

Etude de la radioactivité artificielle fixée sur les noyaux de condensation atmosphériques au niveau du sol¹

Par A. RENOUX, *Faculté des Sciences de Paris, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (Seine), France*

(Manuscrit reçu le 15 Octobre 1965)

ABSTRACT

The technics established for the study of Radon and Thoron daughters were applied to the determination of γ activity on particles of a radius below $2 \cdot 10^{-6}$ cm at ground level. Long time samplings were used and the collections were measured with a γ multichannel spectrometer.

Our experimental results allow us to verify that γ activity fixed on particles with radii below $2 \cdot 10^{-6}$ cm represents an average of 16 % of the total artificial radioactivity.

La majeure partie de la radioactivité atmosphérique est due aux dépôts actifs du radon et du thoron (radioactivité naturelle). Mais il existe également une radioactivité artificielle (explosions nucléaires, ou produits radioactifs lâchés dans l'atmosphère pour l'étude de phénomènes météorologiques) se fixant sur les aérosols atmosphériques. Les particules qui nous intéressent sont constituées par des produits de fission assez récents dont la tableau ci-dessous indique les principales caractéristiques (FRISCH, 1958). Les produits de spallation (par exemple ³²P, ⁷Be) sont en quantités 10 à 100 fois plus faibles et ne jouent donc pas un rôle appréciable.

Elément	Période radioactive	Energie de rayonnement (Mev)
⁵⁴ Mn ^a	290 jours	0,840
⁹⁵ Nb	35 jours	0,768
⁹⁵ Zr	65 jours	0,757 à 0,724
¹⁰³ Ru	39,8 jours	0,500
¹⁰⁶ Rh ^b	30 secondes	0,513 à 0,620
¹⁴⁰ La	40,2 heures	1,600
¹³⁷ Cs	27 ans	0,661
¹⁴⁴ Ce	290 jours	0,135

^a Le ⁵⁴Mn est un produit d'activation (peut-être un traceur).

^b Le ¹⁰⁶Rh provient du ¹⁰⁶Ru (période un an) qui est un émetteur β^- -pur.

D'après ce tableau, on remarque, d'une part que tous ces corps sont des émetteurs radioactifs γ , d'autre part que leur période est, en général, de plusieurs mois. De plus, leur concentration dans la basse atmosphère est faible : quelques atomes pour 100 m³ d'air (JUNGE, 1962) au niveau du sol (contre 10² à 10³ atomes RaA par cm³ d'air) (RENOUX, 1965). Il nous faudra donc détecter ces particules avec les méthodes spécifiques des rayonnements γ , et leur période nous permettra d'effectuer les prélèvements de longue durée nécessités par leur faible concentration, afin d'obtenir une activité suffisante sur les capteurs.

I. Captation des aérosols

On s'efforce de sélectionner les aérosols suivant leur état de charge électrique et leurs dimensions.

Les gros ions sont captés sur les électrodes axiales (fils de 0.4 mm de diamètre) de tubes de ZELENY (RENOUX, 1965 et 1966) de 120 cm de long et 4 cm de diamètre (extérieur). Dans tout ce qui suit nous ne considérerons que les gros ions moyens (rayon moyen in-

¹ Ont collaboré à ce travail MM. BILLARD¹, BRICARD², CANET¹, FRANCOIS¹, GIROD², MADELAINE¹ et PRADEL¹. (¹ Commissariat à l'Energie atomique Fontenay aux Roses; ² Faculté des Sciences de Paris.)

férier à 210^{-6} cm), l'activité γ fixée sur les petits ions au niveau du sol étant trop faible pour être mesurés.

Les noyaux neutres de dimensions identiques à celle des gros ions moyens sont captés par une batterie de diffusion (RENOUX, 1965 et 1966) constituée de 800 plaques métalliques verticales de hauteur $b = 10$ cm et de longueur $z = 35$ cm distantes les unes des autres de $2a = 0,06$ cm. L'efficacité de cette batterie a été étudiée en fonction du débit de l'air qui la traverse. Dans le cas de ces expériences, nous utilisons un débit de 25 l/minute (efficacité de captation supérieure à 80 %). Etant donnée la faible activité captée, il n'est pas possible d'opérer à un débit plus faible.

Les aérosols ayant traversé les tubes de Zélény et la batterie de diffusion sont captés par des filtres papier dont l'efficacité de captation est pratiquement absolue (MADELAINE, 1964). La pénétration des aérosols à l'intérieur du filtre ne perturbe pas les comptages de rayonnement γ .

II. Détection de la radioactivité γ fixée sur les différents capteurs

Nous utilisons un spectromètre γ (JULLIOT, 1960) muni d'un détecteur à scintillations (sélecteur transistorisé multicanaux « Intertechnique » type SA.40).

