

Etude des noyaux de condensation radioactifs de l'atmosphère¹

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

(Manuscrit reçu le 15 Octobre 1965)

ABSTRACT

A comparative study has been made between the Radon and Thoron decay products in the atmosphere, by means of α radiation counting, using Zeleny tubes, a diffusion battery, or paper or membrane filters for sample collection. Some of the characteristic properties of the radioactive ions are studied with mobilities above 10^{-3} cm² sec⁻¹ V⁻¹, radius below $2 \cdot 10^{-6}$ cm. Neutral radioactive condensation nuclei are measured by means of a diffusion battery. The average air concentrations of Radon and Thoron are determined. The results indicate that for the Radon daughters, as well as the Thoron daughters, about 42 % of the total α activity is found on particles having a radius less than $2 \cdot 10^{-6}$ cm. A theoretical discussion of the experimental results is made.

Au cours de ce travail, on se propose de confirmer l'existence de noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres (BRICARD *et al.*, 1961a) et négatifs (RENOUX, 1965) et de mesurer la proportion de la radioactivité fixée sur les aérosols de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm. On étudie séparément les noyaux de condensation provenant du dépôt actif du radon et ceux issus du thoron. Mais dans une première partie, on peut dégager certaines propriétés communes à ces deux catégories de noyaux de condensation radioactifs.

I. Propriétés générales

1. Introduction. Pollution générale de l'air

L'étude de la radioactivité des aérosols naturels doit être accompagnée d'une évaluation de la pollution générale de l'air. Soit dN le nombre de particules de rayons compris entre R et $R + dR$. Nous définirons la répartition granulométrique de ces particules par la fonction

$$f(R) = dN/dR.$$

Dans tout ce qui suit, nous admettrons qu'en moyenne la pollution est caractérisée par la

fonction $f(R)$ définie par HOLL et MULHEISEN (1955), la même dans tous les cas, et que cette fonction est

$$f(R) = C/R^3. \quad (1)$$

C représente une constante (identique dans tous les cas), indépendante de R ; nous admettrons en outre que le rayon minimum des particules est toujours égal à $R_0 = 10^{-6}$ cm. En fait, cette forme n'est valable (JUNGE, 1962) que si on se limite à des aérosols de rayons inférieurs à 10^{-5} cm, mais nous l'étendrons à l'ensemble de tout le spectre granulométrique naturel, les particules de rayons supérieurs ne jouant pas un rôle important dans les phénomènes qui nous intéressent.

Il nous suffira, en admettant dans tous les cas cette répartition granulométrique en valeurs relatives, de connaître le nombre total N de particules contenues dans un volume donné pour caractériser la pollution.

Ce nombre a été déterminé avec un compteur d'AITKEN (1923). A l'endroit de nos expériences (à Fontenay-aux-Roses, à 15 m au-dessus du sol) on trouve en moyenne 10^8 particules par cm³. Cette valeur qui correspond sensiblement à la totalité des aérosols atmosphériques chargés ou non, est du même ordre de grandeur que celle indiquée par différents auteurs ayant également opéré dans des centres industriels (MOHNEN *et al.*, 1963; COENEN, 1963; LASSEN-RAU, 1960). Il est évident que ce n'est là qu'un résultat moyen, qui ne pourra être comparé

¹ Ce travail a été réalisé avec la collaboration de MM. F. BILLARD¹, J. BRICARD², P. GIROD², G. MADELAINE¹ et J. PRADEL¹. (¹ Commissariat à l'Energie Atomique, Fontenay-aux-Roses. ² Faculté des Sciences de Paris.)



FIG. 1. Courbe d'efficacité du capteur de Zélény.

qu'à des grandeurs de même nature dans le cas des aérosols radioactifs (c'est-à-dire les aérosols ayant fixé des produits de cette nature).

2. Caractéristiques des gros ions radioactifs positifs

Cette série d'expériences a été réalisée sur le dépôt actif du radon qui, dans ce cas, présente sur celui du thoron deux avantages : activité α plus importante (facteur 3 à 4) et prélèvements beaucoup plus courts (1 h 30 contre 24 heures).

Ces gros ions sont captés sur l'électrode centrale constituée par un fil de 0,3, m/m de diamètre d'un tube de Zélény (ZÉLÉNY, 1900; RENOUX, 1961) de 4 cm de diamètre et 120 cm de long. L'étalonnage de ce tube conduit à une mobilité-limite $k_1 = 10^{-3}$ cm/sec/V/cm, pour des particules arrivant dans le tube à une distance de 4 cm du fil. Pour les ions pénétrant dans le capteur à moins de 4 cm et qui, bien que de mobilité inférieure à k_1 peuvent être captés, une correction est faite (MADELAINE, 1964a; RENOUX, 1965) et conduit à la courbe de la fig. 1.

Les prélèvements ont lieu pendant 1 h 30 pour que l'équilibre radioactif entre Ra A, Ra B et Ra C soit réalisé à 90 % sur le fil axial du tube de Zélény. En comparant l'activité α de por-

tions de fil de 10 cm de long, et à l'aide d'un calcul de Bricard, on détermine la répartition de l'activité des gros ions positifs radioactifs en fonction de leur mobilité (fig. 2). A partir de la définition de la mobilité et de la formule de Cunningham-Millikan (BENARIE, 1962; BRICARD *et al.*, 1962). On obtient le spectre de la fig. 3 qui indique un maximum d'activité pour

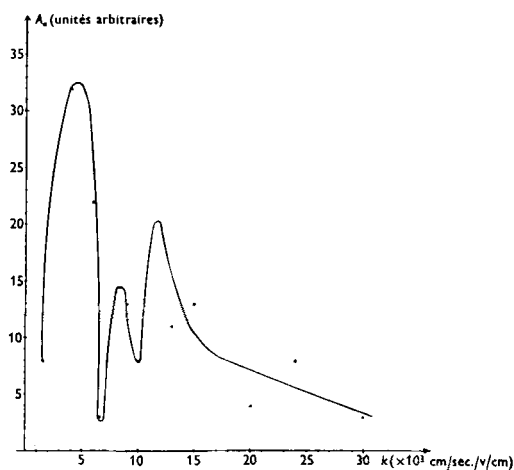


FIG. 2. Répartition de l'activité des gros ions radioactifs en fonction de leur mobilité.

