

Comportement des descendants du radon et du thoron en atmosphère dépoussiérée

Par GUY MADELAINE¹, *Service Technique d'Etudes et de Protection, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, France*

(Manuscrit reçu le 15 octobre 1965)

ABSTRACT

The behaviour of small radioactive ions resulting from a filtered and Radon or Thoron enriched air is studied. It is shown that these particles which initially have an electric load disappear and are replaced by electrically neutral particles, the size of which is studied to a base of time.

Les descendants directs du Radon et du Thoron (RaA et ThA) sont produits à l'état monoatomique. Ces atomes s'agglomèrent facilement en groupe moléculaire, que l'on peut assimiler à des petits ions, ou se fixent sur les noyaux de condensation présents dans l'air (1). Les aérosols naturels (ions et particules neutres) jouent ainsi le rôle de support pour les particules radioactives. Si l'on supprime les particules supports, c'est-à-dire si l'on dépoussière totalement l'air d'une enceinte les atomes radioactifs vont très certainement avoir un comportement qu'il est intéressant d'étudier. C'est ce que nous nous proposons de faire au cours de ce travail.

I. Généralités

Nous nous intéresserons simplement au Thoron et au Radon et à leurs descendants à vie courte. Ces produits appartiennent à la catégorie des métaux lourds. Au moment de la désintégration des émanations les premiers corps sont naturellement émis sous la forme atomique, mais ils se transforment très rapidement en complexes moléculaires par fixation d'eau, d'oxygène et de molécules polaires provenant d'impuretés présentes dans l'air d'une manière analogue à celle qui est généralement admise pour la formation des petits ions naturels. Les particules primaires, sont dans la plupart des cas, chargées positivement même lorsqu'elles sont formées par radioactivité alpha. Toutefois, il semble que le nombre

d'atomes de recul chargés dépend de la nature du gaz présent et croît avec la diminution du potentiel ionisant des atomes. Ces petits ions que nous appellerons « petits ions primaires », ont à leur formation une très grande mobilité et en présence d'autres particules leur pourcentage est très faible; de plus ils ne sont pratiquement constitués que par du RaA ou du ThB.

Différents auteurs ont mesuré le coefficient de diffusion ou la mobilité de ces particules primaires; CHAMBERLAIN et DYSON (1956), ont trouvé le coefficient de diffusion du Thorium B égal à $0.054 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ et ECKMANN (1912) pour le Radium A $0,06 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$.

Le coefficient de diffusion et la mobilité peuvent être reliés en première approximation par les relations :

$$D(\text{cm}^2 \text{ sec}^{-1}) = 2,5 \cdot 10^{-2} k (\text{cm}^2 \text{ sec}^{-1} \text{ V}^{-1}),$$

$$k(\text{cm}^2 \text{ sec}^{-1} \text{ V}^{-1}) = 40 D(\text{cm}^2 \text{ sec}^{-1}).$$

À un coefficient de diffusion de l'ordre de $5 \text{ à } 6 \cdot 10^{-2}$ correspond une mobilité de $2 \text{ à } 2.4$. FONTAN (1963) trouve $1,65$ par la méthode de Zélény, plus récemment BRICARD, GIROD & PRADEL indiquent la valeur $2,10$ déterminée de façon précise à l'aide d'un spectromètre à ions. Il est raisonnable de penser que cette dernière valeur correspond bien à la mobilité de l'ion primaire Po^{218} ou Po^{218} .

¹ Ont collaboré à ce travail MM. BILLARD (1), BRICARD (2), GIROD (2) et PRADEL (1). — (1) Commissariat à l'Energie atomique, Fontenay-aux-Roses; (2) Faculté des Sciences de Paris.

De nombreux auteurs fixent comme mobilité limite pour les petits ions radioactifs la valeur de 0,2 cm/sec/V/cm. Il faut donc penser qu'il y a agglomération des « petits ions primaires » de mobilité 2,2. Deux cas peuvent se produire notamment en l'absence de poussières.

a. Recombinaison des petits ions radioactifs entre eux.

b. Recombinaison des petits ions radioactifs avec les petits ions normaux de l'air ou les autres impuretés présentes (eau, molécules polaires, etc...). Dans ce rapport, nous nous proposons de vérifier ces différentes conclusions et de suivre en fonction du temps l'évolution des petits ions radioactifs en atmosphère dépoussiérée.