1) *Le détecteur (sonde)* est constitué par un scintibloc (monocristal d'iodure de sodium INa activé au thallium monté directement sur un photomultiplicateur E.M.I. 9.584) relié à un préamplificateur transistorisé. Cette sonde est placée au centre d'une chambre en acier inox de 1.35 m^3 de volume, elle-même disposée à l'intérieur d'une cellule blindée en plomb dont les parois ont 10 cm d'épaisseur, ce qui élimine les effets parasites dus à la fluorescence α et au « rétrodiffuse » sur les parois de la chambre en inox (DUQUESNE *et al.*, 1960). Les impulsions reçues sont analysées par un sélecteur d'amplitude. L'amplitude de ces impulsions étant proportionnelle à l'énergie absorbée par le cristal I Na, il est possible de réaliser un spectre énergétique du rayonnement γ étudié. A cet effet, un convertisseur transforme l'amplitude du signal à analyser en un train d'impulsions périodiques dont le nombre N est proportionnel à cette amplitude et représente l'adresse du canal où ce signal doit être compté (fig. 1).

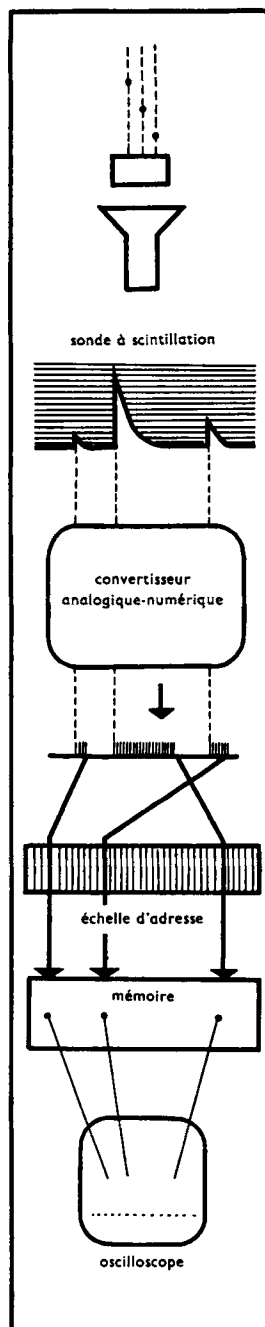


FIG. 1. Comptage de l'activité γ .

Une échelle d'adresse sélectionne le canal de rang N dans une mémoire à tores de ferrite et y inscrit une unité. On peut enregistrer jusqu'à 10^4 coups par canal. Les résultats sont donnés