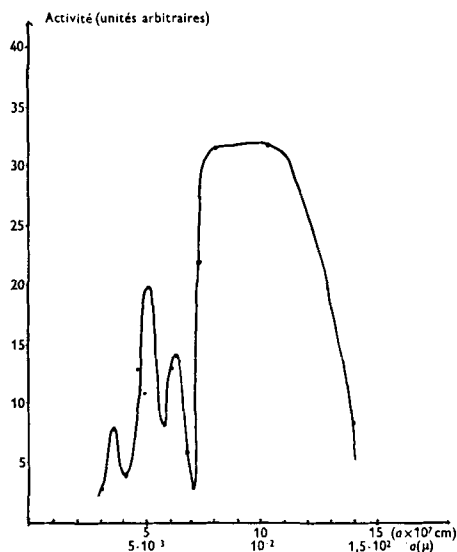


FIG. 3. Répartition de l'activité des gros ions radioactifs en fonction de leurs rayons.

des ions dont le rayon est de l'ordre de 10^{-6} cm. Des travaux effectués suivant le même principe par MADELAINE (1964a) sur le dépôt actif du thoron en atmosphère artificielle, indiquent un maximum correspondant à un rayon double soit $2 \cdot 10^{-6}$ cm.

3. Evaluation de la durée de contact entre les petits ions et les gros ions radioactifs à quelques mètres au-dessus du sol

Toujours pour des raisons de sensibilité, nous opérons sur le dépôt actif du radon. En plus, ces mesures ne sont rendues possibles que grâce à la présence de RaA dans l'air. Le ThA a une période beaucoup trop faible pour demeurer dans l'atmosphère.

Dans le cas du dépôt actif du radon, les petits ions sont formés presque exclusivement par du RaA (RENOUX, 1965). Tel n'est pas, à priori, le cas des noyaux de condensation radioactifs qui sont formés par RaA, RaB et RaC. Des premières expériences (RENOUX, 1961) nous avaient amené à conclure à un état voisin de l'équilibre radioactif entre RaA, RaB, RaC fixés sur les gros ions. Mais elles étaient trop imprécises pour nous permettre d'être affirmatif d'autant plus que de nombreux auteurs (FONTAN, 1964; MALAKHOV *et al.*, 1961; SERVANT, 1964; KAWANO *et al.*, 1959) ont constatés expérimentalement que, dans l'air,

cet équilibre n'est pas toujours atteint. Pour qu'il le soit à 95 % près, il faudrait que la durée de contact τ entre les aérosols et le radon depuis sa diffusion à partir du sol soit au minimum de 1 h 30. Si elle est inférieure à cette limite, il y aura un défaut de RaB et de RaC, et nous aurons (RENOUX, 1963a).

$$\lambda_B N_{0B} = m \lambda_A N_{0A} \quad \text{et} \quad \lambda_C N_{0C} = n \lambda_A N_{0A}, \quad (2)$$

λ_A , λ_B , λ_C étant les constantes radioactives du RaA, du RaB et du RaC dont les concentrations dans l'air sont respectivement N_{0A} , N_{0B} et N_{0C} .

Les coefficients m et n , inférieurs à l'unité, dépendent de τ . Dans tout ce qui suit, nous admettons : a) que le radon est en équilibre radioactif avec le RaA, ce qui est vraisemblable, la période du RaA (3 min.) étant très petite devant celle du radon (3,8 jours); b) que Rn, RaA, RaB et RaC libres ou non sont, dans l'air atmosphérique, en proportions correspondant aux quantités accumulées pendant la diffusion du radon dans l'air (Mme JOLIOT-CURIE, 1946).

A partir de ces hypothèses et de calculs classiques on peut déterminer des courbes de décroissance correspondant, pour des prélèvements de durée donnée, à différentes valeurs de τ (RENOUX, 1965).

On voit, d'après (2), que l'action du RaA est déterminante. Afin de la suivre, et étant donnée la faible période du RaA (3,05 min.), il faut effectuer des prélèvements de courte durée (3 minutes) et commencer très rapidement l'étude de la décroissance (au plus tard une minute après l'arrêt du prélèvement).

Dans ce but, nous utilisons un capteur d'ions pouvant être transformé en chambre d'ionisation dès la captation terminée. Les prélèvements de 3 minutes de durée sont toujours effectués dans les mêmes conditions.

Les résultats-types obtenus sont indiqués sur la fig. 4 résultant d'une vingtaine de prélèvements échelonnés sur une période d'un mois et réalisés à Fontenay-aux-Roses, à 15 m au-dessus du sol. Les valeurs de τ ainsi déterminées varient entre 10 et 30 minutes, suivant les conditions météorologiques. Notons que des mesures identiques effectuées à la campagne et au niveau du sol conduisent à des résultats du même ordre de grandeur.

On n'a pas observé d'équilibre radioactif

même approximatif entre le radon et ses descendants, alors que SERVANT (1964) et FONTAN (1964) trouvent que cet équilibre est parfois réalisé. Nous considérerons donc la valeur moyenne $\tau = 20$ minutes obtenue au cours de nos mesures comme une valeur minimum.

II. Etude particulière des noyaux de condensation issus du thoron

L'étude des dérivés du thoron se trouve très simplifiée du fait de la période élevée du ThB (10,6 h) par rapport à celles du thoron (56 secondes) et du ThA (0,16 seconde). C'est donc par eux que nous commencerons l'étude des propriétés particulières à chacune des catégories de noyaux de condensation radioactifs.

1. Gros ions positifs et gros ions négatifs

Nous utilisons deux tubes identiques A et B montés en parallèle et fonctionnant simultanément avec un même débit et une mobilité limite identique fixée à 10^{-3} cm/sec/V/cm. Le premier capte sur son électrode axiale les ions positifs, le second les ions négatifs. Les prélèvements durent entre 24 et 45 heures de sorte que l'équilibre radioactif entre ThB et ThC est pratiquement réalisé sur le capteur. Les

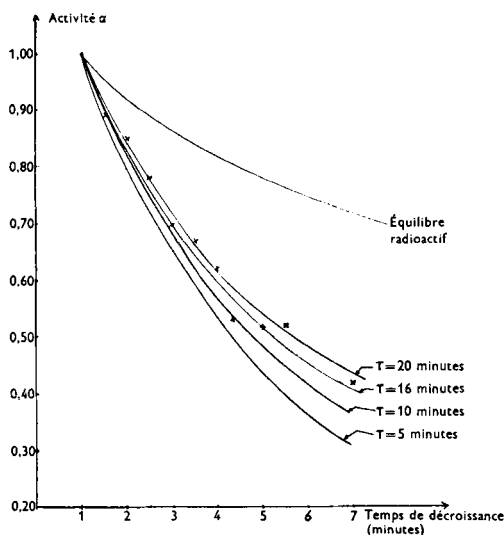


FIG. 4. Décroissance de l'activité α des gros ions radioactifs positifs. $\times$ Points expérimentaux-types. — Courbes théoriques.

