LES AÉROSOLS RADIOACTIFS NATURELS

par André RENOUX*, Fouzy CHARFI** et Béchir TORKI**

(Manuscrit reçu le 7 août 1967)

I. INTRODUCTION

Depuis toujours, notre globe a été soumis à la radioactivité naturelle. Il a fallu attendre 1901 pour que ELSTER et GEITEL (EL-1) la mettent en évidence. A partir de cette date, elle a fait l'objet de nombreux travaux, le volume des recherches ayant augmenté surtout depuis 15 ans.

En effet, on s'est aperçu que la connaissance de la concentration de l'atmosphère en éléments radioactifs naturels est nécessaire dans de nombreux cas. En particulier :

a) dans les mines d'uranium et les usines de traitement de minerais radioactifs, la pollution de l'atmosphère par les gaz et les aérosols radioactifs peut atteindre un niveau très élevé. Leur inhalation par les mineurs crée alors un risque très sérieux qu'il est nécessaire d'évaluer par une mesure continue de la radioactivité, afin de mettre en œuvre des mesures de protection efficaces;

b) lorsqu'on évalue la contamination causée par des éléments radioactifs artificiels, il est nécessaire de retrancher la radioactivité naturelle des résultats obtenus;

c) on a pu, en déterminant la teneur de l'atmosphère en gaz radioactifs naturels, obtenir des indications sur la composition des terrains rencontrés. De même, le dosage des produits radioactifs entraînés par les vents permet de localiser à distance des gisements uranifères;

d) la mesure de la radioactivité naturelle fixée sur les différentes catégories d'aérosols atmosphériques a permis de vérifier de nombreuses lois de l'électricité atmosphérique.

La radioactivité naturelle de l'air est due principalement aux émanations gazeuses provenant de la désintégration des éléments radioactifs naturels ayant une masse atomique supérieure à 222. En effet, chacune des trois chaînes radioactives naturelles ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U donne un gaz radioactif de courte période : le radon $^{222}_{86}\text{Rn}$ le plus abondant dans l'air, produit par la désintégration α du $^{226}_{88}\text{Ra}$, le thoron $^{220}_{86}\text{Tn}$, produit par la désintégration du $^{224}_{88}\text{ThX}$ et l'actinon $^{218}_{86}\text{An}$ qui provient de la désintégration de l' $^{223}_{88}\text{AcX}$ et qui crée une radioactivité négligeable étant donné sa faible concentration dans l'air (FO-1).

En résumé, on rencontre dans l'atmosphère deux gaz radioactifs naturels, le radon et le thoron qui se forment dans le sol à partir de l'uranium et du tho-

* Faculté des Sciences de Tunis.

** Commissariat à l'Energie Atomique, El Aouina, Tunisie.

rium; ils diffusent vers la surface et se dégagent dans l'atmosphère où ils se désintègrent en produisant une série d'atomes d'éléments solides dans les conditions normales.

Ainsi on trouve le radon et le thoron surtout dans les couches inférieures de l'atmosphère (PR-1). On peut, du reste, retenir les ordres de grandeur suivants, concernant la répartition de la radioactivité naturelle atmosphérique en fonction de l'altitude (en valeurs relatives) (NA-1).

Pour le radon :

au niveau du sol	100
à 1 m d'altitude	95
à 10 m d'altitude	87
à 100 m d'altitude	69
à 1 000 m d'altitude	38
à 7 000 m d'altitude	7

Pour le thoron :

au niveau du sol	100
à 5 m d'altitude	70
à 10 m d'altitude	50
à 50 m d'altitude	5
à 100 m d'altitude	0,5

La radioactivité naturelle de l'atmosphère varie de façon importante en fonction du temps, du lieu des mesures et des conditions météorologiques. Différents auteurs ont déterminé une teneur moyenne de l'air en radon comprise entre 1 et $2 \cdot 10^{-16}$ C/cm (NA-1), (FO-1), (RE-1), (HA-1), (HA-1), (SE-1). Pour l'activité en thoron, on arrive à des valeurs légèrement plus faibles.

II. FORMATION DES AÉROSOLS RADIOACTIFS NATURELS

1) LA NOTION D'AÉROSOL

Un aérosol est une particule en suspension dans l'air ou plus généralement dans un gaz, de dimension linéaire moyenne comprise entre 0,01 micron et quelques microns (LA-1).