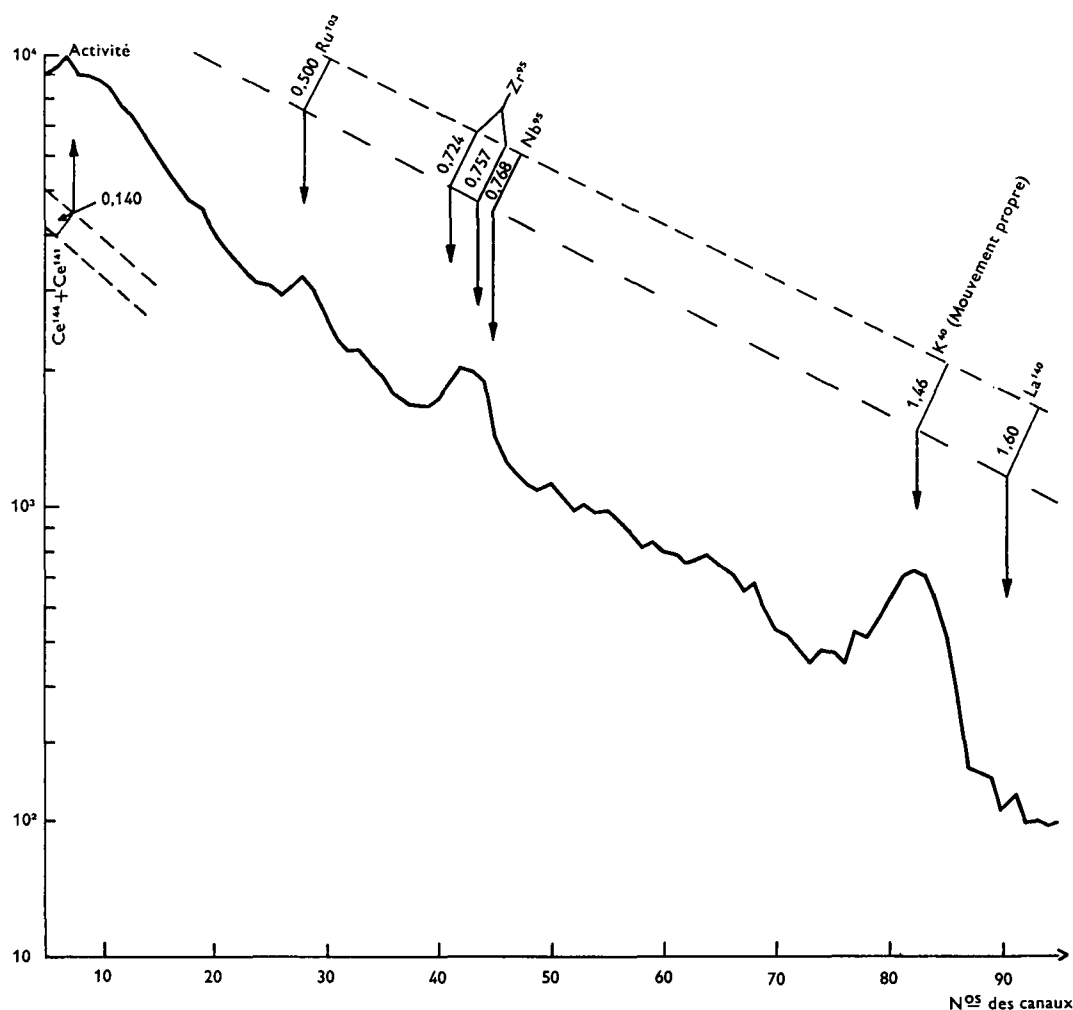


FIG. 2. Tube à gros ions. Prélèvement du 7/12/62 au 7/1/63. Comptage de 970 minutes du 10 au 11/1/63.

sous forme numérique par une machine imprimante. La mémoire de l'appareil permettant un « stockage » de l'activité, il est possible, par des comptages de longue durée (plusieurs centaines de minutes) de déceler de faibles radioactivités.

2) *Etalonnage de l'appareil.* Les spectres γ sont complexes et dus à plusieurs phénomènes (effet Compton, effet photoélectrique, effet de paires). Parmi ceux-ci, seul l'effet photoélectrique qui fournit le « pic photoélectrique » est représentatif du rayonnement étudié, qui peut être déterminé après un étalonnage préalable avec des sources connues. Dans tout ce qui suit, on se limite à des énergies inférieures à 1,8 Mev.

En fait, l'émission γ accompagne généralement une émission β . Un écran en plexiglass de 3 mm d'épaisseur arrête les β sans influencer sur le rayonnement γ de la source ou de l'échantillon à étudier.

III. Mise en évidence de gros ions radioactifs à vie longue (Renoux, 1964)

On place en série un tube de Zélény et un filtre papier monté à l'intérieur d'un porte-filtre étanche. Le débit de l'air à travers l'ensemble de captation est de 30 l/minute, la durée du prélèvement d'un mois. Le fil axial du tube de Zélény est porté à une tension négative de 2.840 volts (mobilité limite 10^{-3}

