

IMPACT DE LA MASSE DE PARTICULES SUR LE COMPORTEMENT D'UN MONITEUR DE MESURE DE LA CONTAMINATION ATMOSPHÉRIQUE (CAM)

G. Hoarau (1)*, G. Dougniaux (1), F. Gensdarmes (1), B. Dhieux Lestaevel (1), J. Laurent (2), P. Cassette (3)

¹Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), 91192 Gif-sur-Yvette, France

²Electricité de France (EDF), 41220 Saint-Laurent Nouan, France

³Laboratoire National Henri Becquerel (LNHB), 91191 Gif-sur-Yvette, France

*gwenael.hoarau@irsn.fr

TITLE

Impact of particles mass on the behavior of a Continuous Air Monitor (CAM).

RESUME

Cet article présente la caractérisation du comportement d'un moniteur de mesure de la contamination particulaire radioactive atmosphérique en condition de chantier de démantèlement simulée en laboratoire. Les premiers résultats présentés dans ce papier mettent en avant une mauvaise adaptation de la compensation dynamique du bruit de fond dans des conditions de fonctionnement non prises en compte dans les référentiels IEC.

ABSTRACT

This paper presents the characterization of the behavior of a Continuous Air Monitor (CAM) under dismantling site conditions simulated in laboratory. The first results presented in this paper highlight a misinterpretation of the dynamic background compensation in operating conditions not taken into account in IEC standards.

MOTS-CLÉS : compensation, bruit de fond, porosité / **KEYWORDS** : compensation, background, packing porosity

INTRODUCTION

Dans un contexte de maîtrise du confinement et des rejets liés aux opérations en chantier de démantèlement, une surveillance de la contamination atmosphérique réglementaire assure la radioprotection des travailleurs. Les moniteurs de mesure de la contamination atmosphérique (CAM) mesurent en temps réel et en continu les activités volumiques α et β portées par les aérosols. Ils ont pour but d'émettre une alarme sonore et visuelle en cas de dépassement d'un seuil préalablement fixé par l'exploitant, ajusté aux risques présents sur site. Le comportement des CAM est évalué selon les conditions fixées par des normes internationales, telles IEC 60761, IEC 61172 et IEC 61578, lesquelles définissent en particulier les caractéristiques de l'aérosol d'essais. Toutefois, les conditions réelles d'utilisation des CAM peuvent être différentes des conditions d'essais normatives, ce qui implique un comportement des CAM mal maîtrisé. Ainsi, les CAM utilisés en chantier de démantèlement émettent un nombre de faux positifs plus important que prévu, c'est-à-dire une alarme sans présence de radioactivité avérée. Une campagne de mesure, menée par l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) sur le chantier de démantèlement de la centrale nucléaire des Monts d'Arrée, à Brennilis, a mis en avant la présence de grosses particules ($> 10 \mu\text{m}$) et des variations rapides ($< 30 \text{ min}$) de concentration en particules dans l'atmosphère. L'impact de la masse de particules accumulée sur des filtres de prélèvement fibreux sur la mesure nucléaire a déjà été étudié par Geryes & Monsanglant-Louvet (2011) pour les particules fines et par Huang *et al.* (2002), Seiler *et al.* (1988), pour des particules plus grosses. Afin de caractériser le comportement d'un CAM face à des situations hors des référentiels IEC, une enceinte expérimentale a été développée (Hoarau *et al.* 2019) pour générer de manière contrôlée des conditions atmosphériques représentatives de celles mesurées en chantier de démantèlement. Les grosses particules dégradent la mesure du CAM et modifie l'évaluation du bruit de fond (lié aux descendants du radon, ^{218}Po et ^{214}Po principalement) particulièrement dans la région de mesure des α -artificiels (^{239}Pu , ^{241}Am , etc.). Lorsque la contamination en grosses particules dans l'air varie fortement, le CAM n'a pas le temps d'ajuster son bruit de fond et donc l'activité α -artificiels augmente à tort. Afin d'établir la relation entre le dépôt des aérosols sur le filtre de prélèvement et le bruit de fond dans la région des α -artificiels, les spectres en énergie mesurés par le CAM, exposé à ces conditions de chantier, sont ajustés par le modèle proposé par Bortels *et al.* (1987). Ceci permet de quantifier l'évolution de la dégradation du spectre en énergie mesurée par le moniteur et son influence sur les interférences entre la mesure des α -naturels et des α -artificiels.

