



Thèse présentée pour obtenir le grade de
Docteur de l'Université Louis Pasteur
Strasbourg I

Discipline : **Physique**

Spécialité : **Physique et instrumentation nucléaire**

Par

Roger ABOU-KHALIL

Titre de la thèse :

**Caractéristique de la charge électrique
d'un aérosol radioactif naturel**

Soutenue publiquement le 2 octobre 2008

Membres du jury

Directeur de Thèse : M. Abdelmjid NOURREDDINE, Professeur à l'Université Louis Pasteur, Strasbourg

Rapporteur Interne : M. Rémi BARILLON, Professeur à l'Université Louis Pasteur, Strasbourg

Rapporteur Externe : M. Georges TYMEN, Professeur à l'Université de Brest, Brest

Rapporteur Externe : M. František SPURNÝ, Professeur à l'Académie des sciences, Prague

Examineur : Mme. Nathalie MICHIELSEN, Ingénieur-Chercheur à l'IRSN

à Marie-Thérèse

à mon frère, ma mère et mon père

Remerciements

Je consacre ces quelques lignes à tous ceux qui ont participé de près ou de loin à l'aboutissement de cette thèse ...

Mes remerciements les plus sincères s'adressent tout d'abord à mon directeur de thèse, Monsieur Abdel-Mjid NOURREDDINE, pour m'avoir fait confiance depuis mon arrivée en France (Septembre 2004) pour mon DEA, pour m'avoir guidé, encouragé, conseillé, orienté mes recherches aux bons moments tout en me laissant une grande liberté et en me faisant l'honneur de me déléguer plusieurs responsabilités dont j'espère avoir été à la hauteur.

Mes remerciements vont également à mon encadrant Madame Nathalie MICHIELSEN du laboratoire de physique et métrologie des aérosols de l'IRSN, pour la patience qu'elle a manifestée à mon égard durant ces 3 ans de thèse, pour m'avoir aidé et m'avoir transmis les connaissances appropriées.

J'exprime toute ma gratitude à Messieurs Jean-Claude LABORDE (Chef service SERAC) et Jacques VENDEL (Ex-Chef labo LPMA) pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire ainsi que pour l'hospitalité dont ils ont fait preuve envers moi.

Je tiens également à témoigner ma reconnaissance à Monsieur Serge DELLA-NEGRA pour sa collaboration à ce travail de recherche, me faisant profiter de ses conseils, de son expertise, éclairés par des années de professionnalisme à l'IPN d'Orsay.

Je remercie vivement mes collaborateurs de l'IRSN Madame Jeanne MALET et Monsieur Lionel BERGER. Merci Jeanne pour ta confiance, tes conseils, ton implication dans ce travail et tes critiques. Lionel, merci pour tes conseils scientifiques stimulants, ta participation au projet, ton ouverture et surtout pour les moments inoubliables passés ensemble...

En ce qui concerne la partie expérimentale et notamment la préparation de sources, je remercie Monsieur Cédric AUBERT (IRSN) ainsi que Madame Catherine GALINDO (RaMsES Strasbourg).

Je souhaite remercier également l'équipe du RaMsES de Strasbourg pour leur aide scientifique ainsi que pour leur implication matérielle.

Messieurs Georges TYMEN (président du jury), Rémi BARILLON et František SPURNÝ m'ont fait l'honneur de participer au Jury de soutenance; je les en remercie profondément.

Je remercie tous ceux sans qui cette thèse ne serait pas ce qu'elle est : aussi bien par les discussions que j'ai eu la chance d'avoir avec eux, leurs suggestions ou même les bons moments de décompression partagés. Je pense ici en particulier à Monsieur Jean-Christophe SABROUX qui m'a largement rendu grâce à son encourageante présence quotidienne, ses conseils et nos aventures dans la « traction ». Je pense également à mon cher collègue de bureau Pierre-Yves MESLIN avec qui j'ai formé le duo radon ; « La classe PY », t'es le meilleur ! Enfin, mes collègues thésards, techniciens et ingénieurs : Nadia, Seb, Sylvain, Guillaume, Pascal, Christophe, Philippe, Tony,

Laurent, Guy, Marjorie, Terkia, Catherine, Geneviève, Pascale, François-Xavier, François, Céline, Dominique, Denis, Aurélie, Charles, Jeremy, Hamza, Alexandra, Nicolas, Miroslav, Bouchra, Etienne, Juan-Carlos, Benoit, Safia, Nayla...

Ces remerciements ne seraient pas complets sans mentionner Messieurs Wehbé FARAH (Faculté des Sciences- USJ- Liban) ainsi que Mohamed ROUMIEH (CLEA - Liban) pour l'orientation professionnelle qu'ils ont assurée 4 ans auparavant.

J'aimerais remercier également tous mes amis Beyrouthins : Tony, Walid, Elie, Nicolas, Robert, Nicole, Helga, Roueida, Bachir, Rania, Charlotte... mes amis à Paris : Barouky pour les interminables discussions téléphoniques, Kansa pour les discussions politiques, Ziad pour l'hébergement pendant les périodes difficiles, le trio ZIZ+TIBI+GHORA pour leurs gestes, Maître Elias (cousin) ou plutôt son répondeur, André pour les parties de Basket, Tony Geryes pour les fous rires au labo, Nayla pour le transport, Dany et Krystel à qui je souhaite le meilleur pour l'avenir, Jean Saoud et sa famille pour leurs soutiens, Mathieu et Aurélie pour leur accueil Strasbourgeois, Héla Saidi pour son déplacement à Strasbourg ainsi que tous ceux avec qui j'ai passé d'inoubliables moments !

Pour leurs encouragements et leur assistance morale qui m'ont permis de faire cette thèse dans les meilleures conditions, je remercie chaudement mes très très chers parents Mélanie, Philippe ainsi que mon frère Rony qui m'ont toujours soutenus et qui ont toujours cru en moi.

En toute fin, j'aimerai bien remercier la femme que j'ai rencontré il y a 25 mois aujourd'hui, et sans qui il n'aurait pas été possible de terminer cette thèse et surtout dans les bonnes conditions. Marie-Thérèse était toujours près de moi et surtout dans les moments difficiles, elle m'a toujours soutenu et sur tous les plans. Je la remercie de tout cœur pour ce premier bébé qu'on a eu ensemble le 02 octobre 2008 (n'ayez pas peur, c'est la thèse !!!).

SOMMAIRE

LISTE DES FIGURES	8
LISTE DES TABLEAUX	10
NOMENCLATURE	11
INTRODUCTION	12
CHAPITRE I	14
1. PROPRIETES ET PROCESSUS D'EVOLUTION DES DESCENDANTS DU RADON	15
1.1. Propriétés du radon	15
1.1.1. Propriétés nucléaires	15
1.1.2. Risque sanitaire du radon et Energie Alpha Potentielle	16
1.2. Aspect atomique de la désintégration du radon	18
1.2.1. Théorie de la charge des atomes radioactifs	18
1.2.2. Etudes expérimentales de la distribution de charge des descendants du thoron	20
1.3. La charge électrique totale des descendants du radon et les paramètres influents... ..	22
1.3.1. Théorie de la charge des aérosols radioactifs	22
1.3.2. La charge totale des descendants du radon	25
1.3.3. Les expériences de Wellisch	25
1.3.4. Effet de la pression et de l'humidité relative	26
1.3.5. Effet de la nature du gaz porteur	27
1.4. Neutralisation des descendants du radon	28
1.4.1. Les processus de neutralisation	28
1.4.2. Mesure du taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air (travaux de Dankelmann)	31
1.5. Comportement des descendants du radon dans l'air	35
1.5.1. Evolution de la taille et de la charge de la fraction libre	35
1.5.2. Coefficient de diffusion d'une particule neutre ou d'une particule chargée... ..	37
1.5.3. Mobilité électrique	39
1.5.4. Processus d'attachement et de détachement des descendants du radon	39
1.5.5. Diagramme des processus de l'évolution du radon et de ses descendants dans l'air	40
1.6. Synthèse des travaux sur l'étude de la charge des descendants du radon et du thoron	41

1.7. Conclusion générale	44
CHAPITRE II.....	45
2. ETUDES EXPERIMENTALES.....	46
2.1. Mesure de la distribution de charge du ^{218}Po par un spectromètre de masse.....	46
2.1.1. Dispositif expérimental et principe de mesure	46
2.1.2. Préparation des sources.....	48
2.1.3. Mesure du taux de comptage des détecteurs.....	48
2.1.4. Mesure de temps de vol	49
2.2. Résultats expérimentaux	50
2.2.1. Mesure de temps de vol de recul alpha	50
2.2.2. Spectre d'émission ionique	52
2.2.3. Mesure de temps de vol de recul alpha des sources sans dépôt de Baryum	54
2.3. Discussions et conclusions.....	56
2.4. Mesure de la distribution de charge des descendants du radon.....	58
2.4.1. Description du dispositif expérimental de génération du radon et de ses descendants.....	58
2.4.2. Mesure de la mobilité électrique des descendants du radon	60
2.5. Mesure de la charge totale des descendants du radon	64
2.5.1. Dispositif expérimental	64
2.5.2. Principes de mesures.....	65
2.5.3. Résultat de la mesure de la fraction chargée apparente du ^{218}Po	66
2.5.4. Discussion et comparaison des résultats	68
2.6. Mesure du coefficient de diffusion du ^{218}Po	70
2.6.1. Dispositif expérimental et principe de la mesure.....	70
2.6.2. Résultats et discussions	73
2.6.3. Discussion et comparaison des résultats	77
2.7. Conclusion générale	79
CHAPITRE III.....	81
3. SIMULATIONS NUMERIQUES	82
3.1. Position du problème.....	82
3.2. Présentation du code de calcul CASTEM 2000	83

3.2.1. Organisation d'un calcul	84
3.2.2. Géométrie du système et maillage.....	84
3.3. Définition du modèle mathématique.....	86
3.3.1. Profil de vitesse, régime laminaire, écoulement établi.....	86
3.3.2. Profil de concentration.....	87
3.3.3. Vitesse de dérive des aérosols due au champ électrique.....	88
3.3.4. Modèle mathématique	88
3.4. Validations	89
3.4.1. Profil de vitesse, régime laminaire, écoulement établi.....	89
3.4.2. Profils de concentration.....	90
3.4.3. Fractions pénétrantes	94
3.4.4. Validation de la vitesse de dérive des aérosols due au champ électrique	98
3.5. Conclusion	99
CHAPITRE IV.....	100
4. NEUTRALISATION DE L'AEROSOL DU ²¹⁸Po	101
4.1. Détermination du taux de neutralisation du ²¹⁸ Po	101
4.2. Etude des réponses du modèle numérique aux variations des paramètres d'entrée. 102	
4.2.1. Principe des tests de sensibilité.....	102
4.2.2. Tests de sensibilité pour le coefficient de diffusion	103
4.3. Résultats et discussions.....	105
4.4. Comparaison avec les résultats de la littérature	107
4.4.1. Calcul des concentrations des ions générés et recombines dans le système ..	107
4.4.2. Comparaison des résultats discussion	110
4.5. Conclusion	112
CONCLUSION	113
ANNEXES.....	116
ANNEXE 1 : COMPTEUR ALPHA-PORTATIF A PHOTOMULTIPLICATEUR	117
ANNEXE 2 : METHODE DE COMPTAGE NAZAROFF	120
ANNEXE 3 : SIMULATION MONTE CARLO.....	123
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	126

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Schématisation de la désintégration du ^{222}Rn et du ^{212}Bi	20
Figure 2 - Spectres de charge des atomes de recul $^{208}\text{Tl}^{\text{q+}}$, en coïncidence avec les particules	21
Figure 3 - Processus de chargement électrique d'un aérosol radioactif émetteur alpha ou bêta.....	22
Figure 4 - Trajet des particules activées par des descendants du radon dans un ultramicroscope (Ivanov <i>et al.</i> , 1969)	24
Figure 5 - Première expérience liée à la mesure de la charge électrique des descendants du radon	25
Figure 6 - Tube de ZELNY	26
Figure 7 - Taux de neutralisation d'un ion de Polonium par cm^3 dans l'air et en présence de plusieurs types de molécules (Chu <i>et al.</i> , 1988)	30
Figure 8- Taux de neutralisation du ^{218}Po dans N_2 en fonction de la concentration de H_2O (Chu <i>et al.</i> , 1988)	30
Figure 9 - Schéma du dispositif expérimental utilisé. H.T = Haute tension, H = mesure d'humidité relative, P = Pompe (Dankelmann, 2001)	33
Figure 10 - Le taux de neutralisation dans l'air en fonction de la racine carrée de l'humidité relative (à gauche) et en fonction de la racine carrée du taux d'ionisation (à droite) (Dankelmann, 2001)	33
Figure 11 - Taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air selon les processus de neutralisation (Dankelmann, 2001)	35
Figure 12 - Diagramme présentant tous les processus d'évolution présentés ci-dessus du ^{218}Po et du ^{214}Pb dans l'air dès leur création jusqu'à leur désintégration	41
Figure 13 - Dispositif expérimental : Préamplificateur (PA), Discriminateur à Fraction Constante (DFC), Galettes de Micro-Canaux (GMC).....	47
Figure 14 - Localisation des ions de reculs alpha (droite) et des ions secondaires (gauche) pour les deux cibles étudiées (55 et 122 Bq). Images données par le détecteur à localisation de 64 pixels avec une tension d'accélération et sans tension d'accélération	49
Figure 15 - Spectres de temps de vol des ions de recul sans tension d'accélération pour les deux cibles étudiées d'activité 55 et 122 Bq.....	51
Figure 16 - Spectres de temps de vol obtenus en appliquant une différence de potentiel de +10 kV entre la cible et la grille d'accélération du temps de vol.....	52
Figure 17 - Temps de vol des ions secondaires et des reculs alpha lors de l'application d'une différence de potentiel de +10 kV et 0 kV respectivement entre la cible et la grille d'accélération	53
Figure 18 - Localisation des ions de reculs alpha (source IRSN 170 Bq). Images données par le détecteur à localisation de 64 pixels sans tension d'accélération	54
Figure 19 - Spectre de temps de vol des ions de recul sans tension d'accélération.....	55
Figure 20 - Temps de vol des ions secondaires et des ions de recul. En noir les expériences faites avec les sources IRSN et en bleu avec les sources RaMsEs.....	55
Figure 21 - Spectre de temps de vol : les ions secondaires obtenus pour une tension d'accélération de +10 kV (en noir) et les ions de recul obtenu sans différence de potentiel (bleu) ...	56
Figure 22 - Dispositif expérimental pour mesurer la fraction chargée des descendants du radon ...	59
Figure 23 - Courbe d'étalonnage du détecteur PIPS à un instrument de référence	60
Figure 24 - Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique (Nano-ADME)	61
Figure 25 - Tension d'alimentation de l'ADME en fonction des deux débits (sheath et excess) pour sélectionner des particules de 2 nm portant une charge	62
Figure 26 - Fonction de transfert de l'ADME	62

Figure 27 - Probabilité d'échantillonner une particule ayant une mobilité électrique de $5,26 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s} \cdot V$ (diamètre 2 nm portant une charge).....	63
Figure 28 - Dispositif expérimental de mesure de la fraction chargée apparente des descendants du radon	65
Figure 29 - Fraction chargée apparente du ^{218}Po en fonction de l'activité volumique en radon	67
Figure 30 - Evolution du radon et de ses descendants dans le dispositif expérimental (Malet, 1997)	70
Figure 31 - Dispositif expérimental de mesure de la granulométrie des descendants du radon.....	71
Figure 32 - Grille de diffusion	71
Figure 35 - Coefficient de diffusion du ^{218}Po moyen mesuré avec trois grilles différentes pour un débit volumique de 2,5 l/min et une activité volumique de radon de 1507 kBq/m ³	76
Figure 36 - Coefficient de diffusion du ^{218}Po moyen mesuré avec trois grilles différentes pour un débit volumique de 5 l/min et une activité volumique de radon de 912 kBq/m ³	77
Figure 37 - Exemple de maillage du tube cylindrique : le haut de la figure représente la paroi du tube, le bas de la figure représente l'axe du tube ; maille axiale : 17,5 mm ; maille radiale à l'axe : 0,8 mm ; maille radiale à la paroi : 0,6 mm	85
Figure 38 - Etablissement du profil parabolique des vitesses dans un tube ; R = 0,04 m ; Re = 240. Comparaison entre les calculs numériques effectués avec CASTEM 2000 et le profil parabolique obtenu avec la solution analytique (courbe sans marque en rouge) pour z = 1,8 m	89
Figure 39 - Evolution du profil radial de concentration des aérosols en fonction de la distance axiale dans le tube ; R = 0,04 m ; Re = 240 et D = $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$	90
Figure 40 - Profil radial de concentration des aérosols dans un tube pour différent coefficient de diffusion ; R = 0,04 m ; Re = 100 ; z = 2 m	90
Figure 41 - Profil radial de concentration du ^{218}Po pour différentes nombres de Péclet ;	91
Figure 42 - Profil radial de concentration en ^{218}Po . Comparaison entre le calcul numérique obtenu avec CASTEM 2000 (croix) et le calcul analytique de Berezhnoi et Kirinchenko (1964) (courbe sans marque) ; z = 2 m ; R = 0,01 m ; Re = 500 ; D = $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$	93
Figure 43 - Profil radial de concentration des trois premiers descendants du radon ramenées à leur maximum ; R = 0,04 m ; z = 1 m ; D = $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$; Re = 500	93
Figure 44 - Comparaison du profil de pénétration d'Ingham et celui de CASTEM 2000 pour.....	95
Figure 45 - Fraction pénétrante du ^{218}Po dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Berezhnoi et Kirichenko (1964)	96
Figure 46 - Fraction pénétrante du ^{214}Pb dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Malet (1997)	97
Figure 47 - Fraction pénétrante du ^{214}Bi dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Malet (1997)	97
Figure 48 - Fractions pénétrantes des trois premiers descendants du radon dans le tube obtenues à partir des calculs numériques effectués avec CASTEM 2000 pour D = $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$	98
Figure 49 - Vitesse de dérive d'un aérosol monochargé obtenue par calcul CASTEM 2000 et calcul théorique pour deux coefficients de diffusion de $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $5,92 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$	99
Figure 50 - Taux de neutralisation du ^{218}Po en fonction de la racine carrée de l'activité volumique en radon dans l'air pour une humidité relative de 5,6 %.....	105
Figure 51 - Taux de neutralisation du ^{218}Po en fonction de la concentration en ions positifs et négatifs créés dans le tube de diffusion.....	111

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 - Energie cinétique des alpha et des atomes de recul lors des désintégrations.....	16
Tableau 2 - Propriétés nucléaires des principaux isotopes du radon	16
Tableau 3 - Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du ²²² Rn	17
Tableau 4 - Distribution de charge du ²¹⁶ Po pour une pression de 10 ⁻⁵ mmHg.....	20
Tableau 5 - Valeurs expérimentales de la charge moyenne des aérosols radioactifs	24
Tableau 6 - Valeurs du pourcentage de dépôt des descendants du radon en variant la tension (négative) de la cathode et pour deux pressions d'air sec, 210 et 760 mmHg.....	26
Tableau 7 - Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du radon dans l'air...	42
Tableau 8 - Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du thoron.....	43
Tableau 9 - Différentes valeurs d'énergies de recul, de temps de vol (en s et en canaux) avec et sans perte d'énergie de 40 keV pour le radon et ses descendants.....	52
Tableau 10 - Nombres de particules collectés sur les deux filtres placés en sortie du Nano-ADME, sorties Excess air out et aerosol Monodisperse aerosol out dans le cas ou V = 0 V	64
Tableau 11 - tableau des résultats de la fraction chargée apparente du ²¹⁸ Po obtenus pour les différentes configurations expérimentales	68
Tableau 12 - Comparaison des valeurs expérimentales obtenues par J. Malet et R. Abou-Khalil pour la fraction chargée apparente du ²¹⁸ Po en fonction de plusieurs paramètres.....	69
Tableau 13 - Caractéristiques des grilles de diffusion utilisées en sortie du tube de diffusion	71
Tableau 14 - tableau récapitulatif des configurations expérimentales.....	73
Tableau 15 - Caractéristiques des grilles de diffusion pour déterminer l'unimodalité du ²¹⁸ Po	76
Tableau 16 - Comparaison des valeurs expérimentales obtenues par J. Malet et R. Abou-Khalil pour le coefficient de diffusion moyen du ²¹⁸ Po en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon.....	78
Tableau 17 - Récapitulatif des valeurs expérimentales obtenues par différents auteurs pour le coefficient de diffusion moyen du ²¹⁸ Po en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon.....	78
Tableau 18 - Influence de la variation du coefficient de diffusion du ²¹⁸ Po chargé et neutre sur le taux de neutralisation.....	104
Tableau 19 - Valeurs des coefficients de diffusion du ²¹⁸ Po chargé et neutre obtenues pour des activités volumiques de radon et des temps de résidence variables	106
Tableau 20 - Tableau de calcul de la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre par unité de temps.....	109

NOMENCLATURE

ADME : Analyseur différentielle de Mobilité Electrique

CAPP : Compteur Alpha-Portatif à Photomultiplicateur

CEA : Commissariat français à l'Energie Atomique

DFC : Discriminateur à Fraction Constante

EAP : Energie Alpha Potentielle

GMC : Galettes de Micro-Canaux

H.R : Humidité Relative

H.T : Haute Tension

IPNO : Institut de Physique Nucléaire d'Orsay

IRSN : Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire

LEI : Laboratoire des Etalons et des Intercomparaisons

LPMA : Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols

PA : Préamplificateur

PIPS : Passivated Implanted Planar Silicon

RaMsEs : Radioprotection et Mesures Environnementales

INTRODUCTION

L'intérêt porté au radon (^{222}Rn) et à ses descendants à vie courte est d'abord liée à la radioprotection. L'inhalation du radon par un individu est généralement sans conséquence parce que, d'une part, cet élément est un gaz inerte, et d'autre part sa période radioactive est longue (3,8 jours) par rapport au temps de séjour dans l'appareil pulmonaire. Par contre, les descendants du radon étant des aérosols, ils peuvent se déposer dans l'appareil respiratoire, et s'y désintégrer, leur période radioactive étant courte. Parmi les descendants du radon, le ^{218}Po est un émetteur alpha, lors de sa désintégration, la particule alpha très énergétiques (6 MeV) pouvant entraîner des modifications, voire des destructions cellulaires. On cherche généralement à connaître la dose reçue par un individu fréquemment exposé à une forte activité en radon et en ses descendants.

Les caractéristiques physiques d'un aérosol déterminent son évolution dans un milieu et sa captation sur les surfaces et systèmes d'échantillonnage. Ainsi les particules sont principalement soumises, suivant leur taille, à la pesanteur, à l'inertie ou à la diffusion. Cependant, lorsque les particules sont électriquement chargées, la force électrostatique peut être prédominante et va influencer fortement leur comportement. Par exemple, Cohen *et al.* (1998) montrent l'effet des particules chargées sur leur dépôt dans l'appareil respiratoire. Leurs résultats montrent un dépôt de 5 à 6 fois supérieur, pour des particules de 20 et 125 nm portant une charge, par rapport à des particules neutres de même taille.

Dans le cas de la fraction libre du ^{218}Po , qui correspond à un domaine de dimensions compris entre 0,5 nm et quelques nanomètres, la charge électrique va modifier, d'une part sa mobilité, d'autre part les mécanismes de dépôt mis en jeu dans l'appareil respiratoire mais aussi sur les parois modifiant ainsi son évolution dans les habitations et lieux publics.

Les caractéristiques de la charge électrique des descendants du radon, qui sont la distribution de charge et la charge totale, ont été inspectées depuis le siècle dernier. Dans le cas de la distribution de charge, Szucs (1965) fut le premier à étudier l'influence de la désintégration alpha sur la structure électronique de l'atome de recul du descendant du thoron, le ^{216}Po . Dans le même cas, pour les descendants du thoron, une autre expérience a été faite par Joret (1990) afin d'explorer la distribution de charge du ^{208}Tl . Dans la littérature, aucune expérience concernant la distribution de charge des descendants du radon n'a été mentionnée.

Dans le cas de la charge totale, historiquement la première expérience liée à la mesure de la charge électrique des descendants du radon a été réalisée par Pierre et Marie Curie en 1904. Cette première expérience a pu mettre en évidence la présence de la fraction chargée des descendants du radon. En 1913, Wellisch a réalisé des expériences plus avancées concernant la charge électrique des descendants du radon. Ces mesures de charge électrique ont été poursuivies par Renoux (1965) et par Porstendörfer (1979).

Néanmoins, tous ces résultats existant dans la littérature restent insuffisants et il est nécessaire, pour améliorer le calcul de dose, de bien maîtriser ces paramètres c'est-à-dire de faire

progresser les connaissances sur le processus de charge électrique d'un aérosol radioactif naturel, notamment de la fraction libre et attachée des descendants du radon.

Toutes ces dernières constations sont à l'origine la motivation de ce travail de thèse. Il s'agit pour nous :

- d'étudier la distribution de charge des descendants du radon qui n'a jamais été faite,
- de comprendre pourquoi les résultats sur la fraction chargée des descendants du radon sont si dispersés et d'étudier l'influence de plusieurs paramètres sur cette charge.

Le manuscrit présenté est scindé en 4 chapitres. Le premier relate une synthèse bibliographique sur le sujet. Nous rappelons différentes notions concernant la charge électrique des descendants du radon. En particulier, nous décrivons les mécanismes et les expériences liés à l'évolution dans le temps de la charge électrique des descendants du radon et du thoron. Ceci nous conduit alors à déterminer l'étude de base à mener dans le cadre de cette thèse : les caractéristiques de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel, en particulier les descendants du radon.

Le chapitre 2 est consacré à la présentation de nos travaux expérimentaux, basés sur deux phases expérimentales distinctes. La première a fait l'objet d'une collaboration avec l'Institut de Physique Nucléaire d'Orsay (IPNO). Elle avait pour but de mesurer la distribution de charge des ions de recul ^{218}Po par une méthode dit «de temps de vol» à l'aide d'une chambre de spectromètre de masse auprès d'un accélérateur Tandem d'Orsay. La deuxième phase expérimentale avait pour but de mesurer la charge totale dans le cas de la fraction libre du ^{218}Po à l'aide d'un tube de Zeleny. Ces expériences ont été effectuées au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). Deux paramètres principaux sont testés, l'activité volumique et le temps de résidence, pour voir leurs influences sur la charge électrique des descendants.

Le chapitre 3 décrit nos calculs numériques associés à cette étude. Afin de compléter l'étude expérimentale, les mesures sont couplées à des simulations par CASTEM 2000, code d'analyse de structures et de composants par la méthode des éléments finis. Dans ce chapitre, les dimensions géométriques expérimentales réelles du dispositif expérimental ont été introduites dans ce code et des tests préliminaires de validation ont été faits.

La confrontation de nos résultats expérimentaux et numériques nous ont permis de comparer la fraction chargée expérimentale et la fraction chargée numérique en fonction du «taux de neutralisation» au chapitre 4.

CHAPITRE I

1. PROPRIETES ET PROCESSUS D'EVOLUTION DES DESCENDANTS DU RADON

1.1. Propriétés du radon

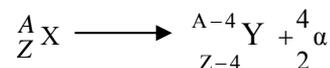
1.1.1. Propriétés nucléaires

Le radon est un gaz radioactif produit naturellement dans le sous-sol par désintégration du radium, provenant lui-même de la désintégration nucléaire de l'uranium et du thorium. Le radon 219, le radon 220 et le radon 222 sont les trois principaux isotopes naturels du radioélément radon parmi les 27 actuellement connus allant de l'isotope 200 à l'isotope 226 (3 naturels, 24 artificiels). Ils appartiennent aux trois familles radioactives naturelles, et sont formés par désintégration alpha du parent radium. Considérons par exemple la désintégration du noyau instable de radium 226. Elle conduit à la formation d'un atome de radon 222, accompagnée de l'émission d'un noyau d'hélium, ou particule alpha :



La différence de masse entre le noyau initial et l'ensemble des noyaux résultants est à l'origine de l'énergie cinétique de la particule alpha et de celle du radon, de l'ordre de 101 keV, également appelée énergie de recul. Le radon se désintègre lui aussi par émission alpha, avec des périodes radioactives courtes, la plus élevée n'excédant pas 4 jours. Les produits de filiation du radon sont des ions métalliques radioactifs qui se désintègrent par émission alpha ou bêta.

Calcul de l'énergie cinétique des alpha et de l'énergie de recul :



Avec X et Y les atomes initiaux et finaux, A le nombre de masse et Z le numéro atomique.

Cette désintégration alpha est caractérisée par un bilan d'énergie de la réaction notée Q :

$$Q = (m_x - m_Y - m_\alpha) \cdot C^2 \quad (1)$$

où m_x , m_Y , m_α sont les masses respectives des nucléides X, Y et du noyau alpha et C la célérité de la lumière.

Généralement, l'énergie cinétique des alpha est inférieure à Q, à cause de l'énergie de recul ; en appliquant les lois de conservation de masse, l'énergie cinétique et l'énergie de recul sont calculées avec les expressions suivantes :

$$E_\alpha = \frac{m_Y}{m_Y + m_\alpha} Q = \frac{A-4}{A} Q \quad \text{et} \quad E_r = \frac{m_\alpha}{m_Y + m_\alpha} Q = \frac{4}{A} Q \quad (2)$$

Comme l'énergie des alpha est bien connue pour tous les émetteurs alpha, l'énergie de recul peut être estimée par :

$$E_r = \frac{4}{A-4} E_\alpha \quad (3)$$

Les tableaux 1 et 2 résument les énergies de désintégration et de recul des descendants et des isotopes du radon :

Tableau 1 - Energie cinétique des alpha et des atomes de recul lors des désintégrations

X	E_{α} (MeV)	Y	E_r (keV)
^{226}Ra	4,77	^{222}Rn	86
^{222}Rn	5,49	^{218}Po	101
^{218}Po	6,00	^{214}Pb	112
^{224}Ra	5,69	^{220}Rn	103
^{220}Rn	6,29	^{216}Po	117
^{216}Po	6,78	^{212}Pb	128
^{212}Bi	6,07	^{212}Po	115

Tableau 2 - Propriétés nucléaires des principaux isotopes du radon

Précurseur de la famille radioactive	Isotope	Nom usuel	Energie de recul (keV)	Energie alpha de désintégration (MeV)	Période radioactive
^{235}U	^{219}Rn	Actinon	103	α (6,8)	3,96 secs
^{232}Th	^{220}Rn	Thoron	103	α (6,3)	55,6 secs
^{238}U	^{222}Rn	Radon	86	α (5,49)	3,82 jours

1.1.2. Risque sanitaire du radon et Energie Alpha Potentielle

Généralement, le gaz radon diffuse dans l'air à partir du sol ou de l'eau où il peut être dissous. A l'air libre, sa concentration est faible du fait de sa dilution par les vents. Mais dans l'atmosphère plus confinée d'un bâtiment, il peut s'accumuler et atteindre des concentrations élevées. Les pouvoirs publics ont entériné un seuil d'alerte de 1000 Bq.m^{-3} et retenu, en outre, comme objectif de précaution, le seuil de 400 Bq.m^{-3} , pour les bâtiments existants. Les matériaux de construction constituent la deuxième source de radon. Elle ne dépasse généralement pas quelques dizaines de Bq.m^{-3} alors que le sol de l'habitation peut être une source de concentrations de radon de quelques centaines de Bq.m^{-3} . Lorsqu'il est dégagé dans l'atmosphère, le radon se désintègre dans l'air en donnant successivement des atomes de ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi et ^{214}Po sous forme de particules microscopiques. Le descendant suivant, le ^{210}Pb , de période beaucoup plus longue (22 ans), ne s'y trouve qu'en concentration négligeable. Ces quatre descendants peuvent être inhalés et

déposés dans l'arbre respiratoire des individus. Du fait de sa très courte période (16 ms), le nombre d'atomes de ^{214}Po est négligeable dans l'air alors que les trois autres vont s'y fixer et s'y désintégrer jusqu'au ^{210}Pb .

Un atome de ^{218}Po émet une particule alpha de 6 MeV, le ^{214}Pb formé conduit au ^{214}Bi , puis au ^{214}Po afin d'aboutir au ^{210}Pb par désintégration alpha d'énergie 7,69 MeV. La somme de ces deux énergies, 13,69 MeV est définie comme l'Energie Alpha Potentielle (EAP) de l'atome de ^{218}Po . L'EAP de chaque atome de ^{214}Pb et de ^{214}Bi inhalé est de 7,69 MeV. Pour chaque désintégration radioactive d'un descendant on définit une Energie Alpha Potentielle (EAP). Cette dernière dépend de la période radioactive de ces descendants d'où la différence des valeurs des Energies Alpha Potentielle par becquerel. Dans le tableau 3 ci-dessous, l'EAP des descendants du radon est représentée.

L'Energie Alpha Potentielle volumique des descendants à vie courte du radon pondérée par le nombre de chaque descendant est ainsi donnée par l'expression suivante :

$$EAP_v = 13,69N(^{218}\text{Po}) + 7,69N(^{214}\text{Pb}) + 7,69N(^{214}\text{Bi}) \quad (4)$$

où $N(^{218}\text{Po})$, $N(^{214}\text{Pb})$ et $N(^{214}\text{Bi})$ désignent respectivement les nombres d'atomes par mètre cube des isotopes ^{218}Po , ^{214}Pb et ^{214}Bi .

Tableau 3 - Energie Alpha Potentielle des descendants à vie courte du ^{222}Rn

Descendant du ^{222}Rn	Période (min)	EAP (MeV)	EAP (MeV.Bq ⁻¹)
^{218}Po	3,05	13,69	3 620
^{214}Pb	26,8	7,69	17 800
^{214}Bi	19,9	7,69	13 100
^{214}Po	$2,75 \times 10^{-6}$	7,69	2×10^{-3}
EAP à l'équilibre par Bq de radon			34 520

Pour le ^{220}Rn dont la période radioactive est de 55,6 s, la plupart des atomes produits se désintègrent avant de franchir la surface du sol. Seule une petite fraction diffusée au travers des murs des bâtiments peut se trouver dans l'air environnemental, à l'intérieur et à l'extérieur des logements.

Etant donné la faible période radioactive de l'actinon (3,96 s), ainsi que la faible quantité d' ^{235}U (0,711 %) par rapport à l'uranium naturel ^{238}U dans la croûte terrestre, ce radioélément est rare dans l'atmosphère à cause de ses capacités de migration limitées dans l'air environnemental ; il n'est pas considéré comme influent dans le calcul de dose dû au radon.

1.2. Aspect atomique de la désintégration du radon

La radioactivité est la propriété d'un noyau atomique instable ou radioactif de se transformer en un ou plusieurs noyaux d'autres éléments et d'émettre, lors de cette transformation, une particule alpha (un noyau d'hélium), un électron (particule bêta) et un photon (rayon X ou rayon gamma).

1.2.1. Théorie de la charge des atomes radioactifs

De nombreuses expériences montrent que toute désintégration α ou β s'accompagne le plus souvent d'une modification plus ou moins profonde du cortège électronique de l'atome parent. En effet, avant la désintégration, on peut supposer que cet atome est, en général, neutre ; après la désintégration, si aucune modification n'intervenait dans le cortège, il devrait généralement posséder une charge négative 2 en émission α , et une charge positive 1 en émission β^- . Or il n'existe pratiquement pas d'atomes de recul portant une charge 2^- en émission α et environ 20 % des atomes de recul, en émission β^- , ont une charge positive supérieure à l'unité. La loi de conservation de la charge totale du système qui se désintègre, telle qu'elle vient d'être présentée, n'est donc pas respectée (De Wieclawik, 1969). Il faut en conclure qu'une ionisation supplémentaire intervient, pendant la désintégration elle-même, due à la perturbation que subissent les électrons du cortège, lors de cette désintégration.

Pour faciliter l'analyse de ce phénomène, on attribue généralement la perturbation ressentie par les électrons du cortège à trois causes distinctes, bien qu'elles ne soient pas nécessairement indépendantes :

- a) la modification du champ coulombien du noyau dont la charge passe de Z à Z' ,
- b) le recul du noyau,
- c) l'interaction directe entre la particule chargée émise et un électron du cortège.

Par suite de la première cause, le cortège doit s'adapter au nouveau champ nucléaire ; par suite de la deuxième, il est brusquement ébranlé et par suite de la dernière, l'un des électrons du cortège peut être diffusé, par collision avec la particule émise par le noyau ; dans tous les cas, un ou plusieurs électrons peuvent être excités à des niveaux liés non occupés de l'atome, ou même peuvent être émis hors de l'atome. L'excitation ou l'ionisation ainsi obtenues sont dites internes (Stephas et Crasemann, 1967), par analogie avec des phénomènes parallèles, mis en jeu lors de la désintégration nucléaire : freinage interne, conversion interne, diffusion Compton interne... Cependant, ce point de vocabulaire n'est pas unanimement adopté ; certains auteurs emploient, dans le même contexte, le terme auto-ionisation (Erman *et al.*, 1968) ; d'autres, Bethe (1953), Duquesne (1961), utilisent ces mêmes expressions avec des sens restrictifs : ionisation interne, si la cause c) est seule en jeu et auto-ionisation si c'est la cause a).

La notion de rapidité de variation de la perturbation apportée au cortège par la désintégration est très importante pour l'étude du phénomène d'ionisation interne. En effet, pour qu'un électron du cortège soit excité ou ionisé, il faut qu'il subisse une transition entre deux états quantiques distincts de l'atome initial et de l'atome final. Or, la probabilité d'une telle transition

est très différente suivant que la perturbation est brusque ou lente. Dans le cas extrême d'une perturbation instantanée, il est possible de trouver l'électron dans l'un quelconque des états propres de l'atome final, tandis que dans l'autre cas extrême, d'une perturbation infiniment lente, l'électron a une grande probabilité de conserver ses nombres quantiques initiaux.

Dans le cas des atomes lourds (le radon et ses descendants), on constate que la condition de soudaineté est vérifiée pour la plupart des émetteurs β , quelle que soit la couche de l'électron ionisé, mais qu'elle ne l'est par contre pas pour les émetteurs α , lorsqu'il s'agit d'ionisation en couche profonde, car, dans ce dernier cas, la particule α traverse le cortège avec une vitesse environ une dizaine de fois inférieure aux vitesses orbitales des électrons k .

Ionisation interne en émission α :

Dans les calculs théoriques qui ont été entrepris sur ce sujet, les auteurs considèrent que l'émission α constitue pour le système atomique une petite perturbation dépendante du temps ; cette dépendance étant différente suivant qu'il s'agit des électrons des couches profondes du cortège ou des électrons de valence. Pour ces derniers, on peut, à la limite, traiter le problème de l'ionisation interne par la méthode de perturbation brusque car la vitesse des particules α est en général (dans les émetteurs α lourds) nettement plus grande que la vitesse orbitale moyenne des électrons périphériques. Par contre, pour les électrons des couches K ou L , c'est plutôt l'inverse. Quant aux électrons intermédiaires, dont la vitesse est voisine de celle des particules α , aucun calcul jusqu'à présent n'a été proposé. D'autre part, il faut considérer que la perturbation subie par le cortège atomique, lors de l'émission α , est aussi bien d'origine coulombienne (variation de la charge nucléaire de $Z+2$ à Z et modification du champ local le long de la trajectoire de la particule α) que d'origine mécanique (recul du noyau, vitesse de la particule α).

Dans le cas du radon, sa désintégration alpha laisse l'atome de recul ^{218}Po dans son état fondamental (figure 1). L'ionisation de l'atome de recul $^{218}\text{Po}^{q+}$ (q nombre de charge) ne résulte que des effets liés à la désintégration alpha elle-même (perturbation que subissent les électrons lors de cette désintégration) ; ceci implique que la majorité des électrons sont à l'état stable et donc n'apportent pas de perturbation au niveau du cortège électronique. Ce mécanisme a pour conséquence une majorité de ^{218}Po neutres et une faible distribution de chargés. Cette caractéristique est commune à tous les émetteurs alpha de la filiation du radon. Par contre, dans la filiation du thoron, la désintégration alpha du ^{212}Bi peut laisser l'atome résiduel de ^{208}Tl (figure 1), soit dans l'état fondamental (27,2 % des cas), soit dans un état excité à 39,8 keV (69,9 % des cas), soit encore dans un état excité d'énergie supérieure ou égale à 3 keV (2,9 % des cas). L'ionisation de l'atome de recul $^{208}\text{Tl}^{q+}$ peut être due soit à des phénomènes d'ionisation analogues à ceux qui déterminent la charge des atomes $^{218}\text{Po}^{q+}$, soit à la conversion interne de la transition de 39,8 keV par suite des processus de réorganisation du cortège (De Wieclawik, 1969). Cette dernière induit des émissions électroniques, donc une grande distribution de charge pour le ^{208}Tl .

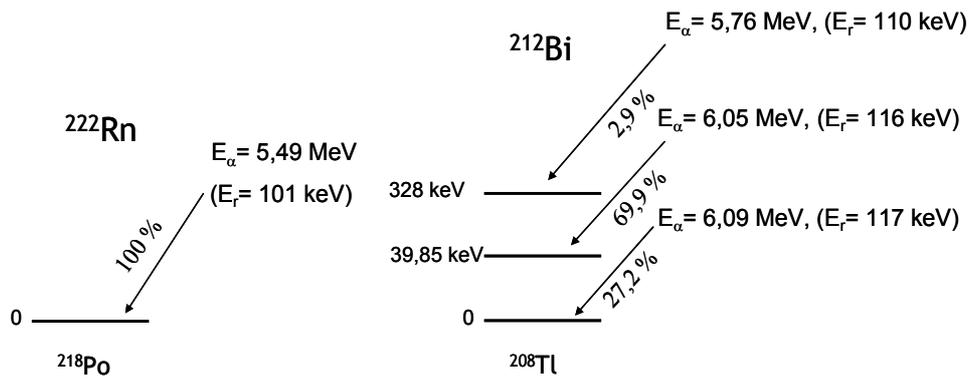


Figure 1 : Schématisation de la désintégration du ^{222}Rn et du ^{212}Bi

1.2.2. Etudes expérimentales de la distribution de charge des descendants du thoron

En 1965, Szucs (Szucs *et al.* 1965) était le premier à présenter des résultats concernant la distribution de la charge électrique des descendants du thoron et en particulier du ^{216}Po . Szucs a étudié l'influence de la désintégration alpha du ^{220}Rn sur la structure électronique de l'atome de recul, le ^{216}Po . L'énergie de recul du ^{216}Po est monoénergétique de 116,5 keV et ceci permet d'employer la séparation de charge électrostatique sans analyse dans un champ magnétique. La distribution de la charge électrique du ^{216}Po , pour une pression de 10^{-5} mmHg, est représentée dans le tableau 4.

Tableau 4 - Distribution de charge du ^{216}Po pour une pression de 10^{-5} mmHg

La charge du ^{216}Po	Pourcentage de la fraction chargée (%)
-1	2,176
0	87,056
+1	3,109
+2	2,145
+3	1,741
+4	1,554
+5	0,901
+6	0,652
+7	0,373
+8	0,164
+9	0,124

Dans le cas des descendants du thoron, une autre expérience a été effectuée par Joret (1990) pour étudier la distribution de charge du thallium-208, descendant du thoron. La filiation radioactive du thoron conduit au ^{212}Bi qui est à la fois émetteur alpha et bêta. La désintégration alpha du ^{212}Bi conduit à l'état fondamental et à l'état excité du ^{208}Tl (figure 1). La distribution de charge du ^{208}Tl a été mesurée par la technique de temps de vol à l'aide d'un accélérateur de type

Tandem. Cette technique vise à séparer les particules chargées à l'aide d'un champ électrostatique et à les classer en fonction de leur temps de collecte (dit temps de vol) qui est proportionnel à leurs charges. Cette méthode est détaillée dans le chapitre 2. Les résultats de cette expérimentation sont représentés dans la figure 2 et distinguent deux distributions :

- l'une allant au fondamental du ^{208}Tl , est constituée d'atomes d'état de charge 0, 1 et 2.
- l'autre peuple le niveau excité à 39,8 keV, comporte des atomes dont les états de charge sont compris entre 4 et 20.