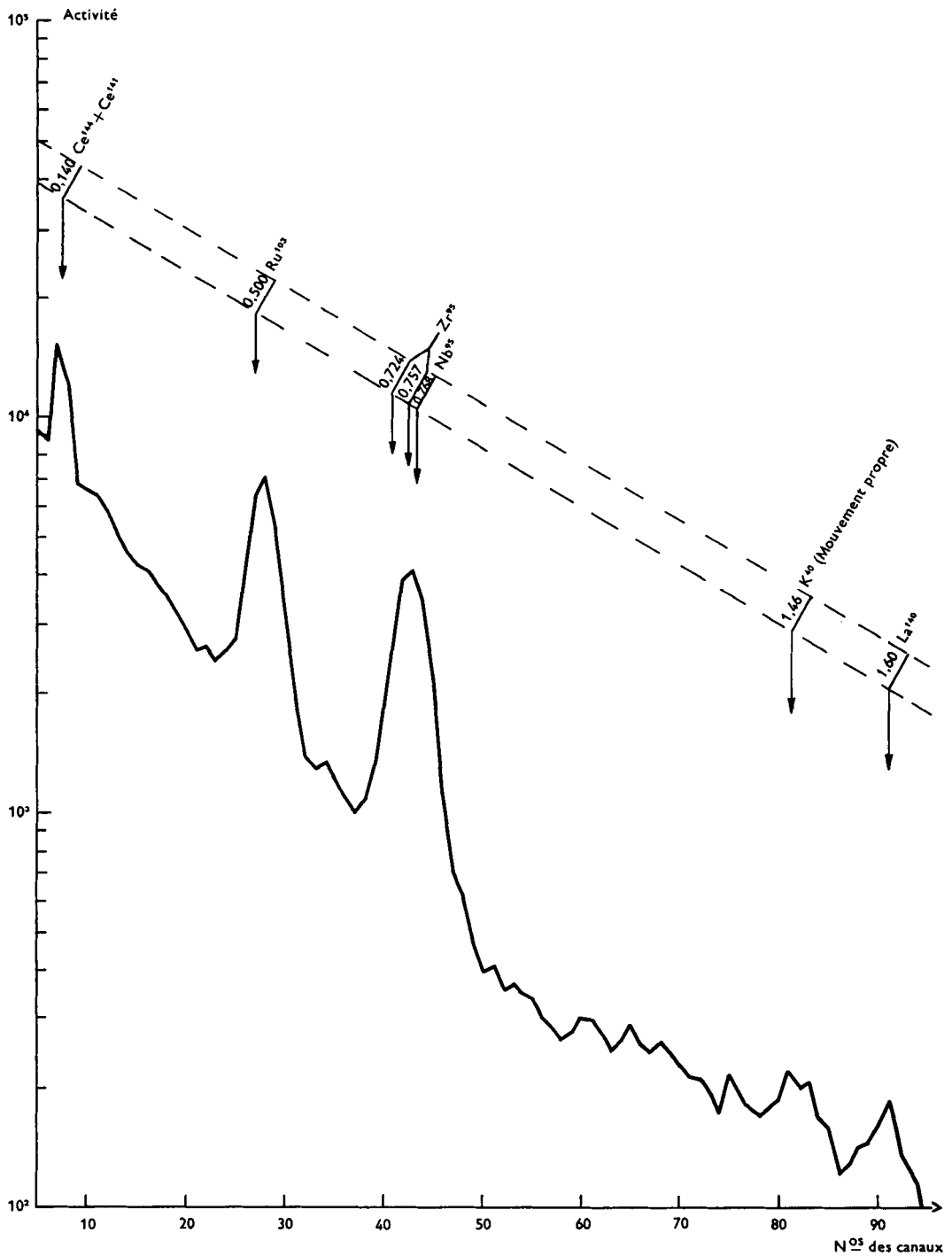


FIG. 3. Filtre papier. Prélèvement du 7/12/62 au 7/1/63. Comptage de 250 min le 11/1/63.

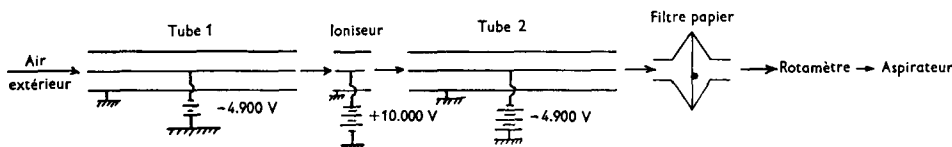


FIG. 4. Captation des aérosols radioactifs à vie longue.

cm/s/V/cm) et fixera donc des gros ions chargés positivement.

Pour cela, on compte le fil axial du tube à ions (on le découpe et on le fixe sur un support circulaire en papier de 26 mm de diamètre) pendant 970 minutes, et six parcelles du filtre papier de 26 mm de diamètre, empilées les unes sur les autres, pendant 250 minutes. Les fig. 2 et 3 indiquent les spectres obtenus. Au cours de ces premières mesures, le mouvement propre n'a pas été déduit, ce qui se traduit, dans le cas du fil axial du capteur de Zélény, par un élargissement des pics photoélectriques. Néanmoins l'activité était suffisante pour qu'on puisse les distinguer et les utiliser. On voit également apparaître le pic dû au ^{40}K et provenant du mouvement propre de la sonde.

L'activité γ de l'échantillon renfermant un émetteur donné est proportionnelle à la surface du pic photoélectrique fourni par cet émetteur. En comparant les surfaces des pics d'un corps donné, dans le cas du tube de Zélény et dans le cas du filtre, on peut donc connaître la proportion d'atomes de cet élément fixés sur les gros ions positifs. Bien entendu, une correction d'accumulation et, pour le filtre, une correction de surface, doivent être faites.

Le tableau ci-dessous représente le rapport de l'activité γ fixée par les gros ions positifs à l'activité totale fixée sur l'ensemble des aérosols naturels et résume les résultats obtenus

Elément	$^{144}\text{Ce} + ^{141}\text{Ce}$	^{103}Ru	$^{95}\text{Zr} - ^{95}\text{Nb}$	^{140}La
Gros ions > 0				
total	1,2 %	2,0 %	3,8 %	1,8 %

Les rapports indiqués sont valables à environ 30 % près.