1. CONDITIONS D'ESSAIS ET CARACTÉRISATION

Dans le tableau 1, les conditions d'évaluation des CAM préconisées par les normes IEC sont comparées à celles mesurées en chantier de démantèlement (Dougniaux *et al.* 2015). La radioactivité naturelle est

générée par le banc ICARE. Ce dernier permet de produire de manière contrôlée un aérosol calibré en taille et en activité marqué avec des descendants solides du radon (Monsanglant-Louvet *et al.* 2012).

Tableau 1 : Conditions d'évaluation des CAM préconisées par les normes IEC comparées aux conditions mesurées en chantier de démantèlement. Les conditions atteignables dans la chambre expérimentale sont aussi reportées

Caractéristiques	IEC		Chantier de démantèlement	Chambre expérimentale
	Aérosols radioactifs artificiels	Aérosols radioactifs naturels		
DAMM ¹ (μm)	0,4 à 4	0,2	> 10	jusqu'à 25
Concentration (mg.m ⁻³)	0,03 à 1	0,0004 à 0,04	> 1	jusqu'à 50

Le CAM est soumis pendant deux heures à une atmosphère stable en radon (²²²Rn) et descendants (tableau 1, aérosols radioactifs naturels) de 30 Bq.m⁻³ produite par le banc d'essais ICARE. Deux poudres d'alumine (Al₂O₃, ρ = 3,95 g.cm⁻³, DAMM = 13 et 20 μm) sont utilisées pour produire des aérosols simulant la qualité de l'air intérieur des conditions de chantier de démantèlement. L'aérosol est généré en utilisant un Vortex Shaker, développé au laboratoire par Gensdarmes et Roynette (2013), pendant des durées variables pour atteindre différentes masses déposées sur le filtre du CAM. Ce dernier prélève (à 35 L.min⁻¹) en continu le mélange d'aérosol radioactif naturel (DAMM égal à 0,4 μm et concentration égale à 1,33 μg.m⁻³) et d'aérosol d'alumine de concentration variable. Il mesure et enregistre en temps réel un spectre en énergie (figure 1).

Sur la figure 1, la mesure en condition de référentiel IEC est représentée en noir (masse surfacique prélevée calculée à 1,14 μg.cm⁻² à partir du DAMM des descendants solides, de leur concentration dans l'enceinte et de la durée de prélèvement égale à 2 heures), et en rouge les conditions de chantier avec DAMM égal à 13 μm et une concentration de 1,5 mg.m⁻³ (masse surfacique prélevée égale à 1,3 mg.cm²). La fenêtre n°1 (ROI1) correspond à la plage d'énergie dans laquelle les rayonnements α des émetteurs α artificiels (par exemple ²³⁹Pu ou ²⁴¹Am), apparaissent. Dans cette fenêtre, l'influence des descendants du radon doit être compensée. Cette dernière est calculée à l'aide d'un paramètre k₁₂ fixe, lequel traduit la proportion de ²¹⁸Po dans la fenêtre n°1 (rapport des taux de comptage de ROI1 sur celui de ROI2).

Le spectre rouge présente une altération significative de sa forme par rapport au spectre noir : les contributions des descendants solides du radon (²¹⁸Po et ²¹⁴Po) dans la fenêtre n°1 augmentent. Cependant, la valeur du paramètre k₁₂ n'évoluant pas, l'influence du ²¹⁸Po dans la fenêtre n°1 est sous-estimée et le moniteur calcule une activité α-artificiel surestimée. Cette activité α-artificiel surestimée peut dépasser le seuil d'alarme.