On a l'habitude de classer les aérosols en deux catégories : les ions et les noyaux de condensation, et les poussières.

a) Les ions et les noyaux de condensation

L'air contient des petits ions positifs ou négatifs (molécules ou groupes de molécules dont l'ensemble a perdu ou gagné un électron sous l'effet des radiations ionisantes : rayons γ , rayons cosmiques...). On les caractérise par leur mobilité k , liée à la vitesse v , que prend l'ion sous l'action d'un champ électrique E par la relation :

$$v = k E$$

(E exprimé en V/cm, v en cm/s, k en $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$).

Pour les petits ions, la mobilité (d'ailleurs assez mal définie) semble être en moyenne de $1,5 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ et les dimensions sont voisines des dimensions moléculaires (quelques 10^{-8} cm).

En plus de ces petits ions, l'air contient des particules plus grosses (quelques 10^{-6} cm), les noyaux de condensation dont une partie possède une charge électrique : ce sont les gros ions, ceux chargés positivement et négativement étant en nombre sensiblement égal. Ces noyaux de condensation sont présents à raison de $10\,000/\text{cm}^3$ à la campagne, de $100\,000/\text{cm}^3$ en atmosphère polluée (ville industrielle par exemple).

On les classe par rapport à leurs mobilités et à leurs dimensions de la façon suivante (RE-2) (IS-1) :

	Mobilités $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$	Rayons $\times 10^{-8} \text{ cm}$
Petits ions	$k > 1,0$	$r < 6,6$
Petits ions moyens	$10^{-2} < k < 1,0$	$6,6 < r < 78$
Gros ions moyens	$10^{-3} < k < 10^{-2}$	$78 < r < 250$
Ions de Langevin	$2,5 \cdot 10^{-4} < k < 10^{-3}$	$250 < r < 570$
Ultras gros ions	$k < 2,5 \cdot 10^{-4}$	$r > 570$

Parmi ces petits ions et noyaux de condensation « normaux », existent des petits ions et noyaux de condensation (neutres ou chargés) radioactifs qui ont à peu près les mêmes caractéristiques; mais ici, les ions chargés positivement sont en nombre sensiblement plus important que ceux chargés négativement.

Ces particules radioactives sont dans l'air, en nombre très faible de l'ordre de 10^{-4} à 10^{-3} par cm^3 (RE-3, BR-1).

b) Les poussières

On classe dans cette catégorie les particules de dimensions supérieures à 10^{-5} cm .

2) FORMATION DES AÉROSOLS RADIOACTIFS NATURELS

La désintégration du radon, du thoron et de l'actinon donne naissance à des atomes de RaA, ThA et AcA à l'état solide dans les conditions normales (PR-1, NA-1). Leur grande mobilité entraîne leur fixation rapide sur les surfaces solides ou liquides en suspension dans l'air comme les gros ions ou les poussières fines. Ils se désintègrent eux-mêmes avant ou après leur fixation sur une particule pour donner des descendants également radioactifs RaB, RaC, ThB, ThC, AcB, AcC. Le RaC se désintègre à son tour pour donner du RaD dont la période est très longue (22 ans); les aérosols sur lesquels le RaD se fixe sont entraînés vers le sol par leur poids ou par les précipitations avant qu'un équilibre radioactif ait pu être atteint. Il en résulte que la radioactivité due aux descendants à vie longue (RaD, RaE, RaF) est très faible (SO-1, KI-1).

L'accumulation de substances radioactives dans l'air peut être due non seulement à une diffusion à travers le sol des gaz radioactifs, mais aussi au rejet dans l'air des atomes radioactifs de recul provenant des désintégrations α d'éléments lourds (NA-1). Le parcours des atomes de recul dans l'air étant voisin de 0,1 mm pour une pression normale, ces atomes radioactifs peuvent passer dans l'atmosphère et y rester par diffusion moléculaire et par convection, ou se fixer sur les particules en suspension dans l'air. Il faut cependant noter que la concentration des atomes de recul dans l'atmosphère tombe brusquement lorsqu'on s'éloigne de la source.