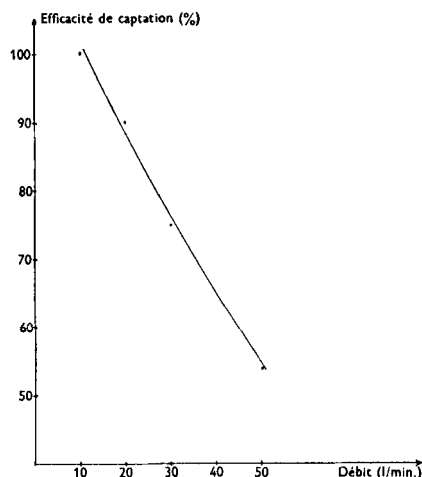


FIG. 5. Variation de l'efficacité de captation de la batterie de diffusion en fonction du débit de l'air qui la traverse.

comptages α de l'activité fixée sur les électrodes axiales se font après une décroissance de trois heures afin d'éliminer complètement le dépôt actif du radon. Si N_{T-} et N_{T+} désignent respectivement les nombres de gros ions négatifs et positifs issus du thoron, on trouve, en moyenne :

$$N_{T-}/N_{T+} = 0.55.$$

Ce rapport est variable suivant les conditions météorologiques (minimum 0,35, maximum 0,70).

2. Noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres issus du thoron (RENOUX, 1961 et 1965; BRICARD et al., 1962)

Il est possible d'envisager la formation de noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres soit par fixation de petits ions radioactifs positifs sur des gros ions négatifs ordinaires, soit par neutralisation de gros ions radioactifs positifs par des petits ions négatifs ordinaires, par exemple.

a) *Etude d'une batterie de diffusion* (NOLAN et al. 1949). Afin de mettre en évidence ces noyaux radioactifs neutres nous utilisons une batterie de diffusion constituée de 800 plaques métalliques verticales de hauteur $b = 10$ cm et de longueur $l = 35$ cm distantes les unes des autres de $2a = 0,06$ cm (BRICARD et al., 1962).

L'efficacité de captation de la batterie a été étudiée (RENOUX, 1963 et 1965).

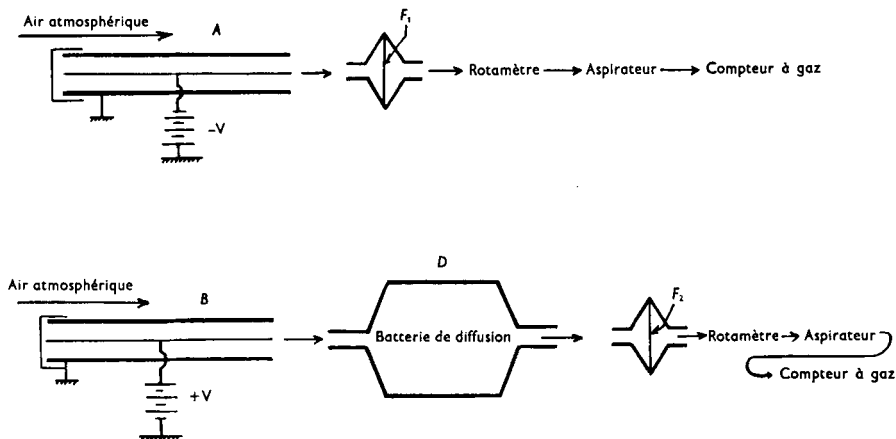


FIG. 6. Etude des noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres.

La formation de RaA à partir du radon qui se trouve dans l'air traversant la batterie fausse les mesures. Ce risque d'erreur ne se produit pas avec le dépôt actif du thoron (RENOUX, 1965). La courbe de la fig. 5 indique les variations de l'efficacité de la batterie en fonction du débit de l'air qui la traverse.

Sur cette figure on constate que, dans les conditions où nous avons opéré, l'efficacité de

captation par rapport aux noyaux de condensation atmosphériques a été de 100 % pour un débit de 10 l/minute et de 90 à 95 % à 20 l/minute. C'est de dernier débit que nous avons utilisé au cours de nos mesures, afin de recueillir une activité α suffisante pour être décelée sur les fils axiaux des tubes de Zélény, placés éventuellement en série.

A partir de calculs classiques (THOMAS, 1955)

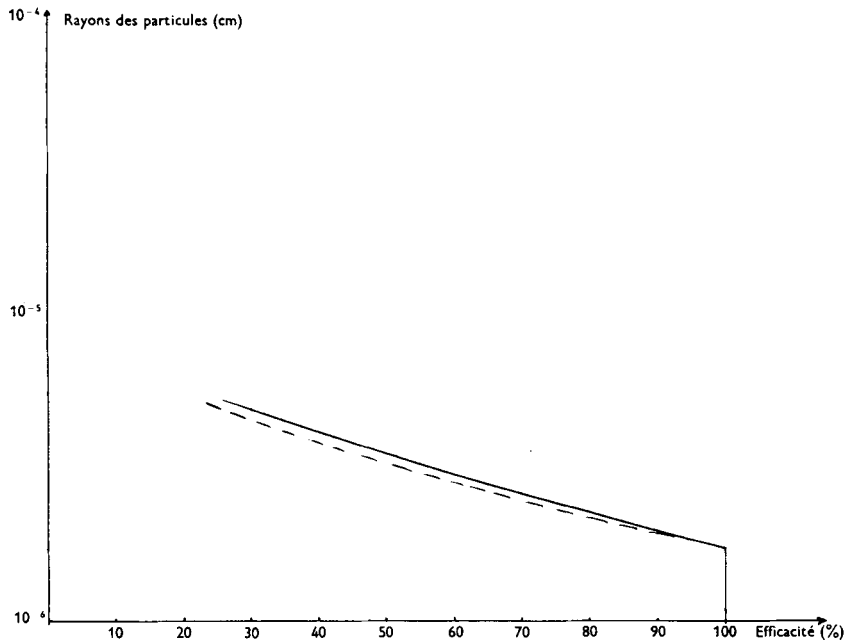


FIG. 7. Courbes d'efficacité. a) - - - de la batterie de diffusion; b) — du tube de Zélény pour un débit de 20 l/min.