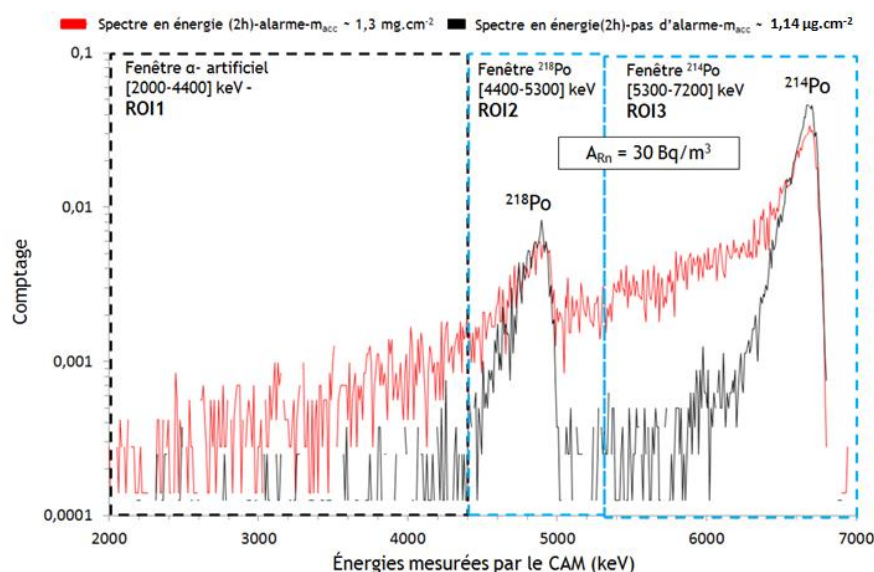


Figure 1 : Deux spectres en énergie mesurés par le CAM, avec (rouge) et sans (noir) dépôt d'aérosols

¹ DAMM = Diamètre Aérodynamique Médian en Masse

Afin de quantifier l'évolution du paramètre k_{12} en fonction de la masse de particules prélevée par le CAM, les spectres sont modélisés à l'aide d'un modèle proposé par Bortels *et al.* (1987) (équation 1). Ce modèle est la convolution d'une gaussienne $G(x)$, qui décrit l'énergie de la particule α déposée dans le détecteur, avec la somme de deux fonctions exponentielles $E_1(x)$ et $E_2(x)$, qui décrivent l'atténuation de l'énergie de la particule α dans la matière, et enfin A l'amplitude du pic α . Les coefficients η_1 et η_2 correspondent au poids respectif de chaque exponentielle. L'ajustement de ce modèle aux mesures expérimentales est réalisé en utilisant un critère de minimisation basé sur une distribution de Poisson.

$$\text{Alpha}(x) = AG(x) * \left(\frac{1}{\eta_1 + \eta_2} \right) [\eta_1 E_1(x) + \eta_2 E_2(x)] \quad (1)$$

Ce modèle est utilisé en deux temps, le premier pour déterminer la contribution en taux de comptage du ^{214}Po dans ROI1 et ROI2 afin de le soustraire et le deuxième pour déterminer le taux de comptage dans ces mêmes fenêtres qui provient donc uniquement du descendant solide ^{218}Po . Ainsi, on est capable de calculer la valeur du coefficient k_{12} pour chaque expérience menée.

2. RÉSULTATS & DISCUSSIONS

Dix-sept essais avec deux aérosols, de DAMM de 13 et 20 μm , ont été réalisés et dix-sept spectres ont donc été enregistrés. Tous ont été modélisés selon la méthode proposée ci-dessus et les paramètres k_{12} ont été calculés. La figure 2 présente les paramètres k_{12} calculés pour les essais avec les deux aérosols de DAMM de 13 μm et 20 μm , respectivement représentés en triangles bleus et carrés rouges. Les incertitudes présentées sont estimées à l'aide de répétitions.