On remarque que les rapports gros ions positifs/total sont voisins de 2 %, sauf pour le Zr-Nb où on obtient une valeur plus élevée. En prenant la moyenne de ces quatre résultats, on arrive à 2,2 %. En moyenne, 2,2 % de l'acti-

vité se trouvent donc sur des particules chargées positivement et de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-4}$ cm. On obtient 8 % pour le dépôt actif du radon et 5 % pour le dépôt actif du thoron (RENOUX, 1965).

IV. Utilisation de l'effet couronne

On a essayé de charger les noyaux de condensation radioactifs à vie longue électriquement neutres éventuellement présents dans l'air en utilisant l'effet couronne. L'ioniseur est (RENOUX, 1965) un cylindre en acier dans l'axe duquel une électrode de 10 cm de long est portée à un potentiel continu de +10.000 volts créant ainsi des ions positifs recueillis ensuite sur un tube de Zélény B (mobilité-limite 10^{-3} cm/s/V/cm). Un filtre rose F monté à l'intérieur d'un porte-filtre étanche capte ce qui reste (fig. 4.) L'ensemble de captation est précédé par un tube de Zélény A captant les gros ions moyens positifs (mobilité-limite 10^{-3} cm/s/V/cm). Le prélèvement a duré 44 jours, et les comptages ont été effectués pendant 900 minutes. En fait, le seul intérêt de cette expérience aura été la réalisation de spectres de gros ions radioactifs positifs extrêmement nets. En effet, on ne peut pas tirer des conclusions concernant la répartition granulométrique de la radioactivité γ car, nous l'avons vu précédemment une très grande partie des aérosols chargés par effet couronne se dépose sur les parois de l'ioniseur, faussant ainsi les mesures. La fig. 5 indique les spectres relatifs au tube de Zélény n° 1 (correspondant donc aux gros ions chargés positivement).

Ces spectres ont été réalisés à l'aide d'une méthode utilisée au C.E.A. par CANET et FRANÇOIS permettant d'éliminer le bruit de fond. Un mouvement propre préalablement effectué est injecté en soustraction dans le sélecteur de l'appareil. Pendant le comptage, ce bruit de fond s'équilibre avec celui de la mesure (aux fluctuations près), et il ne reste plus que