et de la courbe d'efficacité de la fig. 5 on trouve, pour un débit de 10 l/min., un coefficient de diffusion-limite $D = 1,85 \cdot 10^{-5}$ cm²/sec qui correspond (relation d'Einstein, BRICARD, 1962a) à une mobilité limite $k_l = 0,8 \cdot 10^{-3}$ cm/s/V/cm, concordant sensiblement avec celle fixée pour le pouvoir d'arrêt des tubes de Zélény, compte tenu des particules de dimensions supérieures à celles correspondant à la mobilité-limite, qui sont fixées sur eux.

Des expériences réalisées en utilisant l'effet couronne, indiquaient un rapport noyaux de condensation neutres/gros ions radioactifs positifs égal, en moyenne, à 1,2 (RENOUX, 1963c). Mais une importante partie des aérosols étant captée par les parois, les mesures utilisant cette méthode se trouvent faussées (RENOUX, 1965).

b) *Détermination du nombre de noyau neutres radioactifs.* On utilise le dispositif suivant (fig. 6) : un tube à gros ions positifs (A), suivi d'un filtre (F_1) constituent un premier ensemble de prélèvement.

Les ions de même signe que le fil axial étant fixés par la paroi du tube, on peut admettre que (A) et (B) débarrassent l'air des particules chargées correspondant aux gros ions moyens.

Un second ensemble de prélèvement fonctionne parallèlement au premier, mais en diffère par l'introduction, entre le tube à gros ions négatifs (B) et le filtre (F_2), de la batterie de diffusion (D). Les prélèvements durent de 24 à 64 heures, les comptages α des filtres et des fils axiaux ne commençant qu'après une décroissance de 3 heures.

Le débit de l'air à travers les ensembles de prélèvements est de 20 l/min. Le rendement de la batterie étant alors compris entre 90 et 95 %

(fig. 5). Du reste, la fig. 7 nous montre qu'à un tel débit, le tube de Zélény et la batterie de diffusion ont sensiblement le même rendement.

On trouve ainsi, en moyenne, que :

$$N_{\text{eTh}}/N_{\text{+Th}} = 7.$$

Ce rapport variant entre 4,3 et 13,2 au cours de nos expériences

3. Calcul de la teneur de l'air en ThB

Nous prenons comme valeur minima de la durée de contact ThB-aérosols $\tau = 20$ minutes, ce qui implique donc un non-équilibre dans l'air entre ThB et ThC. A partir de cette valeur de τ , de calculs classiques d'accumulation de ThB et de ThC pendant 24 ou 45 heures, et de calculs de décroissances, on arrive à une teneur moyenne de l'air en ThB de $1,5 \cdot 10^{-16}$ Ci/cm³.

Cette valeur est 100 fois plus faible que celle qui serait en équilibre avec la quantité de thoron présente au niveau du sol (FONTAN, 1964; HARLEY, 1962). Ceci semble en bon accord avec FONTAN (1964) qui trouve une teneur en thoron 100 fois plus faible à partir de mesures de dépôt actif, que celle évaluée directement.

4. Proportion des noyaux de condensation radioactifs provenant du thoron

Le tableau ci-dessous résume tous nos résultats expérimentaux. La première ligne indique l'activité α moyenne mesurée sur les différents capteurs (fils axiaux et filtres) 3 heures après l'arrêt des prélèvements (en coups par dix minutes), et ramenée à un débit de 37 l/minute. La seconde ligne indique les pourcentages d'activité correspondants.

Petits ions positifs qq. 10^{-8} cm	Gros ions positifs	Gros ions négatifs	Noyaux neutres	Autres particules $R > 2 \cdot 10^{-6}$ cm	Total
	$R < 2 \cdot 10^{-6}$ cm				
1,4	20	11	144	255	430
0,3 %	4,7 %	2,6 %	33,7 %	58,7 %	100 %

Ce tableau nous montre que 41,3 % de l'activité se trouvent sur les ions et les noyaux neutres, c'est-à-dire sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm. MADELAINE (1964b) arrive à 42,6 % sur de l'air atmosphérique

artificiellement chargé en ThB. Ceci semble prouver que la répartition granulométrique globale est indépendante de la radioactivité. Seul l'état de charge des particules diffère. Ce résultat a également été mis en évidence par

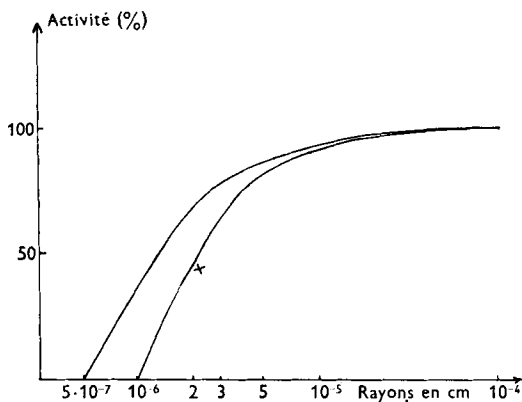


FIG. 8. × Valeurs expérimentales.

d'autres auteurs (MOHNEN *et al.*, 1963) ayant opéré dans des conditions différentes. Nous y reviendrons dans la discussion théorique.

III. Etude particulière des noyaux de condensation issus du radon

1. Gros ions positifs et gros ions négatifs

On opère de la même façon que dans le cas du dépôt actif du thoron, mais ici les prélèvements durent 1 h 30, temps minimum nécessaire pour que l'équilibre radioactif soit réalisé à 90 % sur les fils axiaux des capteurs de Zélény. Les prélèvements sont étudiés en α entre la 10^e et la 20^e minute de décroissance.

Au cours de premières expériences (RENOUX, 1961; BRICARD *et al.*, 1962b et 1963) effectuées sur le dépôt radioactif du radon, nous n'avions pu mettre en évidence la présence de gros ions radioactifs négatifs. Nous avons repris ces expériences à la suite des résultats obtenus par différents auteurs en atmosphère artificielle (MADELAINÉ, 1964b; MOHNEN *et al.*, 1963).