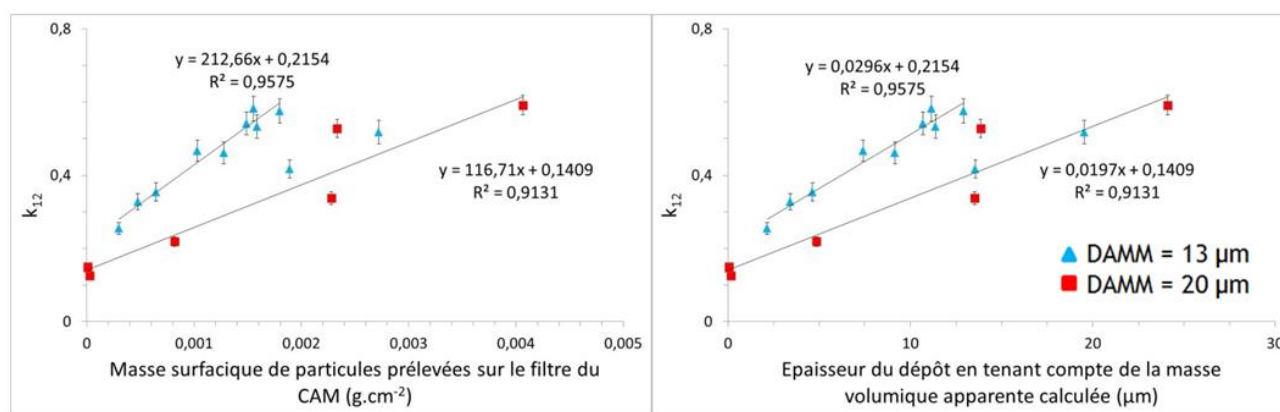


Figure 2 : Évolution du coefficient k_{12} en fonction de la masse surfacique de particules prélevée sur le filtre du CAM (à gauche) et en fonction de l'épaisseur du dépôt en tenant compte de la masse volumique apparente calculée (à droite). Les triangles bleus représentent les mesures effectuées avec DAMM = 13 μm et les carrés rouges celles avec DAMM = 20 μm

Le paramètre k_{12} suit une tendance linéaire par rapport à la masse de particules prélevées (figure 2 à gauche). L'ordonnée à l'origine (à masse nulle) est du même ordre de grandeur que le coefficient k_{12} utilisé par défaut dans le moniteur utilisé pour les essais.

Ces premiers résultats confirment que le coefficient k_{12} ne peut pas être fixé à une valeur dès lors que les conditions IEC ne sont plus satisfaites. Une évolution dynamique et adaptée de sa valeur, dépendante de la situation d'exposition, pourrait être envisagée afin d'améliorer la compensation du bruit de fond.

Par contre, une différence de pente pour les deux tailles de particules utilisées ressort aussi des mesures obtenues avec un rapport (r_1) entre les deux pentes de 1,82. Ceci nous laisse raisonnablement penser que la masse de particules accumulée sur le filtre du CAM ne permet pas d'expliquer, à elle seule, l'évolution du paramètre k_{12} .

L'atténuation de l'énergie des particules α dans la matière est impactée entre autres par la masse volumique du matériau et la quantité de matière traversée (Knoll, 2010). Dans l'étude que nous avons menée, la masse volumique du matériau est la même pour les deux DAMM utilisés. En conséquence, et en ne tenant compte que de la masse prélevée sur le filtre du CAM, les pentes de l'évolution de k_{12} devraient être similaires. La différence de pente peut être le fait de la porosité du dépôt de particules prélevées sur le filtre du CAM. Effectivement, le dépôt de particules sur le filtre ne forme pas un bloc compact mais plutôt un agrégat de particules laissant entre elles des espaces.

La porosité d'un dépôt de particules prélevées sur un filtre est fonction de nombreux paramètres, toutefois la taille des particules l'impacte fortement (Hoffmann *et al.* 1995), (Kasper *et al.* 2010), (Yu *et al.* 1997), etc. En utilisant la formule empirique de Yu *et al.* (1997), le calcul de la porosité pour notre système donne 65 % et 61 % respectivement pour DAMM égal à 13 μm et DAMM égal à 20 μm . Grâce à ces valeurs de porosité, on calcule des masses volumiques apparentes de dépôts respectivement de 1,39 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ et 1,54 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$. Connaissant la surface du dépôt (4,91 cm^2) il est possible de calculer l'épaisseur moyenne pour les deux tailles de particules et les différentes masses prélevées.

Sur la figure 2 (à droite), nous avons ainsi reporté le résultat obtenu de l'évolution du paramètre k_{12} en fonction de la hauteur du dépôt de particules sur le filtre du CAM. La prise en compte de la masse volumique apparente dans l'évolution de k_{12} permet de rapprocher sensiblement la valeur des deux pentes, avec un rapport (r_2) de 1,64, mais ne permet toujours pas d'expliquer son évolution dans sa globalité. Une question nouvelle est alors soulevée et concerne l'impact de la porosité du dépôt sur le comportement des particules porteuses de radioactivité et *in fine* de son incidence sur la mesure nucléaire.