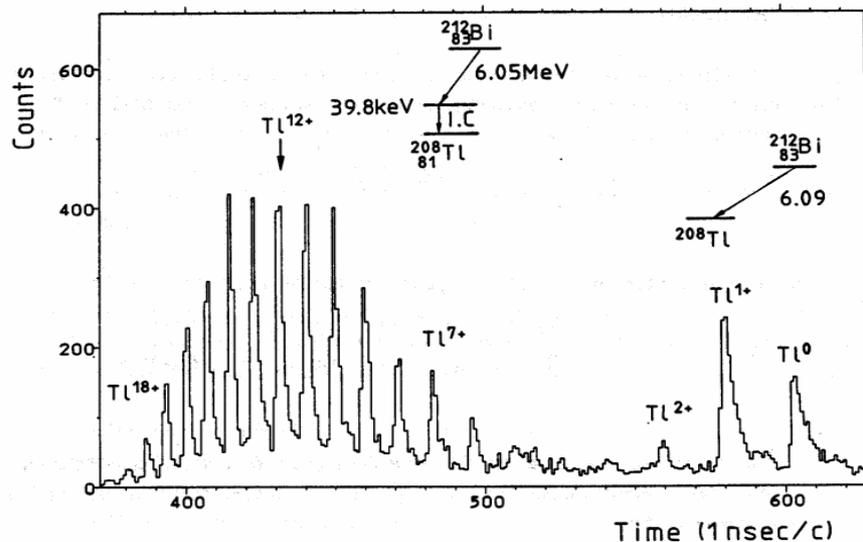


Figure 2 - Spectres de charge des atomes de recul $^{208}\text{Tl}^{q+}$, en coïncidence avec les particules alpha d'énergie 6,05 et 6,09 MeV

Les résultats des expériences de Szucs et Joret montrent la validation de la théorie. Dans l'expérience de Szucs, le ^{220}Rn se désintègre à l'état fondamental du ^{216}Po avec une majorité d'atomes neutres (87 %) et une petite contribution d'atomes chargés +1 et +2. Ce résultat a été confirmé par Joret avec un autre élément de la chaîne radioactive du thoron, le ^{208}Tl , descendant du ^{212}Bi . Cependant, l'autre désintégration alpha du ^{212}Bi vers l'état excité induit une distribution d'atomes multichargés. Dans le cas des descendants du radon, tous les éléments peuplent le niveau fondamental, ceci impose des distributions de charge majoritairement neutre avec quelques chargés +1 et +2. Cependant aucune expérience concernant les descendants du radon n'a été faite pour valider cette théorie.

Dans cette partie, seule à été traitée l'influence de la désintégration alpha sur l'état quantique de l'atome sans tenir compte du milieu ambiant au moment de la désintégration. En effet, les deux expériences citées ci-dessus sont effectuées dans le vide afin de pouvoir simuler l'aspect théorique.

D'après la figure 3, nous pouvons déjà percevoir la complexité de ce processus. En effet, nous voyons, d'une part, que les divers mécanismes participant à ce processus sont interdépendants et, d'autre part, que ces mécanismes sont différents suivant la nature (alpha ou bêta) de la radioactivité de l'aérosol. Par exemple, le mécanisme d'auto-chargement des aérosols émetteurs alpha est sensiblement différent de celui des émetteurs bêta ; de même, la production des ions bipolaires va dépendre de la nature du rayonnement et de la concentration de l'aérosol.

Détaillons les différents mécanismes intervenant dans ce processus.

L'auto-chargement des particules

↳ *Les émetteurs bêta*

Afin de caractériser le taux d'auto-chargement d'un aérosol radioactif, nous utilisons l'activité spécifique des particules radioactives, définie par le nombre moyen de désintégration par unité de temps sur une particule, ainsi que le nombre de charges électriques résiduelles sur les particules lors d'une désintégration.

Dans le cas des radioéléments émetteurs bêta, il est généralement admis que le nombre de charges élémentaires émises à chaque désintégration est égal à 1 (Ivanov et Kirichenko 1970, Yeh 1976), et correspond à l'éjection de l'électron. En conséquence le taux d'auto-chargement de la particule est positif, et il est défini par la relation :

$$m = p \cdot \eta = +1 \cdot \eta \quad (5)$$

où m représente le taux d'auto-chargement d'une particule (charges élémentaires/s), p le nombre de charge résiduelle à chaque désintégration et η l'activité spécifique de la particule (Bq/p).

Pour les aérosols émetteurs bêta, le taux d'auto-chargement est donc égal à l'activité spécifique des particules. Dans le cas des descendants du radon et du thoron émetteurs bêta, citons le cas de la désintégration nucléaire du ^{214}Pb :



↳ *Les émetteurs alpha*

Considérons par exemple le cas de la désintégration nucléaire du ^{222}Rn . C'est à partir de cette désintégration (instant $t = 0$) que démarre l'historique du ^{218}Po et se succèdent les processus qui interviennent dans l'évolution de sa charge électrique. Le ^{222}Rn se désintègre en émettant un noyau alpha (He^{2+}) de 5,49 MeV et un atome de recul ^{218}Po possédant une énergie cinétique de 101 keV. Une étude réalisée par Ivanov *et al.* (1969) cite les travaux d'Ehrenhaft (1925) qui a observé expérimentalement pour la première fois une émission d'électrons secondaires. Dans leurs études, Ivanov *et al.* ont également réalisé des expériences permettant de déterminer l'auto-chargement d'un aérosol émetteur alpha ayant été activé par les descendants du radon.

L'expérience menée par Ivanov *et al.* en 1969 consistait à mélanger des aérosols de dibutylphthalate ($\text{C}_{16}\text{H}_{22}\text{O}_4$) monodispersés avec du radon. Ces aérosols activés par les descendants du radon, étaient dirigés vers un ultramicroscope munis de deux électrodes distantes de 0,252 cm et alimentées par un champ électrique de 120 V/cm. La figure 4 représente le trajet de ces

particules activées par les descendants du radon dans l'ultramicroscope. On constate des déviations dans le trajet des particules vers l'électrode négative, on attribue ce phénomène de changement de charge aux émissions des électrons secondaires dues aux désintégrations alpha des aérosols activés. En calculant la vitesse d'incidence et la vitesse de dérive dans le champ électrique, Ivanov arrive à déduire la charge de ces aérosols. Leurs résultats ont permis de montrer que le nombre d'électrons secondaires émis à chaque désintégration est très variable, le minimum était de 3 charges élémentaires, tandis que ce nombre est généralement compris entre 10 et 20, mais susceptible d'atteindre 40 charges élémentaires. Les auteurs montrent ainsi, en tenant compte de la charge du noyau alpha, que le nombre de charges résiduelles est en moyenne de +12 charges élémentaires positives par désintégration.

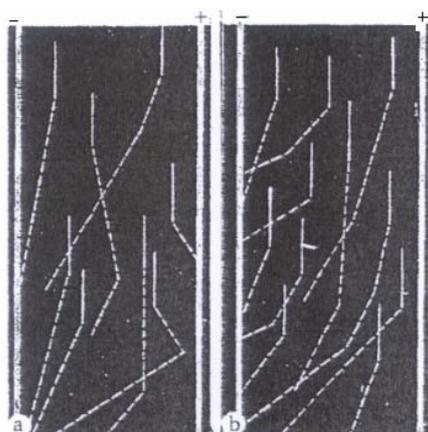


Figure 4 - Trajet des particules activées par des descendants du radon dans un ultramicroscope (Ivanov *et al.*, 1969)

Plus tard, Yeh *et al.* (1978) ont déduit un taux d'auto-chargement des particules émettrices alpha à partir de la mesure de la charge moyenne d'un aérosol d'oxyde de plutonium ($^{238}\text{PuO}_2$). Ils montrent ainsi, en tenant compte de la charge du noyau alpha, que la charge résiduelle est environ égale à +9 charges élémentaires par désintégration. Ce résultat est du même ordre de grandeur que les valeurs indiquées par Ivanov *et al.* en 1969. Les résultats, de la charge moyenne d'un aérosol radioactive émetteur alpha, de Yeh *et al.*, Ivanov *et al.* et d'Ehrenhaft sont résumés dans le Tableau 5.

Tableau 5 - Valeurs expérimentales de la charge moyenne des aérosols radioactifs activés par des émetteurs alpha

Propriétés	Ehrenhaft	Ivanov <i>et al.</i>	Yeh <i>et al.</i>
Rayon (μm)	0,1	1	0,48
Concentration des aérosols (m^{-3})	-	$\sim 10^{10}$	$1.5 \cdot 10^7$
Taux de décroissance des émetteurs alpha (s^{-1})	$3,5 \cdot 10^{-3}$	$3,7 \cdot 10^{-3}$	1,92
Charge moyenne n	5	12	9

D'autre part, pour ce qui concerne l'évolution de la charge électrique des descendants, il faut tenir compte non pas seulement des effets dus aux émissions alpha, mais aussi à l'atome de recul. Pendant son recul, l'ion ^{218}Po , qui a une énergie cinétique suffisante pour traverser une distance de l'ordre de 50 μm dans l'air (sur une durée de l'ordre de la nanoseconde) et de l'ordre de 10 nm dans la matière organique, perd et gagne à nouveau des électrons en interagissant avec les molécules de l'air. Ces deux mécanismes, liés à la fois aux émissions alpha et aux atomes de recul, impliquent généralement que ces particules soient chargées dès leur création. Les expériences d'Ivanov *et al.* présentent la mesure de la charge moyenne des descendants du radon et non pas une distribution de charge. Dans la partie suivante on présente un autre type de mesure de charge qui est la charge totale.

1.3.2. La charge totale des descendants du radon

En 1904, la première expérience liée à la mesure de la charge électrique des descendants du radon a été réalisée par Pierre & Marie CURIE. L'appareil de mesure est une chambre d'accumulation du flux de radon du sol avec une électrode centrale (figure 5) pour y collecter les descendants du radon. Le radon émane du sol constitue la source, et en appliquant des tensions au niveau de l'électrode centrale, ils sont parvenus à collecter les descendants du radon chargés, puis à mesurer le nombre de particules déposées en effectuant un comptage alpha avec un photomultiplicateur. Cette première expérience a ainsi pu mettre en évidence la présence de la fraction chargée des descendants du radon.

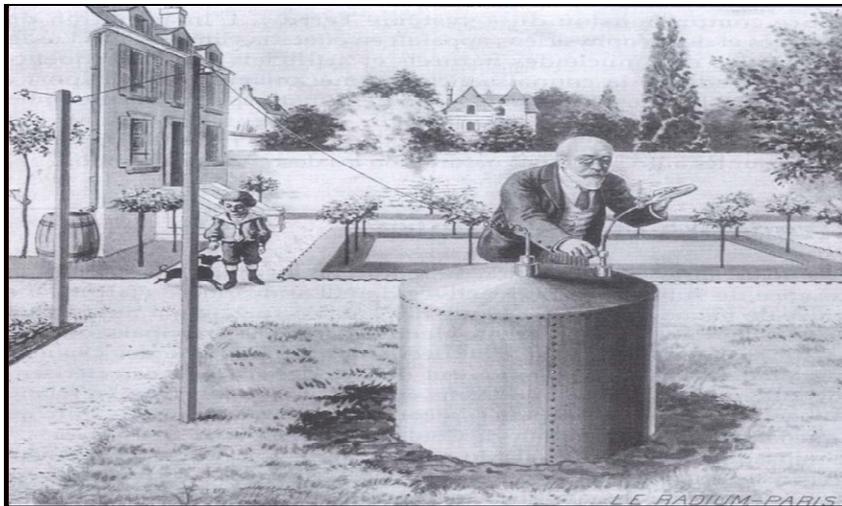


Figure 5 - Première expérience liée à la mesure de la charge électrique des descendants du radon

1.3.3. Les expériences de Wellisch

En 1913, Wellisch (Wellisch 1913) a réalisé des expériences plus avancées concernant la charge électrique des descendants du radon. Ses expériences ont consisté à mélanger l'émanation du radon avec de l'air et à introduire ce mélange dans un condensateur cylindrique (appelé tube de ZELNY, figure 6) disposant d'une électrode centrale chargée et démontable. Les descendants du

radon déposés sur cette cathode sont ensuite mesurés à l'aide d'un scintillateur alpha couplé à un photomultiplicateur.

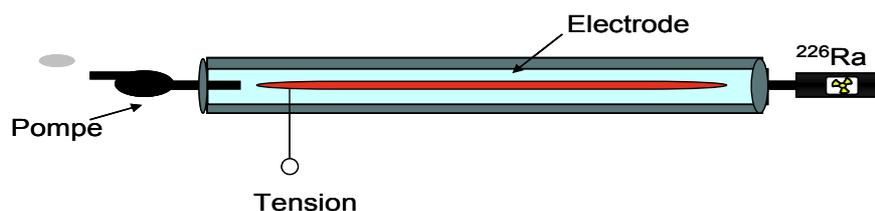


Figure 6 - Tube de ZELENY

1.3.4. Effet de la pression et de l'humidité relative

Dans le but de mettre en évidence l'influence de l'air humide dans le mélange avec l'émanation du radon, Wellisch (1913) observe que le dépôt est le même avec et sans air humidifié, mais que l'effet de la vapeur d'eau apparaît quand la pression de l'air est élevée et la tension appliquée faible. Dans ces circonstances, la vapeur d'eau favorise la recombinaison avec les ions et fait diminuer le dépôt sur la cathode de 30 à 50 %. Dans le tableau 6, on présente les valeurs du pourcentage du dépôt sur la cathode du tube de Zeleny en fonction de la tension et de deux pressions d'air différentes. On remarque que la fraction déposée sur l'électrode dépend de la pression d'air, pour des faibles pressions (210 mmHg) la tension de l'électrode n'a pas d'effet sur la fraction chargée déposée sur l'électrode. Par contre, pour des pressions d'air élevées, les descendants du radon réagissent avec les molécules d'air du milieu et se neutralisent avant qu'ils soient captés ; ainsi, l'augmentation de la tension augmente la vitesse de dérive vers l'électrode et diminue le temps d'interaction avec les molécules d'air et on retrouve les mêmes valeurs de la fraction chargée que celle obtenue pour des faibles pressions.

Tableau 6 - Valeurs du pourcentage de dépôt des descendants du radon en variant la tension (négative) de la cathode et pour deux pressions d'air sec, 210 et 760 mmHg

Tension (V)	Pourcentage du dépôt sur la cathode	
	Pression air sec 210 mmHg	Pression air sec 760 mmHg
20	...	65,3
40	88,7	74,8
160	88,8	83,9
1000	89,2	89,2
2000	88,8	...
4000	...	89,2

Wellisch introduit une valeur de saturation de dépôt, pour différentes pressions et tensions appliquées, équivalente à 89,2 %. D'autres expériences faites en changeant la nature du métal constituant l'électrode, par exemple du laiton à la place de l'acier, montrent les mêmes résultats de saturation pour les mêmes tensions, ce qui montre que le dépôt est indépendant de la nature de

l'électrode. Pour de faibles pressions, Wellisch a remarqué qu'une partie non négligeable peut se déposer sur les surfaces du cylindre avant qu'elle soit attirée vers l'électrode centrale, pour une pression d'air de 6 mmHg et une tension de 180 V, le dépôt sur la cathode est de 66,7 %.

1.3.5. Effet de la nature du gaz porteur

Wellisch a effectué d'autres expériences en changeant le gaz porteur. Ainsi que lorsque le radon est mélangée avec du CO₂ sec pour plusieurs pressions, l'activité maximale du dépôt trouvée est de 80,7 %.

Quand l'émanation du radon est mélangée avec de l'hydrogène sec, la valeur de saturation obtenue est identique à celle trouvée dans l'air soit de 89,2 %, qui traduit de faible taux de recombinaison dans ce gaz.

En remarquant l'influence de la vapeur d'eau qui diminuait les quantités de dépôt sur l'anode, Wellisch a constaté l'importance de faire des expériences en mélangeant l'émanation avec d'autres types de vapeur pour remarquer son influence via la fraction chargée. Une expérience était faite avec de l'ethyl-ether, les résultats montrent une valeur de saturation du dépôt de 10 % pour des tensions supérieures à 1000 V et une pression de 85 mmHg.

D'autres expériences de la mesure de la charge totale des descendants du radon ont été effectuées par Renoux (1965). Il trouve une valeur moyenne de charge totale des descendants du radon de 81,5 % dans les conditions normales de température et de pression dans l'air. Initialement, près de 19 % des atomes de ²¹⁸Po à l'état libre sont donc électriquement neutres.

Afin d'étudier le mécanisme de formation de ces petits ions neutres, il a réalisé des expériences dans des milieux autres que l'air atmosphérique.

Comportement des atomes ²¹⁸Po dans l'oxygène :

L'oxygène a tendance à capter des électrons afin de stabiliser sa couche électronique externe. L'azote possède cette propriété à un degré moindre. On admet que la formation d'atomes de recul du ²¹⁸Po positif s'effectue par épluchage d'électrons. Il semble donc que, dans l'oxygène, on puisse s'attendre à compter davantage d'ions de ²¹⁸Po positifs que dans l'air.

Pour vérifier ce phénomène, Renoux mélange de l'oxygène avec du minerai d'uranium et obtient, à partir de mélange oxygène-radon, un pourcentage moyen de la charge totale des descendants du radon de 88,5 %, donc légèrement supérieur, à ce qu'il était dans l'air atmosphérique.

Comportement des atomes ²¹⁸Po dans l'argon :

L'argon est un gaz rare, sa configuration électronique est stable et il ne fixe pas d'électrons. On doit donc s'attendre à obtenir une proportion d'atomes Ra A (²¹⁸Po) neutres plus élevée dans une atmosphère d'argon. Le même récipient est maintenant rempli d'argon, et ainsi l'argon fortement chargé en radon est envoyé dans le même dispositif. Avec la même technique de mesure, il obtient en moyenne $P_{Ar} = 69 \%$, valeur nettement inférieure à celle dans l'air.

En conclusion, on constate l'influence du gaz porteur sur la fraction chargée des descendants du radon.

1.4. Neutralisation des descendants du radon

La neutralisation des descendants du ^{222}Rn dans l'air dépend de plusieurs paramètres : des molécules du gaz traceur, de la concentration du radon dans l'air et de l'humidité relative. Actuellement, les trois mécanismes de neutralisation proposés dans la littérature sont (Frey *et al.*, 1981 ; Busigin *et al.*, 1981 ; Chu et Hopke, 1988) :

- ↪ la recombinaison avec les petits ions négatifs de l'air porteur,
- ↪ le transfert de charge avec des molécules neutres à bas potentiel d'ionisation (NO_2 , O_2 , ...),
- ↪ la capture électronique des radicaux OH^\cdot formés par radiolyse.

Néanmoins, la contribution relative de chaque processus pour différentes conditions expérimentales n'est pas établie à l'heure actuelle. Nous allons dans un premier temps examiner les phénomènes de neutralisation et dans un second temps nous rapportons les résultats les plus récents publiés par Dankelmann *et al.*, (2001) sur le sujet.

1.4.1. Les processus de neutralisation

1.4.1.1. Recombinaison avec des petits ions de l'air

Les rayonnements ionisants alpha, bêta, gamma et même les rayons cosmiques, produisent des petits ions positifs et négatifs dans l'air qui se recombinent entre eux et avec le polonium positif pour le neutraliser. L'énergie moyenne à fournir pour produire une paire d'ions dans l'air est de 35 eV.

La relation des paires d'ions formées par émission d'une particule alpha (énergie E_α) dans l'air (Clement et Harrison, 1992) est :

$$N_{\text{p.i.f}} = \frac{E_\alpha}{35} \quad (6)$$

Pour le radon, on trouve par atome désintégré (par Becquerel) :

$$N_{\text{p.i.f}} = \frac{E_\alpha}{35} = \frac{5,49 \cdot 10^6}{35} = 1,56 \cdot 10^5$$

Gunn (1954) donne la relation entre la période de neutralisation $T_n^{1/2}$ [s] ou la constante de neutralisation λ_n [s^{-1}], concepts analogue à une période radioactive ou une constante de désintégration radioactive, et la concentration de petits ions négatifs de l'air N_{ions} ($/\text{m}^3$) :

$$\lambda_n = \frac{\ln 2}{T_n^{1/2}} = \frac{N_{\text{ions}} \cdot e \cdot K_{\text{ions}}}{\epsilon_0} \quad (7)$$

e charge élémentaire

K_{ions} mobilité électrique des ions ($1,6 \cdot 10^{-4} \text{ m}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$)

ϵ_0 la permittivité de l'air ($8,85 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$)

Notons que ces relations (éq. 6 et 7) expriment finalement une relation de proportionnalité entre l'activité en radon et le taux de neutralisation, ce que Raabe (1969) vérifie expérimentalement.

Il faut préciser que ces considérations ne sont valables que dans le cas où la recombinaison avec les petits ions est le seul phénomène de neutralisation, et où les petits ions ne se recombinaient pas entre eux. Il existe une approche plus juste de ce problème présentée par Busigin *et al.* (1981b). Ces auteurs écrivent d'abord l'équation d'évolution temporelle des petits ions négatifs, comportant un terme de production dû à la désintégration du radon, et un terme de disparition par recombinaison avec les petits ions. En supposant que le nombre de petits ions négatifs formés est égal au nombre de paires d'ions formées, et en écrivant cette équation en régime stationnaire, ils obtiennent une relation de proportionnalité entre la racine carré de l'activité en radon A_{Rn} et le taux de neutralisation (λ_n) du ^{218}Po .

Sur cette base théorique, il existe dans la littérature quelques déterminations expérimentales de la constante de neutralisation du ^{218}Po . On peut citer plusieurs travaux : Busigin *et al.* (1981a), Chu et Hopke (1988), Raabe et Wrenn (1969), Shi et Hopke (1991), Howard et Strange (1992) et (1994). Ces équipes proposent ainsi une relation de type :

$$\lambda_n = a \sqrt{A_{\text{Rn}}} - b \quad (8)$$

où a et b sont des constantes dépendantes du milieu ambiant, et différentes selon les auteurs.

1.4.1.2. Le transfert de charge avec des molécules neutres à bas potentiel d'ionisation

Plusieurs études conduites par Busigin, Hopke et Philips suggèrent que le ^{218}Po pourrait réagir avec des molécules d'oxygène pour former l'oxyde de polonium. Le polonium, avec un potentiel d'ionisation de 8,42 eV en s'oxydant pour former le PoO_2^+ atteint un potentiel de $10,44 \pm 0,06$ eV (Hopke 1988). Celui-ci est suffisamment important pour arracher un électron et être neutralisé par collision avec des molécules à plus faible potentiel d'ionisation comme le NO_2 (PI = 9,79 eV), NH_3 (PI = 10,2 eV), C_5H_{12} (PI = 10,35 eV). La figure 7 montre le taux de neutralisation du PoO_2^+ en fonction de la concentration des molécules de NO_2 , NH_3 et C_5H_{12} dans l'air. On remarque que le taux de neutralisation est beaucoup plus faible avec le NH_3 et le C_5H_{12} par rapport au NO_2 puisque tous les deux ont un potentiel d'ionisation plus important ce qui rend plus difficile de leur arracher un électron. On remarque aussi une relation linéaire avec la concentration. Cette neutralisation est plus rapide que la neutralisation due à la capture électronique puisque les électrons font un transfert direct par simple collision.

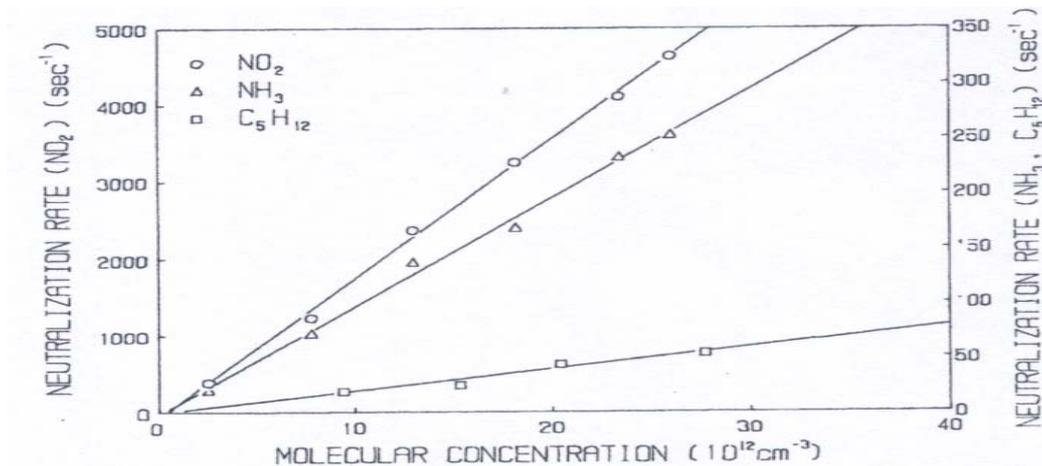


Figure 7 - Taux de neutralisation d'un ion de Polonium par cm³ dans l'air et en présence de plusieurs types de molécules (Chu *et al.*, 1988)

1.4.1.3. La capture électronique des électrons des OH

Des expériences ont mis en évidence la neutralisation du polonium en présence de vapeur d'eau dans l'azote (Chu & Hopke, 1988) ou dans l'air. L'énergie de recul du polonium et l'énergie des alpha produisent la radiolyse des molécules de H₂O pour créer des radicaux H[•] et [•]OH qui sont appelés «electron scavengers». Les radicaux [•]OH captent les électrons produits et cherchent les ions de polonium pour les neutraliser.

Le processus peut être exprimé par les équations suivantes :

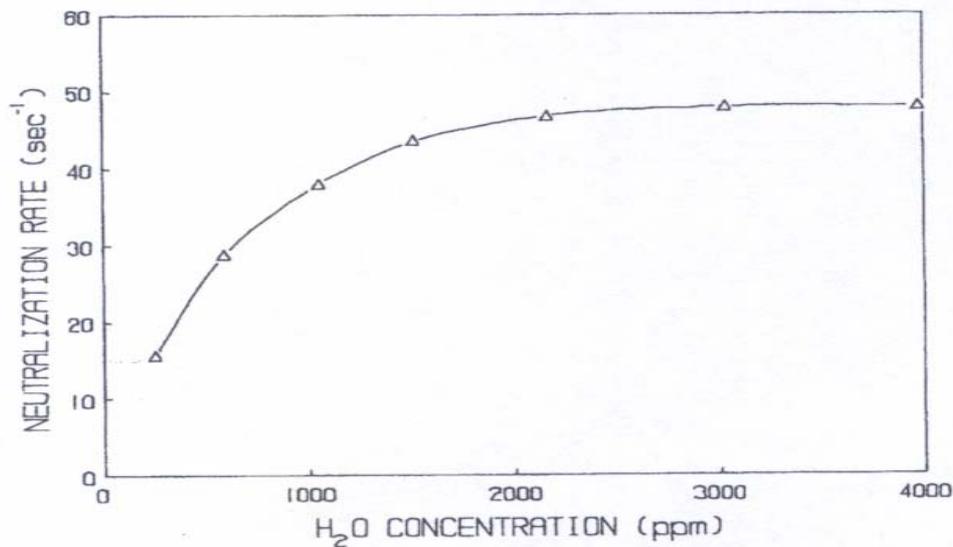
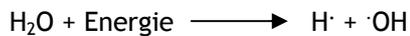


Figure 8- Taux de neutralisation du ²¹⁸Po dans N₂ en fonction de la concentration de H₂O (Chu *et al.*, 1988)

Ce processus est différent du précédent car il ne passe pas par une oxydation du ²¹⁸Po. Il est donc dépendant de la concentration en vapeur d'eau et de l'activité volumique en radon. Les seules

relations présentées dans la littérature sont celles de Ding (1993) et sont des relations empiriques entre le nombre de radicaux OH créés et l'activité en radon.

Prédominance de différents processus de neutralisation dans l'air

Les différents processus que nous venons d'évoquer peuvent bien entendu avoir lieu simultanément mais la prépondérance de l'un ou l'autre est mal connue.

- ↪ Pour un air sec, le processus prédominant est la recombinaison avec les petits ions de l'air.
- ↪ Dans des milieux «pollués» en impuretés gazeuses, le principal processus de neutralisation est le transfert de charges avec les molécules agglomérées autour de l'atome de ^{218}Po .
- ↪ Dans les milieux humides, le transfert de charges s'effectuera à partir des radicaux $\cdot\text{OH}$ obtenus par la radiolyse de l'eau.

1.4.2. Mesure du taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air (travaux de Dankelmann)

Dans cette section, nous exposons les travaux de Dankelmann *et al.* (2001) concernant la détermination du taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air. Ces résultats nous serviront de base lors de la comparaison avec nos propres résultats numériques (chapitre 4). Dans ses travaux, Dankelmann identifie l'importance et l'influence de la charge électrique des descendants du radon sur la mobilité qui sont caractérisées par le coefficient de diffusion qui contrôle l'attachement et le dépôt de ces descendants. Le taux de neutralisation des ions positifs du ^{218}Po dans l'air environnemental a été déterminé quantitativement dans une chambre expérimentale. Les résultats montrent une grande influence du taux d'ionisation et de l'humidité relative sur la neutralisation dans l'air. Les taux de neutralisation obtenus sont décrits par des équations qui tiennent compte de plusieurs processus : recombinaison avec les ions, transfert de charges et capture électronique des électrons. Dans l'air environnemental et sous des conditions normales de température et de pression, avec un taux d'ionisation de $45 \mu\text{R}\cdot\text{h}^{-1} = 1,16 \cdot 10^{-8} \text{ C}/(\text{Kg}\cdot\text{h})$ et une humidité relative de 50 % ($T = 20^\circ\text{C}$), le taux de neutralisation du ^{218}Po positif est égal à $1,54 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, ce qui implique une fraction de 51 % du ^{218}Po cluster neutre dans l'air.

1.4.2.1. Techniques de mesures utilisées

La figure 9 présente la chambre de réaction cylindrique utilisée par Dankelmann dans son étude. L'émanation du radon d'une source de radium-226 est mélangée avec de l'air séché et humidifié et pénètre le tube de réaction. Au niveau de l'entrée du tube, un filtre laisse passer uniquement le radon et collecte les descendants ; pendant la traversée, le tube de réaction est le siège des processus suivants :

- 1) formation du ^{218}Po par désintégration du radon,
- 2) formation de clusters de ^{218}Po par réaction avec la vapeur d'eau,
- 3) neutralisation de clusters ^{218}Po chargés positivement,

4) réduction du ^{218}Po en suspension dans l'air par désintégration et par dépôt sur le tube de diffusion.

En aval du tube de réaction, les concentrations total et neutre du ^{218}Po sont mesurées. Les dimensions géométriques du tube de réaction (diamètre = 22 cm, longueur = 100 cm) et le débit ($18 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$) sont choisis de telle manière que le temps de vie moyen pour les clusters du ^{218}Po $< 120 \text{ s}$, soient comparables au temps de vie de la fraction libre dans l'air environnemental.

La distribution de la concentration du ^{218}Po dans l'écoulement parabolique de l'air tout au long du tube de réaction est calculée en tenant compte de la génération par désintégration du radon, de la réduction par la désintégration du ^{218}Po et du dépôt sur les surfaces du tube. Simultanément la neutralisation des clusters ^{218}Po positifs s'effectue. A la fin du tube de réaction, les concentrations des clusters ^{218}Po total et neutre sont séparées par précipitation électrostatique et mesurées. D'après ces données, le taux de neutralisation des ions ^{218}Po dans l'air du tube est calculé en tenant compte du dépôt, le taux de déposition sur le tube étant $a_w = 6D/R^2$. Dans le cas du tube de réaction, avec un rayon $R = 11 \text{ cm}$ et un coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po $D = 0,07 \text{ cm}^2/\text{s}^{-1}$, le taux de dépôt a_w est égal à $3,4 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Cette valeur est négligeable par rapport au taux de neutralisation ($20 - 100 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$) (Dankelmann, 2001).

La séparation du ^{218}Po chargé et neutre est obtenue avec et sans champ électrique dans un condensateur cylindre. Au bout du condensateur, les clusters du ^{218}Po sont collectés sur une membrane filtrante alternativement avec et sans précipitation électrostatique. Les activités collectées sur la membrane sont mesurées au moyen d'un détecteur alpha (PIPS : Passivated Implanted Planar Silicon) et d'un spectromètre alpha placé derrière le filtre. Les dimensions géométriques du condensateur de séparation et le débit de l'écoulement sont optimisés pour que la génération du ^{218}Po et le dépôt sur les surfaces soient négligeables ($< 10 \%$).

Le radon généré à partir d'une source sèche de ^{226}Ra est mélangé avec l'air environnemental pour différentes valeurs d'humidité relative obtenues en mélangeant différentes fractions d'air sec et humide. Pour des valeurs d'humidité relative comprises entre 0,09 et 3 % ($T = 20^\circ\text{C}$), des pièges à refroidissement sont utilisés. Pour la mesure de la concentration du radon, un moniteur basé sur la précipitation électrostatique, un détecteur alpha et un spectroscopie alpha sont utilisés.

La production des paires d'ions dans l'air est due aux rayonnements ionisants qui ont une influence importante sur la neutralisation. Le taux d'ionisation dans le tube de réaction est exprimé en unité de $1 \text{ R}\cdot\text{h}^{-1} = 2,54 \cdot 10^{-4} \text{ C}/(\text{Kg}\cdot\text{h})$. L'ancienne unité, le Röntgen (R), correspond à la génération de $1,61 \cdot 10^{12}$ paires d'ions dans 1 g d'air. Le taux d'ionisation est estimé en tenant compte des radiations dues aux alpha du radon et du ^{218}Po dans l'air du tube et de la désintégration des descendants du radon déposés sur les surfaces du tube. Pour la génération d'une paire d'ion dans l'air, une énergie moyenne de 35 eV est nécessaire. De plus, l'ionisation par les gamma et par les rayons cosmiques est considérée. Au cours de cette étude, un débit de dose de $10 \mu\text{R}\cdot\text{h}^{-1} = 2,54 \cdot 10^{-9} \text{ C}/(\text{Kg}\cdot\text{h})$ est mesuré par un dosimètre.

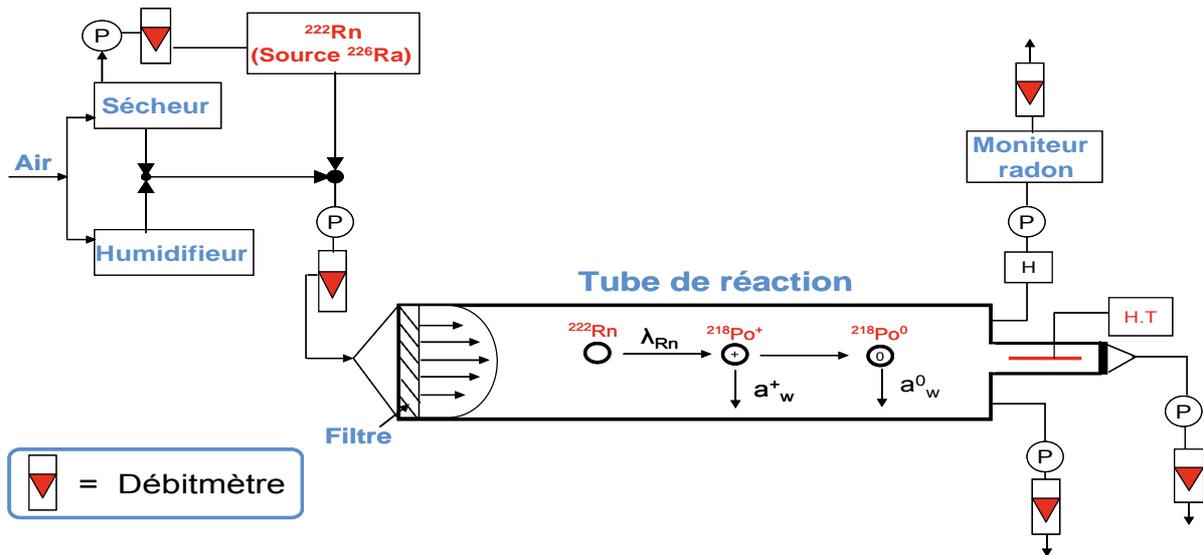


Figure 9 - Schéma du dispositif expérimental utilisé. H.T = Haute tension, H = mesure d'humidité relative, P = Pompe (Dankelmann, 2001)

1.4.2.2. Résultats

Dans la figure 9, le taux de neutralisation mesuré pour différentes valeurs d'humidité relative (H.R) entre 0,09 - 95 % est une fonction de la racine carrée de l'humidité relative en %. Dans ce cas, le taux d'ionisation est $I = 1950 \mu\text{R.h}^{-1}$, ce qui équivaut à une concentration en radon de $6,7 \text{ KBq/m}^3$. Pour des humidités relatives jusqu'à 30 %, le taux de neutralisation croît linéairement. Dans la figure 10, le taux de neutralisation est représenté, dans des conditions normales de température et de pression, pour une humidité relative H.R = 50 % et d'air très sec (H.R = 0,2 %) comme fonction de la racine carrée du taux d'ionisation.

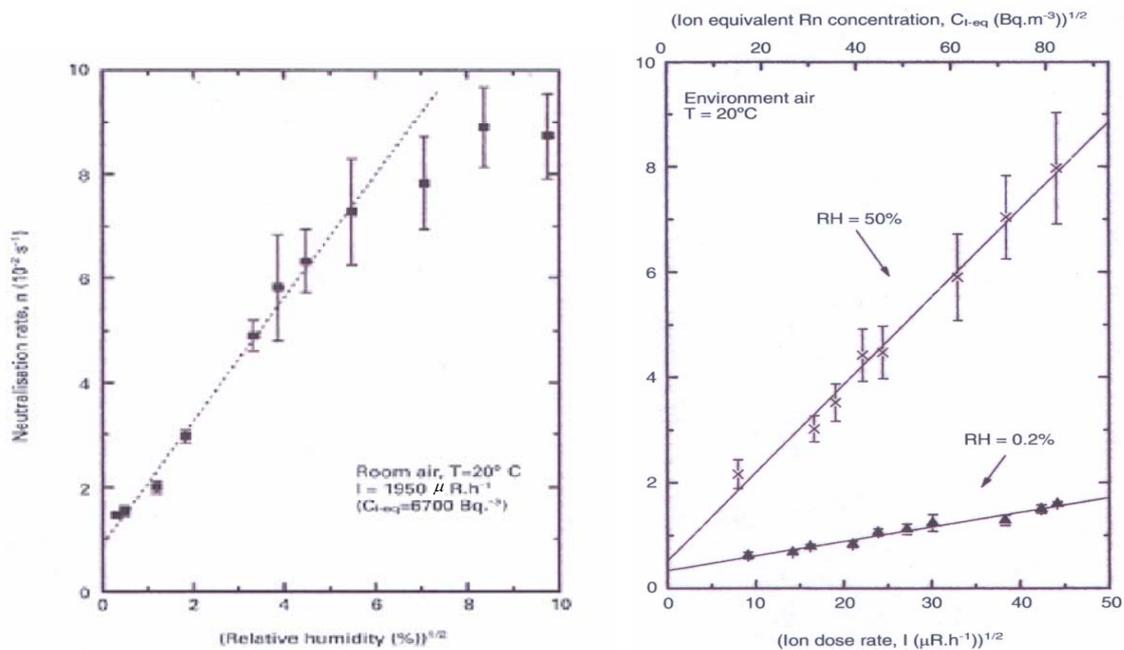


Figure 10 - Le taux de neutralisation dans l'air en fonction de la racine carrée de l'humidité relative (à gauche) et en fonction de la racine carrée du taux d'ionisation (à droite) (Dankelmann, 2001)

En conclusion, Les résultats de ces expériences montrent une grande influence du taux d'ionisation et de l'humidité sur le taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air. Dans les conditions environnementales normales avec un taux d'ionisation de $45 \mu\text{R.h}^{-1}$, généré par les alpha du radon, thoron et leurs descendants à vie courte et une humidité relative de 50 %, le taux de neutralisation des clusters du ^{218}Po est de $1,54.10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Ce taux correspond à la somme de différents taux de neutralisation dus à plusieurs processus qui sont : la capture électronique des électrons ($\sigma_{\text{OH}^-} = 1,07.10^{-2} \text{ s}^{-1}$), le transfert de charge ($\sigma_{\text{TC}} = 0,4.10^{-2} \text{ s}^{-1}$) et la recombinaison avec les ions ($\sigma_{\text{RI}} = 0,07.10^{-2} \text{ s}^{-1}$). Nous remarquons dans ce cas que la capture électronique des électrons est le processus dominant lors de la neutralisation. En tenant compte de cette valeur pour le taux de neutralisation ($1,07.10^{-2} \text{ s}^{-1} = 58 \text{ h}^{-1}$) et en considérant un taux d'attachement sur les aérosols de 40 h^{-1} , le dépôt sur les surfaces (20 h^{-1}) et le taux de renouvellement de la chambre ($0,5 \text{ h}^{-1}$), nous obtenons une fraction de 51 % des clusters du ^{218}Po neutres dans l'air intérieur estimée par un modèle de calcul.

Ces expériences réalisées par Dankelmann (2001) montrent, comme Raabe, une relation linéaire entre le taux de neutralisation $\lambda_n[\text{s}^{-1}]$ et la racine carrée du taux d'ionisation $I [\mu\text{R.h}^{-1}]$ ou la racine carrée de la concentration en équivalent ion radon $C_{\text{I-eq}} [\text{Bq.m}^{-3}]$ (figure 11).

A partir des valeurs mesurées du taux de neutralisation en fonction du taux d'ionisation et de l'humidité relative, le taux de neutralisation de chacun des trois mécanismes, transfert de charges (λ_{CT}), recombinaison avec les petits ions (λ_{IR}) et capture électronique des électrons des OH^- (λ_{OH}), peut être évalué (λ_i correspond au v_i de la figure 11). Le taux de neutralisation total $\lambda_n[\text{s}^{-1}]$ dans l'air pour des humidités relatives de 0,09 à 95 % (Dankelmann *et al.*, 2001), tenant compte de plusieurs processus déjà décrits dans la partie précédente, est :

$$\lambda_n = \lambda_{\text{IR}} + \lambda_{\text{CT}} + \lambda_{\text{OH}} \quad (9)$$

En connaissant le taux d'ionisation $I [\text{C.kg}^{-1}.\text{s}^{-1}]$ et l'humidité relative H.R [%], les taux de neutralisation dans l'air en $[\text{s}^{-1}]$ sont respectivement :

$$\lambda_{\text{CT}} = 0,4.10^{-3} \quad (10)$$

$$\lambda_{\text{IR}} = 0,1.10^{-3} . I^{0.5} \quad (11)$$

$$\lambda_{\text{OH}} = b(\text{H.R}). I^{0.5} \quad (12)$$

λ_{OH} varie en fonction de l'H.R, pour chaque humidité la valeur de $b(\text{H.R})$ correspond à la pente de chaque courbe et peut être obtenue à partir de la figure 11.

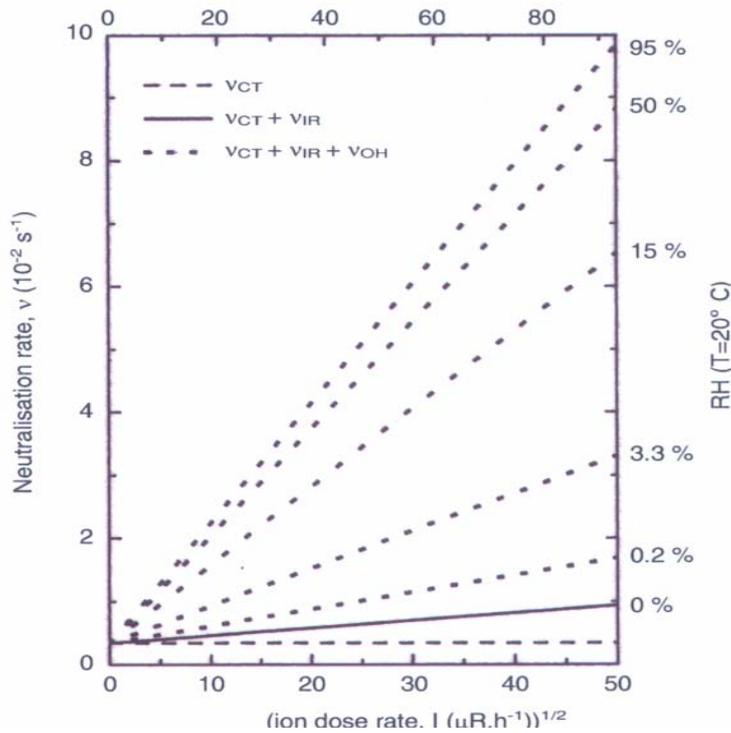


Figure 11 - Taux de neutralisation du ^{218}Po dans l'air selon les processus de neutralisation (Dankelmann, 2001)

1.5. Comportement des descendants du radon dans l'air

1.5.1. Evolution de la taille et de la charge de la fraction libre

La taille du ^{218}Po mesurée étant plus grosse que celle d'un atome, Raabe 1969 suggère que cet aérosol ultrafin est entouré de molécules de l'air porteur.

Bricard (1977) considère que l'aérosol de ^{218}Po est généralement composé d'un seul atome de ^{218}Po pour les raisons suivantes :

- ↪ la probabilité de collision de deux atomes de ^{218}Po est très faible,
- ↪ la concentration des atomes de ^{218}Po est trop faible par rapport au nombre de constituants de l'air pour qu'il y ait coagulation de deux atomes de ^{218}Po ,
- ↪ les atomes de ^{218}Po sont généralement chargés positivement à leur naissance,

Raabe (1969) fut le premier à suggérer que l'atome de ^{218}Po pouvait être entouré de molécules d'eau ; cet agrégat de molécules autour d'une particule est appelé «cluster» (Bricard 1977).