Nous avons réalisé une quarantaine de prélèvements qui nous ont conduit au rapport $N^-/N^+ = 0,28$; N^+ concentration de l'air en gros ions positifs; issus du radon N^- concentration de l'air en gros ions négatifs issus du radon.

Au cours de nos mesures, le rapport N^-/N^+ a varié entre 0,04 et 0,59. Les valeurs les plus élevées ont été trouvées, en général, par temps humide, le temps sec conduisant à des résultats plus faibles.

2. Les noyaux de condensation électriquement neutres provenant du radon

On utilise la batterie de diffusion précédemment étudiée, et on réalise, comme dans le cas du thoron, le montage expérimental de la fig. 6.

Mais afin de n'être pas gêné par la désintégration d'une partie du radon atmosphérique dans la batterie, nous sommes amené à passer assez rapidement à l'intérieur de cette dernière (débit de 50 l/min). Son rendement s'en trouve certes diminué, mais il est alors parfaitement défini, et il suffira d'en tenir compte.

Le rendement de la batterie de diffusion est donc moins bon que celui du tube à ions. A ce débit, on a constaté expérimentalement un rendement de la batterie d'environ 60 % par rapport à celui du tube à ions (fig. 8). C'est ce résultat que nous utiliserons.

N_{+Rn} , désignant le nombre des gros ions radioactifs positifs et N_{0Rn} celui des noyaux neutres radioactifs issus du radon, on a trouvé au cours d'une trentaine d'expériences, une valeur moyenne :

$$N_{0Rn}/N_{+Rn} = 3,8.$$

Ce rapport se trouve ici encore modifié par les conditions météorologiques puisqu'au cours de nos expériences, il a varié entre 2,9 et 4,5.

On remarquera que le rapport moyen obtenu est nettement plus petit que celui établi dans le cas du dépôt actif du thoron. Nous le discuterons dans la suite de cet exposé.

3. Répartition granulométrique de la radioactivité atmosphérique due au radon et calcul de la teneur de l'air en radon

A partir de nos résultats expérimentaux, on peut calculer la concentration de l'air en atomes RaA libres, soit :

$$n_A = 1,1 \cdot 10^{-4} \text{ at. RaA/cm}^3$$

et en atomes RaA fixés sur les aérosols atmosphériques (RENOUX, 1965).

$$N_A = 18,0 \cdot 10^{-4} \text{ at. RaA/cm}^3.$$

Si on suppose que, dans l'air, le radon et le RaA sont en équilibre radioactif (ce qui est vraisemblable, nous l'avons vu, étant donnés la faible période du RaA devant celle du radon), on peut écrire :

$$\lambda_{\text{Rn}} N_{\text{Rn}} = \lambda_A (n_A + N_A) \quad (3)$$

ce qui conduit à une teneur moyenne de l'air en radon :

$$x = 1,9 \cdot 10^{-16} \text{ Ci/cm}^3.$$

Cette valeur moyenne est en bon accord avec celles obtenues par SERVANT (1964) ($1,7 \cdot 10^{-16}$) HARLEY (1962) ($2 \cdot 10^{-16}$) FONTAN (1964) de 10^{-17} à $8 \cdot 10^{-16}$ et par différents auteurs. En supposant l'équilibre radioactif réalisé entre (RaA, RaB et RaC) on arrive à une teneur moyenne de l'air en radon égale à $0,7 \cdot 10^{-16} \text{ Ci/cm}^3$. On peut donc estimer que la

teneur moyenne réelle de l'air en radon est à Fontenay-aux-Roses, comprise entre ces deux valeurs.

4. Proportion de l'activité α due au radon fixée sur les noyaux de condensation moyens

Le tableau ci-dessous résume tous nos résultats expérimentaux, ramenés à un débit de captation de 37 l/minute. La première ligne indique l'activité α moyenne mesurée simultanément sur nos différents capteurs 15 minutes après l'arrêt des prélèvements (en coups par dix minutes).

La seconde ligne indique les pourcentages d'activité correspondants.

Petits ions positifs $R \approx 10^{-8} \text{ cm}$	Gros ions positifs	Gros ions négatifs	Noyaux neutres	Autres particules $R > 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	Total
	$R < 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$				
16	81	22	322	586	1030
1,6 %	7,9 %	2,2 %	31,3 %	57 %	100 %

D'après ce tableau, on constate que 43 % de l'activité se trouvent sur les ions et les noyaux neutres, donc sur des particules dont le rayon est, approximativement inférieur à $2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$.

Aux erreurs d'expérience près, ce résultat est identique à celui obtenu dans le cas du thoron, ainsi qu'à celui obtenu par différents auteurs (MADELAINE, 1964b; HOLL *et al.*, 1955; SCHUMANN, 1963). Nous reviendrons sur cette question au cours du chapitre suivant.

IV. Discussion des résultats obtenus

CAS DU RADON

Dans tout ce qui suit, nous supposons qu'il y a symétrie des charges en ce qui concerne les particules autres que les particules radioactives, et que la présence de celles-ci, étant donnée leur faible concentration, ne modifie pas l'état de charge global.

Nous prendrons donc :

$$D' = D'' = D, \quad n' = n'' = n, \quad \beta'_{21} = \beta''_{21} = \beta'.$$

D' et D'' étant respectivement les coefficients de diffusion des petits ions positifs et négatifs et n' et n'' leurs concentrations; β'_{21} et β''_{21} sont

les coefficients de fixation des petits ions positifs et négatifs sur des gros ions de signe contraire.