Même si les atomes de recul ne sont pas radioactifs, ils peuvent entraîner mécaniquement des atomes de la source radioactive.

III. LES PETITS IONS RADIOACTIFS

1) CAPTATION ET DÉTECTION

On les recueille sur l'électrode centrale d'un tube de ZELENY (ZE-1) constitué (fig. 1) par un tube métallique cylindrique relié à la terre dans l'axe duquel est tendu un fil métallique fin porté à un potentiel de signe contraire de celui de la charge de l'ion qu'on veut capter.

FIG. 1 — Schéma de principe du collecteur d'ions

À la fin d'un prélèvement de durée suffisante pour que l'équilibre radioactif soit atteint sur le fil, on démonte l'électrode, on la place entre deux scintillateurs de sulfure de zinc. On pose enfin l'ensemble sur le photomultiplicateur d'un ensemble de comptage α (RE-1). L'activité α mesurée de cette façon est proportionnelle au nombre de petits ions radioactifs captés sur le fil.

Nous distinguerons entre les petits ions dus au dépôt actif du radon et ceux dus au dépôt actif du thoron.

2) LES PETITS IONS PROVENANT DU RADON

a) Nature

En étudiant la décroissance de l'activité α de l'électrode axiale d'un tube de ZELENY, chambre d'ionisation ayant fixé des petits ions, RENOUX (RE-1) a pu montrer que ces petits ions sont pratiquement formés par du RaA. Ce résultat a été confirmé par GIROD (GI-1) qui a étudié les traces α d'une plaque nucléaire conductrice ayant fixé des petits ions.

b) *Charge*

On a montré (BR-6, RE-1) à l'aide d'un condensateur plan sur les armatures (démontables) duquel on fait arriver le dépôt actif du radon préalablement filtré, que 81 % des atomes RaA initialement formés sont chargés positivement, 18 % étant neutres. Il n'existe donc pas d'atomes RaA négatifs à l'état initial. Par contre, dans l'air atmosphérique, il en existe en très petites quantités ($< 3\%$) (RE-1).

c) *Mobilités*

Les premières études de répartition des petits ions radioactifs en fonction de leur mobilité ont été réalisées par GIROD (GI-1) utilisant un capteur d'ERICKSON (ER-1) constitué essentiellement par un condensateur plan allongé dont les armatures sont des plaques nucléaires rendues conductrices.

Ces mesures ont été ensuite reprises (BI-1, BR-2) à l'aide de l'étude de la répartition fixée sur l'électrode axiale d'un tube de ZELENY (RE-3).

Un ion de mobilité k , pénétrant dans le tube à une distance r de l'axe, se dépose à une distance x de l'entrée donnée par la relation :

$$x = \frac{r^2 - r_i^2}{4 V c k} v$$

dans laquelle r_i est le rayon du fil axial, v la vitesse du courant d'air qui traverse le tube, V la tension entre les électrodes et c la capacité par unité de longueur de tube de ZELENY, lequel permet donc de classer les ions captés suivant leur mobilité.

On a pu ainsi montrer l'existence de groupes discontinus de mobilités : 2,0; 1,5; 0,86; 0,56 $\text{cm}^2.V^{-1}.s^{-1}$. Indiquons que cette répartition discontinue des mobilités peut être rapprochée des résultats obtenus par CHAPMAN et indiqués par LOEB (LO-1) et par SIKSNA et LINDSAY (SI-1).

d) *Concentration*

L'activité moyenne due aux petits ions radioactifs a été mesurée à Fontenay-aux-Roses dans la banlieue parisienne à 13 coups par dix minutes (maximum 35, minimum 3) lorsqu'un débit d'air de 37 l/mn traverse le tube de ZELENY. Ceci correspond à $n_A = 1,1 \cdot 10^{-4}$ petits ions RaA positifs par cm^3 d'air, auxquels il faut ajouter 10^{-5} petits ions RaA négatifs et au maximum, $2,2 \cdot 10^{-5}$ atomes RaA neutres, toujours par cm^3 d'air.