Description de la théorie de formation de clusters

La formation de clusters est un processus microscopique défini par la théorie classique sur la formation de clusters de molécules d'eau autour de petits ions. Pour des molécules autres que les molécules d'eau, cette théorie ne donne qu'une approche qualitative du phénomène (Castleman 1982b).

La plupart des études considèrent l'effet de l'humidité sur la taille de la fraction libre des particules et surtout des descendants du radon. Pour ces raisons nous focalisons notre description sur la formation des clusters de H₂O.

Formation de clusters de H₂O autour des ions

La théorie classique sur la formation des clusters (H₂O) se base sur le calcul d'une variation de l'enthalpie libre de Gibbs ΔG (Bricard 1977 ; Friedlander 2000) :

$$\Delta G = -\frac{4\pi r^3}{3m_{H_2O}} \rho_{clst} \quad KT \cdot \ln \frac{P}{P_s} + 4\pi r^2 \gamma_s + \frac{Q^2}{2} \left(\frac{1}{\epsilon_0} - \frac{1}{\epsilon} \right) \left(\frac{1}{r} - \frac{1}{r_0} \right) \quad (13)$$

r rayon du cluster, r₀ rayon de l'ion ²¹⁸Po (0,23 nm), T la température absolue de l'air, P la pression ambiante, P_s la pression de vapeur saturante, P/P_s le degré de saturation, γ_s la tension superficielle du cluster, Q la charge du cluster, ϵ et ϵ_0 sont respectivement les constantes diélectriques de la vapeur d'eau et du cluster.

- ↪ Le premier terme représente la chaleur latente due à la condensation,
- ↪ le deuxième terme, est l'énergie en surface,
- ↪ le troisième terme apparaît lors de l'agrégation autour d'un ion, et décrit le changement de l'énergie du champ électrique dû à la présence de la phase d'eau.

En 1985, Raes (Raes 1985) a montré, d'après la théorie classique de la thermodynamique, que la formation des clusters H₂O neutres est impossible car elle n'amène aucune augmentation dans l'énergie libre de formation ; par contre les clusters ionisés augmentent de taille pour atteindre une stabilité à travers laquelle le nombre de molécules évaporées est égal aux nombres de molécules condensées sur la surface de ces clusters.

Le rayon de l'ion cluster à l'équilibre, pour différentes humidités relatives, est calculé en résolvant l'équation :

$$\frac{d\Delta G}{dr} = 0 \quad (14)$$

Dans les conditions normales de température et de pression, le diamètre du cluster est estimé entre 1,3 nm pour une humidité relative de 1 % (40 molécules de H₂O formant le cluster) et 2,3 nm pour une humidité relative de 100 % (220 molécules de H₂O formant le cluster) (Philips 1988).

Le nombre de molécules de H₂O «n+» formées sur l'ion cluster de rayon « r+ » et de masse volumique à l'équilibre est donné par la formule :

$$n^+ = \frac{4\pi \cdot r^+{}^3 \rho}{3m_{H_2O}} \quad (15)$$

Le temps nécessaire pour que «n+» molécules de H₂O entrent en collision avec l'ion peut être calculé en utilisant le taux de collision par unité de surface (théorie cinétique des gaz) :

$$\phi = N_{\text{H}_2\text{O}} \left(\frac{K.T}{2\pi \cdot m_{\text{H}_2\text{O}}} \right)^{1/2} \quad (16)$$

Ce temps ϕ , pour des humidités relatives de 10 % à 100 %, varie entre $5 \cdot 10^{-6}$ s et $5 \cdot 10^{-7}$ s. Au moment de la neutralisation du cluster, les molécules de H₂O déjà condensées s'évaporent pour avoir enfin un atome neutre.

Il faut signaler que les considérations précédentes ne sont valables que pour le cas où il y a formation d'un agrégat de molécules d'eau autour des descendants du ²²²Rn et du ²²⁰Rn. Il faut citer aussi la possibilité d'agrégation avec d'autres composés volatils comme le CO₂, H₂SO₄ et HNO₃ (Daisey *et al.* 1993). Dans ces derniers cas, il existe des clusters neutres et l'évaporation des molécules condensées comme CO₂, H₂SO₄ et HNO₃ n'intervient pas au moment de la neutralisation.

1.5.2. Coefficient de diffusion d'une particule neutre ou d'une particule chargée

Les méthodes de mesures de la taille de l'aérosol de ²¹⁸Po passent le plus souvent par la mesure de son coefficient de diffusion ou de sa mobilité électrique. Il s'agit donc de relier correctement ces différents paramètres entre eux. Pour les aérosols submicroniques, on utilise généralement la relation de Stokes-Einstein corrigé par le facteur de Cunningham C_u, reliant le diamètre de l'aérosol d_p (m) à son coefficient de diffusion D_n :

$$D_n = \frac{K_B \cdot T \cdot C_u}{3\pi\mu d_p} \quad (17)$$

où K_B est la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23}$ J/K), T (K) la température et μ (Pa.s) la viscosité dynamique de l'air.

Le facteur de correction Cunningham est (Baron et Willeke, 2001) :

$$C_u = 1 + K_n \left(1,142 + 0,558 \exp\left(\frac{-0,999}{K_n}\right) \right) \quad (18)$$

où K_n est le nombre de Knudsen qui définit le régime d'écoulement d'un gaz autour d'une particule, il est défini par le rapport du libre parcours moyen du gaz (λ) sur le rayon de la particule :

$$K_n = \frac{2\lambda}{d_p} \quad (19)$$

avec :

$$\lambda = \lambda_R \left(\frac{101,3}{P} \right) \cdot \left(\frac{T}{293,15} \right) \cdot \left(\frac{1 + \frac{110}{293,15}}{1 + \frac{110}{T}} \right) \quad (20)$$

λ_R : libre parcours moyen (m) dans les conditions normales de température et pression (293,15 K et 101,3 kPa)

P : pression en kPa

T : température en K

d_p : diamètre de la particule en m

Pour les aérosols de taille inférieure à 2 nm, cette équation pourrait ne plus être valable, car elle ne rejoint pas, dans les très petits diamètres, la théorie cinétique des gaz. Ramamurthi (1989) propose de corriger le diamètre de la particule neutre utilisé dans l'expression du coefficient de diffusion de Cunningham, de la façon suivante :

$$d_p^* = d_p(1 + 3\exp(-2,2 \cdot 10^9 \cdot d_p)) \quad (21)$$

Dans le cas d'un aérosol chargé (une seule charge élémentaire pour les aérosols de taille nanométrique), Chapman et Cowling (1958) proposent la relation suivante :

$$D_c = \frac{0,815 \cdot V_{rms} \cdot \left(\frac{M+m}{M}\right)^{\frac{1}{2}}}{3 \cdot \pi \cdot S^2 \cdot N_{air} \cdot \left(1 + \frac{0,402 \cdot e^2 \cdot r_{air}^3}{4 \cdot S^2 \cdot K_B \cdot T}\right)} \quad (22)$$

où D_c est donné en m^2/s ,

V_{rms} est la valeur quadratique moyenne (root mean square) de la vitesse des molécules de l'air ($5,02 \cdot 10^4$ cm/s, aux conditions normales de température et de pression),

M est la masse molaire du cluster (g),

m est la masse molaire de l'air sec (28,9 g),

N_{air} est la concentration en molécules d'air ($2,51 \cdot 10^{19}/cm^3$, aux conditions normales de température et de pression),

r_{air} est le rayon de collision d'une molécule d'air (0,185 nm),

e est la charge élémentaire ($e=1.609 \cdot 10^{-19}$ C),

S est la somme de $d_p + d_{air}$.

La relation de Chapman et Cowling (1958) s'écrit alors, pour le ^{218}Po chargé une fois dans l'air sec à 20°C :

$$D_c = \frac{a}{S^2 \left(1 + \frac{b}{S^2}\right)} \quad (23)$$

Avec $a = 1,8406 \cdot 10^{-24}$ et $b = 4,08 \cdot 10^{-48}$ SI.

D'après les deux équations 17 et 23, nous pouvons déduire la relation entre les deux coefficients de diffusion du ^{218}Po neutre et une fois chargée pour une taille inférieure à 2 nm :

$$\frac{D_n}{D_c} \approx 4 \quad (24)$$

Les équations du coefficient de diffusion citées ci-dessus vont nous permettre dans la partie expérimentale de déduire les coefficients de diffusion du ^{218}Po mesuré par des grilles de diffusion.

1.5.3. Mobilité électrique

Considérons une particule de charge q ($q = n.e$) évoluant dans un champ électrique de force E . Cette particule subit alors une force électrique F telle que :

$$F = n.e.E \quad (25)$$

En considérant que la particule porte un faible nombre de charges, celle-ci finit par atteindre une vitesse de migration limite pour laquelle la force de trainée et la force électrique sont en équilibre :

$$V_{TE} = n.e.B.E = Z_p.E \quad (26)$$

Avec : V_{TE} : vitesse terminale électrostatique (m/s),
 E : champ électrique (V/m),
 e : charge élémentaire ($1,6.10^{-19}$ C),
 n : nombre de charges élémentaires portées par la particule,
 B : mobilité dynamique de la particule (s/kg),
 Z_p : mobilité électrique de la particule ($m^2/V.s$).

La mobilité dynamique étant telle que :

$$B = \frac{C_u}{3\pi\mu d_p} \quad (27)$$

La mobilité électrique Z_p s'écrit :

$$Z_p = \frac{n.eC_u}{3\pi\mu d_p} \quad (28)$$

Dans la partie expérimentale, l'équation de mobilité électrique d'un aérosol chargé (éq. 28), couplée aux expériences faites par l'analyseur de mobilité différentielle (nano-DMA), peut nous servir à déduire la distribution de charge du ^{218}Po .

1.5.4. Processus d'attachement et de détachement des descendants du radon

En plus des réactions avec les molécules du gaz porteur, une partie des descendants du ^{222}Rn et du ^{220}Rn vont s'attacher aux aérosols déjà présents dans l'air ambiant. On définit ainsi deux tailles distinctes d'aérosols :

- ↪ La fraction libre formée par les clusters décrits précédemment et dont la taille varie de 0,5 à 5 nm (Porstendörfer, 2005).
- ↪ La fraction attachée formée par les clusters attachés à l'aérosol ambiant, typiquement de l'ordre du dixième de micron.

Attachement à des aérosols

La fixation des descendants du radon aux particules de l'air ambiant est caractérisée par un coefficient de fixation qui décrit l'attachement des atomes et des petits ions sur des particules de l'air, neutres ou chargées. Les expressions théoriques du coefficient de fixation sont développées à partir de la méthode de la «sphère limite» (Tymen *et al.*, 1977). Dans cette méthode, la particule,

supposée sphérique et immobile, est entourée d'une «couche limite» dans laquelle les descendants du radon se propagent comme dans le vide, animés d'une vitesse d'agitation thermique. En dehors de la couche limite, ils sont soumis aux lois classiques de la diffusion (première loi de Fick). L'épaisseur de la couche limite correspond à la distance parcourue par les descendants du radon entre deux chocs successifs (libre parcours moyen), distance qui est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des molécules gazeuses de l'air. A ce niveau, on considère que les descendants du radon atteignant la surface sont captés par la particule. Mais, dans la couche limite, la trajectoire des descendants du radon chargés peut être déviée à cause du champ électrique dû à la particule (si elle est chargée) et à cause de l'image électrique des ions. Dans ce cas, les descendants du radon peuvent ne pas être captés par la particule. L'expression du coefficient de fixation est développée à partir de l'équation de continuité, appliquée aux différents flux de descendants (flux dus à la diffusion, au champ électrostatique et à l'agitation thermique dans le vide) à travers la surface de la couche limite.

Détachement des aérosols

L'énergie de recul des descendants du ^{222}Rn émetteurs alpha varie entre 101 keV et 112 keV, alors que l'énergie potentielle d'une molécule adsorbée sur une surface est de l'ordre de l'eV. Les descendants du radon peuvent ainsi se détacher de l'aérosol et être de nouveau considérés comme fraction libre. Pour les descendants émetteurs alpha, ce mécanisme a été vérifié expérimentalement par Mercer (1976) et Kojima (1988). Selon leurs expériences, la fraction du ^{218}Po détachée des aérosols est de 0,83.

1.5.5. Diagramme des processus de l'évolution du radon et de ses descendants dans l'air

Dans ce premier chapitre les paramètres et les processus intervenant dans l'évolution de la charge électrique des descendants du radon en fonction du temps ont été présentés. La figure 12 résume ces processus. Le ^{222}Rn se désintègre pour donner une particule alpha et un atome de recul, le ^{218}Po , qui est soit chargé soit neutre. Ensuite, les clusters du milieu s'agglomèrent autour du ^{218}Po pour former le cluster Po, qui est toujours considéré comme fraction libre. Suite à l'agglomération plusieurs phénomènes débutent, soit la neutralisation qui est le passage de la fraction chargée à la fraction neutre soit l'attachement aux aérosols pour former la fraction attachée soit le dépôt sur les surfaces. Suite à ces phénomènes, la désintégration du ^{218}Po donne naissance au ^{214}Pb qui se détache (des aérosols ou des surfaces) ou pas et qui, à son tour, évoluera en suivant les mêmes processus que dans le cas du ^{218}Po dans l'air. Cette première partie va nous servir à comprendre et à analyser les résultats expérimentaux développés dans le 2^{ème} chapitre.

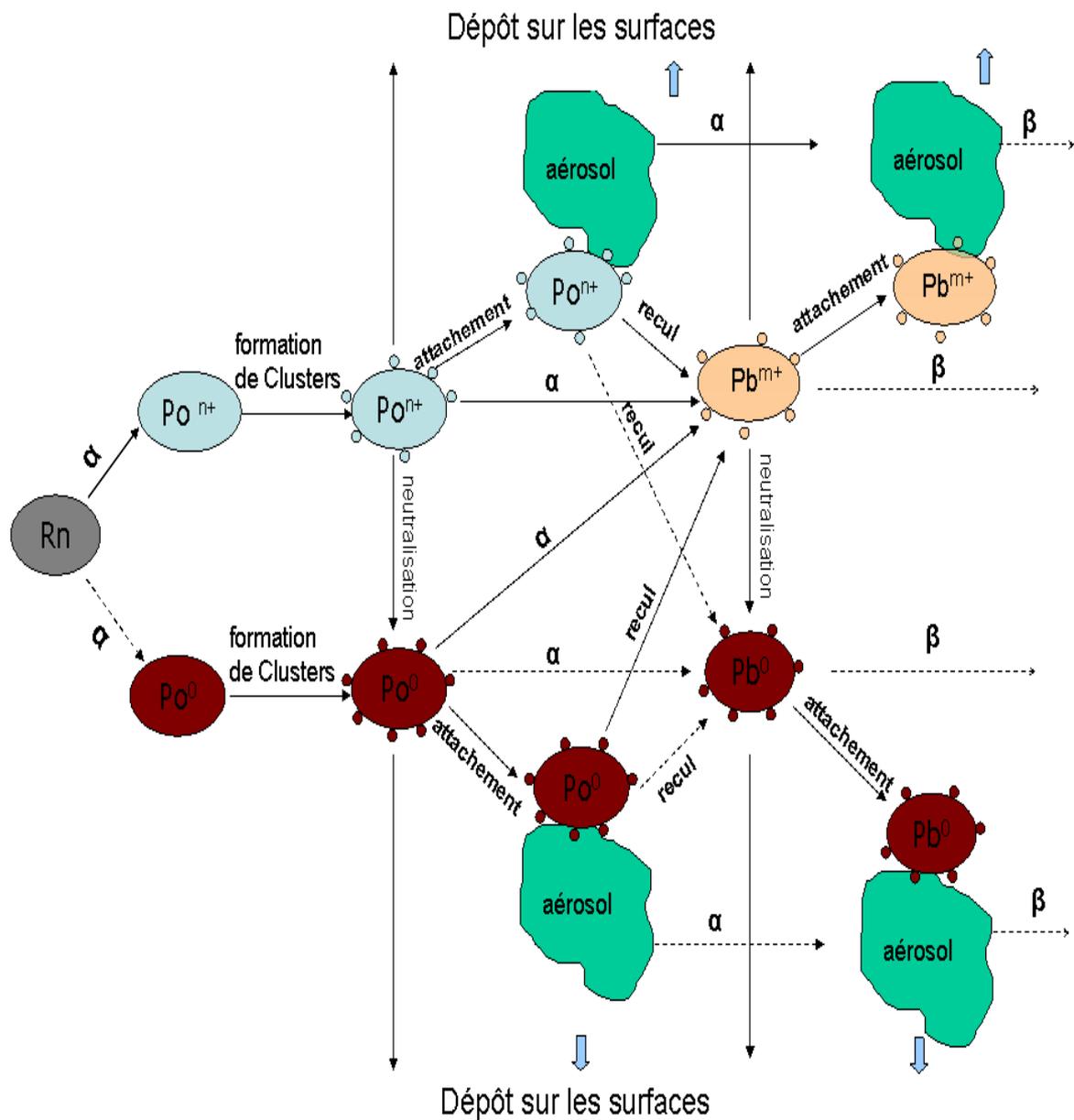


Figure 12 - Diagramme présentant tous les processus d'évolution présentés ci-dessus du ^{218}Po et du ^{214}Pb dans l'air dès leur création jusqu'à leur désintégration

1.6. Synthèse des travaux sur l'étude de la charge des descendants du radon et du thoron

Les tableaux 7 et 8 résument les résultats expérimentaux de la charge électrique totale des descendants du radon et du thoron en fonction de plusieurs paramètres.

Tableau 7 - Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du radon dans l'air

Références	Isotope	Gaz porteur	Temps de résidence (s)	Humidité relative (%)	Charge
Wellisch (1913)	Descendants du ^{222}Rn	Air ambiant	au moment de formation	air sec	88 % positive 12 % neutre
Renoux (1965)	^{218}Po	Air ambiant	au moment de formation	air ambiant	81,5 % positive 18,5 % neutre
Raabe (1968)	^{218}Po	Air ambiant filtré	330	13 33	Neutre
Porstendörfer (1979)	^{218}Po	Air	au moment de formation	≥ 95	88 % positive 12 % neutre
Dua (1981)	Descendants du ^{222}Rn	Air	0,046	16 - 19	90,8 % positive 3,9 % négative 5,3 % neutre
Dankelmann <i>et al.</i> (2001)	^{218}Po	Air filtré	120	air ambiant	49 % chargé 51 % neutre
Porstendörfer (2005)	^{218}Po ^{214}Pb	Air ambiant	-	30 - 95	48 % positive 52 % neutre 45 % positive 55 % neutre

Le tableau 7 résume les principaux travaux effectués entre les années 1913 et 2005 concernant la mesure de la charge électrique totale des descendants du radon. Toutes ces expériences ont été faites à l'aide d'un tube de Zeleny sauf dans le cas de Dua, ce dernier utilisant un analyseur de mobilité électrique à plaques parallèles. Tous ces travaux ont été effectués dans l'air en fonction du temps de résidence et de l'humidité relative. Wellisch, Renoux, Porstendörfer (1979) et Dua, ont cherché à mesurer la charge totale des descendants du radon directement après leur formation. Nous constatons que pour un même temps de résidence, au moment de la formation, les valeurs sont quasi égales, et se situent aux alentours de 88 % de charges positives et 12 % de neutres. Par ailleurs, Dua fut le seul à obtenir des descendants de charges négatives. De plus, nous constatons que toutes ces expériences ont été effectuées dans l'air, mais pour des humidités relatives allant du très sec à 95 %. Nous pourrions donc conclure que, dans le cas de la mesure de la charge des descendants du radon après la formation, il n'y aurait aucune influence de l'humidité relative.

Les expériences réalisées par Raabe, pour un temps de résidence très élevé (330 s), indiquent que la charge du Po est neutre. Dans ce cas, pour un long temps de séjour, il n'y a aucune influence de l'humidité ; ceci est observé pour deux séries d'expériences à deux valeurs d'humidité relative de 13 et 33 %.

En ce qui concerne les expériences de Dankelmann, les mesures ont été faites pour un temps de résidence de 120 s et dans l'air ambiant, et aboutissent à 49 % du ^{218}Po chargé et 51 % neutre. Les valeurs trouvées par Dankelmann sont confirmées par celles de Porstendörfer (2005), qui mesure la charge totale des deux premiers descendants du radon, ^{218}Po et ^{214}Pb , dans une pièce. Finalement, nous pouvons conclure, d'après les résultats de Porstendörfer (2005), une bonne similitude de la charge pour les deux descendants du radon, le ^{218}Po et le ^{214}Pb .

Tableau 8 - Valeurs expérimentales de la charge électrique des descendants du thoron

Références	Isotope	Gaz porteur	Temps de résidence (s)	Humidité relative (%)	Charge
Madelaine (1966)	^{212}Pb	-	0 - 3300	air ambiant	Neutre
Fontan (1969)	^{212}Pb	Air filtré à 99,995 %	30 - 815	-	Chargé Neutre
Porstendörfer (1979)	^{212}Pb	Air	au moment de formation	30 - 90	85-88 % positive 12-15 % neutre
Dua (1981)	Descendants du ^{220}Rn	Air	0,046	16 - 19	99,17% positive 0,48 % négative 0,35 % neutre

Au contraire, il existe peu d'études visant à étudier la charge des descendants du thoron ; le tableau 8 résume les principaux résultats obtenus, tous résultant de mesures dans l'air à l'aide d'un tube de Zeleny, sauf dans le cas de Dua qui utilise un analyseur de mobilité électrique à plaques parallèles. Les résultats concernent le ^{212}Pb , car le premier descendant du thoron, le ^{216}Po , possède une trop courte période radioactive pour être observé.

Nous constatons que pour de grands temps de résidence, les résultats de Madelaine montrent que la charge totale du ^{212}Pb est neutre. Par contre, pour des temps de résidence un peu plus courts, il y a réapparition du ^{212}Pb chargé dans les expériences de Fontan.

Porstendörfer montre qu'au moment de la formation la charge totale du ^{212}Pb est indépendante de l'humidité relative et est du même ordre que celles des descendants du radon, soit 85 - 88 % de charge positive et 12 - 15 % de neutre.

Finalement, Dua mesure la charge totale des descendants du thoron directement après leurs formations. Il trouve que tous les descendants sont chargés positifs, indiquent que la charge totale

des descendants du thoron est supérieure à celle des descendants du radon (88 %) mesurée dans les mêmes conditions expérimentales.

1.7. Conclusion générale

Ce premier chapitre nous a permis de présenter trois caractéristiques de la charge électrique des descendants du radon, à savoir : la distribution de charge, la charge moyenne et la charge totale. Dans le cadre de la distribution de charge aucun travail n'a jusqu'à présent été effectué pour les descendants du radon, hormis les travaux de Szucs et Joret pour les descendants du thoron. Leurs résultats ont pu montrer la distribution de charge du ^{216}Po et du ^{208}Tl qui sont tous les deux descendants d'un émetteur alpha de la filiation thoron. Les résultats ont montré une forte concordance avec l'aspect atomique et quantique de chaque désintégration. Si un élément se désintègre à l'état fondamental, ceci implique une distribution majoritairement neutre avec quelques fractions des mono-chargés et des bichargés (dans le cas du ^{216}Po) ; par contre, si une désintégration peuple un état excité, ceci implique une large distribution de charge allant jusqu'à +20 charges. Ces expériences sont faites directement après la formation des éléments et dans le vide.

Dans le cadre de détermination de la charge moyenne des descendants du radon, nous avons rapporté des expériences concernant la fraction attachée des descendants du radon à des aérosols. Il en ressort que la distribution de la charge de ces aérosols radioactifs est liée au milieu. Elle résulte de l'équilibre entre un terme d'auto-chargement et d'un terme de neutralisation. Dans ce cas, la charge dépend de la nature de l'aérosol et du milieu ambiant.

Enfin, la charge totale des descendants du radon et en particulier le ^{218}Po , a été étudiée par différents auteurs, en fonction de plusieurs paramètres dont les plus influents sont : la nature du gaz porteur, le temps de résidence et l'humidité relative. Les résultats sont généralement comparables surtout dans les mêmes conditions expérimentales et en particulier pour les mêmes temps de résidence. Quelques données sont difficilement comparables du fait de plusieurs mécanismes et paramètres qui interviennent en même temps dans l'évolution de la charge des descendants du radon. Ces mécanismes qui sont la désintégration radioactive, la formation des clusters (fraction libre), l'attachement et détachement à des aérosols (fraction attachée) ont été présentés explicitement dans ce chapitre.

De plus, un des phénomènes les plus prépondérants dans l'évolution de la charge des descendants du radon en fonction du temps, est le phénomène de neutralisation, ce dernier a été aussi présenté avec les trois mécanismes existants.

CHAPITRE II

2. ETUDES EXPERIMENTALES

Comme nous l'avons mentionné précédemment, il existe dans la littérature, très peu d'expériences concernant la distribution de charge des descendants du radon. Pour ces raisons, une étude expérimentale, faisant l'objet de ce chapitre, va nous permettre, dans un premier temps, d'étudier la distribution de charge du ^{218}Po et, dans un deuxième temps, de mesurer sa charge totale en fonction de l'activité volumique en radon et du temps de résidence.

Plusieurs expérimentations ont été conduites dans notre étude. La première a fait l'objet d'une collaboration avec l'Institut de Physique Nucléaire (IPN) d'Orsay et a pour but de mesurer la distribution de charge des ions de recul ^{218}Po par une méthode dite « de temps de vol » à l'aide d'un accélérateur Tandem. La préparation des sources, la technique de mesure et les résultats sont présentés dans la première partie de ce chapitre 2. La deuxième expérimentation avait pour but de mesurer la distribution de charge de la fraction libre des descendants du radon à l'aide d'un Analyseur Différentielle de Mobilité Electrique (ADME). Enfin, une dernière expérimentation permet de mesurer la charge totale de la fraction libre du ^{218}Po à l'aide d'un tube de Zeleny. Ces deux dernières expériences sont effectuées au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA) de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). Nous présentons, dans ce qui suit, le dispositif expérimental, les techniques de mesures ainsi que les résultats obtenus.

2.1. Mesure de la distribution de charge du ^{218}Po par un spectromètre de masse

Cette expérimentation a pour but d'approfondir nos connaissances concernant le processus de charge des descendants du radon, et surtout dans le cas du ^{218}Po . Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, la désintégration du ^{222}Rn à l'état fondamental conduit à une faible distribution de charge du ^{218}Po (figure 1). Cependant, cette distribution de charge dépend fortement des ions secondaires émis de la surface de la source et du milieu environnant. Pour cela, la distribution de charge est identifiée par une technique bien connue dite « de temps de vol ». Cette dernière requiert un accélérateur et une source d'ions. L'accélérateur utilisé est une chambre de spectromètre de masse auprès d'un accélérateur Tandem d'Orsay et les sources radioactives sont obtenues par les laboratoires de l'IRSN et de Radioprotection et Mesures Environnementales (RaMsEs) de Strasbourg.

2.1.1. Dispositif expérimental et principe de mesure

Dans cette section, on expose tout d'abord partie, on identifie le mode de fonctionnement de cette chambre de spectromètre de masse (figure 13). Une solution radioactive de radium-226 est été déposée sur une feuille de mylar aluminisée. Cette cible est placée sur un support pouvant être porté à potentiel positif ou négatif ce qui permet d'une part d'accélérer les ions secondaires émis de la surface au moment de la désintégration radioactive et d'autre part de séparer les ions de recul consécutifs à la désintégration alpha en fonction de leur charge. Sur la face arrière de la cible, les particules alpha sont détectées par une jonction Silicium. Le signal délivré par ce détecteur est amplifié par un Préamplificateur (PA) et une prise de temps est effectuée sur le signal

rapide à l'aide d'un Discriminateur à Fraction Constante (DFC). Ce signal est utilisé en tant que « start » du temps de vol. En face de la cible, du côté du dépôt se trouve une grille placée à 10 mm. Une différence de potentiel de +/- 10 kV peut être appliquée entre la cible et la grille. Ensuite, dans l'espace libre de champs d'environ 46 cm, les ions sont détectés par un ensemble de Galettes de Micro-Canaux (GMC) associé à une multi-anode de 64 pixels. Chaque anode est associée à un discriminateur qui permet de délivrer le signal d'arrivée (start) des ions émis de la surface. Le discriminateur est connecté à un codeur de temps de 64 canaux permettant de mesurer les différences de temps entre les signaux start et stop. Le détecteur multi-anodes permet de :

- détecter des hautes multiplicités d'ions secondaires dans le cas de grand rendement d'émission secondaire,
- mesurer les vitesses radiales,
- effectuer une localisation des points d'émission.

Dans le cas présent, seule la dernière possibilité a été utilisée pour vérifier la répartition de la radioactivité sur le dépôt.

Pour le choix de la tension accélératrice la répartition des potentiels est la suivante :

Pour un potentiel négatif, la cible est portée à -12 kV, le tube de temps de vol et la surface du détecteur à Galettes de Micro-Canaux sont portés à -2 kV et les électrons émis sous l'impact des ions et amplifiés par les Galettes de Micro-Canaux sont accélérés jusqu'aux anodes qui sont au potentiel nul.

Pour un potentiel positif, la tension sur la cible est de 8 kV et les autres potentiels sont identiques au cas précédent.

Pour les mesures des ions de recul seuls, la tension de la cible est alors de -2 kV ce qui donne une différence de potentiel nulle.

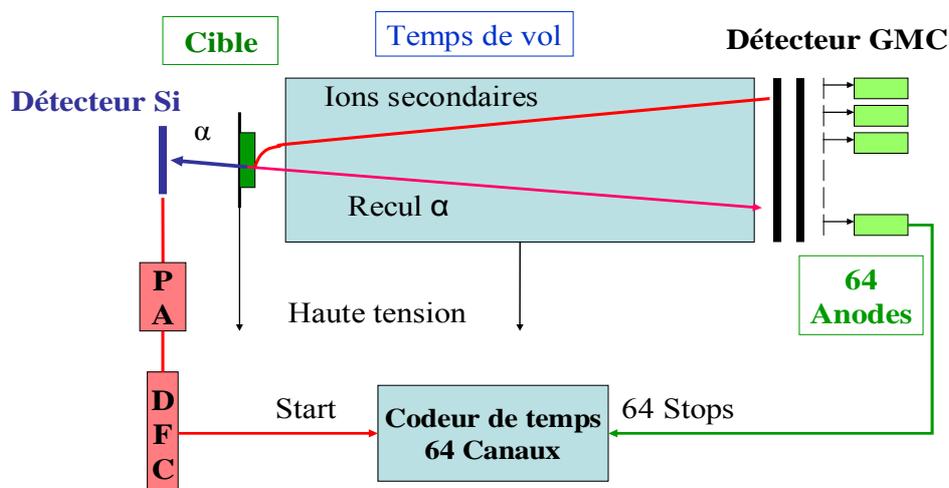


Figure 13 - Dispositif expérimental : Préamplificateur (PA), Discriminateur à Fraction Constante (DFC), Galettes de Micro-Canaux (GMC)

2.1.2. Préparation des sources

Pour réaliser les expériences de temps de vol et mesurer la distribution de charge du ^{218}Po , il faut disposer d'une source émettrice de ^{218}Po . Nous avons choisi de fabriquer des sources de radium-226 qui se désintègre en ^{222}Rn , qui à son tour donne le ^{218}Po . La première série de sources est préparée au laboratoire de RaMsEs. Un film de mylar aluminisé de 12 μm d'épaisseur est utilisé comme support de la source de ^{226}Ra . Le choix de l'épaisseur et de la matière du support est fait pour que les particules alpha puissent traverser la feuille de mylar aluminisé sans perdre toute leur énergie. Cette épaisseur a été déterminée par calcul de perte d'énergie des alpha dans la matière en utilisant le code SRIM 2008. L'énergie des particules alpha est mesurée par le détecteur de Silicium. La feuille de mylar aluminisé est trempée dans une solution de permanganate de potassium (KMnO_4), puis rincée à l'eau ultrapure afin de conserver une couche de dioxyde de manganèse (MnO_2). Le film est ensuite plongé dans la solution de ^{226}Ra , puis rincé à l'eau ultrapure et séché à l'air dans une atmosphère purifiée. Deux sources de 55 et 122 Bq sont préparées conformément à cette technique. Dans nos mesures de temps de vol, nous allons utiliser la source la plus active afin d'obtenir une meilleure statistique de comptage. Il est à noter que la solution de ^{226}Ra contient des impuretés de baryum (7,5 μg), des ions de chlorure et des carbonates de sodium.

Pour s'affranchir des effets de matrices, une deuxième série de sources a été préparée au Laboratoire des Etalons et des Intercomparaisons (LEI) de l'IRSN. Une goutte liquide de 35,8 mg de ^{226}Ra est tout d'abord directement déposée sur un film de mylar aluminisé 12 μm d'épaisseur. La source est ensuite séchée à l'air dans une atmosphère purifiée (cloche avec flux d'air passant par un dessiccateur). L'activité de la source radium est de 150 Bq. En suivant la même procédure, une autre source de 40,66 mg correspondant à une activité de 170 Bq est préparée.

2.1.3. Mesure du taux de comptage des détecteurs

La première vérification a d'abord concerné les taux de comptage sur le détecteur silicium et les Galettes de Micro-Canaux. Cette vérification est faite avec la première série de sources (sources RaMsEs). L'angle solide du détecteur alpha est de 0,35 sr, celui du détecteur d'ions secondaires et de recul est de 0,0021 correspondant au produit de l'angle solide géométrique et de la surface de détection des micro-canaux et du plan multi-anodes.

Pour la cible de 122 Bq, nous avons détecté 3,14 alpha/s ce qui est proche de la valeur calculée de 3,4 coups/s correspondant aux 122 Bq dans 4π . Par contre seulement 30 % des ions de recul sont détectés soit 0,0094 coups/s. Ce déficit de taux de comptage, lié aux effets de matrice, indique une perte en ions de recul, probablement tous les ions ne sortent pas du dépôt.

Pour la cible de 55 Bq, le taux de comptage est confirmé par le comptage du détecteur silicium mais ici 80 % des produits de recul sont détectés ce qui est meilleur que pour la cible de 122 Bq.

La répartition de la radioactivité a été contrôlée en utilisant le détecteur à localisation sans appliquer de différence de potentiel entre la cible et la grille accélératrice (figure 14). La répartition de l'activité est homogène car la différence entre les anodes les plus touchées (couleur

rouge) et les moins touchées (couleur bleue) est de 20 % pour les deux cibles, ce qui est compatible avec une incertitude expérimentale compte tenu de la statistique de ces mesures. L'émission ionique secondaire consécutive aux reculs des ions a aussi été étudiée et est présentée sur cette même figure 14. La réponse du détecteur montre une grande inhomogénéité, le rapport entre les anodes les plus touchées en rouge et celle en bleu de la figure supérieure étant de 3. Il n'est que de 2 pour la figure inférieure (entre le rouge et le vert), la répartition dans ce cas couvrant une plus grande surface. Une deuxième différence apparaît sur ces figures : la localisation de l'émission ; dans les deux cas il a été possible de relier cette localisation à un dépôt visible sur les premières cibles.

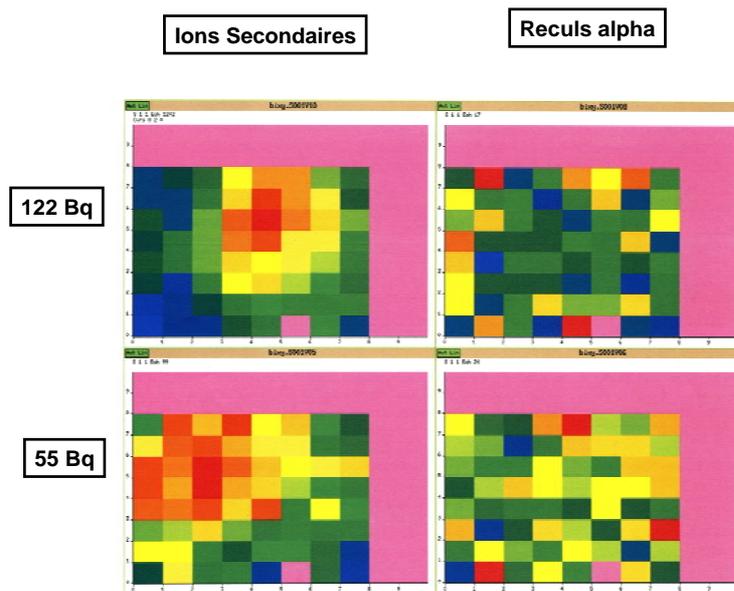


Figure 14 - Localisation des ions de reculs alpha (droite) et des ions secondaires (gauche) pour les deux cibles étudiées (55 et 122 Bq). Images données par le détecteur à localisation de 64 pixels avec une tension d'accélération et sans tension d'accélération

2.1.4. Mesure de temps de vol

Au moment de la désintégration du ^{222}Rn , l'atome de recul ^{218}Po se dirige vers la grille située à 10 mm de la source en suivant l'axe perpendiculaire du dépôt (axe de temps de vol), il parcourt ensuite 46 cm avant qu'il soit détecté par les Galettes de Micro-Canaux. Le temps de vol total du ^{218}Po est :

$$T = T_a + T_L \quad (29)$$

Avec : T_a le temps de vol sur la distance d'accélération de 10 mm,

T_L le temps de vol sur la distance de 46 cm.

La valeur de T_a est négligeable par rapport à celle de T_L , quel que soit l'état de charge des atomes de recul, la connaissance de T_L est donc suffisante.

Dans un champ électrique uniforme établi entre la source, portée à un potentiel U, et la grille, l'atome de recul étant soumis à une accélération γ , sa vitesse à la sortie du champ accélérateur est définie par :

$$V_q = \gamma T_a + V_r \quad (30)$$

Avec : V_r la vitesse de recul du ^{218}Po .

E est l'énergie cinétique de l'atome de recul de charge q ayant acquis une vitesse V_q :

$$E = q\Delta U + E_r \quad (31)$$

Avec : ΔU la différence de potentiel (V),

E_r l'énergie de recul du ^{218}Po en keV.

Tout au long de la distance L, la vitesse de l'atome de recul est constante, et égale à V_q , par conséquent :

$$T_L = \frac{L}{V_q} \quad (32)$$

$$T_L = \left(\frac{M}{2}\right)^{1/2} \cdot (E)^{-1/2} \cdot L \quad (33)$$

Avec : L la longueur en cm,

M la masse atomique du ^{218}Po en u.m.a,

T_L le temps de vol en 10^{-8} s.

Le but de nos expériences est de mesurer le temps de vol T_L ; connaissant la masse du ^{218}Po ($M = 218$ u.m.a) et L la distance parcourue, nous déduisons alors l'énergie totale E (éq. 33). En imposant une différence de potentiel ΔU , on déduit enfin la charge q qui est celle du ^{218}Po (éq. 31).

2.2. Résultats expérimentaux

2.2.1. Mesure de temps de vol de recul alpha

Les premières mesures de temps de vol ont été réalisées avec les sources RaMsEs sans tension d'accélération pour déterminer le spectre correspondant aux ions de recul. Le centroïde du pic correspond à la vitesse acquise par le descendant suite à l'émission de la particule alpha si celui-ci n'est pas ralenti par de la matière, sinon il correspond à la vitesse moyenne tenant compte de la perte d'énergie après la traversée du dépôt dans le lequel le radium est englobé. Pour les deux cibles étudiées (sources RaMsEs), les spectres de temps de vol sont similaires comme le montre les spectres de la figure 15. Les valeurs de centroïdes du spectre total étant respectivement 2850 et 2800 pour la cible de 122 Bq et de 55 Bq, donc très proches. La largeur de la distribution de temps de vol indique clairement que les ions de recul n'ont pas une énergie définie par la

cinématique de la décroissance, ils traversent donc de la matière. Le sommet des pics se situe autour du canal 2000 dans les deux cas. La largeur des pics, ne tenant pas compte de la traîne, est plus large dans le cas de la source de 55 Bq, ce qui conduit à un déplacement du centre de ce pic de 200 canaux (valeur indiquée sur la figure 15). Cette différence est entachée d'une grande incertitude à cause de la faible statistique.

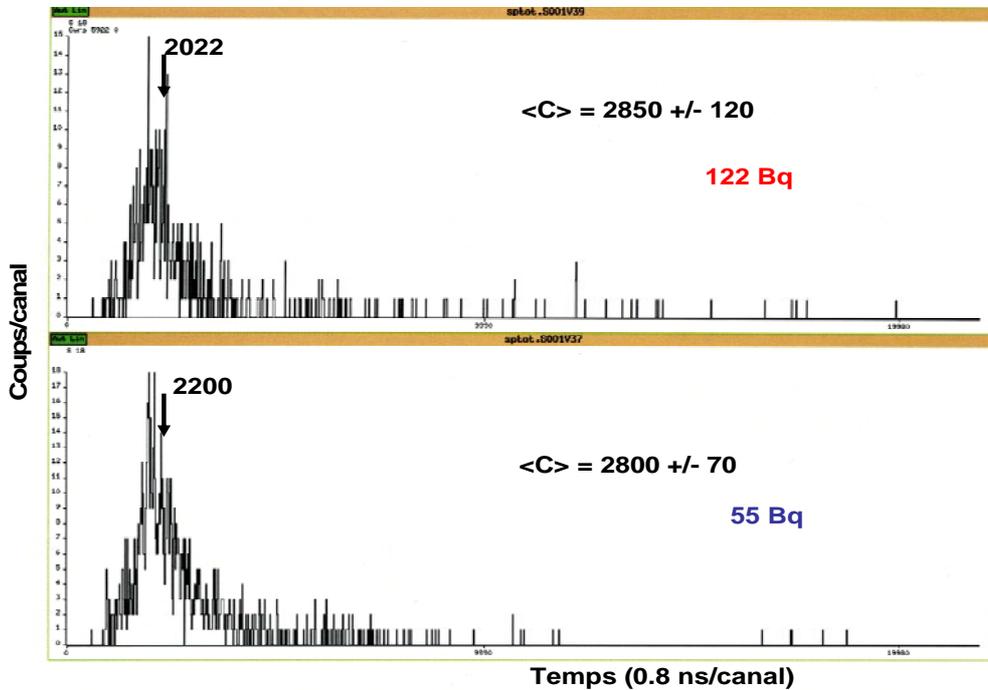


Figure 15 - Spectres de temps de vol des ions de recul sans tension d'accélération pour les deux cibles étudiées d'activité 55 et 122 Bq

L'énergie de recul est donnée simplement par la relation :

$$E_r = \frac{m}{M} \alpha E_\alpha$$

et la vitesse de recul des ions par :

$$V_r = \left(\frac{2 \cdot E_r}{M} \right)^{1/2} \quad (34)$$

Avec : E_r énergie de recul en keV, M masse en u.m.a et V_r vitesse de recul en 10^7 cm/ns.

Ces formules donnent pour le ^{222}Ra , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{210}Pb , ^{206}Pb , les temps de vol (en μs) suivants : 1.675, 1.536, 1.444, 1.251, 1.493. En tenant compte de l'étalonnage qui est effectué avec les ions secondaires, ces temps de vol correspondent aux canaux suivants : 2386, 2213, 2098, 1857, 2159.

Au vu des périodes radioactives, la dernière contribution du ^{206}Pb est peu probable ; par contre le début du pic et son sommet correspondent assez bien aux valeurs calculées. Ceci indique que le centroïde à 2800 correspond à une perte d'énergie moyenne de 40 keV.

Tableau 9 - Différentes valeurs d'énergies de recul, de temps de vol (en s et en canaux) avec et sans perte d'énergie de 40 keV pour le radon et ses descendants

Masse de Recul (u.m.a)	Energie de recul (keV)	Temps de vol (s)	Temps de vol (Canaux)	Temps de vol après une perte d'énergie de 40 keV (s)	Temps de vol après une perte d'énergie de 40 keV (canaux)
222	86,49	1,67E-6	2386	2,28E-6	3148
218	100,92	1,53E-6	2213	1,97E-6	2765
214	112,15	1,44E-6	2098	1,80E-6	2543
210	146,48	1,25E-6	1857	1,46E-6	2128
206	101,92	1,49E-6	2159	1,91E-6	2688

Une valeur de 40 keV de perte d'énergie correspond à une épaisseur moyenne de 10 nm dans de l'Ilford G5 (majoritairement AgBr dans une solution organique) ou bien une épaisseur moyenne de 16 nm de matière carbonée ou polymère comme le mylar. Les temps de vol les plus longs, allant jusqu'au canal 10000, correspondent à des ions ayant perdu plus de 90 keV dans la matière d'où des épaisseurs de 40 à 50 nm. Cette traversée de matière est bien visible et constitue une limitation de la mesure des états de charge des ions de recul car l'interaction de ces ions de plusieurs dizaines de keV induit de l'émission ionique qui est détectée simultanément aux ions de recul alpha.

2.2.2. Spectre d'émission ionique

Pour séparer les différents états de charge des ions de recul, une tension positive est appliquée sur la cible, qui conduit à obtenir des énergies liées à la charge (éq. 31). La charge (q) induit donc des vitesses supérieures et des temps de vol plus courts. Les spectres obtenus pour les deux cibles étudiées sont présentés sur la figure 16.

