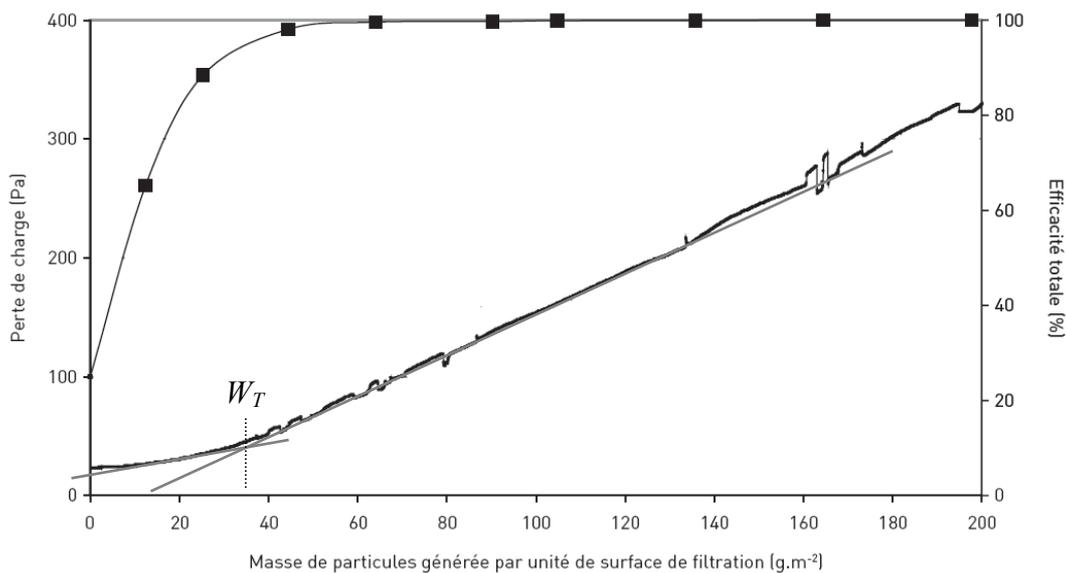


Figure III.22 : Evolution de la perte de charge et de l'efficacité au cours de colmatage d'un filtre à fibre par un aérosol solide. Le point de transition W_T est aussi présenté.

Dans le cas de la filtration d'aérosols micrométriques, Thomas (2001) a établi une autre expression donnant le point de transition en fonction des caractéristiques du filtre (c'est-à-dire la compacité α_{pG} du « gâteau » et le diamètre d_f des fibres) et celles des aérosols (diamètre moyen et masse volumique ρ_p) dont Pénicot-Bauge (1998) avait observé l'influence.

$$W_T = \frac{\alpha_{pG} d_f}{1,5 z} \left[\left(\frac{2 \alpha_f}{\pi} \right)^{-1/2} - 1 \right] \quad (\text{III. 10})$$

L'étude de la compacité α_{pG} du « gâteau » sur le filtre a fait l'objet de plusieurs études. Nous distinguons celle de Pénicot-Bauge (1998) qui a proposé une relation empirique reliant la porosité des aérosols au sein du « gâteau » avec la taille des aérosols ($d_p \leq 3 \mu\text{m}$).

$$\alpha_{pG}(d_p) = 0,58(1 - \exp(\frac{-d_p}{0,53})) \quad (\text{III. 11})$$

Il est à rappeler que les masses des aérosols déposées dans les média filtrants vont, au fur et à mesure du colmatage, influencer l'efficacité de collecte ainsi que la perte de charge des filtres. Dans notre étude, le W_T , visible sur la figure III.23, est de l'ordre de $0,3 \text{ mg.cm}^{-2}$ pour les deux types de filtre B132 et C569. Des points d'intérêt en dessous et au-dessus de cette valeur sont étudiés afin de mesurer les facteurs de correction en fonction des masses d'aérosols déposées en profondeur dans le filtre et de celles déposées en surface du filtre.

L'ensemble des résultats des masses d'aérosols prélevés au cours des expériences et des pertes de charge à travers les filtres sont regroupés dans le tableau III.6. La perte de charge est fonction des conditions aérodynamiques de prélèvement et de la taille des aérosols filtrés.

Tableau III.6 : Résultats de la seconde grille d'expériences, paramètres et mesures obtenus aux cours des expériences.

DAMA (σ_g)	V (cm.s ⁻¹)	Type de filtre	$\Delta\text{Masse (mg.cm}^{-2}\text{)}$	$\Delta\text{P}_{\text{filtre}}$ (mbar)
0,4 μm (1,4)	100	B132	0,20 \pm 0,048	20
			0,27 \pm 0,048	20
			0,53 \pm 0,049	30
			0,90 \pm 0,049	40
			1,20 \pm 0,049	50
			1,70 \pm 0,049	70
			1,90 \pm 0,049	75
			2,51 \pm 0,049	95
			3,52 \pm 0,049	115
			0,4 μm (1,4)	100
0,07 \pm 0,021	30			
0,27 \pm 0,024	50			
0,55 \pm 0,024	60			
0,90 \pm 0,024	75			
1,55 \pm 0,024	90			
2,65 \pm 0,024	120			
3,01 \pm 0,024	132			
3,53 \pm 0,024	141			

La figure III.23 montre un plateau pour les faibles masses indiquant le régime de collecte en profondeur du filtre. A partir du point de transition, la perte de charge augmente rapidement suite à l'encrassement avec des aérosols en profondeur et ensuite sur la surface du filtre.

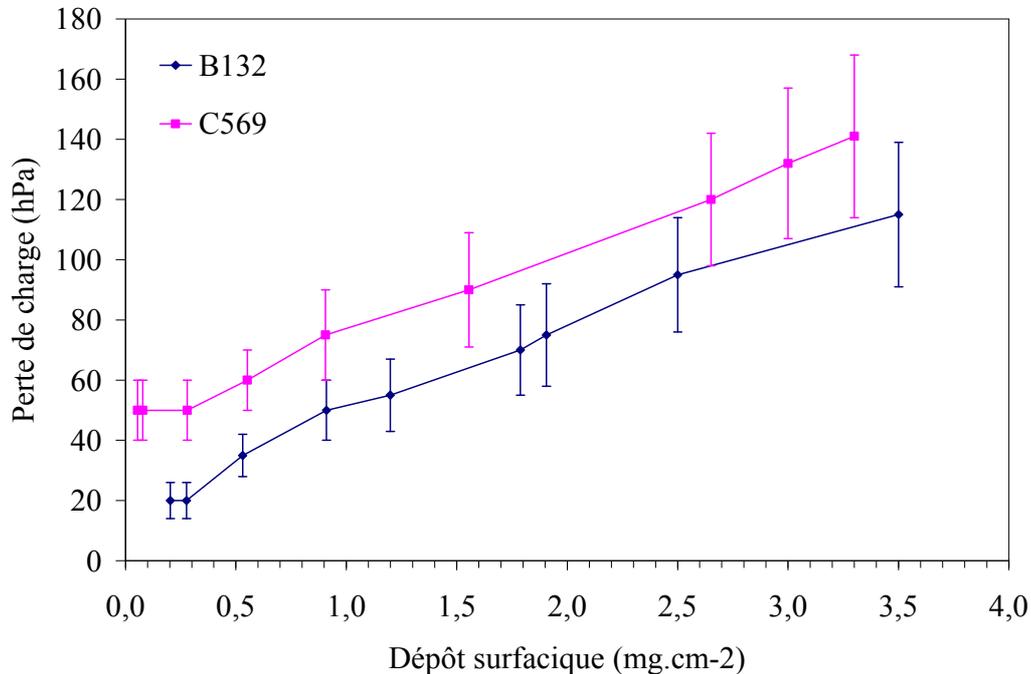


Figure III.23 : Perte de charge exprimée en fonction de la masse collectée sur le filtre.

Pour Huang *et al.* (2002), le point de transition ($0,1 \text{ mg.cm}^{-2}$) est considéré comme un seuil pour un moniteur à partir duquel l'effet de la masse déposée sur la dégradation de la mesure de la radioactivité devient significatif. Pour mesurer le point de transition, nous utilisons le modèle de Pénicot-Bauge (1998) en tenant compte des conditions aérodynamiques de prélèvement, de la nature des aérosols étudiés et des types de filtres. La valeur trouvée est de l'ordre de $0,3 \text{ mg.cm}^{-2}$ pour les deux types de filtre B132 et C569 étudiés. Des points d'intérêt en dessous et au-dessus de cette valeur sont étudiés afin de mesurer les facteurs de correction avec le régime d'encrassement du filtre en profondeur et avec le régime d'encrassement à la surface du filtre.

4.3. Résultats et interprétations de la dégradation de la mesure nucléaire

Dans ce paragraphe, les résultats de la mesure de la radioactivité et les facteurs de correction associés aux filtres préparés avec des masses accumulées sont exposés.

Etant donné que le régime de filtration en profondeur du filtre ne dure pas longtemps et que l'effet de la vitesse de prélèvement n'est plus un paramètre d'intérêt parmi les conditions de filtration, la vitesse de filtration pour nos expériences est choisie égale à 1 m.s^{-1} .

Les figures III.24 et 25 illustrent les facteurs de correction de l'activité mesurée obtenus pour différentes masses d'aérosols (en mg.cm^{-2}) filtrés pour les filtres B132 et C569 respectivement. Les incertitudes associées aux masses et aux facteurs de correction sont aussi représentées.

Pour ces deux types de filtre et pour des faibles valeurs de masse accumulée, les aérosols continuent à se déposer à l'intérieur du médium filtrant. Les premiers aérosols sont capturés par les fibres vierges du filtre, l'augmentation de la perte de charge est donc initialement très faible. Nous remarquons que les facteurs de correction, $F_\alpha(z, d_p, V)$, augmentent jusqu'à arriver à un maximum. Ce maximum est expliqué par le fait que les aérosols s'entassent les uns sur les autres en profondeur du filtre formant des dendrites, empêchant ainsi les rayonnements α d'arriver à la face supérieure du filtre.

Après une valeur W_T de $0,3 \text{ mg.cm}^{-2}$ (c'est-à-dire le début du dépôt majoritaire en surface du filtre), il y a une chute brusque des valeurs des facteurs de correction. Cette chute des valeurs de F_α est expliquée par une faible quantité de radioactivité détectable causée par l'effet écran des dendrites sur les rayonnements α sortant de la profondeur du filtre.

Cependant, les aérosols s'accumulent sur la surface du filtre augmentant à nouveau la dégradation de la radioactivité des rayonnements α émergeant des profondeurs et de la surface. Pour des masses surfaciques comprises entre 1 et 2 mg.cm^{-2} , les figures montrent un plateau où la radioactivité masquée par les aérosols est rééquilibrée par le rajout à la surface du filtre de nouveaux aérosols radioactifs. Enfin, avec l'accroissement de la masse sur les filtres ($> 2 \text{ mg.cm}^{-2}$), les dendrites se rejoignent et forment un « gâteau » sur la surface du filtre. Le « gâteau » peut être considéré comme un second filtre d'épaisseur croissante en série avec le médium initial, ce qui explique l'augmentation linéaire des facteurs de correction de la radioactivité avec la masse surfacique des aérosols. Lorsque l'épaisseur du « gâteau » devient supérieure à la portée des rayonnements α dans ce dernier, l'activité des premières couches de gâteau n'est plus détectée et les facteurs de correction augmentent rapidement.

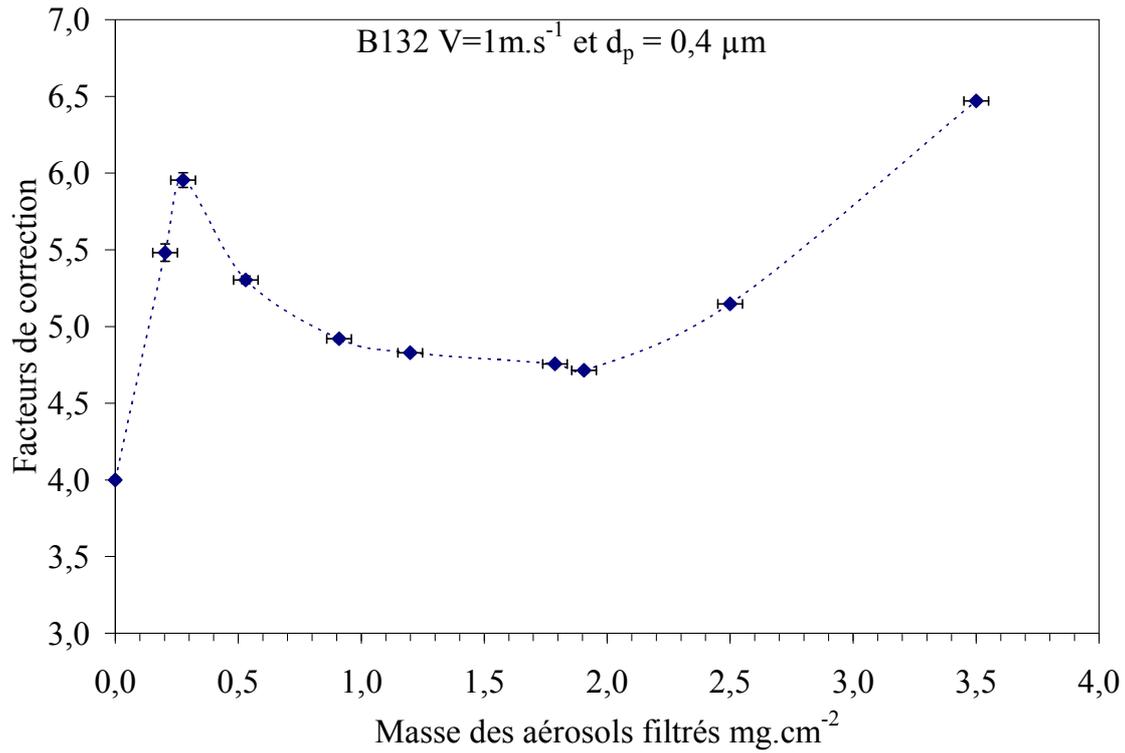


Figure III.24 : Facteurs de correction de l'activité en fonction de la masse d'aérosols ($d_p = 0,4 \mu\text{m}$) accumulés sur un filtre B132.

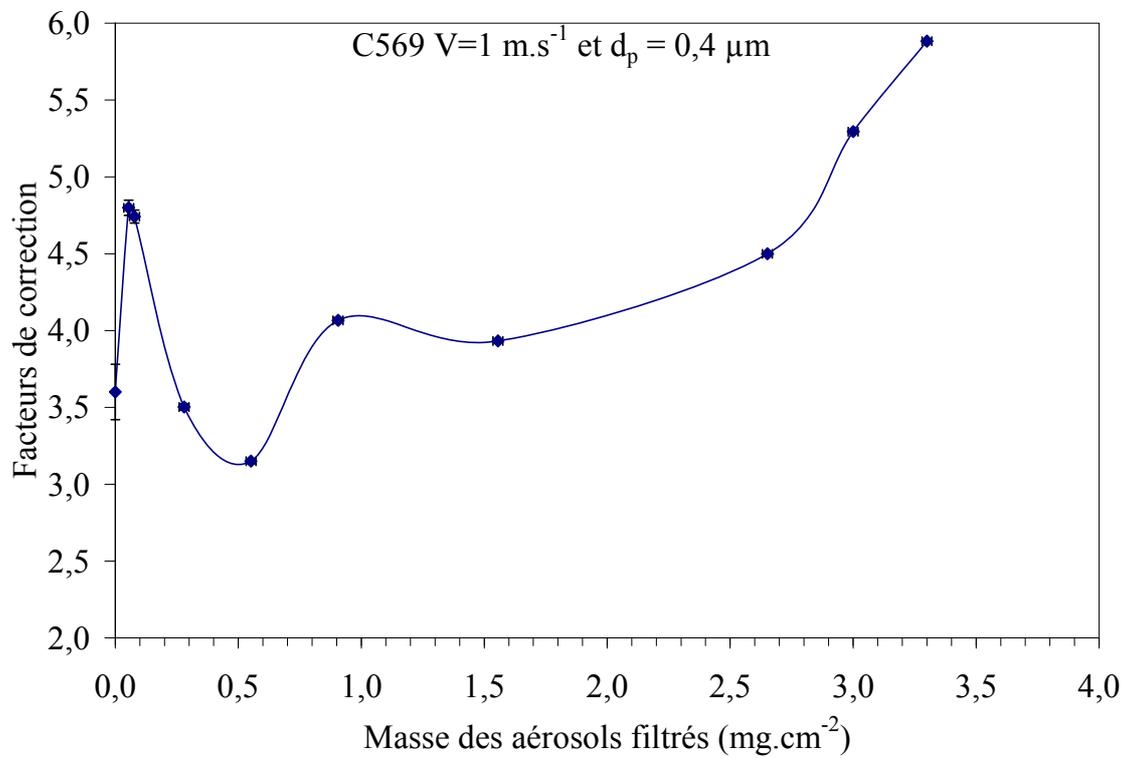


Figure III.25 : Facteurs de correction de l'activité en fonction de la masse d'aérosols ($d_p = 0,4 \mu\text{m}$) accumulés sur un filtre C569.

Cette étude a conduit à la détermination des facteurs de corrections $F_{\alpha}(z, d_p, V)$ sans tenir compte du rendement de détection $(T_{\alpha})_D$, caractéristique de chaque détecteur nucléaire en fonction de la masse des aérosols filtrés. Il est à rappeler que ces valeurs sont valables pour ces types de filtres et ces conditions de filtration. Ces résultats sont comparés avec ceux obtenus à partir du modèle numérique, du chapitre IV, afin de valider les modèles physique utilisés.

5. Étude de la dégradation du spectre en énergie des filtres préparés avec un mélange de masses d'aérosols radioactifs et non-radioactifs

Ce paragraphe présente une description qualitative et quantitative des atténuateurs qui dégradent la résolution du spectre en énergie des rayonnements α et qui empêchent de mesurer facilement l'activité réelle déposée sur les filtres de prélèvement. Les études antérieures (Higby 1984, Stevens *et* Toureau 1963, Huang *et al.* 2002, Moore *et al.* 1993) montrent qu'en première approximation, la forme du spectre en énergie dépend de plusieurs facteurs prépondérants tout au long du parcours des rayonnements. Il s'agit de l'auto-absorption dans les aérosols radioactifs, l'absorption dans la structure du filtre et l'absorption dans la masse d'aérosols due à l'enterrement des aérosols dans la profondeur du filtre.

Les figures III.26 et 27 présentent quelques spectres en énergie mesurés pour différentes masses accumulées sur le filtre et pour deux types de filtre B132 et C569. Des aérosols d'un DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ et σ_g de 1,4 prélevés avec une vitesse de filtration de $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ sont étudiés. Des valeurs de masses croissantes allant de quelques $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ jusqu'à 1,9 (et 2,65) $\text{mg}\cdot\text{cm}^{-2}$ pour le filtre B132 (et le filtre C569) sont prélevées sur les filtres. Pour des masses plus élevées que ces deux dernières, les spectres ne ressemblent plus à des spectres en énergie α et donc ne sont plus illustrés dans ces figures.

Pour des faibles valeurs de masses accumulées, les aérosols continuent à se déposer en profondeur dans le filtre. Le pic en énergie du ^{239}Pu a une résolution qui augmente et une traîne qui s'élargit à cause des dégradations en énergie des rayonnements α dans la matrice du filtre à fibres. Ceci est aussi expliqué par l'entassement des aérosols les uns sur les autres en profondeur dans le filtre empêchant ainsi les rayonnements α d'arriver à la face supérieure du filtre. Après passage du point de transition (masse supérieure à $0,2 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$), il y a une augmentation de la largeur à mi-hauteur (FWHM) mais aussi une réduction brutale de la traîne du pic aux basses énergies. Ceci est dû à la faible quantité d'activité détectable à la

surface du filtre et à l'effet d'écran des aérosols de surface sur les rayonnements α sortant de la profondeur du filtre.

Dans le cas où les aérosols se déposent sur la surface du filtre, la dégradation de l'énergie est réduite et l'énergie des masses déposées auparavant dans la profondeur du filtre est trop dégradée. Ces rayonnements α , émergeant de la profondeur, contribuent au comptage dans la zone de basse énergie du spectre. Les rayonnements, qui sortent de la surface ou qui émergent de la masse formant le « gâteau » sur la surface, contribuent au comptage dans la zone des hautes énergies du spectre. Cependant, les aérosols s'accumulent sur la surface du filtre augmentant de nouveau la dégradation de la radioactivité des α émergeant des profondeurs et de la surface. La traîne du pic augmente rapidement. Les caractéristiques de ces spectres sont regroupées dans le tableau III.7.

Tableau III.7 : Caractéristiques des spectres en énergie pour différentes quantités de masses d'aérosols déposés sur les deux types de filtre étudiés. Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées sont également indiquées.

Type du filtre	Masses d'aérosols mg.cm^{-2}	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
B132	$0,20 \pm 0,048$	234 ± 20	396 ± 22	50 ± 15
	$0,27 \pm 0,048$	245 ± 20	462 ± 22	100 ± 15
	$0,53 \pm 0,049$	546 ± 25	986 ± 22	120 ± 15
	$0,90 \pm 0,049$	750 ± 25	1375 ± 28	185 ± 15
	$1,20 \pm 0,049$	850 ± 28	1473 ± 28	250 ± 22
	$1,70 \pm 0,049$	890 ± 28	1617 ± 28	284 ± 22
	$1,90 \pm 0,049$	1140 ± 28	2096 ± 50	324 ± 30
C569	$0,05 \pm 0,021$	240 ± 20	418 ± 25	25 ± 12
	$0,07 \pm 0,021$	280 ± 21	430 ± 25	50 ± 15
	$0,27 \pm 0,024$	446 ± 25	747 ± 28	100 ± 15
	$0,55 \pm 0,024$	625 ± 25	1120 ± 28	125 ± 15
	$0,90 \pm 0,024$	834 ± 28	1619 ± 30	200 ± 20
	$1,55 \pm 0,024$	1163 ± 28	1950 ± 32	300 ± 30
	$2,65 \pm 0,024$	2080 ± 30	3330 ± 55	400 ± 35

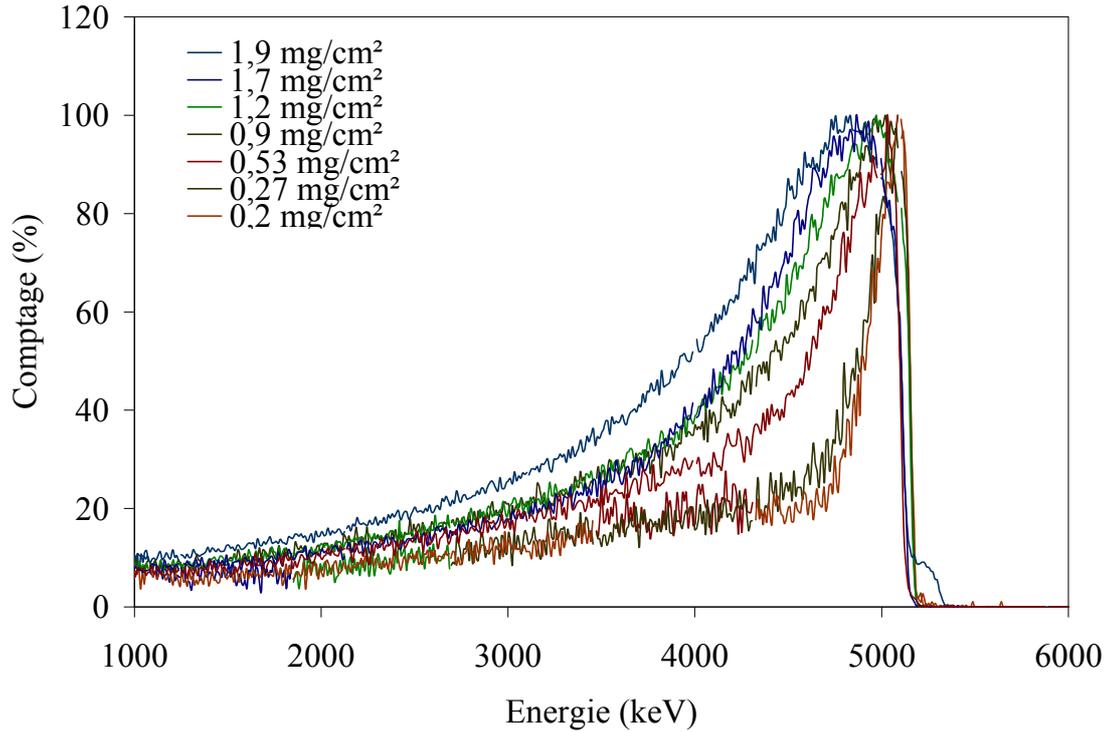


Figure III.26 : Spectres en énergie α pour différentes masses d'aérosols déposés. Cas du filtre B132.

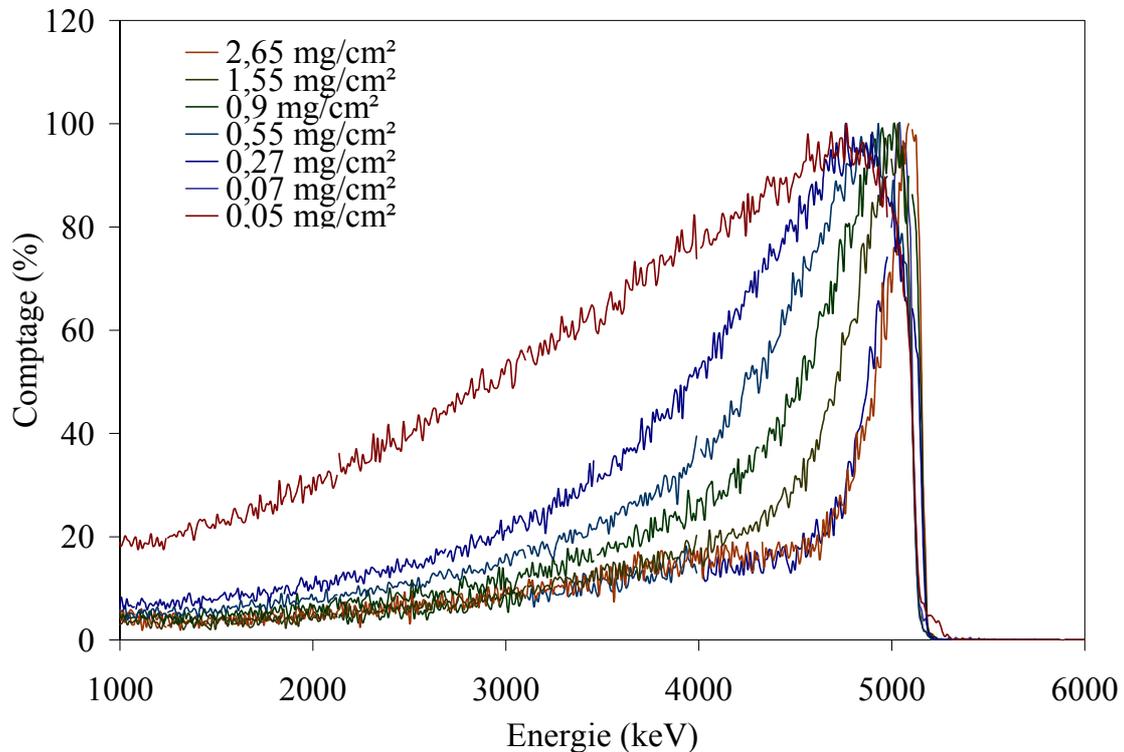


Figure III.27 : Spectres en énergie α pour différentes masses d'aérosols déposés. Cas du filtre C569.

Dans quelques solutions radioactives mères (du ^{239}Pu) utilisées, des impuretés (^{240}Pu ou ^{238}Pu) peuvent être responsables des coups enregistrés sur le côté droit du pic ($E > 5155$ keV).

6. *Conclusions*

Dans ce chapitre, l'influence des mécanismes de dépôt des aérosols radioactifs dans les filtres sur la mesure de la radioactivité a été présentée. Des facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité ont été ainsi déterminés expérimentalement.

Dans la première partie, nous avons déterminé les facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité. Les valeurs obtenues sont généralement comprises entre 3 et 6 sans prendre en compte le rendement de détection des appareils de mesure qui est dépendant du type et de la configuration du détecteur.

La deuxième partie de ce chapitre a montré que la pénétration des aérosols dans les filtres suit une loi exponentielle jusqu'à une certaine profondeur dans le filtre. La pénétration est fonction des mécanismes de collecte et du type de filtre. Elle est responsable de cette variation dans les facteurs de correction de la radioactivité. Cette profondeur est en général supérieure à la limite de profondeur détectable des rayonnements α .

La troisième partie a mis en évidence un point de transition entre la filtration en profondeur et celle en surface. Ce point de transition indique une augmentation des facteurs de correction suivie d'une chute causée par la dissipation des rayonnements provenant de l'intérieur du filtre. La prolongation du temps de filtration favorise l'accumulation des masses d'aérosols sur les filtres conduisant ainsi à une amplification très rapide des facteurs de correction (> 6).

La dernière partie de ce chapitre a été consacrée à l'évaluation, par la spectrométrie α , de la dégradation de la radioactivité dans les filtres (B132 et C569) et dans les masses d'aérosols accumulés. Plusieurs paramètres caractérisant les spectres (FWHM, PSP et « shift ») ont été ainsi évalués. La dégradation des spectres en énergie s'effectue au fur et à mesure de l'augmentation des masses accumulées.

Ces facteurs de correction déterminés expérimentalement seront comparés à ceux calculés par simulation numérique présentée dans le prochain chapitre.

Chapitre IV. Détermination numérique des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant

Ce chapitre propose une méthode numérique de détermination des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans les filtres de prélèvement en simulant la dégradation de la mesure de la radioactivité dans ces filtres. La dégradation est déterminée à l'aide de deux codes de simulation, un pour la partie filtration et l'autre pour la partie nucléaire. Ainsi, ce chapitre est divisé en trois parties.

La première partie décrit le code GeoDict (code de dynamique des fluides) utilisé dans cette étude pour la simulation numérique de la filtration et du profil de pénétration des aérosols dans un médium filtrant. La validation de ce code pour cette application, en comparaison avec des mesures expérimentales, est également présentée.

La deuxième partie de ce chapitre décrit le code MCNPX (code de simulation du transport des rayonnements) utilisé dans cette étude pour la simulation numérique de la dégradation de l'énergie des particules α dans un médium filtrant. La comparaison des résultats simulés avec les mesures expérimentales est également présentée en vue de la validation de ce code pour cette application.

La dernière partie expose la méthode de détermination numérique des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant en couplant les simulations GeoDict avec les simulations MCNPX. En effet, le profil de pénétration des aérosols dans le filtre obtenu avec GeoDict est intégré dans la modélisation géométrique du filtre avec le code MCNPX afin de simuler les spectres en énergie des particules α et ainsi déterminer numériquement les facteurs de correction de la radioactivité absorbée dans le médium. Ces facteurs déterminés numériquement sont comparés à ceux mesurés expérimentalement pour valider les simulations.

1. Simulation numérique de la filtration

De nombreuses études ont été réalisées pour décrire le processus de filtration dans les média fibreux, qui ont permis le développement d'une approche quantitative simple portant sur la théorie de capture des aérosols sur une fibre simple. Puis, l'influence des fibres adjacentes a été d'abord prise en compte par Kuwabara (1959) et Happel (1959). En imposant de différentes conditions limites, ils ont calculé de façon indépendante le champ d'écoulement dans une cellule (cf. Annexe A). Le modèle cellulaire est basé sur l'hypothèse que toutes les fibres dans le filtre de même diamètre subissent le même flux et sont toutes parfaitement perpendiculaires à la direction du flux principal. Les résultats pour une seule fibre sont toujours extrapolés pour décrire l'ensemble du filtre (Hinds 1999). Toutefois, le fait de simuler de façon réaliste la structure enchevêtrée des fibres d'un filtre dans une géométrie en trois dimensions est difficilement réalisable.

Dans notre étude, une prédiction précise des dépôts de particules en profondeur dans le filtre n'est possible qu'avec un modèle en trois dimensions. Cette prédiction exige que la trajectoire de la particule basée sur l'écoulement du fluide soit résolue pour chaque fibre dans le médium de filtration.

Les codes CFD (acronyme de Computational Fluid Dynamics) résolvent les équations régissant les mouvements d'un fluide en trois dimensions. Ces équations traduisent la conservation de la masse et de la quantité de mouvement du fluide (équations de Navier-Stokes). Certains codes sont aussi en mesure de décrire le transport de particules ou les réactions chimiques au sein du fluide. Il existe un grand nombre de codes CFD disponibles, qu'ils soient commerciaux, du domaine public ou encore propres à certaines institutions.

Dans ce travail, nous avons choisi d'utiliser le code GeoDict (acronyme de GEOMETRIC design and property preDICTION), commercialisé par le Fraunhofer ITWM Incorporated. Nous disposons de la version 2008 du code, sur une station de travail Intel Centrino Duo de 32 bits. Le principal domaine d'application de ce code est le calcul des propriétés d'écoulement des fluides dans des matériaux poreux. En effet, l'originalité de ce code est qu'il permet la création des géométries qui sont très représentatives de la complexité réelle des enchevêtrements des filtres non-tissés. Ces géométries sont utilisées comme des conditions limites pour simuler la dynamique des fluides dans des microstructures à l'aide des méthodes dites Boltzmann sur réseau (ou Lattice-Boltzmann). Le champ d'écoulement de l'air, la perte de charge dans le filtre ainsi que sa perméabilité sont obtenus. Ce code permet également

d'utiliser une formulation lagrangienne du transport des particules calculée dans un champ d'écoulement au sein d'une géométrie complexe. Le code GeoDict est donc appliqué pour simuler la filtration des aérosols dans un médium poreux. Ce code est décrit en détail par la suite, en le divisant en trois grands modules (figure IV.1), la création de la géométrie, le calcul CFD et le calcul du transport de particules.