1. Proportion de l'activité totale fixée sur les noyaux de condensation

Dans le cas d'un milieu polydispersé, si $q(R)$ est le nombre de petits ions de chaque signe empruntés à chaque cm^3 d'air et fixés sur l'ensemble de toutes les particules de rayons supérieurs à une certaine valeur R_0 de R , on trouve BRICARD *et al.*, 1962 que :

$$q(R) = n \int_{R_0}^R \beta f(R) dR. \quad (4)$$

Dans cette relation, $\beta(R) = 4\pi DR/I(R) \cdot I(R)$ représentant une fonction du rayon et du coefficient de diffusion des petits ions, que l'on sait calculer. $f(R) = dN/dR$ est la répartition granulométrique du milieu, donc des gros ions, noyaux neutres et poussières atmosphériques. N indiquant le nombre total par cm^3 d'air de toutes les particules dont le rayon est compris entre R et $R + dR$. Nous supposons que la fonction $f(R)$ suit la loi précédemment indiquée de HOLL et MUHLEISEN (1955) et qu'elle est de la forme $f(R) = C/R^3$; n est toujours le nombre

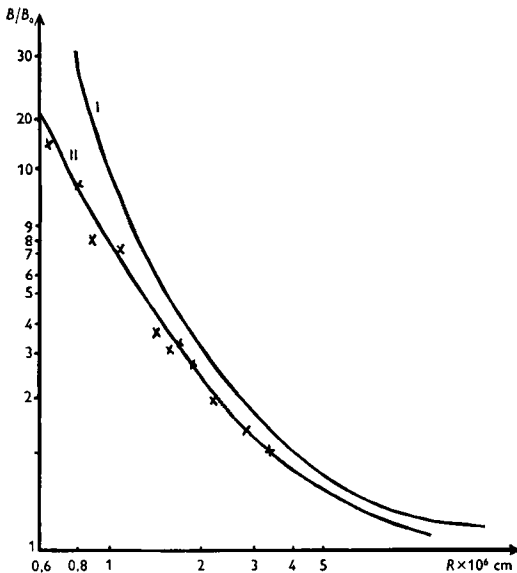


FIG. 9. Variations du rapport β'/β_0 en fonction du rayon des particules. $\times$ Mesures de Keefe, Nolan et Rich; I Boltzmann; II Bricard.

de petits ions de chaque signe par cm^3 d'air, et D leur coefficient de diffusion.

La fonction $q(R)$ est représentée en valeurs relatives sur la fig. 8 (13) pour deux valeurs $R_0 = 5 \cdot 10^{-7}$ cm et $R_0 = 10^{-6}$ cm du rayon minium R_0 , valeurs correspondant à des limites inférieures raisonnables pour les gros ions moyens, le rayon maximum étant choisi égal à 1μ . Cette répartition est identique à celle établie par LASSEN (1961) pour $R_0 = 10^{-6}$ cm. On constate que les noyaux moyens de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm fixent 45% de l'activité totale pour $R_0 = 10^{-6}$ cm et 70% pour $R_0 = 5 \cdot 10^{-7}$ cm.

La relation (4) est générale (LASSEN, 1961) et s'applique à la fixation des petits ions radioactifs dérivés du radon (constitués ainsi que nous l'avons vu, presque exclusivement par du RaA) sur les autres particules de l'air : n représente alors la densité de ces ions, D leur coefficient de diffusion dans l'air, $q(R)$ étant la répartition granulométrique cumulée de l'activité fixée sur les aérosols naturels.

Nous avons trouvé expérimentalement qu'en moyenne 43% de la radioactivité α du dépôt actif du radon se trouvent fixés sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm. Ces résultats, qui sont représentés par une croix sur la fig. 8, sont donc en bon accord avec les considérations théoriques indiquées ci-dessus.

Ils sont du reste, du même ordre de grandeur que ceux obtenus par SCHUMANN (1963) d'une part KAWASAKI et KATO (1958) d'autre part, à l'aide de méthodes tout à fait différentes. MADELAINE (1964b) indique des résultats identiques à la suite de mesures effectuées sur de l'air artificiellement chargé en ThB. Nous en tirerons les conséquences au cours de la discussion relative à l'état de charge des noyaux de condensation radioactifs.

2. Etat d'équilibre ionique

La fixation des petits ions radioactifs sur les noyaux de condensation atmosphériques obéit aux relations (GIROD, 1964; BRICARD *et al.*, 1964).

$$dN_R'/dt = \beta_0 n N_{0R} - \beta' n N_R'' - P'; \quad (5)$$

$$dN_R'/dt = \beta_0 n N_{0R} + \beta_0^* n_R N_0 - \beta' n N_R' - P'. \quad (6)$$

Dans ces relations : n désigne les concentrations moyennes (supposées égales) en petits ions atmosphériques de chaque signe. N_R'' , N_R' , N_{0R} les concentrations respectives en noyaux de condensation radioactifs négatifs, positifs et neutres. N_0 la concentration en noyaux de condensation atmosphériques neutres. n_R la concentration moyenne en petits ions radioactifs.

Dans tout ce qui suit, nous ne considérerons que les petits ions radioactifs positifs, nous négligerons, en première approximation, la présence des petits ions radioactifs négatifs et des atomes neutres, et nous admettrons la symétrie des charges en ce qui concerne les particules non radioactives.

Supposons le milieu monodispersé. β_0 est le coefficient de recombinaison des petits ions positifs sur les noyaux de condensation neutres, supposé égal à celui des petits ions négatifs, β' étant le coefficient de recombinaison d'un petit ion avec un ion de signe contraire.

La fig. 9 représente les variations du rapport β'/β_0 calculées par BRICARD (1962) (courbe II). Les croix représentent les valeurs expérimentales obtenues par KEEFE, NOLAN et RICH (1959). Ce rapport a été récemment calculé par FUCHS (1963) qui, en partant d'hypothèses différentes, arrive à des résultats sensiblement identiques dans le domaine de dimensions que nous considérons.

Dans les relations (6) et (7) β_0^* désigne le coefficient de recombinaison des petits ions

radioactifs sur les noyaux neutres. Nous le prendrons sensiblement égal à β_0 . P' , P'' et P_0 expriment les pertes des ions radioactifs et des noyaux neutres par dissociation et autres processus, et permettent d'établir les conditions d'équilibre. Celles-ci sont données par :

$$dN_R''/dt + P'' = dN_R'/dt + P' = dN_{0R}/dt + P_0 = 0. \quad (7)$$

Elles impliquent qu'il ne se produit aucune disparition entre l'instant de la fixation des atomes radioactifs et celui où l'équilibre ionique est établi.