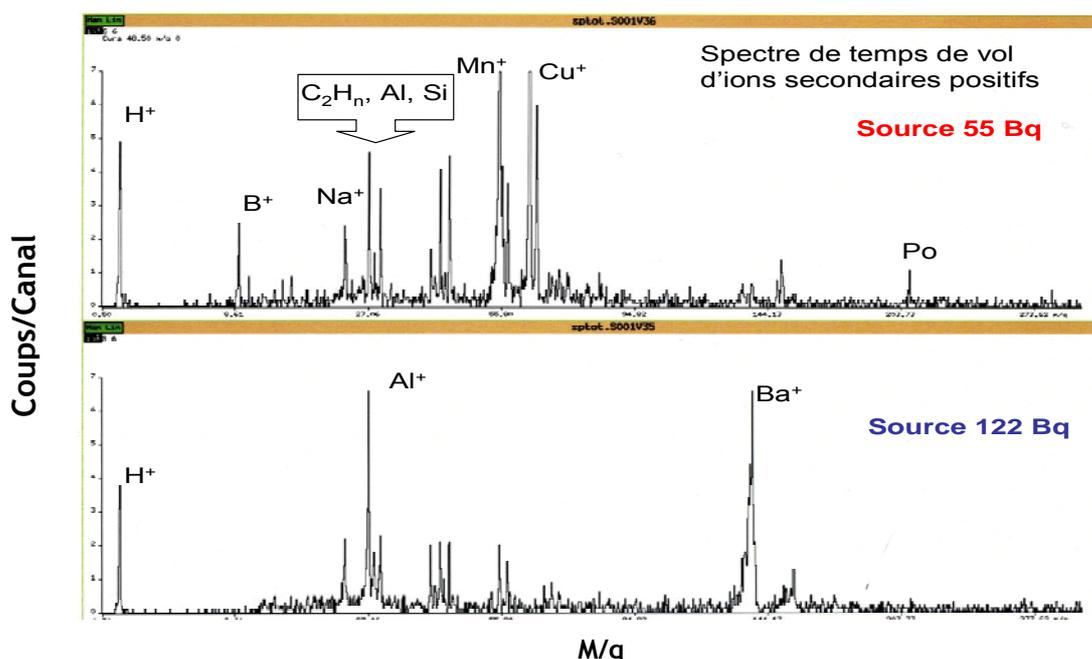


Figure 16 - Spectres de temps de vol obtenus en appliquant une différence de potentiel de +10 kV entre la cible et la grille d'accélération du temps de vol

Il apparaît majoritairement des ions émis de la surface. Le spectre est différent suivant les deux sources étudiées (sources RaMsEs). Pour la source de 55 Bq, les pics majoritaires sont attribuables au manganèse (Mn) et au Cuivre (Cu) ; il existe aussi des composés organiques (C_2H_n), de l'aluminium (Al) et du silicium (Si). Un pic à la masse 208 apparaît mais au vu des ions organiques, cette masse ne peut être attribuée à un élément de la décroissance. Dans le cas de la cible de 122 Bq, les pics majoritaires sont le baryum (Ba^+) et l'aluminium, des masses autour de 154 ne sont pas attribuées. Les autres pics sont, comme précédemment, la signature d'un film organique. Le taux d'émission des ions secondaires est plus de 10 fois supérieur au taux de détection des ions de recul ce qui ne permet pas de les voir aisément. Par contre, le bruit entre l'hydrogène et la masse 40 ne peut être qu'attribuable à ces reculs. En effet, la comparaison du spectre de recul alpha sans tension d'accélération et du spectre avec une différence de potentiel de 10 kV obtenu avec le même temps d'acquisition et le même nombre de starts alpha, démontre clairement cette hypothèse (figure 17).

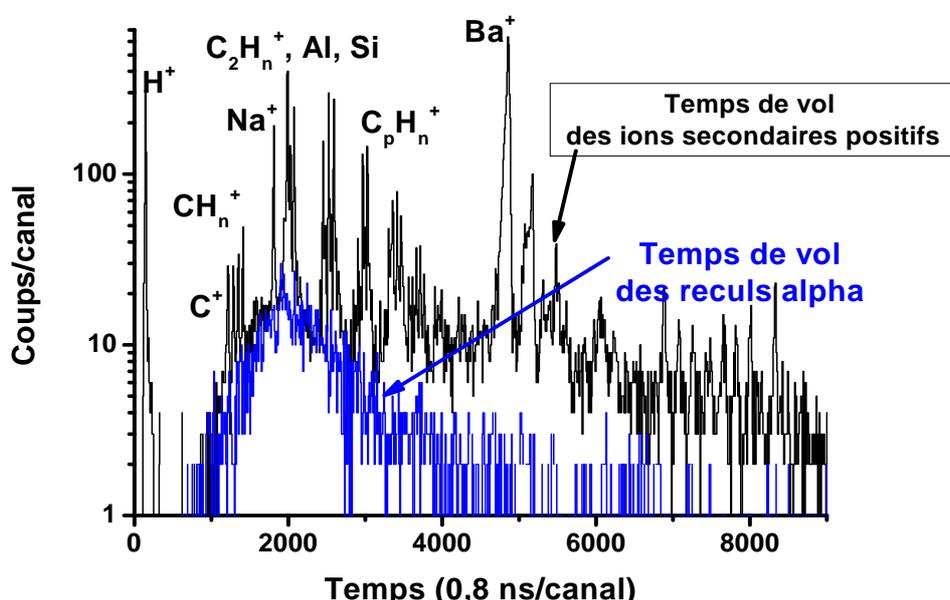


Figure 17 - Temps de vol des ions secondaires et des reculs alpha lors de l'application d'une différence de potentiel de +10 kV et 0 kV respectivement entre la cible et la grille d'accélération

De cette figure, nous pouvons déduire qu'il n'y a pas ou peu de différence sur le spectre de temps de vol des ions de recul, donc pour ces ions la charge est majoritairement 0 ou 1. De plus il n'y a pas d'ions fortement multichargés +10 ou plus car ceux-ci apparaîtraient entre les pics d'hydrogène et de carbone. Cette comparaison en échelle logarithmique montre clairement la différence en taux d'émission. Ce point est important car dans le cas d'éléments radioactifs fixés ou incorporés dans des particules, cette émission crée une charge superficielle comme l'émission électronique induite par le passage de particules alpha ou d'ions de recul de 10 à 100 keV.

Ces premières expériences, effectuées avec les sources de RaMsEs, montrent que la pollution de surface limite la détection des ions de recul lorsqu'une tension positive ou négative est appliquée sur la cible. Mais la comparaison des spectres, avec et sans tension, montre que la

majorité des ions de recul sont neutres ou faiblement chargés. Cette faible charge est due d'une part au fait que les émissions alpha alimentent le niveau fondamental des descendants et d'autre part à la présence de matière traversée par ces ions de faible énergie qui conduit à une neutralisation. La faible charge des ions de recul est confirmée par l'absence de $H_{2,3}^+$ (Della-Negra *et al.*, 1988) qui est une signature d'ions multichargés. Les spectres obtenus sont intéressants car ils montrent une possibilité d'ioniser une particule de matière qui engloberait la radioactivité ; il y a donc plusieurs voies d'ionisation. L'émission électronique induite par les particules alpha et par les ions de recul, la contribution relative de ces deux effets est liée d'une part à la composition de la particule et son volume, et d'autre part à l'émission ionique induite préférentiellement par les ions de recul plus efficaces que les particules alpha dans le cas de nanoparticules.

En ce qui concerne les spectres de recul, pour obtenir une meilleure réponse, il faut diminuer la couche de pollution et augmenter l'activité.

2.2.3. Mesure de temps de vol de recul alpha des sources sans dépôt de Baryum

Dans cette partie nous présentons les résultats de temps de vol pour une nouvelle série de sources, fabriquées à l'IRSN. La distribution de l'activité sur la surface est homogène comme le montre la représentation bidimensionnelle (figure 18) avec des coupes suivant les deux axes. La différence maximum est de 24 % sur les bords et de 13 % au centre de l'échantillon cette valeur étant équivalente à l'incertitude statistique qui est de 11 %.

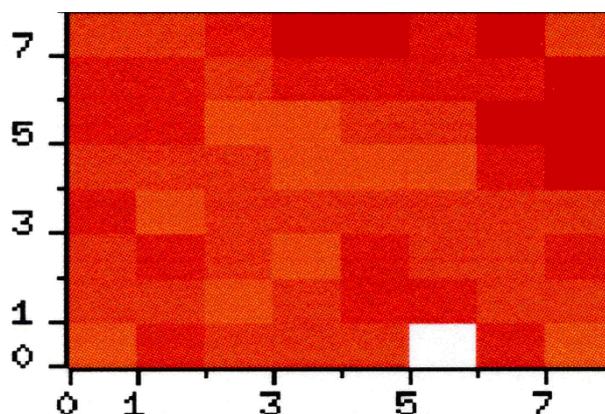


Figure 18 - Localisation des ions de recul alpha (source IRSN 170 Bq). Images données par le détecteur à localisation de 64 pixels sans tension d'accélération

Le spectre de temps de vol (figure 19) présente une forme similaire aux précédents résultats avec une traîne importante montrant à nouveau une cible mince mais avec un dépôt pondérable. Sur ce spectre, est visible, au début du pic de temps de vol, un épaulement plus marqué que dans les précédentes expériences. Le temps de vol correspond à des ions ayant le double de la vitesse du pic principal. Ce pic correspond à des éléments légers, hydrogène et carbone éjectés par le recul alpha. Ces éléments appartiennent aux pollutions déposées sur la surface et recouvrant les éléments radioactifs. Cette remarque permet d'expliquer la probabilité de détecter deux particules par émission alpha. La statistique tenue est plus importante que pour les précédentes expériences ce qui permet d'obtenir une meilleure détermination du centroïde du pic

est de 2490 ± 25 canaux. Le temps de vol des ions de recul correspond donc à une plus faible épaisseur de matière déposée.

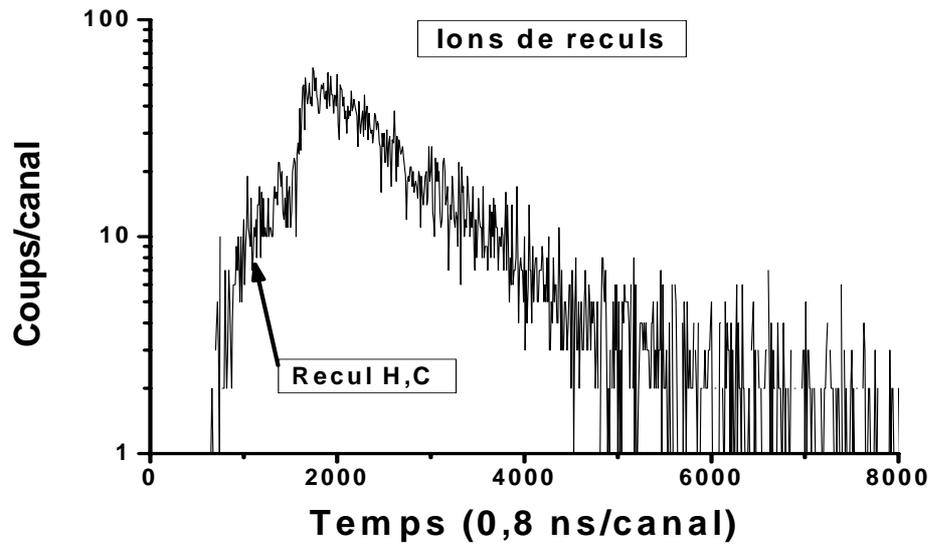


Figure 19 - Spectre de temps de vol des ions de recul sans tension d'accélération

Nous avons ensuite appliqué une tension positive sur la cible de 2 kV et de 10 kV (figure 20 et 21), une forte émission secondaire apparaît. Les pics des ions secondaires sont majoritairement des composés carbonés. Il n'y a pas d'éléments tels que le baryum. La figure 20 montre cette différence notable.

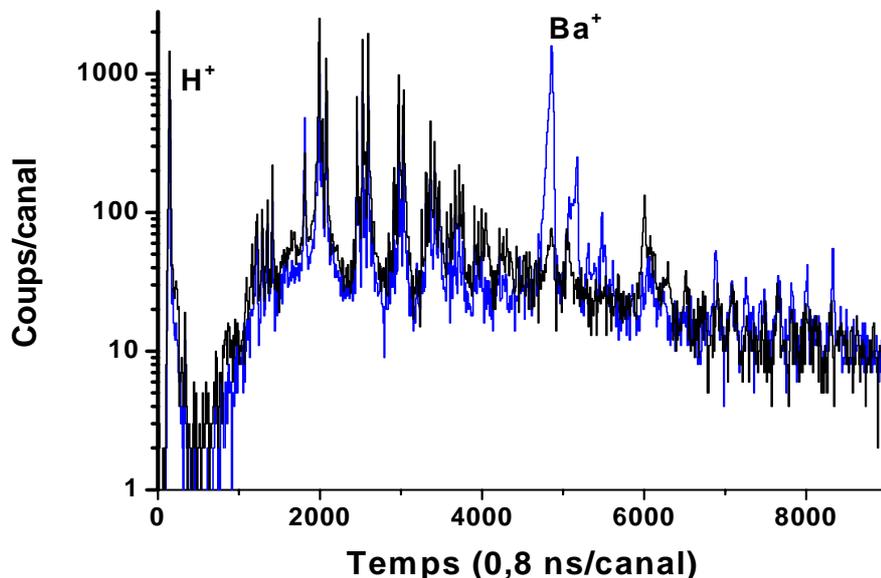


Figure 20 - Temps de vol des ions secondaires et des ions de recul. En noir les expériences faites avec les sources IRSN et en bleu avec les sources RaMsEs

L'émission secondaire est moins uniforme que le dépôt radioactif. Il y a un pic d'émission qui est trois fois supérieur au niveau moyen dont l'inhomogénéité est de 30 %. Le point d'émission

représente 1/8 de la surface de la source. Le spectre des ions de recul alpha se superpose à ce spectre d'ions secondaires. Cette contribution est plus importante que pour les expériences précédentes. La superposition du pic de temps de vol de la figure 21, indique clairement que la majorité des ions de recul sont faiblement chargés car il n'y a pas de déplacement important du pic. Le déplacement observable dans les deux spectres de temps de vol au niveau de la région du bruit de fond peut être reproduit par l'addition d'une contribution d'énergie de 10 keV pour le spectre de recul alpha, cette énergie correspond à la vitesse d'un atome de ^{218}Po possédant une seule charge. Une estimation est faite montrant le besoin d'une fraction de 20 % de mono-chargés pour ajuster les deux spectres. Nous remarquons aussi un déficit au niveau du pic de CH_n^+ , ce déficit a été ajusté en utilisant la même méthode, une estimation grossière montrait l'existence d'une petite fraction des ions de recul alpha multichargés dont le maximum est +10 et en moyenne +5. Finalement, nous déduisons que la distribution de charge des descendants du radon est majoritairement neutres 74 %, avec la présence des particules mono-chargées 20 % et 6 % des multichargés dont le maximum est +10 et en moyenne +5.

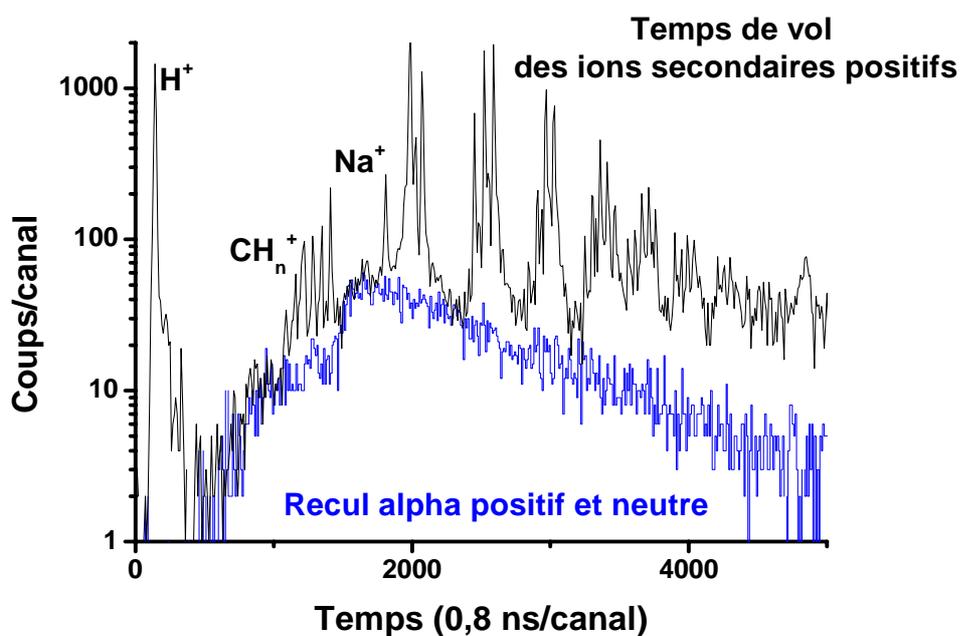


Figure 21 - Spectre de temps de vol : les ions secondaires obtenus pour une tension d'accélération de +10 kV (en noir) et les ions de recul obtenu sans différence de potentiel (bleu)

2.3. Discussions et conclusions

Les expériences de temps de vol faites avec les deux lots de sources ont montré l'influence de la matrice sur la surface des sources. Ce dépôt de matière a limité la sensibilité de détection des ions de recul lorsqu'une différence de potentiel positive est appliquée. Dans le cas des sources RaMsEs, la présence du dépôt de baryum a été visible, la comparaison des spectres avec et sans tension montre que les pics de recul et des ions secondaires sont superposés et pas de différences

de temps de vol. La distribution de charge est majoritairement neutre et présente une petite fraction de mono-chargés, ce qui se justifie par l'absence d'ions H_2^+ et H_3^+ , qui sont une signature de la présence des ions multichargé (Della-Negra *et al.*, 1988). La deuxième série d'expériences, faites avec le deuxième lot de sources (source LEI) sans dépôt de baryum, met en relief l'importance de cet élément (^{56}Ba) et sa grande influence sur les résultats précédents. Dans le cas des sources sans dépôt de baryum, les résultats en partie confirment les anciens résultats avec une distribution de charge majoritairement neutre ; par contre ils indiquent la présence d'une petite quantité des ions de recul du ^{218}Po multichargés. Ces derniers résultats montrent la neutralisation des ions de recul ^{218}Po dans la matière et surtout en présence du baryum. Ces résultats montrent comment la perte d'énergie (10-100 keV) dans quelques nanomètres d'épaisseur de matière émet un haut rendement d'ions secondaires et influence sur l'état de la charge et en particulier la neutralisation du ^{218}Po dès sa formation.

Les expériences de temps de vol sont applicables dans le cas de la fraction attachée des descendants du radon, le cas des aérosols radioactifs nanométriques. Les spectres obtenus sont d'une grande importance car ils montrent une possibilité d'ioniser une particule de matière qui engloberait la radioactivité ; il y a donc plusieurs voies d'ionisation : soit l'émission électronique induite par les particules alpha ou par les ions de recul. La contribution relative de ces deux effets est liée d'une part à la composition de la particule et à sa taille. Dans le cas des nano-particules, l'émission ionique est induite préférentiellement par les ions de recul qui sont plus efficaces que les particules alpha.

2.4. Mesure de la distribution de charge des descendants du radon

Après avoir présenté l'expérimentation de temps de vol et la mesure de la distribution de la charge du ^{218}Po à sa formation et dans le vide, nous allons à présent aborder une nouvelle démarche expérimentale dans cette partie. Le but de cette expérimentation est de mesurer la mobilité électrique des descendants du radon à l'aide d'un analyseur différentielle de mobilité électrique (ADME) afin de déduire la distribution de charge des descendants du radon. Ces expériences sont effectuées au Laboratoire de Physique et de Métrologie des Aérosols (LPMA) de l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN). Nous présentons, dans ce qui suit, le dispositif expérimental, les techniques de mesures ainsi que les résultats obtenus.

2.4.1. Description du dispositif expérimental de génération du radon et de ses descendants

Le dispositif expérimental, représenté à la figure 22, est composé d'un tube de diffusion cylindrique de 2 m de longueur et de 0,08 m de diamètre servant à générer des activités volumiques de radon et de descendants. Ce dispositif fait intervenir différentes techniques de mesure que nous allons détailler.

D'une part, Les différentes sources de ^{226}Ra utilisées (137, 751, 4150 et 38914 kBq) permettent de générer des activités volumiques importantes allant jusqu'à $4500 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$. D'autre part, l'air comprimé porteur est envoyé dans un système de purification doté d'un déshuileur, d'un sécheur (gel de silice), d'un tamis moléculaire et enfin d'un filtre à très haute efficacité qui retient tous les aérosols présents dans l'air comprimé. L'air est ensuite envoyé dans un circuit de dilution réglé par deux débitmètres massiques couvrant une gamme de débit variant de 0 à 20 l/min. Le radon, issu des sources de ^{226}Ra mélangé à de l'air sec, est ensuite envoyé dans un volume de vieillissement. La mesure des activités volumiques de ^{222}Rn se fait dans ce volume via un détecteur alpha PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon). Nous avons réalisé des expériences préliminaires afin de déterminer les courbes d'étalonnage du détecteur alpha (PIPS). Ce dernier relié à un spectromètre alpha est étalonné en activité volumique de radon par rapport à un instrument de référence. Dans ce même volume sont placés des capteurs de température, pression et d'humidité relative (figure 22). Nous signalons que l'humidité relative est de $5,6 \pm 0,5 \%$ au cours des expériences. Une prise de pression différentielle est effectuée en amont du tube, permettant le calcul du débit réel à l'intérieur du tube ; le radon est ensuite envoyé soit en extraction, soit dans le tube de diffusion. A l'entrée de celui-ci est placé un filtre à très haute efficacité permettant de retenir tous les descendants préalablement formés. Le tube de diffusion est isolé thermiquement afin d'éviter des phénomènes convectifs. Les descendants qui se forment dans ce tube sont ensuite captés par différents instruments de mesure comme l'analyseur différentiel de mobilité électrique (ADME). En sortie du système, nous disposons d'un compteur volumétrique donnant ainsi la valeur du volume prélevé lors de notre expérience.

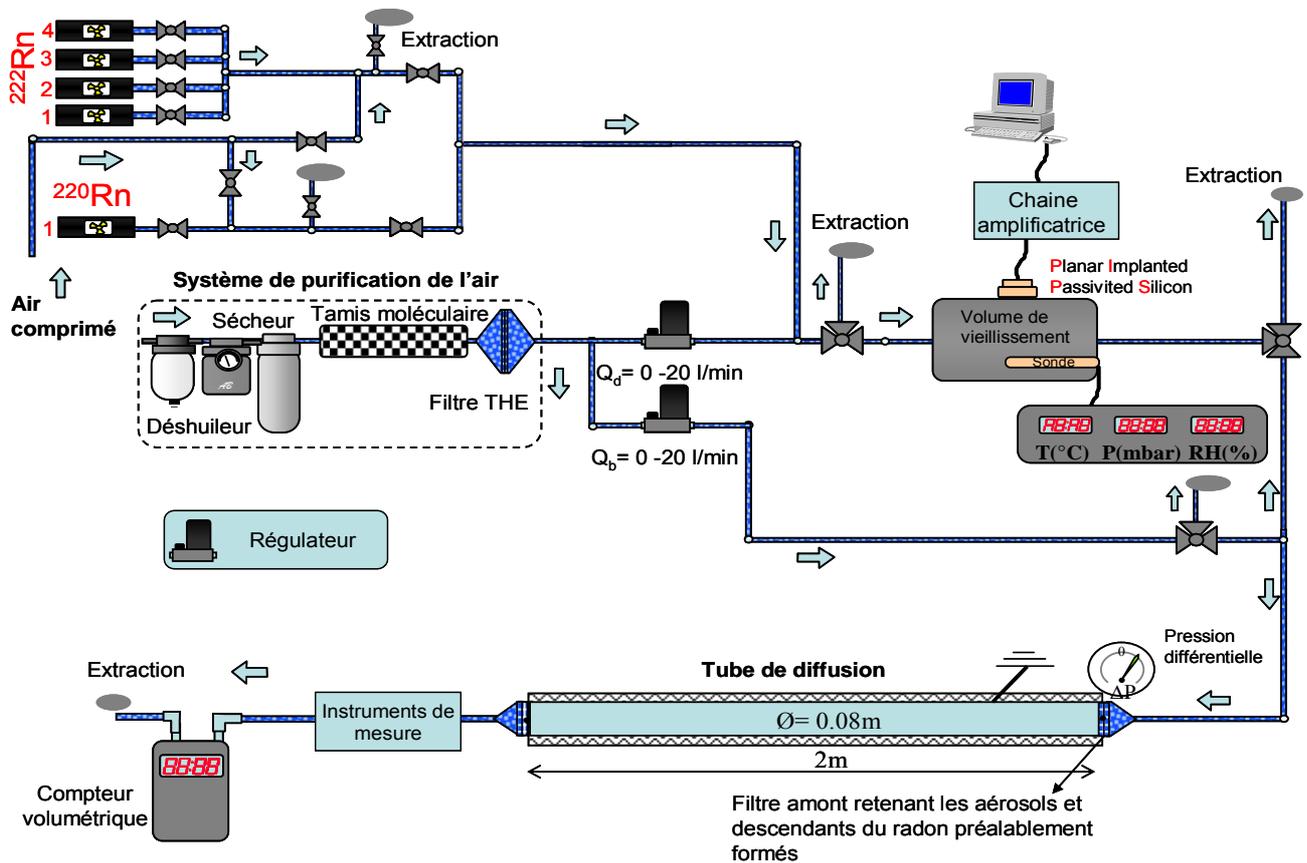


Figure 22 - Dispositif expérimental pour mesurer la fraction chargée des descendants du radon

Nous allons maintenant détailler les différentes parties de ce système. Le système de dilution est composé de deux régulateurs qui servent à diluer (Q_d débit de dilution, figure 22) le radon et ses descendants pour générer des activités volumiques de radon différentes. De plus, il sert à nettoyer le tube de diffusion du radon et ses descendants par un débit de balayage (Q_b , figure 22) en fin de manipulation. Nous disposons de plusieurs gammes de débitmètres utilisées suivant le débit de gaz désiré.

La mesure de l'activité volumique de radon s'effectue dans la chambre de vieillissement à l'aide d'un PIPS (figure 22). Le PIPS est un détecteur à barrière de surface composé de silicium. Il permet de détecter les ions ionisants. Par exemple les rayonnements alpha et beta peuvent être détectés en fonction du réglage de la tension d'alimentation du PIPS. Dans notre cas, nous nous intéressons uniquement aux émissions alpha. Les caractéristiques du PIPS que nous utilisons sont les suivantes : surface active (450 mm^2), résolution alpha (34 keV sous vide) et la tension d'alimentation (24 V). Une chaîne de comptage composé d'un préamplificateur puis d'un amplificateur et d'un Photon multi channel analyser (Pmca) est reliée au PIPS pour relever et classer dans différents canaux les différentes énergies des désintégrations des descendants. Pour la mesure, on s'intéressera éventuellement au pic du ^{218}Po , le nombre de particules de ^{218}Po mesuré étant relié à l'activité volumique de ^{222}Rn par un étalonnage (figure 23) via un instrument de référence.

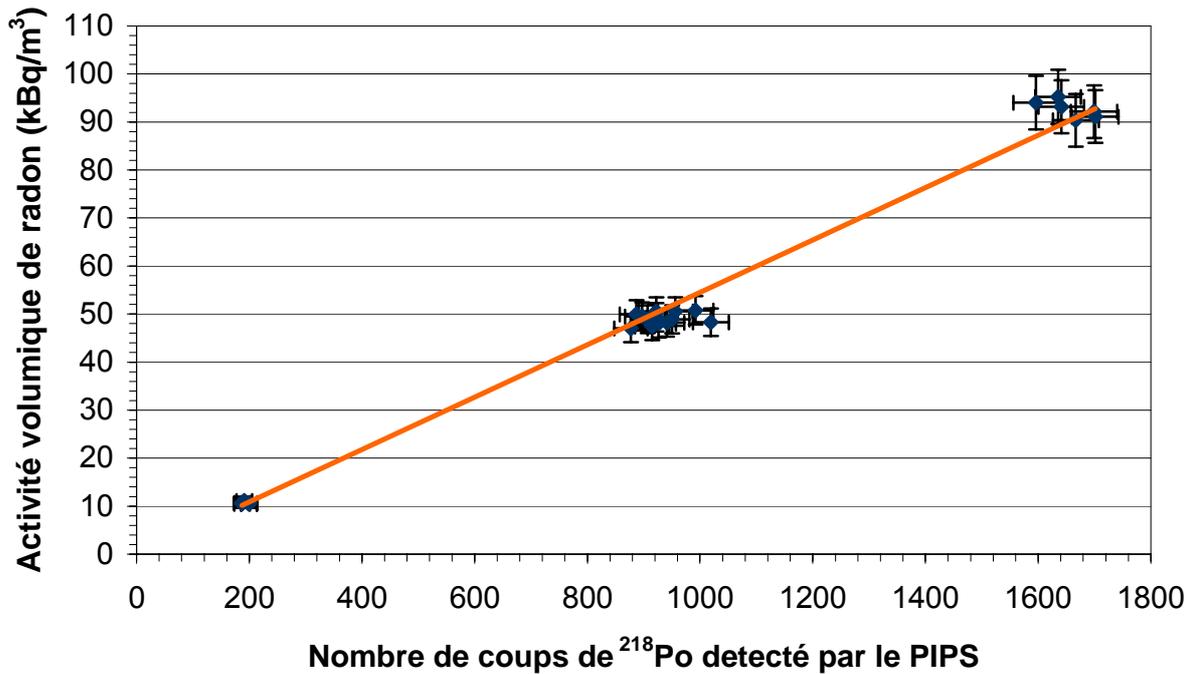


Figure 23 - Courbe d'étalonnage du détecteur PIPS à un instrument de référence

Après avoir détaillé le dispositif expérimental qui va nous servir à générer le radon et ses descendants. La partie suivante consiste à placer en sortie du tube de diffusion un Analyseur Différentiel de Mobilité Electrique (ADME) (figure 24) pour mesurer la mobilité électrique des descendants du radon dans des conditions expérimentales bien maitrisées.

2.4.2. Mesure de la mobilité électrique des descendants du radon

L'expérimentation consiste à mesurer la mobilité électrique Z des descendants du radon. Cette mobilité électrique, définie au chapitre 1 (éq. 28, page 34), est fonction du diamètre de la particule (d) et de sa charge ($q = n.e$). La gamme de mobilités électriques Z observables par l'ADME dépend des dimensions géométriques du nano-ADME (L , r_1 et r_2), des débits choisis (Q_{sh} et Q_{ex}) et de la tension appliquée (V) (éq. 35, 36). En connaissant le diamètre d des descendants du radon et en résolvant ces deux équations dans les mêmes conditions expérimentales, on peut déterminer le nombre de charges n portées par le descendants du radon.

$$Z \cdot \Delta \phi = \frac{(Q_{sh} + Q_{ex})}{4\pi} \quad (35)$$

Avec :

Q_{sh} (Sheath air in) = débit de gaine (cm³/s),

Q_{ex} (Excess air out) = débit de sortie (cm³/s).

$$\Delta \phi = \frac{V \cdot L}{\ln \left(\frac{r_2}{r_1} \right)} \quad (36)$$

Avec :

V = tension de l'électrode (V),

L = longueur de l'électrode centrale (cm),

r_1 et r_2 rayons interne et externe du condensateur (cm).

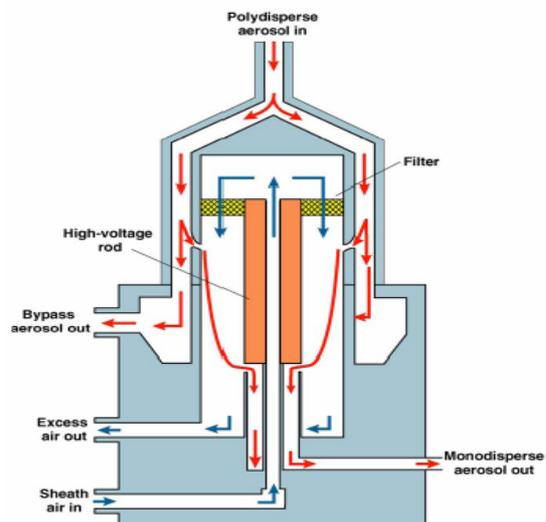


Figure 24 - Analyseur Différentiel de Mobilité Électrique (Nano-ADME)

Cet appareil est généralement utilisé avec un compteur optique de particule pour mesurer la granulométrie d'aérosols non radioactifs en les mettant au préalable à un état de charge électrique défini. Dans notre étude, nous allons l'utiliser avec un comptage radioactif de particules, pour mesurer la distribution de charge électrique connaissant au préalable la taille de la particule. Afin de vérifier la faisabilité de cette expérimentation, nous calculons la tension à appliquer en fonction des débits pour une particule de 2 nm de diamètre.

En résolvant l'équation, on obtient une valeur de la mobilité électrique à sélectionner par l'ADME qui est de $5,26 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s} \cdot \text{V}$. Afin de sélectionner cette mobilité électrique, il faut résoudre les deux équations 35 et 36. Plusieurs solutions sont présentées sur la figure 25 couplant plusieurs configurations de débits (sheath + excess) et de tension d'alimentation.

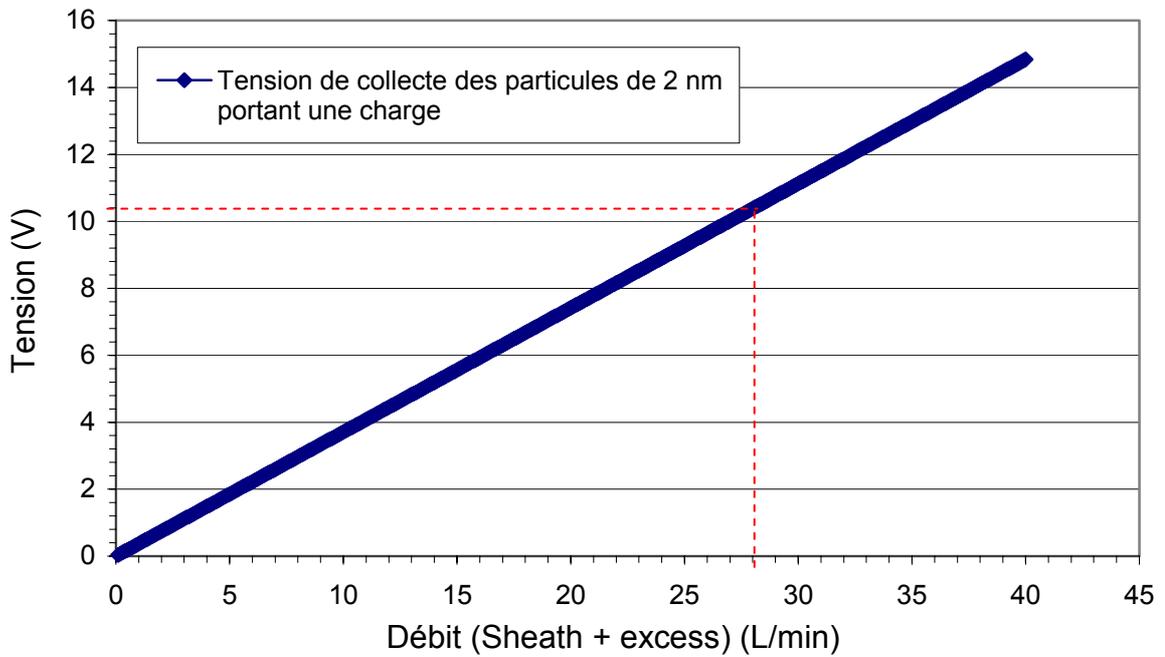


Figure 25 - Tension d'alimentation de l'ADME en fonction des deux débits (sheath et excess) pour sélectionner des particules de 2 nm portant une charge

La tension minimum applicable sur l'ADME étant de 10 V, nous choisissons la configuration suivante (en rouge figure 25) : la tension d'alimentation 10,4 V et la somme des débits (sheath + excess) de 28 l/min, qui seront utilisées pour l'expérimentation. Le calcul de la fonction de transfert de l'appareil nous indique la résolution de l'appareil. La fonction de transfert (figure 26) représente la probabilité d'échantillonner une particule de mobilité électrique Z ; elle dépend des débits utilisés.

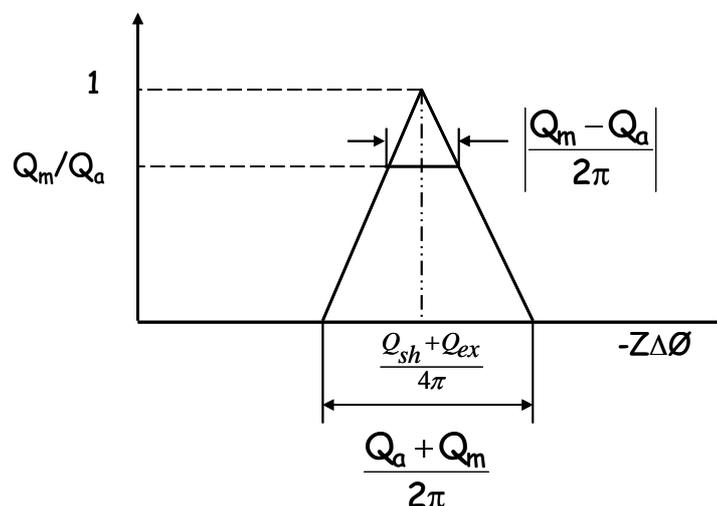


Figure 26 - Fonction de transfert de l'ADME

Avec :

Q_a = débit des aérosols en entrée de l'ADME (Polydisperse aerosol in, figure 24)

Q_m = débit des aérosols en sortie de l'ADME (Monodisperse aerosol out, figure 24)

Dans notre cas, en appliquant les débits suivants : $Q_{sh} = Q_{ex} = 14$ l/min et $Q_a = Q_m = 1,4$ l/min (pour un rapport optimum $Q_{sh}/Q_a = 10$), la fonction de transfert est présentée sur la figure 27.

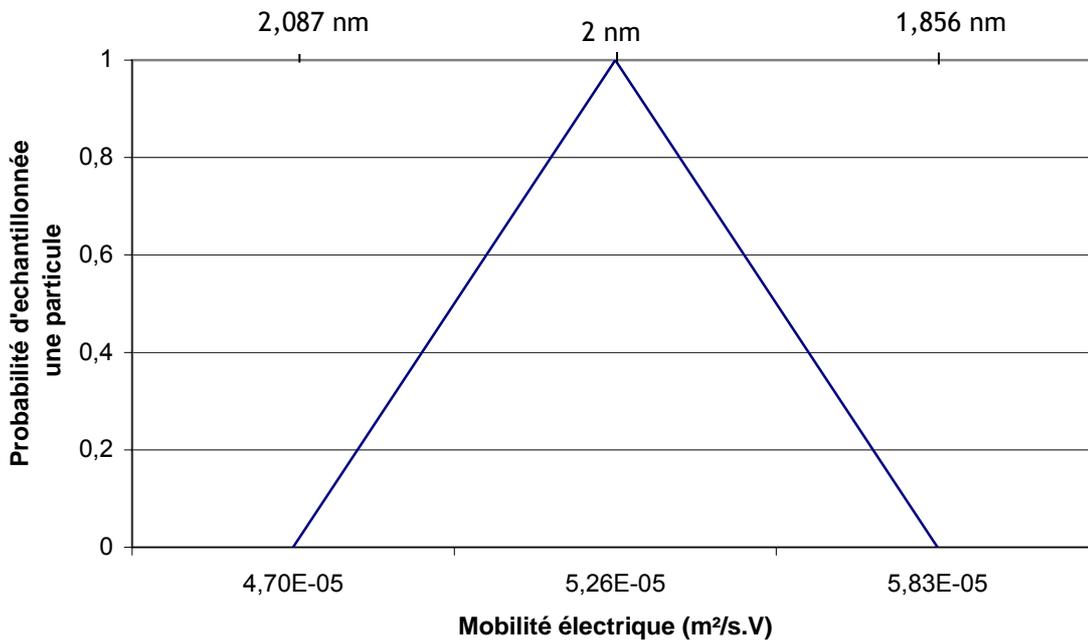


Figure 27 - Probabilité d'échantillonner une particule ayant une mobilité électrique de $5,26 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s.V}$ (diamètre 2 nm portant une charge)

On peut noter donc d'après la figure 27 qu'il est possible de sélectionner une particule de mobilité électrique $Z = 5,26 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{V}^{-1}$ en appliquant les débits et la tension cités ci-dessus.

Après avoir vérifié la faisabilité de l'expérience dans le cas cités ci-dessus, la prochaine étape est de vérifier le fonctionnement de l'appareil dans notre situation expérimentale. Pour ceci on génère des aérosols radioactifs (descendants du radon) dans le tube de diffusion et on introduit une quantité de $2,23 \cdot 10^4$ atomes de ^{218}Po , ce nombre de particules est mesuré à l'aide d'un Compteur Alpha-Portatif à Photomultiplicateur (CAPP) à l'entrée du Nano-ADME (Polydisperse aerosol in). Deux filtres (millipore AA 0,8 μm) sont placés sur les deux sorties du Nano-ADME (excess air out et monodisperse aerosol out), à $V = 0$ V, tous les aérosols chargés et neutres, sans négliger les pertes par dépôt doivent être collectés sur le filtre relié à la sortie « excess ». Nous avons réalisé plusieurs essais expérimentaux successifs dans des conditions expérimentales identiques. Les résultats du tableau 10 montrent une non reproductibilité des valeurs et de large fluctuation.

Tableau 10 - Nombres de particules collectés sur les deux filtres placés en sortie du Nano-ADME, sorties Excess air out et aérosol Monodisperse aerosol out dans le cas ou $V = 0$ V

Sortie Excess air out (particules)	Sortie Monodisperse aérosol out (particules)
246	3
148	11
115	7
130	8
112	6
106	9
83	12
89	4
61	5
50	7

De plus, nous avons utilisé une option de l'appareil qui est la fonction by-pass, cette dernière servant à augmenter le débit d'entrée de l'aérosol pour diminuer le dépôt dans la périphérie du condensateur cylindrique. De nouveau, les expériences ont été répétées plusieurs fois avec la fonction by-pass pour diminuer le dépôt, mais ceci n'a pas abouti à des résultats plus probants et nous avons abandonné cette voie de mesure.

2.5. Mesure de la charge totale des descendants du radon

Cette nouvelle expérimentation consiste à mesurer la charge totale des descendants du radon à l'aide d'un tube de Zeleny. Les essais sont réalisés en faisant varier deux paramètres : l'activité volumique de radon et le temps de résidence dans le tube de diffusion.

2.5.1. Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé est décrit dans la figure 22. Il est composé du même tube de diffusion dans lequel sont générés les descendants du radon auquel on adapte une électrode centrale formant ainsi un condensateur du type tube de Zeleny pour collecter les descendants chargés. Le tube de diffusion est de 192,5 cm de longueur et de 4 cm de rayon. Le tube de Zeleny, placé directement après le tube de diffusion, est formé de deux cylindres coaxiaux : une électrode axiale rigide et une paroi externe entre lesquelles on applique une tension créant un champ électrique. La longueur du tube de Zeleny est de 3,6 cm, le rayon interne de l'électrode est de 3 mm et le rayon externe est de 4 cm. En sortie du système (tube de diffusion + tube de Zeleny), un

filtre est placé dans le but de piéger les descendants du radon générés dans le système, non captés par l'électrode centrale avec ou sans tension pour une mesure ultérieure. Les sources de radon et le système de dilution sont les mêmes que ceux présentées dans la partie 2.4.1 (page 53).

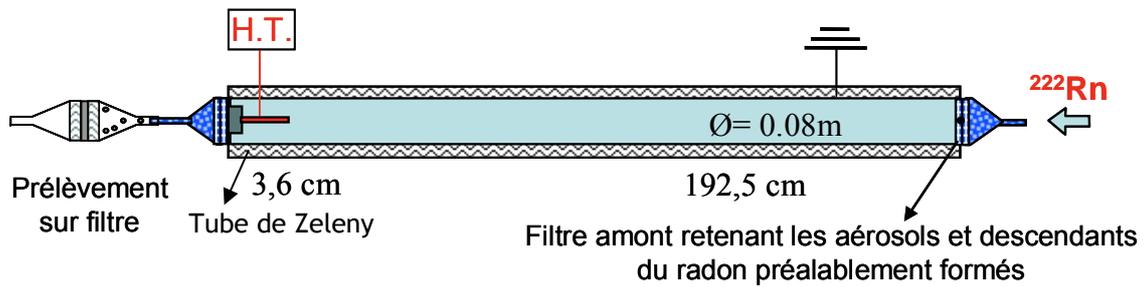


Figure 28 - Dispositif expérimental de mesure de la fraction chargée apparente des descendants du radon

2.5.2. Principes de mesures

Le principe de mesure consiste à prélever les descendants du radon créés dans le tube sur un filtre de type millipore AA (0,8 μm), dans les mêmes conditions expérimentales (activité volumique, temps de résidence), avec et sans tension. Les tensions appliquées au niveau de l'électrode sont des tensions positives, elles servent à capter les descendants chargés. La tension utilisée dans nos expériences est de 5000 V. Etant donné les paramètres géométriques du tube de Zeleny et les conditions expérimentales (débit volumique), cette valeur de tension est capable de collecter tous les aérosols de taille nanométriques dans notre système. Le temps d'échantillonnage sur le filtre de prélèvement est fixé à 5 min. Le comptage du nombre d'impulsions émises par les descendants sur le filtre se fait sur trois périodes. Ceci permet de remonter, à partir d'un comptage global des désintégrations alpha sur un Compteur Alpha-Portatif à Photomultiplicateur (CAPP, annexe 1), à l'activité volumique des descendants du radon prélevés en utilisant la méthode de Nazaroff (1984) (annexe 2).