2) LES PETITS IONS ISSUS DU THORON

a) *Nature*

Compte tenu de la courte période du ThA (0,10 seconde) et de celle relativement longue du ThB (10,6 h), il est évident que les petits ions issus du thoron sont uniquement constitués par du ThB.

b) *Charge*

A l'aide d'expériences identiques à celles réalisés dans le cas du radon, on a pu montrer (RE-1) que, à l'état initial, il existe moins de 3 % d'atomes

(ThA + ThB) électriquement neutres. Dans l'air, on n'a pu déceler que des petits ions ThB chargés positivement.

c) Mobilités

On a pu, de la même façon que précédemment, mettre en évidence (GI-1, BI-1, BR-2) la présence de cinq groupes discontinus de mobilités, savoir : 2,0; 1,5; 0,86; 0,56; 0,44 $\text{cm}^2/\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ (fig. 2).

FIG. 2

d) *Concentration*

Ces petits ions sont, dans l'air, en quantité plus faible que ceux provenant du radon. Pour un débit d'air de 37 l/mn, on obtiendrait sur l'électrode axiale du tube de ZELÉNY une activité α de 1,1 coup/10 mn en moyenne (maximum 3,5, minimum 0,2). Il a donc fallu utiliser des capteurs spéciaux permettant de traiter des volumes d'air plus importants.

Cette activité correspond à une concentration moyenne $n_B = 7,5 \cdot 10^{-6}$ atomes ThB par cm^3 d'air. On n'a pas pu mettre en évidence la présence d'ions ThB négatifs dans l'air atmosphérique.

IV. LES GROS IONS RADIOACTIFS

Les gros ions radioactifs sont également captés par la méthode de ZELÉNY. Mais leur mobilité étant beaucoup plus faible (quelques 10^{-3} cm/s/V/cm), l'électrode axiale est portée à un potentiel beaucoup plus élevé (plusieurs milliers de volts).

Ici, encore, nous distinguerons deux cas, suivant que ces gros ions proviennent du radon ou du thoron.

1) LES GROS IONS RADIOACTIFS ISSUS DU RADON

a) *Nature*

Ils sont formés par du RaA, du RaB et du RaC. Il est fondamental de connaître si ces trois corps sont en équilibre radioactif, donc si ces gros ions ont une durée suffisante pour que cet état de fait soit réalisé. C'est un problème très important, car dans les calculs de radioactivité atmosphérique, il faudra tenir compte d'un éventuel non équilibre radioactif entre le radon et ses descendants.

Par des mesures de décroissance, RENOUX (RE-2, RE-1) a évalué à 20 minutes au minimum la durée de vie d'un gros ion, ce qui est insuffisant pour que l'équilibre radioactif soit réalisé. Par contre, SERVANT (SE-2) et FONTAN (FO-1) ont parfois constaté que cet équilibre était atteint dans l'air, bien que ce cas soit assez rare.

b) *Charge*

On a pu mettre en évidence, dans l'air, la présence de gros ions radioactifs positifs, négatifs et à l'aide d'une batterie de diffusion (RE-4) (TH-2), la présence de noyaux neutres radioactifs ayant les dimensions de gros ions. L'existence des ions radioactifs négatifs a été confirmée par MADELAINE en atmosphère artificiellement chargée en radon (BI-2).

Si N^+ et N^- désignent les concentrations respectives en gros ions radioactifs positifs et négatifs, n_1 et n_2 celles des petits ions positifs et négatifs ordinaires contenus dans un volume d'air donné, D_1 et D_2 étant les coefficients de diffusion respectifs de ces petits ions, on montre que (BR-3) :

$$\frac{N^-}{N^+} = \left(\frac{n_2 D_2}{n_1 D_1} \right)^2.$$

On calcule que $n_2 = n_1$ lorsque la valeur Q/N^2 est supérieure à $10^{-5} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. Q est l'intensité d'ionisation, N la concentration totale des particules présentes. Alors, N^-/N^+ tend vers une limite égale à $(D_2/D_1)^2 = 1,56$, car, dans l'air, on trouve $D_2/D_1 = 1,25$ (TH-1).