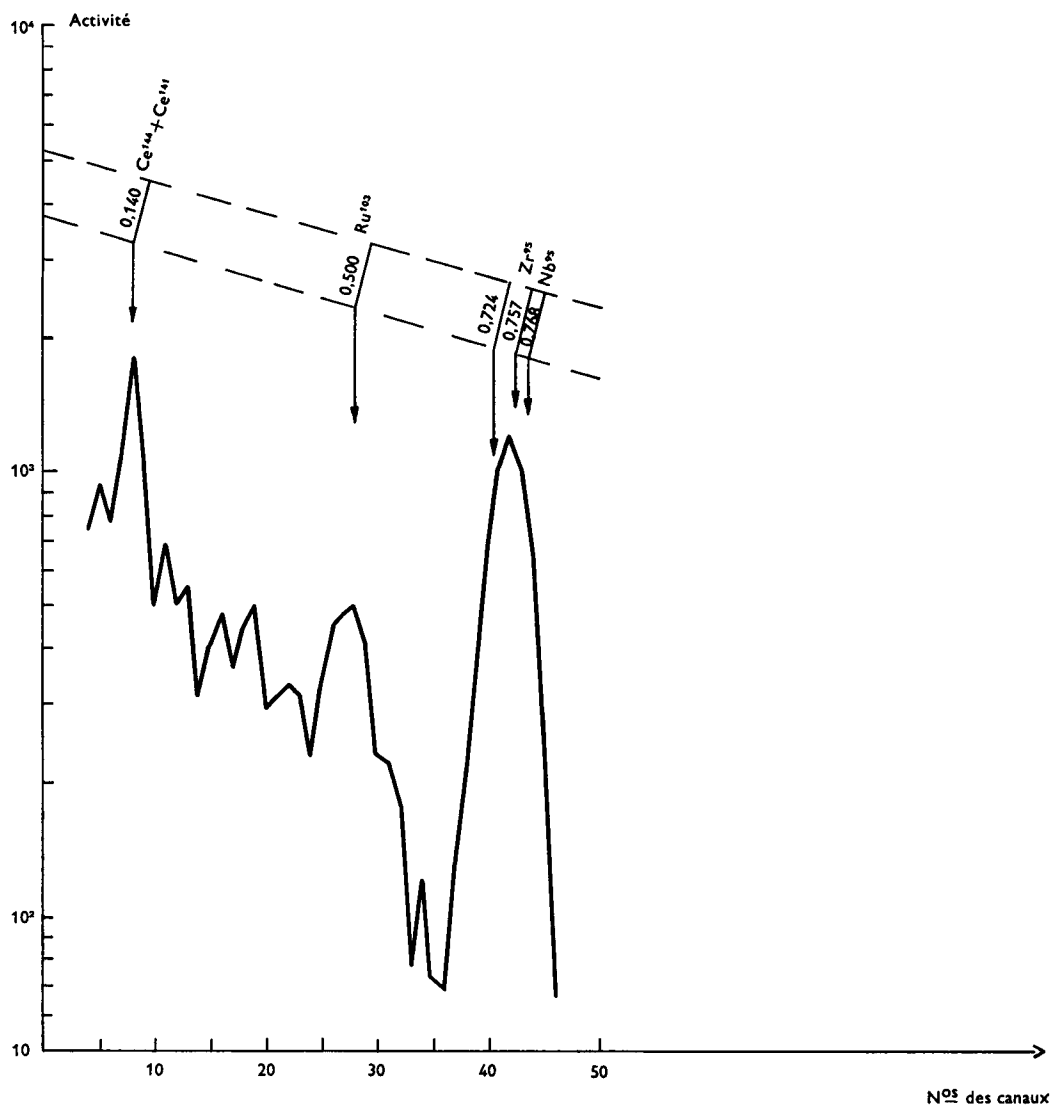


FIG. 5. Tube à gros ions n° 1. Prélèvement du 7/5 au 21/6/63. Compt age de 900 min. le 24/8/63.

les impulsions dues à l'échantillon étudié. De cette façon, on obtient des spectres beaucoup mieux définis (donc un meilleur pouvoir de résolution), ce qui accroît la précision de la mesure.

Ces expériences semblent indiquer que, dans le cas de la radioactivité artificielle γ , il y a une partie plus importante de l'activité fixée sur les grosses particules (de rayons supérieurs au micron) que dans le cas des dépôts actifs du radon et du thoron.

V. Mise en évidence de noyaux de condensation radioactifs à vie longue électriquement neutres

On utilise le montage de la fig. 6, identique à celui utilisé dans le cas des dépôts actifs du radon et du thoron (RENOUX, 1966). Les noyaux neutres traversent le tube de Zéleny B sans être captés et sont arrêtés par la batterie de diffusion D. La différence entre l'activité des filtres F_1 et F_2 placés à la fin de

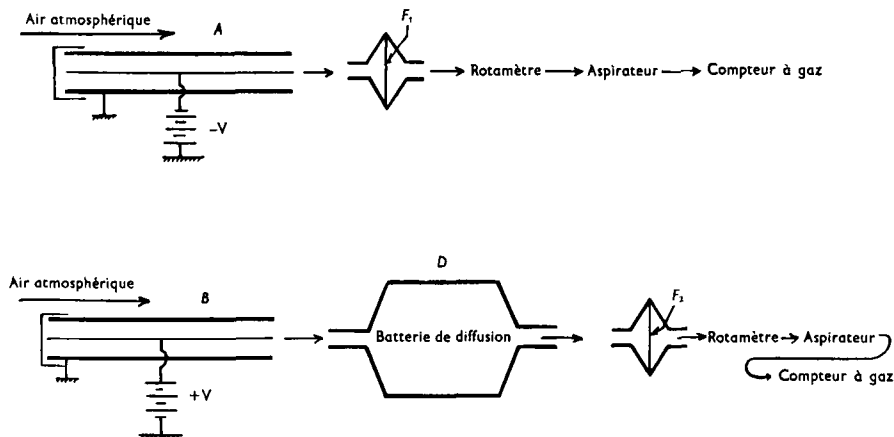


FIG. 6. Etude des noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres.

chacun des deux systèmes de prélèvements fonctionnant simultanément, doit permettre d'évaluer le nombre de noyaux de condensation radioactifs à vie longue électriquement neutres. Le débit de l'air à travers les deux systèmes est identique et égal à 25 l/Minute. A ce moment, l'efficacité de captation de la batterie de diffusion est, nous l'avons vu, de 80 à 90 % pour les gros ions moyens. La tension des fils axiaux des tubes de Zélény est la même en valeur absolue et correspond à l'efficacité de captation précédemment définie.

Au cours d'un premier prélèvement, nous n'avons pas constaté de différence entre les activités des filtres F_1 et F_2 (fig. 7). Cependant, on constate sur cette figure, l'apparition d'un nouvel élément le ^{54}Mn . Mais, par suite d'une baisse considérable de la radioactivité γ au niveau du sol, les quantités captées étaient trop faibles pour nous permettre de déceler des différences d'activités inférieures à 25 %. A plus forte raison, nous n'avons rien pu mesurer sur les deux capteurs de Zélény.