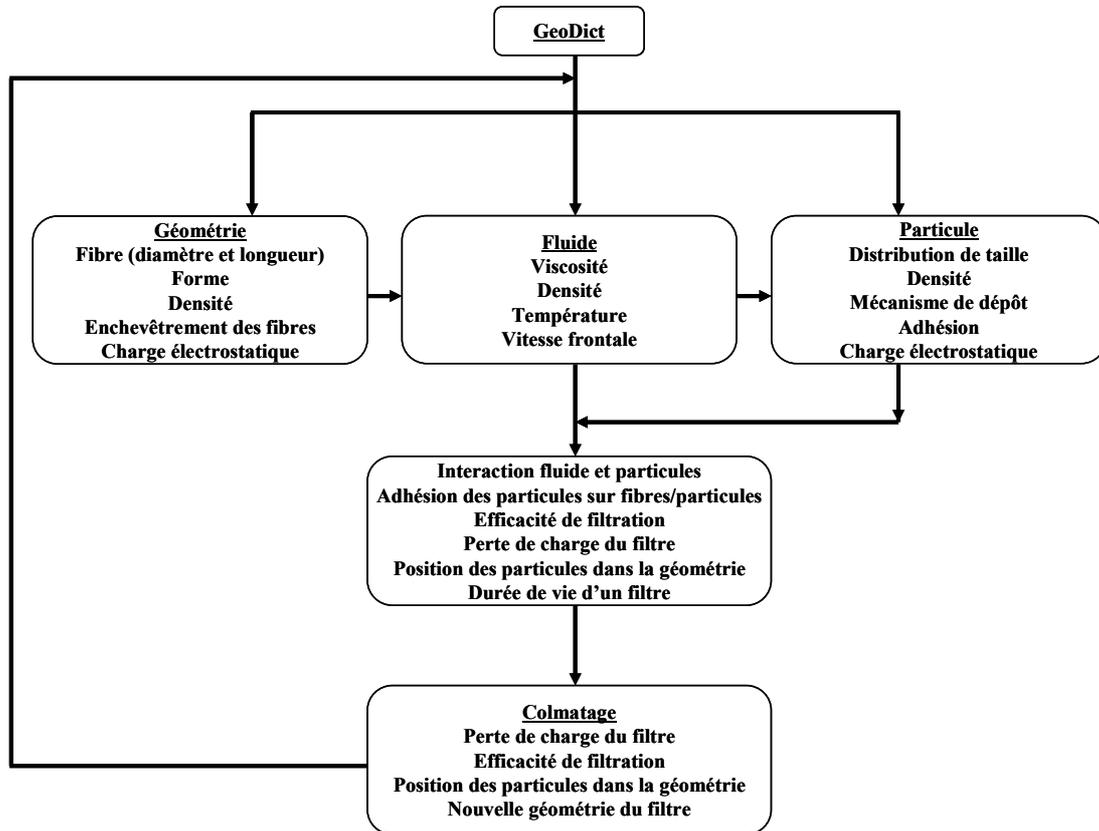


Figure IV.1 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu poreux à l'aide du code GeoDict.

1.1. Modélisation de la géométrie d'un filtre poreux plan avec GeoDict

Pour étudier en détail les processus de l'écoulement du fluide et de la filtration des aérosols dans les filtres, une représentation fidèle de la géométrie complexe de la microstructure non-tissée est indispensable. Les méthodes de création des géométries stochastiques (ou Stationary Random Closed Sets or Stationary RACS) permettent de construire des structures irrégulières tridimensionnelles de fibres non-tissées qui sont macroscopiquement représentatives de la réalité des enchevêtrements des fibres dans les filtres (Ohser 2000).

Une microstructure parallélépipédique, $N_x \times N_y \times N_z$, est générée à partir d'un maillage irrégulier constitué de cellules volumiques élémentaires parallélépipédiques appelées voxels (ou mailles). En général, cette approche nécessite un grand nombre de voxels. La résolution d'un maillage peut atteindre les 10 nm par voxel. Cependant une résolution de l'ordre du

nanomètre demande un calcul parallèle ainsi qu'un temps de calcul souvent très long (Rief *et al.* 2007). En raison de la limitation en temps de calcul sur la station de travail utilisée, une taille minimale de voxel de 1 μm est adoptée dans nos simulations.

A l'intérieur d'une microstructure non-tissée, une fibre est modélisée comme un objet cylindrique de longueur finie ou infinie. Le diamètre d'une fibre est généralement pris entre 1 et 8 voxels. Le code GeoDict permet de générer, dans une microstructure, des fibres de diamètre non-uniforme, c.à.d. variant suivant une distribution log-normale, afin d'être représentatif de la réalité. La forme (cylindre allongé, cylindre à bout arrondi,...), la masse volumique correspondant à leur composition chimique et l'orientation des fibres ainsi que la porosité du médium sont aussi recrées. La figure IV.2 montre en comparaison une microstructure vue à l'aide d'un MEB et celle modélisée. La porosité d'une microstructure composée de fibres est généralement simulée entre 80 et 98 % du volume total.

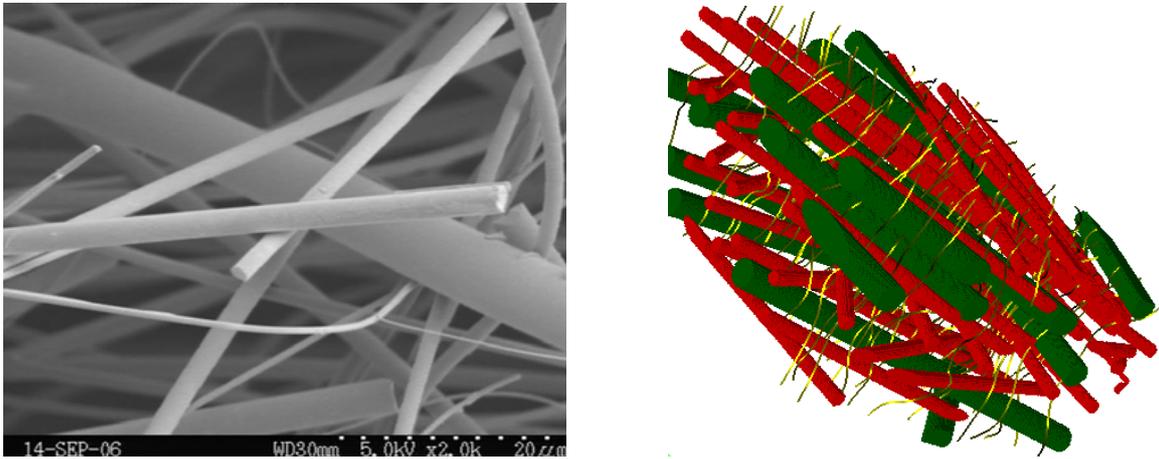


Figure IV.2 : Visualisation d'une géométrie 3D avec un MEB (gauche) et avec GeoDict (droite) d'une épaisseur d'un filtre à fibres non-tissées et anisotropes.

Nous détaillerons ici les modèles utilisés dans GeoDict pour créer l'orientation et le positionnement aléatoires des fibres dans une microstructure. Ces deux derniers sont décrits en détails par Pfrang *et al.* (2007).

- La probabilité d'orientation des fibres dans la géométrie dépend du paramètre d'anisotropie β . En coordonnées polaires, β caractérise la distribution directionnelle des fibres (Pfrang *et al.* 2007). Cette probabilité peut être traduite par la formule suivante :

$$p(\theta, \varphi) = \frac{1}{4\pi} \frac{\beta \sin \theta}{(1 + (\beta^2 - 1) \cos^2 \theta)^{3/2}} \quad \text{avec} \quad \theta \in [0, \pi), \varphi \in [0, 2\pi) \quad (\text{IV. 1})$$

La probabilité $p(\theta, \varphi)$ étant indépendante de φ , elle exhibe ainsi une symétrie de rotation, autour de l'axe z . Si $\beta = 1$, le système est isotrope. Pour $\beta > 1$, les fibres tendent à être de plus en plus parallèles au plan (xy) .

- Le modèle Booléen classique, dérivant des méthodes Stationary RACS, est utilisé pour décrire l'enchevêtrement des cylindres ou fibres (Heinrich 2000). Ce modèle permet de fusionner les fibres dans des points générés aléatoirement au sein de la géométrie définie. Ce modèle est également utilisé pour décrire le remplissage de la structure avec des fibres.

Enfin, si le générateur de nombres aléatoires (ou Random SEED number), qui est derrière la répétitivité de la configuration géométrique d'une microstructure générée, garde une même valeur initiale, les simulations produiront toujours exactement la même géométrie de la microstructure (Wiegmann *et al.* 2004).

Dans nos simulations, la microstructure est dimensionnée de façon à représenter une partie suivant un axe x et y, mais toute l'épaisseur du filtre suivant un axe z. Dans la suite de ce document, cet axe z est considéré comme parallèle à la direction du flux d'air. La géométrie de deux types de filtre utilisés expérimentalement, à savoir C357 et B132 (cf. annexe D), a été modélisée. Le premier permet une filtration dans les premières couches du filtre, alors que pour le second, les aérosols sont répartis uniformément en profondeur (cf. chapitre III, paragraphe 2). L'application des simulations pour notre cas étude est détaillée dans le paragraphe 1.5.

1.2. Simulation de la dynamique des fluides dans le code GeoDict

Il existe plusieurs méthodes pour modéliser les écoulements diphasiques constitués d'une phase continue (ou phase porteuse, ici l'air) et d'une phase dispersée (aérosols) :

- les méthodes « Euler-Lagrange », où chaque particule est suivie individuellement (équation de la trajectoire pour chaque particule),
- les méthodes « Euler-Euler », où la phase dispersée est traitée numériquement comme un second fluide. Nous écrivons ainsi des équations de bilan en formulation eulérienne pour chaque phase.

Pour modéliser le transport des particules dans une microstructure poreuse, la première méthode est rencontrée dans la littérature. Avant de revenir plus en détail sur la méthode « Euler-Lagrange » de simulation des écoulements diphasiques, les différentes approches utilisées pour décrire la phase porteuse de l'écoulement sont présentées ci-après.

Pour résoudre les équations de Navier-Stokes de la phase porteuse d'un écoulement diphasique, les méthodes rencontrées sont les mêmes que pour les écoulements monophasiques : méthodes RANS (Reynolds Averaged Navier Stokes), LES (Large Eddy Simulation : simulation des grandes échelles) et aussi DNS (Direct Numerical Simulation :

simulation numérique directe). Cette dernière famille concerne des écoulements à l'échelle d'une microstructure poreuse.

Les simulations CFD consistent à résoudre les équations moyennées de Navier-Stokes. Elles se limitent donc à décrire le comportement moyen de l'écoulement (vitesses moyennes, pressions moyennes, etc.). Plus précisément, pour obtenir le système d'équations à résoudre, il faut partir des équations de Navier-Stokes écrites avec les grandeurs instantanées (l'écoulement est supposé incompressible, hypothèse retenue dans la suite) :

Équation de continuité :

$$\frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_i} = 0 \quad (\text{IV. 2})$$

Équation de conservation de la quantité de mouvement :

$$\rho \left(\frac{\partial u_{f,i}}{\partial t} + u_{f,j} \frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_j} \right) = \rho F_i - \frac{\partial p}{\partial x_i} + \mu_f \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial u_{f,i}}{\partial x_j} + \frac{\partial u_{f,j}}{\partial x_i} \right) \quad (\text{IV. 3})$$

où $u_{f,i}$ est la vitesse instantanée du fluide en x_i à l'instant t ,

ρ est la masse volumique du fluide,

F_i est la somme des forces extérieures,

p est la pression du fluide et

μ_f est la viscosité dynamique du fluide.

Une simulation de type RANS ou LES donne donc uniquement accès aux grandeurs moyennes de l'écoulement (vitesses moyennes, pressions moyennes, etc.). À la différence des méthodes traditionnelles CFD qui résolvent les équations de conservation des propriétés macroscopiques (c'est-à-dire, la masse, le mouvement et l'énergie), le code GeoDict utilise la simulation de type DNS avec le modèle dit LBM (acronyme de Lattice-Boltzmann Model). Ce dernier modèle décrit un fluide composé de particules fictives et réalise les propagations et les processus de collisions consécutives sur un maillage discret de voxels (appelé aussi « lattices ») (Succi 2001). Dans notre cas de simulation à l'échelle d'une microstructure poreuse, le modèle LBM peut être utilisé selon deux approches qui dépendent de la vitesse de l'écoulement du flux d'air dans la microstructure.

Le modèle LBM a plusieurs avantages par rapport aux méthodes conventionnelles CFD, en particulier dans le traitement complexe des conditions limites, l'intégration de micro-interactions particules-fibres et la « parallélisation » de l'algorithme sur plusieurs machines (Succi 2001).

Le principe du LBM repose sur la résolution de l'équation de Navier-Stokes à l'échelle microscopique par la méthode DNS. Le domaine de calcul à l'aide d'un maillage (ou réseau) est discrétisé avec l'introduction d'un modèle d'échelle de nœuds équidistants. À chaque temps t , nous estimons que la densité des particules $f(t, x; v)$, situées en nœud x du maillage, se déplace à la vitesse v , où v ne peut prendre certaines valeurs constantes que si la densité des particules se déplace d'un point de maillage à un autre pendant un pas de temps donné (Kehrwald 2004).

L'équation LBM prend la forme (McNamarea 1988, Ginzburg 2003) :

$$f(t + \delta t, x + v\delta t; v) = f(t, x; v) + Q(f)(t, x; v) \quad (\text{IV. 4})$$

où Q représente ce que nous appelons l'opérateur de collision.

Il existe plusieurs possibilités pour choisir l'opérateur de collision, chacun d'entre eux définissant un modèle de « Lattice Boltzmann » spécifique. Dans tous les cas, les quantités macroscopiques p et u de la relation IV.3 sont obtenues via une moyenne :

$$p(t, x) = c_s^2 \sum_v f(t, x; v) \quad (\text{IV. 5})$$

$$\text{et} \quad u(t, x) = \frac{\sum_v v f(t, x; v)}{\sum_v f(t, x; v)} \quad (\text{IV. 6})$$

où c_s^2 est une constante dépendante du réseau.

Le vecteur (p, u) est une approximation, au premier ordre dans le temps, de l'équation macroscopique de Navier-Stokes. Cela peut être montré par trois approches différentes, à savoir par l'analyse de Chapman-Enskog (Frisch 1987), par l'analyse du moment équivalent (Junk 2001) ou par l'analyse asymptotique directe (Junk 2003).

Pour des vitesses de filtration $>$ à $0,2 \text{ m.s}^{-1}$, l'équation de Navier-Stokes-Brinkmann est employée pour décrire le fluide visqueux incompressible dans un milieu poreux (Laptev 2004). Dans ce cas, l'effet de l'inertie sur la trajectoire de la particule n'est pas négligeable. La conservation de la quantité de mouvement (IV. 3) s'écrit :

$$-\mu \Delta \vec{u} + (\rho \vec{u} \cdot \nabla) \vec{u} + \nabla p + \mu K^{-1} \vec{u} = \vec{F} \quad (\text{IV. 7})$$

$$\nabla \cdot \vec{u} = 0$$

avec les conditions limites de la géométrie créée.

où K^{-1} est l'inverse de la perméabilité du milieu poreux. Dans un milieu poreux, quand K^{-1} est élevée, \vec{u} est faible. Nous pouvons donc négliger les deux premiers termes de l'équation (IV.7) et ramener ainsi la conservation de l'énergie à la loi de Darcy :

$$\vec{u} = -\frac{1}{\mu K^{-1}}(\nabla p - \vec{F}) \quad (\text{IV. 8})$$

La solution de K^{-1} est également fondée sur la résolution des équations de Navier-Stokes par la méthode LBM décrite précédemment. Le principe de cette méthode consiste à lâcher, une par une, des particules dans le domaine d'une microstructure poreuse. Les particules suivent les lignes de courant jusqu'à leur immobilisation lorsqu'elles entrent en contact avec une fibre ou une autre particule déjà déposée (figure IV.3). L'écoulement, dans le domaine fluide faiblement concentré en particules et au sein de la couche de particules déposées, est recalculé par l'équation de Navier-Stokes-Brinkman après chaque dépôt de particules (Iliev 2004).

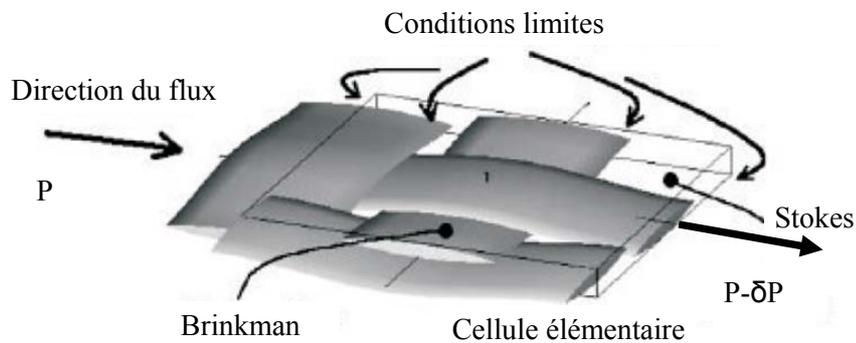


Figure IV.3 : Une cellule montrant le comportement des modèles physiques face au milieu poreux.

Pour des configurations périodiques, K est déterminé par des simulations.

Cette approche semble être un bon compromis entre les approches plus simplistes du point de vue dynamique et les approches plus rigoureuses de type Navier-Stokes puisqu'elle permet de prendre en compte l'influence de l'écoulement sur les particules.

1.3. *Transport des particules dans le code GeoDict*

Comme nous l'avons déjà mentionné, il existe plusieurs méthodes pour modéliser les écoulements diphasiques constitués d'une phase porteuse (air) et d'une phase dispersée (aérosols). Les méthodes « Euler-Lagrange », où chaque particule est suivie individuellement (équation de la trajectoire pour chaque particule) est traitée numériquement comme un second fluide par le code GeoDict.

1.3.a. *Principe des méthodes lagrangiennes du suivi des particules*

Dans tout ce qui suit, l'indice f désignera la phase continue (le fluide, ici l'air). Les particules sont considérées comme sphériques et il n'y a pas d'interactions inter-particules.

1.3.b. *Généralités*

L'idée des méthodes lagrangiennes est de suivre individuellement chaque particule au sein de l'écoulement. La trajectoire de chaque particule est directement calculée, en appliquant à chacune d'elles la 2^{ème} loi de Newton (ou le principe fondamental de la dynamique) :

$$F = m_p \frac{du_p(x,t)}{dt} \quad (\text{IV. 9})$$

où $u_p(x,t) = \frac{dx}{dt}$,

m_p est la masse de la particule,

et F est la résultante des forces qui s'appliquent à la particule de masse m_p , de vitesse u_p , localisée par un vecteur position x dans un repère cartésien, à l'instant t .

La force F peut être décomposée comme la somme du poids de la particule et de la résultante des forces exercées par le fluide sur la particule :

$$F = m_p g + F_{f \rightarrow p} \quad (\text{IV. 10})$$

où g est le vecteur accélération de la pesanteur.

En écoulement diphasique, les particules peuvent être soumises, en plus des phénomènes macroscopiques toujours présents (poids), à diverses forces dues à leur faible taille. Ces dernières sont incluses dans $F_{f \rightarrow p}$ que nous retrouvons systématiquement à plus petite échelle.

Dans notre cas, les particules sont diluées dans un important débit d'air sec, les concentrations en particules sont par conséquent faibles. Les collisions inter-particulaires et la rétroaction des particules sur la turbulence du fluide peuvent donc être négligées. Par ailleurs, il est

envisageable de calculer un nombre de paquets (ou « Batch » en anglais) de particules suffisant pour obtenir des grandeurs statistiques fiables.

1.3.c. Forces s'exerçant sur une particule isolée

L'inventaire des forces s'exerçant sur une particule solide dans un écoulement gazeux peut varier sensiblement selon les études considérées. L'importance des divers phénomènes prépondérants dans les conditions de cette étude est évaluée.

La 2^{ème} loi de Newton appliquée à la particule peut être réécrite :

$$m_p \frac{du_p(x,t)}{dt} = P + F_A + F_D + F_{MA} + F_H + F_{Tchen} + F_{Bi} + F_L + F_{el} + F_{th} \quad (IV. 11)$$

1) Poids et force d'Archimède

La première force s'exerçant sur une particule est évidemment son poids :

$$P = m_p g \quad (IV. 12)$$

Plus généralement, les effets de la gravité sur la particule incluent, outre le poids, la force d'Archimède. Cette dernière est une force opposée au poids du volume du fluide déplacé par l'inclusion :

$$F_A = -v_p \rho_f g \quad (IV. 13)$$

où v_p est le volume de la particule et ρ_f est la masse volumique du fluide.

Certains auteurs incluent le poids et la force d'Archimède dans une même force appelée force de flottabilité, qui a pour expression :

$$F_F = P + F_A = v_p (\rho_p - \rho_f) g \quad (IV. 14)$$

Cette force décrit alors la résultante de la distribution de la pression hydrostatique autour de l'inclusion supposée immobile dans un fluide au repos.

2) Force de traînée

Une des forces majeures s'exerçant sur une particule au sein d'un fluide est la force de traînée F_D (Drag Force). C'est une force qui s'oppose au mouvement relatif entre la particule et le fluide qui l'entoure (force de frottement fluide). L'expression la plus générale de la force de traînée est la suivante :

$$F_D = -C_D \frac{A_p}{2} \rho_f \|u_p - u_f\| (u_p - u_f) \quad (IV. 15)$$

où C_D désigne le coefficient de traînée (Drag Coefficient), nombre sans dimension,

u_f et u_p désignent respectivement la vitesse instantanée qu'aurait le fluide au centre de masse de la particule en l'absence de particule et la vitesse de la particule, A_p désigne la surface projetée de l'inclusion.

En pratique, nous considérerons uniquement des particules sphériques.

$$\text{donc } A_p = \frac{\pi d_p^2}{4} \quad (\text{IV. 16})$$

et l'expression générale de la force de traînée devient alors :

$$F_D = -C_D \frac{\pi d_p^2}{8} \rho_f \|u_p - u_f\| (u_p - u_f) \quad (\text{IV. 17})$$

Pour une particule solide sphérique, l'expression de C_D varie selon le régime d'écoulement étudié, comme le montre la figure IV.4 (Hinds 1999).

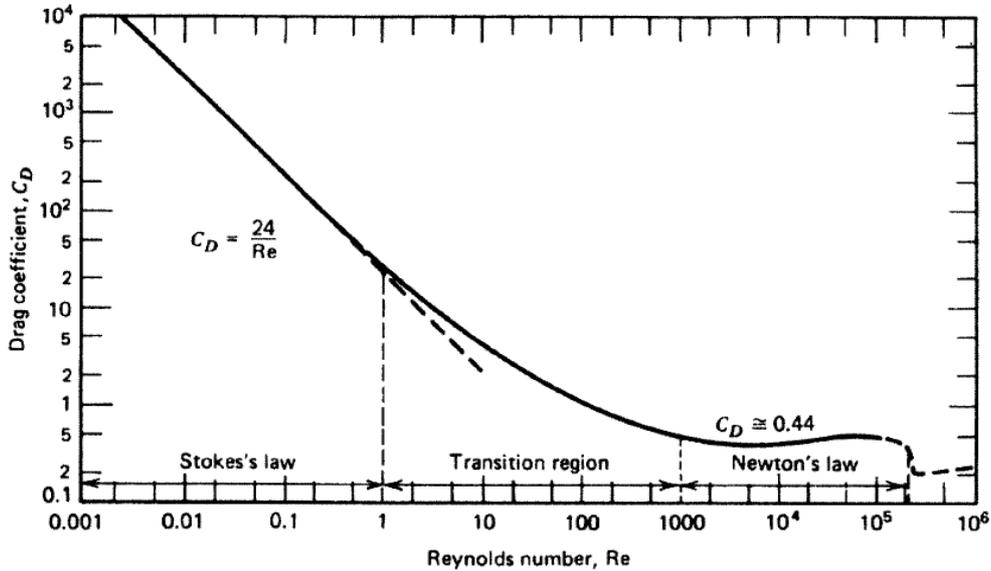


Figure IV.4 : Coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds particulaire (Hinds 1999).

Le nombre de Reynolds en abscisse sur le graphe est le nombre de Reynolds particulaire, noté Re_p , tel que :

$$Re_p = \frac{d_p \rho_f \|u_p - u_f\|}{\mu_f} \quad (\text{IV. 18})$$

où μ_f est la viscosité dynamique du fluide

Les trois zones se distinguent bien sur la figure IV.4 :

- en régime de Stokes, $C_D = 24/Re_p$, la force de traînée devient alors :

$$F_D = -3\pi d_p \mu_f (u_p - u_f) \quad \text{appelée loi de Stokes} \quad (\text{IV. 19})$$

- en régime intermédiaire, de nombreuses lois sont rencontrées. Les valeurs frontières de ce régime sont assez floues. La plupart de ces corrélations se présentent sous la même forme :

$$C_D = \frac{24}{Re_p} (1 + \alpha Re_p^\beta) \quad (IV. 20)$$

Chaque auteur a donc effectué une identification empirique pour déterminer α et β .

Voici la corrélation d'Ishii et Zuber (1979) utilisée pour des particules sphériques solides :

$$C_D = \frac{24}{Re_p} (1 + 0,1 Re_p^{0,75}) \quad (IV. 21)$$

valable pour $1 < Re_p < 800$

- en régime de Newton, le coefficient de traînée prend une valeur quasi-constante valable en général pour la zone $Re_p > 800$.

Au-delà de cette dernière valeur de Re_p , C_D chute à de très faibles valeurs (phénomène appelé décrochement) de l'ordre de 0,07 (Hinds, 1999).

Il est important de noter que, pour les particules submicroniques, la correction de Cunningham intervient dans la loi de traînée (en l'occurrence la loi de Stokes), qui s'écrit alors :

$$F_D = \frac{-3\pi d_p \mu_f (u_p - u_f)}{Cu} \quad (IV. 22)$$

Il est important de déterminer le régime d'écoulement des particules dans le gaz, qui indiquera la loi de force de traînée à adopter. Dans le contexte de la thèse, au vu de la granulométrie considérée (d_{ae} inférieur ou égal à quelques microns), les vitesses relatives entre fluide et particules sont a priori peu élevées, et de la masse volumique des particules élevée par rapport à celle de l'air ($\rho_p/\rho_f \approx 4000$), nous pouvons adopter le régime de Stokes et utiliser ainsi la loi de Stokes pour calculer la force de traînée (Latz *et al.* 2003).

3) Force de masse ajoutée

Une autre force exercée sur une particule isolée dans un écoulement fluide est la force de masse ajoutée F_{MA} . Cette force représente l'inertie du fluide « attaché » à la particule. Elle a pour expression :

$$F_{MA} = C_{MA} \rho_f V_p \left[\left. \frac{du_f}{dt} \right|_p - \frac{du_p}{dt} \right] \quad (IV. 23)$$

où $\left. \frac{du_f}{dt} \right|_p$ est l'accélération du fluide en l'absence de particule, évaluée au centre de masse de la particule et C_{MA} désigne le coefficient de masse ajoutée.

Pour les particules sphériques, $C_{MA} = 0,5$.

F_{MA} a peu d'influence sur des particules solides dans un gaz et est la plupart du temps négligée.

4) Force brownienne

La force brownienne traduit l'effet des chocs entre la particule et les molécules du fluide environnant qu'elle rencontre, elles-mêmes en mouvement d'agitation aléatoire. Cette force a une influence croissante lorsque le diamètre des particules diminue. Latz *et al.* (2003) l'ont modélisée en utilisant le théorème de fluctuation-dissipation:

$$F_b = \sigma \frac{d\bar{W}(t)}{dt} \quad (\text{IV. 24})$$

où, $d\bar{W}(t)$ est le processus de Wiener « *Wiener process* » à trois-dimensions qui modélise le mouvement brownien et

σ est la distribution gaussienne de nombres aléatoires dont la variance vaut 1 et la moyenne est nulle, σ est donnée par la relation (Rief *et al.* 2006):

$$\sigma^2 = \frac{2k_B T \gamma}{m_p} \quad (\text{IV. 25})$$

où k_B est la constante de Boltzmann,

T est la température absolue du fluide et

γ est le coefficient de frottement dû à la viscosité cinématique, $\gamma = 6\pi\rho_f\nu\frac{R_p}{m_p}$

où ν est la viscosité cinématique du fluide,

m_p est la masse de la particule,

ρ_f est la densité du fluide et

R_p est le rayon équivalent de la particule.

5) Effets électrostatiques

La présence de différentes sources de rayonnement dans un filtre peut charger électriquement un certain nombre de particules présentes. Ainsi, une particule portant une charge q subit, dans un champ électrique E , une force électrostatique qui s'écrit :

$$F_{el} = q E \quad (\text{IV. 26})$$

Lorsqu'elle est soumise à ce champ électrique, la particule acquiert une vitesse V_{te} telle que $V_{te} = Z.E$, avec Z étant la mobilité électrique de la particule ($m^2s^{-1}V^{-1}$) définie par :

$$Z = \frac{q}{3\pi d_p \mu_f} Cu \quad (IV. 27)$$

La vitesse acquise par la particule est telle que la force de traînée équilibre la force électrique (Rief *et al.* 2006). Une autre expression de la force électrostatique s'appliquant à une particule chargée près d'une paroi chargée s'écrit :

$$F_{el} = qE - \frac{q^2}{16\pi\epsilon_0 y^2} + \frac{qEd_p^3}{16y^3} - \frac{3\pi\epsilon_0 d_p^6 E}{128y^4} \quad (IV. 28)$$

Les termes du membre de droite représentent respectivement la force de Coulomb, la force image, la force diélectrique et la force dipôle-dipôle. Les deux dernières forces sont négligeables par rapport aux autres. Lorsqu'un champ électrique règne, la force de Coulomb domine. Cette force n'est sensible qu'en très proche distance (décroissance en $1/y^2$) (Rief *et al.* 2006).

1.4. Validation des simulations de la filtration avec GeoDict

Plusieurs études antérieures ont permis la validation du code GeoDict en le comparant avec des bases de données expérimentales pour différents types de filtres avec diverses conditions de filtration (Latz *et al.* 2003, Wiegmann *et al.* 2004, Iliev 2004, Rief *et al.* 2006). Aucune de ces filtres et conditions ne peut être extrapolée à notre étude.

La validation du code, pour notre cas d'étude, est donc évaluée par les comparaisons avec les études expérimentales des paramètres macroscopiques tels que l'évolution de la perte de charge et de l'efficacité de filtration en fonction de la granulométrie des aérosols et de la vitesse de filtration. Cette partie décrit aussi la procédure de modélisation de la géométrie des filtres à fibres et de simulation de la filtration que nous avons entamé avec le code GeoDict afin d'évaluer les profils de pénétration des aérosols dans ces filtres.

Premièrement, les simulations sont réalisées sur des géométries de $128 \times 128 \times 178$ voxels, notant qu'un voxel est choisi égal à $2,8 \mu m$. Le modèle RACS, décrit dans le paragraphe 1.1, permet de construire des structures irrégulières tridimensionnelles de fibres non-tissées qui sont macroscopiquement représentatives de la réalité des enchevêtrements des fibres dans les filtres.

Le filtre C357 est composé de fibres de verre de densité de $2,6 \text{ g.cm}^{-3}$. Les fibres sont modélisées, comme dans la réalité, en forme cylindrique de longueur minimale de $50 \mu m$ et

de diamètre centré à 5 μm suivant une distribution log-normale ($\sigma_g = 1,4$). En effet, une étude expérimentale réalisée par Pénicot (1998), à l'aide d'un MET, a montré que les fibres des filtres ont des tailles variables causées lors de la fabrication des filtres. La classification des tailles est assimilée à une distribution log-normale.

Les fibres isotropiquement orientées dans le filtre, comme le montre la figure IV.2, représentent une compacité (α_f) de 10 % du volume total du filtre simulé. Cette valeur est déduite de l'étude expérimentale de la compacité α_f du filtre décrit dans le chapitre I, la porosité ε étant $1-\alpha_f$.

La structure du filtre simulé est complétée avec de la résine (colle) de densité de $1,7 \text{ g.cm}^{-3}$ et de compacité de 20 %. Cette résine est ajoutée sur les derniers 120 μm du filtre de 500 μm d'épaisseur totale (figure IV.5).

Deuxièmement, la modélisation des écoulements diphasiques est constituée de deux parties : une phase continue (ou phase porteuse, ici l'air) et une phase dispersée (aérosols). Pour décrire le comportement du fluide en phase continue, à des faibles vitesses du flux, l'équation de Navier-Stokes est utilisée. Dans le cas des vitesses élevées ($> 0,2 \text{ m.s}^{-1}$), l'équation de Navier-Stokes-Brinkmann est donc utilisée. Le fluide simulé est de l'air avec une viscosité cinématique égale à $9,4.10^{-7} \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$ et une densité de $1,23 \text{ kg.m}^{-3}$. La figure IV.5 montre également un exemple des vitesses de passage des lignes de champ d'air à travers les enchevêtrements des fibres du filtre.

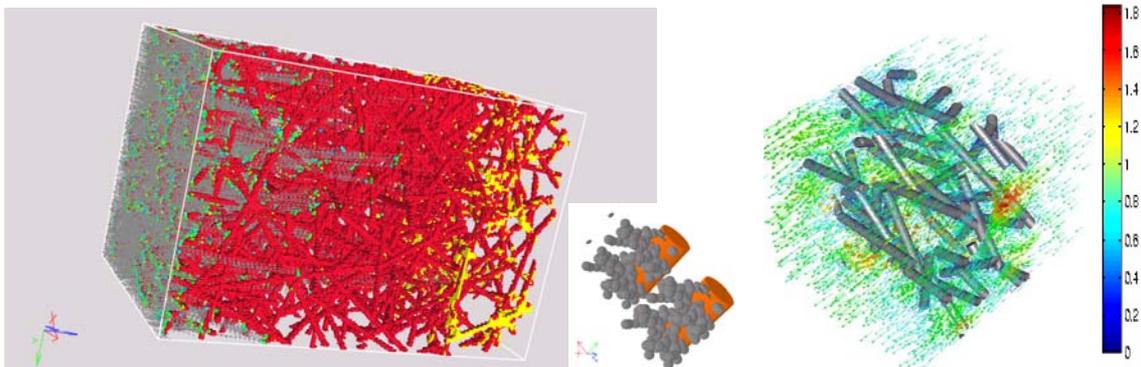


Figure IV.5 : A gauche, une modélisation avec GeoDict des fibres (en rouge) non-tissées avec de la résine (en jaune). Les particules (en vert) suivent les lignes de champ (en gris) avant d'être arrêtées.

Au milieu, un zoom sur deux fibres montre plus précisément le dépôt de particules. A droite, un zoom sur une partie du filtre montre des lignes de champs de vitesses.

La méthode lagrangienne décrite précédemment permet le suivi des particules dans la simulation de la filtration. Ces particules sont envoyées par plusieurs paquets sur le filtre, chaque paquet comportant des particules dont la taille suit une distribution log-normale. Comme pour la filtration des aérosols en expérience (cf. chapitre II paragraphe 2.2), ces

aérosols sont représentées dans GeoDict sous forme sphérique avec une distribution granulométrique centrée à 4 μm avec un σ_g de 1,4 (ou à 0,4 μm avec un σ_g de 1,4).