3. CONCLUSIONS & PERSPECTIVE

Le moniteur de mesure de la contamination atmosphérique (CAM) calcule en continu et en temps réel l'activité α -artificiel en tenant compte de l'influence du bruit de fond (lié à la radioactivité naturelle) sur la mesure. Cette prise en compte est la compensation dynamique du bruit de fond qui est effectuée en utilisant un coefficient de compensation k_{12} . Ce coefficient est fixe et adapté aux conditions IEC. Hors de ces conditions, comme c'est d'ailleurs le cas en chantier de démantèlement, les résultats montrent une augmentation linéaire de k_{12} avec la masse prélevée sur le filtre du CAM. Une amélioration possible de la compensation du bruit de fond dans la ROI1 pourrait donc être réalisée en adaptant de manière dynamique la valeur de k_{12} à la situation d'exposition du CAM.

En revanche, le comportement du CAM hors référentiel IEC ne s'explique pas uniquement avec la masse prélevée sur son filtre. En effet, la différence de pente ($r_1 = 1,82$) dans l'évolution du paramètre k_{12} en fonction de la masse (cf. figure 2 à gauche) pour les deux tailles de particules mises en œuvre est une sorte de confirmation qu'au moins un paramètre supplémentaire doit être pris en compte. La porosité du dépôt de particules sur le filtre du CAM a été prise en compte (formule empirique proposée par Yu *et al.* (1997)) afin de calculer la masse volumique apparente des dépôts pour les deux tailles de particules. Toutefois, les résultats obtenus (cf. figure 2 à droite) montrent toujours une différence de pente ($r_2 = 1,64$). Ainsi, une nouvelle question est soulevée concernant le comportement des aérosols porteurs de radioactivité à l'intérieur du dépôt en forme de lit granulaire plus ou moins poreux.

Dans l'intérêt de quantifier l'impact de la porosité sur le comportement des aérosols radioactifs et *in fine* sur l'altération de la mesure nucléaire, une étude avec un panel de quatre tailles de particules différentes sera réalisée ultérieurement.

BIBLIOGRAPHIE

- Bortels, G., & Collaers, P. (1987). *Applied Radiation and Isotopes*, **38**, 831-837.
- Dougniaux, G., Monsanglant-Louvet, C., Teppe, A.-L., Marcillaud, B., Dhieux Lestaevel, B., Gensdarmes, F., Michielsen, N., Bondiguel, S. (2015). Rapport IRSN Réf. PSN-RES/SCA/2015-55.
- Gensdarmes, F., & Roynette, A. (2013). Brevet référence : W02013092816.
- Geryes, T., & Monsanglant-Louvet, C. (2011). *Radiation Protection Dosimetry*, **144**, 659-662.
- Hoarau, G., Dougniaux, G., Gensdarmes, F., Dhieux Lestaevel, B., Laurent, J., Cassette, P. (2019). Congrès Français Sur les Aérosols. 10.25576/ASFERA-CFA2019-16665
- Hoffmann, A. C., & Finkers, H. J. (1995). *Powder Technology*, **82**, 197-203.
- Huang, S. L., Schery, S. D., Alcantara, R. E., Rodgers, J. C., & Wasiolek, P. T. (2002). *Health Physics*, **83**, 884-891.
- IEC. 1992-09. CEI/IEC 61172.
- IEC. 1997-08. CEI/IEC 61578.
- IEC. 2002-01. CEI/IEC 60761.
- Kasper, G., Schollmeier, S., & Meyer, J. (2010). *Journal of Aerosol Science*, **41**, 1167-1182.
- Knoll, G. F. (2010). *Radiation detection and measurement*. (I. John Wiley & Sons, Éd.).
- Monsanglant Louvet, C., Liatimi, N., Gensdarmes, F. (2012). IEEE Transactions on Nuclear Science, **50**, 1414-1420.
- Seiler, F. A., Newton, G. J., & Guilmette, R. A. (1988). *Health Physics*, **54**, 503-515.
- Yu, A. B., Bridgwater, J., & Burbidge, A. (1997). *Powder Technology*, **92**, 185-194.