On observe, à chaque période de printemps, une augmentation importante de la radioactivité γ . Ce phénomène bien connu des Météorologistes nous a incité à refaire la même expérience en réalisant un prélèvement de 26 jours de durée, du 26 Mai au 23 Juin 1964. Effectivement, nous avons constaté un accroissement de la radioactivité γ de l'ordre d'un facteur 3. Bien que cette augmentation ait été insuffisante malgré tout pour permettre d'évaluer les activités fixées sur les fils axiaux des tubes A (gros ions positifs) et B (gros ions

negatifs) il semble toutefois que l'activité due aux gros ions positifs soit notablement plus importante que celle due aux gros ions négatifs, mais il n'est pas possible d'indiquer un ordre de grandeur. Par contre, nous avons observé une différence décelable entre l'activité du filtre F_1 et celle du filtre F_2 , mettant ainsi en évidence de façon certaine l'existence de noyaux neutres porteurs de radioactivité γ .

Les spectres obtenus avec les filtres sont identiques à celui de la fig. 7. Le tableau ci-dessous représente le rapport de l'activité γ fixée sur les noyaux de condensation neutres de mêmes dimensions que les gros ions moyens à l'activité γ totale fixée sur l'ensemble des aérosols naturels.

Elément	^{144}Ce + ^{144}Pr	^{95}Zr + ^{95}Nb	^{54}Mn	^{106}Ru + ^{106}Rh	^{137}Cs
Noyaux neutres total	22 %	0 %	13 %	19 %	14 %

Ces résultats sont valables à 15–20 % près. On constate une certaine homogénéité entre eux : les rapports noyaux neutres/poussières étant de l'ordre de 20 %, sauf pour le ^{95}Zr – ^{95}Nb où nous n'avons observé aucune différence entre F_1 et F_2 . En prenant la moyenne arithmétique de toutes ces valeurs, nous trouvons que le rapport moyen noyaux de condensation neutres/poussières est de l'ordre de 14 %, ce qui vérifie notre première expérience (rapport inférieur à 25 %). En ajoutant les 2 % de gros ions positifs (déterminés à l'aide de l'expérience du paragraphe I), on arrive à un total de 16 % de l'activité γ totale fixée sur les noyaux de