Troisièmement, la collision des particules avec les voxels solides (voxels contenant des fibres ou des particules déjà déposées) est prise en compte dans la simulation. Les particules déposées s'ajoutant sur ces voxels solides, une nouvelle géométrie est donc recréée par GeoDict. Les particules déposées sont donc prises en compte lors du calcul du fluide entrant dans ces voxels et affectent ainsi l'écoulement du fluide. Les équations de Stokes et les flux de fluide sont recalculés et une estimation de la perte de charge et de l'efficacité du filtre est également déterminée (Kehrwald 2004).

Plus de 100 000 particules sont suivies dans chaque calcul. Ce nombre est suffisant pour avoir une bonne statistique du nombre de particules en profondeur du filtre simulé (Rief *et al.* 2007). Le temps de calcul, variant de plusieurs heures à quelques jours, dépend de la méthode de résolution de l'écoulement du fluide et du nombre de particules suivies. Le code GeoDict fournit à la fin des simulations des résultats exploitables sous le logiciel microsoft Excel. De ces résultats, nous nous intéressons aux nombres de particules traversant le filtre ainsi qu'à ceux des particules déposées dans le filtre et à leurs positions en profondeur.

Plusieurs simulations ont permis de tracer l'efficacité de filtration et la perte de charge en fonction des vitesses de filtration, pour deux tailles d'aérosols centrés soit à 0,4 μm ou à 4 μm (avec le même σ_g de 1,4). Chaque point, sur les figures IV.6- a ou b, représente une simulation indépendante. Ces résultats de simulations de l'efficacité de filtration (figure IV.6) et de la perte de charge (figure IV.7) pour le filtre C357 modélisés, sont également comparés aux résultats expérimentaux que nous avons décrits dans le chapitre III et dans l'étude bibliographique de Grivaud *et al.* (2004).

Pour les simulations réalisées avec des DAMA centrés sur 0,4 μm , nous retrouvons la courbe en « U » classique avec un minimum d'efficacité de filtration situé à la même vitesse que dans l'expérience. Avec des DAMA centrés sur 4 μm , l'efficacité de filtration reste à 100 % pour toutes les vitesses de filtration. En effet, ces particules sont majoritairement collectées par interception ou/et par impaction inertielle.

L'efficacité de filtration est reproduite, pour les deux granulométries, avec un écart maximal inférieur à 9 % entre l'expérience et la simulation. La perte de charge est également reproduite, pour les deux granulométries et un écart maximal inférieur à 10 % est relevé entre l'expérience et la simulation.

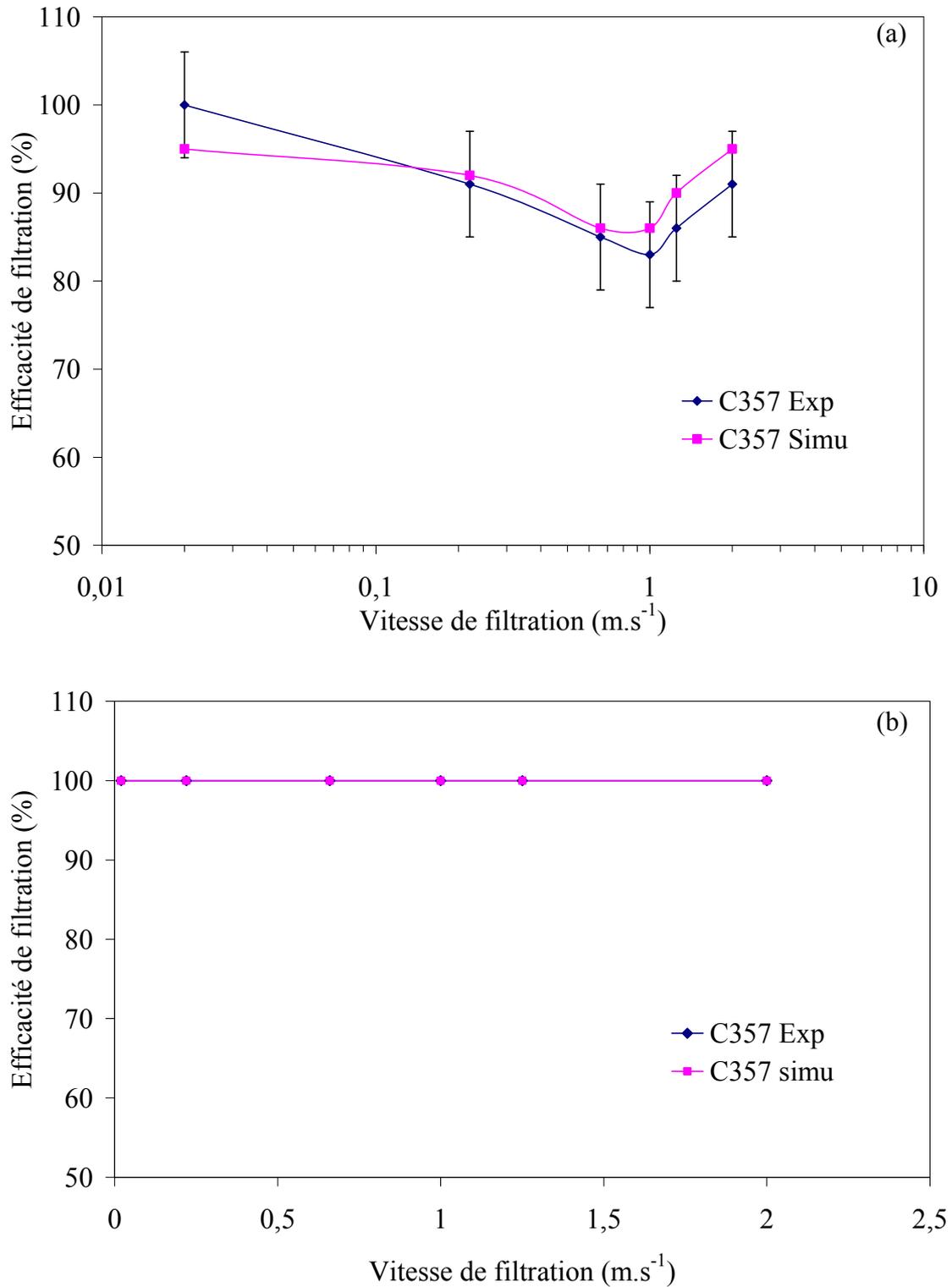


Figure IV.6 : Efficacité de filtration mesurée et simulée du filtre C357 en fonction de la vitesse de filtration pour des aérosols de granulométrie centrée sur 0,4 µm (a) et 4 µm (b) avec σ_g égal à 1,4.

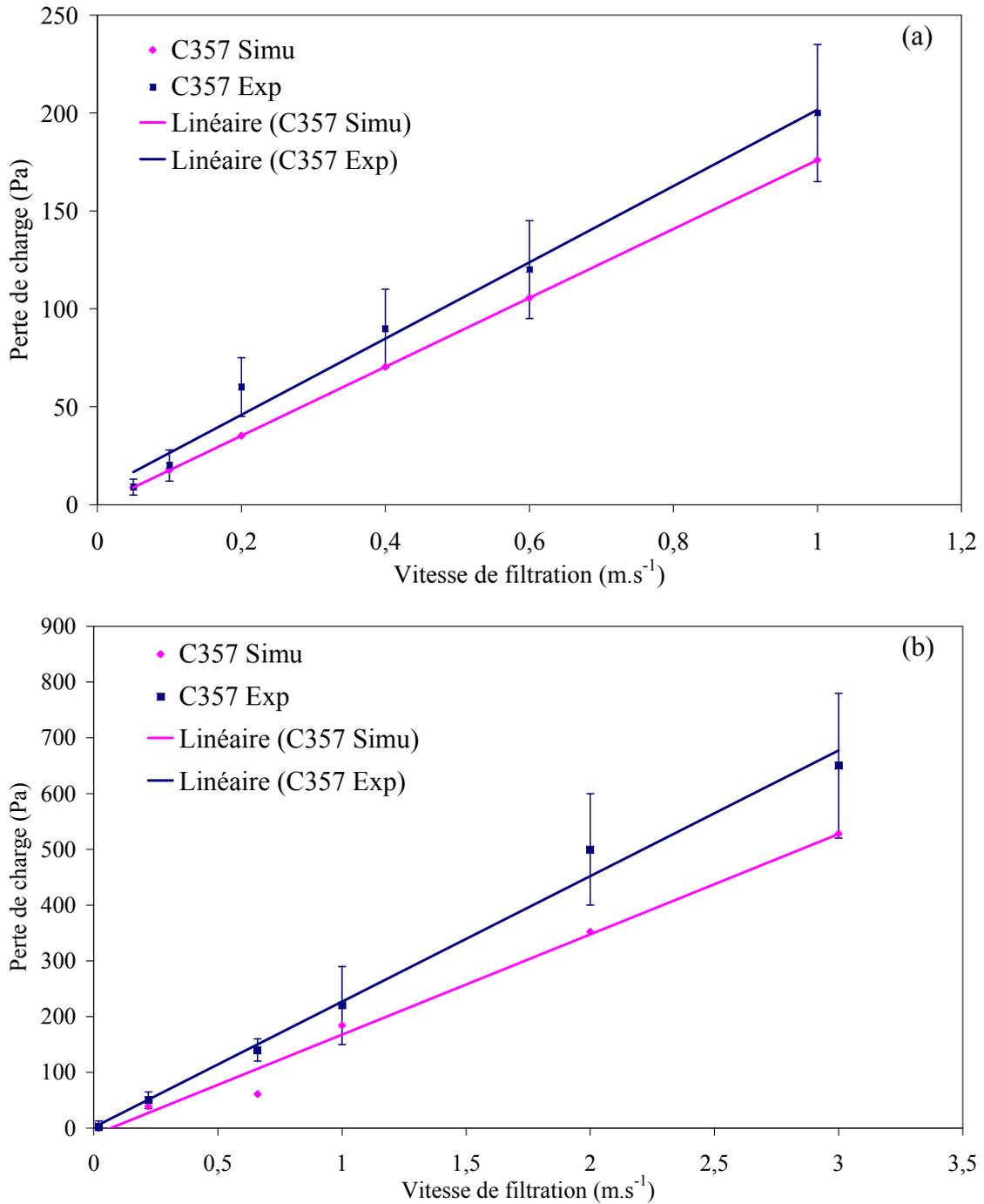


Figure IV.7 : Perte de charge mesurée et simulée dans le filtre C357 en fonction de la vitesse de filtration pour des aérosols de granulométrie centrée sur 0,4 µm (a) et 4 µm (b) avec σ_g égal à 1,4.

Nous allons donc maintenant étudier l'efficacité de filtration en fonction de la granulométrie pour une seule vitesse de filtration de 1 m.s^{-1} . Cette vitesse correspond en effet à celle qui donne l'efficacité de collecte expérimentalement minimale pour des particules de diamètre aérodynamique médian inférieur à $1 \mu\text{m}$. Les simulations sont effectuées sur un filtre simulé de type C357 avec des particules de tailles équiprobables allant de $0,1$ à $8 \mu\text{m}$ avec un pas de $0,05 \mu\text{m}$. Les résultats de simulation sont illustrés à la figure IV.8 en comparaison avec les valeurs expérimentales du filtre C357 déjà obtenues en chapitre III et dans l'étude bibliographique (Grivaud *et al.* 2004). Cette courbe est très connue dans le domaine de la physique des aérosols et permet de retrouver le minimum d'efficacité (courbe « en U » sur les diamètres physiques allant de $0,1$ à $10 \mu\text{m}$). Cette zone étant dominée par le phénomène de l'interception, la vitesse de filtration ne semble pas affecter la capture des aérosols. Dans cette région, la capture par diffusion brownienne et par impaction inertielle est minimale. La limitation de temps de calcul et de la station de travail dont nous disposons, nous impose un minimum de taille de voxel de $1 \mu\text{m}$ et donc un minimum de taille de particules de $0,1 \mu\text{m}$. La courbe simulée montre un bon accord avec la courbe expérimentale. En effet, moins de 8 % d'écart est relevé entre l'efficacité de filtration simulée et expérimentale. Cet écart est encore inférieur à l'incertitude de la mesure expérimentale. Le modèle physique dans nos simulations de la filtration est ainsi validé, nous pourrions donc avoir confiance dans nos résultats.

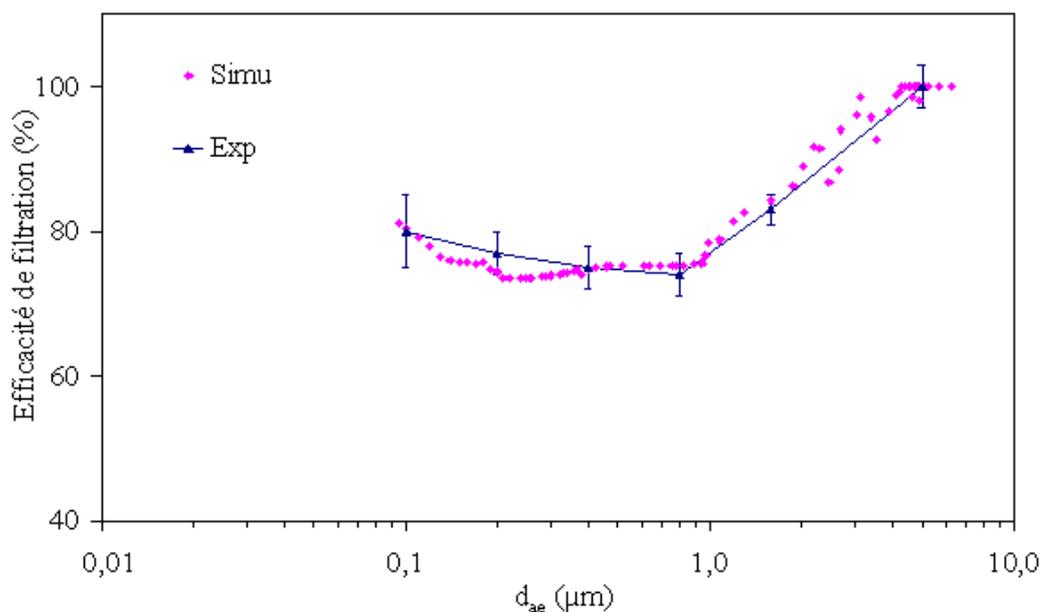


Figure IV.8 : Efficacité de filtration mesurée et simulée du filtre C357, pour une vitesse de 1 m.s^{-1} , en fonction de la granulométrie des aérosols prélevés.

1.5. *Étude numérique de la pénétration des aérosols dans les filtres à l'aide de GeoDict*

Le code GeoDict permet le suivi d'un paquet de particules dans un flux de champ de vitesses. Il permet d'accéder à la position (x,y,z) des particules dans la structure tridimensionnelle de fibres non-tissées. Dans cette étude, les filtres simulés sont les types C357 et B132 déjà étudiés dans les chapitres précédents et dont les caractéristiques sont détaillées en annexe D.

Le choix de ces filtres est basé sur les résultats expérimentaux. Le filtre C357 a montré une bonne capacité à prélever les aérosols dans ses premières centaines de micromètres d'épaisseur, tandis que le filtre B132 a une basse efficacité et les aérosols peuvent s'enfoncer dans toute son épaisseur.

La géométrie du filtre C357 à fibres de verre simulé est décrite dans le paragraphe précédent (1.4). Le filtre B132 à fibres de cellulose est simulé avec une géométrie de $128 \times 128 \times 128$ voxels. Les fibres de cellulose de densité $1,5 \text{ g.cm}^{-3}$ sont modélisées en forme cylindrique, de diamètre centré à $5 \text{ }\mu\text{m}$ suivant une distribution log-normale avec un σ_g égal à 1,4. Les caractéristiques géométriques de ces deux filtres simulés sont résumées dans le tableau IV.I.

Tableau IV.1 : Description des paramètres d'entrées de la modélisation géométrique des filtres non-tissés C357 et B132.

Type de filtre	Nature chimique	Forme des fibres	diamètre médian des fibres (μm)	longueur des fibres (μm)	Porosité du filtre (%)
C357	100 % de fibres de verre	cylindrique	4	50	90
B132	100 % de fibres de cellulose	cylindrique	5	20	80

La simulation du transport des particules à travers le médium filtrant dépend de l'écoulement du fluide et des mécanismes de dépôts sur les fibres. Pour chaque granulométrie, le pourcentage de particules déposées sur les fibres et en une profondeur donnée du filtre est évalué. Par conséquent, les résultats des simulations permettent d'explorer la pénétration des aérosols dans l'épaisseur du filtre comme l'aurait fait la particule réelle (figure IV.9 - IV.10). En effet, des découpages virtuels du filtre en plusieurs couches avec l'épaisseur souhaitée permettent de tracer le profil de pénétration des particules dans le filtre simulé. Ces résultats sont comparés avec les profils de pénétration obtenus expérimentalement par pelage sur des filtres de référence préparés (cf. chapitre III) à plusieurs vitesses de filtration et diverses distributions granulométriques.

Le parcours des particules dans les filtres est fortement dépendant des principaux mécanismes de dépôt comme la diffusion brownienne, l'interception et l'impaction inertielle.

L'importance de ces mécanismes est fonction de plusieurs paramètres relatifs au filtre, à la particule (principalement sa taille et sa masse volumique) et à la vitesse de filtration.

Pour des aérosols d'un DAMA de $4\ \mu\text{m}$, le phénomène d'impaction inertielle favorise le dépôt profond dans les filtres. Dans les deux cas de filtres (C357 et B132), les particules simulées se déposent de la même façon et dans les mêmes proportions que dans les couches des filtres expérimentales. L'effet de la compacité, qui est élevé pour le filtre C357 augmente la proportion des particules en surface visible à la figure IV.9 et est responsable de la différence de proportion avec le profil de pénétration des particules dans le filtre B132 sur la figure IV.10.

Pour des aérosols d'un DAMA de $0,4\ \mu\text{m}$, les phénomènes de diffusion brownienne et d'interception favorisent le dépôt plus en surface des filtres que dans le cas précédent.

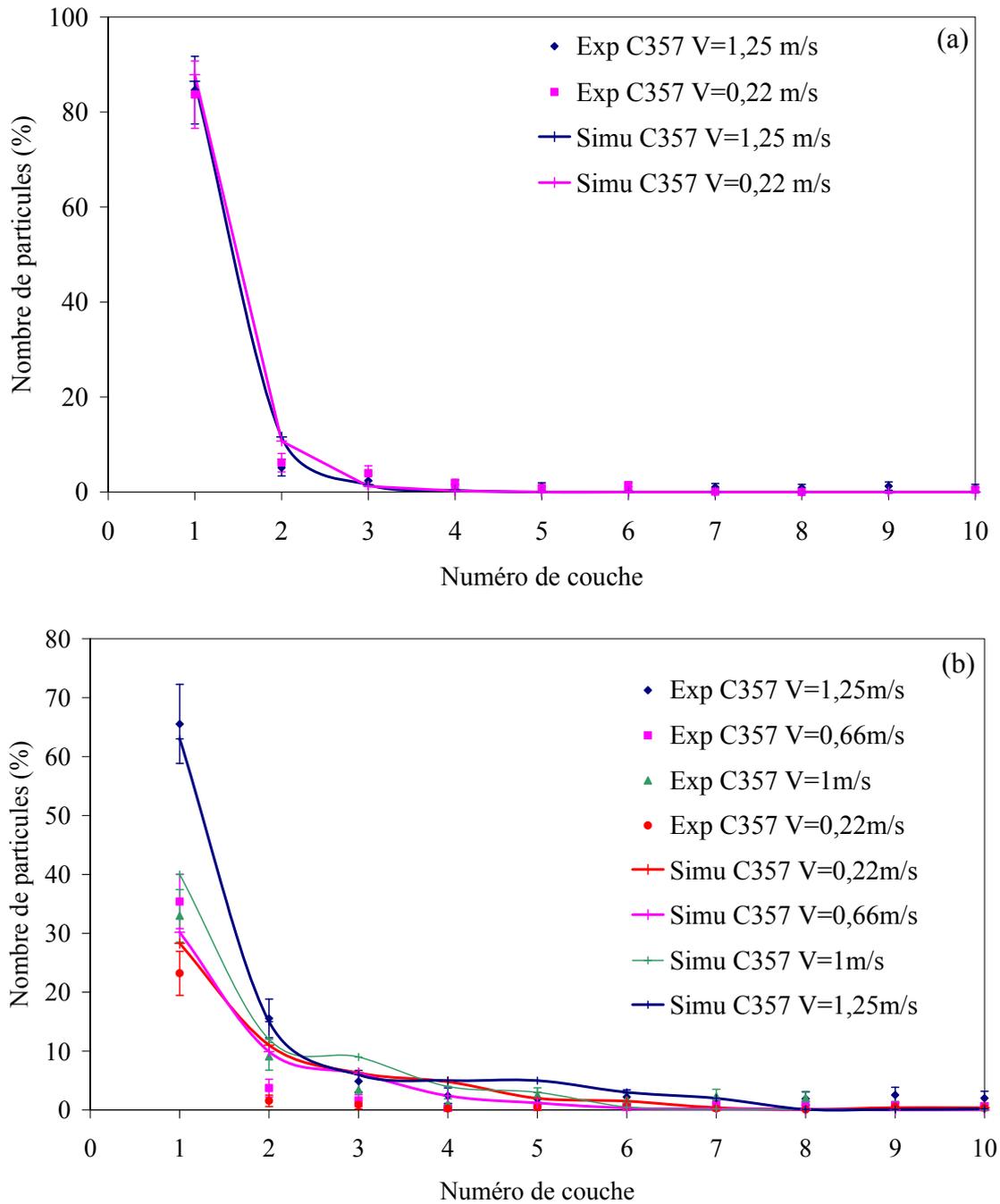


Figure IV.9 : Profils de pénétration expérimentaux et simulés des aérosols dans les différentes couches du filtre. Cas du filtre C357 avec une granulométrie des aérosols centrée sur 0,4 µm (a) et 4 µm (b) ainsi que différentes vitesses de filtration.

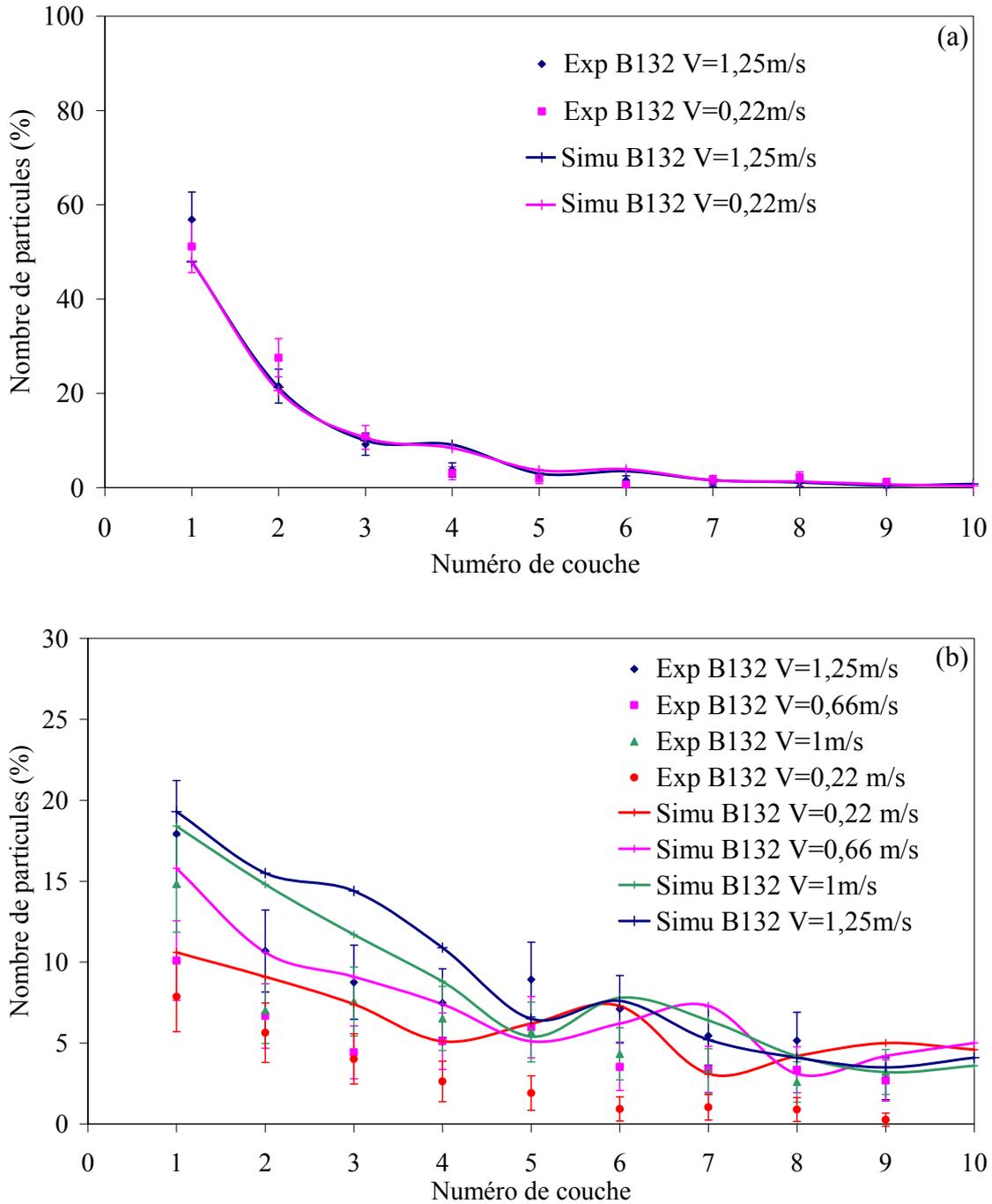


Figure IV.10 : Profils de pénétration expérimentaux et simulés des aérosols dans les différentes couches du filtre. Cas du filtre B132 avec une granulométrie des aérosols centrée sur 0,4 µm (a) et 4 µm (b) ainsi que différentes vitesses de filtration.

Dans les figures précédentes (IV.9 et IV.10) la comparaison des profils de pénétration des particules dans les filtres trouvés par les simulations et les mesures expérimentales sont présentés. L'analyse de ces figures met en évidence la concordance entre les différents profils de pénétration des particules trouvés par les simulations et les mesures expérimentales aux incertitudes statistiques près quelles que soient les conditions de filtration. Ces résultats valident ainsi les simulations de la pénétration des aérosols dans les filtres. Un écart maximal de 8 % est enregistré dans le cas du B132 à $0,22 \text{ m.s}^{-1}$.

Les profils de pénétration des particules dans les filtres simulés peuvent donc être utilisés avec confiance et vont nous permettre ensuite de reproduire à l'aide du code MC, des spectres en énergie ainsi que des facteurs de correction pour n'importe quelles conditions de filtrations et de filtre (cf. paragraphe IV.3).

1.6. Conclusion

Le code GeoDict a été utilisé afin d'étudier la filtration des aérosols dans une structure tridimensionnelle d'un filtre plan à fibres non-tissées. Les trois grands modules permettant la modélisation géométrique, le calcul CFD et le calcul du transport de particules, ont été étudiés de façon à répondre à nos attentes.

Dans un premier lieu, le champ d'écoulement, la perte de charge et l'efficacité de filtration du filtre ont été les éléments macroscopiques pour évaluer la physique du code et les paramètres pris en compte lors de nos simulations. Le bon accord mis en évidence entre les résultats simulés et ceux mesurés expérimentalement valide ainsi la simulation de la filtration des aérosols avec le code GeoDict dans des filtres à fibres.

Dans un second lieu, l'étude approfondie de la pénétration des aérosols dans le médium lors de filtration assurée par GeoDict a été réalisée pour différents types de filtres et diverses conditions aérauliques. Une bonne concordance a été observée entre les résultats simulés et expérimentaux, validant ainsi la simulation de la pénétration des aérosols avec le code GeoDict dans des filtres à fibres.

2. *Simulation par calcul Monte Carlo (MC)*

Les simulations numériques, fondées essentiellement sur les méthodes MC, sont devenues pratiquement incontournables dans tous les domaines liés à la physique nucléaire. Les méthodes MC sont de plus en plus utilisées dans divers secteurs d'applications tels que l'instrumentation, la dosimétrie, la radioprotection, la physique médicale, etc. Ces méthodes permettent en effet de fournir des informations très précises là où les expérimentations sont impossibles ou difficilement réalisables et sont un préalable à toute étude de physique et d'instrumentation.

La méthode de simulation par MC doit son nom à Metropolis et Ulam dans les années 1940 (Metropolis *et* Ulam 1949). Ces auteurs étaient les premiers à avoir décrit cette méthode pour résoudre des équations comme Boltzmann ou Schrödinger.

Les méthodes MC sont des méthodes statistiques impliquant l'utilisation de nombres aléatoires. Ces nombres sont générés selon certaines fonctions de densité de probabilité que l'on associe à un modèle. Ce dernier est souvent un système physique réel, mais peut être par exemple un système mathématique, ou un monde imaginaire quelconque gouverné par des lois qu'il est possible d'exprimer en des termes discrets utilisables sur une machine de calcul. Il faut différencier ces méthodes de simulation statistiques des méthodes conventionnelles de discrétisation numérique qui sont dans la plupart des cas appliquées aux équations différentielles partielles décrivant le système.

L'application de la méthode MC à la physique des rayonnements possède un avantage majeur par rapport aux méthodes analytiques conventionnelles. La méthode MC permet en effet d'avoir des résultats très proches de la réalité parce qu'elle contient toute la physique des interactions rayonnements-matière et qu'elle permet un « suivi » individuel du transport des particules depuis leur point d'entrée jusqu'à leur sortie ou absorption dans le milieu.

Dans cette partie, les méthodes MC sont appliquées pour simuler le parcours et l'interaction des rayonnements α dans un médium filtrant. Les résultats expérimentaux trouvés dans le chapitre 3, indispensables pour reproduire les spectrométries α sont également utilisés. De cette étude, nous obtenons des spectrométries α simulées, qui seront employées pour les études numériques des facteurs de correction de l'activité absorbée dans le médium.

2.1. Les méthodes Monte Carlo

2.1.a.a. Principe de la méthode Monte Carlo

Comme nous l'avons dit précédemment, les méthodes MC sont des méthodes statistiques fondées sur l'échantillonnage des fonctions de densité de probabilité qui décrivent les processus physiques étudiés par des tirages de nombres aléatoires. Par conséquent, ce type de méthode est particulièrement adapté à la physique des rayonnements à cause de la nature stochastique des processus d'émission, d'interaction, de transport et de détection. Les processus d'interactions des rayonnements avec la matière sont régis par des lois probabilistes via l'introduction de sections efficaces microscopiques dont les valeurs prédisent les probabilités d'interactions avec la matière.

Selon le principe de la méthode MC, le phénomène de transport de la particule est simulé en réalisant une succession d'interactions microscopiques (appelées aussi « événements ») illustrant le comportement de la particule réelle. La succession des interactions subies par une particule depuis sa création jusqu'à son absorption totale dans le milieu est appelée « histoire ».

La figure IV.11 représente un organigramme simplifié de la simulation d'une histoire par MC. La trajectoire de chaque particule est simulée, individuellement, en tirant au hasard à l'aide d'un générateur de nombres aléatoires les paramètres physiques des interactions (le libre parcours moyen entre deux événements, le type d'interaction, l'énergie perdue et la déflexion angulaire, le type de la particule secondaire créée, etc.), selon les distributions de probabilité qui décrivent les processus physiques mis en jeu. Ces distributions de probabilité sont déterminées à partir des différentes sections efficaces des interactions qui sont propres au type et à l'énergie de la particule incidente ainsi qu'à la nature du matériau avec lequel elle interagit. Après la simulation d'un grand nombre d'histoires, la valeur d'une grandeur d'intérêt macroscopique (fluence, nombre de particules ayant traversé la surface d'un détecteur, etc.) est obtenue à partir de la moyenne statistique des grandeurs calculées, associée à une incertitude statistique. Pour un nombre d'histoire très grand, l'incertitude statistique associée à la grandeur calculée est proportionnelle à l'inverse de la racine carré du nombre d'histoires.

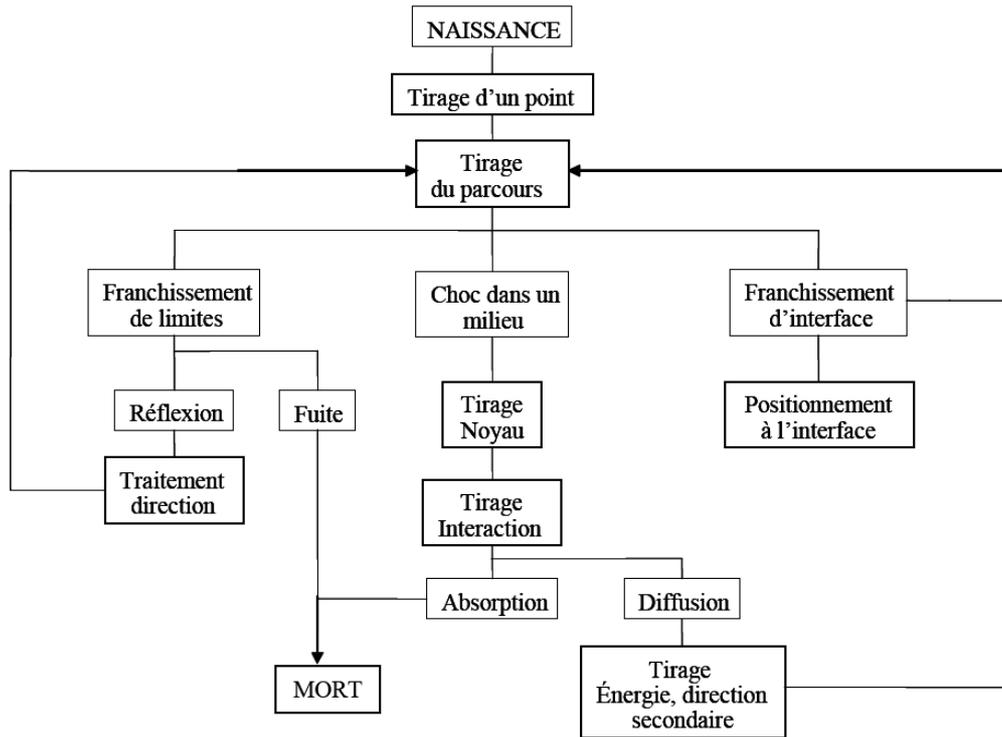


Figure IV.11 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur par la méthode MC.

2.1.b. Variables aléatoires

Les nombres aléatoires sont générés par un algorithme mathématique déterministe répétitif possédant une période très grande mais néanmoins finie, d'où la qualification de nombres « pseudo-aléatoires ». Il est important de préciser que la période du générateur doit être suffisamment grande pour générer des nombres pseudo-aléatoires indépendants pour la simulation. Dans le cas contraire, nous répéterons inutilement les calculs sur les différents processeurs et du point de vue statistique, la variance des grandeurs simulées ne sera pas réduite (Marsaglia *et al.* 1990).