Ce cas n'est pas réalisé dans l'atmosphère dans laquelle on trouve (RE-1) :

$$\frac{N^-}{N^+} = 0,28.$$

Quant à la concentration en ions radioactifs électriquement neutres, soit N_s elle obéit aux relations :

$$\frac{N^+}{N_0} = \frac{D_1}{D_2} \left(\frac{1 - e^{-\eta}}{\eta} \right) \quad \text{et} \quad \frac{N^-}{N_0} = \frac{D_2}{D_1} \left(\frac{1 - e^{\eta}}{\eta} \right)$$

avec

$$\eta = e^2/kTR$$

e étant la valeur de la charge élémentaire, k la constante de BOLTZMAN, T la température absolue, R le rayon de la particule.

c) Mobilités

Les spectres de mobilités des gros ions radioactifs issus du radon ont été réalisés dans l'air atmosphérique par RENOUX (RE-3, RE-1) et en atmosphère artificielle par MADELAINE (MA-2). Les mobilités des gros ions radioactifs sont de quelques $10^{-3} \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$.

La distribution en fonction des mobilités se transforme en répartition, en dimensions, grâce à la relation de CUNNINGHAM-MILLIKAN :

$$k = \frac{e}{6 \pi \eta r} \left(1 + \frac{a \lambda}{r} + \frac{b \lambda}{r} e^{-\frac{c \lambda}{r}} \right)$$

η viscosité de l'air = $1,7 \cdot 10^{-4} \text{ c.g.s.}$

a constante = $0,86 \text{ c.g.s.}$

b constante = $0,29 \text{ c.g.s.}$

c constante = $1,25 \text{ c.g.s.}$

r rayon de la particule.

λ libre parcours moyen des molécules d'air est voisin de 10^{-5} cm.

e désigne la charge de la particule.

La figure 3 indique un maximum voisin de $r = 10^{-6} \text{ cm.}$, alors qu'en atmosphère artificielle, le maximum correspond à un rayon r compris entre 2 et $5 \cdot 10^{-6} \text{ cm.}$

d) Concentration

A l'aide des formules classiques d'accumulation et de décroissance et en supposant une durée de vie des gros ions égale à 20 minutes, on calcule (RE-1) que $1,5 \cdot 10^{-4}$; $4 \cdot 10^{-5}$ et $5,6 \cdot 10^{-4}$ atomes RaA sont fixés respectivement sur les gros ions positifs, négatifs et les noyaux neutres de l'air, par cm^3 d'air.

FIG. 3

2) LES GROS IONS ISSUS DU THORON

a) *Nature*

Ils sont formés par du ThB et du ThC. On suppose que leur durée de vie est comparable à celle des gros ions provenant du radon, soit 20 minutes au minimum.

b) *Charge*

Dans l'air atmosphérique, on constate (RE-1) qu'il existe des gros ions, provenant du thoron, électriquement positifs, négatifs et neutres. Rappelons

que pour les mettre en évidence, on doit effectuer des captations de 24 heures au minimum et laisser l'activité α décroître pendant 3 heures afin d'éliminer le dépôt actif du radon. Si on suppose les activités dues aux gros ions proportionnelles à leur concentration, on trouve (RE-1) que :

$$\frac{N^-}{N^+} = 0,55 \quad \text{et que} \quad \frac{N_0}{N^+} = 7.$$

Bien entendu, comme dans le cas du radon, ce ne sont là que des valeurs moyennes destinées à fixer les idées, les rapports obtenus variant dans des proportions importantes suivant les jours et les conditions météorologiques.

c) Mobilités

Compte tenu du fait que l'activité α due au thoron est quatre fois plus faible en moyenne que celle due au radon atmosphérique, il n'a pas été possible de réaliser une étude directe du spectre de mobilité des gros ions ThB-ThC. On suppose que leur répartition est identique à celle des gros ions RaA-RaB-RaC.

d) Concentration

En moyenne, on trouve (RE-1) que $8,3 \cdot 10^{-5}$; $1,6 \cdot 10^{-4}$ et 10^{-3} atomes de ThB sont fixés respectivement sur les gros ions négatifs, positifs et sur les noyaux neutres, par cm^3 d'air.