II. Méthode de captation d'étude des particules radioactives

Les particules négatives ou positives radioactives sont captées par la méthode de Zélény. L'électrode centrale est un fil de cuivre de 3/10 mm diamètre; après le prélèvement elle est démontée, placée entre deux scintillateurs et l'on détecte la radioactivité alpha. (MADELAINE, 1964; RENOUX, 1965).

Les particules neutres sont mises en évidence à l'aide d'une batterie de diffusion. Celle-ci se compose de 10 tubes métalliques de 4 mm de diamètre et de 1 mètre de longueur. Le pouvoir d'arrêt d'une telle batterie est (9) :

$$n/n_0 = 0,82 e^{-3,66 \mu} + 0,097 e^{-22,2 \mu} + \dots \quad (1)$$

$$\text{avec} \quad \mu = Dx/R\bar{U}$$

où D est le coefficient de diffusion de la particule, x la longueur du tube, R son rayon et $\bar{U}$ la vitesse moyenne du courant d'air n/n_0 représente la fraction des particules incidentes transmises par la batterie. Cette formule n'est valable que pour des valeurs de $\mu > 0,03$; pour $\mu < 0,03$ nous utilisons la formule :

$$\bar{n}/n_0 = 1 - 2,57 \mu^{\frac{2}{3}}$$

L'activité alpha d'un filtre absolu placé derrière la batterie de diffusion comparée à celle d'un filtre identique placé en parallèle donnera la proportion de particules neutres.

Les ensembles de comptage utilisés sont des photomultiplicateurs d'usage courant au C.E.A.

Connaissant la mobilité k ou le coefficient de diffusion D des particules, nous pouvons déterminer leur diamètre en appliquant les formules de Stokes, Stokes-Cunningham et Langevin suivant le domaine de dimension (MADELAINE, 1965; GIROD, 1965).

III. Comportement des descendants du thoron et radon en atmosphère dépoussiérée

Le gaz radioactif est introduit dans une enceinte sphérique de 1 m³ préalablement dépoussiérée en circuit fermé par deux filtres roses Poelman Schneider placés en série (efficacité supérieure à 99,95 % pour des particules de 0,1 μ à 1 cm/sec (MADELAINE, 1964).

Deux séries successives d'essais ont été faites avec le thoron et le radon : Etude de la charge des particules et étude de leur dimension.

A. Charge des particules des descendants du thoron

Le thoron est injecté dans l'enceinte dépoussiérée pendant 5 minutes. A la fin de l'accumulation, la concentration en thoron est mesurée; elle est toujours comprise entre 2,5 et 4.10⁻¹¹ C/cm³.

Après cette accumulation, on attend 10 mm pour obtenir la disparition complète du gaz.

Les mesures sont ensuite effectuées à intervalle de temps régulier en réalisant le montage représenté fig. 1.

Le capteur à ions placé dans la branche B est destiné à piéger tous les ions porteurs d'une charge positive; celui de la branche A ne comporte pas de tension : il est destiné à établir les corrections pour la captation d'ions par diffusion sur l'électrode centrale (malgré sa très faible dimension, les pertes ne sont pas négligeables car les particules ont un coefficient de diffusion extrêmement élevé). Les deux filtres en fin de montage collectent les autres particules.

Aucun des prélèvements effectués entre 10 minutes et plusieurs heures après l'injection du thoron ne donnent une activité décelable sur l'électrode du capteur. On peut donc conclure à l'absence de particules chargées positivement. En plaçant une tension positive pour capter éventuellement les particules négatives on obtient le même résultat.