Le code MCNP, utilisé dans cette étude, possède un générateur de nombres pseudo-aléatoires fondé sur la congruence linéaire mis au point par Lehmer (1949). Ce type de générateur engendre des nombres pseudo-aléatoires à distribution uniforme dans l'intervalle $[0,1]$. La période du générateur utilisé dans MCNP vaut 2^{48} .

2.1.c. Simulation du transport des particules alpha

Ce paragraphe décrit la simulation par MC du parcours des particules α dans la matière.

La longueur du parcours d'une particule chargée dans un matériau doit être connue afin de déterminer le prochain point d'interaction dans le volume (Ljunberg *et al.* 1998). Généralement, la distance parcourue par le rayonnement α avant une interaction dépend de

l'énergie de celle-ci, de la densité et de la composition du matériau traversé. La longueur du parcours est échantillonnée en calculant la fonction de densité de probabilité d'interaction des particules α dans la matière. Les différents processus d'interactions des particules α avec la matière sont décrits dans le chapitre I, paragraphe 4. Selon la classification de Berger (Berger 1963), il existe deux modèles de simulation du transport des particules chargées dans la matière.

Dans les modèles de classe I, l'effet collectif de toutes les interactions subies par une particule le long d'un pas de longueur donnée est simulé, d'une manière approximative, avec une seule étape de calcul. Les effets de la création de particules secondaires sont pris globalement en compte en échantillonnant une distribution de perte d'énergie de la particule primaire (straggling) à chaque étape. Les déflexions angulaires dues à la création de particules secondaires sont prises en compte avec la théorie de la diffusion multiple.

Les modèles de classe II, appelés également simulations « mixtes », combinent une simulation détaillée des événements à forte perte d'énergie et forte déviation angulaire (appelés événements « catastrophiques » ou « hard » en anglais) avec une simulation « condensée » des événements à faible perte d'énergie et faible déviation angulaire (appelés événements « mous » ou « soft » en anglais). L'effet global d'un nombre suffisant d'événements « mous », entre deux événements « catastrophiques », peut être ainsi simulé en utilisant l'approche de la diffusion multiple.

La simulation de classe II est plus précise que celle de classe I. En effet, lors de cette dernière, la particule α primaire n'est pas directement affectée par la création d'une particule secondaire, alors que lors d'une simulation de classe II, les corrélations entre les particules primaires et secondaires sont prises en compte.

2.2. Le code MCNPX

Au cours des dernières années, le code MC MCNP a connu de nombreuses évolutions et améliorations. Il a été développé initialement par le Laboratoire de Los Alamos aux Etats Unis (Briesmeister 1997) et distribué par l'Agence de l'Energie Nucléaire aux états membres. Dans le cadre de cette thèse, le code MCNPX (Monte Carlo with N Particles eXtended), version 2.4.0, est utilisé pour réaliser l'ensemble des simulations. Ce dernier est la fusion de MCNP avec le code LAHET (Los Alamos High Energy Transport) qui permet la simulation du transport de 34 types de particules (Prael *et* Lichtenstein 1989).

La version du code MCNPX utilisé dans cette étude est écrite en Fortran 90 et en langage C. Elle est composée d'un programme principal et de 360 sous-programmes. Ce programme fait appel à des fichiers annexes.

Le fichier d'entrée lu par MCNPX décrit :

- la géométrie du système à simuler,
- les matériaux ainsi que le choix des bibliothèques de sections efficaces correspondantes,
- la localisation et les caractéristiques de la source,
- le type de réponses (ou « tallies ») souhaité.

La forme de ce fichier d'entrée est (Briesmeister 1997) :

- carte Titre du Problème,
- carte cellules,
- séparateur = Ligne Blanche,
- cartes Surfaces,
- séparateur = Ligne Blanche,
- cartes de données.

Une carte est une ligne simple du fichier d'entrée. Un exemple de fichier d'entrée est présenté dans l'annexe E.

La géométrie MCNPX est une configuration tridimensionnelle de matériaux définis par l'utilisateur dans des cellules géométriques (cartes cellules) entourées de surfaces (cartes surfaces). Les autres informations (les paramètres de simulation et le type de réponses souhaité) sont décrites par les cartes de données.

2.2.a. Définition des surfaces

Même si la définition des surfaces intervient après la définition des cellules dans le programme, il nous semble plus logique d'en parler avant, puisque la définition des cellules fait intervenir les surfaces que nous avons définies. Le programme possède dans son code les équations d'un grand nombre de surfaces. Dans le tableau E.1 de l'annexe E sont données les cartes des surfaces reconnues par le code MCNPX.

2.2.b. Définition des cellules

L'intersection, l'union ou le complémentaire de plusieurs surfaces peuvent former des régions de l'espace appelées cellules. Dans la définition d'une cellule, on définit également plusieurs

paramètres comme le type de matériau qui constitue la cellule, la densité de la matière en question et d'autres paramètres importants qui seront mentionnés plus loin.

2.2.c. *Définition des données*

2.2.c.a. *Définition des sources*

Une carte essentielle est celle qui définit la source : il s'agit de la carte (*SDEF*). Elle a la formulation suivante : *SDEF* source variable = spécification... Si « spécification » est précédée d'un *D*, le programme comprend qu'il s'agit d'une distribution; sinon, il s'agit d'une valeur explicite. Il existe de nombreux paramètres pour définir la source ; nous n'en citerons que quelques-uns en guise d'exemples :

- *CEL* précise quelle cellule sert de source, si cette dernière remplit entièrement la cellule,
- *SUR* définit quelle surface est la source,
- *ERG* définit l'énergie de la source, en MeV,
- *POS* donne le point de référence du centre de la source,
- *RAD* définit le rayon de la source.

Lorsqu'une source n'est déposée que sur la surface d'une cellule, il est possible de définir des rayons interne et externe, comme nous le verrons pour la carte *SIn*.

- *EXT* signifie l'extension de la source depuis *POS*, le long de l'*AXS*,
- *AXS* définit l'axe de la source. *X*, *Y* et *Z* donnent les coordonnées de la source,
- *PAR* donne le type de particule.

2.2.c.b. *Définition de la source utilisée dans cette étude*

Dans notre étude, une source cylindrique est modélisée. Pour définir une distribution cylindrique, on utilise les variables *POS* et *AXS* pour l'axe du cylindre, *RAD* pour son rayon ainsi que *EXT* pour son extension le long de l'*AXS* depuis *POS*.

Pour définir une distribution de la source à la surface du cylindre, on considère un rayon interne et un rayon externe dans la carte *SIn* pour la variable *RAD* et l'extension depuis *POS* pour *EXT* dans une autre carte *SIn*.

La carte *SIn* a la morphologie suivante : *SIn* option $I_1, I_2 \dots I_k$. *n* est le numéro de la distribution. « Option » précise de quelle façon les I_k doivent être interprétés.

La carte *SPn* a la même morphologie que la carte *SIn*. Elle permet de définir la loi de probabilité de la source. La valeur par défaut est *H* ou rien et signifie que c'est une distribution en histogramme. Les autres valeurs sont *L* pour des variables discrètes de la

source, A pour des points où une densité de probabilité est définie et S pour des nombres d'une distribution.

Les I_k sont les variables de la source.

2.2.d. Définition des « tallies »

Il est possible de définir différents « tallies » dans le code MCNPX en fonction du résultat souhaité, par exemple le courant à travers une surface, le flux en un point, etc. La carte F_n est celle qui définit les « tallies » recherchés. Le tableau IV.2 regroupe les caractéristiques des « tallies » reconnus par MCNPX. Ils sont différenciés par leur n qui va de 1 à 8, sauf le 3. Lorsque nous souhaitons définir plusieurs « tallies » du même type, il est possible de placer d'autres nombres avant le numéro du « tally ».

Tableau IV.2 : Bibliothèque des « tallies » reconnus par MCNPX (les deuxièmes unités données correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque).

Tally	Type	Mode	Unité	*Unité
F1	courant intégré sur une surface	N, P ou E	Nombre de particules	MeV
F2	flux moyenné sur une surface	N, P ou E	particules par cm^2	MeV.cm ⁻²
F4	flux moyenné sur une cellule	N, P ou E	particules par cm^2	MeV.cm ⁻²
F5	flux en un point	N ou P ou N,P	particules par cm^2	MeV.cm ⁻²
F6	énergie déposée moyennée sur une cellule	N, P ou E	MeV.g ⁻¹	jergs.g ⁻¹
F7	énergie de fission moyennée sur une cellule	N	MeV.g ⁻¹	jerks.g ⁻¹
F8	distribution en énergie des impulsions déposées dans un détecteur	P, E, a ou P,E	impulsions	MeV

Si le « tally » concerne une surface ou une cellule, nous notons le numéro de la surface ou de la cellule directement après le nom du « tally ».

Dans cette étude, nous avons travaillé avec le mode de réponse $F8$ qui détermine la distribution en énergie des pulses déposées dans le détecteur. La commande FGB permet d'introduire la résolution associée au détecteur en fonction de l'énergie.

La carte $En e_1 \dots e_k$ sert à définir l'énergie maximale dans le F_n . Cette valeur maximale en MeV est donnée dans les groupes e_k . Une valeur $E0$ peut être utilisée pour donner une structure par défaut pour l'énergie dans tous les « tallies », en sachant qu'une donnée spécifique pour un « tally » primera sur cette valeur par défaut.

Si des résultats d'un « tally » doivent tous être multipliés par une constante, par exemple pour convertir des unités, il est possible d'utiliser la carte $FMn k$, où n est le numéro du « tally » et k le facteur multiplicatif.

2.3. Définition des matières

Comme il a été mentionné précédemment, dans la définition des cellules, on donne un numéro m à la matière qui constitue la cellule. Ce numéro m est repris dans la carte Mm , dont la formulation simplifiée est $Mm Z_1000 fraction_1 Z_2000 fraction_2 \dots$ où Z_i indique de quel élément il s'agit, ainsi que la librairie des sections efficaces à utiliser. Les nombres $fraction_i$ sont les fractions atomiques du constituant i ou la densité atomique si elle est introduite avec un signe moins.

2.4. Définition des énergies

Le code MCNPX permet de préciser le traitement physique à utiliser pour les particules qui sont générées (classe I ou classe II) ainsi que les particules qu'elles peuvent produire lorsqu'elles interagissent avec le milieu. Ces précisions sont fournies à l'aide de la carte *PHYS* qui définit le modèle physique pour le pouvoir d'arrêt et le « straggling », dans la gamme d'énergie de 0,1 à 10 MeV. Dans cette étude, un modèle physique de classe II, dit « Vavilov », est utilisé. Pour les interactions nucléaires, ce modèle est défini par les 4 cartes *LCA*, *LCB*, *LEA* et *LEB* (Vavilov 1957, Briesmeister 1997).

2.5. Calcul d'incertitude du code MC

Les résultats issus de calculs par MC sont généralement soumis à deux méthodes d'évaluation d'incertitude A et B. L'incertitude globale s'exprime par :

$$u = \sqrt{u_A^2 + u_B^2} \quad (\text{IV. 29})$$

Les incertitudes de type A décrivent la différence entre la valeur réelle et la valeur prévue par la simulation. Elles sont généralement inférieures à 0,1 % pour des résultats significatifs. Ces incertitudes peuvent avoir pour origine le degré de précision des modèles physiques, des modèles mathématiques, des sections efficaces, les erreurs de programmation, etc. utilisés dans le code ainsi que des modèles de représentation des géométries.

Les incertitudes de type B, inhérentes au calcul par MC, sont évaluées selon des méthodes classiques. Si Q est la quantité d'intérêt déterminée à partir d'une simulation MC de N histoires, la valeur moyenne de Q est donnée par :

$$\bar{Q} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N q_i \quad (\text{IV. 30})$$

où q_i est la valeur calculée à la i -ème histoire.

L'incertitude statistique associée $\sigma_{\bar{Q}}$ correspondant à l'écart-type sur la moyenne est déterminée à partir de la relation suivante :

$$\sigma_{\bar{Q}} = \sqrt{\frac{\text{var}(q)}{N}} = \sqrt{\frac{1}{N} \left(\frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^N q_i^2 - (\bar{Q})^2 \right)} \quad (\text{IV. 31})$$

où $\text{var}(q)$ est la variance.

Pour un nombre d'histoires N suffisamment grand, l'intervalle $\bar{Q} \pm 3\sigma_{\bar{Q}}$ contient la valeur vraie de Q avec une probabilité de 99,7 % (hypothèse d'une loi normale). Pour réduire l'incertitude statistique, il faut augmenter le nombre d'histoires simulées et donc augmenter le temps de simulation.

2.6. Procédure de simulation

Cette partie décrit la procédure d'application du code MCNPX à la simulation de la dégradation de la mesure de la radioactivité dans les filtres de prélèvements. Dans toutes les étapes de la validation, les résultats simulés sont comparés à ceux mesurés expérimentalement sur des filtres de référence. La validation du modèle de physique des rayonnements α ainsi que la simulation de filtres contenant de la radioactivité α sont effectuées de la manière suivante :

- validation des options physiques utilisées pour les particules α en modélisant une source solide,
- évaluation de la simulation d'un milieu poreux par des densités équivalentes et un dépôt homogène des α dans un filtre en géométrie cylindrique,
- validation de la simulation d'un milieu poreux par des densités équivalentes et un dépôt biaisé selon le profil de pénétration réel des aérosols dans un filtre cylindrique.

2.7. Validation des options physiques des rayonnements α

Dans un premier temps, il est nécessaire de valider notre choix de paramètres des cartes de modèles physiques de transport des rayonnements α pour les basses énergies. Pour cela, une source solide électrodéposée est d'abord simulée afin de comparer les spectres en énergie simulés avec ceux obtenus par expérience.

Nous avons simulé le spectre en énergie d'une source standard de ^{239}Pu électrodéposée de 15 mm de diamètre actif et de 10 μm d'épaisseur de surface active. Le support du dépôt actif est composé d'acier inoxydable de 30 mm de diamètre et 0,5 mm d'épaisseur (figure IV.12-a) (ref. ^{239}Pu EASD20 du laboratoire CERCA/LEA, France). La chambre de détection du

détecteur PIPS de ORTEC, utilisée dans l'étude expérimentale et décrite au premier chapitre, est encore simulée. Le détecteur distant de la source de 11 mm contient de l'air à une pression de 0,2 Pa. La fenêtre du détecteur PIPS, de 60 nm d'épaisseur et 1,5 mm de diamètre, ainsi que la surface active du détecteur de 100 μm sont modélisées (Geryes *et al.* 2009-a).

La figure IV.12-b représente une visualisation tridimensionnelle de la géométrie modélisée avec le code MCNPX. Le flux de la source donné par le fabricant est égal à 213 particules. s^{-1} . Le rapport du $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ est également donné, il est d'environ 0,7 %.

Les énergies des rayonnements α du ^{239}Pu sont définies avec des énergies 5,105 MeV, 5,144 MeV et 5,154 MeV correspondant respectivement à des intensités d'émission égales à 12 %, 15 % et 73 %.

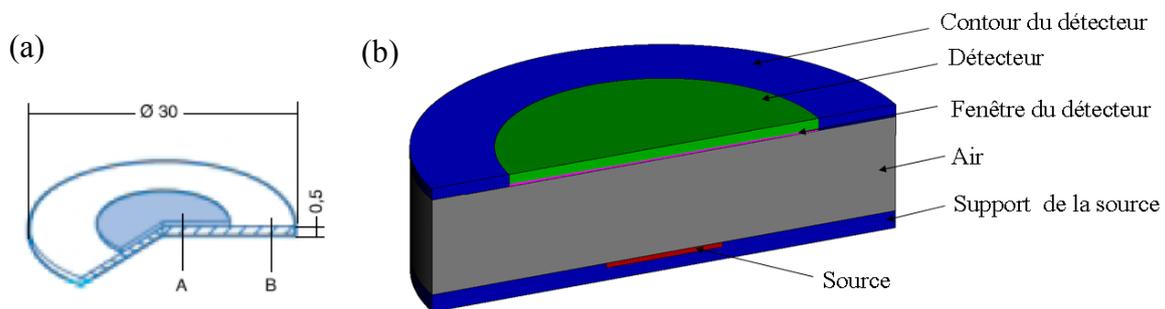


Figure IV.12 : a- La source de 15 mm de diamètre et 10 μm d'épaisseur ainsi que le support de la source en acier inoxydable de 30 mm de diamètre et 0,5 mm d'épaisseur. b- Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie d'une source solide dans la chambre d'acquisition modélisée avec le code MCNPX.

La figure IV.13 représente une comparaison entre les spectres de comptage en énergie (normalisés au maximum du pic) mesurés et simulés. Cette figure montre que la largeur à mi-hauteur (FWHM) et la traîne du pic sont particulièrement bien reproduites par la simulation. En effet, la largeur FWHM mesurée est égale à (80 ± 5) keV ; celle simulée est égale à (78 ± 3) keV (à $k=1$).

Par ailleurs, l'efficacité de détection (en géométrie 2π) simulée de cette source solide est égale à $(24,51 \pm 0,21)$ %. Cette valeur est très proche de celle mesurée qui est égale à $(24,72 \pm 0,89)$ %. Ces résultats montrent un bon accord entre les mesures et les simulations et valident ainsi notre choix de paramètres des cartes de modèles physiques de transport des rayonnements α pour les basses énergies (Geryes *et al.* 2009-a).

L'incertitude statistique et systématique associée aux résultats du calcul par MC est de l'ordre de 0,5 % ($k=1$). La différence relative inférieure à 1 % est trouvée entre les deux spectres simulés et expérimentaux. Cette différence est très faible par rapport aux incertitudes

associées aux mesures par comptage de l'ordre de 10 % qui sont présentées sur le spectre de la figure IV.13.

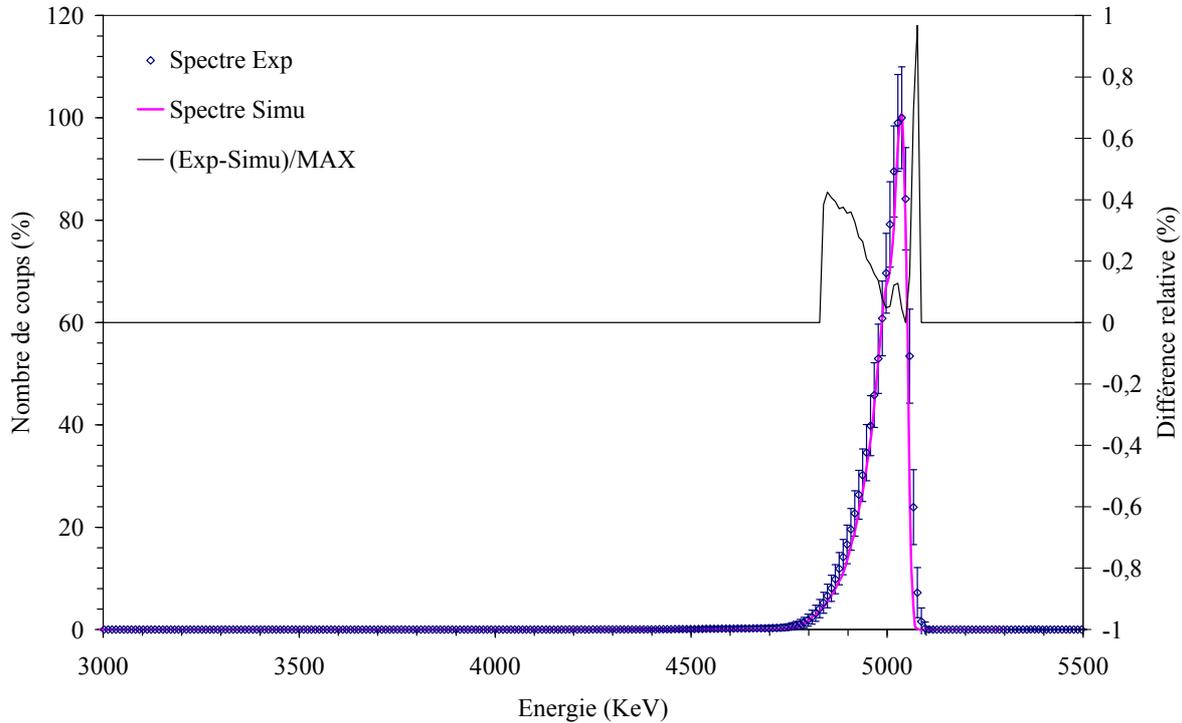


Figure IV.13 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie α pour la source solide.

2.8. *Evaluation de la modélisation d'un filtre (géométrie cylindrique) avec un dépôt homogène des α dans tout le cylindre*

Le but de cette étude est de simuler le filtre C357 utilisé dans nos expériences. Nous posons les hypothèses suivantes afin de créer notre filtre simulé. Dans ce premier modèle géométrique, le filtre est assimilé à un cylindre de 47 mm de diamètre et de 500 μm de hauteur. Ce dernier est composé de fibres en verre de composition chimique ressemblant au borosilicate décrit dans le tableau IV.3. La densité des fibres équivalente créée est égale à $0,016 \text{ g.cm}^{-3}$. Elle est mesurée à partir de la densité du filtre (ρ_f) (qui est le rapport entre la masse (m_f) et le volume (V_f) du filtre) en tenant compte aussi de la compacité (α_f) des fibres dans le filtre égale ici à 10 % (cf. chapitre I paragraphe 2).

Le tirage des rayonnements α se fait d'une façon aléatoire et homogène dans tout le cylindre. La géométrie de la chambre d'acquisition décrite précédemment est modélisée mais cette fois-ci avec un cylindre remplaçant la source solide (figure IV.14). La distance entre le filtre et le détecteur est réduite à 3 mm au lieu de 11 mm avec la source (Geryes *et al.* 2009-a).

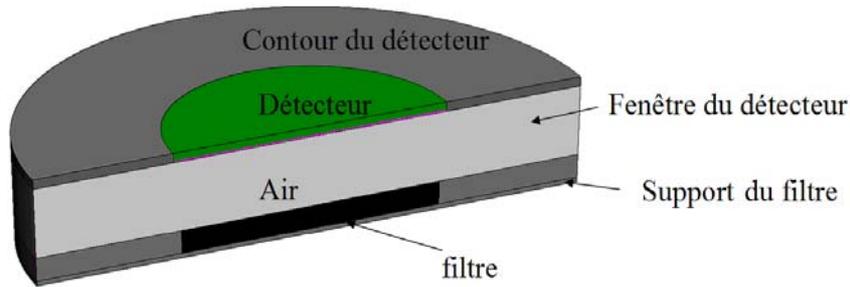


Figure IV.14 : Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie d'un filtre dans la chambre d'acquisition modélisée avec MCNPX.

Tableau IV.3 : Fraction des éléments dans le filtre à fibres de verre (Higby 1984).

Elément	Fraction atomique	Pourcentage massique dans le verre
¹⁶ O	0,6089	47,3
²⁸ Si	0,198	27,0
²³ Na	0,068	7,5
¹¹ B	0,058	3,3
²⁷ Al	0,024	3,1
⁶⁵ Zn	0,01	3,1
³⁵ K	0,011	2,1
⁴⁰ Ca	0,011	2,1
¹³⁷ Ba	0,006	4,0
¹⁹ F	0,004	0,4
⁵⁶ Fe	0,001	0,1

Les résultats de cette étude sont représentés sous forme de spectres de comptage en énergie, normalisés au maximum du pic, en fonction de l'énergie. Ce spectre simulé est représenté dans la figure IV.15 avec un exemple de spectre expérimental d'un filtre C357 de référence afin de comparer l'allure générale du spectre simulé par rapport à l'allure expérimentale. Nous déduisons que la largeur FWHM et la traîne de faible énergie ne sont pas reproduites avec la simulation. En effet, la largeur FWHM mesurée est de (209 ± 10) keV, celle simulée est égale à (450 ± 11) keV.

Cette figure montre que la simulation ne représente pas la réalité du dépôt des radioéléments dans le filtre. En effet, l'étude expérimentale de la pénétration des aérosols dans les filtres a démontré que la distribution spatiale réelle des aérosols radioactifs (ou le tirage des α dans les simulations) à l'intérieur du filtre-cylindre n'est pas homogène (Geryes *et al.* 2009-a).

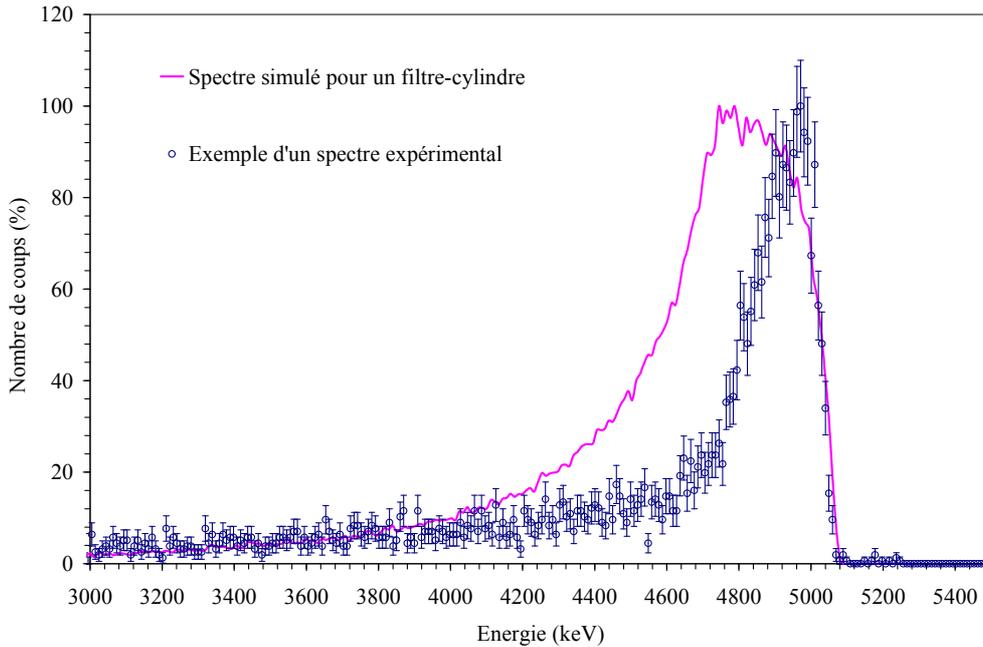


Figure IV.15 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie α pour une distribution spatiale homogène des aérosols radioactifs à l'intérieur d'un filtre cylindrique.

L'efficacité de détection (2π) simulée pour ce type de géométrie est égale à $(34,92 \pm 0,69) \%$. L'efficacité de détection selon l'angle solide d'un disque de 47 mm de diamètre, obtenue à l'aide du logiciel ANGLESOL (Blanchis 1997), est égale à $(39,99 \pm 0,21) \%$. La comparaison de ces deux valeurs confirme que l'efficacité de détection simulée est plus faible en raison de l'auto-absorption dans l'épaisseur du filtre.

Cette première évaluation de la modélisation de filtre nous a permis de connaître les éléments manquant dans cette géométrie. Le profil de pénétration des aérosols dans le filtre (étudié dans le chapitre III) doit être pris en compte dans le modèle du filtre modélisé avec MCNPX.

2.9. Modélisation d'un filtre avec tirage α biaisé dans tout le cylindre non-chargé en masses d'aérosols

Dans ce nouveau modèle géométrique, le filtre C357 simulé précédemment est divisé en une succession de couches cylindriques. La figure IV.16 montre la géométrie de la chambre d'acquisition décrite précédemment reproduite mais avec une succession de couches de filtres. L'émission des rayonnements α à l'intérieur de chaque cylindre se fait suivant le poids statistique des radioéléments à l'intérieur du filtre réel trouvés expérimentalement pour deux valeurs extrêmes de vitesse de filtration. Cette émission est traduite par un pourcentage de tirage des rayonnements α dans la succession de cylindres créée dans les simulations.

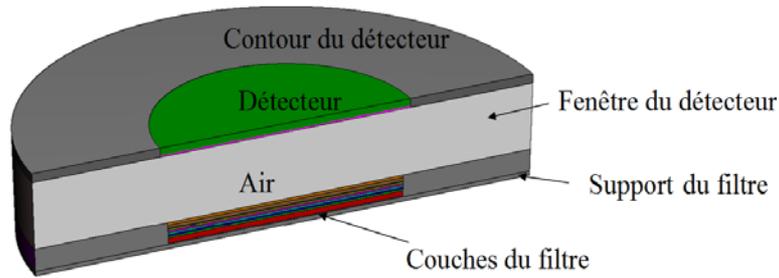


Figure IV.16 : Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie de 10 couches du filtre dans la chambre d'acquisition modélisée avec MCNPX. La distance séparant la face supérieure du filtre et le détecteur est réduite à 3 mm.

De plus dans cette configuration, la densité des couches et la concentration des aérosols émetteurs α correspondante sont représentées dans chaque couche cylindrique du filtre afin de reproduire la dégradation du spectre en énergie des rayonnements α . Pratiquement, l'augmentation de la vitesse de filtration augmente la pénétration des aérosols dans les filtres, augmentant ainsi la dégradation des spectres en énergie. En effet, les rayonnements α émis des couches les plus profondes traverseront plusieurs couches de densités différentes avant d'arriver à la surface frontale du filtre avec des énergies très atténuées par rapport à leurs énergies de départ (Geryes *et al.* 2009-a).

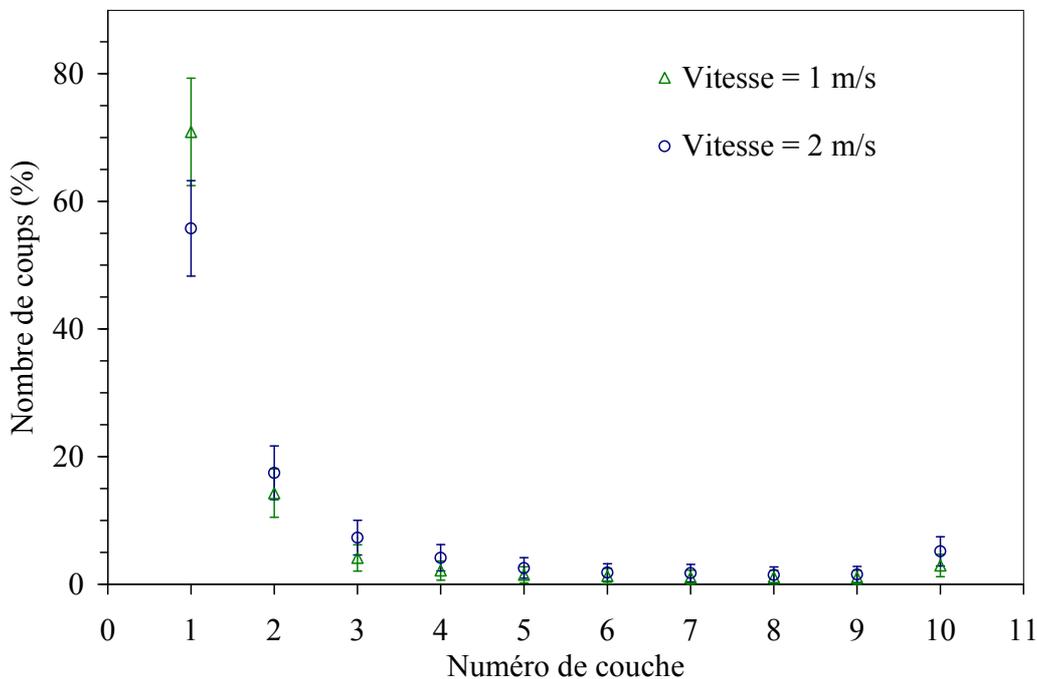


Figure IV.17 : Etude du profil de pénétration des aérosols radioactifs de DAMA de $4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) dans le filtre C357 à des vitesses de filtration de 1 et 2 $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$. Le nombre de coups de rayonnements, détectés par la SL et normalisés 100 %, est en fonction de la profondeur dans le filtre exprimée en numéro de couches pelées.

Les figures IV.18 et IV.19 présentent la comparaison entre les spectres en énergie mesurés et simulés. Ces figures montrent que la forme et les caractéristiques du spectre expérimental en énergie sont reproduites fidèlement dans la simulation. Les spectres en énergie simulés et expérimentaux, pour les deux vitesses de filtration, montrent une bonne concordance. Une différence relative inférieure à 4 %, qui est largement plus petite que l'incertitude sur le comptage expérimental, est trouvée entre les deux spectres simulés et expérimentaux. L'effet de la vitesse de filtration sur la dégradation de l'énergie est bien pris en compte dans les simulations. Les différentes caractéristiques des spectres simulés (tableau IV.4) confirment nos hypothèses de simulation d'un médium représentatif d'un filtre expérimental avec les effets de différentes conditions aérauliques. En effet, plusieurs paramètres de spectrométrie sont étudiés afin de mieux appréhender les résultats de notre modèle : la largeur FWHM, la forme de la traîne du spectre (PSP) et le décalage du spectre vers les basses énergies (Peak Shift).

Tableau IV.4 : Comparaisons des caractéristiques des spectres simulés et expérimentaux. Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées à chaque valeur sont également indiquées.