Les équations (6), (7) (8) conduisent à (RENOUX, 1965) :

$$N_{0R}/N_R'' = \beta'/\beta_0, \quad (8)$$

$$N_R''/N_R' = 1 - \beta_0^* n_R N_0 / \beta' n N_R' \quad (9)$$

et
$$N_{0R}/N_R' = \beta'/\beta_0 - n_R N_0 \beta_0^* / n N_R' \beta_0. \quad (10)$$

Dans nos mesures, nous avons mis en évidence un maximum d'activité correspondant à un rayon moyen de 10^{-6} cm. La valeur de β'/β_0 correspondante est sensiblement égale à 10 (fig. 9). C'est celle que nous adopterons pour le rapport $N_0/N' = N_0/N''$. Cette valeur du rapport N_0/N' qui correspond au maximum indiqué par ISRAEL (1957) est nettement supérieur à celles qui sont généralement indiquées dans la littérature, de l'ordre de 2 à 3. Ceci tient au fait que nous n'envisageons que les particules dont le rayon est de l'ordre de 10^{-6} cm.

Comparons maintenant les formules correspondant aux ions ordinaires et celles se rapportant aux ions radioactifs. On constate, d'après (8) et (9) :

a) que le rapport N_0/N'' est le même que les ions soient radioactifs ou non. Il doit donc être égal à 10 d'après ce que nous venons de voir. Expérimentalement, on le trouve égal à 12,8, ce qui vérifie sensiblement nos résultats, étant données les erreurs de mesures, et justifie les relations (5) et (6) ainsi que l'hypothèse correspondant à (7).

b) Le rapport N''/N' est plus faible dans le cas des noyaux de condensation radioactifs que dans celui des noyaux de condensation atmosphériques. C'est bien ce qu'on trouve dans le cas du radon, puisqu'on arrive à $N_R''/N_R' \simeq 0,3$, alors que pour les ions ordinaires, N''/N' est voisin de l'unité.

Enfin, il résulte de nos interprétations que les

désintégrations radioactives des gros ions provenant du radon ne modifient pas leur état de charge.

3. Etat de charge des noyaux de condensation radioactifs issus du radon

Nos résultats expérimentaux nous permettent de déterminer $n_R/N_R' \times N_0/n$, quantité nécessaire pour déterminer l'état de charge des noyaux de condensation.

Si on suppose qu'il y a équilibre radioactif dans l'air atmosphérique entre le radon et ses descendants, on trouve cette quantité voisine de 6, et on aboutit à (RENOUX, 1965) :

$$N_R''/N_R' = 0,4, \quad N_{0R}/N_R' = 4$$

(on trouve expérimentalement, que ces rapports sont respectivement égaux à 0,28 et 3,8). L'accord est moins bon si on fait ces calculs en considérant une durée de contact radon-aérosols de 20 minutes. Mais il faut tenir compte de la grande dispersion des résultats.

Quoiqu'il en soit, on observe une répartition des charges très différente de celle indiquée par MADELAINE (1964b) qui trouve 1,52 pour N_R''/N_R' et 4 pour N_{0R}/N_R' . Néanmoins, la fraction de l'activité fixée sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm déduite de ces résultats est identique à la nôtre. Tout semble donc se passer comme si, dans la fixation des petits ions, le milieu considéré était électriquement neutre, ce qui confirme nos hypothèses.

B. CAS DU THORON

1. Proportion de la radioactivité due au Th B fixée sur les noyaux de condensation moyens

Nous avons vu (fig. 8) qu'en admettant la répartition granulométrique de Holl et Muhleisen à partir d'un rayon minimum des particules $R_0 = 10^{-6}$ cm, on doit trouver entre 40 et 50 % de la radioactivité fixée sur des noyaux de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm.

Dans le cas du Th B, on arrive à 41,3 %. Comme dans le cas du radon, la courbe correspondant à $R_0 = 10^{-6}$ cm semble vérifiée, celle correspondant à $R_0 = 5 \cdot 10^{-6}$ cm conduisant à des valeurs différentes, et les valeurs obtenues sont encore en bon accord avec celles de SCHUMANN (1963).

2. Etat d'équilibre ionique

Les relations (7), (8), (9) restent valables. En particulier, on doit avoir $N_{0R}/N'_R = 10$ (on suppose là encore que le rayon moyen des gros ions radioactifs est de 10^{-6} cm). Expérimentalement on arrive à 12,5, ce qui, étant données les erreurs de mesures, est un ordre de grandeur acceptable justifiant les équations (6) et (7) et l'hypothèse (8) indiquant que l'équilibre ionique est atteint. Se trouve également vérifiée l'hypothèse suivant laquelle les désintégrations radioactives des gros ions ThB ne modifient pas leur état de charge.

3. Etat de charge des noyaux de condensation radioactifs

Dans le cas du ThB, nos résultats expérimentaux conduisent, à partir d'une valeur de $n_R = 4,7 \cdot 10^{-6}$ at. ThB/cm³, à :

$$n''_R/N'_R = 0,5 \quad \text{et} \quad N_{0R}/N'_R = 5$$

(on arrive expérimentalement à 0,55 et 7). On peut donc considérer que la théorie vérifie nos résultats expérimentaux, compte tenu de leur dispersion et des hypothèses simplificatrices introduites.

Il faut remarquer que l'état de charge des

noyaux de condensation provenant du thoron diffère de celui des noyaux issus du radon et de celui obtenu par MADELAINE (1964b) sur de l'air fortement chargé en ThB. Néanmoins, là encore, la proportion de l'activité fixée sur ces particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm est, aux erreurs d'expérience près, la même que dans le cas du dépôt actif du radon et que celle qu'indique MADELAINE, ce qui confirme encore l'hypothèse conduisant à considérer que la fixation des petits ions radioactifs s'effectue comme si le milieu était électriquement neutre.

RÉSUMÉ

On effectue une étude comparative entre les produits de décroissance du Radon et du Thoron se trouvant dans l'atmosphère, au moyen de comptages de radiations α , en utilisant des tubes de Zélény, une batterie de diffusion et des membranes ou des papiers filtres pour capter les aérosols. On étudie les propriétés caractéristiques des ions de mobilités supérieures à 10^{-3} cm² sec⁻¹ V⁻¹ (rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm). On a mesuré des noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres à l'aide d'une batterie de diffusion. Les concentrations moyennes de l'air en Radon et en Thoron sont déterminées. Les résultats indiquent que, tant pour les descendants du Radon que pour ceux du Thoron, environ 42 % de l'activité α totale se trouvent sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6}$ cm. Une discussion théorique de mes résultats expérimentaux est développée.