La fraction chargée réelle d'un aérosol est définie par la relation :

$$f_{\text{chrg}} = \frac{C_c}{C_n + C_c} \quad (37)$$

Où C_c et C_n représente respectivement les concentrations chargée et neutre de l'aérosol.

La fraction chargée, telle qu'on peut la mesurer avec la méthode de Zeleny, peut être définie par la relation suivante :

$$f_{\text{chrg}}^{\text{Zel}} = \frac{C_{\text{SS},E} - C_E}{C_{\text{SS},E}} \quad (38)$$

Où C_E et $C_{\text{SS},E}$ représente respectivement les concentrations en sortie du tube de Zeleny avec et sans champ électrique entre l'électrode et les parois du tube de Zeleny.

Dans notre expérience, si aucune forme de disparition des aérosols autre que la perte d'aérosols par précipitation électrostatique n'existe, alors la fraction chargée mesurée avec cette méthode correspond exactement à la fraction chargée totale réelle. Dans notre cas, la neutralisation dans le système de mesure, la formation et la disparition en vol dues aux désintégrations représentent les sources de disparition pour des particules chargées et neutres. Ceci explique donc qu'on parlera ici de « fraction chargée apparente ». Celle-ci est définie expérimentalement par le rapport suivant :

$$f_{\text{chrg}}^{\text{app}} = \frac{A_{\text{ss.E}} - A_E}{A_{\text{ss.E}}} \quad (39)$$

où A_E et $A_{\text{ss.E}}$ sont respectivement les activités volumiques pénétrantes des descendants du radon, avec et sans champ électrique entre l'électrode et les parois du tube de Zeleny.

2.5.3. Résultat de la mesure de la fraction chargée apparente du ^{218}Po

Dans le but de mesurer la fraction chargée apparente du ^{218}Po défini par l'équation 39, nous avons réalisé des séries d'expériences pour différentes valeurs d'activité volumique de radon et de temps de résidence dans le tube de diffusion, et ceci pour déterminer l'influence de ses deux paramètres sur la fraction chargée apparente.

Les expériences sont réalisées trois fois pour évaluer la répétabilité des mesures. Les résultats de la fraction chargée apparente du ^{218}Po sont la moyenne de 3 mesures faites pour chaque configuration.

L'écart-type sur chaque mesure est calculé à partir de la formule suivante :

$$\sigma_F = \sqrt{\left(\frac{1}{A_{\text{ss.E}}}\right)^2 \cdot \sigma^2 A_E + \left(\frac{-A_E}{A_{\text{ss.E}}^2}\right)^2 \cdot \sigma^2 A_{\text{ss.E}}} \quad (40)$$

Où A_E et $A_{\text{ss.E}}$ sont définis précédemment.

Les incertitudes sur les mesures de A_E et $A_{\text{ss.E}}$ sont données par le programme de comptage Nazaroff. Ce dernier calcule les incertitudes en utilisant à la fois le rendement de comptage des Compteur Alpha-Portatif à Photomultiplicateur (CAPP) couplé aux scintillateurs de sulfure de zinc dopé à l'argent ($\text{ZnS}(\text{Ag})$) qui ont été étalonnées par rapport à des sources de références (annexe 1) et de l'incertitude de lecture du débit sur le compteur volumétrique.

La moyenne des incertitudes est calculée par :

$$\bar{\sigma} = \frac{\sqrt{\sum (\sigma_i)^2}}{i^2} \quad (41)$$

Avec i : le nombre de mesure expérimentale effectué.

Les résultats expérimentaux, sur l'étude de la fraction chargée apparente du ^{218}Po , que nous avons obtenus sont les suivants :

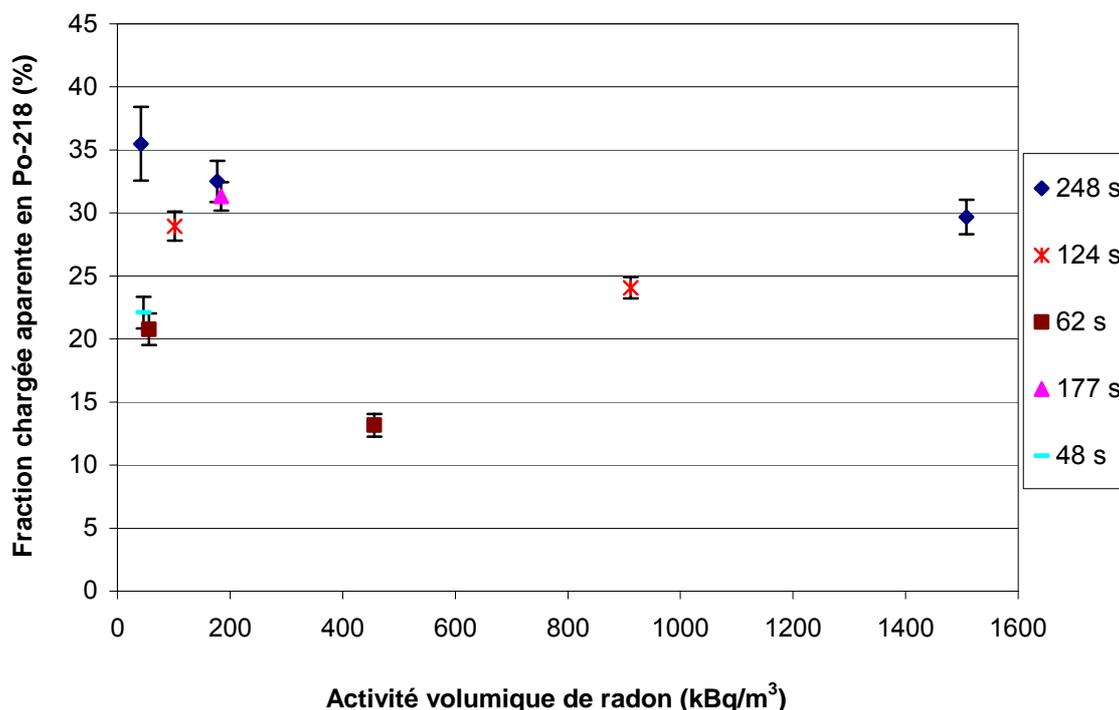


Figure 29 - Fraction chargée apparente du ^{218}Po en fonction de l'activité volumique en radon

Nous constatons que pour un même temps de résidence dans le tube, lorsque l'activité volumique de radon augmente, la fraction chargée apparente du ^{218}Po diminue. Ce phénomène se vérifie pour trois débits volumiques différents. Pour un débit volumique de 2,5 l/min ($t_{\text{res}} = 248$ s), en comparant les trois activités volumiques en radon, on remarque la décroissance de la fraction chargée apparente du ^{218}Po de 35,5 % à 29,7 % en passant d'une activité de 42 kBq/m³ à 1507 kBq/m³. De même, pour les deux autres débits de 5 l/min ($t_{\text{res}} = 124$ s) et de 10 l/min ($t_{\text{res}} = 62$ s), la fraction chargée apparente de ^{218}Po diminue en augmentant l'activité volumique de radon. Les résultats sont présentés avec une incertitude de 1σ .

Nous remarquons aussi que pour des activités volumiques en radon dans le tube égales ou quasi égales et pour des temps de résidences proches, la fraction chargée apparente du ^{218}Po est la même. On cite par exemple le cas des deux activités volumiques en radon 184 kBq/m³ et 177 kBq/m³ qui correspond à des temps de résidence de 177 et 248 s respectivement, la fraction chargée apparente du ^{218}Po est quasi égale (voir tableau 11) aux alentours de 32 %. Il en est de même des autres points de mesure qui ont pour activité volumique en radon 56 kBq/m³ et 46 kBq/m³ et des temps de résidence de 62 s et 48 s respectivement. Par contre, dans le cas des activités volumiques en radon égales et des temps de résidence différents, on constate des variations de la fraction chargée apparente. Un troisième point dans la même gamme d'activité volumique en radon (42 kBq/m³), pour un temps de résidence beaucoup plus grand (248 s), montre que la fraction chargée apparente du ^{218}Po augmente et a comme valeur 35,5 %.

Il est à noter que les mesures étaient répétables et qu'elles évoluaient toujours dans le même sens. En effet, les résultats et leur incertitude se croisent pour chaque configuration. Les résultats de la fraction chargée apparente du ^{218}Po sont présentés dans le tableau 11 :

Tableau 11 - tableau des résultats de la fraction chargée apparente du ^{218}Po obtenus pour les différentes configurations expérimentales

Activité volumique de radon (kBq/m ³)	Incertitude (kBq/m ³)	Temps de séjour dans le tube de diffusion (s)	Fraction chargée apparente en ^{218}Po (%)	Ecart type (%)
1508	9	248	29,7	1,4
912	12	124	24,1	0,8
456	3	62	13,2	0,9
184	2	177	31,3	1,1
177	7	248	32,5	1,6
102	5	124	28,9	1,1
56	2	62	20,8	1,2
46	2	48	22,1	1,2
42	3	248	35,5	2,9

2.5.4. Discussion et comparaison des résultats

Dans cette partie, une étude comparative est faite avec les résultats de la littérature cités dans le tableau 7 (page 37). Nos résultats de la fraction chargée des descendants du radon ne peuvent être comparés à ceux de Wellisch (1913), Porstendörfer (1979) et Dua (1981) qui ont réalisés leurs expériences directement après la formation des descendants, alors que nos mesures ont été effectuées à des temps de résidences plus longs. Seuls les résultats de Dankelmann *et al.* (2001), obtenus pour un temps de résidence de 120 s, sont comparables à nos deux points de mesures obtenus avec un temps de résidence de 124 s. Nous constatons que la fraction chargée obtenu par Dankelmann (49 %) est plus élevée que nos deux points de mesures (28,9 % et 24,1 %). Ceci, est dû à l'utilisation d'activités volumiques de radon, dans notre cas de l'ordre de 102 kBq/m³ et 912 kBq/m³, beaucoup plus élevés que les activités volumiques utilisés par Dankelmann (6,7 kBq/m³). On peut donc émettre l'idée que l'augmentation des activités volumiques de radon favorise la neutralisation.

D'autre part, une comparaison aux résultats de Malet (1997) est effectuée dans la partie suivante. Les expériences de Malet ont été effectuées avec le même dispositif expérimental (tube de diffusion + tube de Zeleny) mais avec un tube de Zeleny plus grand. Le tube de diffusion est de 108 cm de longueur et de 4 cm de rayon, tandis que la longueur du tube de Zeleny est de 92 cm, le rayon interne de l'électrode est de 0,8 cm et le rayon externe est de 4 cm. Une comparaison des valeurs de la fraction chargée apparente du ^{218}Po est représentée dans le tableau 12.

Tableau 12 - Comparaison des valeurs expérimentales obtenues par J. Malet et R. Abou-Khalil pour la fraction chargée apparente du ^{218}Po en fonction de plusieurs paramètres.

Auteurs	Débit volumique (l/min)	Temps de résidence dans le tube de diffusion (s)	Temps de résidence dans le tube de Zeleny (s)	Activité volumique de radon (kBq/m^3)	Fraction chargée apparente du ^{218}Po (%)
J. Malet	5	65	55	94	46 ± 10
R. Abou-Khalil	5	122	2	102	$28,9 \pm 1,2$
R. Abou-Khalil	10	61	1	56	$20,8 \pm 1,2$
R. Abou-Khalil	10	61	1	456	$13,2 \pm 0,9$
J. Malet	15	22	18	32	27 ± 10
R. Abou-Khalil	2,5	244	4	42	$35,5 \pm 2,9$

Pour des activités volumiques de radon quasi égales ($94 \text{ kBq}/\text{m}^3$ et $102 \text{ kBq}/\text{m}^3$) et des temps de résidence de 65 s et 122 s respectivement, la fraction chargée apparente du ^{218}Po dans notre cas est de 28,9 % inférieure à celle de Malet qui est de 46 %. De même, pour des activités volumiques de radon quasi égale ($32 \text{ kBq}/\text{m}^3$ et $42 \text{ kBq}/\text{m}^3$), et pour des temps de résidence de 22 s et 244 respectivement, on trouve que la fraction chargée apparente du ^{218}Po est 27 % et 35,5 %, si nous intégrons les incertitudes, les deux valeurs se croisent.

Pour des temps de résidence dans le tube de diffusion quasi égaux (65 s et 61 s), nos deux points de mesures correspondant aux deux activités volumiques en radon $56 \text{ kBq}/\text{m}^3$ et $456 \text{ kBq}/\text{m}^3$, représentent des valeurs de fraction chargée apparente du ^{218}Po (20,8 % et 13,2 %) inférieures à la valeur trouvée par Malet (46 %). L'activité volumique en radon utilisée dans le cas de Malet est de $94 \text{ kBq}/\text{m}^3$, cette dernière étant comprise entre nos deux activités $56 \text{ kBq}/\text{m}^3$ et $456 \text{ kBq}/\text{m}^3$, nous avons remarqué que la fraction chargée apparente diminue en augmentant l'activité volumique en radon, la valeur de Malet ne se situe dans cette évolution. Cette non compatibilité des valeurs peut être due au long temps de résidence dans le tube de Zeleny dans le cas de Malet (55 s).

En effet, pendant la traversée du tube du dispositif expérimental (tube de diffusion + tube de Zeleny) les processus suivant ont lieu (figure 30) :

- 1) formation du ^{218}Po par désintégration du radon,
- 2) neutralisation des clusters ^{218}Po chargés positivement,
- 3) disparition du ^{218}Po en suspension dans l'air par désintégration et par dépôt sur le tube de diffusion.

Avec : λ_{Rn} constante de désintégration du radon (s^{-1}),

λ_n taux de neutralisation du ^{218}Po (s^{-1}).

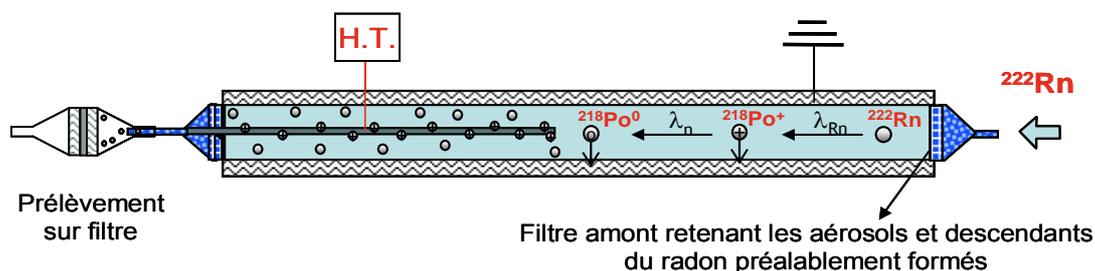


Figure 30 - Evolution du radon et de ses descendants dans le dispositif expérimental (Malet, 1997)

Ces trois processus interviennent tout au long de l'électrode centrale dans le cas de Malet. Dans notre cas, la réduction de la taille de l'électrode a été effectuée dans le but de diminuer les pertes liées à la formation et à la disparition des descendants du radon tout le long de la grande électrode. Enfin, le petit tube de ZELENY permet de s'affranchir de la formation et de la disparition en vol.

Tous ces phénomènes rendent difficiles la comparaison des valeurs du tableau 12 surtout que tous ses paramètres varient avec le temps de résidence dans le tube. Pour mieux comprendre ses résultats expérimentaux, il est nécessaire d'étudier le taux de neutralisation du ^{218}Po qui représente la fraction des particules chargées qui se neutralisent par unité de temps (s^{-1}). Afin de calculer ce paramètre, une étude numérique est développée et l'interprétation des résultats fera l'objet du chapitre 4.

2.6. Mesure du coefficient de diffusion du ^{218}Po

La prochaine étape de travail concerne la mesure du coefficient de diffusion des descendants du radon dans le même dispositif et pour les mêmes conditions expérimentales que celles de la fraction chargée apparente. Le coefficient de diffusion est un paramètre essentiel qui sert à bien maîtriser le dépôt des descendants du radon dans notre dispositif expérimental. Ce paramètre est étroitement lié aux conditions expérimentales, et pour cette raison, nous ne pouvons pas tenir compte des données de la littérature. La mesure du coefficient de diffusion va nous permettre de mieux comprendre l'évolution de la taille en fonction de l'activité volumique de radon et du temps de résidence dans le tube, et surtout de bien maîtriser les paramètres d'entrée du code de calcul que nous allons utiliser dans le chapitre 4 pour analyser les résultats expérimentaux.

2.6.1. Dispositif expérimental et principe de la mesure

Le dispositif expérimental utilisé est le même que celui défini précédemment (tube de diffusion + tube de Zeleny), mais en sortie du système on dispose un porte filtre par un porte filtre

à double étage (figure 31), le premier étage comportant une grille de diffusion (figure 32) et le second un filtre de collecte. La grille de diffusion est formée de fils circulaires entrecroisés de diamètre (D_{fil}) et d'espace entre fils (Ouv_{maille}) uniforme.

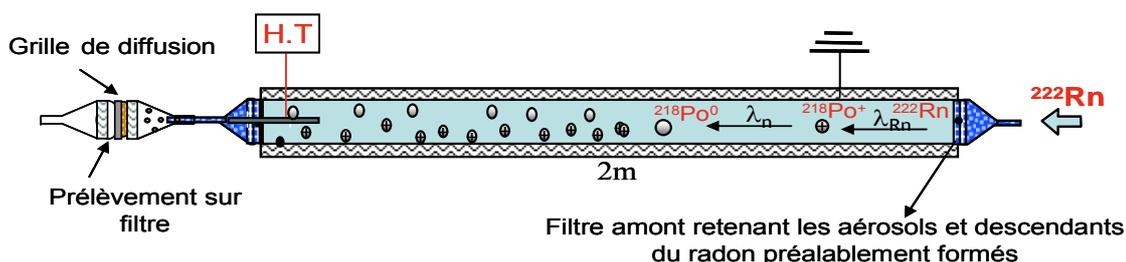


Figure 31 - Dispositif expérimental de mesure de la granulométrie des descendants du radon

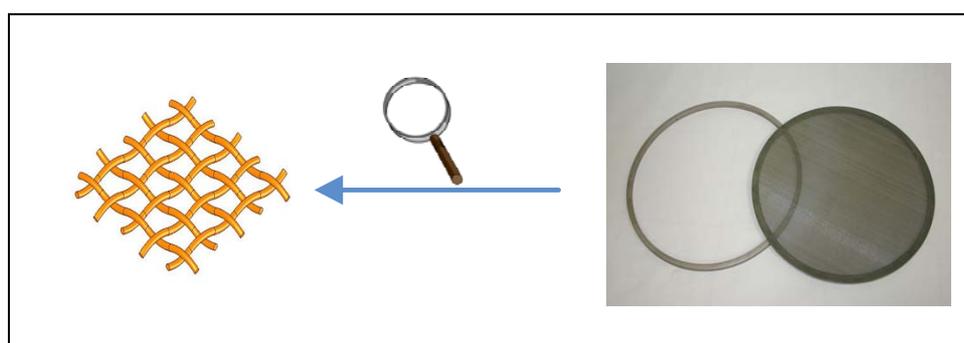


Figure 32 - Grille de diffusion

Les configurations 1 à 5 du tableau 13 représentent les caractéristiques des grilles utilisées à la sortie du dispositif expérimental. Le diamètre de coupure des grilles $d_p(50\%)$ (diamètre pour une fraction pénétrante à travers une grille de 50 %) dépend des débits et des grilles choisies ; $D(50\%)$ est le coefficient de diffusion qui correspond à la taille $d_p(50\%)$; tous les deux sont liés par la relation de Stokes-Einstein (éq. 17). Les expériences ont été faites avec deux grilles différentes et cinq débits différents (Tableau 13).

Tableau 13 - Caractéristiques des grilles de diffusion utilisées en sortie du tube de diffusion

Configuration	D_{fil} (μm)	Ouv_{maille} (μm)	Débit (l/min)	$d_p(50\%)$ (nm)	$D(50\%)$ (m^2/s)
1			2,5	2,15	$1,15 \cdot 10^{-6}$
2	100	250	3,5	1,8	$1,58 \cdot 10^{-6}$
3			5	1,42	$2,3 \cdot 10^{-6}$
4	50	100	10	1,7	$1,69 \cdot 10^{-6}$
5			13	1,45	$2,26 \cdot 10^{-6}$

La fraction pénétrante des aérosols à travers une grille est donnée par la théorie de Cheng & Yeh (1980) ; elle est fonction de la vitesse d'écoulement à travers la grille, des paramètres géométriques de celle-ci et de la taille des particules incidentes.

Le principe de mesure du coefficient de diffusion se fait par prélèvement des descendants du radon sur le filtre de collecte (millipore AA de diamètre de pore de 0,8 µm), dans les mêmes conditions expérimentales, avec et sans grille de diffusion. Le temps d'échantillonnage et le comptage radioactif sont définis précédemment, paragraphe 2.5.2. Le rapport des activités volumiques des descendants déposés sur les filtres avec et sans grille représente la perméance (équation 42), cette dernière correspondant à la fraction pénétrante des aérosols à travers la grille de diffusion dans des conditions expérimentales bien définies :

$$P = \frac{A_{\text{avecgrille}}}{A_{\text{sansgrille}}} \quad (42)$$

Avec : $A_{\text{avecgrille}}$ l'activité volumique des descendants déposés sur le filtre avec grille et $A_{\text{sansgrille}}$ l'activité volumique des descendants déposés sur le filtre sans grille.

En mesurant la perméance (P) de grilles de diffusions, on peut déterminer le coefficient de diffusion du ^{218}Po en résolvant les équations suivantes :

$$P = \exp\left(\frac{-4h\alpha}{\pi(1-\alpha)d_f} \times E_T\right) \quad (43)$$

Avec : α la porosité de la grille,

h ouverture des mailles de la grille (m),

d_f le diamètre des fibres de la grille (m),

E_T efficacité totale de collecte des fibres.

On calcule E_T à partir de la formule suivante :

$$E_T = B \times P e^{-2/3} \quad (44)$$

Avec : B une constante caractéristique des grilles utilisées (2,7 dans notre cas),

Pe le nombre de Peclet qui se calcule comme suit :

$$Pe = \frac{d_f \times U}{D} \quad (45)$$

Avec : U vitesse d'écoulement de l'air (m/s),

D coefficient de diffusion des particules (m²/s).

2.6.2. Résultats et discussions

La première série d'expérience concerne la mesure du coefficient de diffusion obtenu avec tension sur l'électrode centrale du tube de Zeleny, c'est-à-dire le ^{218}Po neutre. La tension appliquée va nous servir à collecter les ^{218}Po chargés et à ne laisser passer que les ^{218}Po neutres. La tension est appliquée avec et sans grille de diffusion. Les conditions expérimentales sont les mêmes que pour les mesures de la fraction chargée apparente du ^{218}Po , et ceci pour mieux maîtriser l'évolution de la taille et de la charge en fonction des mêmes paramètres. Le tableau 14 présente les résultats expérimentaux.

Tableau 14 - tableau récapitulatif des configurations expérimentales

Activité volumique de radon (kBq/m ³)	Incertitude (kBq/m ³)	Temps de résidence (s)	Configuration
1577	9	248	1
181	3	248	1
42	2	248	1
190	3	177	2
914	7	124	3
102	2	124	3
459	5	62	4
56	2	62	4
44	2	48	5

La figure 33 présente les résultats de la première série d'expériences. Les coefficients de diffusion mesurés sont ceux du ^{218}Po neutre. Les expériences sont réalisées deux fois pour chaque configuration (temps de résidence, activité volumique en radon, grille de diffusion), afin de vérifier la répétabilité des mesures. Les résultats du coefficient de diffusion du ^{218}Po neutre sont la moyenne de ces deux mesures.

L'écart-type sur chaque mesure est calculée à partir de la formule suivante :

$$\sigma_F = \sqrt{\left(\frac{1}{A_{\text{sans grille}}}\right)^2 \cdot \sigma^2 A_{\text{avec grille}} + \left(\frac{-A_{\text{avec grille}}}{2 A_{\text{sans grille}}}\right)^2 \cdot \sigma^2 A_{\text{sans grille}}} \quad (46)$$

où $A_{\text{avecgrille}}$ et $A_{\text{sansgrille}}$ sont respectivement les activités volumiques pénétrantes du ^{218}Po avec et sans grille de diffusion.

Pour le calcul des incertitudes, étant donné que l'évolution du coefficient de diffusion en fonction de la perméance de la grille n'est pas linéaire, le calcul des incertitudes se fait sur deux étapes. En premier lieu, les incertitudes sur les mesures de $A_{\text{avecgrille}}$ et $A_{\text{sansgrille}}$ sont données par le programme de comptage Nazaroff et de l'incertitude de lecture du débit sur le compteur volumétrique comme définit précédemment. En second lieu, ces incertitudes seront ajoutées et retranchées aux valeurs de perméance, ensuite le calcul des coefficients de diffusion se fait à l'aide des équations 43, 44 et 45. Nous avons ainsi les valeurs maximales et minimales des coefficients de diffusion. Les résultats sont présentés dans la figure 33.

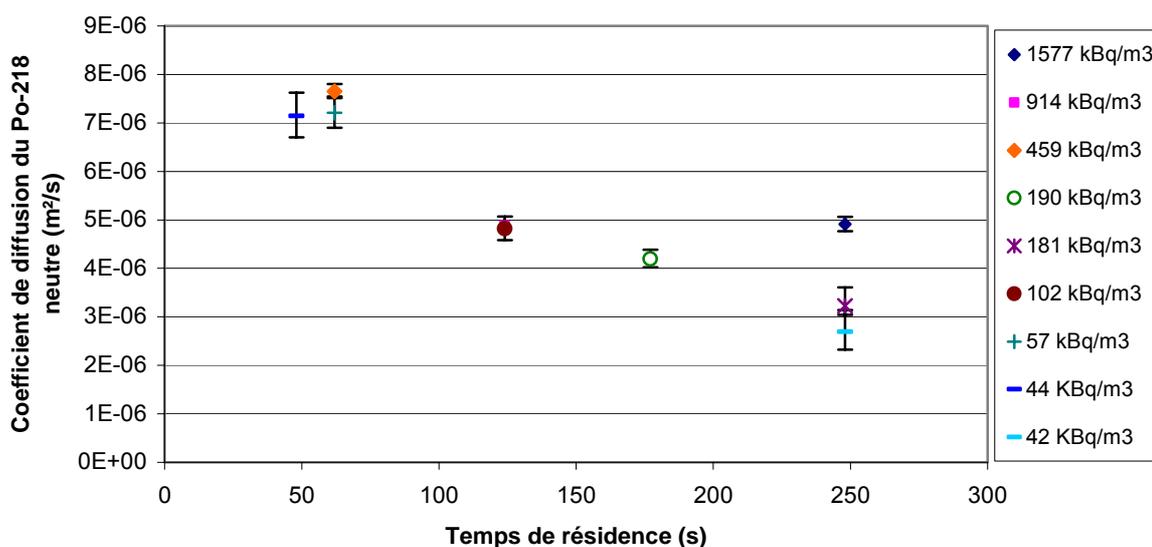


Figure 33 - Coefficients de diffusion du ^{218}Po neutre en fonction du temps de résidence

Les valeurs du coefficient de diffusion du ^{218}Po neutre (figure 33) montrent globalement une décroissance lorsque le temps de résidence augmente. Pour les trois points correspondant à des temps de résidence de 48 et 62 s, on constate que ces points ont des coefficients de diffusion équivalents. Les deux points obtenus pour un temps de résidence de 124 s ont aussi des coefficients de diffusion égaux. On peut également déduire la même conclusion pour un temps de résidence de 248 s, sauf dans le cas du point (248 s, 1507 kBq/m³). Ce dernier, ayant une activité volumique de radon beaucoup plus grande par rapport aux deux autres points, présente un plus grand coefficient de diffusion.

Pour interpréter ces résultats, on peut s'intéresser à la probabilité que les particules réagissent avec leur milieu en fonction du temps de résidence. En effet, on peut penser que plus la particule réside longtemps dans le tube, plus la probabilité qu'elle forme des agrégats est grande. Mais pour un temps de résidence égal et des activités volumiques en radon différentes, là encore, les paramètres à prendre en compte pour interpréter ce phénomène sont nombreux et complexes. Pour mieux analyser ces résultats relatifs au coefficient de diffusion des neutres, l'étape suivante sera consacrée à la mesure du coefficient moyen (chargé + neutre) du ^{218}Po .

Cette deuxième série de mesure consiste à mesurer le coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po . Ceci est fait, en suivant le même protocole expérimental (tableau 14) mais sans application de tension au niveau de l'électrode centrale du tube de Zeleny afin de laisser passer tous les ^{218}Po neutres et chargés. Les résultats sont présentés dans la figure 34.

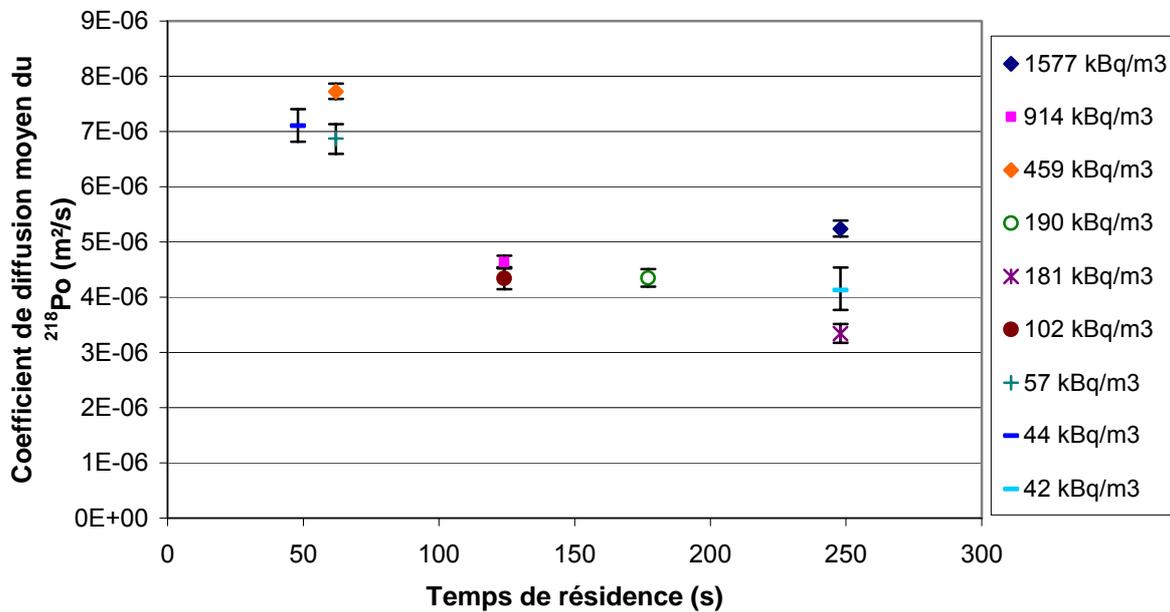


Figure 34 - Coefficients de diffusion moyens du ^{218}Po obtenus sans tension

Nous pouvons également constater que le coefficient de diffusion moyen de ^{218}Po diminue lorsque le temps de résidence augmente. Par contre, pour les trois points correspondant au temps de résidence de 248 s, on remarque des différences entre les points d'activité volumique de radon différente. Nous déduisons aussi que, globalement, le coefficient de diffusion moyen suit le même profil que pour le coefficient de diffusion neutre et les valeurs sont identiques sauf dans les cas de temps de résidence 124 s et 248 s. On constate une légère différence entre les coefficients de diffusion du ^{218}Po moyen et neutre, pour le point (124 s, 102 kBq/m³), qui sont $4,33 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $4,81 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ respectivement, et aussi dans le cas du point (248 s, 42 kBq/m³) les valeurs du coefficient de diffusion moyen et neutre sont $4,12 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $2,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ respectivement.

Pour vérifier que dans nos conditions expérimentales existaient une seule granulométrie, nous avons mesuré expérimentalement la granulométrie du ^{218}Po pour deux temps de résidence différents avec plusieurs grilles de diffusion. Le tableau 15 résume les configurations choisies.

Tableau 15 - Caractéristiques des grilles de diffusion pour déterminer l'unimodalité du ^{218}Po

Configuration	Débit (l/min)	D_{fil} (μm)	$\text{Ouv}_{\text{maille}}$ (μm)	$d_p(50\%)$ (nm)	$D(50\%)$ (m^2/s)
1	2,5	100	250	2,15	$1,15 \cdot 10^{-6}$
2		110	160	2,95	$6,15 \cdot 10^{-7}$
3		180	400	1,68	$1,75 \cdot 10^{-6}$
4	5	50	80	2,9	$6,35 \cdot 10^{-7}$
5		50	100	2,5	$8,52 \cdot 10^{-7}$
6		100	250	1,42	$2,3 \cdot 10^{-6}$

La première série d'expérience a été réalisée avec trois grilles différentes (configuration 1, 2, 3) pour un débit de 2,5 l/min équivalent à un temps de résidence de 248 s et une activité volumique de radon de $1507 \text{ kBq}/\text{m}^3$ (sans tension). Les configurations 1 à 3 (figure 35) représentent les courbes théoriques de la perméance des grilles en fonction du coefficient de diffusion. Les résultats montrent que le coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po est monodispersé dans ces conditions (Tableau 15, configuration 1 à 3).

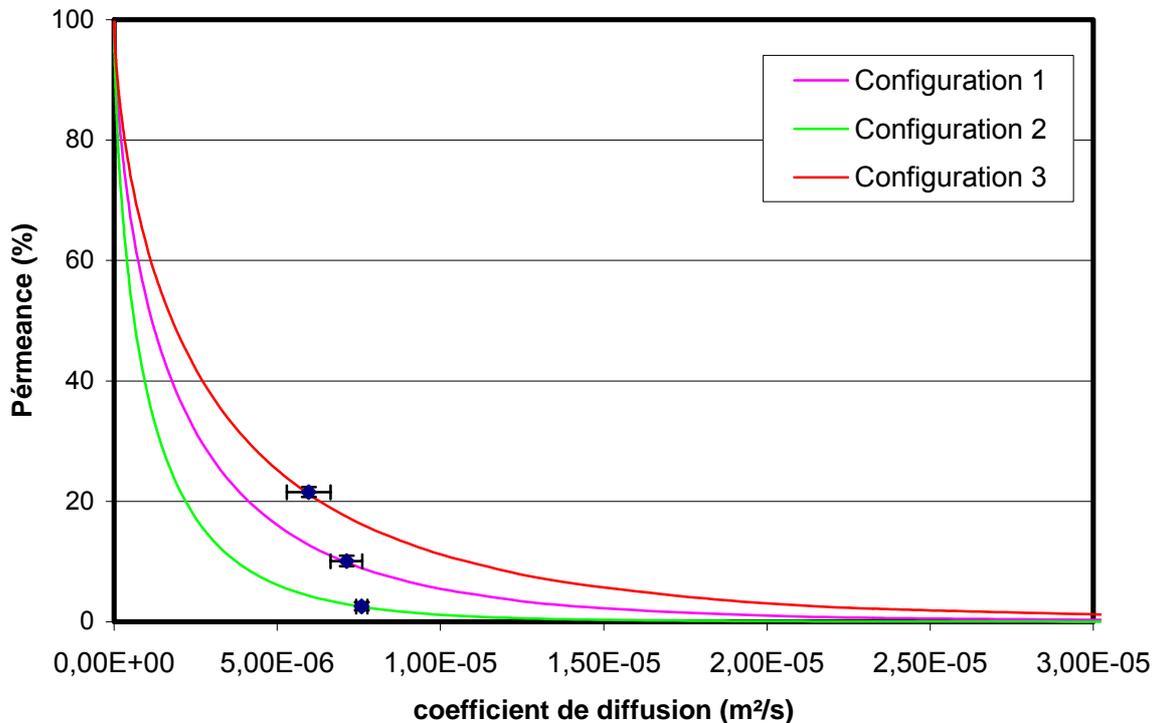


Figure 35 - Coefficient de diffusion du ^{218}Po moyen mesuré avec trois grilles différentes pour un débit volumique de 2,5 l/min et une activité volumique de radon de $1507 \text{ kBq}/\text{m}^3$

La deuxième série de mesure est faite pour un débit volumique de 5 l/min et une activité volumique en radon de 912 kBq/m³. Les résultats sont présentés sur la figure 36.

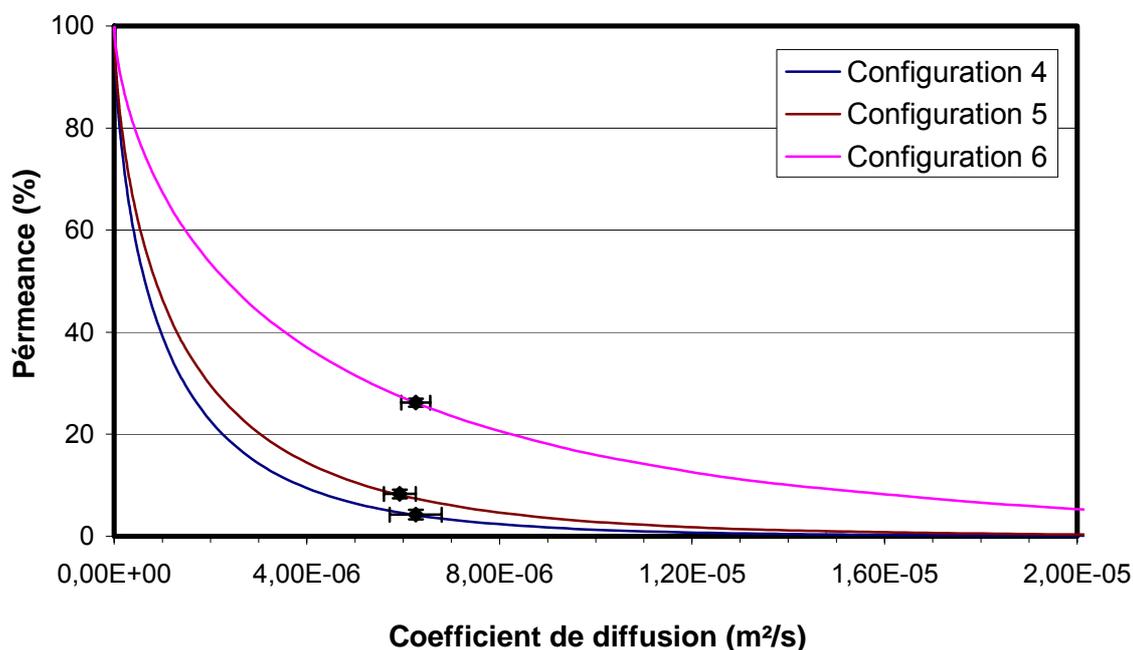


Figure 36 - Coefficient de diffusion du ²¹⁸Po moyen mesuré avec trois grilles différentes pour un débit volumique de 5 l/min et une activité volumique de radon de 912 kBq/m³

Nous déduisons encore une fois que pour un deuxième débit volumique et une autre activité volumique de radon l'unimodalité du coefficient de diffusion du ²¹⁸Po dans notre dispositif expérimental, ceci est bien visible avec les résultats obtenus avec différentes grilles (figure 36).

2.6.3. Discussion et comparaison des résultats

Après avoir présentés les résultats de mesures concernant le coefficient de diffusion du ²¹⁸Po moyen (chargé + neutre) et neutre, nous avons constaté que ces deux coefficients de diffusion sont quasi identiques en fonction de temps de résidence, ceci implique que le coefficient de diffusion des neutres est égal à celui des chargés. Par contre, la théorie montre un facteur 4 entre les deux coefficients de diffusion (éq. 24).

Dans la littérature, plusieurs études ont été effectuées concernant le coefficient de diffusion des descendants du radon. Les résultats récitent des contradictions mais ceci n'est pas étonnant car les conditions expérimentales varient d'une équipe à l'autre.

Nous présentons dans le tableau 16 une étude comparative entre nos valeurs de coefficient de diffusion du ²¹⁸Po moyen et celles de Malet (2000) effectuées avec le même dispositif expérimental (tube de diffusion) mais avec une technique de mesure différente dite « la méthode des deux filtres », en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon.

Tableau 16 - Comparaison des valeurs expérimentales obtenues par J. Malet et R. Abou-Khalil pour le coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon

J. Malet (2000)			R. ABOU-KHALIL (2008)		
Temps de résidence (s)	Activité volumique de radon (kBq/m ³)	D (10 ⁻⁶ m ² /s)	Temps de résidence (s)	Activité volumique de radon (kBq/m ³)	D (10 ⁻⁶ m ² /s)
42	33	4,89	48	46	7,1
68	53	7,51	62	56	6,87
123	95	8,92	124	102	4,34
204	160	9,02	177	184	4,34

Nous observons une différence au niveau de l'évolution des valeurs du coefficient de diffusion moyen. Dans le cas de Malet les valeurs de coefficient de diffusion moyen augmentent avec le temps de résidence. Par contre, dans notre cas on constate une décroissance du coefficient de diffusion moyen en augmentant le temps de résidence. Il faut signaler que toutes les valeurs de coefficient de diffusion sont comprises entre $4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$.

Nous présentons dans le tableau 17 une synthèse bibliographique des valeurs expérimentales du coefficient de diffusion obtenues par différents auteurs pour différentes conditions expérimentales.

Tableau 17 - Récapitulatif des valeurs expérimentales obtenues par différents auteurs pour le coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon

Référence	Temps résidence (s)	Humidité relative (%)	Activité volumique de radon (kBq/m ³)	Gaz porteur	Coefficient de diffusion (10 ⁻⁶ m ² /s)
Raabe (1968)	330	13	555	Air ambiant	4,7
		33		filtré	3,4
Thomas (1970)	0,36 - 66	> 20	296	Air ambiant	8,5
		0		filtré	5,3
Raghnath (1979)	60 - 600	10	370 - 1110	Air propre	8,1 - 6,5
		90			8 - 4,4

En comparant nos résultats du coefficient de diffusion moyen du ^{218}Po à ceux du tableau 17, nous déduisons que dans les conditions expérimentales de Raabe (1968), pour un temps de

résidence de 330 s et des humidités relatives de 13 % et 33 %, les valeurs du coefficient de diffusion sont $4,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $3,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ respectivement. Dans notre cas, pour des temps de résidence de 248 s et une humidité relative de 5,6 %, les valeurs du coefficient de diffusion varient entre $3,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. On constate que dans le cas des expériences de Raabe, le coefficient de diffusion augmente lorsque l'humidité relative diminue. Dans la même logique, pour une humidité relative de 5,6 %, le coefficient de diffusion aura une valeur supérieure à $4,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (H.R 13 %), ce qui implique que notre valeur de $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ se trouve dans l'intervalle des valeurs de Raabe.

Ensuite, dans le cas des conditions de Thomas, pour des temps de résidence allant de 0,36 à 66 s et une humidité relative allant 0 % à des valeurs supérieures à 20 %, le coefficient de diffusion varie entre $5,3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $8,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Nos valeurs de coefficient de diffusion, pour des temps de résidences de 48 et 62 s, varient entre $6,8 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $7,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. En suivant la même logique que dans le cas précédent, les valeurs de coefficient de Thomas augmentent avec l'humidité relative, ceci implique que nos valeurs de coefficient de diffusion pour une humidité relative de 5,6 % sont dans le même intervalle des valeurs de Thomas.

De plus, dans le cas Raghunath pour des temps de résidence allant de 60 à 600 s et une humidité relative de 10 %, le coefficient de diffusion varie de $8,1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ à $6,5 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Dans notre cas, pour des temps de résidence de 62 et 124 s et une humidité relative de 5,6 %, le coefficient de diffusion est de $7,7 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $4,6 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ respectivement. Ceci implique que nos valeurs suivent la même allure que celles de Raghunath, diminuent en augmentant le temps de résidence.

2.7. Conclusion générale

Dans ce chapitre, nous avons abordé expérimentalement deux caractéristiques de la charge électrique des descendants du radon qui sont : la distribution de charge et la charge totale.

Dans le cadre de la distribution de charge, une nouvelle technique dite « de temps de vol » a été utilisée pour mesurer la distribution de charge du ^{218}Po .