Spectre	Visualisation du spectre	Vitesses (m.s^{-1})	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
Simulé	Figure IV.18	1	200 ± 10	340 ± 14	120 ± 10
Expérimental			180 ± 19	300 ± 21	150 ± 12
Simulé	Figure IV.19	2	280 ± 11	520 ± 17	210 ± 10
Expérimental			260 ± 11	541 ± 19	205 ± 10

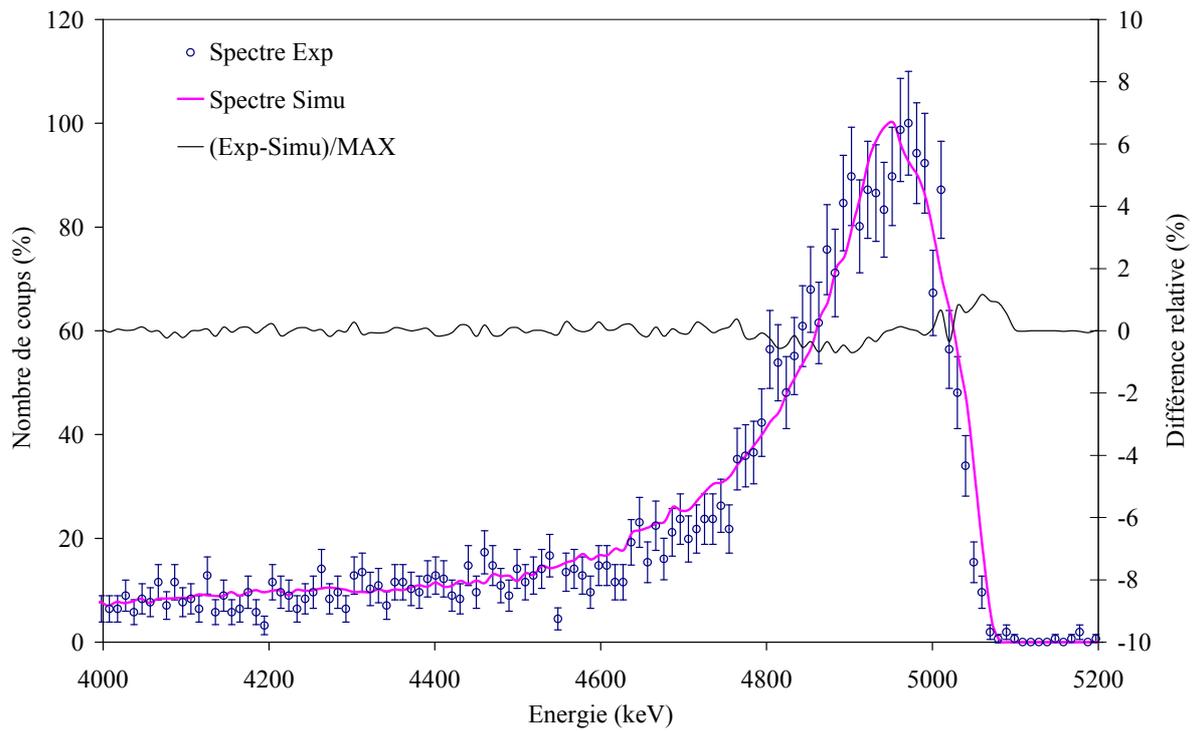


Figure IV.18 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C357 préparé à une vitesse de filtration de 1 m.s^{-1} .

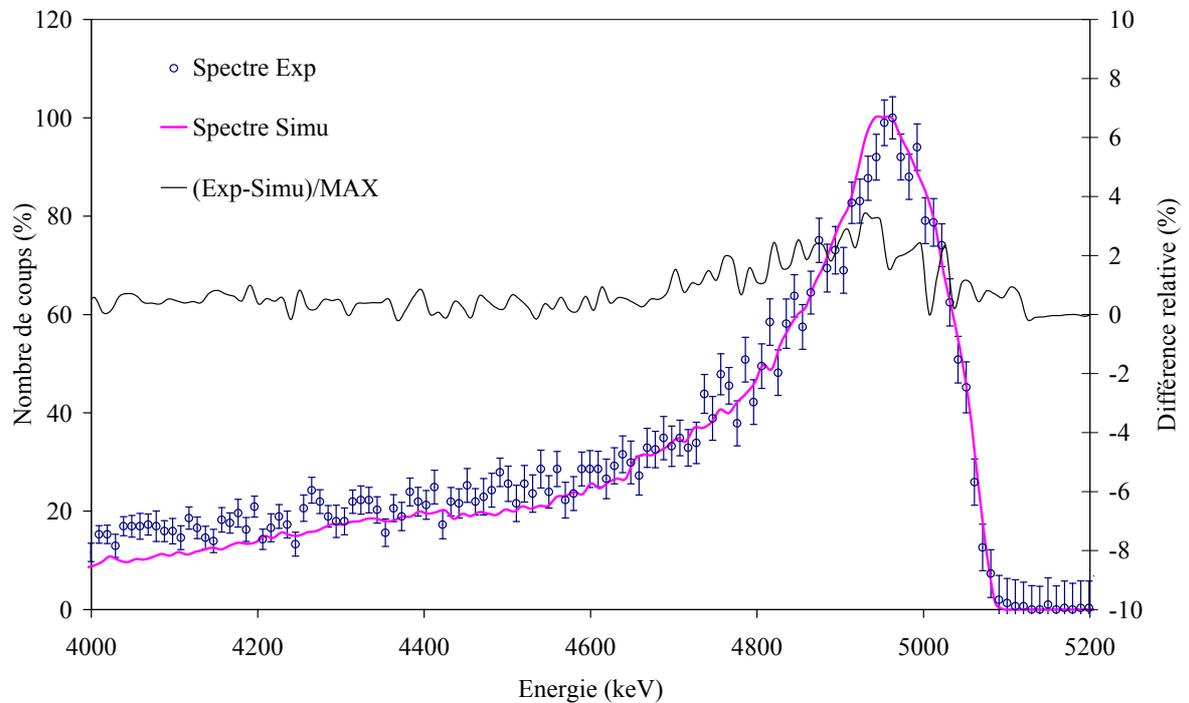


Figure IV.19 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C357 préparé à une vitesse de filtration de 2 m.s^{-1} .

A ce stade, nous avons réussi à reproduire par les simulations MCNPX les spectres α des filtres C357 avec deux profils de pénétration. La détermination du facteur F_α de la radioactivité dans un filtre simulé se fait par le calcul du rapport de nombre de rayonnements arrivant au détecteur par seconde $(Cp/s)_D$ et du nombre total d'événements créés dans tout le filtre (ou NPS). Le $(Cp/s)_D$ est déterminé à partir de la surface totale du spectre en énergie simulé des rayonnements suivis et arrivant au détecteur. Le nombre total de rayonnements émis d'un filtre est fixé par le NPS de la simulation (Geryes *et al.* 2009-b).

Les valeurs expérimentales F_α obtenues sont égales à $(3,31 \pm 0,51)$ et $(5,10 \pm 0,82)$ respectivement pour les vitesses de 1 m.s^{-1} et 2 m.s^{-1} . Ces valeurs sont comparables aux valeurs de F_α obtenues par simulation soit $(3,10 \pm 0,21)$ et $(5,39 \pm 0,79)$ respectivement pour les vitesses de 1 m.s^{-1} et 2 m.s^{-1} . nous constatons aussi une bonne concordance entre les facteurs F_α simulés et expérimentaux traduite par un écart maximal de 6,1 % et de 5,5 % respectivement trouvé pour ces deux cas.

2.10. Modélisation de filtre chargé en masses d'aérosols sur la surface

Après un certain temps t de prélèvement atmosphérique, nous avons vu que les masses d'aérosols déposés sur les filtres passent la zone de transition à partir de laquelle les aérosols auront tendance à se déposer en surface des filtres pour former des amas de masses accumulées comme un « gâteau ». Dans les chapitres précédents, nous avons réussi à produire de tels filtres avec une maîtrise des quantités de masses accumulées sur leurs surfaces. Dans ce paragraphe, nous allons appliquer la méthode de MC pour simuler le filtre et le « gâteau » afin d'étudier la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α dans ces derniers. A partir des bases de données expérimentales que nous avons élaborées auparavant, nous avons choisi de reproduire par des simulations MCNPX, les spectres en énergie des rayonnements α des filtres B132 et C569 avec des masses élevées égales à $1,96 \text{ mg.cm}^{-2}$ et à $2,65 \text{ mg.cm}^{-2}$ respectivement. Ces masses représentent le seuil de l'accroissement du facteur F_α après un plateau de valeurs stables (cf. chapitre III paragraphe 4).

La géométrie des filtres B132 et C569 est modélisée comme dans le cas du filtre C357, seule la composition chimique des fibres varie. En effet, le type B132 est composé de fibres de celluloses et le type C569 est composé de moitié de fibres celluloses et l'autre moitié de fibres de verre. Comme pour le cas du type C357, des densités de fibres équivalentes ont été créées et sont égales à $0,015 \text{ g.cm}^{-3}$ pour B132 et $0,021 \text{ g.cm}^{-3}$ pour C569. La quantité de masse souhaitée sur le filtre est assimilée à un cylindre rempli de matière. Cette dernière est composée d'un mélange de particules actives et non-radioactives. La densité de 2 g.cm^{-3} est

choisie proche de celle du sel NaCl utilisé expérimentalement et la compacité α_{pG} du « gâteau » forme 10 % du volume du cylindre. A l'intérieur du filtre simulé, le tirage des rayonnements α est biaisé, tandis que dans la masse simulée, les rayonnements α sont générés aléatoirement dans le volume du cylindre afin d'être représentatif de la réalité du dépôt d'aérosols radioactifs à la surface du filtre.

Les figures IV.20 et IV.21 présentent la comparaison entre les spectres en énergie mesurés et simulés. Pratiquement, l'augmentation de la masse d'aérosols filtrés renforce le dépôt d'aérosols en surface des filtres, augmentant ainsi la dégradation des spectres en énergie. Ces figures montrent que les spectres en énergie expérimentaux sont reproduits fidèlement dans la simulation. Une différence relative inférieure à 3 %, qui est largement plus petite que l'incertitude expérimentale sur le comptage, est trouvée entre les deux spectres simulés et expérimentaux.

Tableau IV.5 : Comparaisons des caractéristiques des spectres simulés et expérimentaux. Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées à chaque valeur sont également indiquées.

Masse (mg.cm^{-2})	Spectre	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
1,96	Expérimental	1140 ± 28	2096 ± 50	324 ± 30
	Simulé	1100 ± 30	2000 ± 55	350 ± 30
2,65	Expérimental	2080 ± 30	3330 ± 55	400 ± 35
	Simulé	2000 ± 30	3340 ± 55	400 ± 35

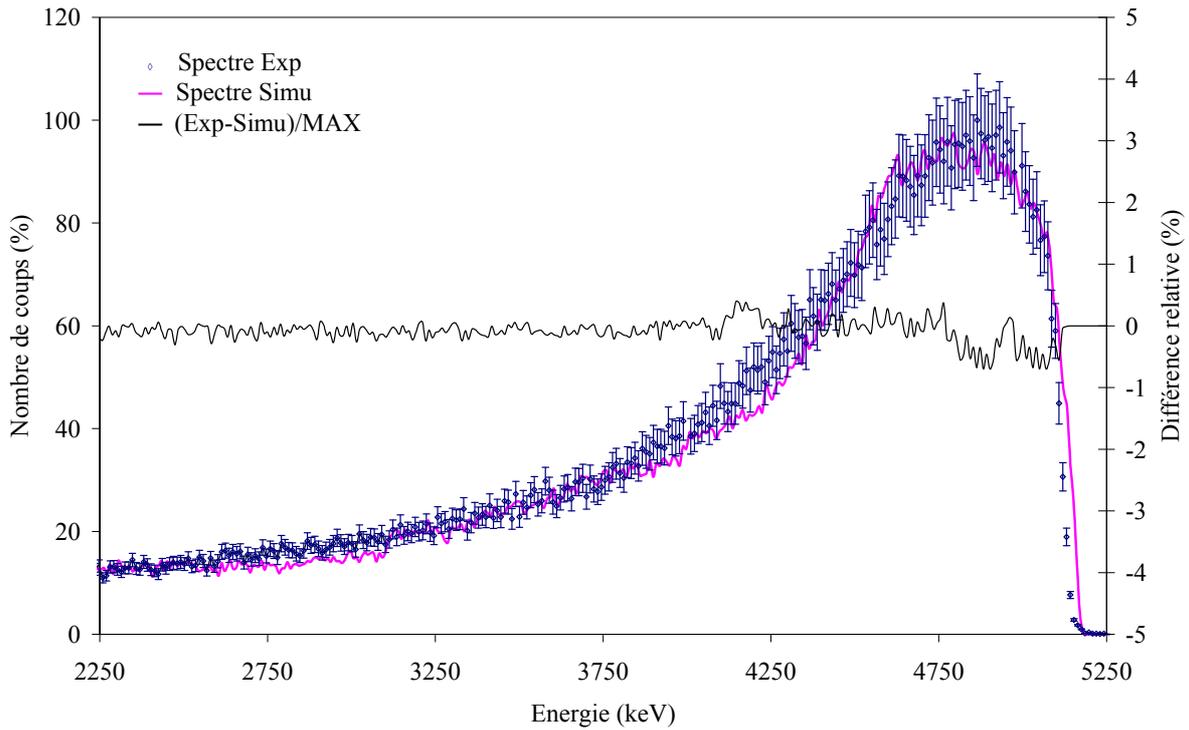


Figure IV.20 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des particules α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre B132 préparé à une vitesse de filtration de $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ et un dépôt de masse de $1,96 \text{ mg.cm}^{-2}$.

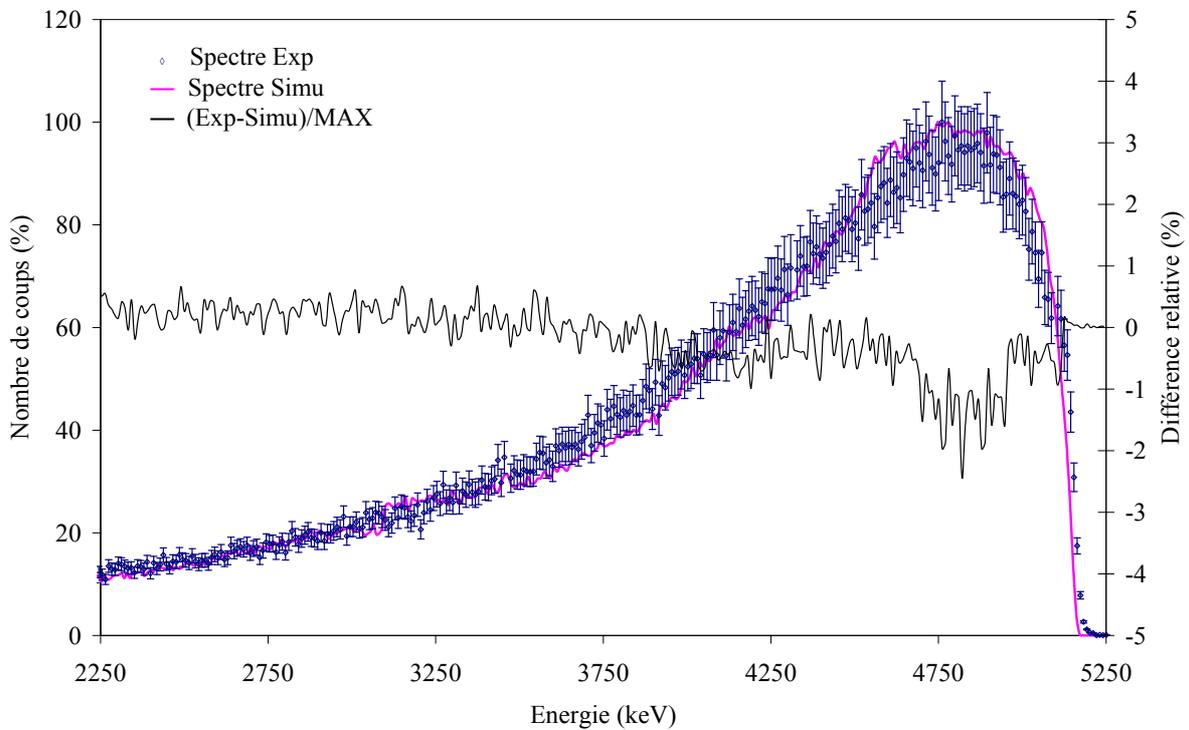


Figure IV.21 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des particules α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C569 préparé à une vitesse de filtration de $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ et un dépôt de masse de $2,65 \text{ mg.cm}^{-2}$.

Avec la formation de dépôt en surface, l'influence de la masse sur les facteurs F_α est retrouvée par simulation. Précédemment, nous avons réussi à reproduire par les simulations MCNPX les spectres en énergie α des filtres B132 et C569 chargés en masses d'aérosols déposés sur la surface. La détermination du facteur F_α de la radioactivité dans un filtre simulé se fait de la même façon que dans le paragraphe précédent. Les valeurs mesurées par la méthode expérimentale et celles calculées par la méthode MCNPX sont comparées. Les valeurs expérimentales obtenues sont égales à $(5,15 \pm 0,71)$ et $(5,30 \pm 0,78)$ respectivement pour les filtres B132 et C569. Cette valeur est comparable aux valeurs obtenues par simulation de $(5,02 \pm 0,19)$ et $(5,41 \pm 0,81)$ respectivement pour les filtres B132 et C569. Un bon accord entre les facteurs F_α simulés et expérimentaux est traduit par un écart maximal de 2,5 % et de 1,8 % trouvé respectivement pour les deux cas.

2.11. Simulation numérique du taux de détection pour les géométries d'un filtre C357 avec tirage biaisé dans tout le cylindre.

Le taux de détection $(T_\alpha)_D$ d'une géométrie, formée d'une source et d'un détecteur, est un paramètre majeur pour la détermination de l'activité réel dans un échantillon. C'est le rapport entre le flux des rayonnements α émergeant de la surface du filtre et le flux compté au niveau du détecteur. Le taux de détection $(T_\alpha)_D$ dépend de l'angle solide Ω du détecteur et de la profondeur z dans l'épaisseur du filtre, qui varie selon la nature du filtre et le dépôt d'aérosols. Ce paramètre n'est pas facilement mesurable dans les laboratoires faute de filtre étalon représentatif des filtres prélevés dans l'environnement. Par ailleurs, nous venons de voir qu'il est calculable à l'aide de MCNPX. Les résultats des taux de détection des géométries testées sont affichés dans le tableau IV.6. Une différence relative inférieure à 10 % est trouvée entre les valeurs estimées du taux $(T_\alpha)_D$ expérimentalement et les vraies valeurs déterminées par des simulations.

Tableau IV.6 : Comparaison du taux de détection calculé pour des modélisations de filtre et le taux de détection expérimental de notre détecteur. Les incertitudes statistiques (%) ($k = 1$) associées avec chaque taux sont aussi montrées.

Vitesse de filtration $m.s^{-1}$	$(T_\alpha)_D$ Exp %	$(T_\alpha)_D$ MCNPX %	(MCNPX-Exp)/MCNPX
1	$33,10 \pm 0,53$	$36,48 \pm 0,21$	9,2 %
9	$33,10 \pm 0,53$	$36,62 \pm 0,21$	9,6 %

2.12. Conclusion

Dans cette partie, les méthodes MC sont appliquées pour simuler le parcours et l'interaction des particules α dans un médium filtrant. Les géométries de modélisation des filtres et les choix de physique des α ont été proposés en lien avec le sujet. Des résultats expérimentaux sur la pénétration des aérosols dans les filtres (chapitre III) ont été intégrés dans la modélisation des géométries filtres. Cette modification est importante pour reproduire les spectrométries α et par conséquent, pour calculer les facteurs de correction de l'activité absorbée dans le filtre. Ces résultats de simulation de spectres en énergie et de facteurs de correction ont montré de très bons accords avec les expériences. Le taux de détection calculé est sous-estimé de $\sim 10\%$ par rapport au taux pris habituellement pour la détermination de la radioactivité réelle existante dans les filtres. Cette valeur est du même ordre de grandeur que les valeurs d'incertitudes associées aux mesures de radioactivité, ce qui n'est pas négligeable pour la radioprotection.

3. Application des simulations GeoDict et MCNPX à l'étude numérique de l'auto-absorption des rayonnements α dans les filtres de surveillance de la radioactivité

Une fois les deux codes GeoDict et MCNPX validés séparément pour notre application de simulation numérique de la dégradation de la radioactivité dans les filtres de prélèvement, nous allons étudier le couplage des résultats issus des deux codes afin de déterminer numériquement les facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans les filtres.

L'idée principale de cette méthode est d'utiliser les avantages du code GeoDict pour connaître les profils de pénétration des aérosols dans le filtre afin d'améliorer la modélisation du filtre dans le code MCNPX et ainsi permettre une simulation véritable de la dégradation de l'énergie des rayonnements α émis par les aérosols radioactifs dans le filtre. En effet, il est possible de calculer le profil de pénétration des aérosols dans le médium, puis de l'intégrer dans la modélisation du filtre avec le code MCNPX afin de simuler les spectres en énergie des rayonnements α et ainsi déterminer numériquement les facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans le médium filtrant.

Cette méthode de détermination numérique des facteurs de correction est rapide et simple à mettre en œuvre pour des filtres préparés avec diverses conditions aérauliques de filtration.

Afin de valider cette méthode, les spectres en énergie des rayonnements α ainsi que les facteurs de correction simulés sont comparés à ceux mesurés expérimentalement pour un type de filtre jamais testé auparavant.

3.1. Simulation GeoDict du profil de pénétration des aérosols dans les filtres

Dans cette étude, un filtre B. Dumas C577 (nommé aussi filtre « Rose ») d'épaisseur $480 \pm 20 \mu\text{m}$ est modélisé. Il est composé d'un mélange de fibres de cellulose et de fibres de verre avec amiante. Ce type de filtre a été choisi du fait de sa porosité (de 78 %), qui est plus faible que celle des autres types de filtre étudiés antérieurement, et aussi, parce qu'il est régulièrement utilisé dans la surveillance de l'environnement.

Les premières simulations sont réalisées sur des géométries de $128 \times 128 \times 178$ voxels (des voxels parallélépipédique de côtés N_x et N_y égaux à $2,6 \mu\text{m}$). Les fibres du filtre C577 ont une densité égale à 2 g.cm^{-3} ; elles sont modélisées en forme cylindrique, de diamètre moyen de $7 \mu\text{m}$ avec une distribution log-normale de σ égal à 1,4. Elles sont orientées isotropiquement dans le filtre. La structure du filtre est complétée avec de la résine (colle) de densité de

1,7 g.cm⁻³ et de compacité de 20 % sur les derniers 120 µm du filtre de 480 µm d'épaisseur totale. Pour une vitesse de 1 m.s⁻¹, l'équation de Navier-Stokes-Brinkmann est utilisée.

La méthode lagrangienne décrite précédemment permet le suivi des aérosols et ainsi la simulation de la filtration. Ces aérosols sont de forme sphérique avec une distribution granulométrique qui suit une loi log-normale de diamètre moyen de 0,4 µm avec un σ_g de 1,4. Le profil de pénétration obtenu à l'aide du code GeoDict est présenté sur la figure IV.22. Il sera utilisé ultérieurement comme indicateur de la densité de présence de sources émettrices α dans le code MCNPX. En effet, le filtre est discrétisé en plusieurs couches d'épaisseur constante, chacune ayant sa masse volumique et sa densité de probabilité d'émission des rayonnements α connue.

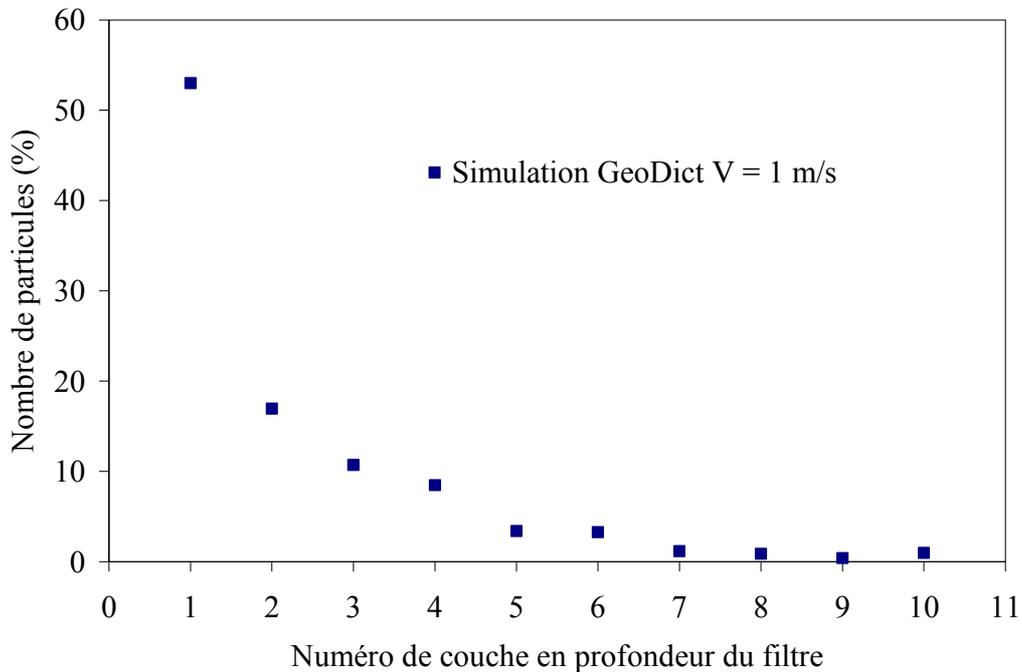


Figure IV.22: Simulation du profil de pénétration des aérosols de DAMA de 0,4 µm ($\sigma = 1,4$) dans le filtre C577 à une vitesse de filtration de 1 m.s⁻¹.

3.2. Simulation MCNPX de la spectrométrie α de la radioactivité du filtre

Dans les simulations GeoDict, le nombre d'aérosols pénétrants a été discrétisé sur des épaisseurs successives du filtre. Cette distribution d'aérosols est implémentée dans le code MCNPX sous forme de densité de tirage des rayonnements α dans les successions de couches du filtre modélisé. Le spectre en énergie des rayonnements α arrivant au détecteur (positionné à une distance de 3 mm du filtre) est ainsi simulé avec le code MCNPX. La figure IV.23 montre le spectre simulé à l'aide du code MCNPX.

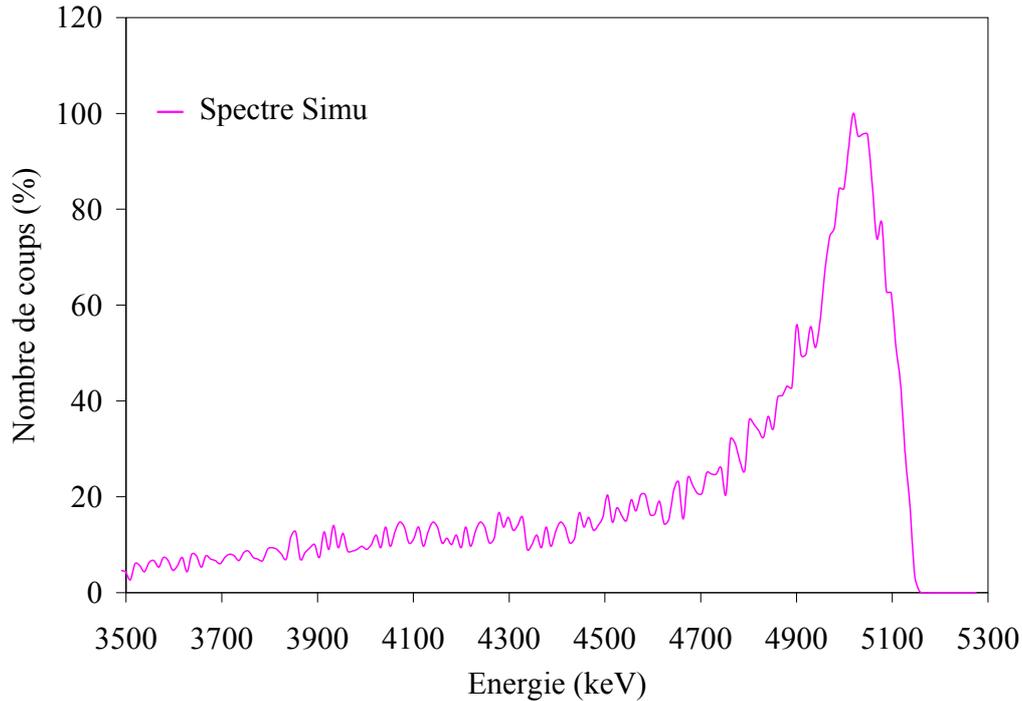


Figure IV.23 : Spectre en énergie des rayonnements α simulés, montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C577.

3.3. Mesures expérimentales

Le même filtre B. Dumas C577 (nommé aussi filtre « Rose ») d'épaisseur $(480 \pm 20) \mu\text{m}$ est utilisé pour effectuer des mesures en prenant en compte les mêmes hypothèses que dans les simulations. Les essais de préparation de filtres radioactifs se sont déroulés sur le banc ICARE décrit en chapitre II. Nous décrivons ici les hypothèses de la démarche expérimentale de la préparation des filtres « Roses » qui est la même que celle utilisée avant pour les filtres de référence. Les essais ont été effectués dans les conditions suivantes :

- l'aérosol utilisé est le sel CsCl de DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ ($\sigma = 1,4$) marqué par du ^{239}Pu ,
- la vitesse de filtration est de $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et
- les masses prélevées sur les filtres sont négligeables.

Au total, dix filtres « Roses » prélevant des aérosols radioactifs sont réalisés sur le banc ICARE. Ils subissent tous des mesures en spectrométrie α puis en SL. Le spectromètre utilisé est un PIPS de ORTEC Incorporated (model U-035-1200-100). Pendant l'acquisition du spectre, la pression d'air dans la chambre de détection est maintenue à $0,2 \text{ Pa}$ et la distance entre la source et le détecteur est fixée à 3 mm . La SL est ensuite utilisée pour la mesure de la radioactivité réelle dans le filtre.

La figure IV.24 montre la comparaison de ce spectre simulé avec celui mesuré expérimentalement avec le spectromètre PIPS. L'analyse de cette figure met en évidence un bon accord entre les deux spectres aux incertitudes statistiques près, la différence relative maximale étant inférieure à 0,5 %. Ces résultats valident ainsi les simulations de la pénétration des aérosols et du transport des rayonnements α dans les filtres. Le calcul du rapport entre l'activité mesurée par spectrométrie α sur la surface totale du spectre et l'activité mesurée par la SL donne le facteur de correction expérimental égal à $5,81 \pm 0,71$.

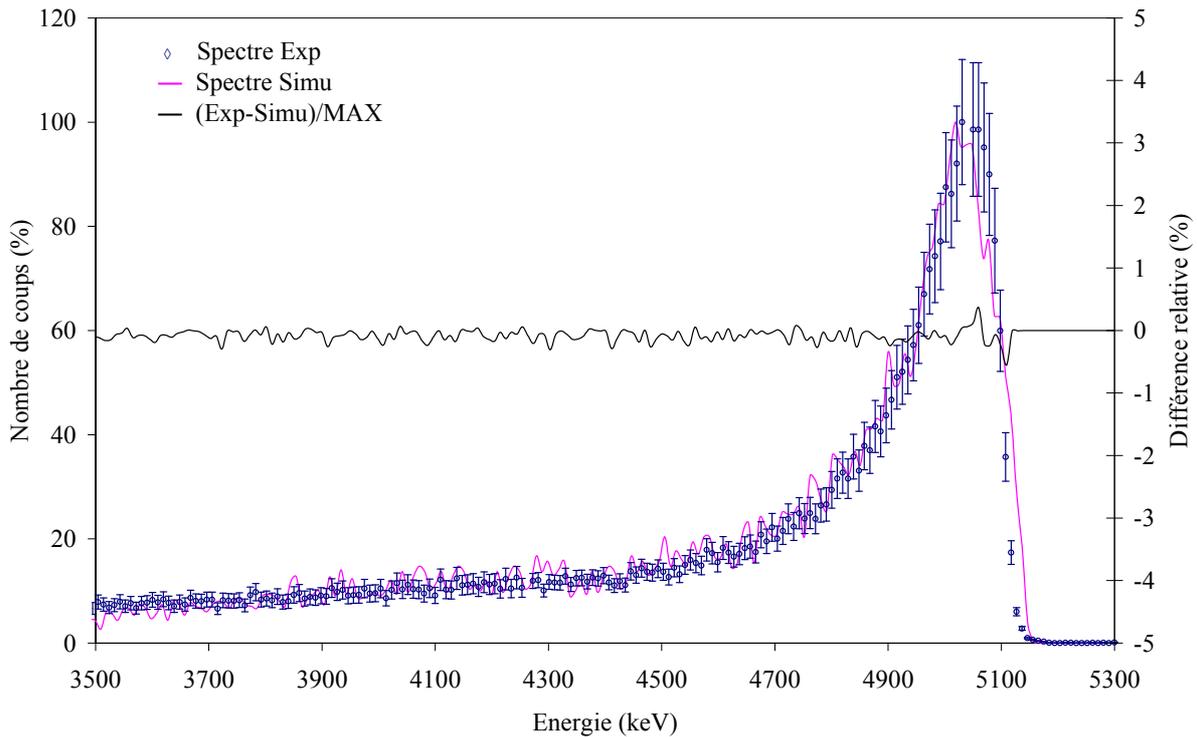


Figure IV.24: Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C577 préparé à une vitesse de filtration de 1 m.s^{-1} .

Plusieurs paramètres de spectrométrie sont évalués afin de valider les simulations : la largeur FWHM, la forme de la traîne du spectre et le décalage du spectre vers les basses énergies. Les valeurs simulées de ces paramètres ainsi que celles mesurées expérimentalement sont regroupées dans le tableau IV.7.

Tableau IV.7 : Comparaisons des caractéristiques du spectre simulé et expérimental. Les incertitudes statistiques ($k = 1$) associées à chaque valeur sont également indiquées.

Spectre	FWHM (keV)	PSP (keV)	Shift (keV)
Expérimental	180 ± 10	330 ± 14	130 ± 8
Simulé	200 ± 10	340 ± 12	140 ± 8

Les profils de pénétration des particules simulés peuvent donc être utilisés avec confiance et vont nous permettre ensuite de trouver les facteurs de correction pour n'importe quelles conditions de filtrations et de filtre.

3.4. Détermination de facteurs de correction de la radioactivité pour le filtre C577

Le facteur de correction de l'absorption de la radioactivité dans un filtre est déterminé en considérant le rapport des impulsions arrivant au détecteur $(Cp/s)_D$ sur le nombre total d'événements créés dans le filtre par seconde dans l'angle solide de détection (NPS) . $(Cp/s)_D$ est calculé sur la surface totale du spectre simulé avec MCNPX. Ce rapport est indépendant de la valeur totale de radioactivité dans le filtre. C'est donc un moyen d'évaluer les dégradations d'activité dans les filtres sans avoir recours à l'expérience.

Le facteur de correction du filtre « Rose » a été déterminé numériquement. La valeur obtenue est égale à $(6,11 \pm 0,29)$. Cette valeur est comparable à la valeur obtenue expérimentalement $(5,81 \pm 0,71)$. Un écart maximal entre ces valeurs de 4,9 % est trouvé.

4. Conclusion

Cette partie a exposé une méthode numérique de détermination de la dégradation de la radioactivité dans les filtres de prélèvement et ainsi du facteur de correction de l'absorption de la radioactivité. Il s'agit d'abord de calculer, avec le code GeoDict, le profil de pénétration des aérosols dans le médium filtrant. Ce profil est ensuite intégré dans la modélisation géométrique du filtre dans le code MCNPX afin de simuler le spectre en énergie des rayonnements α et ainsi le facteur de correction. La bonne concordance entre les résultats simulés et mesurés valide cette méthode.

Cette étude a montré la simplicité de mise en œuvre de cette méthode numérique ainsi que sa rapidité par rapport à la procédure expérimentale. En effet, pour déterminer expérimentalement les facteurs de correction, un filtre de référence est indispensable. Un autre intérêt majeur de cette méthode est qu'elle permet de s'affranchir de la nécessité de réaliser une étude expérimentale complexe pour connaître les facteurs de correction. Nous venons donc de prouver la validité de notre méthode numérique de la détermination des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans les média filtrant.