RÉFÉRENCES

- AITKEN, J., 1923, *Collected Scientific papers*. Edited by C. G. Knott, Cambridge University Press.
- BÉNARIE, M., 1962, *Séminaire de Physique des Aérosols*. Publié sous la direction du Professeur Bricard, Faculté des Sciences, Paris.
- BRICARD, J., 1962, 1. La fixation des petits ions atmosphériques sur les aérosols ultra-fins. *Geofisica pura e applicata*, 51, pp. 237-242. Milan.
- BRICARD, J., 1962, 2. *Séminaire de Physique des Aérosols*. Faculté des Sciences, Paris.
- BRICARD, J., PRADEL, J., et RENOUX, A., 1961, 1. La teneur de l'air en petits et gros ions radioactifs. *Geofisica pura e applicata*, 50 (III) pp. 235-242. Milan.
- BRICARD, J., PRADEL, J., et RENOUX, A., 1961, 2. Répartition granulométrique de la radioactivité des aérosols naturels. *C. R. Acad. Sc. Paris*, 263, p. 1-476. Paris.
- BRICARD, J., PRADEL, J., et RENOUX, A., 1962, Equilibre ionique et spectre granulométrique des aérosols naturels. Application aux ions radioactifs. *Ann. Geoph.* 18, pp. 384-387.
- BRICARD, J., GIROD, P., et PRADEL, J., 1965, Etat de charge des aérosols ultra-fins en milieu faiblement ionisé. Application aux gros ions atmosphériques. *Journal de Physique Appliquée*, 26, pp. 141A-147A. Paris.
- COENEN, W., 1963, *Staub*, 23,
- FONTAN, J., 1964, Le dosage des radioéléments gazeux donnant des produits radioactifs de filiation. Son application à la mesure de la radioactivité naturelle de l'atmosphère. Thèses. Toulouse.
- FUCHS, N. A., 1963, *Geofisica pura e applicata*, 56 (3), p. 185.
- GIROD, P., 1964, Mécanisme de fixation des ions sur des noyaux chargés électriquement dans une atmosphère artificielle. *Note C.E.A.N.* 473.
- HARLEY, J. H., 1962, Thèse. Rensselaer Polytechnic Institute New York.
- HOLL, W., et MUHLEISEN, R., *Geofisica pura e applicata*, p. 115. Milan.
- JOLIOT-CURIE, Mme I., *Les Radioéléments Naturels*. Hermann, Paris.
- JUNGE, C., 1962, *Kerms in der Geoph.* Berlin, pp. 169-189.
- KAWANO, M., et NAKATANI, S., 1959, The absolute measurement of the concentration of the radioactive substances in the atmosphere in Tokyo. *J. Geom. Geoelectr.*, 10, pp. 56-63.
- KAWASAKI, K., et KATO, K., 1958. *Denki Shikensho Ihô*, 22 (11), p. 801.
- KEEFE, D., NOLAN, P. J., et RICH, T. A., 1959,

- Charge equilibrium in aerosols according to the Boltzmann law. *Proc. Roy. Irish Acad.*, A 60, p. 27.
- LASSEN, L., et RAU, G., 1960, Die Anlagerung radioaktiver Atome an Aerosole. *Z. Angew. Phys. Dtsch.*, 12, p. 509.
- LASSEN, L., 1961, *Zeitschrift für Physik*, 163, p. 376.
- MADELAINE, G., 1963, Etude du pouvoir d'arrêt de différents filtres. *Mémoire C.N.A.M.*, rapport C.E.A.R. 2432.
- MADELAINE, G., 1964, *Note C.E.A.N.* 498.
- MALAKHOV, S. G., et KOVDA, A. V., 1961, *Izvestija Akad. Nauk S.S.S.R. (seria geofizicheskaja)*, 6, pp. 789-792.
- MOHNEN, V., et STIERSTADT, K., 1963, Die Verteilung der natürlichen Radioaktivität auf das Größenspektrum des natürlichen Aerosols. *Zeitschrift für Physik*, 173, pp. 276-293.
- NOLAN, P. J., et KENNAN, E. L., 1949, *Proc. Roy. Irish Acad.*, 52, p. 179.
- RENOUX, A., 1961, Etude des petits et gros ions radioactifs de l'air. Thèse de spécialité (géophysique). Paris.
- RENOUX, A., 1963, 1. Etude de la charge des petits ions radioactifs et de leur fixation sur les aérosols atmosphériques. *C.R. Acad. Sc. Paris*, 256, p. 478.
- RENOUX, A., 1963, 2. Etude des propriétés caractéristiques des petits ions et noyaux de condensation radioactifs dérivés du radon. *Séminaire de Physique des Aérosols*. Publié sous la direction du Professeur Bricard. Faculté des Sciences, Paris.
- RENOUX, A., 1963, 3. Noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres et répartition granulométrique de la radioactivité fixée par les aérosols naturels. *Journ. Rech. Atm.*, 1 (n° 4), pp. 197-207.
- RENOUX, A., 1965, Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. Thèses. Paris. *Rapport C.E.A.* 2.271.
- SERVANT, J., 1964, Thèses. Paris.
- SCHUMANN, G., 1963, Condensation Nuclei studied by means of radioactivity. *Journ. Rech. Atm.*, 1, n° 3, pp. 145, 150.
- THOMAS, J. W., 1955, *Journ. Colloid Sc.*, 10, p. 246.
- ZÉLÉNY, J., 1900, The velocity of ions produced in gases by Röntgen-Rays. *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A 195, pp. 193-234.

ИЗУЧЕНИЕ РАДИОАКТИВНЫХ ЯДЕР КОНДЕНСАЦИИ В АТМОСФЕРЕ

Выполнено сравнительное изучение продуктов распада радона и торона в атмосфере посредством измерения α -излучения. Для этого использовались трубки Zeleny, диффузионная батарея, а так же бумажные или мембранные фильтры для сбора проб. Изучаются некоторые характерные свойства радиоактивных ионов с подвижностью 10^{-3} см² сек⁻¹ вольт⁻¹ и ради усомненные $2 \cdot 10^{-4}$ см.

Концентрация нейтральных, радиоактивных ядер конденсации измерялось с помощью диффузионной батареи. Определена средняя концентрация радона и торона в воздухе. Из результатов следует, что для радона и торона примерно 42% α -излучения дают частицы радиусом меньшим $2 \cdot 10^{-6}$ см. Полученные экспериментальные результаты обсуждаются теоретически.