Les résultats expérimentaux des deux séries de mesures, faites avec deux sources de ^{226}Ra différentes, ont permis de vérifier le processus de désintégration atomique du ^{222}Rn à l'état fondamental qui produit dans ce cas une majorité de particules de ^{218}Po neutres. Ces résultats, montrent l'influence de la matière sur la charge électrique des atomes de recul. On a remarqué que le dépôt de baryum a neutralisé les particules en réduisant le nombre de charge. Par contre, sans dépôt de baryum, une distribution de charge plus large allant jusqu'à +10 est présente pour le ^{218}Po . Ces résultats peuvent s'appliquer à la fraction attachée des descendants du radon. La charge des aérosols radioactifs (fraction attachée) va non seulement dépendre de la nature de la désintégration (alpha ou bêta), mais aussi, et de façon plus importante, de la matière et de la taille de l'aérosol où les descendants du radon sont attachés. L'influence de la matière et de la taille peut être considérée plus importante dans le cas des aérosols nanométriques, car nos résultats ont montré comment la perte d'énergie (10 -100 keV) dans quelques nanomètres d'épaisseur de matière

émet un haut rendement d'ions secondaires et influence l'état de la charge et en particulier la neutralisation du ^{218}Po dès sa formation.

Nous avons également essayé de mesurer la distribution de charge de la fraction libre des descendants du radon. Cependant les mesures ont montré une large fluctuation des résultats qui n'ont pu être exploités.

Quant à la charge totale, un tube de Zeleny nous a servi à mesurer la charge totale du ^{218}Po en fonction de deux paramètres : le temps de résidence (s) et l'activité volumique de radon (kBq/m^3). Nous constatons que pour un même temps de résidence dans le tube, lorsque l'activité volumique en radon augmente, la fraction chargée apparente du ^{218}Po diminue. Par contre, dans le cas des activités volumiques de radon égales et des temps de résidence différents, la comparaison et l'analyse des données demeurent beaucoup plus compliquées. Afin d'interpréter ces résultats, il est nécessaire de coupler ces résultats à une étude numérique pour en déduire un paramètre beaucoup plus significatif qui est le taux de neutralisation. Ceci fera l'objet du chapitre 4.

Enfin, une dernière expérimentation consistait à mesurer le coefficient de diffusion du ^{218}Po neutre et chargé. Nous avons mesuré le coefficient de diffusion du ^{218}Po en fonction de temps de résidence et de l'activité volumique de radon. Les résultats ont montré la décroissance du coefficient de diffusion en augmentant le temps de résidence. La comparaison de nos résultats avec ceux de la littérature a pu montrer que nos valeurs expérimentales sont du même ordre de grandeur pour des conditions expérimentales quasi proches. Ces mesures vont nous servir dans la partie numérique (chapitre 4) car ils sont constituant des paramètres d'entrée du code de calcul.

CHAPITRE III

3. SIMULATIONS NUMERIQUES

Les équations décrivant le transport par convection-diffusion des descendants à vie courte du radon sont des équations couplées et non linéaires. Leur résolution nécessite donc l'utilisation d'un code de calcul permettant la discrétisation d'équations différentielles non linéaires. Avant d'utiliser ce code de calcul, il est nécessaire de valider divers résultats «tests» obtenus avec un tel code sur ceux que l'on peut obtenir à partir des résolutions analytiques exactes ou approchées des équations. Dans ce chapitre, sont exposés la position du problème, le but de cette étude numérique ainsi que les tests de validation.

3.1. Position du problème

Cette étude numérique entre dans le cadre des travaux sur la charge électrique des descendants du radon et plus précisément sur le taux de neutralisation du ^{218}Po (nombre de particules qui se neutralisent par unité de temps). En effet, une approche consiste à modéliser l'évolution de l'aérosol du ^{218}Po chargé en fonction du taux de neutralisation. Quelques études expérimentales comme celle de Howard et Strange 1994, Malet 2000 et Dankelman 2001, ont permis de déterminer ce taux de neutralisation mais elles montrent une grande disparité dans les résultats.

L'objectif consiste à coupler une étude numérique à nos résultats expérimentaux de la fraction chargée apparente du ^{218}Po pour déterminer un taux de neutralisation pour différentes activités volumiques en radon en se plaçant dans des conditions d'humidité et de gaz environnant constantes.

Nous décrivons pour cela, une équation de convection-diffusion pour la fraction chargée des descendants du radon, à laquelle nous ajoutons des termes sources dus à la production de ^{218}Po par désintégration du radon, et des termes puits dus à la désintégration du ^{218}Po lui-même mais également dus à la neutralisation de cet aérosol chargé. A l'inverse, pour l'équation régissant la fraction neutre du ^{218}Po , les termes sources sont issus de la production radioactive par désintégration du radon, mais également de la neutralisation des aérosols chargés.

Nous allons modéliser l'évolution de la fraction chargée du ^{218}Po dans le dispositif expérimental (tube de diffusion + tube de Zeleny). La concentration du ^{218}Po est nulle à l'entrée du tube cylindrique, ceci grâce à la présence d'un filtre en amont retenant tous les descendants. L'évolution de la concentration du ^{218}Po dans le système est décrite par les équations de transport de masse en régime stationnaire J. Malet *et al.* (2000) :

Pour les aérosols chargés :

$$\nabla(\vec{v}.C_c) = D_c . \Delta C_c + f_c . \lambda_{Rn} . C_{Rn} - \lambda_{Po} . C_c - \lambda_n . C_c \quad (47)$$

Pour les aérosols neutres :

$$\nabla(\vec{v}.C_n) = D_n . \Delta C_n + f_n . \lambda_{Rn} . C_{Rn} - \lambda_{Po} . C_n + \lambda_n . C_c \quad (48)$$

Avec :

- v vitesse du fluide (m/s),
- C_c et C_n concentrations du ^{218}Po chargé et neutre (atome/m³),
- C_{Rn} concentration du ^{222}Rn (atome/m³),
- D_c et D_n coefficients de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre (m²/s),
- f_c et f_n fractions chargée et neutre du ^{218}Po à sa naissance (%),
- λ_{Rn} et λ_{Po} constantes de désintégration radioactive du radon et du polonium (s⁻¹),
- λ_n taux de neutralisation du ^{218}Po (s⁻¹).

La neutralisation du ^{218}Po chargé est prise en compte par un terme puits - $\lambda_n \cdot C_c$ dans l'équation 47 et par un terme source + $\lambda_n \cdot C_c$ dans l'équation 48.

Les concentrations à la sortie, mesurées expérimentalement avec et sans tension, dépendent de plusieurs mécanismes liés aux désintégrations radioactives et aux dépôts électrostatiques dans le tube de Zeleny. La fraction chargée du ^{218}Po pénétrant le tube (équation 49) est définie comme étant le rapport des concentrations du ^{218}Po avec et sans tension :

$$f_{\text{chrg}}^{\text{(num)}} = \frac{C_{\text{Po}(ss.E)} - C_{\text{Po}(E)}}{C_{\text{Po}(ss.E)}} \quad (49)$$

Où $C_{\text{Po}(E)}$ et $C_{\text{Po}(ss.E)}$ sont respectivement les concentrations pénétrantes du ^{218}Po avec et sans champ électrique.

Ces équations seront résolues ultérieurement par des modélisations numériques (CASTEM 2000) afin de comparer la fraction chargée mesurée expérimentalement et la fraction chargée numérique pour différentes conditions expérimentales. Ceci nous permettra de calculer un taux de neutralisation du ^{218}Po pour chacune de ces conditions. Les essais sont réalisés en variant deux paramètres : l'activité volumique en radon et le temps de résidence dans le tube.

3.2. Présentation du code de calcul CASTEM 2000

CASTEM 2000 est un code de calcul pour l'analyse de structure par la méthode des éléments finis. Ce code a été développé par le Département Mécanique et Technologique (DMT) du Commissariat français à l'Energie Atomique (CEA). Le développement de CASTEM 2000 entre dans le cadre d'une activité de recherche dans le domaine de la mécanique dont le but est de définir un instrument de haut niveau, pouvant servir de support pour la conception, le dimensionnement et l'analyse de structures et de composants, aussi bien dans le domaine du nucléaire que dans le secteur industriel classique. Dans cette optique, CASTEM 2000 intègre non seulement les processus de calculs proprement dits mais également les fonctions de construction du modèle (pré-processeur) et les fonctions de traitement des résultats (post-traitement).

3.2.1. Organisation d'un calcul

Une analyse générale effectuée à l'aide de la méthode des éléments finis peut se scinder en quatre grandes étapes :

1. Le choix de la géométrie et du maillage :

- définition des points, lignes, surfaces et volumes.

2. La définition du modèle mathématique :

- définition des données caractérisant le modèle (formulation : mécanique, thermique, fluide, etc...),
- définition des propriétés matérielles (constantes d'élasticité, masse volumique, etc...),
- définition des conditions aux limites,
- conditions initiales.

Le code CASTEM 2000 dispose d'un certains nombres d'opérateurs élémentaires permettant la discrétisation des équations étudiées. Ce sont :

- l'opérateur CONV discrétise le terme de convection,
- l'opérateur DIV discrétise la divergence d'un vecteur,
- l'opérateur GRAD discrétise le gradient d'un scalaire,
- l'opérateur DEBIT discrétise l'intégrale d'une variable sur un objet géométrique,
- l'opérateur DFDT discrétise une dérivée temporelle,
- ...

Les équations composées à partir de ces différents opérateurs peuvent être résolues, selon l'option choisie, à l'aide de schémas numériques implicites, semi-implicites ou explicites. L'équation de diffusion étant généralement résolue à l'aide d'un schéma implicite, nous choisissons de résoudre toutes nos équations avec un tel schéma.

3. Résolution du problème discrétisée :

- application des conditions aux limites,
- résolution du système d'équations.

4. Analyse et post-traitement des résultats.

3.2.2. Géométrie du système et maillage

Dans la plupart des pré-processeurs des codes de calcul par éléments finis, le modèle géométrique est créé en deux étapes : dans un premier temps, la définition de la géométrie par des éléments géométriques de base (points, lignes, surfaces, volumes), puis, dans un second temps, la génération du maillage à partir des géométries créées. Dans CASTEM 2000, un objet géométrique n'existe que sous forme discrétisée. La discrétisation du domaine en éléments s'effectue au moment de la définition de la géométrie. Les principaux opérateurs géométriques qui créent des objets de type MAILLAGE sont : points, lignes, surfaces et volumes. La démarche générale est la suivante :

- construction de points,
- construction de lignes à partir de points,
- construction de surfaces à partir de lignes,
- construction de volumes à partir de surfaces.

Dans notre cas, la géométrie du dispositif expérimental a été définie en suivant la même démarche. Le dispositif expérimental simulé est rappelons-le, composé d'un tube de diffusion cylindrique (longueur 192,5 cm, diamètre 8 cm) auquel nous avons ajouté un tube de Zeleny, ce dernier étant un tube cylindrique (longueur 7,5 cm, diamètre 8 cm) constitué d'une électrode centrale et son support. L'électrode centrale cylindrique (longueur 3,2 cm, diamètre 0,6 cm) reliée à un générateur de haute tension va nous servir à collecter les descendants du radon chargé. En sortie du système (tube de diffusion + tube de Zeleny), un cône suivi d'un tube cylindrique ont été placés afin d'adapter la sortie du tube de Zeleny au porte-filtre pour pouvoir collecter les descendants du radon. Le maillage est réalisé en deux dimensions, en spécifiant dans les calculs une symétrie par rapport à l'axe du tube. La densité axiale des mailles est régulière sur toute la longueur du tube (17,5 mm/maille), sauf pour l'électrode centrale où le maillage est plus fin (2mm/maille). La densité radiale des mailles générée varie entre (0,8 mm/maille) à l'axe et (0,6 mm/maille) près de la paroi et sur l'électrode centrale, afin de prendre en compte correctement les différents phénomènes physiques dans la zone proche des parois. La figure 37 montre la géométrie du système et le maillage utilisé. Dans les calculs que nous effectuerons, il s'agira autant que possible d'affiner le maillage jusqu'à ce que la valeur du paramètre calculé ne varie plus d'un maillage à un autre plus fin. En effet, les tests préliminaires de validation montrent des zones de turbulence dans la géométrie, ce qui nous permet de modifier cette dernière. Le post traitement graphique nous permet d'obtenir des profils de vitesse et de concentration et leurs répartitions vectorielles dans le dispositif expérimental.

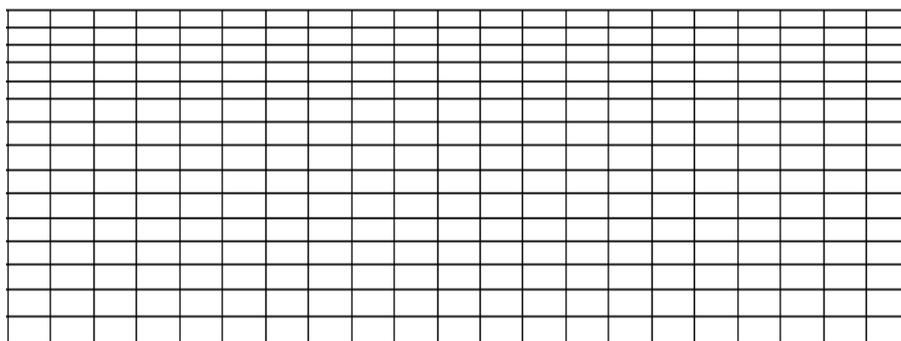


Figure 37 - Exemple de maillage du tube cylindrique : le haut de la figure représente la paroi du tube, le bas de la figure représente l'axe du tube ; maille axiale : 17,5 mm ; maille radiale à l'axe : 0,8 mm ; maille radiale à la paroi : 0,6 mm

3.3. Définition du modèle mathématique

L'objectif de cette partie est de définir notre modèle mathématique qui est composé de plusieurs équations analytiques définissant les divers paramètres dans notre dispositif expérimental.

3.3.1. Profil de vitesse, régime laminaire, écoulement établi

Nous cherchons dans cette partie à identifier analytiquement le premier paramètre des équations 47 et 48 qui représente le champ de vitesse dans notre dispositif expérimental. La vitesse d'un fluide dans un tube dépend d'un nombre de Reynolds. Ce dernier est un nombre sans dimension utilisé en mécanique des fluides pour caractériser un écoulement, et, en particulier, la nature de son régime (laminaire, transitoire, turbulent etc. ...).

Le nombre de Reynolds s'énonce de la façon suivante :

$$Re = \frac{2.v.R}{\nu} \quad (50)$$

Avec :

v vitesse du fluide (m/s),

R rayon du cylindre (m),

ν viscosité cinématique du fluide : $\nu = \eta/\rho$ (m²/s),

η viscosité dynamique du fluide (Pa.s),

ρ masse volumique du fluide (kg/m³).

Les équations du profil de vitesse analytique dans un tube cylindrique sont calculées à partir de l'équation de Navier-Stokes :

Dans le cas d'un profil plat :

$$V = V_{\text{moy}} = \frac{\nu \cdot Re}{2R} \quad (51)$$

Dans le cas d'un profil parabolique :

$$V = V_{\text{max}} \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (52)$$

Avec : r distance radiale dans le tube cylindrique.

Conditions aux limites :

Dans notre cas, en entrée et en sortie du tube cylindrique, on impose un profil de vitesse plat, qui correspond expérimentalement au filtre placé en amont et en aval du tube.

Les conditions aux limites associées à l'équation 52 sont :

$$V_r(r = R, z) = V_z(r = R, z) = 0 \quad (53)$$

Où $r = R$ à la paroi, V_r et V_z étant respectivement les composantes radiales et axiale de la vitesse. La vitesse est nulle aux parois et est maximale au milieu du cylindre.

Le profil de vitesse en sortie du tube sera parabolique à condition que la longueur d'établissement de ce dernier soit inférieure à la longueur du tube. La longueur d'établissement du profil de vitesse dans le tube cylindrique est :

$$L_e = 2a.R.Re \quad (54)$$

Où a est un coefficient variant de 0,03 à 0,075 (un récapitulatif des valeurs de a obtenues par différents auteurs est présenté par Ingham (1984)), R rayon du cylindre (m) et Re le nombre de Reynolds.

La longueur du tube cylindrique est de 2 m et le rayon de 4 cm, donc le profil de vitesse sera établi pour un nombre de Reynolds inférieur à 500. Expérimentalement, tous les débits volumiques utilisés correspondant à des nombres de Reynolds inférieurs à 500, on se situe donc dans le cas d'un écoulement laminaire ($Re < 2000$).

3.3.2. Profil de concentration

Après avoir présenté les équations analytiques du profil de vitesse dans le cas de notre géométrie, nous nous intéressons dans cette partie à introduire des aérosols non radioactifs et à présenter les équations analytiques du profil de concentration utilisées dans notre code. D'une façon générale, l'équation de transport de masse d'un aérosol par convection-diffusion s'écrit (Rohsenow et Choi 1965) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla (\vec{v} \cdot c) = D \cdot \Delta c \quad (55)$$

En se plaçant en régime stationnaire ($\frac{\partial c}{\partial t} = 0$), où nous considérons qu'un équilibre est atteint, nous obtenons donc une équation (équation 55) qui fait partie des deux équations 47 et 48.

Soit une concentration en amont en aérosol C_0 , transportée par un flux d'air advectif dans un tube cylindrique en écoulement laminaire. On suppose que la décroissance de cette concentration est due au seul processus de perte par diffusion. Le champ de concentration est obtenu en résolvant l'équation de transport de masse (équation 55).

Conditions aux limites :

Les conditions aux limites de l'équation 55 sont :

$$C(r = R, z) = 0 ; C(r, z = 0) = C_0 \quad (56)$$

Où $r = R$ à la paroi, $z = 0$ à l'entrée du tube cylindrique.

3.3.3. Vitesse de dérive des aérosols due au champ électrique

Afin de simuler le cas réel de l'expérimentation et la collecte électrostatique des aérosols chargés, l'équation analytique utilisée dans notre code de calcul et permettant le calcul du champ électrique E entre l'électrode et la paroi du tube de Zeleny est donnée par :

$$\vec{E} = -\vec{\nabla}V_{pot} \quad (57)$$

Où V_{pot} est le potentiel obtenu en résolvant l'équation suivante :

$$\nabla V_{pot} = 0 \quad (58)$$

Conditions aux limites :

Les conditions limites aux parois sur le champ scalaire V_{pot} imposent un potentiel U_{el} sur l'électrode, et un potentiel nul sur les parois du tube de diffusion. Pour le calcul des concentrations en ^{218}Po neutre, on impose une concentration nulle sur toutes les parois (tube et électrode). Pour le calcul des concentrations en ^{218}Po chargé, on impose une concentration nulle sur les parois du tube, le dépôt du ^{218}Po chargé sur l'électrode n'étant pas dû à la diffusion.

La vitesse limite de dérive des aérosols due au champ électrique dans un gaz au repos s'écrit :

$$\vec{V} = Z.E \quad (59)$$

Où Z représente la mobilité électrique d'un aérosol (équation 28 page 34).

3.3.4. Modèle mathématique

Dans cette partie nous modélisons l'évolution temporelle de l'aérosol ^{218}Po dans le tube. On considère deux aérosols de ^{218}Po , l'un neutre, de coefficient de diffusion D_n , et l'autre chargé de coefficient de diffusion D_c . Nous proposons, en tant que paramètre d'entrée du code, que 88 % des atomes de ^{218}Po formés à partir de la désintégration du radon sont monochargés à leur naissance, le reste des atomes du ^{218}Po étant neutre (wellisch, 1913 et Porstendörfer 1979).

Couplée aux expériences de mesures de la fraction chargée apparente (chapitre 2), une telle étude numérique est un outil permettant la détermination de la constante de neutralisation du ^{218}Po ; ce sujet fera l'objet du chapitre 4.

3.4. Validations

L'objectif de cette partie est de valider les calculs de différents phénomènes effectués avec CASTEM 2000 sur les théories analytiques citées dans la partie précédente. Toutes les validations présentées dans la partie suivante sont des validations sur les différents termes des équations ou sur les différents phénomènes mis en jeu dans notre problème. Les validations sont faites dans la géométrie présentée dans le paragraphe 3.2.2.

3.4.1. Profil de vitesse, régime laminaire, écoulement établi

Les comparaisons du profil de vitesse numérique effectuées avec CASTEM 2000 et du profil de vitesse analytique sont effectuées dans le cas d'un écoulement laminaire ($Re < 2000$).

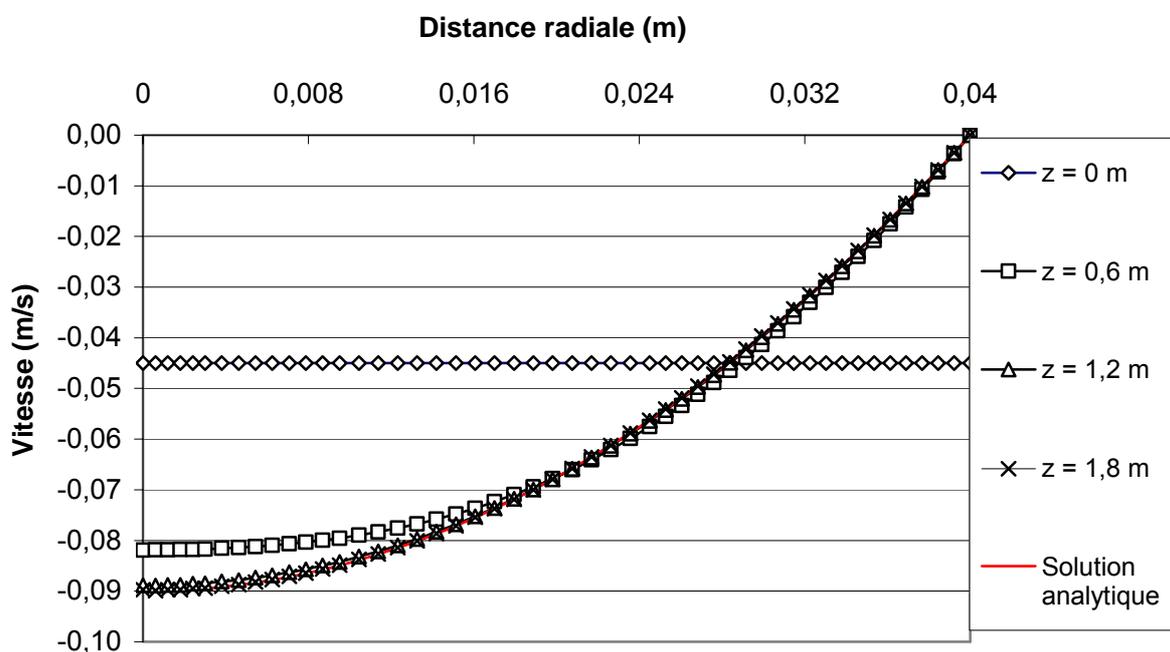


Figure 38 - Etablissement du profil parabolique des vitesses dans un tube ; $R = 0,04$ m ; $Re = 240$.
Comparaison entre les calculs numériques effectués avec CASTEM 2000 et le profil parabolique obtenu avec la solution analytique (courbe sans marque en rouge) pour $z = 1,8$ m

Nous observons sur la figure 38, l'évolution axiale du profil de vitesse dans le tube. Les valeurs des vitesses (figure 38) sont négatives pour être cohérent avec la direction de l'axe Z de l'écoulement de l'air dans le dispositif expérimental. Pour $Z = 0$ m (en entrée du tube), le profil de vitesse est plat. Nous vérifions que le profil des vitesses s'établit à la distance L_e , pour un Reynolds de 240 la longueur d'établissement du profil de vitesse est de 0,96 m. On remarque que le profil n'est pas établi pour $z = 0,6$ m, distance inférieure à L_e , ce qui n'est pas le cas pour $z = 1,2$ m et 1,8 m. Nous pouvons donc considérer que le code de calcul CASTEM 2000 prend bien en compte le phénomène d'établissement du régime parabolique des vitesses.

3.4.2. Profils de concentration

En premier lieu, on teste l'évolution de la concentration en fonction de la distance axiale (z) du tube pour un aérosol non radioactif.

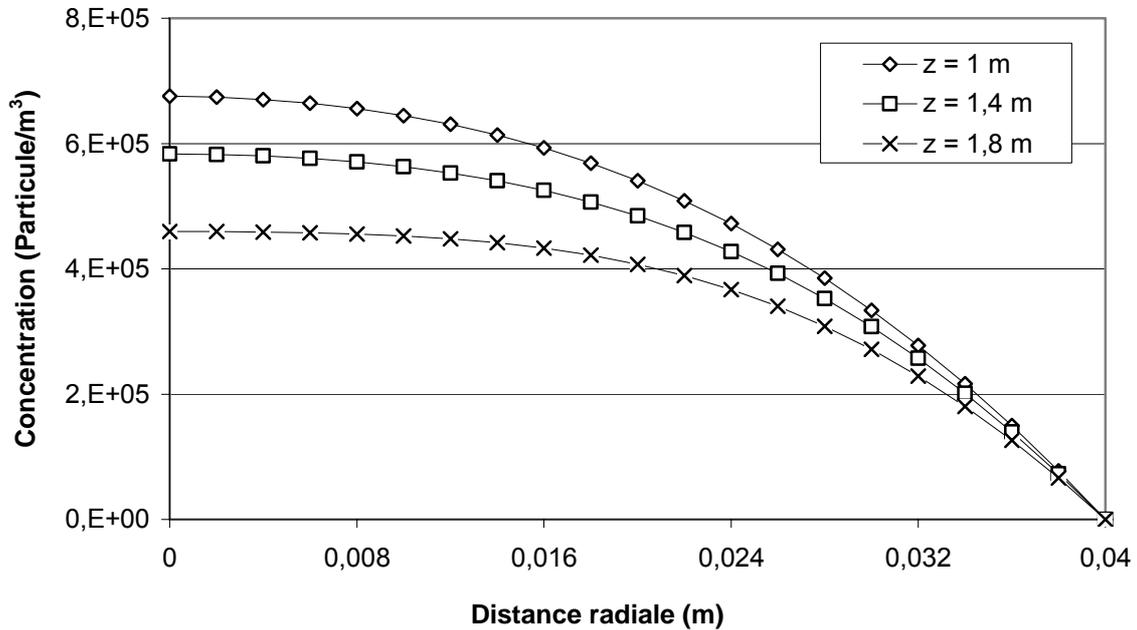


Figure 39 - Evolution du profil radial de concentration des aérosols en fonction de la distance axiale dans le tube ; $R = 0,04$ m ; $Re = 240$ et $D = 1,5 \cdot 10^{-5}$ m²/s

Dans la figure 39, nous représentons les évolutions axiales des profils radiaux de concentration dans le tube. Le gradient de concentration entre le centre du tube et la paroi exprime le flux de particules qui migrent par diffusion et se déposent sur la surface interne du tube. En second lieu, on teste l'évolution de la concentration des aérosols en fonction de leur coefficient de diffusion.

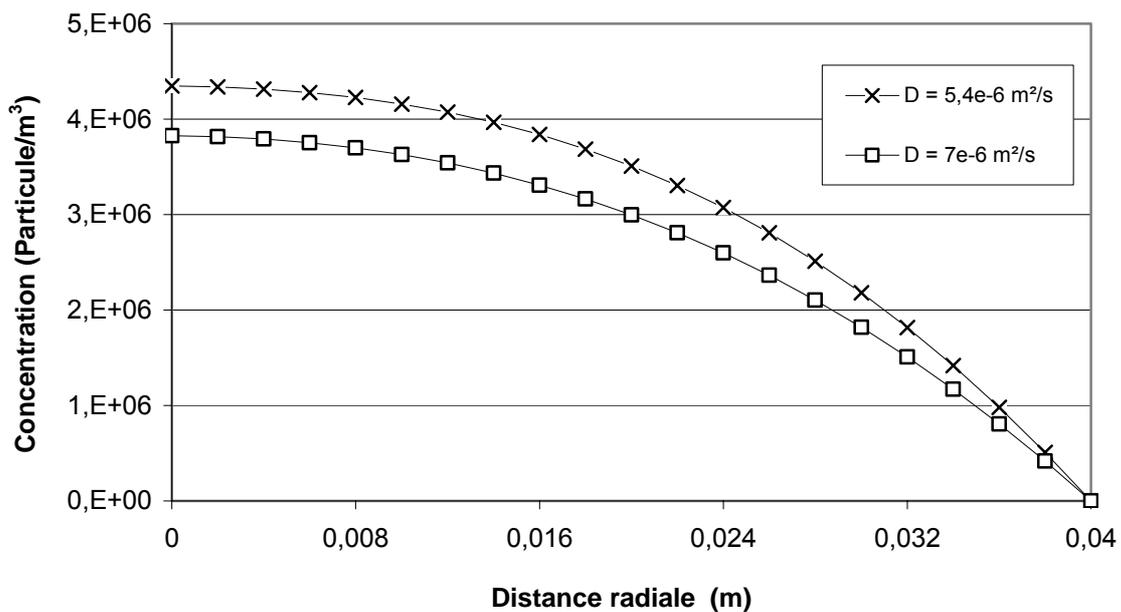


Figure 40 - Profil radial de concentration des aérosols dans un tube pour différents coefficients de diffusion ; $R = 0,04$ m ; $Re = 100$; $z = 2$ m

Dans la figure 40 nous représentons les profils radiaux de concentration en aérosols pour différents coefficients de diffusion. Plus l'aérosol est diffusif plus le flux de particules vers la paroi ($D \cdot \bar{\nabla} c$) sera important. On retrouve bien le fait que la fraction déposée dans un tube en régime laminaire et établi est plus importante pour un aérosol plus diffusif.

Après avoir validé le profil de concentration pour les aérosols non radioactifs en fonction de plusieurs paramètres, la partie suivante va traiter le cas des aérosols radioactifs.

Comparaison entre aérosols avec et sans formation et disparition en vol

La différence évidente entre les évolutions axiales des profils radiaux de concentration dans un cas où il n'y a pas de formation d'aérosols en vol, et dans le cas contraire, réside dans le fait que la concentration des aérosols décroît quand la distance à l'entrée du tube augmente (perte par dépôt), tandis que celle des descendants du radon croît avec la distance au filtre amont, puisqu'il se forme en vol par désintégration de l'élément père.

Une autre différence, plus intéressante, concerne l'allure de ces profils de concentration (Malet *et al.* 1995a). Nous observons, en effet deux types de profils de concentration pour les descendants à vie courte du radon (figure 41), dépendant du nombre de Peclet.

$$P e = \frac{v \cdot d_e}{D} \quad (60)$$

Avec : d_e distance caractéristique d'un écoulement (m).

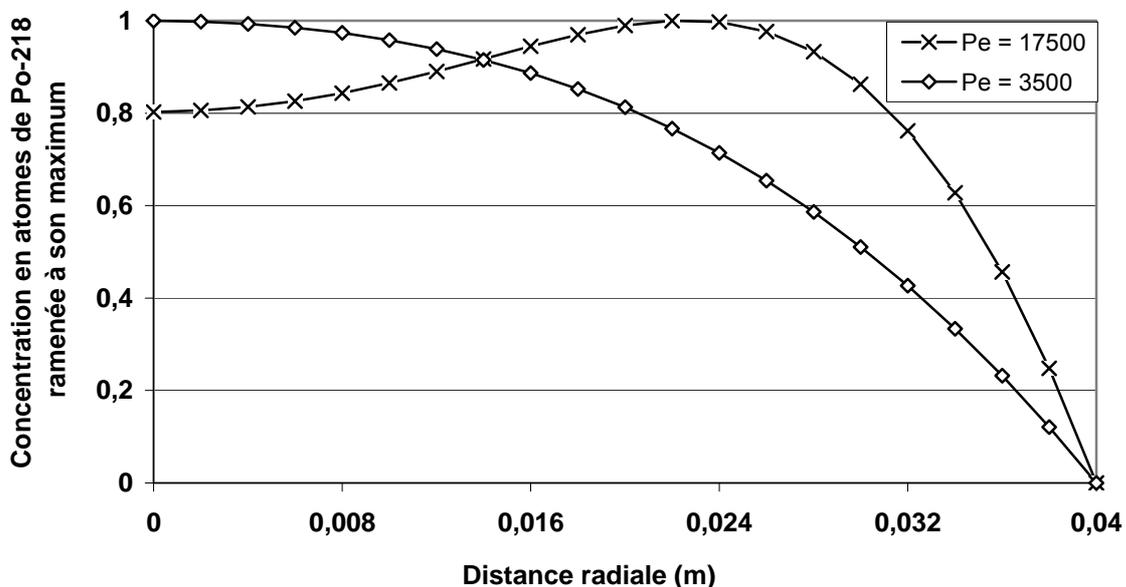


Figure 41 - Profil radial de concentration du ^{218}Po pour différents nombres de Péclet ;
 $R = 0,04 \text{ m}$; $z = 1 \text{ m}$; $D = 5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$

- Aux faibles valeurs du nombre de Péclet, c'est-à-dire quand le phénomène de diffusion l'emporte sur le phénomène d'advection : les profils de concentration des descendants du radon ont globalement la même allure, en forme de cloche, que les profils radiaux de concentration en aérosols (figure 41).

- Aux valeurs du nombre de Péclet importantes, c'est-à-dire quand le phénomène d'advection l'emporte sur le phénomène de diffusion : le profil radial de concentration des descendants du radon se creuse au centre du tube, là où il était maximal pour le cas où il n'y a pas de formation en vol. Il y a donc accumulation de descendants du radon dans la région proche de la paroi. En effet, comme le profil des vitesses est parabolique, la vitesse est alors maximale au centre du tube. Les descendants du radon situés au centre du tube ont donc un temps de séjour dans le tube inférieur à celui des descendants du radon situés dans la zone proche de la paroi. Il se forme donc moins de descendants au centre du tube. Quand le phénomène de diffusion est très faible devant le phénomène d'advection, les particules n'ont pas le temps de migrer par diffusion vers le centre du tube pour combler ce déficit. Il est également intéressant de noter que dans ce cas (grand nombre de Péclet), le temps de séjour aéraulique est souvent court. On peut alors être tenté de négliger la radioactivité du ^{218}Po . C'est justement dans ce cas que le profil de concentration en ^{218}Po est différent de celui des aérosols. On voit donc que, bien au contraire, on ne peut négliger la radioactivité de ces éléments.

Profil de concentration du ^{218}Po

Il s'agit ici de valider un profil de concentration du ^{218}Po obtenu dans un cas particulier. Sur la figure 42, nous comparons les profils de concentration en ^{218}Po à une longueur de tube très grande devant son rayon, calculés par la relation analytique de Berezhnoi et Kirichenko (1964) (équation 61) et par le code CASTEM 2000. L'équation 61 représente le profil de concentration du ^{218}Po lorsque celui-ci atteint un équilibre entre sa formation et sa disparition par dépôt. La figure 42 montre la bonne prise en compte par le code de CASTEM 2000 de la formation en vol ^{218}Po .

$$C_{\text{inf}} = \frac{\lambda_0 C_0 R^2}{4D} \left(1 - \frac{r^2}{R^2}\right) \quad (61)$$

Avec :

C_{inf} concentration en ^{218}Po dans un tube cylindrique de longueur infinie,

λ_0 cte de désintégration du radon (s^{-1}),

C_0 concentration en radon (atome/m^3).

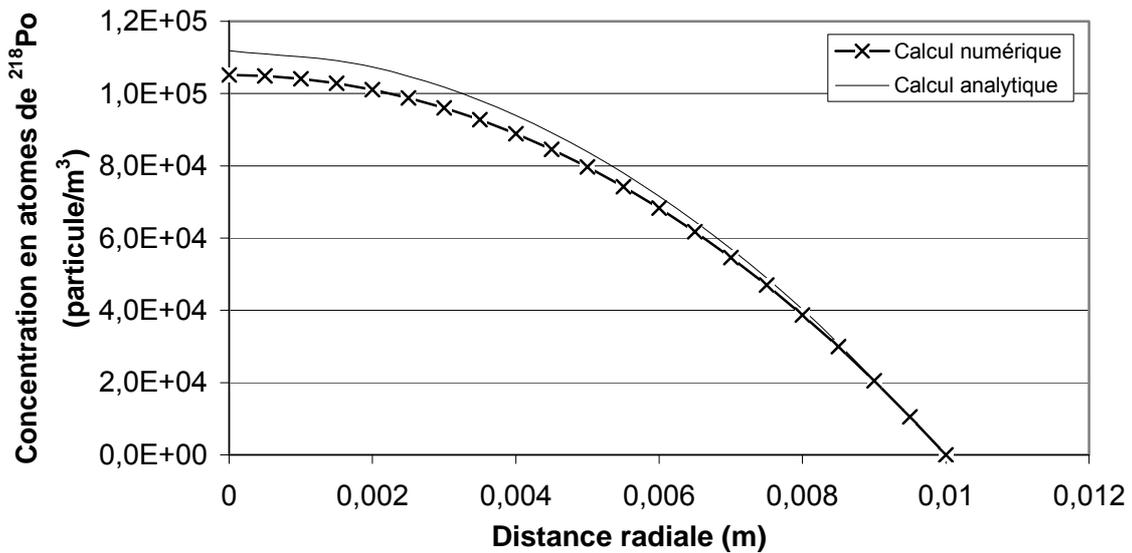


Figure 42 - Profil radial de concentration en ^{218}Po . Comparaison entre le calcul numérique obtenu avec CASTEM 2000 (croix) et le calcul analytique de Bereznoi et Kirichenko (1964) (courbe sans marque) ; $z = 2 \text{ m}$; $R = 0,01 \text{ m}$; $Re = 500$; $D = 1,5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$

Comparaison des profils de concentration des trois descendants du radon

Sur la figure 43, nous comparons les profils radiaux de concentration des trois premiers descendants du radon. On remarque que :

- Le gradient de concentration à la paroi est du même ordre de grandeur pour les trois descendants du radon.
- Le phénomène de déficit en particules au centre du tube est plus marqué pour les éléments fils que pour les éléments pères. L'accumulation relative des particules près de la paroi est donc plus importante pour les éléments fils que pour les éléments pères. Ceci tendrait à montrer que la fraction déposée des éléments fils est plus importante que celle des éléments pères.

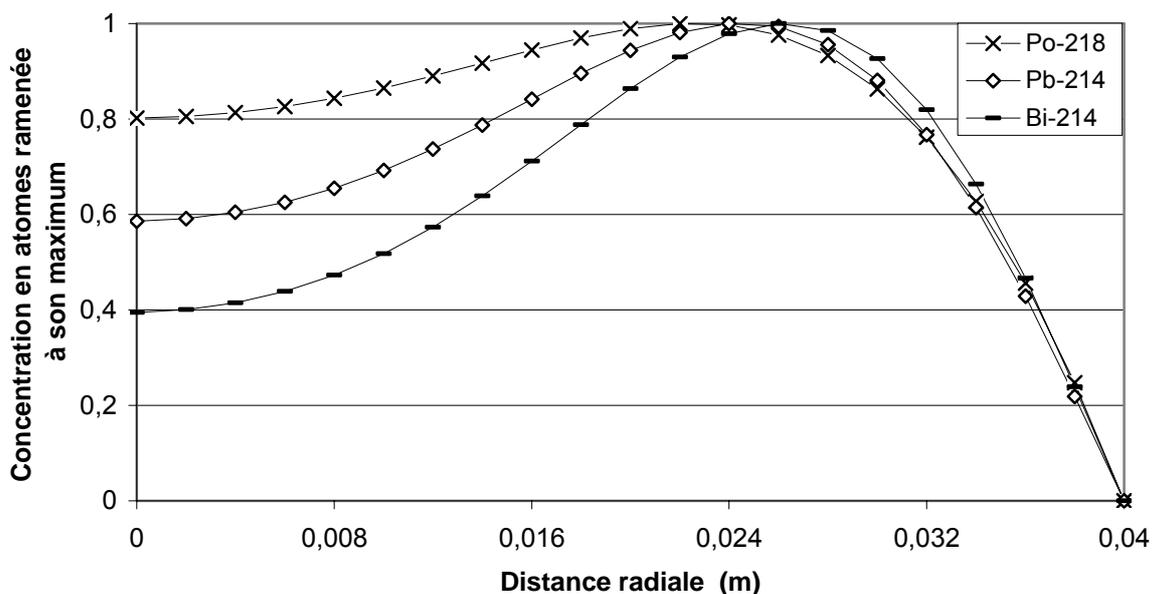


Figure 43 - Profil radial de concentration des trois premiers descendants du radon ramenées à leur maximum ; $R = 0,04 \text{ m}$; $z = 1 \text{ m}$; $D = 5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$; $Re = 500$

3.4.3. Fractions pénétrantes

Après avoir validé le profil de vitesse et de concentration dans la partie précédente. Dans cette partie, on s'intéresse à la fraction pénétrante des descendants du radon qui est présentée par l'équation suivante :

$$f_{pen} = 1 - f_{dep} \quad (62)$$

Avec : f_{dep} fraction déposée d'un aérosol dans une canalisation cylindrique.

La fraction déposée peut être déterminé en résolvant le champ de vitesse $v(r, z)$ et le champ de concentration $C(r, z)$. Ces deux paramètres ont été résolus dans la partie précédente.

Le flux de masse déposée est le gradient de concentration vers les parois $\nabla(C)_{(r=R, z)}$ et le flux de masse en sortie est la concentration des particules en aval du tube. Ces deux inconnus peuvent être résolus par le code de calcul afin de déduire la fraction pénétrante. Ceci nécessite en premier lieu des tests de validation qu'on développera dans la partie suivante.

Validation de la fraction pénétrante dans le cas d'un aérosol non radioactif

De nombreux auteurs résolvent analytiquement l'expression de la fraction déposée des aérosols dans un tube cylindrique en écoulement laminaire, en régime stationnaire et établi, c'est-à-dire où le profil des vitesses est parabolique dès l'entrée du tube.

Ces expressions sont fonction du nombre adimensionnel α et s'écrivent :

$$f_{pen} = \sum_n^{\infty} A_n \cdot \exp(-B_n \cdot \alpha) \quad (63)$$

Avec :

$$\alpha = \frac{\pi \cdot D \cdot L}{Q} \quad (64)$$

Où D , L , Q sont respectivement le coefficient de diffusion de l'aérosol, la longueur et le débit volumique dans le tube.

A_n et B_n sont des coefficients qui varient très peu selon les auteurs,

Pour la validation de la fraction pénétrante d'aérosols dans notre travail, nous retiendrons l'expression d'Ingham (1975a) :

$$f_{pen} = 0,819 \cdot \exp(-3,6575 \cdot \alpha) + 0,0976 \cdot \exp(-22,305 \cdot \alpha) + 0,0325 \cdot \exp(-57 \cdot \alpha) + 0,0509 \cdot \exp(-49,9634 \cdot \alpha) \quad (65)$$

Pour calculer numériquement la fraction pénétrante des aérosols dans un tube dans lequel on introduit une concentration entrante initiale en aérosols C_{ini} , on utilise l'équation suivante :

$$f_{pen} = \frac{\varphi_{pen}}{\varphi_{ent}} \quad (66)$$

Avec : φ_{pen} flux de masse dans la section de sortie du tube,

φ_{ent} flux de masse dans la section d'entrée du tube.

La validation s'effectue par comparaison de la valeur numérique de la fraction pénétrante avec la valeur analytique obtenue par l'expression d'Ingham (équation 65). Nos résultats sont présentés à la figure 44 pour différents nombre de Reynolds et un coefficient de diffusion de $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$. Les résultats numériques sont en accord avec l'expression d'Ingham.

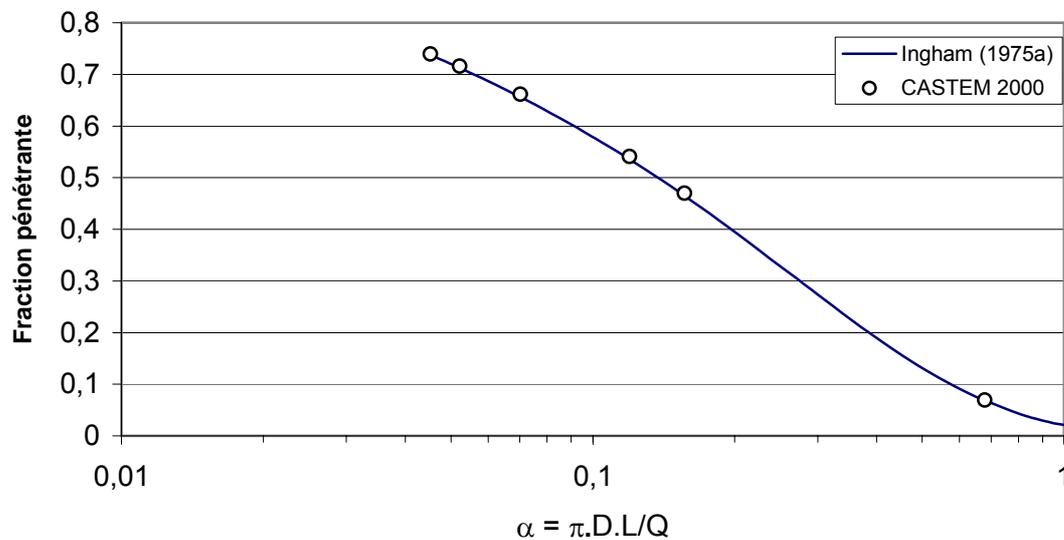


Figure 44 - Comparaison du profil de pénétration d'Ingham et celui de CASTEM 2000 pour

$$18 < Re = \frac{2Q}{\pi \cdot R \cdot v} < 800, L = 2 \text{ m et } D = 5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$$

Validation du calcul de la fraction pénétrante dans le cas d'un aérosol radioactif

Dans le cas des aérosols radioactifs à vie courte, il est nécessaire de prendre en compte l'évolution rapide de la concentration de ces particules due à leur désintégration radioactive. Cette évolution est présente dans les équations 47 et 48, dans lesquelles les termes $\lambda_{Rn} \cdot C_{Rn}$ et $\lambda_{Po} \cdot C_{Po}$ montrent la formation et la disparition du ^{218}Po dans le système.