CONCLUSIONS GENERALES

La surveillance de la radioactivité α dans l'air se fait à l'aide de prélèvements séquentiels sur filtre. Cette étape est suivie d'un comptage de rayonnements α afin de déterminer la radioactivité échantillonnée. Le comptage par un spectromètre ou un compteur proportionnel est cependant souvent biaisé par l'absorption de ces rayonnements dans le filtre et les masses d'aérosols accumulées en profondeur et en surface du filtre. Les méthodes de mesure de radioactivité dites destructives permettent de trouver des facteurs de correction de la radioactivité perdue dans le filtre.

Dans ce contexte, ce travail de thèse a consisté à étudier la pénétration des aérosols radioactifs dans les filtres de prélèvement afin de déterminer expérimentalement et numériquement les facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité α dans les filtres de surveillance de l'air dans diverses configurations expérimentales.

Nous avons d'abord donné une brève description des principales lois physiques auxquelles sont soumis les aérosols lors de la filtration des radioéléments dans l'air ainsi que lors de la mesure nucléaire. Une revue des facteurs physiques dégradant la réponse nucléaire a été également étudiée.

A l'issue de cette étude, les paramètres physiques à prendre en compte dans la grille d'expériences ainsi que les outils recommandés pour le bon déroulement de la préparation des filtres de référence ont été repérés.

Nous avons ensuite préparé des expériences visant à élaborer des filtres radioactifs de référence (étalons) en tenant compte des paramètres physiques réels. Ces filtres de référence sont nécessaires pour la détermination expérimentale des facteurs de correction. Les expérimentations ont été effectuées sur le banc d'essais ICARE. Des expériences préliminaires ont permis de valider la granulométrie des aérosols. Des DAMA de 0,4 μm et de 4 μm ont été produits à l'aide d'ICARE et validés par des instruments de mesure par principe d'impaction inertielle des aérosols. Un porte filtre a été fabriqué afin d'assurer une uniformité de la vitesse de filtration et une homogénéité du dépôt de la radioactivité sur la surface du filtre. Les paramètres de filtration liés à la production des filtres radioactifs de référence ont été également vérifiés.

Une grille d'expériences a ensuite été étudiée afin de construire une base de données expérimentale, en favorisant les phénomènes physiques qui amplifient la dégradation de la radioactivité. Cette grille a permis d'élaborer des filtres de référence en granulométrie et en radioactivité. Les mesures de la radioactivité artificielle dans ces filtres ont été réalisées successivement à l'aide de détecteurs de rayonnements ionisants et par SL.

A l'issue de cette étude expérimentale, les mesures sur les filtres de référence ont été utilisées pour la détermination des facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité dans les filtres pour diverses conditions de prélèvement et de mesure nucléaire.

Ensuite, l'influence des mécanismes de dépôt des aérosols radioactifs dans les filtres sur la mesure de la radioactivité a été présentée. Des facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité ont été ainsi déterminés expérimentalement.

La première partie de ce travail a étudié la pénétration des aérosols dans le médium filtrant. Il en ressort que la pénétration des aérosols suit une loi exponentielle jusqu'à une certaine profondeur du filtre. Cette profondeur est en général supérieure à la limite de profondeur détectable des rayonnements α .

La deuxième partie a concerné la problématique de la mesure nucléaire avec les détecteurs de rayonnements α qui nécessitent la détermination de facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité. Il ressort de cette étude que les facteurs de correction de la radioactivité dans les filtres sont généralement compris entre 3 et 6 sans prendre en compte le taux de détection des appareils de mesure qui est dépendant du type et de la configuration du détecteur.

La troisième partie a étudié l'influence des masses d'aérosols prélevés, en profondeur puis en surface du filtre, sur la dégradation de la mesure nucléaire. Un point de transition entre la filtration en profondeur et celle en surface a été mis en évidence. Ce point de transition indique une augmentation des facteurs de correction suivie d'une chute causée par la dissipation des rayonnements provenant de l'intérieur du filtre. La prolongation du temps de filtration favorise l'accumulation des masses d'aérosols sur les filtres conduisant ainsi à une amplification très rapide des facteurs de correction (> 6) après une masse de valeur $0,2 \text{ mg cm}^{-2}$.

La dernière partie de ce chapitre a été consacrée à l'évaluation, par la spectrométrie α , de la dégradation de la radioactivité dans les filtres (B132 et C569) et dans les masses d'aérosols accumulés. Plusieurs paramètres caractérisant les spectres (FWHM, PSP et « shift ») ont été ainsi évalués. La dégradation des spectres en énergie s'effectue au fur et à mesure de l'augmentation des masses accumulées.

Enfin, une nouvelle méthode numérique de détermination des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans les filtres de prélèvement en simulant la dégradation de la mesure de la radioactivité dans ces filtres a été exposée. Il s'agit de coupler les simulations GeoDict (code de dynamique des fluides) avec les simulations MCNPX (code de simulation du transport des rayonnements) afin de déterminer ces facteurs. Un intérêt majeur de cette méthode est qu'elle permet de s'affranchir de la préparation d'un grand nombre de filtres de référence qui sont indispensables pour la détermination expérimentale des facteurs de correction. La simplicité de la mise en œuvre des simulations numériques et surtout la disponibilité des modèles physiques de filtration et du transport des rayonnements dans la matière rendent les simulations réalisables.

La première partie de ce travail a décrit le code GeoDict utilisé dans cette étude pour la simulation numérique de la filtration et du profil de pénétration des aérosols dans un médium. Le code a été validé pour nos cas de filtration. Il est utilisable pour simuler la filtration des aérosols de diamètre allant de 0,1 à 8 μm avec des vitesses de filtration allant de 5 à 150 $\text{cm}\cdot\text{s}^{-1}$. Une comparaison des résultats simulés avec ceux issus de la base de données expérimentale de filtration a été effectuée en vue de la validation du code. Le bon accord obtenu entre les résultats expérimentaux et simulés a validé les simulations avec GeoDict.

La deuxième partie a décrit le code MCNPX utilisé dans cette étude pour la simulation numérique de la dégradation de l'énergie des rayonnements α dans un médium filtrant. Les simulations avec ce code ont été validées, dans le cas de géométries simples, par comparaison avec les résultats de la base de données expérimentales de spectrométrie α obtenues dans le chapitre III.

La dernière partie de ce travail a décrit la méthode de détermination numérique des facteurs de correction de l'absorption de la radioactivité dans un médium filtrant en couplant les simulations GeoDict avec les simulations MCNPX. En effet, le profil de pénétration des aérosols dans le médium, simulé avec GeoDict, est utilisé dans la modélisation du médium avec le code MCNPX afin de simuler le transport réel des rayonnements α dans ce médium. Le couplage de ces deux codes a permis de simuler les spectres en énergie tout en reproduisant la dégradation de l'énergie ainsi que les facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité dans un médium filtrant. Les résultats simulés ont été comparés aux mesures expérimentales obtenues par spectrométries α de filtres de référence afin de valider le modèle numérique. La bonne concordance observée entre les deux résultats valide la méthode mise au point et montre sa robustesse.

Ce travail de thèse a montré l'effet de la granulométrie, la vitesse de filtration, le type de filtres ainsi que les masses d'aérosols accumulées sur la mesure nucléaire. Il a permis ainsi de développer une nouvelle méthode numérique de détermination de la dégradation de la radioactivité dans les filtres de surveillance de l'air. Cependant, les perspectives de notre travail devraient porter sur l'étude expérimentale d'autres paramètres (granulométries ultrafines des aérosols, vitesses de filtration supérieures à $1,25 \text{ m.s}^{-1}$) afin de trouver éventuellement d'autres facteurs de correction et d'élargir ainsi la validité de l'utilisation des codes MCNPX et GeoDict pour le cas de colmatage des filtres qui demande des calculateurs plus puissants. Par ailleurs, d'autres expériences doivent être conduites avec des aérosols émetteurs bêta afin d'étudier les facteurs de correction de la radioactivité correspondante dans les filtres notamment pour les rayonnements bêta de faible énergie. La simulation numérique de ces facteurs de correction avec le code MCNPX paraît possible.

Références

- ALCANTARA, R. (2000). Studies of the Effect of Dust Loading on the Alpha-Particle Energy Spectrum for Radioactive Aerosol Particles Deposited on Filters, M. S. *Thesis, New Mexico Institute of Mining and Technology, Socorro, NM.*
- AMMERICH, M. (1989). Réalisation d'une installation d'étalonnage de moniteurs de contamination atmosphérique à l'aide d'aérosols radioactifs calibrés (ICARE). *Rapport technique CEA-R-5484.*
- BARKER E., P. BOUISSET. (2001). Evolution de la radioactivité en France, Métropole et en Outre-mer, dans les aérosols et les retombées depuis la mise en place de l'observatoire atmosphérique de l'IPSN. *Rapport technique IPSN/DPRE/SERNAT/2001-27.*
- BARON, PA., K. WILLEKE. (2001). Aerosol measurement principles, techniques, and applications, 2nd edition. *Wiley Interscience, New York 2001.*
- BERGER, MJ. (1963). Monte Carlo Calculation of Penetration and Diffusion of Fast Charged Particles, in *Methods in Computational Physics, Vol 1. Academic Press, New York .*
- BERGMAN, W., RD. TAYLOR, HH. MILLER. (1978). 15th DOE Nuclear Air Cleaning Conference, CONF-780819, BOSTON.
- BECKER, J., A. WIEGMANN and S.VOLKER. (2007). Fraunhofer Institut für Techno- und Wirtschaftsmathematik, Fraunhofer Platz 1, 67663 Kaiserslautern, Germany.
- BILLARD, F., G. CHEVALIER, J. PRADEL. (1960). Etude de matériaux filtrants et d'appareils de protection à l'aide d'aérosols radioactifs. *Rapport technique CEA 1524.*
- BIRKS, J.B. (1958). Scintillation Counters. *Pergamon Press.*
- BLANCHIS, S. (1997). ANGESOL logiciel de calcul d'angle solide. Note technique CEA/LNHB 97/020. www.nucleide.org/logiciels.htm.
- BOULAUD, D., A. RENOUX. (1998). Les aérosols Physique et métrologie, *Lavoisier.*
- BRIESMEISTER, J. F. (1997). MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, *Rapport technique LA-12625-M.*
- BRIESMEISTER, J. F., Ed., (2000). MCNP - A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 4C. *Rapport technique LA-13709-M.*
- BROWN, R.C, D. WAKE. (1991). Air filtration by interception theory and experiment. *J. Aerosol Science 22(2): 181-186.*
- BOURJEOIS, Ch. (1994). Compteur gazeux : des processus de base aux détecteurs, *Ecole Joliot-Curie.*

- CALMET, D., P. BOUISSET, G. KERLAU, J. ALLENOU. (1994). Les observatoires permanents de la radioactivité de l'IPSN. Evolution du césium-137 dans les aérosols atmosphériques entre 1958 et 1994. International Conference on " Radiation and society : *Comprehending Radiation Risks* ", 24-28 octobre 1994, Paris.
- CASSETTE, Ph. (2001). Mesure de radioactivité par scintillation liquide, LNHB CEA/BNM, *Techniques de l'ingénieur*.
- CHARMASSON, S., E. BARKER, D. CALMET, AS. PRUCHON, H. THEBAULT. (1999). Long term variations of man-made radionuclide concentrations in a bio-indicator *Mytilus galloprovincialis* from the French mediterranean coast''. *The Science of the Total Environment*, 237/238, 93-103.
- CHARUAU, J., P. LETOURNEAU. (1993). Choix des filtres de prélèvement d'aérosols. Performances des filtres sélectionnés par le CEA. *Rapport technique IPSN/DPEI/SERAC/5.3.6. (HP29)*.
- CIPR, (1994). Surveillance individuelle de l'exposition interne des travailleurs. ICRP Publication 68, *Nucléon*.
- CHENG, Y.S., R. A. GUILMETTE Y. ZHOU, J. GAO, T. LABONE, J. J. WHICKER, M. D. HOOVER. (2004). Characterization of plutonium aerosol collected during an accident. *Health physics journal* 87(6):596-605.
- DAVIES, C.N. (1966). *Aerosol sciences Academic Press, LONDRES, 408*.
- DEL FABBRO, L. (2001). Modélisation des écoulements d'air et du colmatage des filtres plissés par des aérosols solides. *Thèse de doctorat de l'Université Paris XII soutenue publiquement le 20 juin 2001*.
- DORRIAN, MD. and MR. BAILEY. (1995). Particle size distributions of radioactive aerosols measured in workplaces. *Radiat. Prot. Dosi. Vol. 60 (2) pp. 119-133*.
- FRISCH, U., D. D'HUMIERES, B. HASSLACHER, P. LALLEMAND, Y. POMEAU, et J.-P. RIVET. (1987). Lattice gas hydrodynamics in two and three dimensions. *Complex Systems 1*, pp. 649-707.
- ITWM, Fraunhofer Institut für Techno- und Wirtschaftsmathematik, *Jahresberichte 2000 - 2002*.
- GERYES, T. (2007). Etude de la dégradation, de l'énergie des rayonnements alpha et bêta dans les filtres de surveillance de l'activité atmosphérique. *Rapport technique IRSN/DSU/SERAC/LPMA/07- 04*.

- GERYES, T., C. MONSANGLANT-LOUVET, E. GEHIN, L. BERGER. (2009-a). Alpha particles energy spectra simulation with Monte Carlo code MCNPX for radioactive aerosol filters. *Heal Phys.*: August 2009, Vol(97), Nbr 2.
- GERYES, T., C. MONSANGLANT-LOUVET, E. GEHIN. (2009-b). Experimental and simulation methods to evaluate the alpha self-absorption factors for radioactive aerosol fiber filters. En cours de révision pour le journal *Radiation Measurements*.
- GEORGI, B. and J. TSCHERSCH. (1987). Particle size distribution measurements of radionuclides from Chernobyl. Proceedings of the experts meeting at ISPRA, *EUR 11755 EN*, p. 99-111.
- GENSDARMES, F. and S. PONTREAU (2007). Comparaison de trois méthodes d'analyse de la granulométrie d'un aérosol avec un impacteur en cascade Andersen MARK II. *Rapport technique DSU/SERAC/LPMA/07-01*.
- GENSDARMES, F., D. BOULAUD and RENOUX A. (2001). Electrical charging of radioactive aerosols. Comparison of the Clement-Harrison models with new experiments. *J Aerosol Science* 32, 1437-1458.
- GINZBURG, I. and K. STEINER. (2003). A lattice Boltzmann model for free-surface flow and its application to filling process in casting. *J. Comp. Phys.* 185,61.
- GORRY, J. and JP. PEROLAT. (1969). Mesure des émetteurs α par la méthode de l'angle solide défini. *Rapport technique CEA-R-3899*.
- GRIVAUD, L. and F. PAGLIARDINI. (2004). Mesure de la radioactivité α des aérosols prélevés sur filtres C357. *Rapport technique t LPMA/SERAC/DSU/IRSN*.
- HAPPEL, J. (1959). Viscous flow relative to arrays of cylinders. *AICHE J.* 2 (2) 174-177.
- HEINRICH L. and M. WERNER. (2000). Kernel estimation of the diameter distribution in boolean models with spherical grains. *J. of Nonparametric Statistics*, 12:147-176.
- HENDRICKS, JS., GW. MCKINNEY, LS. WATERS. (2004). MCNPX extensions, Version 2.5.0. *Rapport technique LA-13789-M*.
- HIGBY, DP. (1984) Effects of particle size and velocity on burial depth of airborne particles in fiber filters. *Springfield, VA: national technical information service*.
- HINDS, CW. (1999). Aerosol technology properties, behaviour, and measurement of airborne particles, second edition. *Wiley, New York* 1999.
- HUANG, S., SD. SCHERY, R. ALCANTARA, JC. RODGERS, P. WASIOLEK. (2002). Influence of dust loading on the alpha-particle energy resolution of continuous air monitors for thin deposits of radioactive aerosols. *Heal. Phys.*: Vol. 83(6) pp 884-891.

- ILIEV, O., V. LAPTEV. (2004). On numerical simulation of flow through oil filters. *J. Comp. and Visual. in Sci.*, 6, 2004, p139- 146.
- ISHII, M. and N. ZUBER. (1979). Study of two-phase flows in reduced gravity using ground based experiments. *AIChEJ.* 25, 843.
- JONASSEN, N. and E. HAYES. (1974) Absorption of 5.47 MeV α particles by membrane filters material. *Health physics* 27 (Sep.) 313-316.
- JORDAN, DW. (1954). The adhesion of the dust particles, *J. Appl. Phys., Suppl.* 3, S194-S198.
- JUNK, M. (2001). A finite difference interpretation of the lattice Boltzmann method, Number. *Methods Partial Differ. Equations* 17, pp. 383-402.
- JUNK, M. and Z. YANG. (2003). Analysis of lattice Boltzmann boundary conditions, submitted to *the proceedings of GAMM 2003*.
- KANAOKA, C. and S. HIRAGI. (1990). Pressure drop of air filter with dust load. *J. Aerosol Sci.*, 21 (1), 127.
- KEHRWALD D. (2004). Parallel lattice Boltzmann simulation of complex flows, Proceedings of the NAFEMS Seminar "Simulation of Complex Flows (CFD)", Niedernhausen, 2004. ParPac web site: <http://www.itwm.fhg.de>.
- KINOUSHI, N., T. OISHI, H. NOGUCHI, S. KATO, M. ISHIZAWA. (2001). Selection of filter media in α air monitors for emergency environmental monitoring. *Radio-isotopes* V.50 (9) P.403-407.
- KITTEL, C. (1998). Physique de l'état Solide, 2^{ème} cycle Ecoles d'Ingénieurs, 7^{ème} édition 1998, DUNOD.
- KNOLL, FG. (2000) Radiation detection and measurement, third edition. *New York: John Wiley and Sons* 2000.
- KRAFT, G., and K. LANGBEIN. (1998). In 6th Workshop on heavy charged particles in biology and medicine. *Rapport technique GSI Report 97-09*.
- LAPTEV, V. (2004). Numerical Solution of Coupled Flow in Plain and Porous Media, *PhD Thesis, University of Kaiserslautern, 2004*.
- LATZ A. and A. WIEGMANN. (2003). Simulation of fluid particle separation in realistic three dimensional fiber structures, *Filtech Europa, Düsseldorf, October 2003*.
- LEHMER, DH. (1951). Mathematical Methods in Large-Scale Computing Units, *Ann. Comp. Lab., Harvard Univ.* 26, 141-146.
- LEO, WR. (1994). Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments: A How-To Approach. *Springer-Verlag, Heidelberg*

www.kvi.nl/~wortche/detectors2003/detectors2003_files/interaction.pdf

- LETOURNEAU, P., V. RENAUDIN, J. VENDEL. (1992). Effects of the particle penetration inside the filter medium of the HEPA filter pressure drop. 22th DOE Nuclear Air Cleaning conference, *CONF-780819, DENVER. 128-143.*
- LJUNGBERG, M., SE. STRAND, MA. KING. (1998). Monte Carlo Calculations in Nuclear Medicine. *Bristol, U.K.: IOP, 1998.*
- LUETZELSCHWAB, JW., C. STOREY, K. ZRALY, D. DUSSINGER. (2000). Self absorption of α and β particles in a fibreglass filter. *Health physics 79(4)425-430.*
- LOFFLER, F. (1968). Über die haftung von staubteilchen an faser- und teichenoberflächen. *Staub Reinhalt luft, 28, 456-462.*
- TALBOT, L., R.K.CHENG, R.W.SCHEFER, ET D.R.WILLIS. (1980). Thermophoresis of particles in a heated boundary layer. *Journal of Fluid Mechanics 101, 737-758.*
- TURNER, J.E, (1995). Atoms, radiation, and radiation protection, 2nd edition, *Wiley, New York 1995.*
- THERMO ELECTRON CORPORATION. (2000). Eight stage non-viable impactor instruction manual; *Rapport technique SERIES 20-800 P/N 100073-00.*
- LUETZELSCHWAB, J.W, C. STOREY, K. ZRALY. (2000). Self absorption of α and β particles in a fibreglass filter. *Health physics 79(4)425-430.*
- MADELAINE, G. (1963). Pouvoir d'arrêt des différents filtres. *Rapport CEA R-2432.*
- MAQUENHEM, T. (2005). Validation d'un générateur d'aérosols pour produire des particules de même diamètre aérodynamique mais de masses volumiques différentes. *Rapport de stage DUT Mesures Physique, IUT Orsay.*
- MANTON, J. (1978). The impaction of aerosols on a nuclepore filter. *Atmos. Environ., 12, 1669-1677.*
- MANTON, J. (1979). Brownian diffusion of aerosols to the face of nuclepore filter. *Atmos. Environ., 13, 525-537.*
- MARSAGLIA, G., A. ZAMAN, WW. TSANG (1990). Toward a universal random number generator, *Letters in Statistics and Probability 1990.*
- METROPOLIS; N. and S. ULAM. (1949). The Monte Carlo Method. *Journal of the American Statistical Association, Vol. 44, No. 247, pp. 335-341.*
- MCNAMARA, GR., and G. ZANETTI. (1988). Use of the Boltzmann Equation to Simulate Lattice-Gas Automata. *Phys. Rev. Lett. 61, 2332 – 2335.*
- MCNPX TEAM, MCNPX. version 2.4.0, (2002). Los Alamos Natl. Lab. Los Alamos, N. M. *Rapport technique. LA-UR-02-5253.*

- MIECRET, G. and J. GUSTAVSSON. (1989). Mathematic expression of HEPA filters efficiency experimental verification practical alliance to new efficiency test methods. *Contaminexpert, Versailles, France.*
- MILLIES-LACROIX, J.C. (1998). Seuil de décision et limite de détection, application aux mesures de radioactivité. *Rapport technique GTN5/CTHIR/SERAC/DSU/IRS.*
- MILLIKAN, R.A. (1923) Coefficients of slip in gases and the law of reflection of molecules from the surfaces of solids and liquids. *Phys. Rev., Series II, 21, 217 - 238.*
- MILTENBERGER, B. (1971), Détermination des pertes de comptage par autoabsorption sur les dépôts α , *Rapport technique CEA DAM 71-01-D0051 R.C.P.*
- MINI20, Manuel d'exploitation, (1998). *Rapport technique EURISYS MESURES.*
- MOHAGHEGHI, AH., F. GHANBARI, SB. EBARA, ME. ENGHUSER, SN. BAKHTIAR. (1998). Direct analysis of air filter samples for alpha-emitting isotopes. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol. 234, Nos 1 2 261 266.*
- MONSANGLANT-LOUVET C. et N. LIATIMI. (2005). Réalisation de filtres avec un dépôt d'aérosols radioactifs pour la mesure de l'activité β global, de l'activité d'un radionucléide émetteur β/γ et de l'activité du ^{90}Sr . *Rapport technique DSU/ SERAC /LPMA n°06-05.*
- MOORE, EM., AR. McFARLAND, J.C. RODGERS. (1993). Factors that affect alpha particle detection in continuous air monitor applications. *Health Physics July 1993, Volume 65, number 1.*
- NAUREEN, MR., T. LIDA, F. SAITO, J. KOARASHI, K. YAMASAKI, H. YAMAZAWA, J. MORIIZUMI. (2006). Evaluation of aerosols sizing characteristic of an impacteur using imaging plate technique. *Rad. Prot. Dis. 2006 1 of 11. doi:10.1093/rpd/ncl106.*
- NCRP (1987). Exposure of the population in the United States and Canada from natural background radiation. *Report No. 94, NCRP publication, 7910 Woodmont Avenue, Suite 800, Bethesda, MD 20814-3095.*
- OHSER, J., and F. MUCKLICH. (2000). Statistical Analysis of Microstructures in Materials Science. *John Wiley & Sons (2000).*
- PARNIANPOUR, H. (1967). Etude de la pénétration des aérosols dans les couches filtrantes. *Rapport technique CEA-R3347.*
- PAYATAKES, AC. and L. GRADON. (1980). Deposition of aerosols by convective Brownian diffusion for small, intermediate and large high particle Knudsen numbers. *American International Chemical Engineering journal 26, 443-454.*

- PAYET, S., D. BOULAUD, G. MADELAINE, A. RENOUX. (1992). Penetration and pressure drop of a HEPA filter during loading with submicron liquid particles. *Journal of Aerosol Science*, 7 723-735.
- PENICOT-BAUGE, P. (1998). Etude de la performance de filtres à fibres lors de la filtration d'aérosols liquides ou solides submicroniques. *Thèse de doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine soutenue publiquement le 23 octobre 1998*.
- PERRIN, M.L. (1985). Plutonium aerosols size distribution in a reprocessing plant and during decommissioning operations. *Proceedings of the Department of Energy at Napa Valley, PNL A 14225, p. 79-86*.
- PFRANG, A; K. SCHLADITZ, A. WIEGMANN, T. SCHIMMEL. (2007). Calculation of the evolution of surface area and free volume during the infiltration of fiber felts. *J. Chem. Vap. Depo 2007,13, 705-715*.
- PICKERING, S. (1984). The interpretation of alpha energy spectra from particulate sources. *Journal of Aerosol Science volume 15, number 5, 533-543*.
- PRAEL, R. E. and H. LICHTENSTEIN. (1989). User Guide to LCS: The LAHET Code System, *Rapport technique Los Alamos Natl. Lab. Los Alamos*.
- RENOUX, A., D. BOULAUD. (1998). Les aérosols; physique et métrologie, technique et documentation. *Lavoisier, Paris, 49-54*.
- RENAUDIN, V. (1991). Modélisation du colmatage de filtres à fibres. *Rapport technique DEA de l'Institut National Polytechnique de Grenoble*.
- RIEF, S, D. KEHRWALD, K. SCHMDT, A. WIEGMANN. (2007). Fraunhofer Software Tools GeoDict/FilterDict for the Simulation of Diesel Particulate Filters. NAFEM: Reliable Use of Numerical Methods in Upfront Simulations. Wiesbaden, Germany.
- RIEF S., A. LATZ, A. WIEGMANN. (2006). computer simulation of air filtration including electric surface charges in 3D fibrous microstructures. *Filtration 6 (2) 2006*.
- RUZER, L.S. and N. H.HARLY. (2005). Aerosols handbook, measurement, dosimetry, and health effects. P.563-565. *CRC press 2005*.
- SCHERY, S. (2001). Understanding radioactive aerosols and their measurement. Environmental science and technology library, *Kluwer Academic Publishers 2001*.
- SCHILLER, L. and A. NAUMAN. (1933). *VDI Zeits.*, 77, 318.
- SHAPIRO, J. (1954). On evaluation of the pulmonary radiation dosage from radon and its daughter products. *University of Rochester-298*.
- SISEPSKY, J. (1958). A method for determination of particle penetration depths in a filter. *Nature 182, 1437-1438*.

- SOUS-GROUPE GTN5. (1995). "Etalonnage et Géométries" Réalisation de source étalons discals pour la mesure de la radioactivité déposée sur les filtres de prélèvement atmosphérique par comptage α et β , *Rapport technique GTN5/SERAC/DSU/IRSN*.
- SPURNY, KR., JP. LODGE, Jr., ER.FRANK, DC. SHEESLEY. (1969). Aerosol filtration by means of Nuclepore filters : structural and filtration properties. *Environ. Sci. Technol.* 3, 453.
- SIISKONEN, T and R. PÖLLÄNEN. (2004). Simulation of alpha particle spectra from aerosol samples. *Applied Radiation and Isotopes* 60: 947-953; 2004.
- SIEGBAHN, K. (1966). Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy. Volume 1, *North-Holland publishing company Amsterdam*.
- SUCCI, S. (2001). The Lattice Boltzmann Equation for Fluid Dynamics and Beyond. *Clarendon Press. Oxford Science Press Inc., NEW YORK*.
- THOMAS, D. (2001) Etude de la filtration des aérosols par des filtres à fibres. *Habilitation à Diriger des Recherches de l'Université Henri Poincaré de Nancy, soutenue publiquement le 19 décembre 2001*.
- TURNER, JE. (1995). Atoms, radiation, and radiation protection, 2nd edition, *Wiley, New York*.
- VAN RIPER, KA. (1993). SABRINA User's Guide. *Rapport LA-UR-93-3696; 1993*.
- VAVILOV, PV. Ionization losses of high-energy heavy particles. *Soviet Physics JETP* 5, No. 5: 749; 1957.
- WHITCHER, R. (2002). Calculation of the average solid angle subtended by a detector to source in a parallel plane by a Monte Carlo method. *Radiat. Prot. Dosim.* 102: 365-369; 2002.
- WIEGMANN A., S. RIEF., A. LATZ. (2005). Virtual Material Design and Air Filtration Simulation Techniques inside GeoDict. Proceedings American Filtration and Separation Society annual conference, Atlanta, April 2005.
- WIEGMANN, A. (2004). GeoDict, *Fraunhofer ITWM*. <http://www.geodict.com>
- ZHAO, B., C. YANG, X. YANG, S. LIUB. (2008). Particle dispersion and deposition in ventilated rooms: Testing and evaluation of different Eulerian and Lagrangian models. *Building and Environment* 43, 388-397.
- ZIEGLER, JF. (2004). SRIM -TRIM 2003, *Nucl. Instrum. Methods Phys., Sect. B*, 219, 1027-1036.
- ZIEGLER, JF. (2006). The Stopping Ranges of Ions in Matter code *SRIM-2006*. <http://www.srim.org>

ANNEXE A

Etude de l'efficacité de collecte des différents mécanismes de filtration des aérosols sur des filtres à fibres

Le tableau A.1 regroupe les différents mécanismes de capture des aérosols par les fibres d'un filtre ainsi que leurs caractéristiques.

Quel que soit le type du filtre à fibres, l'efficacité du filtre est étroitement liée à celle des fibres qui le constituent. L'efficacité unitaire d'une fibre η correspond à la capacité de capture d'une fibre unique. Elle est donnée par la relation suivante (Baron *et* Willeke 2000) :

$$\eta = \frac{Y}{r_f} \quad (\text{A. 1})$$

où Y est le diamètre des aérosols capturés par la fibre de rayon r_f .

Cette relation est fondée sur le modèle à cellules de Kuwabara (Payet *et al.* 1991). Des auteurs comme Payet *et al.* (1991), Liu *et* Rubow (1990) *et* Gougeon (1995), ont construit des modèles semi-empiriques.

A partir du modèle d'écoulement à cellules de Kuwabara, l'efficacité unitaire de capture par diffusion η_d est donnée par (Payet *et al.* 1991) :

$$\eta_d = 1,6 \left(\frac{1-\alpha_f}{Ku} \right)^{1/3} Pe^{-2/3} C_d C'_d \quad (\text{A. 2})$$

$$C_d = 1 + 0,388 Kn_f \left(\frac{(1-\alpha_f) Pe}{Ku} \right)^{1/3} \quad (\text{A. 3})$$

$$C'_d = \left(1 + 1,6 \left(\frac{1-\alpha_f}{Ku} \right)^{1/3} Pe^{-2/3} C_d \right)^{-1} \quad (\text{A. 4})$$

où Kn_f est le nombre de Knudsen.

Pour caractériser un milieu dans lequel des particules se trouvent, une grandeur appelée nombre de Knudsen Kn_f relatif à la particule est introduite. Kn_f est défini comme le rapport du libre parcours moyen (λ) entre deux collisions des molécules sur le diamètre de la particule (d_p) :

$$Kn_p = \frac{2 \lambda}{d_p} \quad (\text{A. 5})$$

Pe est le nombre de Péclet (cf. tableau A.1),

α_f est la compacité du filtre *et*

Ku est le facteur hydrodynamique de Kuwabara, exprimé par :

$$Ku = -\ln\left(\frac{\alpha_f}{2}\right) - \frac{3}{4} + \alpha_f - \frac{\alpha_f^2}{4} \quad (\text{A. 6})$$

L'efficacité unitaire de capture par interception η_r est donnée par (Liu et Rubow 1990) :

$$\eta_r = 0,6 \left(\frac{1 - \alpha_f}{Ku} \right) \frac{R_i^2}{1 + R_i} C_r \quad (\text{A. 7})$$

$$C_r = 1 + 1,996 \frac{Kn_f}{R_i} \quad (\text{A. 8})$$

R_i est le nombre d'interception (cf. tableau A.1)

A partir du modèle d'écoulement à cellules de Kuwabara, l'expression de l'efficacité unitaire d'impaction inertielle η_i est donnée par (Gougeon 1995) :

$$\eta_i = \frac{0,0334 Stk^{3/2}}{1 + 0,0334 Stk^{3/2}} \quad (\text{A. 9})$$

Ainsi, η est calculée à partir des expressions des efficacités η_x de chaque mécanisme x pris séparément :

$$\eta = \sum_{x=1}^N \eta_x \quad (\text{A. 10})$$

Certains auteurs considèrent qu'en présence de deux mécanismes simultanés, un terme d'efficacité d'interaction doit être ajouté à la somme des efficacités individuelles dues à chaque mécanisme pris séparément. Stechkina et Fuchs (1966) suggèrent d'ajouter un terme d'interaction donné par :

$$\eta_{dr} = 1,24ku^{-1/2} Pe^{-1/2} R_i^{2/3} \quad (\text{A. 11})$$

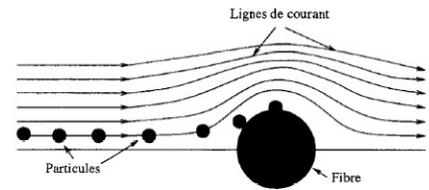
Tableau A.2 : Recensement des différents mécanismes de capture des aérosols par les fibres rencontrés dans notre étude (Boulaud 1998).

Mécanisme	Paramètre	Schéma
<p>Diffusion, $d_p < 0.1 \mu\text{m}$ Les aérosols de petite taille ont un comportement proche du mouvement brownien d'un gaz.</p>	<p>Le nombre de Péclet $Pe = \frac{d_f U_0}{D_{diff}} \quad (\text{A. 12})$ D_{diff} le coefficient de diffusion brownienne $D_{diff} = \frac{KTCu}{3\pi\mu_g d_p} \quad (\text{A. 13})$</p>	
<p>Interception, $d_p > 0.1 \mu\text{m}$ Lorsque la distance de l'aérosol par rapport à la surface de la fibre est inférieure à son rayon, l'aérosol est capturé.</p>	<p>Nombre d'interception $R_i = \frac{d_p}{d_f} \quad (\text{A. 14})$</p>	

Impaction, $d_p > 1 \mu\text{m}$
Les plus gros aérosols ont suffisamment d'inertie pour quitter les lignes de courant qui contournent la fibre pour s'y impacter.