3) POLLUTION GÉNÉRALE DE L'AIR

Lorsqu'on veut réaliser une étude de la radioactivité des aérosols naturels, il faut l'accompagner d'une évaluation de la pollution générale de l'air. Soit dN le nombre de particules atmosphériques dont les rayons sont compris entre R et $R + dR$. La répartition granulométrique de ces particules est définie par la relation :

$$f(R) = \frac{dN}{dR}.$$

La fonction $f(R)$ la plus couramment utilisée est celle établie par HOLL et MULEISEN (HO-1), soit :

$$f(R) = \frac{R^3}{C}.$$

C étant une constante (identique dans tous les cas) indépendante du rayon R . Signalons qu'une loi différente a été établie par JUNG (BR-4), soit :

$$\frac{dN}{d \log R} = \frac{C}{R^3}.$$

Cette deuxième expression semble valable pour des particules de rayons au moins égaux à 10^{-5} cm (BR-4) alors que la première est valable pour des particules de rayons inférieurs à 10^{-5} cm (SC-1).

Mais compte tenu du fait que les particules de rayons supérieurs ne jouent pas un rôle important en radioactivité atmosphérique (SC-1) (ME-1), on peut admettre pour valable la forme $f(R) = \frac{C}{R^3} = \frac{dN}{dR}$.

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

Ce nombre a été déterminé soit à l'aide d'un compteur d'AITKEN (AI-1), soit à l'aide d'un compteur de POLLAK (MA-1, PO-1), et il correspond sensiblement à la totalité des aérosols atmosphériques chargés ou non. Dans les régions industrielles, on le trouve de l'ordre de 80 à 100 000 particules par cm^3 d'air (RE-5, MO-1, LO-2, LA-2). Il est beaucoup moins élevé en atmosphères moins polluées et en particulier à Tunis-El Aouina, il sera intéressant de le mesurer. Il est probable qu'il sera beaucoup moins grand qu'à Fontenay-aux-Roses et ceci devrait entraîner un état de charge des gros ions radioactifs différent.

Il est inutile d'insister sur le fait que le résultat indiqué n'est qu'un résultat moyen qui ne pourra être comparé qu'à des grandeurs de même nature dans le cas des aérosols radioactifs.

V. RÉPARTITION DE LA RADIOACTIVITÉ NATURELLE ATMOSPHÉRIQUE

Par comparaison et en utilisant soit des filtres roses, soit des membranes filtrantes, on peut déterminer l'activité α fixée sur les poussières et établir la répartition granulométrique de la radioactivité naturelle de l'air.

Les répartitions sont légèrement différentes dans le cas du dépôt actif du radon et dans le cas du dépôt actif du thoron.

1) CAS DU DÉPÔT ACTIF DU THORON

On peut dresser le tableau suivant (RE-1, RE-5) indiquant en pourcentages la répartition de l'activité α fixée sur les différentes particules de l'air.

Petits ions positifs	Gros ions positifs	Gros ions négatifs	Noyaux neutres	Poussières et autres particules	Total
$R = 99 \cdot 10^{-8} \text{ cm}$	$R < 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$			$R > 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	
0,3 %	4,7 %	2,6 %	33,7 %	58,7 %	100 %

41,3 % de l'activité se trouvent donc sur des particules de rayons inférieurs à $2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$.

2) CAS DU DÉPÔT ACTIF DU RADON

L'activité α se répartit de la façon suivante (RE-1, RE-5) :

Petits ions positifs	Gros ions positifs	Gros ions négatifs	Noyaux neutres	Poussières et autres particules	Total
$R = qq \cdot 10^{-8} \text{ cm}$	$R < 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$			$R > 2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$	
1,6 %	7,9 %	2,2 %	31,3 %	57 %	100 %

Ce tableau nous indique que 43 % de l'activité se trouvent sur des particules de rayon inférieurs à $2 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$.

1) On remarque l'analogie qui existe entre les deux distributions; l'état de charge des aérosols diffère, mais leur répartition granulométrique est sensiblement la même. Ce résultat est en accord avec celui indiqué par différents auteurs ayant opéré en atmosphère artificiellement enrichie en radon ou en thoron (MA-2, HO-1).

Il semble donc que la répartition de la radioactivité sur les aérosols atmosphériques est indépendante de la concentration de l'air en produits radioactifs : seul l'état de charge des particules diffère.

Essayons d'expliquer ce phénomène.