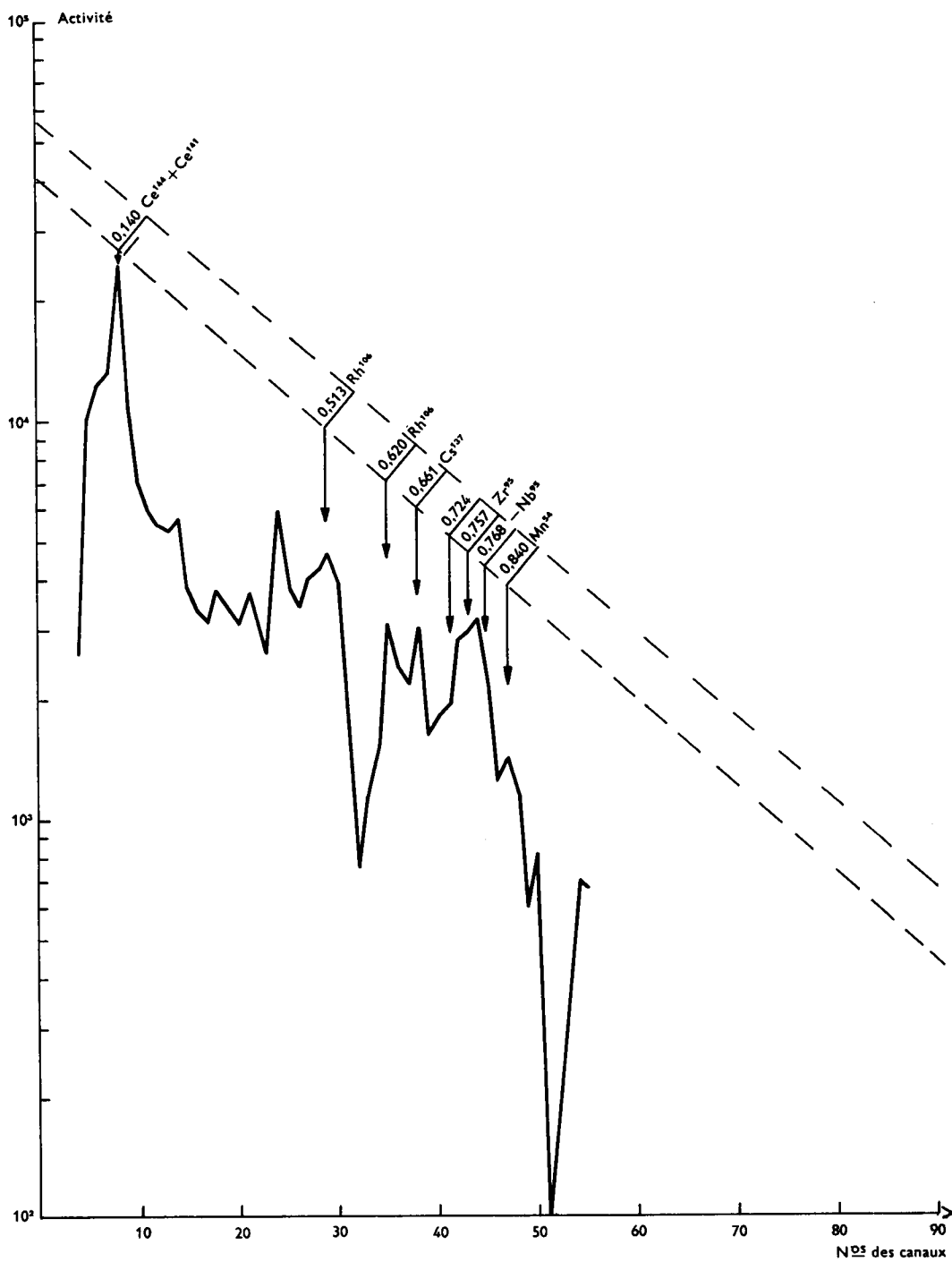


Fig. 7

condensation neutres et chargés, c'est-à-dire sur des particules dont le rayon est inférieur à $2 \cdot 10^{-6}$ cm.

Signalons que pour les dépôts actifs du radon et du thoron, on trouve ce rapport de l'ordre de 42 % (RENOUX, 1965 et 1966).

Ainsi, il semble que près de 85 % de la radioactivité artificielle γ de la basse atmosphère se trouvent sur des particules dont les rayons sont supérieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm ($2 \cdot 10^{-2} \mu$) le reste, soit environ 15 % se trouvant sur les noyaux de condensation chargés ou non.

RÉSUMÉ

Les techniques mises au point pour l'étude des descendants du Radon et du Thoron ont été appliquées à la détermination de l'activité fixée sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm, au niveau du sol. On a effectué des prélèvements de longue durée, les dépouillements s'effectuant à l'aide d'un spectromètre multicanaux γ .

Nos résultats expérimentaux nous permettent de vérifier que l'activité γ fixée sur des particules dont les rayons sont inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm représente, en moyenne, 16 % de la radioactivité artificielle totale.

RÉFÉRENCES

- CANET, A., et FRANÇOIS, H., 1966, Travaux en cours de publication.
- DUQUESNE, M., GRÉGOIRE, R., et LEFORT, M., 1960, *Travaux Pratiques de Physique Nucléaire et de Radiochimie*. Masson, Paris.
- FRISCH, D. R., 1958, *The Nuclear Handbook*. Londres.
- JULLIOT, C., 1960, *Rapport C.E.A. 1.429*.
- JUNGE, C., 1962, *Kerns. in der Geoph.* Berlin, pp. 169-189.
- MADELAINE, G., Etude du pouvoir d'arrêt de différents filtres. Mémoire C.N.A.M. Paris. *Rapport C.E.A.R. 2432*.
- RENOUX, A., 1964, Ions radioactifs à vie longue. *Congrès de l'A.F.A.S. Lille*.
- RENOUX, A., 1965, Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. Thèses, Paris. *Rapport C.E.A. 2771*.
- RENOUX, A., 1966, Etude des noyaux de condensation radioactifs de l'atmosphère. *Tellus*.

ИЗУЧЕНИЕ ИСКУССТВЕННОЙ РАДИОАКТИВНОСТИ В АТМОСФЕРЕ, ВЫЗВАННОЙ КОНДЕНСАЦИЕЙ ЯДЕР В ПРИЗЕМНОМ СЛОЕ

Для определения в приземном слое γ -излучения частиц радиусом меньших $2 \cdot 10^{-6}$ см была применена аппаратура для изучения дочерних продуктов радона и торона.

Были использованы пробы, собранные за длительный период; измерения проводились

с помощью многоканального γ -спектрометра. Экспериментальные данные позволили показать, что γ -излучение, связанное с частицами радиусами меньшими $2 \cdot 10^{-6}$ см, составляет в среднем 16 % от полной искусственной радиоактивности.