Nombre de Stokes

$$Stk = \frac{Cu\rho_p d_p^2 U_0}{18\mu_g d_f} \quad (\text{A. 15})$$
 Cu est le coefficient de Cunningham



La figure A.1 présente l'évolution des efficacités de capture individuelles de chaque mécanisme ainsi que l'efficacité totale de l'ensemble des mécanismes en fonction du diamètre aérodynamique des aérosols. Le tableau A.2 montre l'influence de divers paramètres, intrinsèques à l'aérosol, au filtre et à la filtration, sur l'efficacité de capture par diffusion, interception et impaction inertielle. La figure A.1 et le tableau A.2 mettent en évidence l'importance relative des différents mécanismes de capture selon la taille des aérosols.

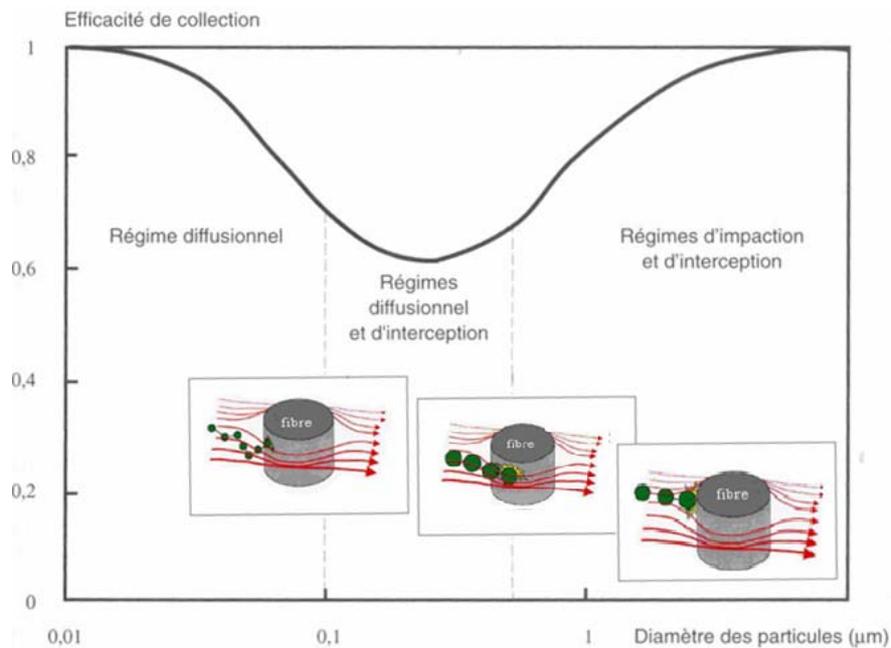


Figure A.1 : Efficacité d'une fibre unitaire en fonction du diamètre aérodynamique des aérosols.

Tableau A.3: Influence de divers paramètres intrinsèques à l'aérosol, au filtre et à la filtration, sur l'efficacité de capture par diffusion, interception et impaction inertielle (Thomas 2001).

Efficacité de collecte	Aérosol		Conditions opératoires	Caractéristiques du filtre		
	$\rho_p \nearrow$	$d_p \nearrow$	$U_f \nearrow$	$d_f \nearrow$	$\alpha \nearrow$	$Z \nearrow$
Diffusion	\searrow	\searrow	\searrow	\searrow	\nearrow	\nearrow
Interception	--	\nearrow	--	\searrow	\nearrow	\nearrow
Impaction	\nearrow	\nearrow	\nearrow	\searrow	\nearrow	\nearrow

La courbe de l'efficacité totale de collecte présente un minimum d'efficacité situé entre 0,1 μm et 0,3 μm . Il y a en effet une compétition entre les différents mécanismes.

ANNEXE B

Étalonnage des détecteurs de rayonnements α/β . Seuil et limite de détection de la radioactivité

1. Étalonnage en énergie

Avant d'utiliser un détecteur pour la mesure de la radioactivité α et/ou β , un étalonnage en énergie du détecteur ainsi que la détermination du rendement de détection sont nécessaires. Un terme correctif de l'auto-absorption et de la rétrodiffusion, qui interviennent simultanément sur le résultat de la mesure d'activité, est déduit de l'étalonnage.

Un détecteur est en général un dispositif électronique qui traduit sa sensibilité au rayonnement en délivrant un signal électrique. La difficulté de ce type de mesure est de s'assurer que le détecteur et l'électronique associée respectent cette relation de proportionnalité. L'étalonnage en énergie des détecteurs est effectué en général avec un nombre d'impulsions (dans un angle solide Ω) que l'on peut convertir, dans la région active du détecteur, en quantité de charges générées par le rayonnement. Les pics sont en réalité des gaussiennes dont la largeur à mi-hauteur varie avec l'énergie, ceci est dû à une déformation par le détecteur. La surface des pics est alors proportionnelle à l'activité. De manière à évaluer l'activité de l'échantillon, il faut pouvoir pour chacun des pics localiser le centre du pic ainsi que les limites de celui-ci. La surface du pic sera calculée entre ces limites.

L'étalonnage en énergie et l'étalonnage en résolution se font en une seule étape mais il existe plusieurs méthodes pour les réaliser :

- En visualisant le spectre à étalonner, il faut placer le curseur sur le sommet d'un pic. Le logiciel calcule automatiquement le centre du pic et la résolution en canaux. Il faut alors rentrer la correspondance en énergie.
- Sur le spectre, il faut placer des marqueurs qui entourent le pic servant à l'étalonnage. Comme précédemment, le logiciel calcule le centre du pic et sa résolution en canaux et il faut alors rentrer l'énergie correspondante du pic.
- Il y a aussi la possibilité de faire une recherche automatique de pics. Le logiciel fournit une liste de pics avec leur centre et leur résolution exprimés en canaux. Il faut indiquer l'énergie de chacun des pics.

L'analyse de spectres, c'est-à-dire le calcul de la surface des pics ne peut être possible que si l'étalonnage en énergie et en résolution a été fait. Une fois ceci effectué, l'analyse sort une liste de pics avec leurs surfaces respectives. Il est possible au logiciel d'identifier le radioélément responsable d'un pic en comparant avec des tables et de calculer directement l'activité. Cela nécessite d'avoir réalisé un étalonnage en efficacité de détection.

Pour nos étalonnages expérimentaux, nous utilisons une source solide étalon multi-alpha de caractéristiques bien connues. Il s'agit d'un mélange de 3 radionucléides (^{241}Am , ^{244}Cm et ^{239}Pu) étalonné et caractérisé en flux de rayonnements α (s^{-1}) dans un angle solide de 2π sr. Le flux de rayonnements α de chaque radionucléide représente environ 1/3 du flux total au moment de la fabrication. Le spectre des rayonnements α émis par la source multi-alpha est représenté sur la figure B.1.

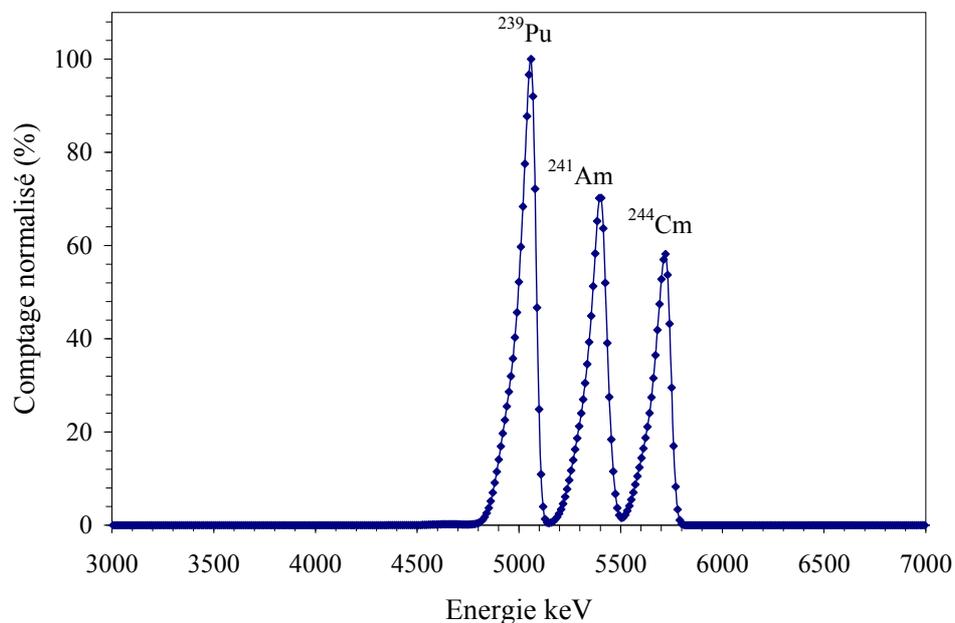


Figure B.1 : Spectre en énergie d'une source d'étalonnage multi-alpha mesuré avec notre détecteur ORTEC.

La résolution spectrale est de l'ordre de 80 keV. Nous avons pu ainsi établir les courbes d'étalonnage à différentes énergies et pour une distance source-détecteur de 3 mm (figure B.2). Ces courbes ont servi à déterminer les énergies des rayonnements α atteignant le PIPS.

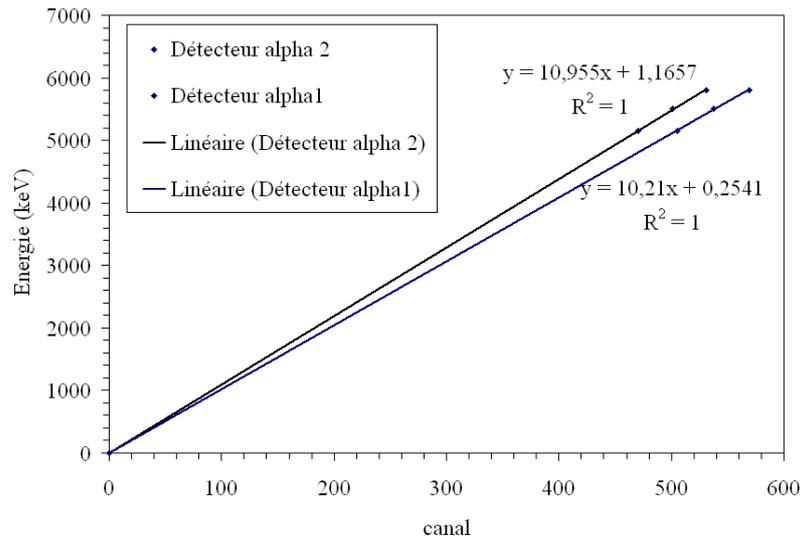


Figure B.2 : Courbes d'étalonnage en énergie pour les deux détecteurs ORTEC (sous un vide partiel de pression égale à 0,2 bar).

2. Etalonnage en rendement de détection

Le rendement de détection, pour une géométrie précise entre la source et le détecteur, est généralement donné par le rapport du nombre d'impulsions (2π sr) arrivant au PIPS sur la quantité de rayonnements sortant de la source.

Pour mesurer le rendement du détecteur, plusieurs méthodes existent dépendants de la nature de la source. Dans notre cas d'étude, étant donné que la radioactivité est mesurée sur des filtres d'aérosols, l'étalonnage avec une source biaise le rendement de détection qui dépend de la géométrie de la source et de la disposition des radionucléides dans le volume actif. Une source solide n'est en effet pas représentative de la géométrie d'un filtre. Pour une source, le rendement de détection R_d est exprimé de la façon suivante :

$$R_d = \frac{\frac{N_{inst}}{t_{inst}} - \frac{N_{bdf}}{t_{bdf}}}{\frac{N_{ref}}{t_{ref}}} \quad (\text{B. 1})$$

où N_{inst} est le nombre d'impulsions indiquées par l'instrument de mesure au bout d'un temps t_{inst} ,

N_{bdf} est le nombre de d'impulsions indiquées par l'instrument de mesure, au bout d'un temps t_{inst} , en l'absence de l'échantillon mais dans les mêmes conditions,

N_{ref} est le nombre de d'impulsions émises par la source (normalement connue pour une source électrodéposée) ou un échantillon de référence mesuré au bout d'un temps t_{inst} , par SL.

Avec comme incertitude type :

$$\frac{u_c(R)}{R} = \sqrt{\frac{u^2(n_{inst}) + u^2(n_{bdf})}{(n_{inst} - n_{bdf})^2} + \frac{u^2(n_{ref})}{n_{ref}^2}} \quad (\text{B. 2})$$

où n est le taux de comptage. Il s'agit du rapport de N et t .

De la définition de R et de l'angle solide mesuré pour un spectre, nous calculons l'efficacité intrinsèque ε caractéristique de chaque détecteur suivant la relation suivante :

$$R = \varepsilon \frac{4\pi}{\Omega} \quad (\text{B. 3})$$

Le calcul de l'angle solide, pour une source alignée avec le détecteur (figure B.3), est donné par la solution de l'intégrale suivante :

$$\Omega(\rho) = h \int_0^{2\pi} \int_0^b \frac{r \cdot dr \cdot d\varphi}{(\rho^2 + h^2 + r^2 - 2 \cdot \rho \cdot r \cdot \cos(\varphi))^{3/2}} \quad (\text{B. 4})$$

$$\text{où } l^2 = PM^2 = (P\vec{O} + O\vec{O}' + O'\vec{M})^2$$

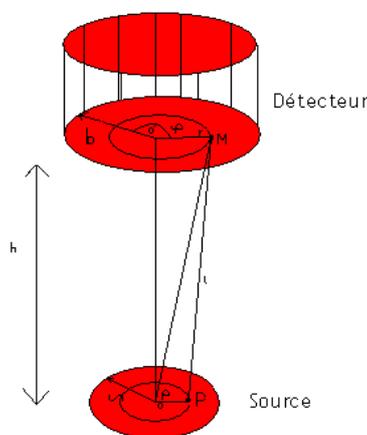


Figure B.3 : Représentation des différents paramètres utilisés dans l'équation B.4 de Ω .

Des méthodes numériques existent et permettent des calculs approchés de l'angle solide. Un outil de calcul de « ANGLESOL » (Blanchis 1997) a été développé au LNHB. Il permet de calculer l'angle solide d'un cylindre, une surface ou un point mais aussi pour différentes géométries en résolvant l'équation (B.4).

A titre d'exemple, en considérant la géométrie d'une source ponctuelle et d'un détecteur dans le même axe, l'angle solide sous lequel un radioélément voit le détecteur est donné par :

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (\text{B. 5})$$

3. Temps de comptage, seuil de décision et limite de détection

Dans les échantillons environnementaux, les comptages sont souvent peu importants. Par conséquent, la présence ou non de radioactivité contenu dans le filtre sera difficilement connue en raison des fluctuations statistiques dans la région d'énergie étudiée. Etant donné les conditions expérimentales de mesure bien définies, nous tentons d'évaluer une limite inférieure à partir de laquelle un comptage α devient détectable. Nous admettons que la distribution des résultats obéit à la loi normale. Cela permet d'arriver à des expressions relativement simples et facilement utilisables. Deux risques d'erreurs de classement sont ainsi identifiés (Norme iso 11259) :

- le risque de première espèce (risque alpha) correspondant à la conclusion, avec une probabilité alpha, que le signal soit réel alors qu'il s'agit d'une fluctuation du bruit de fond.
- le risque de seconde espèce (risque bêta) correspondant à la conclusion, avec une probabilité bêta, que le signal est une fluctuation du bruit de fond alors qu'il est réel.

Ces deux risques sont schématisés sur la figure B.4.

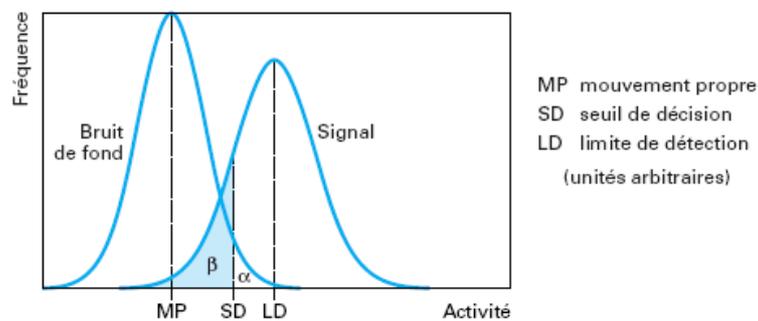


Figure B.4: Seuil de décision et limite de détection pour des distributions gaussiennes du taux de comptage du bruit de fond et de la source à mesurer (GTN5).

Ces risques de première et de seconde espèce permettent de définir le seuil de décision (SD) et la limite de détection (LD). Si le résultat de mesure est supérieur au seuil de décision, nous pouvons conclure que l'impureté est présente dans l'échantillon avec une probabilité alpha d'erreur. Si le résultat de mesure est inférieur à la valeur du seuil de décision, nous pouvons conclure que la radioactivité est absente de l'échantillon avec une probabilité bêta d'erreur. Cette probabilité bêta est liée à la distribution de la variable aléatoire dont la valeur moyenne est la limite de détection. Alors nous obtenons les relations suivantes :

$$SD = k_{\alpha} s_0 \quad (\text{B. 6})$$

$$LD = k_{\alpha} s_0 + k_{\beta} s_n \quad (\text{B. 7})$$

où k_{α} et k_{β} sont des facteurs d'élargissement correspondant aux niveaux de confiance respectifs α et β ,

s_0 est l'écart-type estimé du bruit de fond et

s_n est l'écart-type estimé du signal.

En pratique, nous pouvons considérer que s_0 et s_n sont du même ordre de grandeur car si l'on s'intéresse à la limite de détection, cela veut dire que le signal est proche du bruit. En prenant une probabilité associée au risque α égale à celle associée au risque β , nous obtenons les relations suivantes :

$$SD = k s_0 \quad (\text{B. 8})$$

$$LD = 2 k s_0 \quad (\text{B. 9})$$

Pour un risque α égal à un risque β de 2,5 %, le facteur k est égal à 1,96, valeur qui peut être arrondie à 2, selon la norme AFNOR NF-X-06-044.

En considérant que les distributions sont normales, les probabilités et les risques d'erreurs associées à différentes valeurs de k sont directement déduits de la loi normale cumulée.

Avec ces mêmes hypothèses, la limite de détection obtenue avec un taux de comptage du bruit de fond (ou bdf) (en Bq), un temps de comptage du bruit de fond de t_{bdf} , un temps de comptage de l'échantillon de t_E et un rendement de détection de R est :

$$LD = \frac{\sqrt{\frac{2N_{bdf}}{t_{bdf}}}}{\sqrt{t_E R}} \quad (\text{B. 10})$$

L'équation (B.10) permet d'adapter le temps de comptage pour obtenir, en fonction du bruit de fond de l'appareil, une limite de détection souhaitée. Cette approche suppose que nous avons une bonne connaissance du bruit de fond, ce qui, en pratique, nécessite des temps d'acquisition longs.

Par ailleurs, le temps de comptage conditionne le nombre d'impulsions observées et donc l'incertitude sur ce nombre. Nous pouvons considérer en première approximation que le nombre brut d'impulsions mesurées suit une loi de Poisson, donc que son écart-type est égal à sa moyenne. L'écart-type relatif sur un comptage de N impulsions sera donc approximativement égal à $1/N^{1/2}$.

4. Résolution des spectres due au bruit électronique du dispositif d'amplification

Une partie de l'énergie E est perdue par diffusion inélastique, une autre partie est transférée au milieu par diffusion élastique des ions sur les atomes. Cette interaction rayonnement-matière, définie précédemment, est à l'origine d'un bruit statistique irréductible provenant de la détection du signal lui-même, du fait des porteurs de charge Q générés discrètement. La formation des charges suit la loi de Poisson et si la réponse du détecteur est considérée comme linéaire, l'amplitude de l'impulsion est $A = KN$ où K est une constante.

L'écart-type de l'amplitude de l'impulsion est :

$$\sigma = K\sqrt{N} \quad (\text{B. 11})$$

D'où le facteur de Fano « F » qui est un nombre sans dimension, introduit empiriquement pour permettre aux résultats statistiques, calculés suivant la loi de Poisson, de coïncider avec l'expérience. Il est défini simplement par le rapport entre la variance des fluctuations statistiques du nombre de charges et la variance prévue par la loi de Poisson.

La résolution du spectre en énergie est définie par le rapport entre la variance observée de N et la variance prédit par Poisson (Knoll 2000).

$$R = 2,35\sqrt{\frac{F}{N}} = 2,35\sqrt{\frac{F\varepsilon}{E}} \quad (\text{B. 12})$$

Dans le cas de détecteur gazeux remplie d'argon, un rayonnement α d'énergie E égale à 5 MeV crée $1,89 \times 10^5$ paires d'ions. La résolution R est donc de l'ordre de 25 keV.

Dans le cas du PIPS, la convention est d'exprimer à la place du terme R , la largeur à mi-hauteur du pic principal du spectre en énergie étudié (FWHM) par :

$$FWHM = 2,35 \times \sqrt{FEI} \quad (\text{B. 13})$$

où F est le facteur de Fano du silicium égal à 0,11,

I est l'énergie de création paire électron-trou égale à 3,62 eV et

E_α est l'énergie du rayonnement α égale à 5,486 MeV.

Nous obtenons une largeur FWHM théorique égale à 3,47 keV.

ANNEXE C

Incertitudes sur les mesures de la masse sur les filtres

Il est nécessaire de calculer les incertitudes sur les mesures effectuées lors de la pesée des filtres.

La masse des aérosols collectés sur un filtre i est donnée par :

$$m_i = m_{vai} - m_{vi} \quad (\text{C. 1})$$

où m_{vai} est la masse du filtre avec l'aérosol et

m_{vi} est la masse du filtre vierge.

L'incertitude sur la masse collectée est calculée avec l'équation C.2 :

$$u(m_i) = \sqrt{u^2(m_{vi}) + u^2(m_{vai})} \quad (\text{C. 2})$$

où $u(m_{vai})$ est l'incertitude sur la pesée après prélèvement et

$u(m_{vi})$ est l'incertitude sur la pesée du filtre vierge.

A ce niveau là, si l'on suppose $u(m_{vi}) = u(m_{vai}) = \sigma_{Pesée} = \text{constante}$, l'équation C.2 sera exprimée par :

$$u(m_i) = \sqrt{2} \sigma_{Pesée} \quad (\text{C. 3})$$

où $\sigma_{Pesée}$ représente l'incertitude sur une pesée de filtre. Il s'agit de :

- précision de lecture : 0,01 mg
- écart-type répétitivité : $< \pm 20 \mu\text{g}$
- écart de linéarité : $< \pm 0,02 \text{ mg}$

L'incertitude type sur la masse m liée à l'utilisation de la balance METTLER AT250 est égale à $\pm 0,03 \text{ mg}$.

Incertitudes sur les mesures des épaisseurs des couches de filtres

Il est nécessaire de calculer les incertitudes sur les mesures des épaisseurs des couches de filtres.

L'épaisseur d'une couche composée d'un ruban adhésif et de fibres est donnée par :

$$z' = z'_{rf} - z'_r \quad (\text{C. 4})$$

où z'_{rf} est l'épaisseur d'une couche composée d'un ruban adhésif et de fibres et

z'_r est l'épaisseur d'une couche composée d'un ruban adhésif vierge.

L'incertitude sur l'épaisseur d'une couche collectée est calculée avec l'équation C.5 :

$$u(z') = \sqrt{u^2(z'_{rf}) + u^2(z'_r)} \quad (\text{C. 5})$$

où $u(z'_{rf})$ est l'incertitude sur la mesure de l'épaisseur d'une couche composée d'un ruban adhésif et de fibres et

$u(z'_r)$ est l'incertitude sur la mesure de l'épaisseur d'une couche composée d'un ruban adhésif.

A ce niveau là, si l'on suppose $u(z'_{rf}) = u(z'_r) = \sigma_{\text{épaisseur}} = \text{constante}$, l'équation C.5 sera exprimée par :

$$u(z') = \sqrt{2} \sigma_{\text{épaisseur}} \quad (\text{C. 6})$$

où $\sigma_{\text{épaisseur}}$ représente l'incertitude sur la mesure de l'épaisseur d'une couche du filtre. Il s'agit de :

- précision de lecture : $5 \mu\text{m}$
- écart-type répétitivité : $< 1 \mu\text{m}$
- écart de linéarité : $< \pm 5 \mu\text{m}$

L'incertitude-type sur l'épaisseur z' liée à l'utilisation du « Palmer » est égale à $\pm 5 \mu\text{m}$.

ANNEXE D

Caractéristiques techniques des filtres

Trois types de filtre à fibres ont été retenus dans notre étude du fait qu'ils sont communément utilisés pour la surveillance de la radioactivité par EDF, CEA, IRSN, etc. Il s'agit des filtres C569, B132 et C357. Les principales caractéristiques de ces filtres sont rappelées dans le tableau D.1. Les caractéristiques techniques sont fournies par le constructeur B. DUMAS. Les figures D.1 et D.2 donnent une vision technique complète des performances de certains filtres.

Tableau D.1 : Caractéristiques des trois types de filtre à fibres retenus.

	« Jaune »	« Bleu »	« Blanc »
Référence B. Dumas	C569	B132	C357
Description technique	Cellulose et fibre de verre, sans amiante, efficacité intermédiaire entre les types rose et bleu	Pure Cellulose – type préfiltre 90% ASHRAE	Pure 100 % à base de fibre de verre – type haute efficacité
Teinte	Jaune	Bleu	Blanc
	Anticryptogamique	Hydrofuge anticryptogamique	Hydrofuge
Applications	Protection des industries de précision optique, électronique, laboratoire de physique	Générales de préfiltration : laboratoires ateliers de filature, centraux téléphoniques, etc.	Générales de filtration : laboratoires et industries de sécurité chimique, industries de haute précision, etc.
Diamètre physique (mm)	47	47	47
Masse au m ² (g/m ²)	100	85	80
Épaisseur (µm)	320	260	500
Résistance à la traction (daN/25,4 mm)	Sens machine : 3,3 Sens travers : 1,8	Sens machine : 3,8 Sens travers : 2,0	Sens machine : 2,1 Sens travers : 1,5
Efficacité à l'aérosol d'uranine	Concentration : 2 mg/m ³ débit : 5 l/min Vitesse de passage : 1 cm/s durée du prélèvement : 2 min Coefficient d'épuration : 25 Efficacité en rendement : 96 %	Concentration : 0,2 mg/m ³ débit : 5 l/min Vitesse de passage : 1 cm/s durée du prélèvement : 3 min 30s Coefficient d'épuration : 2,85 Efficacité en rendement : > 65 %	Concentration : 2 mg/m ³ débit : 25 l/min Vitesse de passage : 5 cm/s durée du prélèvement : 3 min 30s Coefficient d'épuration : 25 Efficacité en rendement : > 96 %
Mesures DOP à 0,3µm – TOA~100 à 5,3 cm/s	ΔP : 364 Pa Perméance : ≤ 18 %	ΔP : 182 Pa Perméance : ≈ 60 %	ΔP : 148 Pa Perméance : ≈ 4 %
Hydrofugation (mmCE)	> 950	≈ 800	≈ 300
Rigidité (en mg/25,4 mm)	680	503	1400

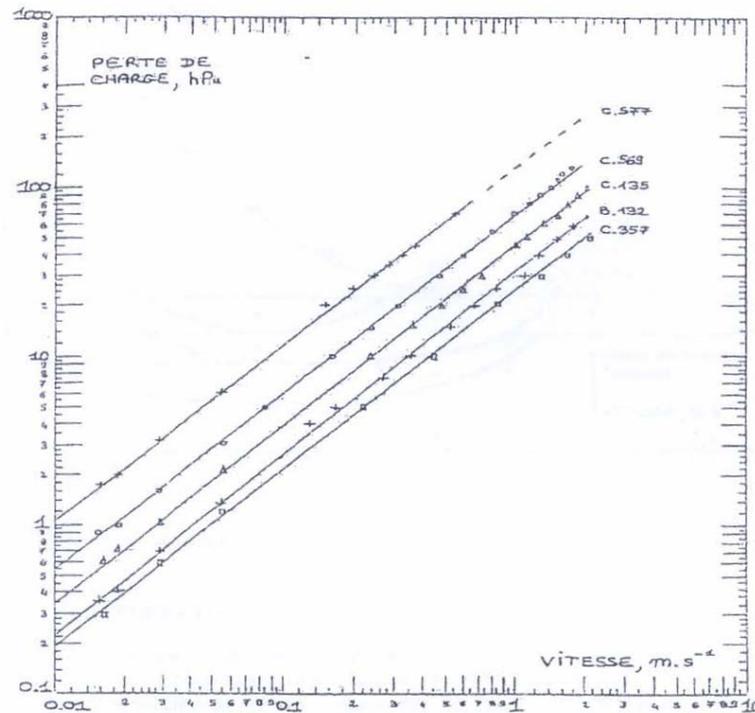


Figure D.1 : Caractéristiques des filtres utilisés : perte de charge en fonction de la vitesse de prélèvement (Charuau *et* Letourneau 1985).

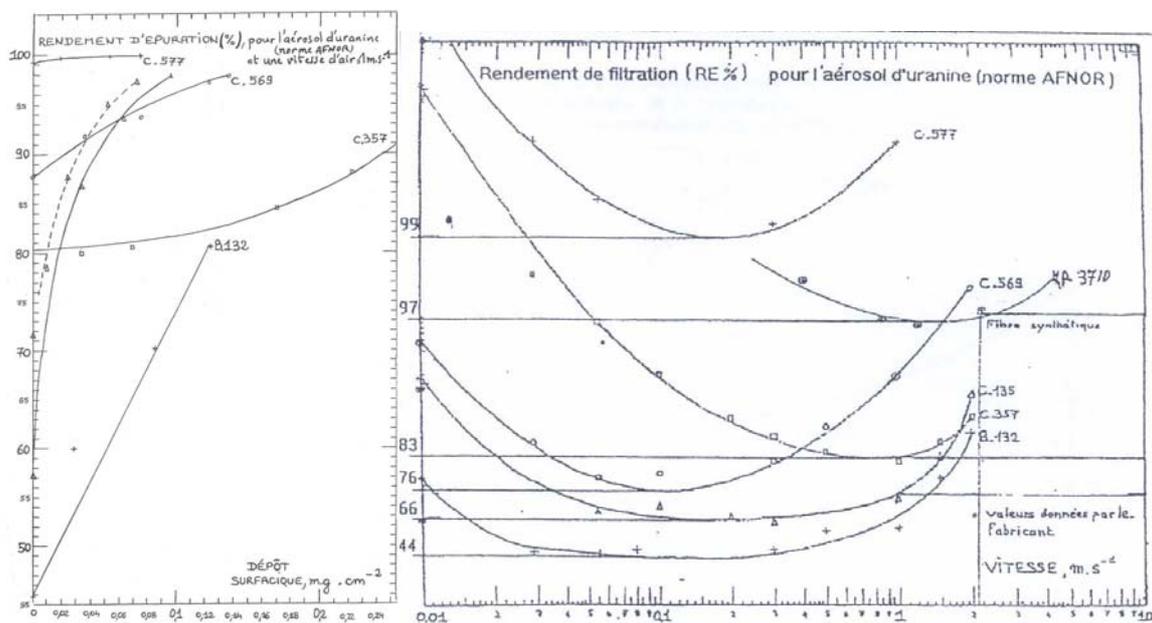


Figure D.2 : Caractéristiques des filtres utilisés : rendement de filtration en fonction du dépôt surfacique (à gauche) et rendement de filtration en fonction de la vitesse de prélèvement (à droite) (Charuau *et* Letourneau 1985).

ANNEXE E

Tableau E. 1 : Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNP.

Mnemonic	Type	Description	Equation	Card Entries
P PX PY PZ	plane	general normal to x -axis normal to y -axis normal to z -axis	$Ax + By + Cz - D = 0$ $x - D = 0$ $y - D = 0$ $z - D = 0$	$A B C D$ D D D
SO S SX SY SZ	sphere	centered at origin general centered on x -axis centered on y -axis centered on z -axis	$x^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$ $(x - \bar{x})^2 + y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + (y - \bar{y})^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + y^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$	R $\bar{x} \bar{y} \bar{z} R$ $\bar{x} R$ $\bar{y} R$ $\bar{z} R$
C/X C/Y C/Z CX CY CZ	cylinder	parallel to x -axis parallel to y -axis parallel to z -axis on x -axis on y -axis on z -axis	$(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$ $(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2 - R^2 = 0$ $(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2 - R^2 = 0$ $y^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + z^2 - R^2 = 0$ $x^2 + y^2 - R^2 = 0$	$\bar{y} \bar{z} R$ $\bar{x} \bar{z} R$ $\bar{x} \bar{y} R$ R R R
K/X K/Y K/Z KX KY KZ	cone	parallel to x -axis parallel to y -axis parallel to z -axis on x -axis on y -axis on z -axis	$\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(x - \bar{x}) = 0$ $\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - t(y - \bar{y}) = 0$ $\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - t(z - \bar{z}) = 0$ $\sqrt{y^2 + z^2} - t(x - \bar{x}) = 0$ $\sqrt{x^2 + z^2} - t(y - \bar{y}) = 0$ $\sqrt{x^2 + y^2} - t(z - \bar{z}) = 0$ ± 1 used only for 1-sheet cone	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$ $\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$ $\bar{x} \bar{y} \bar{z} t^2 \pm 1$ $\bar{x} t^2 \pm 1$ $\bar{y} t^2 \pm 1$ $\bar{z} t^2 \pm 1$
SQ	ellipsoid hyperboloid paraboloid	axis parallel to x -, y -, or z -axis	$A(x - \bar{x})^2 + B(y - \bar{y})^2 + C(z - \bar{z})^2 + 2D(x - \bar{x}) + 2E(y - \bar{y}) + 2F(z - \bar{z}) + G = 0$	$A B C D E$ $F G \bar{x} \bar{y} \bar{z}$
GQ	cylinder, cone ellipsoid paraboloid hyperboloid	axis not parallel to x -, y -, or z -axis	$Ax^2 + By^2 + Cz^2 + Dxy + Eyz + Fzx + Gz + Hy + Jz + K = 0$	$A B C D E$ $F G H J K$
TX TY TZ	elliptical or circular torus. Axis is parallel to x -, y -, or z -axis		$(x - \bar{x})^2/B^2 + (\sqrt{(y - \bar{y})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$ $(y - \bar{y})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (z - \bar{z})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$ $(z - \bar{z})^2/B^2 + (\sqrt{(x - \bar{x})^2 + (y - \bar{y})^2} - A)^2/C^2 - 1 = 0$	$\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$ $\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$ $\bar{x} \bar{y} \bar{z} A B C$
XYZP	surfaces defined by points - see pages 3-15 to 3-17			

Exemple d'un fichier d'entrée lu par MCNPX pour simuler une source solide

c ----- Géométrie -----

c Définition des cellules

10 1 -7.96 1 -2 -7 imp:a=1 \$ support de la source
 11 2 -1.25e-5 2 -3 -8 imp:a=1 \$ pastille de la source
 12 2 -3.7e-5 2 -3 8 -7 imp:a=1 \$ géométrie autour de la pastille
 13 2 -7.7e-5 3 -4 -7 imp:a=1 \$ vide poussé
 14 3 -2.35 4 -5 -9 imp:a=1 \$ window du détecteur PIPS
 15 3 -2.35 5 -6 -9 imp:a=1 \$ détecteur PIPS
 16 1 -7.96 5 -6 9 -7 imp:a=1 \$ contour du détecteur
 17 0 -1:6:7 imp:a=0 \$ espace extérieur de la géométrie

c

c -----Définition des surfaces-----

1 Pz 0 \$ support de la source d'origine 0
 2 Pz 0.05 \$ support de la source d'épaisseur 0.05 cm d'origine
 3 pz 0.052 \$ pastille radioactif d'épaisseur 20 μm
 4 pz 1.152 \$ window du détecteur PIPS
 5 Pz 1.15206 \$ détecteur PIPS avec une zone de déplétion de 100 μm et une fenêtre de 60 nm
 6 Pz 1.16206 \$ fin du détecteur
 7 cz 1.5 \$ rayon du support = 1.5 cm
 8 cz 0.75 \$ rayon de la pastille = 0.75 cm
 9 cz 1.5 \$ rayon du détecteur = 0.25 cm

c ----- Carte des données -----

c Mode de calcul

c

mode a \$ Mode alpha

c

c Définition de la source

Sdef cel=11 Erg=d1 PAR=34 POS=0 0 0.05 AXS= 0 0 1 RAD=d2 EXT=d3 \$
 SII L 5.105 5.144 5.154
 SP1 D 0.12 0.15 0.73

SI2 0 0.75 \$

SI3 0 0.02 \$

c

c Carte des matériaux

M1 26000 -0.6572 6000 -0.0003 25000 -0.02 14000 -0.01 &

28000 -0.12 42000 -0.0225 24000 -0.17 \$ Inox ANSI316L

M2 6000 -0.00014 7000 -0.75519 8000 -0.23179 18000 -0.01288 \$ Air

M3 14000 -1 \$ Silicium

c

c Définition des tallies

F8:a 15

c

C Domaine d'énergie échantillonnée

c

E8: 0. 1.e-05 1.e-03 320I 3 210I 5.3

c

c Modèle physique pour interactions nucléaires

LCA 2 1 2 323

LCB 3.49E+03 3.49E+03 2.49E+03 2.49E+03 8.E+02 8.E+02 -1. -1.