Soit un milieu polydispersé, *i-e* renfermant des particules de différentes tailles. Soit $q(R)$ 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 (BR-5) que :

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

avec

$$\beta = 4 \pi DR / I(R).$$

$I(R)$ étant une fonction qui s'écrit, suivant que le noyau porte p charges positives ou p charges négatives (BR-4, PL-1, GU-1) :

$$I(\eta, p) = \frac{e^{p\eta} - 1}{p \eta} \quad I(\eta - p) = \frac{1 - e^{-p\eta}}{p \eta}$$

en posant

$$\eta = ek/DR$$

e étant la charge élémentaire, k la constante de BOLTZMAN, R le rayon du noyau de condensation, D le coefficient de diffusion du petit ion. $f(R) = \frac{dN}{dR}$ est la fonction de répartition du milieu, donc des gros ions, noyaux neutres et poussières atmosphériques. Nous avons vu que nous pouvons prendre $f(R) = \frac{C}{R^3}$; n est le nombre de petits ions de chaque signe par cm^3 d'air : nous supposons qu'il y a

symétrie des charges en ce qui concerne les particules autres que les particules radioactives, la présence de ces dernières, étant donné leur faible concentration, ne modifiant pas l'état de charge global.

Fig. 4. — Valeur expérimentale

La fonction $q(R)$ est représentée en valeurs relatives sur la figure 4 (BR-5). On constate que les noyaux moyens de rayons inférieurs à 2.10^{-6} cm fixent 45 % de l'activité totale pour $R_0 = 10^{-6}$ cm et 70 % pour $R_0 = 5.10^{-7}$ cm. Les résultats expérimentaux obtenus tant dans le cas du dépôt actif du radon que dans celui du dépôt actif du thoron, indiquent que la première valeur de R_0 semble correspondre à la réalité. En effet, la loi que nous venons d'indiquer est générale et s'applique en particulier à la fixation des petits ions radioactifs dérivés du radon (ou du thoron) sur les autres particules de l'air.

Dans ce cas, n représente la densité de ces petits ions radioactifs, D leur coefficient de diffusion dans l'air, $q(R)$ étant la répartition granulométrique cumulée de l'activité fixée sur les aérosols naturels.

On voit ainsi, d'après notre hypothèse de départ, que la fixation des petits ions radioactifs sur les particules plus grosses s'effectue comme si le milieu était électriquement neutre.

VI. ÉTAT D'ÉQUILIBRE IONIQUE

Si on ne considère que les petits ions radioactifs positifs, négligeant en première approximation, la présence des petits ions radioactifs négatifs et des atomes radioactifs neutres ; si en plus, on admet la symétrie des charges en ce qui concerne les particules non radioactives, on calcule que (GI-2, BR-5) :

$$N_{0R}/N_R'' = \beta'/\beta_0' \quad (1)$$

$$N_R''/N_R' = 1 - \beta_0^* n_R N_0/\beta' n N_R' \quad (2)$$

$$N_{0R}/N_R' = \beta'/\beta_0 - n_R N_0 \beta_0^*/n N_R' \beta_0 \quad (3)$$

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.

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; β_0^* est le coefficient de recombinaison des petits ions radioactifs sur les noyaux neutres.

Les mesures ont montré un maximum d'activité correspondant à un rayon moyen de 10^{-6} cm; la valeur β'/β_0 correspondante est sensiblement égale à 10 ainsi que le rapport $N_0/N' = N_0/N''$ (fig. 5) (BR-5). Cette valeur du rapport N_0/N' est en accord avec le maximum indiqué par ISRAEL (IS-1).

FIG. 5. — Variations du rapport β'/β_0 en fonction du rayon des particules.
X Mesures de Keefe, Nolan et Rich; I Boltzmann; II Bricard

En comparant les formules correspondant aux ions ordinaires et celles se rapportant aux ions radioactifs, on constate d'après (1) et (2) :

1) que le rapport N_0/N'' est le même que les ions soient radioactifs ou non; on devrait donc le trouver égal à 10. L'expérience donne une valeur peu différente, 12,8 dans le cas du radon et 12,5 dans le cas du thoron.

2) le rapport N''/N' est plus faible dans le cas des noyaux de condensation radioactifs que dans le cas des noyaux de condensation atmosphériques. En effet dans le cas du radon, la valeur du rapport N_R''/N_R' est environ 0,3, elle

est environ 0,55 dans le cas du thoron, alors qu'elle est voisine de l'unité dans le cas des ions ordinaires.