Berezhnoi et Kirichenko (1964), Tan (1969) et Ingham (1975b) déterminent la fraction pénétrante du ^{218}Po en résolvant analytiquement l'équation de transport de masse :

$$\nabla(\vec{v} \cdot C_{Po}) = D_{Po} \cdot \Delta C_{Po} + \lambda_{Rn} \cdot C_{Rn} \quad (67)$$

Où $\lambda_{Rn} \cdot C_{Rn}$ est un terme source constant, et v est donné pour le régime établi. Les conditions aux limites de ce problème sont alors les suivantes :

$$\begin{aligned} V_r(r = R, z) = V_z(r = R, z) = 0 \\ C(r = R, z) = 0 ; C(r, z = 0) = 0 \end{aligned} \quad (68)$$

Par ailleurs, on remarque que la désintégration radioactive du ^{218}Po n'est ici pas prise en compte.

L'expression de la fraction pénétrante donnée par Berezhnoi et Kirichenko (1964) est :

$$f_{pen} = \frac{4}{\alpha} (0,03973 \cdot (1 - \exp(-3,6575 \cdot \alpha)) + 0,001499 \cdot (1 - \exp(-22,305 \cdot \alpha)) + 0,0002716 \cdot (1 - \exp(-57 \cdot \alpha)) + 0,000169) \quad (69)$$

La validation de la fraction pénétrante du ^{218}Po pour un $0,1 < \alpha < 1$ et $18 < \text{Re} = \frac{2Q}{\pi \cdot R \cdot \nu} < 1200$, est en accord avec l'équation analytique.

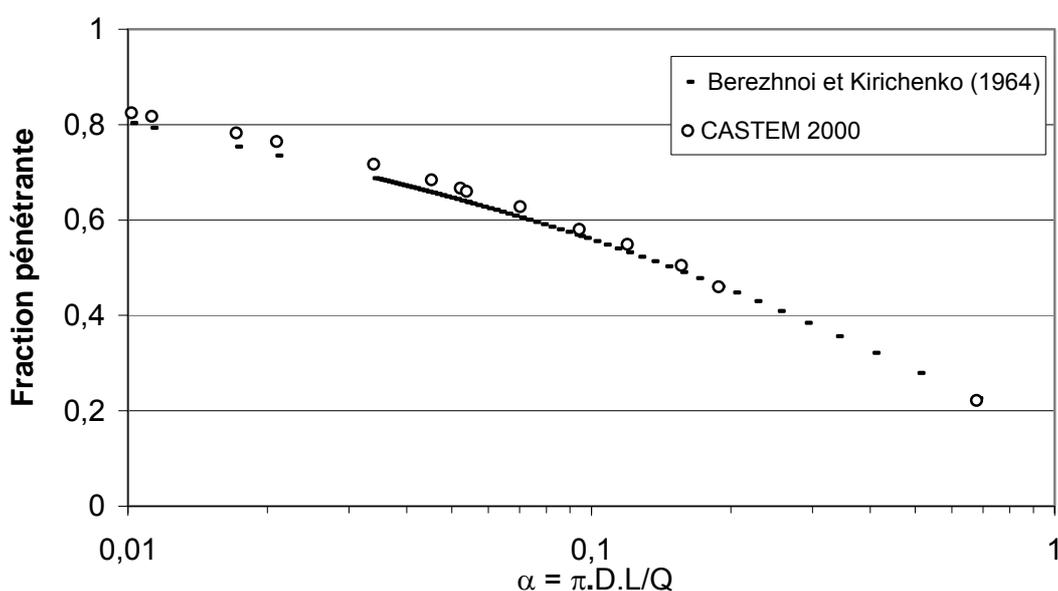


Figure 45 - Fraction pénétrante du ^{218}Po dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Berezhnoi et Kirichenko (1964)

Les fractions pénétrantes du ^{214}Pb et ^{214}Bi obtenues avec le code CASTEM 2000 en prenant en compte la désintégration radioactive sont présentés dans les figures 46 et 47. Ces résultats numériques sont confrontés aux équations analytiques de J. Malet (1997). Ils sont satisfaisants et montrent un bon accord avec les équations analytiques pour les deux descendants ^{214}Pb ^{214}Bi .

Les expressions de la fraction pénétrante donnée par Malet (1997) sont :

Pour le ^{214}Pb :

Pour $0,01 < \alpha < 1$

$$f_{pen(Pb-214)} = \frac{5,7}{\alpha} (0,04184 \cdot (1 - \exp(-3\alpha)) + 0,0012 \cdot (1 - \exp(-27,5\alpha))) \quad (70)$$

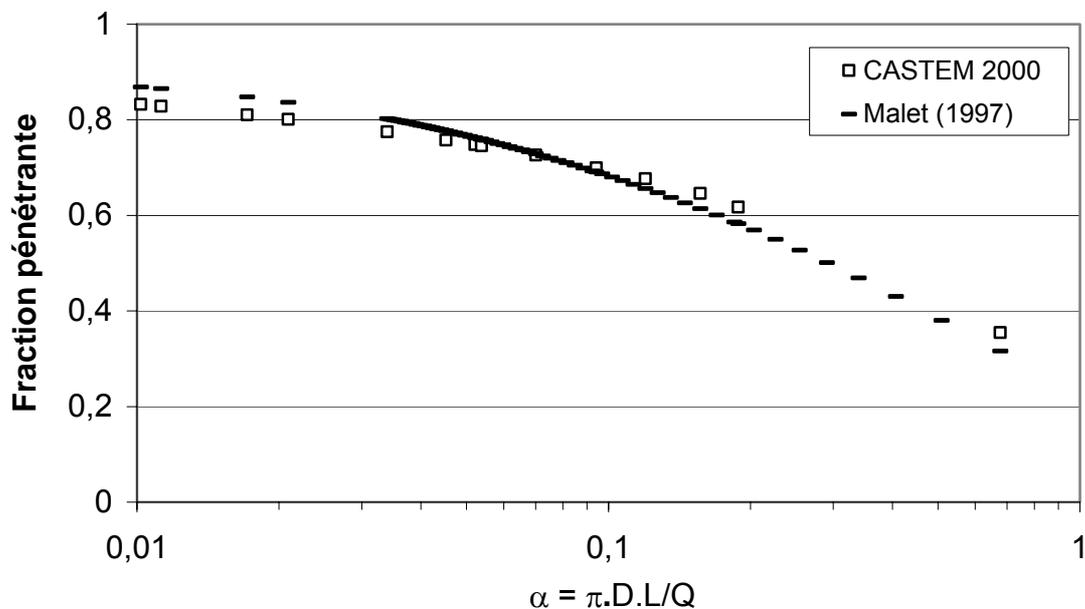


Figure 46 - Fraction pénétrante du ^{214}Pb dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Malet (1997)

Pour le ^{214}Bi :

Pour $0,01 < \alpha < 0,4$

$$f_{pen(Bi-214)} = 0,8.(1 - \arctan \alpha) \quad (71)$$

Pour $0,4 < \alpha < 0,1$

$$f_{pen(Bi-214)} = \frac{5,7}{\alpha} (0,04184(1 - \exp(-3\alpha)) + 0,0012(1 - \exp(-27,5\alpha))) \quad (72)$$

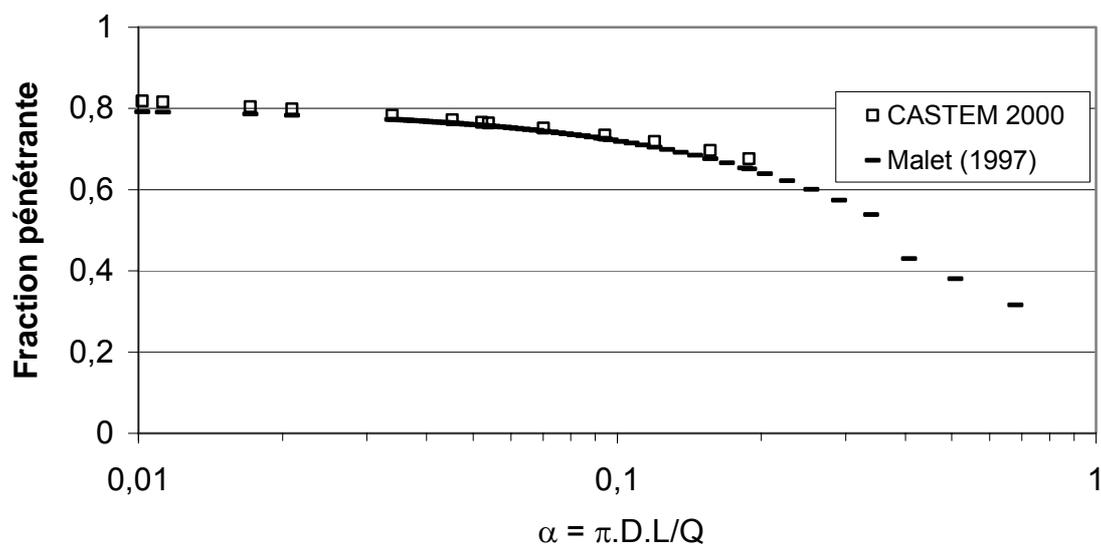


Figure 47 - Fraction pénétrante du ^{214}Bi dans le tube. Comparaison entre les calculs numériques de CASTEM 2000 et les calculs analytiques de Malet (1997)

Dans la figure 48, on présente la fraction pénétrante des trois premiers descendants du radon. Il est intéressant de remarquer que les fractions pénétrantes du ^{214}Pb et ^{214}Bi sont supérieures à celle du ^{218}Po . Ceci est dû aux éléments fils qui se forment essentiellement sur la fin du tube, ils sont donc susceptibles de se déposer sur une plus courte portion du tube et leur fraction déposée s'en trouve diminuée. Précisons que dans ces calculs de la fraction pénétrante, nous considérons que tous les descendants du radon ont le même coefficient de diffusion.

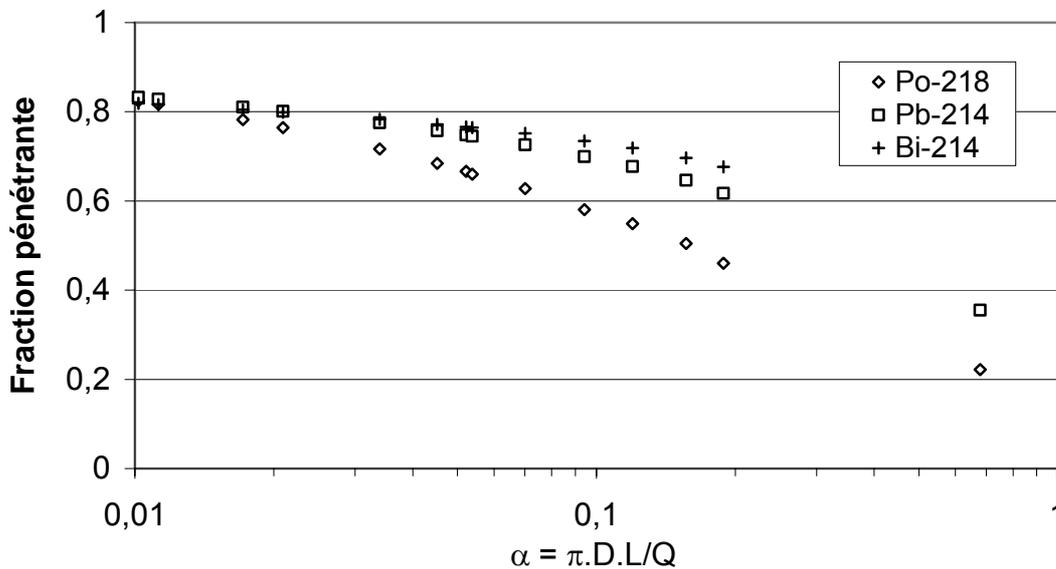


Figure 48 - Fractions pénétrantes des trois premiers descendants du radon dans le tube obtenues à partir des calculs numériques effectués avec CASTEM 2000 pour $D = 5,4.10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$

Le but de la section suivante est de valider les équations du champ électrique appliquées au niveau de l'électrode centrale pour, calculer la collecte électrostatique des descendants du radon chargés, pouvoir résoudre l'équation 49 et déterminer la fraction chargée numérique du ^{218}Po .

3.4.4. Validation de la vitesse de dérive des aérosols due au champ électrique

La vitesse d'un aérosol dans un écoulement d'air en présence d'un champ électrique est présentée par l'équation suivante :

$$\vec{V} = \vec{V}(\vec{E}) + \vec{v}(\text{fluide}) \quad (73)$$

Cette vitesse est la somme de deux vitesses : la vitesse de dérive $\vec{v}(\vec{E})$, due au champ électrique présentée par l'équation 59, et la vitesse du fluide (air) $\vec{v}(\text{fluide})$, présentée par l'équation 52.

Pour qu'une particule chargée soit collectée sur l'électrode centrale, il faut que la vitesse due au champ électrique E soit plus grande que la vitesse du fluide. Dans notre cas, la vitesse du fluide est comprise entre 0,8 cm/s et 4,3 cm/s. Les équations 57, 58 et 59 sont résolues par CASTEM 2000, et nécessite une validation. Nous proposons donc de déterminer numériquement la vitesse de dérive au dessus de laquelle toutes les particules porteuses d'une seule charge sont captées par l'électrode.

Nous comparons, dans la figure 49, les efficacités de captation des aérosols obtenues avec des calculs numériques et analytiques. La validation de la vitesse de dérive est faite pour différents coefficients de diffusion et différentes tensions. Les tests ont été effectués pour un aérosol de coefficient de diffusion différent : $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ (taille 0,8 nm) et $5,92 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ (taille 3 nm). La validation est effectuée pour des tensions allant de 5 à 5000 V. Les résultats de la simulation sont en accord avec l'équation théorique car on retrouve bien les mêmes valeurs dans les deux situations. Dans le cas de la particule la moins diffusive ($5,92 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$), pour une tension de 5000 V, la vitesse de dérive est de 153 cm/s. Cette vitesse est supérieure à la plus grande vitesse du fluide (4,3 cm/s). Donc toutes les particules sont captées par l'électrode dans notre dispositif expérimental. Cette validation réalisée, nous pouvons alors utiliser le code CASTEM 2000 pour la détermination de la fraction chargée apparente du ^{218}Po .

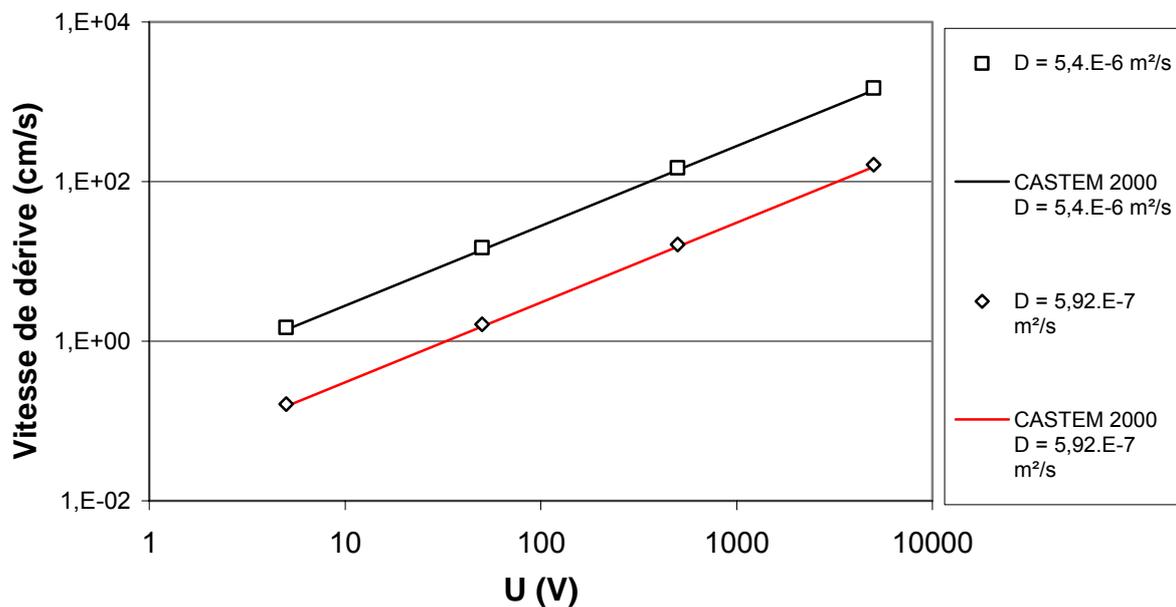


Figure 49 - Vitesse de dérive d'un aérosol monochargé obtenue par calcul CASTEM 2000 et calcul théorique pour deux coefficients de diffusion de $5,4 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ et $5,92 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$

3.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté et validé les différents termes des équations de transport de masse des descendants à vie courte du radon permettant de décrire notre expérimentation. Nous avons vu que le dépôt par diffusion, la longueur d'établissement du profil parabolique des vitesses, ainsi que les termes sources et puits d'un aérosol étaient correctement pris en compte par le code. En plus, nous avons vu comment l'évolution axiale de la concentration des descendants nous permet de déterminer la fraction pénétrante des trois premiers descendants. En dernier lieu, nous avons validé la vitesse de dérive qui nous a permis de tester l'efficacité de collecte des aérosols sur l'électrode. Toutes ces validations, couplées aux expériences de la fraction chargée apparente, vont nous permettre de déterminer la constante de neutralisation du ^{218}Po dans la partie suivante.

CHAPITRE IV

4. NEUTRALISATION DE L'AÉROSOL DU ^{218}Po

Dans la littérature, il existe des systèmes d'équations permettant de déterminer l'évolution de chaque fraction de particules portant un nombre de charges donné incluant le cas des aérosols radioactifs. Clement & Harrison (1992) ont proposé une généralisation du système d'équations pour définir l'évolution de la distribution de charge dans le cas des émetteurs alpha ; ils introduisent dans leurs équations un terme d'auto-chargement qui est fonction de la probabilité d'observer un nombre d'électrons secondaires émis lors de la désintégration alpha. Leurs équations peuvent être utilisées dans le cas d'un aérosol activé par du radon. La résolution de ces équations nécessite une étude numérique afin de déterminer l'évolution de la charge moyenne et de la distribution de charge de l'aérosol.

Après avoir bien analysé les équations de Clement & Harrison (1992), nous avons constaté que, dans le cas des aérosols radioactifs émetteurs alpha, la charge de ces aérosols est due à deux phénomènes : l'ionisation et l'émission des électrons dues à la création de la particule alpha.

Par contre, dans nos études expérimentales, lors de la mesure de la distribution de charge du ^{218}Po par la technique de temps de vol, nous avons remarqué une grande influence et un effet de l'énergie de recul de l'ion de ^{218}Po sur la charge de l'aérosol radioactif. Cet effet est surtout mis en évidence dans le cas des sources de ^{226}Ra avec un dépôt de baryum en surface ; dans ce dernier cas, nous avons constaté que la pénétration de l'ion de recul dans quelques nanomètres de la matière (baryum) induit l'évolution et la neutralisation de la charge de cet ion de recul. Ce phénomène simule l'évolution de la charge d'un aérosol activé par du radon, un aérosol émetteur alpha.

L'expérience du temps de vol nous a montré l'influence de l'énergie de recul dans le processus de la charge d'un aérosol radioactif émetteur alpha. Ce phénomène n'étant pas pris en compte dans les équations d'évolution de la charge de Clement & Harrison (1992), ceci nous a poussé à ne pas utiliser ce modèle mais à créer nos équations de transport d'un aérosol radioactif chargé (éq. 47, 48) et à les résoudre numériquement.

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

Notre approche consiste à modéliser l'évolution de l'aérosol de ^{218}Po chargé en fonction du taux de neutralisation. Quelques études expérimentales permettent de déterminer ce taux mais elles montrent une grande disparité dans les résultats. Ce taux de neutralisation, défini dans la partie 1.4, dépend de l'activité volumique en radon, de l'humidité et de la composition du gaz environnant. Plusieurs auteurs, Busigin *et al.* (1981a), Chu et Hopke (1988), Raabe et Wrenn (1969), Shi et Hopke (1991), Howard et Strange (1992) et (1994), Malet (2000), Dankelman (2001), ont défini le taux de neutralisation en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon (éq. 8, page 24) ; cette dernière tient compte de la génération des ions dans l'air du système.

Le code de calcul CASTEM 2000, nous permet de résoudre les équations de transport de masse des aérosols de ^{218}Po neutre et chargé qui sont décrites dans le chapitre 3 (éq. 47 et 48). La

création de la géométrie et des tests de validation ont été faits. Le calcul impose cependant la connaissance des coefficients de diffusion des deux aérosols chargé et neutre.

Notre démarche sera donc de comparer la fraction chargée numérique (éq. 49) et la fraction chargée expérimentale du ^{218}Po (tableau 11) dans les mêmes conditions expérimentales, afin de trouver, pour quelle valeur de λ_n , ces deux fractions sont en bonne concordance. Pour chaque point expérimental (tableau 11), les paramètres expérimentaux sont fixés comme paramètres d'entrée du code. Les activités volumiques en radon, le débit volumique (défini par le nombre de Reynolds), la tension de l'électrode (0 et 5000 V) et le coefficient de diffusion du ^{218}Po neutre et chargé sont des paramètres d'entrée du code définis expérimentalement.

Les résultats du code sont les concentrations pénétrantes du ^{218}Po chargé et neutre en sortie du tube de Zeleny ($C_{\text{Po}(E)}$ et $C_{\text{Po}(ss.E)}$). En connaissant les concentrations pénétrantes du ^{218}Po , nous pouvons résoudre l'équation 49 et déterminer numériquement la fraction chargée. Cette dernière est par la suite comparée à la fraction chargée expérimentale ; si les deux valeurs sont en bonne concordance, alors le taux de neutralisation représente bien la fraction des particules chargées qui se sont neutralisées par unité de temps (s^{-1}) au cours de cette expérimentation ; sinon il faut réajuster le taux de neutralisation λ_n dans le but d'obtenir des valeurs des deux fractions chargées numérique et expérimentale équivalentes.

Au cours des tests de comparaison nous avons remarqué que les coefficients de diffusion étaient un paramètre influent sur le taux de neutralisation. La partie suivante est dédiée au test de sensibilité de ce paramètre.

4.2. Etude des réponses du modèle numérique aux variations des paramètres d'entrée

Il s'agit ici d'une « étude de sensibilité des paramètres », ou « test de sensibilité », dont l'objectif est de connaître le degré d'influence des paramètres d'entrée de notre modèle sur les différentes grandeurs calculées. Nous pouvons ainsi dégager les paramètres « sensibles » du modèle, c'est-à-dire particulièrement influents.

4.2.1. Principe des tests de sensibilité

Il s'agit de faire varier pas à pas un paramètre choisi, et ensuite d'observer, à chaque pas, comment varient une ou plusieurs des grandeurs de sortie du modèle. Trois types de réponses sont envisageables :

- si le paramètre étudié est peu influent vis-à-vis des grandeurs de sortie, il est dit « peu sensible », et il peut être déterminé avec une incertitude relativement élevée, sans conséquence notable sur les calculs réalisés,
- si le paramètre est très influent, il est dit « paramètre sensible » et il doit être déterminé le plus précisément possible puisqu'une petite erreur dans son évolution contribue à fausser les calculs de façon non négligeable,
- entre les cas extrêmes précédents, des tendances similaires peuvent se rencontrer avec

des intensités moindres.

Dans notre cas, les paramètres d'entrée sont :

- le temps de résidence, ce paramètre ne nécessitant pas une étude de sensibilité car il est bien maîtrisé et les erreurs sont minimales,
- la tension d'alimentation ; cette dernière est fixée à 5000 V et les tests de validation montrent que la fraction chargée déposée est totale, donc ce paramètre ne nécessite pas une étude de sensibilité,
- l'activité volumique de radon est bien mesurée et les erreurs sont minimales donc ce paramètre ne nécessite pas une étude de sensibilité.
- le coefficient de diffusion des particules chargées et neutres est le paramètre qui nécessite une étude de sensibilité pour savoir l'effet de sa variation sur le taux de neutralisation.

Nous présentons donc dans la partie suivante les tests de sensibilité effectués sur le coefficient de diffusion des particules chargées et neutres.

4.2.2. Tests de sensibilité pour le coefficient de diffusion

Nous souhaitons savoir dans cette partie quelles influences ont les variations du coefficient de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre sur les grandeurs de sortie calculées par le modèle numérique, et surtout le taux de neutralisation.

Pour répondre à cette question, nous réalisons un test de sensibilité, au cours duquel, un paramètre varie (le coefficient de diffusion) alors que les autres restent constants. Les résultats de ces tests sont présentés pour des temps de résidences fixes. Les résultats sont résumés dans le tableau 18.

Tableau 18 - Influence de la variation du coefficient de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre sur le taux de neutralisation

Temps de résidence dans le tube de diffusion (s)	Coefficient de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre ($10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	Taux de neutralisation du ^{218}Po (s^{-1})	Variation du taux de neutralisation du ^{218}Po (%)
248	3	0,077	50 - 90,3
	5,4	0,21	
	7	0,42	
	9	0,8	
124	3	0,12	33,2 - 78,6
	5,4	0,21	
	7	0,314	
	9	0,56	
48	3	0,205	13,3 - 41,4
	5,4	0,254	
	7	0,293	
	9	0,35	

Les résultats du tableau 18, présente les tests de sensibilité des coefficients de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre et leurs influences sur le taux de neutralisation du ^{218}Po pour différents temps de résidence dans le système. Les valeurs que nous avons choisies représentent la gamme de nos valeurs expérimentales et valeurs de la littérature. Les résultats montrent l'importance de ce paramètre pour la détermination du taux de neutralisation. Nous constatons que, pour un temps de résidence fixe, en augmentant le coefficient de diffusion (chargé et neutre), le taux de neutralisation augmente. Dans le premier cas, pour un temps de résidence de 248 s, pour une évolution du coefficient de diffusion de $3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ à $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, le taux de neutralisation varie de 50 % à 90,3 %. Nous avons aussi remarqué que, pour des temps de résidence plus courts, la variation du coefficient de diffusion influe moins sur le taux de neutralisation. Dans le dernier test, pour des coefficients de diffusion qui varient $3 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ à $9 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, le taux de neutralisation varie de 13,3 % à 41,4 %, ce qui correspond à des variations plus petites que dans le cas des grands temps de résidence. Enfin, nous avons bien déduit l'importance de ce paramètre, coefficient de diffusion du ^{218}Po chargé et neutre pour déterminer le taux de neutralisation, surtout pour les temps de résidence longs dans le tube de diffusion ou la différence d'un facteur trois pour le coefficient de diffusion amène à une différence d'un facteur dix pour le taux de neutralisation, pour ceci nous allons utiliser nos résultats expérimentaux pour le coefficient de diffusion du ^{218}Po comme paramètre d'entrée du code de calcul.

4.3. Résultats et discussions

Notons que les mesures de la fraction chargée expérimentale sont faites dans l'air et pour une humidité relative de $5,6 \pm 0,168$ %. Nous présentons sur la figure 50, les valeurs du taux de neutralisation (s^{-1}) en fonction de la racine carré de l'activité volumique en radon ($Bq \cdot m^{-3}$)^{1/2}. Ce dernier paramètre est le plus abondant dans la littérature pour la détermination du taux de neutralisation.

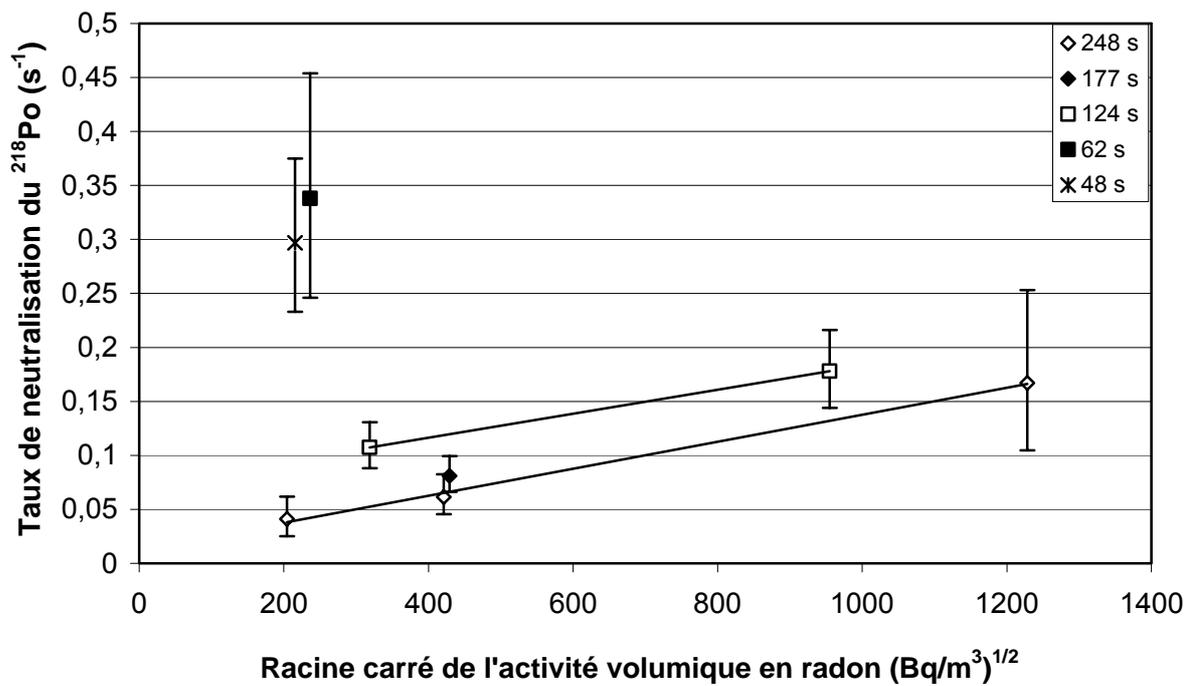


Figure 50 - Taux de neutralisation du ²¹⁸Po en fonction de la racine carrée de l'activité volumique en radon dans l'air pour une humidité relative de 5,6 %

Le tableau 19 indique les coefficients de diffusion du ²¹⁸Po chargé et neutre utilisés dans nos calculs numériques pour les points présentés dans la figure 50.

Tableau 19 - Valeurs des coefficients de diffusion du ²¹⁸Po chargé et neutre obtenues pour des activités volumiques de radon et des temps de résidence variables

Racine carré de l'activité volumique de radon (Bq/m ³) ^{1/2}	Incertitude (Bq/m ³) ^{1/2}	Temps de résidence dans le tube de diffusion (s)	Coefficient de diffusion du ²¹⁸ Po chargé et neutre (10 ⁻⁶ m ² .s ⁻¹)	Incertitude (10 ⁻⁶ m ² .s ⁻¹)
1227	47	248	4,9	0,15
421	27	248	3,2	0,38
204	22	248	2,7	0,44
429	27	177	4,2	0,19
954	41	124	4,9	0,12
318	26	124	4,8	0,25
236	22	62	7,2	0,32
215	22	48	7,1	0,48

A l'exception des temps de résidence 48 s et 62 s, nous pouvons remarquer, d'après les résultats de la figure 50, qu'en augmentant l'activité volumique de radon, le taux de neutralisation augmente. Pour des temps de résidence égaux, par exemple 248 s, en augmentant l'activité volumique en radon le taux de neutralisation augmente linéairement en fonction de la racine carrée de l'activité volumique en radon, l'équation est :

$$\lambda_n = 1,25 \cdot 10^{-4} \cdot (\text{Activité volumique de radon})^{-1/2} + 0,0127$$

De même, pour un temps de résidence de 124 s, le taux de neutralisation augmente linéairement en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon, et l'équation est la suivante :

$$\lambda_n = 1,11 \cdot 10^{-4} \cdot (\text{Activité volumique de radon})^{-1/2} + 0,0718$$

Nous pouvons constater de plus, que les deux équations de taux de neutralisation, pour des temps de résidence différents, ont quasiment la même pente avec des ordonnées à l'origine différentes. Dans le cas où le temps de résidence est égal à 177 s, ce point est obtenu pour une activité volumique de 429 (Bq/m³)^{1/2} proche du point 421 (Bq/m³)^{1/2} avec un temps de résidence de 248 s, pour ces deux points le taux de neutralisation est un peu plus grand dans le cas où le temps de résidence est plus court. Ce point (429 (Bq/m³)^{1/2}, 177 s) se trouve entre les deux équations linéaires précédentes, signalant par ceci une évolution en fonction des temps de résidence. Par contre, dans le cas des résultats obtenus avec des temps de résidences courts, 48 s et 62 s, et des activités quasi égales de 215 (Bq/m³)^{1/2} et 236 (Bq/m³)^{1/2}, le taux de neutralisation est proche en introduisant les incertitudes. Mais en comparant ces deux mêmes points au point qui est fait avec la même activité 204 (Bq/m³)^{1/2} mais pour un temps de résidence différents 248 s, nous constatons une grosse différence au niveau des taux de neutralisation. De cette dernière comparaison, nous

pouvons déduire dans une première approche que le taux de neutralisation n'est pas indépendant du temps de résidence.

4.4. Comparaison avec les résultats de la littérature

Afin de comparer nos résultats à ceux de la littérature, nous ne pouvons pas nous limiter à présenter le taux de neutralisation du ^{218}Po en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon. En effet, cette dernière ne tient compte que de l'ionisation des ions de l'air due aux particules alpha générées dans le système. Or l'ionisation dépend aussi de la géométrie du dispositif expérimental qui diffère d'un auteur à l'autre. Pour ceci, nous présentons dans la partie suivante le taux de neutralisation en fonction de la concentration (n) en ions positifs ou négatifs générés et recombinaison dans le système (tube de diffusion).

4.4.1. Calcul des concentrations des ions générés et recombinaison dans le système

Après leur création dans le gaz, les ions évoluent de différentes façons. La concentration des ions résulte de plusieurs processus physiques comme leur recombinaison, leur fixation sur les aérosols ou bien leur diffusion sur les parois.

Le processus de recombinaison des ions s'apparente à la coagulation d'un aérosol. Les petits ions de signes opposés peuvent se rencontrer sous l'action de la diffusion ou bien des attractions électrostatiques. Dès lors, leurs charges électriques se neutralisent et ils disparaissent en tant qu'ions. La variation des concentrations en ions positifs et négatifs due à la recombinaison est symétrique, puisque les ions se recombinaison par paires.

La concentration n des petits ions positifs ou négatifs (m^{-3}) (en supposant que $n^+ = n^-$), générée dans un système, est donnée par l'équation suivante :

$$\frac{dn}{dt} = q - \alpha n^2 \quad (74)$$

Avec :

q taux de production de paires d'ions ($\text{p.i m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$),

α coefficient de recombinaison dont la valeur est égale à $1,6 \cdot 10^{-12} \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ (Bricard et Pradel, 1966).

L'intégrale de l'équation 74 donne le résultat suivant :

$$n = \sqrt{\frac{q}{\alpha}} \left(\frac{1 - e^{-2 * \sqrt{\alpha \cdot q \cdot t}}}{1 + e^{-2 * \sqrt{\alpha \cdot q \cdot t}}} \right) \quad (75)$$

Dans notre cas :

$$2 \sqrt{\alpha \cdot q \cdot t} > 1 \text{ et } n \rightarrow n_{\infty} = \sqrt{\frac{q}{\alpha}} \quad (76)$$

Où n_{∞} représente la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre (m^{-3}),

Où :

$$q = I \cdot \eta \cdot C_t \quad (77)$$

Avec : I le nombre moyen de paires d'ions produites par désintégration,

η l'activité spécifique moyenne des particules (Bq/p),

C_t la concentration totale de l'aérosol (m^{-3}).

Par contre, lorsque la géométrie du milieu ne permet pas aux rayonnements d'effectuer leur parcours entier, le taux de production se trouve limité. Yeh (1976) a estimé la production d'ions dans un conduit cylindrique en supposant que, d'une part, l'aérosol constitue une source linéaire située sur l'axe du cylindre, et d'autre part, que le parcours moyen du rayonnement est égal au rayon du tube. L'auteur exprime alors le taux de production par la relation suivante :

$$q = \frac{I}{\delta} \cdot R \cdot \eta \cdot C_t \quad (78)$$

Où δ est le parcours moyen du rayonnement en milieu infini, I le nombre de paires d'ions produites en milieu infini et R le rayon du tube.

Pour résoudre l'équation 76, nous calculons le nombre moyen de paires d'ions produites par désintégration dans notre géométrie. Le calcul de I, défini par l'équation 6 (page 23), nécessite la connaissance de l'énergie alpha perdue dans l'air du système. Dans ce but, un calcul Monte-Carlo est effectué à l'aide du code de calcul MCNPX 2.5 (Annexe 3) afin de déterminer la perte d'énergie d'une particule alpha de 5,49 MeV, désintégration du radon, dans l'air du tube de diffusion.

Nous avons simulé un cylindre de 192 cm de long et de rayon 4 cm contenant de l'air, dans lequel nous avons introduit une concentration homogène de radon. Le radon se désintègre en émettant une particule alpha de 5,49 MeV ; l'énergie perdue dans l'air avant que la particule alpha atteigne la paroi est en moyenne de $3,72 \pm 0,18$ MeV. C'est cette valeur qu'il faut donc utiliser, dans l'équation 6, afin de déterminer le nombre de paires d'ions créées dans l'air du système par désintégration alpha :

$$I_{\alpha} = \frac{3,72 \cdot 10^6}{35} = 1,062 \cdot 10^5$$

Après avoir calculé le nombre de paires d'ions créées dans l'air du système dû aux alpha, nous déterminons le nombre de paires d'ions créées dans l'air du système à cause de l'énergie de l'atome de recul. Cette énergie est de 101 keV pour le ^{218}Po . Dans ce cas, la masse du ^{218}Po intervient également dans le calcul ; dans ce but, nous utilisons un code de calcul SRIM 2008, afin de déterminer l'énergie perdue par un atome de 218 u.m.a possédant une énergie de 101 keV. Le calcul nous montre que la perte d'énergie est de 0,35 keV/ μm pour un libre parcours moyen de 59 μm dans l'air. Ceci implique que la perte d'énergie par atome de recul est de 20,65 keV. Le nombre de paires d'ions générées est alors de :

$$I_r = \frac{20650}{35} = 590$$

Le nombre total de paires d'ions créées dans notre géométrie (tube de diffusion) par désintégration d'un atome de ^{222}Rn est égal à :

$$I_{\text{total}} = I_{\alpha} + I_r \quad (79)$$

Donc :

$$q = I_{\text{total}} \cdot \eta \cdot C_t \quad (80)$$

Avec :

η l'activité spécifique moyenne des particules (Bq/p) ; dans notre cas, il y a un atome de ^{222}Rn par particule, donc le produit de η (Bq/p) et de C_t (m^{-3}), concentration totale de l'aérosol, représente l'activité volumique de radon. Le taux de production (q) est donc égal au produit du nombre de paires d'ions produites dans le système (I_{total}) et de l'activité volumique de radon (A_{Rn}) générée dans le même système.

Connaissant l'activité volumique de radon pour chaque expérimentation, nous avons calculé le taux de production q et la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre n . Les valeurs sont présentées dans le tableau 20.

Tableau 20 - Tableau de calcul de la concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre par unité de temps

Activité volumique de radon (kBq/m^3)	Temps de résidence dans le tube de diffusion (s)	Taux de production de paires d'ions q ($\text{p.i m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$)	Concentration en ions positifs ou négatifs à l'équilibre n_{∞} (m^{-3})
1508	248	$1,6 \cdot 10^{11}$	$3,2 \cdot 10^{11}$
912	124	$9,7 \cdot 10^{10}$	$2,5 \cdot 10^{11}$
456	62	$4,8 \cdot 10^{10}$	$1,7 \cdot 10^{11}$
184	177	$1,9 \cdot 10^{10}$	$1,1 \cdot 10^{11}$
177	248	$1,8 \cdot 10^{10}$	$1,1 \cdot 10^{11}$
102	124	$1,1 \cdot 10^{10}$	$8,2 \cdot 10^{10}$
56	62	$5,9 \cdot 10^9$	$6,1 \cdot 10^{10}$
46	48	$4,9 \cdot 10^9$	$5,6 \cdot 10^{10}$
42	248	$4,5 \cdot 10^9$	$5,3 \cdot 10^{10}$

Théoriquement, le produit $\alpha \cdot n_{\infty}$ représente le nombre relatif des ions positifs et négatifs, formés principalement par les particules alpha, qui se recombinent pour se neutraliser par unité de temps.

$$\alpha.n_{\infty} = \sqrt{\alpha.q} = \sqrt{\alpha.I.A_{Rn}} = \sqrt{1,06.10^5 * 1,6.10^{-12} * A_{Rn}} = 4,12.10^{-4} \sqrt{A_{Rn}} \quad (81)$$

En considérant le ^{218}Po de même taille que les petits ions de l'air, nous pouvons considérer que le produit $\alpha.n_{\infty}$ est équivalent à la recombinaison entre les ions de l'air et le ^{218}Po . Nous constatons, que les deux pentes $\alpha.n_{\infty}$ en fonction de $\sqrt{A_{Rn}}$ sont du même ordre de grandeur et ont des valeurs respectives de $1,25.10^{-4}$ et de $1,11.10^{-4}$ (paragraphe 4.3).

Dans la partie suivante, nous allons définir les termes des équations de taux de neutralisation et nous comparerons nos résultats à ceux de Dankelmann (2001).

4.4.2. Comparaison des résultats discussion

Nous présentons dans cette partie, nos valeurs de taux de neutralisation du ^{218}Po en fonction de la concentration en ions positifs et négatifs dans le tube de diffusion. Ce calcul a été exposé dans la partie précédente et les résultats sont présentés sur la figure 51. Ce changement de présentation, le passage de la racine carré de l'activité volumique de radon à la concentration en ions positifs et négatifs, ne changent pas l'allure et l'évolution de taux de neutralisation.

Ce nombre n dépend du taux d'ionisation I et de la recombinaison de ces ions créés. A son tour le taux d'ionisation dépend majoritairement de la perte d'énergie des particules alpha dans le système. L'erreur qu'on applique en déterminant le taux de neutralisation en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon eut du fait qu'on considère que toute l'énergie des alpha est perdue dans le système ; par contre dans notre cas, il y a 3,72 MeV qui ont pu ioniser l'air dans le système au lieu de 5,49 MeV, donc 32 % moins d'ionisation. De plus, en utilisant la racine carrée de l'activité volumique de radon, on néglige la recombinaison des petits ions qui eux ne participent pas à la neutralisation des descendants du radon.

Nous effectuons de plus une comparaison avec les résultats de Dankelmann, pour ceci nous utilisons les résultats de la figure 11 (page 30). Les résultats de Dankelmann concernant le taux de neutralisation ayant été obtenus pour des humidités relatives différentes, nous choisissons la courbe correspondante à une humidité relative de 3,3 % afin de la comparer à nos propres valeurs qui sont obtenues pour une humidité relative de 5,6 %.

Dans ses expériences, Dankelmann a utilisé un seul temps de résidence qui est de 120 s et des activités volumiques de radon allant jusqu'à $6,7 \text{ kBq/m}^3$. Nos activités volumiques de radon étant beaucoup plus grandes, nous avons calculé l'équation de taux de neutralisation pour l'humidité relative de 3,3 % en fonction des activités volumiques de radon utilisées par Dankelmann et nous l'avons appliquée à nos activités volumiques de radon.

Pour bien comparer les deux courbes, nous avons choisi de calculer le taux d'ionisation par désintégration alpha dans la géométrie de Dankelmann. Le calcul MCNPX appliqué au dispositif expérimental de Dankelmann (figure 9, page 28), montre que la perte d'énergie de la particule alpha dans le dispositif expérimental est en moyenne de 4,78 MeV, donc moins 13 % d'ionisation que les valeurs présentées et calculées par Dankelmann (figure 11). Après avoir pris en compte l'influence de la géométrie et de la perte d'énergie dans le milieu, nous pouvons donc comparer nos

valeurs de taux de neutralisation du ^{218}Po à celles de Dankelmann en fonction du nombre d'ions positifs et négatifs n_∞ dans le système. Sur la figure 51, nous présentons la courbe empirique de taux de neutralisation du ^{218}Po de Dankelmann pour une humidité de 3,3 % extrapolée à nos valeurs.