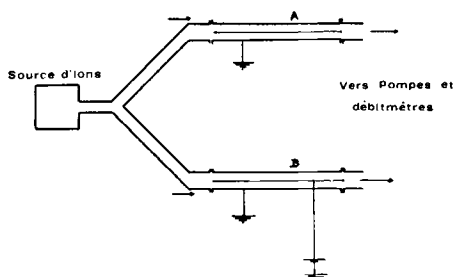


Fig. 1

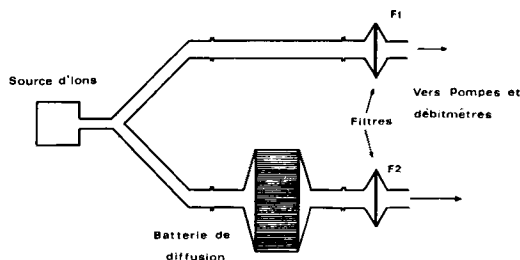


Fig. 2

B. Charge des particules des descendants du radon

Le même essai a été réalisé avec le radon, en modifiant légèrement le montage expérimental pour tenir compte de la désintégration du radon à l'intérieur des capteurs. Comme pour le thoron, on ne décèle aucune particule positive en nombre mesurable. Ces essais ont été effectués à 40 % d'hygrométrie.

C. Dimension des particules pour le dépôt actif du thoron

Toutes les particules étant neutres, l'étude de la dimension n'a pu être faite par des méthodes électrostatiques, mais en utilisant une batterie de diffusion.

Les mêmes montages expérimentaux ont été utilisés en remplaçant un capteur à ions par la batterie de diffusion. Sur une branche, un filtre F_1 collectera toutes les particules présentes dans l'enceinte. Sur l'autre branche, l'activité du filtre F_2 placé derrière la batterie donnera le nombre de particules passant à travers celle-ci (fig. 2).

Nous avons opéré à différentes vitesses à travers la batterie et à des intervalles de temps variables. A partir de la variation d'efficacité de la batterie, on peut obtenir un coefficient de diffusion moyen et avoir ainsi une indication sur la dimension de ces particules.

La fig. 3 représente pour le thoron la variation de l'efficacité de la batterie en fonction du temps pour deux vitesses de passage différentes et indique en définitive le grossissement des particules en fonction du temps.

On peut constater :

— que les deux courbes après une croissance rapide tendent vers une valeur asymptotique correspondant à une perméabilité de la batterie

de l'ordre de $8,4 \cdot 10^{-1}$ pour 30 l/mn et $7,8 \cdot 10^{-1}$ pour 16 l/mn; ces deux valeurs indiquent un coefficient de diffusion moyen de l'ordre de $2,8 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ correspondant à une mobilité moyenne de $0,2 \text{ cm/sec/V/cm}$. Cette valeur est celle généralement admise pour les « petits ions ». Il semble donc que toutes les particules radioactives présentes dans l'enceinte tendent vers la dimension limite des petits ions.

— que si on extrapole les courbes au temps $t=0$, on trouve une valeur du coefficient de diffusion comprise entre 5 et $6 \cdot 10^{-1} \text{ cm}^2/\text{sec}^{-1}$,

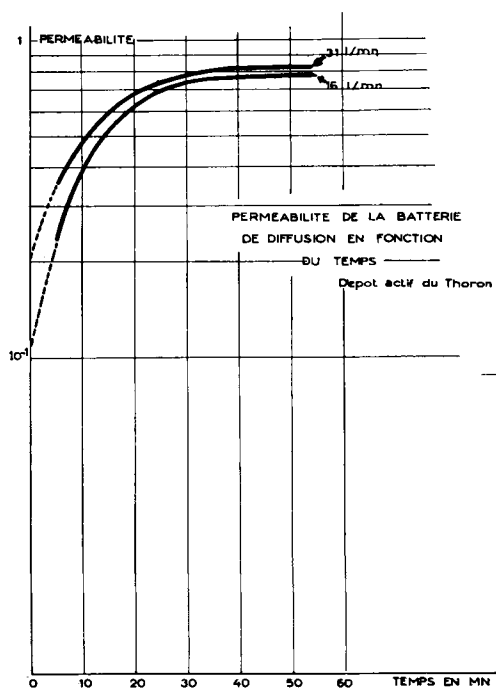


Fig. 3

cette valeur étant en parfait accord avec celle trouvée par de nombreux auteurs pour les petits ions primaires.

D. Dimension des particules pour le dépôt actif du radon

Les mêmes essais ont été effectués avec le radon; en utilisant la même technique expérimentale, les résultats sont identiques, à cela près que les valeurs des coefficients de diffusion des ions primaires et secondaires sont un peu plus élevés. Cet écart est dû sans doute à la désintégration du radon à l'intérieur du système de captation.