LEA 1 4 1 0 0 0 0 0

LEB 1.5000E+00 8.0000E+00 1.5000E+00 1.0000E+01

c

c Modèle physique pour le « stopping power et le straggling » \$

PHYS:a 6 3j 0

c

c Limites du calcul

Cut:a j 0.1

c

c Durée de la simulation

CTME 60.

LISTE DE PUBLICATIONS ET DES COMMUNICATIONS

Publications

- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin, L. Berger. (2009). Application of Monte Carlo method to study the alpha particle energy spectra for radioactive aerosol sampled by an air filter. Health Physics journal August 2009, Volume 97, Number 2.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2009). Experimental and simulation methods to evaluate the alpha self-absorption factors for radioactive aerosol fiber filters. Acceptée dans le journal Radiation Measurements.
- Geryes, T. (2007). Étude de la dégradation de l'énergie des rayonnements alpha et bêta dans les filtres de surveillance de l'activité atmosphérique. Rapport technique IRSN/DSU/SERAC/LPMA 07-04.

Conférences nationales et internationales

- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2009). Experimental determination of correction factors for alpha artificial radioactivity in filters; simulating the environmental radioactivity monitoring. Health Physics Society. Minneapolis USA. Présentation orale.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2008). Effects of filtration velocity on the measurements of radioactive aerosols in filters. European Aerosol Conference EAC 2008 Thessaloniki Greece. Poster.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2008). A Monte Carlo simulation method to investigate the alpha absorption in the fibers of radioactive aerosol filters. 24th International Conference on Nuclear Tracks in Solids (ICNTS), Bologna, Italie. Présentation orale.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2009). Effet de la taille des aérosols et de la vitesse de filtration sur la dégradation de la mesure de l'activité des aérosols radioactifs émetteurs alpha prélevés sur filtre à fibres. 24^{ème} Congrès Français sur les Aérosols. Présentation orale.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2008). Effet de la vitesse de filtration sur la dégradation de la mesure de l'activité des aérosols radioactifs émetteurs alpha prélevés sur filtre à fibres. Journées des Thèses (JT) Ardèche. Poster.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2007). Étude de la dégradation de l'énergie des particules alpha dans les filtres de surveillance de la radioactivité atmosphérique. JT Ardèche. Présentation orale.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2008). Dégradation de la mesure nucléaire dans les filtres pour les prélèvements atmosphériques; méthode pour quantifier la perte d'énergie dans les couches filtrantes. 23^{ème} Congrès Français sur les Aérosols. Présentation orale.
- Geryes, T., C. Monsanglant-Louvet, E. Géhin. (2007). Dégradation de la mesure nucléaire dans les filtres pour les prélèvements atmosphériques; méthode pour quantifier la perte d'énergie dans les couches filtrantes. JT Aussoie 2007. Présentation orale.

Enseignements : Enseignement en 2007 et 2008 de 60 heures de travaux pratiques de mesures physiques (niveau Licence) à l'IUT de l'université Paris-Est.

Liste des figures

Figure 1 : Sources de radioactivité (CIPR 1994).	9
Figure 2 : Suivi du Césium-137 atmosphérique pendant les 50 dernières années sur le territoire français (Réseau OPERA, IRSN).	10
Figure I.1 : Illustration d'un rayonnement α émis du ^{239}Pu qui est fixé sur un aérosol.	16
Figure I.2 : Effet du diamètre physique des aérosols sur la résolution du spectre (Moore <i>et al.</i> 1993). Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).	17
Figure I.3 : La dégradation des spectres en énergie des rayonnements α passant dans les aérosols en fonction de leur forme : sphérique ou sphéroïdique (Pickering 1984).	18
Figure I.4 : Fibres de verre vues par microscope électronique (échelle $\times 2000$ fois) (Pénicot-Bauge 1998).	20
Figure I.5 : Comparaison de la dégradation des spectres en énergie des rayonnements α émis d'une membrane (a) et d'un filtre à fibres de verre (b) (Grivaud <i>et al.</i> 2004).	22
Figure I.6 : Dégradation des spectres en énergie des rayonnements α suivant le nombre de filtres superposés (Hayes <i>et Jonassen</i> 1974).	22
Figure I.7 : Comparaison entre les résolutions des spectres en énergie α pour cinq types de filtres (Moore <i>et al.</i> 1993). Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).	23
Figure I.8 : Comparaison entre l'atténuation du spectre de l'américium 241 dans l'aluminium et dans le filtre à fibres de verre (Luetzelschwab <i>et al.</i> 2000).	23
Figure I.9 : Fraction des aérosols, collectés sur les fibres d'un filtre, relative à l'influence de divers mécanismes en fonction du diamètre physique des aérosols exprimé en μm .	24
Figure I.10 : Spectres en énergie α des aérosols $^{239}\text{PuO}_2$ de diamètre 0,66 μm (a et b) et 3,07 μm (c et d) déposés sur un filtre à fibres de verre, pour des vitesses de filtration de 0,5 m.s^{-1} et 2 m.s^{-1} respectivement (Higby, 1984).	25
Figure I.11 : Evolution de la résolution du spectre en énergie en fonction des masses d'aérosols déposés sur la membrane FSLW (Moore <i>et al.</i> 1993). Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric).	26
Figure I.12 : Amas d'aérosols solides submicroniques sur fibre (Thomas 2001).	27
Figure I.13 : Amas d'aérosols solides micrométriques sur fibre (Thomas 2001).	27
Figure I.14 : Spectres en énergie pour une couche composée d'un mélange d'or porteur de ^{214}Po et de sel de NaCl non-radioactif (en gris clair). Cas de la même couche superposée à une autre couche de sel (en gris). Cas d'une couche d'or porteur de ^{214}Po seul (en noir) (Huang <i>et al.</i> 2002). Les masses des couches ainsi que les FWHM des spectres sont indiquées sur la figure.	27
Figure I.15 : Evolution de la résolution en énergie en fonction de la distance source-détecteur. Les expériences sont réalisées dans une chambre de détecteur d'une part sous vide (vacuum) et d'une autre part dans l'air (atmospheric) (Moore <i>et al.</i> 1993).	28
Figure I.16 : Mode de fonctionnement des détecteurs à gaz en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes.	29
Figure I.17 : Illustrations montrant, à gauche, la chambre de détection (ORTEC) et, à droite, le diagramme simplifié du système de détection utilisé.	31
Figure I.18 : Illustration montrant le principe de la SL.	33
Figure I.19 : Schéma de principe du photomultiplicateur.	34
Figure I.20 : Exemple d'un spectre de SL montrant la fenêtre du comptage.	35
Figure II.1 : Vue du banc d'essais ICARE comprenant, les générateurs d'aérosols artificiels (en rouge), la veine principale ainsi que les voies de prélèvement (en bleu).	39
Figure II.2 : Illustration montrant le principe de la production d'aérosols par pulvérisation ultra-sonique.	40
Figure II.3 : Schémas de principe du générateur d'aérosols GA 80 (à gauche) et du générateur d'aérosols GA 2400 (à droite).	42
Figure II.4 : Photographie de l'Andersen en cascade Mark II montrant une succession d'étages.	43
Figure II.5 : Histogramme de la distribution granulométrique des aérosols de 4 μm produits par la GA80 sur la première voie du banc ICARE. Le comptage (%) et les incertitudes associées sont représentées en fonction des d_a 50% de coupure des étages de l'impacteur.	44
Figure II.6 : Exemple d'ajustement de la droite de Henry (domaine de fractiles [-2 ; 2]) sur des mesures effectuées sur la première voie du banc d'essai ICARE en fonction de l'échelle des fractiles.	45
Figure II.7 : Photographie du LPI (à gauche) et schéma de principe du fonctionnement par impaction (à droite).	46

Figure II.8 : Histogramme de la distribution granulométrique des aérosols de 0,4 μm produits par le GA2400 du banc d'essai ICARE. Le comptage et les incertitudes associées sont représentés en fonction des d_a 50 % de coupure des étages du LPI.....	47
Figure II.9 : Exemple de suivi de l'activité volumique d'aérosols du ^{239}Pu lors d'un essai.....	48
Figure II.10 : Principaux mécanismes de dépôt des aérosols dans les sondes de prélèvement (figure d'après Ammerich 1989). La fraction pénétrante est le rapport entre la concentration en amont et en aval de la sonde. .	48
Figure II.11 : Schéma du porte-filtre utilisé. Les dimensions des pièces internes sont indiquées.....	49
Figure II.12 : Auto-radiographie de l'activité sur deux filtres à fibres de cellulose type B132, montrant la différence entre un dépôt d'aérosols radioactifs préparé avec ICARE (a) et un dépôt manuel de goutte à goutte d'une solution radioactive (b) (Monsanglant <i>et</i> Liatimi 2005).....	50
Figure II.13 : Schéma du principe des essais sur le banc ICARE avec un circuit fermé comportant des vannes de régulation, des filtres, des rotamètres ou débitmètres et des pompes.....	54
Figure II.14 : Schéma du principe de mesure d'un compteur optique.....	55
Figure II.15 : Exemple de suivi des valeurs de la masse et de la granulométrie au cours d'une expérience sur le banc ICARE.....	56
Figure III.1 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA 4 μm , en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Les valeurs issues du STEME sont également présentées. Cas de détection avec le compteur MINI20.....	63
Figure III.2 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA 0,4 μm , en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur PIPS.....	64
Figure III.3 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols de DAMA 0,4 μm , en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur MINI20.....	65
Figure III.4 : Facteurs de correction de l'activité, déterminés avec des aérosols fins, en fonction de la vitesse de filtration, pour trois types de filtre. Cas de détection avec le compteur PIPS.....	66
Figure III.5 : Profil de pénétration des aérosols exprimé en fonction de la profondeur du filtre. Cas des aérosols marqués au thoron déposés sur un filtre à fibres (B. Dumas C309). Valeurs prises des travaux de Parnianpour (1967).....	68
Figure III.6 : Méthode de pelage de filtre. La pression est exercée uniformément sur le ruban adhésif à la surface du filtre.....	70
Figure III.7 : Presse (à gauche) et clé dynamométrique (à droite) utilisées pour exercer une pression uniforme sur le ruban adhésif à la surface du filtre à peler.....	71
Figure III.8 : Trois pellicules d'un même filtre montrant l'homogénéité des couches de fibres prélevées sur la surface d'un ruban adhésif.....	72
Figure III.9 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C357 en fonction des vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	76
Figure III.10 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C357.....	76
Figure III.11 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C569 en fonction de la vitesse de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	77
Figure III.12 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C569.....	77
Figure III.13 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres B132 en fonction des vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	78
Figure III.14 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour des vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rouge), 0,66 m.s^{-1} (en rose), 1 m.s^{-1} (en vert) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu), montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres B132.....	78
Figure III.15 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C357 en fonction de la vitesse de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	81
Figure III.16 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu). Cas du filtre C357.....	81
Figure III.17 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres C569 en fonction de la vitesse de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	82
Figure III.18 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu). Cas du filtre C569.....	82
Figure III.19 : Comparaison des courbes de pénétration dans les filtres B132 en fonction de la vitesse de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu).....	83
Figure III.20 : Spectres en énergie des rayonnements α étudiés (^{239}Pu) pour deux vitesses de filtration de 0,22 m.s^{-1} (en rose) et 1,25 m.s^{-1} (en bleu). Cas du filtre B132.....	83

Figure III.21 : Comparaison des spectres en énergie des rayonnements α , sous vide, pour une source solide ainsi que pour trois types de filtres préparés à l'aide d'aérosol de DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) et filtrés à $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et non-chargés en masse.....	85
Figure III.22 : Evolution de la perte de charge et de l'efficacité au cours de colmatage d'un filtre à fibre par un aérosol solide. Le W_T est aussi présenté.....	87
Figure III.23 : Perte de charge exprimée en fonction de la masse collectée sur le filtre.....	89
Figure III.24 : Facteurs de correction de l'activité en fonction de la masse d'aérosols ($d_p = 0,4 \mu\text{m}$) accumulés sur un filtre B132.....	91
Figure III.25 : Facteurs de correction de l'activité en fonction de la masse d'aérosols ($d_p = 0,4 \mu\text{m}$) accumulés sur un filtre C569.....	91
Figure III.26 : Spectres en énergie α pour différentes masses d'aérosols déposés. Cas du filtre B132.....	94
Figure III.27 : Spectres en énergie α pour différentes masses d'aérosols déposés. Cas du filtre C569.....	94
Figure IV.1 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu poreux à l'aide du code GeoDict.....	99
Figure IV.2 : Visualisation d'une géométrie 3D avec un MEB (gauche) et avec GeoDict (droite) d'une épaisseur d'un filtre à fibres non-tissées et anisotropes.....	100
Figure IV.3 : Setup d'une cellule montrant le comportement des modèles physiques face au milieu poreux. Pour des configurations périodiques, K est déterminé par des simulations.....	104
Figure IV.4 : Coefficient de traînée en fonction du nombre de Reynolds particulaire (Hinds 1999).....	107
Figure IV.5 : A gauche, une modélisation avec GeoDict des fibres (en rouge) non-tissées anisotropes avec de la résine (en jaune). Les particules (en vert) suivent les lignes de champs (en gris) avant d'être arrêtées. Au milieu, un zoom sur deux fibres montre plus précisément le dépôt de particules. A droite, un zoom sur une partie du filtre montre des lignes de champs de vitesses.....	111
Figure IV.6 : Efficacité de filtration mesurée et simulée du filtre C357 en fonction de la vitesse de filtration pour des aérosols de granulométrie centrée sur $0,4 \mu\text{m}$ (a) et $4 \mu\text{m}$ (b) avec σ_g égal à $1,4$	113
Figure IV.7 : Perte de charge mesurée et simulée dans le filtre C357 en fonction de la vitesse de filtration pour des aérosols de granulométrie centrée sur $0,4 \mu\text{m}$ (a) et $4 \mu\text{m}$ (b) avec σ_g égal à $1,4$	114
Figure IV.8 : Efficacité de filtration mesurée et simulée du filtre C357, pour une vitesse de $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$, en fonction de la granulométrie des aérosols prélevés.....	115
Figure IV.9 : Profils de pénétration expérimentaux et simulés des aérosols dans les différentes couches du filtre. Cas du filtre C357 avec une granulométrie des aérosols centrée sur $0,4 \mu\text{m}$ (a) et $4 \mu\text{m}$ (b) ainsi que différentes vitesses de filtration.....	118
Figure IV.10 : Profils de pénétration expérimentaux et simulés des aérosols dans les différentes couches du filtre. Cas du filtre B132 avec une granulométrie des aérosols centrée sur $0,4 \mu\text{m}$ (a) et $4 \mu\text{m}$ (b) ainsi que différentes vitesses de filtration.....	119
Figure IV.11 : Historique et traçabilité d'une particule dans un milieu ralentisseur par la méthode MC.....	123
Figure IV.12 : a- La source de 15 mm de diamètre et $10 \mu\text{m}$ d'épaisseur ainsi que le support de la source en acier inoxydable de 30 mm de diamètre et $0,5 \text{ mm}$ d'épaisseur. b- Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie d'une source solide dans la chambre d'acquisition modélisée avec le code MCNPX.....	130
Figure IV.13 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie α pour la source solide.....	131
Figure IV.14 : Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie d'un filtre dans la chambre d'acquisition modélisée avec MCNPX.....	132
Figure IV.15 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie α pour une distribution spatiale homogène des aérosols radioactifs à l'intérieur d'un filtre cylindrique.....	133
Figure IV.16 : Visualisation 3D à l'aide du logiciel SABRINA (Van Riper 1993) de la géométrie de 10 couches du filtre dans la chambre d'acquisition modélisée avec MCNPX. La distance séparant la face supérieure du filtre et le détecteur est réduite à 3 mm	134
Figure IV.17 : Etude du profil de pénétration des aérosols radioactifs de DAMA de $4 \mu\text{m}$ ($\sigma_g = 1,4$) dans le filtre C357 à des vitesses de filtration de 1 et $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. Le nombre de coups de rayonnements, détectés par la SL et normalisés 100% , est en fonction de la profondeur dans le filtre exprimée en numéro de couches pelées.....	134
Figure IV.18 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C357 préparé à une vitesse de filtration de $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$	136
Figure IV.19 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C357 préparé à une vitesse de filtration de $2 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$	136
Figure IV.20 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des particules α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre B132 préparé à une vitesse de filtration de $1,25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ et un dépôt de masse de $1,96 \text{ mg}\cdot\text{cm}^{-2}$	139

Figure IV.21 : Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des particules α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C569 préparé à une vitesse de filtration de $1,25 \text{ m.s}^{-1}$ et un dépôt de masse de $2,65 \text{ mg.cm}^{-2}$	139
Figure IV.22: Simulation du profil de pénétration des aérosols de DAMA de $0,4 \mu\text{m}$ ($\sigma = 1,4$) dans le filtre C577 à une vitesse de filtration de 1 m.s^{-1}	143
Figure IV.23 : Spectre en énergie des rayonnements α simulés, montrant la dégradation des énergies entraînée par la pénétration des aérosols dans les filtres C577.....	144
Figure IV.24: Comparaison entre l'expérience et la simulation des spectres en énergie des rayonnements α , montrant la dégradation de l'énergie dans un filtre C577 préparé à une vitesse de filtration de 1 m.s^{-1}	145
Figure A.1 : Efficacité d'une fibre unitaire en fonction du diamètre aérodynamique des aérosols.....	161
Figure B.1 : Spectre en énergie d'une source d'étalonnage multi-alpha mesuré avec notre détecteur ORTEC.	164
Figure B.2 : Courbes d'étalonnage en énergie pour les deux détecteurs ORTEC (sous un vide partiel de pression égale à $0,2 \text{ bar}$).....	165
Figure B.3 : Représentation des différents paramètres utilisés dans l'équation B.4 de Ω	166
Figure B.4: Seuil de décision et limite de détection pour des distributions gaussiennes du taux de comptage du bruit de fond et de la source à mesurer (GTN5).....	167
Figure D.1 : Caractéristiques des filtres utilisés : perte de charge en fonction de la vitesse de prélèvement (Charuau <i>et</i> Letourneau 1985).	174
Figure D.2 : Caractéristiques des filtres utilisés : rendement de filtration en fonction du dépôt surfacique (à gauche) et rendement de filtration en fonction de la vitesse de prélèvement (à droite) (Charuau <i>et</i> Letourneau 1985).....	174

Liste des tableaux

Tableau II.1 : Caractéristiques choisies pour la production des aérosols avec les GA dans notre cas d'étude.	42
Tableau II.2 : Etude de la granulométrie des aérosols prélevés sur la première voie à l'aide de l'impacteur Andersen. Les résultats de la SL sont présentés pour chaque étage de l'impacteur.....	44
Tableau II.3 : Exemple d'une étude de la granulométrie produite par GA2400 du banc ICARE. Le comptage et l'incertitude associée sont déterminés pour chaque étage du LPI.	46
Tableau II.4 : Grille expérimentale réalisée avec la solution CsCl marquée au ²³⁹ Pu.....	53
Tableau II.5 : Grille expérimentale réalisée montrant les masses d'aérosols de NaCl chargées sur les filtres.	56
Tableau III.1 : Résultats des paramètres de filtration, des comptages par les différentes techniques de mesures, les facteurs de correction ainsi que les incertitudes associées.....	61
Tableau III.2: Résultats de la première grille d'expériences, paramètres et mesures obtenus aux cours des expériences. L'efficacité de filtration des aérosols sur les filtres de référence est également étudié, c'est la différence entre les comptages détectés sur le filtre en amont et celui en aval (généralement un FSLW).....	62
Tableau III.3 : La moyenne d'épaisseur, de densité et du comptage (Bq) par couche normalisé (%) pour les trois types de filtre étudiés. Cas des aérosols de 4 µm avec une vitesse de filtration de 1,25 m.s ⁻¹ . Les résultats sont présentés avec une incertitude correspondante à une fois l'écart-type (k = 1).....	73
Tableau III.4 : Comparaisons des caractéristiques du spectre expérimental pour les trois types de filtre étudiés. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées sont également indiquées.....	75
Tableau III.5 : Comparaisons des caractéristiques du spectre expérimental pour les trois types de filtre étudiés. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées sont également indiquées.....	80
Tableau III.6 : Résultats de la seconde grille d'expériences, paramètres et mesures obtenus aux cours des expériences.....	88
Tableau III.7 : Caractéristiques des spectres en énergie pour différentes quantités de masses d'aérosols déposés sur les deux types de filtre étudiés. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées sont également indiquées.....	93
Tableau IV.1 : Description des paramètres d'entrées de la modélisation géométrique des filtres non-tissés C357 et B132.....	116
Tableau IV.2 : Bibliothèque des « tallies » reconnus par MCNPX (les deuxièmes unités données correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque).....	127
Tableau IV.3 : Fraction des éléments dans le filtre à fibres de verre (Higby 1984).....	132
Tableau IV.4 : Comparaisons des caractéristiques des spectres simulés et expérimentaux. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées à chaque valeur sont également indiquées.	135
Tableau IV.5 : Comparaisons des caractéristiques des spectres simulés et expérimentaux. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées à chaque valeur sont également indiquées.	138
Tableau IV.6 : Comparaison du taux de détection calculé pour des modélisations de filtre et le taux de détection expérimental de notre détecteur. Les incertitudes statistiques (%) (k = 1) associées avec chaque taux sont aussi montrées.....	140
Tableau IV.7 : Comparaisons des caractéristiques du spectre simulé et expérimental. Les incertitudes statistiques (k = 1) associées à chaque valeur sont également indiquées.....	145
Le tableau A.1 regroupe les différents mécanismes de capture des aérosols par les fibres d'un filtre ainsi que leurs caractéristiques.....	159
Tableau A.2 : Recensement des différents mécanismes de capture des aérosols par les fibres rencontrés dans notre étude (Boulaud 1998).....	160
Tableau A.3: Influence de divers paramètres intrinsèques à l'aérosol, au filtre et à la filtration, sur l'efficacité de capture par diffusion, interception et impaction inertielle (Thomas 2001).	161
Tableau D.1 : Caractéristiques des trois types de filtre à fibres retenus.....	173
Tableau E. 1 : Bibliothèque des cartes des surfaces reconnues par MCNP.....	175

Liste des symboles

A	Activité	Bq
A	Nombre de masse	-
A_f	Surface volumique des fibres	m^{-1}
A_p	Surface volumique des particules	m^{-1}
c	Célérité de la lumière dans le vide	$m.s^{-1}$
d_a	Diamètre aérodynamique	μm
D	Coefficient de diffusion	$m^2.s^{-1}$
d_f	Diamètre des fibres	m
d_g	Diamètre de la goutte	m
d_p	Diamètre de la particule	m
E_e	Champs électrique	$V.m^{-1}$
e_g	Epaisseur du « gâteau »	m
E_i	Energie cinétique initiale de l'électron	keV
E_t	Energie totale du noyau atomique	keV
E_m	Energie cinétique maximale	keV
ΔE	Energie transférée	keV
dE/dx	Perte d'énergie	$keV.\mu m^{-1}$
$FWHM$	Full width at half maximum	keV
F	Résultante des forces qui s'appliquent à une particule	N
f	coefficient de frottement	$kg.s^{-1}$
F_A	Force d'Archimède	N
F_{bi}	Force brownienne	N
F_D	Force de traînée	N
F_{el}	Force électrostatique	N
F_{MA}	Force de masse ajoutée	N
g	Accélération de la pesanteur	$m.s^{-2}$
I	Potentiel d'ionisation du milieu traversé	ev
G	Grammage du medium	$kg.m^{-2}$
kB	Constante de Birks caractéristique du milieu scintillant	-
k	Paramètre de Quenching	-
k_B	Constante de Boltzmann	$m^2.kg.s^{-2}.K^{-1}$
dL/dx	Quantité de lumière émise par unité de longueur	$keV.\mu m^{-1}$
m_f	Masse du medium	kg
m_p	Masse de la particule	kg

m_s	Masse de solide collectée	kg
m_e	Masse au repos de l'électron	keV.c ⁻²
m_l	Masse au repos de la particule incidente	keV.c ⁻²
Q	Débit de filtration	m ³ .s ⁻¹
q	Charge d'une particule	C
r_f	Rayon des fibres	m
R_{GP}	Constante des gaz parfaits	J.mol ⁻¹ .K ⁻¹
R	Parcours de la particule	m
R_D	Rendement de détection d'un appareil	-
S_f	Surface filtrante	m ²
S	Pouvoir d'arrêt	keV.μm ⁻¹
t	Temps	s
T	Température	K
U_0	Vitesse de filtration	m.s ⁻¹
U_p	Vitesse de l'aérosol par rapport au fluide	m.s ⁻¹
u_f	Vitesse instantanée du fluide	m.s ⁻¹
V	Vitesse frontale à travers le filtre	m.s ⁻¹
W	Energie effective de création de paire électron-ion	eV
W_T	Masse surfacique de particules collectées au point de transition	kg.m ⁻²
x	Epaisseur parcourue par un rayonnement en un moment donné	m
z	Epaisseur du medium	m
Z_i	le numéro atomique de la particule incidente	-
z'	Epaisseur de chaque pelure du filtre	m
Ze	Charge électrique	C

Lettres grecques

ν_l	Viscosité cinématique du liquide	m ² .s ⁻¹
ν_0	Vitesse de Bohr	m.s ⁻¹
ν	Vitesse de la particule projetée	m.s ⁻¹
ν_{max}	Vitesse maximale de la particule projetée	m.s ⁻¹
α	Rayonnement (ou particule) alpha	-
α_f	Compacité du medium	-
α_{pG}	Compacité du « gâteau »	-
α_p	Compacité des particules d'aérosols	-
β	Rayonnement (ou particule) bêta	-

γ	Rayonnement Gamma	-
γ_s	Tension superficielle de la solution de sel	N.m^{-1}
δ	Rendement du scintillateur	-
p	Pression du gaz	Pa
ΔP	Perte de charge du filtre	Pa
ΔP_0	Perte de charge initiale du filtre	Pa
ε	Porosité du medium	-
η	Efficacité unitaire de collecte pour une fibre	-
η_d	Efficacité unitaire de collecte par le mécanisme de diffusion	-
η_{dr}	Efficacité unitaire de collecte par l'interaction de la diffusion et de l'interception	-
η_i	Efficacité unitaire de collecte par le mécanisme d'impaction inertielle	-
η_j	Efficacité unitaire de collecte pour le mécanisme j	-
η_r	Efficacité unitaire de collecte par le mécanisme d'interception	-
θ	Angle de polarisation des fibres dans le filtre	rad
Ω	Angle solide de détection	sr
λ	Libre parcours moyen	m
μ	Mobilité des électrons ou des ions dans le gaz	$\text{cm}^2(\text{V.s})^{-1}$
μ_g	Viscosité dynamique du gaz	Pa.s
ρ	Densité atomique du milieu	kg.m^{-3}
ρ_g	Masse volumique du gaz	kg.m^{-3}
ρ_f	Masse volumique des fibres	kg.m^{-3}
ρ_p	Masse volumique des particules	kg.m^{-3}
ρ_s	Masse volumique de la solution de sel	kg.m^{-3}

Grandeurs adimensionnelles

CE	Coefficient d'Épuration
F_α	Facteur de correction
C_D	Coefficient de traînée
C_u	Coefficient de Cunningham
Kn	Nombre de Knudsen
P	Perméance
Pe	Nombre de Peclet
R_0	Rendement (%)
Rc	Rendement de collecte d'un filtre
Re	Nombre de Reynolds
St	Nombre de Stokes

Acronymes

AS	Air au Sol Réseau de l'IRSN
BFSAB	Balise à Filtre Séquentiel Alpha/Bêta
CEA	Commissariat à l'énergie atomique
CFD	Computational Fluid Dynamics
DAMA	Diamètre Aérodynamique Médian en Activité
DAMM	Diamètre Aérodynamique Médian en Masse
DNS	Direct Numerical Simulation
EDF	Electricité De France
EPICEA	Essais Physiques des Contaminamètres de l'Eau et de l'Air
EURATOM	European Atomic Energy Community
FSLW	Millipore Fluoropore PTFE (PolyTetraFluorEthylene) Membrane Filter
FWHM	Full width at half maximum
ICARE	Installation de Calibration à l'aide d'Aérosols Radioactif Etalons
ICPR	International Commission on Radiological Protection
IRSN	Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire
ISO	Organisation internationale de normalisation
ITWM	Fraunhofer-Gesellschaft Techno- und WirtschaftsMathematik
GA	Générateur d'Aérosols
GeoDict	GEOMETRIC design and property prediction
LAHET	Los Alamos High Energy Transport
LBM	Lattice Boltzmann Model
LNHB	Laboratoire National Henri Becquerel
LPI	Low Pressure Impactor
MINI20	Measurement Ionisation Ion
MC	Monte Carlo
MCNPX	Monte Carlo N-Particle eXtended
MET	Microscopie Electronique en Transmission
NCPR	National Council on Radiation Protection and Measurements
ORTEC	Oak Ridge Technical Enterprise Corporation
OPERA	Observatoire PERmanent de la Radioactivité Atmosphérique
PIPS	Passivated Implanted Planar Silicon
PM	PhotoMultiplicateur
PSP	Peak Shape Parameter

PTFE	PolyTetraFluorEthylene
RACS	RAndom Closed Sets
RANS	Reynolds Average Navier-Stokes
SARA	Surveillance Automatisée de la Radioactivité des Aérosols
SL	Scintillation Liquide
SPR	Servis de Protection des Rayonnements
STEME	Service de traitement des échantillons et de métrologie pour l'environnement
TRIM/SRIM	Transport/Stopping and Range of Ions in Matter
TICE	Traité d'Interdiction Complète des Essais nucléaires

Résumé

La mesure de la radioactivité dans les filtres utilisés pour la surveillance de l'aérocontamination de l'air présente une difficulté métrologique majeure. En effet, l'absorption des rayonnements α dans le médium filtrant et la masse d'aérosols accumulés biaisent la réponse nucléaire. Ce travail de thèse porte sur la détermination de facteurs de correction de la dégradation de la radioactivité mesurée dans les filtres de surveillance.

Dans un premier temps, des filtres radioactifs représentatifs des prélèvements atmosphériques ont été préparés à l'aide du banc d'essais nucléaire ICARE. L'étude expérimentale sur les filtres de référence a permis d'avoir une base de données pour la détermination des facteurs de correction dans diverses conditions de filtration.

Dans un second temps, ce travail a conduit une nouvelle méthode numérique mise au point pour déterminer les facteurs de correction. Il s'agit de coupler des simulations de filtration des particules d'aérosol à l'aide de *GeoDict*, permettant de calculer des écoulements dans les milieux poreux et des simulations de parcours de particules α dans la matière à l'aide de *MCNPX*. Le bon accord obtenu, en comparant les réponses des spectres en énergie et des facteurs de correction numériques et expérimentaux, a permis de valider le modèle numérique.

Mots clefs : Aérosols radioactifs, filtre à fibres, prélèvement atmosphérique, spectrométrie α , scintillation liquide, facteur de correction de la radioactivité, code de dynamique de fluide *GeoDict*, code Monte Carlo *MCNPX*.

Abstract

The measurement of radioactivity in the filters of airborne radioactive surveillance is a major difficulty metrology. Indeed, the absorption of α radiation in the filter media and the mass of aerosols accumulated distort the nuclear counters response. This thesis work focuses on the determination of correction factors for the radioactivity loss in the survey filters.

In a first step, radioactive filters representing the atmospheric samples have been prepared using the nuclear test bench ICARE. The experimental study on reference filters provided a database to determine correction factors for various filtration conditions.

The second step of the work proposed a new numerical method developed to determine the correction factors. It consists of coupling GeoDict for particles filtration simulations and MCNPX simulations for α transport in matter. The good agreement obtained by comparing the numerical and experimental correction factors has permitted to validate the numerical model.

Key Words: Radioactive aerosols, fiber filters, atmospheric sampling, α spectrometry, liquid scintillation, radioactivity correction factors, fluid dynamics GeoDict code, Monte Carlo MCNPX code.

Spécialité : Sciences de l'Ingénieur

IRSN/DSU/SERAC/LPMA, Centre d'étude nucléaire de Saclay, 91192 Gif-sur-Yvette, Île-de-France, France.