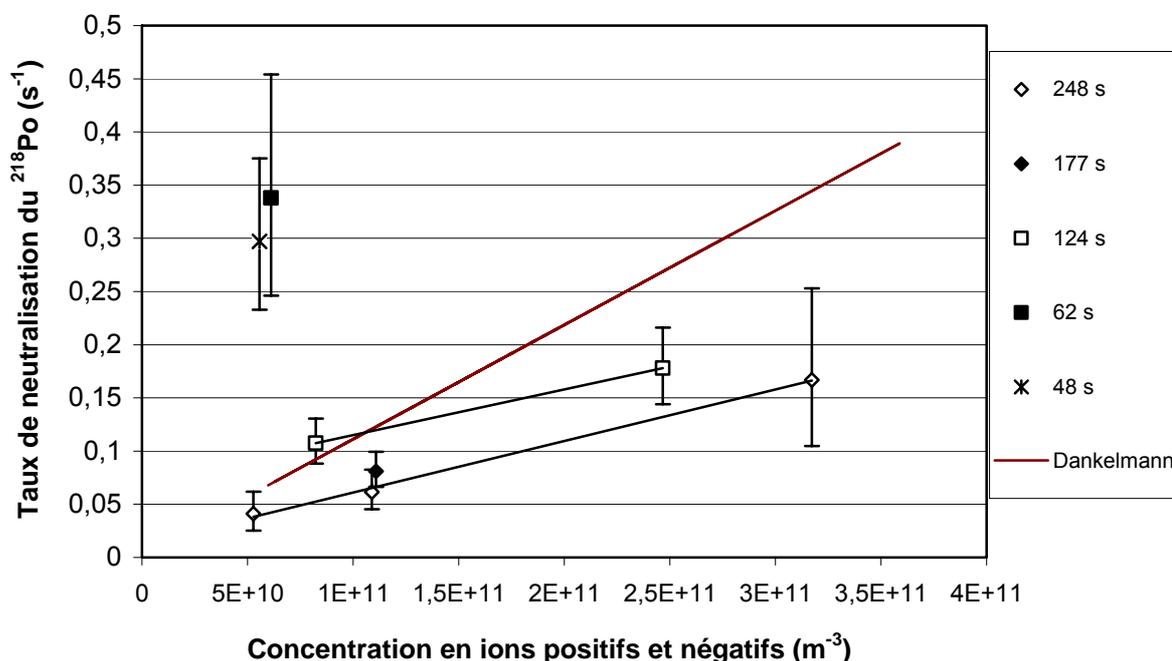


Figure 51 - Taux de neutralisation du ^{218}Po en fonction de la concentration en ions positifs et négatifs créés dans le tube de diffusion.

Les résultats de Dankelmann ayant été obtenu pour un seul temps de résidence de 120 s, la comparaison ne peut s'effectuer que dans le cas où les temps de résidence sont égaux ou quasi égaux, donc le temps de résidence de 124 s pour ce qui nous concerne. Nous constatons en premier lieu, que les résultats sont du même ordre de grandeur. De plus nous remarquons que les deux équations linéaires se croisent entre elles, mais la pente des résultats de Dankelmann est plus grande que dans notre cas. Les équations des courbes de taux de neutralisation en fonction de nombre d'ions dans le système, présentées dans la figure 51 ; sont décrites ci-après.

Dans nos expériences, pour une humidité relative de 5,6 % et un temps de résidence de 248 s et 124 s nous déduisons respectivement les équations 82 et 83 :

$$\lambda_n = 5 \cdot 10^{-13} \cdot n_\infty + 0,0127 \quad (82)$$

$$\lambda_n = 4,44 \cdot 10^{-13} \cdot n_\infty + 0,0719 \quad (83)$$

L'équation 84 présente le taux de neutralisation en fonction du nombre d'ions, pour une humidité relative de 3,3 %, pour les expériences de Dankelmann :

$$\lambda_n = 10,7 \cdot 10^{-13} \cdot n_\infty + 0,0038 \quad (84)$$

En comparant nos équations à celle de Dankelmann, nous constatons que les pentes sont de même ordre de grandeur. D'après l'équation 9 ($\lambda_n = \lambda_{IR} + \lambda_{CT} + \lambda_{OH}$) et les équations 11 et 12 (page 29), la pente des équations de taux de neutralisation est la somme de deux termes qui sont dus à deux processus de neutralisation différents, la recombinaison avec les petits ions de l'air et la capture électronique des électrons OH^- créée par la radiolyse des molécules de H_2O . Dans notre cas, nous pouvons dire que cette différence au niveau des pentes entre nos équations et celle de Dankelmann est due à la capture électronique des électrons OH^- , cette dernière dépendant de l'humidité relative dans l'air du système qui est différente dans les deux expériences. De plus, nous pouvons signaler que, pour le calcul de taux de neutralisation dans le cas de Dankelmann, ce dernier a utilisé des coefficients de dépôts du ^{218}Po chargé et neutre égaux.

Quant au terme ordonné à l'origine, il représente la neutralisation par transfert de charge. Nous remarquons en premier lieu une grande différence de ce terme dans nos équations et celle de Dankelmann. Par contre, dans nos propres expériences la différence entre ces deux valeurs (0,0127 et 0,0719) dans les équations 82 et 83, pourrait s'expliquer par les différents temps de résidences utilisées dans les deux séries de mesures (248 s et 124 s) et aussi par les incertitudes de mesures.

4.5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons calculé à partir de nos expériences et du code de calcul (CASTEM 2000), le taux de neutralisation du ^{218}Po correspondant à tous nos points expérimentaux. Nous avons observé une croissance du taux de neutralisation en fonction de l'activité volumique de radon, pour des temps de résidence équivalents. Ce taux de neutralisation est présenté dans la littérature en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon, et nous avons démontré pu prouver que cette présentation est erronée pour deux raisons. En premier lieu, elle ne tient compte que de la génération des ions et non pas de leurs recombinaisons. En second lieu, la génération d'ions dépend directement de l'énergie des particules alpha perdue dans le système, et donc de la géométrie du dispositif expérimental. Ainsi, pour comparer les résultats entre deux auteurs, dont les dispositifs expérimentaux diffèrent, une manière judicieuse consiste à utiliser le nombre d'ions positifs ou négatifs créés par désintégration alpha dans chaque dispositif expérimental. Dans ce but, une comparaison tenant compte de cette correction a été faite avec les résultats de Dankelmann. Elle a pu montrer que pour des temps de résidence voisins, la pente des équations, qui présente la neutralisation par recombinaison, est de même ordre de grandeur. Par contre, le terme ordonné à l'origine qui présente la neutralisation par transfert de charge est lui différent.

CONCLUSION

L'objectif de ce travail de thèse est d'étudier les caractéristiques de la charge électrique d'un aérosol radioactif naturel et d'enlever les ambiguïtés sur les études présentées dans la littérature sur ce sujet, en recherchant les phénomènes mis en jeu, les mécanismes et les paramètres influant sur cette charge.

La charge électrique d'un aérosol radioactif naturel et en particulier les descendants du radon dépend essentiellement :

- du milieu ambiant ; humidité relative, nature du gaz porteur, activité volumique des aérosols radioactifs, ...
- dans le cas de la fraction attachée des descendants du radon, de la nature de l'élément sur lequel l'aérosol radioactif est déposé.

Nous avons tout d'abord recherchée dans la littérature les études traitant de ce sujet afin de mieux comprendre l'évolution de l'état de charge électrique d'un descendant depuis sa formation jusqu'à sa disparition. Il ressort de cette recherche bibliographique que de nombreux travaux réalisés révélant les disparités dans les résultats, que nous avons cherché à expliquer. Il nous est donc apparu nécessaire en premier lieu, de nous intéresser à la mesure de la distribution de la charge des descendants du radon et en particulier du ^{218}Po , cette étude n'ayant jamais été rapportée dans la littérature. Et en second lieu, d'approfondir les travaux sur la charge électrique totale des descendants du radon en mettant en œuvre des expériences, dans une géométrie simple mais parfaitement défini et dans des conditions expérimentales bien maîtrisées, en fonction de deux paramètres : le temps de résidence et l'activité volumique de radon.

Une première étude expérimentale, faisant l'objet d'une collaboration avec l'IPN d'Orsay, a été réalisée dans le but de mesurer la distribution de charge du ^{218}Po par une méthode dit «de temps de vol» à l'aide d'une chambre de spectromètre de masse auprès d'un accélérateur Tandem d'Orsay. Pour effectuer ces expériences, nous avons préparé des sources de ^{226}Ra pour pouvoir généré du radon et ses descendants. Deux séries de mesures ont été faites, la première série étant réalisée avec des sources de ^{226}Ra contenant du baryum. Les mesures de temps de vol ont montré que la distribution de charge du ^{218}Po est majoritairement neutre avec la présence d'une petite fraction de mono-chargées positives. Ces résultats sont justifiés par l'absence des ions H_2^+ et H_3^+ , qui sont une signature de la présence d'ions multichargés. La deuxième série d'expériences effectuées avec des sources de ^{226}Ra sans dépôt de baryum, a mis en relief l'importance de cet élément et sa grande influence sur la distribution de charge. Dans le cas des sources sans dépôt de Ba, les résultats montrent une distribution de charge du ^{218}Po majoritairement neutre 74 %, avec la présence des particules mono-chargées positives 20 % et 6 % des multichargés dont le maximum est +10 et en moyenne +5. En comparant les résultats des deux séries d'expériences, nous remarquons la neutralisation des ions de recul ^{218}Po dans la matière et surtout en présence du baryum.

La deuxième expérience avait pour but de mesurer la fraction de particules de ^{218}Po chargée dans des conditions expérimentales maîtrisées. Le dispositif expérimental utilisé est composé d'un

tube de diffusion cylindrique dans lequel sont générés les descendants du radon auquel nous avons adapté une électrode centrale formant ainsi un condensateur du type tube de Zeleny pour collecter les descendants du radon chargés. Nous avons fait varier deux paramètres, l'activité volumique de radon et le temps de résidence afin d'étudier leurs influences sur la charge électrique des descendants. Nous avons constaté que, pour un même temps de résidence dans le tube de diffusion, lorsque l'activité volumique en radon augmente, la fraction chargée apparente de ^{218}Po diminue. Par contre, dans le cas des activités volumiques de radon égales et des temps de résidence différents, la comparaison et l'analyse des données demeurent beaucoup plus compliquées. Afin d'interpréter ces résultats, nous avons choisi de passer par une étude numérique.

Parallèlement, et pour les mêmes conditions expérimentales, nous avons mesuré le coefficient de diffusion de ^{218}Po neutre et chargé. Les résultats ont montré une décroissance de la valeur du coefficient de diffusion lorsque le temps de résidence augmente. Ces mesures vont nous servir dans la partie numérique car ils sont des paramètres prépondérants.

Pour mieux interpréter les résultats expérimentaux de la charge électrique totale de ^{218}Po , nous avons mené une étude numérique via le code CASTEM 2000.

En premier lieu, nous avons créé la géométrie et les tests de validations des différents termes des équations de transport de masse des descendants à vie courte du radon. En second lieu, nous avons établi une comparaison entre la fraction chargée numérique et la fraction chargée expérimentale de ^{218}Po dans les mêmes conditions expérimentales, afin de trouver pour quelle valeur de taux de neutralisation (λ_n) ces deux fractions sont en bonne concordance.

Nous constatons une croissance du taux de neutralisation en fonction de l'activité volumique de radon, et, pour les mêmes temps de résidence, nous montrons que le taux de neutralisation croît linéairement en fonction de l'activité volumique de radon. Ce taux de neutralisation est habituellement présenté dans la littérature en fonction de la racine carrée de l'activité volumique de radon. Nous avons pu prouver que cette présentation est erronée pour deux raisons : en premier, parce qu'elle tient compte juste de la génération des ions et non pas de leurs recombinaisons, ensuite, parce que la génération d'ions dépend directement de l'énergie des particules alpha perdu dans le système, donc dépend de la géométrie du dispositif expérimental. Ainsi, pour comparer les résultats entre deux auteurs, le plus judicieux est d'utiliser le nombre d'ions positifs ou négatifs créés par désintégration alpha dans chaque dispositif expérimental, car ce dernier diffère d'une étude à l'autre.

Finalement, la conclusion principale de notre étude est qu'il n'existe pas une seule distribution de charge ni une seule valeur de charge totale des descendants du radon. Par ailleurs, ce travail nous amène à diverses conclusions que nous récapitulons ci-dessous :

- les expériences de temps de vol ont montré, en premier lieu, l'influence de la matière sur la neutralisation de la charge de la fraction attachée de ^{218}Po ,
- les expériences de temps de vol sont applicables dans le cas de la fraction attachée des descendants du radon, le cas des aérosols radioactifs nanométriques, les spectres obtenus sont d'une grande importance car ils montrent une possibilité d'ioniser une

particule de matière qui engloberait la radioactivité ; il y a donc plusieurs voies d'ionisation : soit l'émission électronique induite par les particules alpha ou par les ions de recul. La contribution relative de ces deux effets est liée d'une part à la composition de la particule et à sa taille. Dans le cas des nano-particules, l'émission ionique est induite préférentiellement par les ions de recul qui sont plus efficaces que les particules alpha,

- pour la distribution de charge de la fraction attachée, Clément et Harrison (1992) ont développé un code, sur le processus de charge d'un aérosol radioactif, prenant en compte le type de l'élément radioactif et les possibilités de dépôt à l'intérieur ou en surface de l'aérosol. Cette théorie a été validée pour les émetteurs bêta par Gensdarmes (2000) ; par contre, cette théorie n'est pas applicable dans le cas des émetteurs alpha car l'ion de recul a un rôle majeur dans le processus de charge, ce qui n'est pas pris en compte dans ce code,
- la fraction chargée totale du ^{218}Po mesurée expérimentalement, couplée à la simulation, nous a permis de déduire le taux de neutralisation. Ce dernier est le paramètre le plus significatif pour définir la charge électrique, notamment dans l'environnement. Nos résultats ont été confrontés à ceux de Dankelmann qui a largement étudié la neutralisation des descendants du radon. Ses mesures se sont cependant limitées à des activités de $6,4 \text{ kBq/m}^3$. Dans notre cas, les activités explorées s'étendent jusqu'à 1600 kBq/m^3 .

Le travail de cette thèse a permis de comprendre certains aspects sur l'état de charge des descendants du radon. Les résultats obtenus sont très intéressants et ouvrent plusieurs perspectives dont les grands axes de recherche sur ce sujet complexe devraient porter :

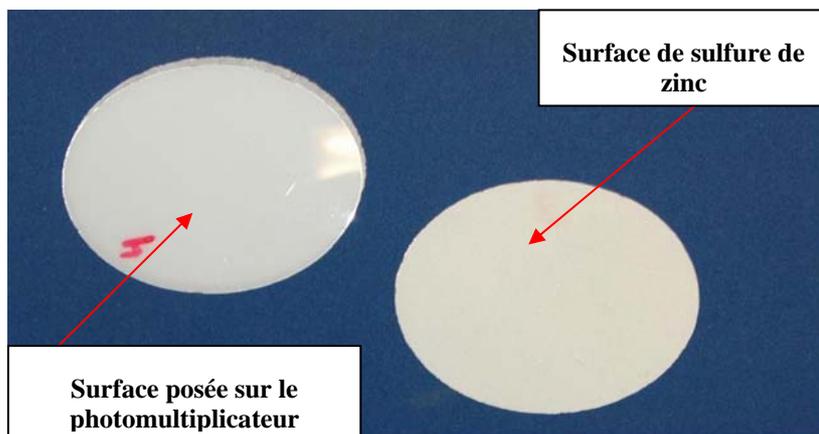
- d'une part, de faire des expériences de temps de vol avec d'autre élément de dépôt que le baryum pour mieux comprendre l'effet et l'influence de la matière sur la distribution de charge des descendants du radon,
- enfin, pour mieux approfondir les études concernant le taux de neutralisation du ^{218}Po , il est nécessaire de faire beaucoup plus d'expériences pour des activités volumiques de radon égales et des temps de résidences différents, pour déterminer l'influence du temps résidence sur le taux de neutralisation.

ANNEXES

ANNEXE 1 : COMPTEUR ALPHA-PORTATIF A PHOTOMULTIPLICATEUR

Pour le comptage des α issus de la désintégration du radon et de ses descendants, on utilise un photomultiplicateur, le CAPP (Compteur Alpha-Portatif à Photomultiplicateur).

On place sur le photomultiplicateur un scintillateur au sulfure de zinc activé à l'argent. Le principe de ces scintillateurs est d'utiliser l'excitation des molécules d'un milieu détecteur qui ayant absorbé l'énergie, la restitue sous forme de photons.



Nous déterminons quel est le bruit de fond des scintillateurs utilisés. Pour cela on les a placés dans les CAPP, lancé un comptage de 5min puis on a relevé le nombre de coups compté par les photomultiplicateurs.

Détermination du rendement et du bruit de fond pour le CAPP1 avec le scintillateur 1 :

Temps de comptage = 5 min

Nombre de coups théoriques :

- Source 1 : 23400
- Source 2 : 28590

Scintillateur	Bruit de fond	Nombre de coups mesurés avec la source 1 (78 α/s)	Nombre de coups mesurés avec la source 2 (95,3 α/s)
1	2	22880 $\eta = 97,78 \%$	28016 $\eta = 98 \%$
		22711 $\eta = 97,05 \%$	28362 $\eta = 99,2 \%$

Détermination du rendement et du bruit de fond pour le CAPP2 avec le scintillateur 2 :

Temps de comptage = 5 min

Nombre de coups théoriques :

- Source 1 : 23400
- Source 2 : 28590

Scintillateur	Bruit de fond	Nombre de coups mesurés avec la source 1 (78 α/s)	Nombre de coups mesurés avec la source 2 (95,3 α/s)
2	2	22466 $\eta = 96 \%$	27487 $\eta = 96,14 \%$
		22698 $\eta = 97 \%$	27362 $\eta = 95,7 \%$

Nous disposons de 2 types de CAPP. Le CAPP2 étant plus récent que le CAPP1, l'étalonnage pour la tension d'alimentation du photomultiplicateur se fait directement sur ordinateur grâce au logiciel CAPPView, contrairement au CAPP1, pour lequel le réglage de la H.T. se fait manuellement. Autrement, les fonctions que possède chacun sont identiques, et le comptage se fait de la même manière pour les deux CAPP.



Pour pouvoir estimer l'incertitude sur les résultats donnés par les CAPP, on a déterminé leur rendement. Pour cela, on a placé sur les scintillateurs, placés sur les photomultiplicateurs, une source d'américium 241 scellée, dont on connaît l'activité. On obtient le rendement des CAPP à partir du rapport du nombre de désintégrations expérimental sur le nombre de désintégrations théoriques. Cette efficacité est déterminée à partir de l'activité des sources utilisées.

L'incertitude sur ce calcul est déterminée par :

$$\sigma_{\eta} = \sqrt{\frac{1}{(N_{thé})^2} \sigma_{Nmes}^2 + \left(-\frac{N_{mes}}{N_{thé}^2}\right)^2 \cdot \sigma_{Nthé}^2}$$

En effectuant une moyenne sur les rendements et en calculant l'incertitude sur chacun, on a obtenu un rendement de 98 % à plus ou moins 1,6 % pour le CAPP1, et un rendement de 96,2 +/- 1,6 % pour le CAPP2 sur 4π.

ANNEXE 2 : METHODE DE COMPTAGE NAZAROFF

Introduction

Ce programme permet de remonter, à partir d'un comptage global des désintégrations alpha, à l'activité volumique des descendants du radon dans l'air; il s'agit de la méthode de Thomas, ainsi que de deux de ses variantes, se différenciant par les durées des temps de comptage global.

Le programme calcule également l'énergie alpha potentielle et effectue un calcul d'incertitude sur les activités volumiques des trois descendants du radon pour un intervalle de confiance demandé.

Description de la méthode

Le prélèvement sur filtre des descendants du radon s'effectue au débit Q. Le temps d'échantillonnage est fixé à $T_e = 5$ min. Le comptage du nombre d'impulsions émises se fait sur trois périodes: ΔT_1 , ΔT_2 , ΔT_3 . Ce programme propose de faire varier ces trois périodes:

Chaque ΔT_i est donné sous la forme $[T_i1; T_i2]$,

où :

T_i1 est l'instant où commence le comptage

T_i2 est l'instant où se termine le comptage,

T_i étant initialisé au début de l'échantillonnage.

Première variante :

$T_e = [0; 5\text{min}]$

$\Delta T_1 = [6; 9]$ $\Delta T_2 = [12; 29]$ $\Delta T_3 = [40; 60]$

Deuxième variante :

$T_e = [0; 5\text{min}]$

$\Delta T_1 = [7; 10]$ $\Delta T_2 = [13; 30]$ $\Delta T_3 = [42; 60]$

Troisième variante : (méthode de Thomas)

$T_e = [0; 5\text{min}]$

$\Delta T_1 = [7; 10]$ $\Delta T_2 = [11; 25]$ $\Delta T_3 = [26; 35]$

Remarque

Pour le calcul de faibles activités, il est conseillé d'effectuer un comptage sur une durée totale plus longue. Les activités minimum mesurables avec chacune de ces méthodes sont données dans l'article auquel se réfère ce programme (voir références plus loin).

La durée du temps d'attente entre la fin du prélèvement et le début du comptage dépend bien évidemment de la proximité du matériel d'échantillonnage et du matériel de comptage.

A l'exécution

Données d'entrées :

- Débit du prélèvement et incertitude sur le débit (pour un intervalle de confiance de 95 %): [l/min]
- Efficacité du détecteur sous 4π et incertitude sur l'efficacité (pour un intervalle de confiance de 95 %) [%]
- Nombre de mesures du bruit de fond, et nombre d'impulsions obtenues pour chacune de ces mesures [coups/min]
- Méthode de comptage global choisie
- Nombre de particules alpha comptées pendant ΔT_i , ($i = 1, 2, 3$)
- Choix de l'intervalle de confiance avec lequel le résultat doit être donné (en nombre d'écart-type).

Données de sortie :

- Activité volumique des descendants du radon dans l'enceinte au début du prélèvement:
- A_i , ($i=RaA, RaB, RaC$) [Bq/m^3] ou [pCi/l]
- Incertitudes relative et absolue sur l'activité volumique des descendants du radon
- Energie alpha potentielle des descendants du radon dans l'enceinte au début du prélèvement :
- EAP totale, [J/m^3] [nJ/m^3]
- Possibilité d'enregistrement sous fichier.

Calculs internes

Calculs des activités volumiques des descendants du radon

Les coefficients des équations donnant les activités en fonction du nombre de coups pendant chacune des périodes sont données dans l'article suivant:

W. W. NAZAROFF, 1984, Optimizing the total-alpha three count technique for measuring concentrations of radon progeny in residences, Health Physics, Vol. 46, No 2, pp. 395-405

Calcul d'incertitude

Le calcul d'incertitude est effectué comme suit :

Soit une fonction F dépendant de n variables non corrélées X_i :

$$F = fct^\circ (X_1, X_2, \dots, X_n)$$

L'incertitude absolue sur F , σ_F , se calcule à partir de la relation suivante :

$$\sigma_F^2 = \sum_{i=1}^{i=n} \left(\frac{\partial F}{\partial X_i} * \sigma_{X_i} \right)^2$$

σ_{X_i} étant l'incertitude absolue sur X_i .

Pour un comptage radioactif dont le nombre N de coups excède 100, on $X_i=N$ et $\sigma_{X_i}=(N)^{1/2}$.

ANNEXE 3 : SIMULATION MONTE CARLO

Les méthodes de modélisation Monte Carlo permettent de simuler "l'histoire" d'une particule individuelle dans un milieu atténuateur, en tenant compte du caractère probabiliste des différents processus physiques pouvant être rencontrés lors de sa traversée. Cet historique prend en compte les éventuelles particules secondaires et s'arrête dès lors que l'énergie de la particule est en dessous d'un niveau seuil ou atteint une zone de réjection.

1. Codes de Simulation Monte Carlo

Les codes Monte Carlo deviennent un outil essentiel en physique de l'interaction rayonnement matière, tant dans le domaine de la radioprotection que dans celui de la physique médicale, en particulier la radiothérapie. La possibilité d'y inclure une grande partie de la physique de l'interaction élémentaire sous la forme de modèles numériques de plus en plus élaborés les rend à la fois plus prédictifs, précis et fiables. Ils permettent en outre la détermination de grandeurs inaccessibles par l'expérience. Parmi ces codes on peut citer : GEANT, PENELOPE et MCNP.

Le code MCNP (Monte Carlo N-Particles) est l'un des codes de calcul de transport de particules et d'interaction avec la matière les plus utilisés pour les calculs de modélisation. Ses domaines d'application sont variés, que ce soit la radioprotection, la dosimétrie, l'imagerie médicale, les calculs de réacteurs ou toute autre installation nucléaire. Les calculs de simulation s'appuient sur le transport des neutrons, des photons et des électrons seuls ou combinés dans des configurations tridimensionnelles complexes composées des matériaux divers.

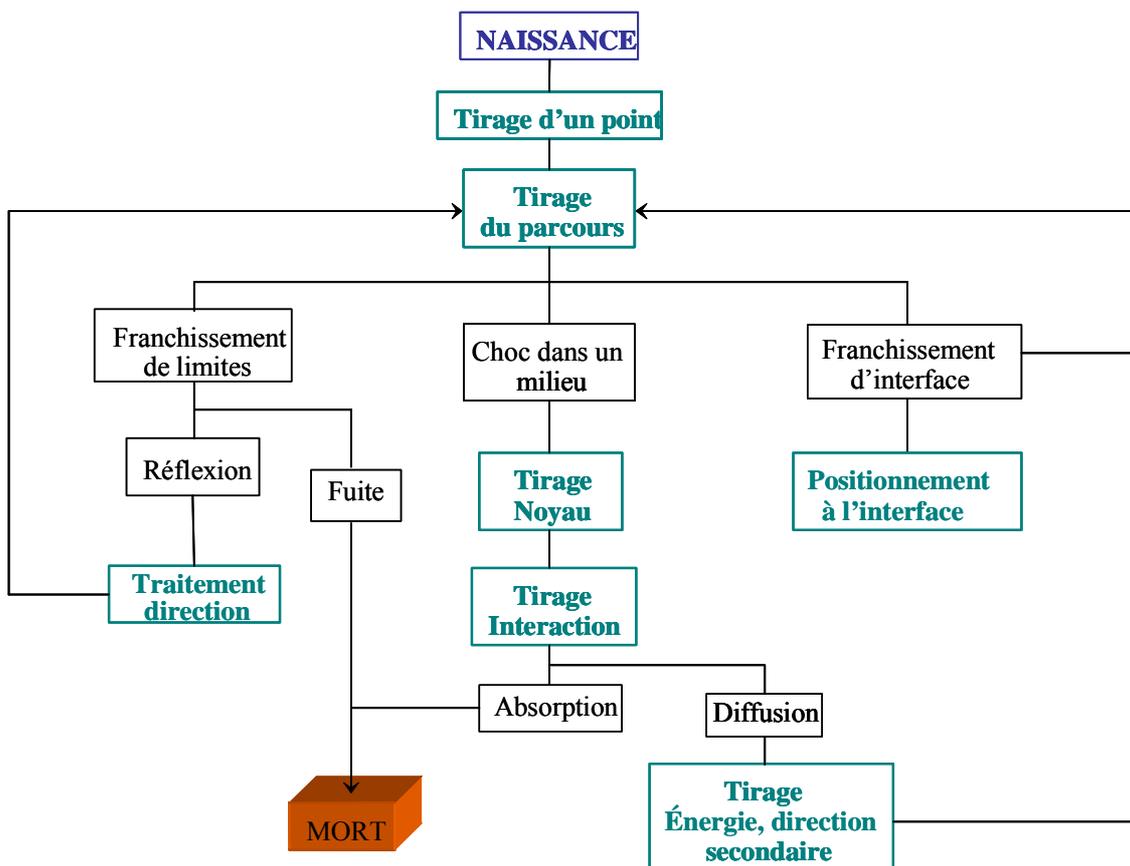
2. Principes généraux du Code MCNP

Le code MCNP a été conçu initialement et développé pour des applications militaires aux États-Unis d'Amérique. Originellement le programme était conçu seulement pour des neutrons. On s'aperçoit ensuite qu'il pouvait aussi être appliqué aux autres particules, en y faisant quelques ajouts ; ils furent faits dans les années cinquante. Le programme a ensuite été constamment amélioré et a été généralisé progressivement aux transports des électrons et des photons pour aboutir à celui que nous utilisons aujourd'hui. Actuellement ces trois particules peuvent être traitées individuellement ou en combinaison. Il intègre des énergies jusqu'à 1 GeV pour les électrons et les photons et jusqu'à 20 MeV pour les neutrons. Par les considérations ci-dessus, nous comprenons que le champ d'application de ce programme est très vaste et qu'il s'applique à d'innombrables problèmes de transport tridimensionnel neutronique et photonique basé sur la méthode probabiliste Monte Carlo. Ce code est actuellement étendu à certaines particules lourdes chargées dans sa version MCNPX. Le principe de la méthode Monte Carlo est de simuler le transport individuel des neutrons, des photons et des électrons puis d'enregistrer leurs interactions dans le milieu étudié. La géométrie de l'expérience est décrite sous forme de cellules adjacentes et homogènes délimitées par des surfaces. L'historique de chaque particule est suivi depuis sa naissance jusqu'à sa disparition (par absorption ou sortie du milieu). Une particule est définie par ses coordonnées, son vecteur de position et son énergie. Son interaction avec les atomes du milieu se traduit sous formes de probabilités discrètes ou de densité de probabilité à partir des sections

efficaces totales, partielles ou différentielles des neutrons avec le milieu. La simulation avec le code MCNP requiert les données suivantes: la géométrie du système, la définition de la source et les sections efficaces d'interactions. Le code MCNP utilise des spectres énergétiques continus disponibles dans différentes bibliothèques, ENDF (Evaluated Nuclear Data Files); ENDL (Evaluated Nuclear Data Library) qui ont été élaborées par le Centre de Données du Laboratoire de Brookhaven, New York. Pour son exécution, l'utilisateur doit définir un fichier d'entrée où sont spécifiés: la géométrie, les matériaux utilisés, la source d'irradiation et la réponse que lui-même veut obtenir.

La structure générale du fichier d'entrée est la suivante :

- Titre du problème,
- Définition des cellules (contenant les surfaces et la spécification des matériaux),
- Ligne vide,
- Définition des surfaces,
- Ligne vide,
- Définition des données (définition entre autres des matériaux et des estimateurs),



Organigramme de simulation Monte Carlo (MCNP)

Le programme fonctionne de la manière suivante: après avoir défini une géométrie particulière, les positions des sources, ainsi que la composition de chacun des matériaux, le programme génère, lors de son exécution, une particule en une position aléatoire de la source et la suit ensuite jusqu'à sa « mort ». Cette dernière peut survenir par absorption, par fuite, par fission, etc. suivant la nature de la particule en question. Les événements durant la durée de vie de la particule sont simulés séquentiellement.

Il est possible de définir différents estimateurs dans le code MCNP en fonction du résultat qu'on souhaite obtenir, c'est-à-dire le courant au travers d'une surface, le flux en un point, ... Habituellement, seule une carte est utile pour définir les estimateurs recherchés ; les autres paramètres sont optionnels. Dans ce qui suit, nous ne parlerons que des cartes Fn, En et FMn. La carte Fn est la plus importante ; il en existe sept différentes pour les neutrons, six pour les photons et quatre pour les électrons. Elles sont différenciées par leur n qui va de 1 à 8, sauf le 3. Lorsque l'on souhaite définir plusieurs estimateurs du même type, il est possible de placer des autres nombres avant le numéro de l'estimateur. Ainsi, les appellations F4 et F74 sont toutes deux des appellations pour l'estimateur 4. Un astérisque * placé avant le nom de l'estimateur change son unité.

Voici maintenant les différents types d'estimateurs (les deuxièmes unités mentionnées correspondent à celles obtenues par adjonction d'un astérisque) :

- **F1**, pour un neutron (N), un photon (P) et un électron (E) est le courant intégré à travers une surface. Son unité est un nombre de particules ou des MeV.
- **F2**, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une surface, en particules par cm^2 ou en MeV par cm^2 .
- **F4**, pour N, P ou E est le flux moyenné sur une cellule, en particules par cm^2 ou en MeV par cm^2 .
- **F5**, pour N et P est le flux en un point, en particules par cm^2 ou en MeV par cm^2 .
- **F6**, pour N, P ou E est l'énergie déposée moyennée sur une cellule, en MeV par g ou en jerks par g.
- **F7**, pour N est l'énergie de fission moyennée sur une cellule, en MeV par g ou en jerks par g.
- **F8**, pour N, P, E ou PE (photon/électron) est la distribution d'énergie des impulsions déposées dans un détecteur, en impulsions ou en MeV.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Baron, P. A. & Willeke, K. (2001). *Aerosol Measurement : principles, techniques, and application*, 2nd edition, p 539.
- Bricard, J. (1977). *Physique des aérosols. Nucléation, condensation, ions, électrisation, propriétés optiques*. Rapport CEA-R-4831, Commissariat à l'Energie Atomique, Gif-sur-Yvette, France.
- Bricard, J. & Pradel, J. (1966). Electric charge and radioactivity of naturally occurring aerosols. In *Aerosol Science* edited by C.N. Davies, Academic Press.
- Berezhnoi, V.M. & Kirichenko, V.V. (1964). Theory of diffusive deposition of decay products of inert gases in circular and flat channel. Translated from *Atomnaya Energiya* 17, 1031-1033.
- Bethe, H.A. & Salpeter, E.E. (1957). *Quantum Mechanics of One -and two- electron atoms*. Academic Press, New York.
- Busigin, A., Van Der Vooren, A. W., Babcock, J. C. & Phillips, C. R. (1981a). The nature of unattached RaA (²¹⁸Po) particles. *Health Physics*. 40, 333-343.
- Busigin, C., Busigin, A. & Phillips, C. R. (1981b). *Radiation Hazards in Mining: Control, Measurement and Medical Aspects*. Kingsport Press ed., M. Gomez, Kingsport TN, p. 1043.
- Castleman, J. A. W. (1982a). Consideration of the chemistry of radon progeny, *Environmental Science Technology*. 25, 730-735.
- Castelman, J.A.W. (1982b). Experimental studies on ion clustering: Relationship to aerosol formation processes and some atmospheric implications. *J. Aerosol Sci.* 13, 73.
- Chapmann, S. & Cowling, T.G. (1958). *The mathematical Theory of Non-uniform Gases*, Cambridge University Press, Cambridge, England.
- Cheng, Y.S. & Yeh, H.C. (1980). Theory of a screen-type diffusion battery. *J. Aerosol Sci.* 11, 313-320.
- Chu, K. D & Hopke, P. K (1988). Neutralisation kinetics for polonium-218. *Environmental Science Technology*. 22, 711-717.
- Clement, C. F. & Harrison, R. G. (1992). The charging of radioactive aerosols. *Journal. Aerosol Science.*, 23, 481-504.
- Cohen, B. S., Xiong, J. Q., Fang C. P. & Li W. (1998). Deposition of charged particles on lung airways, *Health Physics*. 74, 554-560.
- Daisey, J. M. & Hopke, P. K (1993). Potential for ion-induced nucleation of volatile organic compounds by radon decay in indoor environments. *Aerosol Science and Technology*. 19, 80-93.
- Dankelman V., Reineking A. & Porstendörfer J. (2001). Determination of neutralisation rates of ²¹⁸Po ions in air. *Radiation Protection Dosimetry* 94, 353-357.

- Della-Negra, S., Depauw, J., Joret, H., Le Beyec, Y. and Schweikert, E. A. (1988). Secondary ion emission induced by multicharged keV ion bombardement of solid targets, *Physical review letters*, 60, 10, 948.
- De Wieclawik, W. (1969). *C.R. Acad. Sc. Série B*, 268, 1268.
- Ding, H. (1993). Measurement of HO_x Production Rate due to radon Decay in Air. Thèse de doctorat, Clarkson University, Postdam, USA.
- Dua, S. K., Kotrappa, P. & Bhanti, D. P. (1978). Electrostatic Charge on Decay Products of Thoron. *American Industrial Hygiene Association Journal* 39, 339-345.
- Dua, S. K & Kotrappa, P. (1981). Comment on the charge on Decay Products of Thoron and Radon, *American Industrial Hygiene Association Journal*. 42, 242-243.
- Dua, S. K., Kotrappa, P. & Gupta, P. C. (1983). Influence of relative humidity on the charged fraction of decay products of radon and thoron. *Health Physics*, 45, 152.
- Duquesne, M., Thèse, Paris (1956). *Ann. Phys.* 1961, 643.
- Ehrenhaft, F. (1925). The electrical behaviour of radioactive colloidal particles of the order of 10⁻⁵ cm as observed separately in a gaz. *Phil. Mag.* 49, 633-648.
- Erman, P., Sigfridsson, B., Carlson, T.A. & Fransson, K. (1968). *Nucl. Phys. A* 112, 117.
- Fontan, J., Blanc, D., Huertas, M.L. & Marty, A. M. (1969). Mesure de la mobilité et du coefficient de diffusion des particules radioactives. In: *Planetary electrodynamics* (edited by S. C. Coronti and J. Hughes), Vol.1 (New York: Gordon and Breach).
- Frey, G., Hopke, P. K. & Stukel, J. J. (1981). Effect of trace gases and water vapour on the diffusion coefficient of Po-218. *Science*, 211, 480-481.
- Friedlander, S. K. (2000). *Smoke, dust, and haze: fundamentals of aerosol dynamics*. Oxford University Press.
- Gensdarmes, F. (2000) Le processus de charge électrique: des aérosols non radioactifs en milieu fortement ionisé, des aérosols radioactifs artificiels émetteurs bêta, Thèse de Doctorat, Université Paris XII, Rapport CEA-R-5941.
- Gunn, R. (1954). Diffusion charging of atmospheric droplets by ions, and the resulting combination coefficients. *Journal of metrology*. 11, 339.
- Harrison, G. (1992). *Aerosol charging and radioactivity*. Ph.D. Thesis, London, University.
- Hopke, P. K. & Ramamurthi, M. (1988). Production of ultrafine particles by radiolysis. *Aerosol Science. Technology*. 19, 1323-1325.
- Howard, A. & Strange, W.P. (1994). Determination of ²¹⁸Po⁺ ionic neutralization rates in gases. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 349, 481-488.
- Ingham, D.B. (1975a). Diffusion of aerosols from a stream flowing through a cylindrical tube. *J. Aerosol Sci.* 6, 125-132.

- Ingham, D.B. (1975b). Diffusion of disintegration products of radioactive gases in circular and flat channels. *J. Aerosol Sci.* 6, 395-402.
- Ingham, D.B. (1984). Diffusion of aerosols from a stream flowing through a short cylindrical tube. *J. Aerosol Sci.* 15, 637-641.
- Ivanov, V. D. & Kirchenko, V. N. & Petryanov, I. V. (1969). Charging of Alpha-Active Aerosols by Secondary Electron Emission, *Soviet Physics-Doklady.* 13, 9, 902-904.
- Ivanov, V. D. & Kirchenko, V. N. (1970). Spontaneous unipolar charging of beta- active "hot" aerosol particles. *Soviet Physics-Doklady,* 14, 9, 859-862.
- Joret, H. (1990). Thèse sur la désorption ionique à partir de surfaces solides sous impact d'ions lents (keV) et rapides (MeV). Influence de l'état de charge et de l'angle d'incidence dans la voie d'entrée. Rapport Institut de Physique Nucléaire d'Orsay - T.90.05.
- Kojima, H., (1988). Experimental estimation of a recoil factor in alpha decay of Ra A. *Res. Let. Atmos. Elec.* 8, 69-74.
- Madelaine, G., (1966). Comportement des descendants des du radon et du thoron en atmosphère dépoussiérée. *Tellus* 18, 593.
- Malet, J. (1997). Thèse sur le transport et dépôt des aérosols nanométriques applications à la fraction libre des descendants à vie court du radon. Rapport CEA-R-5776.
- Malet J. (2000). Mass transfer of Diffusive Species with Nonconstant In-flight formation and removal in laminar tube flow. Application to unattached short-lived radon daughters, *Aerosol Science and Technology,* 32, 168-183.
- Malet, J., Montassier, N., Boulaud, D. & Renoux, A. (1995a). Diffusion of radon daughters in laminar tube flow. *J. Aerosol Sci.* 26, S325-326.
- Mercer, T. T. (1976). The effect of particle size on the escape of recoiling RaB atoms from particulate surface. *Health Physics.,* 31, 173-174.
- Nazaroff, W.W. (1984). Optimizing the total-alpha three count technique for measuring concentrations of radon progeny in residences. *Health Physics.* 46, 395-405.
- Phillips C. R., Khan A. and Leung H. M. Y. (1988). The nature and determination of the unattached fraction of radon and thoron progeny. in: *Radon and its decay products in indoor air*, eds. Nazaroff W. W and Nero A. V., John Wiley & Sons, pp. 203-256.
- Porstendörfer, J. Röbig, G. & Ahmed , A. (1976). Experimental determination of the attachment coefficient of atoms and ions on monodisperse aerosols. *Journal. Aerosol Science.,* 10, 21-.
- Porstendörfer, J. & Mercer, T. T. (1979). Influence of Electric Charge and Humidity upon of the Diffusion Coefficient of Radon Decay Products. *Health Physics.* 37, 191.
- Porstendörfer, J. (1994). Properties and behaviour of radon and thoron and their decay products in the air. *Journal. Aerosol Science.,* 25, 219-263.

Porstendörfer, J. , Pagelkopf, P. & Grundel, M. (2005). Fraction of the positive ^{218}Po and ^{214}Pb clusters in indoor air. *Radiation Protection Dosimetry*. 113, 342-351.

Raabe, O. G. (1968). Measurements of the Diffusion Coefficient of Radium A. *Nature London*, 217, 1143-1145.

Raabe, O.G. (1969). Concerning the interactions that occur between radon decay products and aerosols. *Health Phys.* 17, 177-185.

Raabe, O.G. & Wrenn, M.E. (1969). Analysis of the activity of radon daughter samples by weighted least squares. *Health Phys.* 17, 593-605.

Raes, F., Janssens, A. & Vanmarcke, H. (1985). A closer look at the behaviour of radioactive decay products in air. *Science Total Environmental*, 45, 205-218.

Raghunath, B. & Kotrappa, P. (1979). Diffusion coefficients of decay products of radon and thoron. *Journal of Aerosol Science*, 10, 133.

Ramamurthi, M. (1989). The detection and measurement of the activity size distributions ($dp > 0,5\text{nm}$) associated with radon decay products in indoor air. Thèse de doctorat, University of Illinois, Urbana, USA.

Rohsenow, W.M. & Choi, H.Y. (1965). Heat, mass, and momentum transfer, Prentice-Hall, Inc., Englewood Cliffs, New Jersey, USA.

Renoux, A. (1965). Etudes des ions radioactifs de l'atmosphère, thèse de doctorat, Université de Fac-Science, Rapport CEA R-2771, Paris, France.

Shi, B. & Hopke, P.K. (1991). Study of neutralization of ^{218}Po ions by small ion recombination in O_2 , Ar, and N_2 . *Health Phys.* 61, 209-214.

Szucs, S. & Delfosse, J. M. (1965). Charge Spectrum of Recoiling ^{218}Po in The α Decay of ^{220}Rn . *Physical Review Letters*. 15, 4, 163.

Tan, C.W. (1969). Diffusion of disintegration products of inert gases in cylindrical tubes. *Int. J. Heat Mass Transfer*. 12, 471-478.

Thomas, J. W. & Laclare, P. C. (1970). A study of the two-filter method for radon-222. *Health physics*. 18, 113.

Tymen, G. & Renoux, A. (1977). Calcul des coefficients de fixation des petits ions positifs en atmosphère bipolaire symétriques. *Chemosphère*, n° 7, 393-400.

Wellisch, E. M. (1913). The distribution of the active deposit of radium in an electric field. *Philosophical Magazine*, 26, 623-635.

www.srim.org

Yeh, H. C. (1976). A theoretical study of electrical discharging of self-charging aerosols. *Journal of Aerosol Science*. 7, 343-349.

Yeh, H. C., Newton, G. J., Raabe, O. G. & Boor D. B. (1976). Self-charging of ^{198}Au -labeled monodispersed gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer. *Journal of Aerosol Science*. 7, 245-253.

Yeh, H. C., Newton, G.J., Raabe, O.G. and Boor, D. B. (1978), Charge distribution on plutoniumcontaining aerosols produced in mixed-oxide reactor fuel fabrication and the laboratory, *Health Phys*. 35, 500-503.