IV. Discussion des résultats — conclusion

L'absence presque totale de gros ions et de noyaux de condensation, et la présence en très grand nombre de petits ions due à l'ionisation importante existant à l'intérieur de l'enceinte expliquent que les particules radioactives soient neutres. En effet, les seules recombinaisons possibles ne peuvent s'effectuer qu'avec des ions de l'air ou des impuretés telles que vapeur d'eau et molécules polaires venant neutraliser les ions primaires positifs. Il est bien évident qu'en épurant et en desséchant parfaitement l'air de l'enceinte, la proportion de petits ions chargés doit augmenter, il est possible qu'au dessous de 40 % d'humidité relative, un pourcentage très faible d'ions chargés existe, mais malgré la sensibilité assez grande de la mesure, il ne

serait pas raisonnable de chiffrer la présence de ces particules.

Les dimensions des particules que nous avons trouvées pour le dépôt actif du radon et du thoron nécessitent également quelques remarques. Tout d'abord, la méthode que nous avons utilisée ne permet d'en donner qu'un ordre de grandeur. Toutefois, les résultats confirment ceux obtenus précédemment, à savoir :

— l'existence de particules primaires RaA ou ThB de très grande mobilité ($k \approx 2$ cm/sec/V/cm) (BRICARD, GIROD & PRADEL, 1965) particules chargées positivement dont le coefficient de diffusion est voisin de $6 \cdot 10^{-2}$ cm² sec⁻¹, ces particules ayant une durée de vie extrêmement courte;

— la recombinaison de ces particules avec des ions de signes contraires (ions négatifs de l'air) ou des impuretés pour donner des « clusters » ayant un coefficient de diffusion compris entre $2,7 \cdot 10^{-2}$ et $5 \cdot 10^{-3}$. On a vérifié que cette recombinaison ne s'effectue pratiquement pas entre particules radioactives, une autoradiographie ne donne aucune trace alpha multiple ou double révélatrice de cette recombinaison.

RÉSUMÉ

On étudie en enrichi en Radon ou en Thoron le comportement des petits ions radioactifs qui en résultent. On montre que ces particules possédant initialement une charge électrique disparaissent et sont remplacées par des particules électriquement neutres dont on étudie les dimensions en fonction du temps.

BIBLIOGRAPHIE

- BLANC, D., et FONTAN, H., 1963, Etude de la mobilité et de la filtration d'aérosols ultrafins. Congrès Health Physics Society, Paris.
- BRICARD, J., 1963, Séminaire de Physique des Aérosols, Paris.
- BRICARD, J., GIROD, P., et PRADEL, J., 1965, Spectre de mobilité des petits ions radioactifs de l'air. C.R. Académie des Sciences de Paris, t. 260, juin 1965.
- CHAMBERLAIN, A. C., et DYSON, 1956, The dose to the trachea and bronchi from the decay products of radon and thoron. *Brit. J. Radiol.*, 29, June 1956, p. 317.
- ECKMANN, G., 1912, *Jb. Radioakt. und Elektronik*, 9, p. 157.
- GIROD, P., 1965, Séminaire de Physique des Aérosols, Paris.
- MADELAINE, G., Fixation sur les aérosols des descendants des gaz radioactifs naturels. Note C.E. A., 498.
- MADELAINE, G., 1964, Etude du pouvoir d'arrêt des différents filtres. Rapport C.E.A. R-2432.
- MADELAINE, G., Rapport en cours de publication.
- RENOUX, A., 1965, Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. Thèse Docteur-ès-Sciences, Paris.
- ZELENY, J., *Phil. Trans. Roy. Soc.*, A195, p. 193.

ПОВЕДЕНИЕ ПРОДУКТОВ РАСПАДА ЕСТЕСТВЕННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ
ГАЗОВ В СВОБОДНОЙ ОТ ПЫЛИ АТМОСФЕРЕ

Изучается поведение маленьких, некрупных радиоактивных ионов в профильтрованном и обогащенном радоном или тороном воздухе. Показано, что частицы, имевшие вначале

электрический заряд, исчезают, а вместо них появляются электрически нейтральные частицы. Размеры последних изучаются как функции времени.