En conclusion, la majeure partie de la radioactivité atmosphérique naturelle se trouve sur des particules de rayons inférieurs au micron. Nous nous proposons de vérifier ce phénomène par des mesures directes "au cascade impactor", appareil qui, en principe, n'est efficace que pour les particules dont les rayons sont supérieurs à 0,3-0,5 μ .

BIBLIOGRAPHIE

- AI -1 AITKEN (J.). *Collected Scientific Papers*, Cambridge University Press, 1923.
- BE -1 BENARIE (M.). Séminaire de Physique des Aérosols sous la direction du Professeur Bricard, Paris 1962.
- BI -1 BILLARD (F.), BLANC (D.), BRICARD (J.), FONTAN (J.), HUERTAS (M.L.), MARTY (A.M.). *C.R. Acad. Sc. Paris*.
- BI -2 BILLARD (F.), BRICARD (J.), MADELAINE (G.), PRADEL (J.). *Journ. de Phys.*, 26, n° 5, mai 1965.
- BR -1 BRICARD (J.), PRADEL (J.), RENOUX (A.). *Geofisica pura e applicata*, Milan, 50, fascicule III, pp. 235-242, 1961.
- BR -2 BRICARD (J.). *J.R.A.*, 2, n° 2-3, pp. 111-120, avril-septembre 1966.
- BR -3 BRICARD (J.), PRADEL (J.), GIROD (P.). *Journ. de Phys.*, 26, n° 5-141 A.
- BR -4 BRICARD (J.). Problems of Atmospheric and Space Electricity, pp. 82-117, *Elsevier Publishing Company*, Amsterdam, 1965.
- BR -5 BRICARD (J.), PRADEL (J.), RENOUX (A.). *Ann. Geophys.*, 18, pp. 384-387, 1962.
- BR -6 BRIGGS (G.H.). *Phil. Mag.*, 41, p. 357, 1921.
- EL -1 ELSTER (J.) et GEITEL (H.). *Physik. Zeitsch.*, 560, 1901.
- ER -1 ERIKSON. *Physical Review*, Second series, XX, 2, p. 717, 1922.
- FO -1 FONTAN (J.). Thèses, Toulouse, 1964.
- GI -1 GIROD (P.). Thèse Ing. Doct., Paris, 1965.
- GI -2 GIROD (P.). Mécanisme de fixation des ions sur des noyaux chargés électriquement dans une atmosphère artificielle, Note C.E.A.N. 473, 1964.
- GU -1 GUNN (R.). *J. Meteorol.*, 11, p. 339, 1954.
- HA -1 HARLEY (J.H.). Thèse, Rensselaer Polytechnic Institute, New York, 1962.
- HO -1 HOLL (W.), MULEISEN (R.). *Geofisica pura e applicata*, 31, p. 115, Milan, 1955.
- IS -1 ISRAEL (H.). *Atmosphärische Elektrizität*, tome I, Leipzig, 1957.
- KI -1 KING (P.), LOCKHART (L.B.), FRIEDMAN (H.), BLIFFORD (I.H.). *Nucleonics*, 14, n° 6, 78, 1956.
- LA -1 LABEYRIE (J.). Rapport CEA, n° 335, Thèses, Paris, 1954.
- LA -2 LASSEN (L.), RAU (G.). *Z. Angew. Phys. Dtsch.*, 12, p. 509, 1960.
- LE -1 LE BOUFFANT (L.). Rapport C.E.R.C.H.A.R., n° 55, 1, 10, 1955.
- LO -1 LOEB (L.B.). Static Electrification, Berlin, Göttingen et Heidelberg, 1958.
- LO -2 LOENEN (W.). *Staub*, 23, 1963.
- MA -1 MACGREGGY (G.). *Arch. Met. Geophy. Biol.*, 14, p. 2, 1964.
- MA -2 MADELAINE (G.). *Journ. Rech. Atm.*, 2, n° 2-3, pp. 211-217, avril-septembre, 1966.
- MA -3 MADELAINE (G.). Rapport CEA, n° 2432, 1963.
- ME -1 MEGAW (W.J.). *Journ. Rech. Atm.*, 11, n° 2-3, pp. 53-68, avril-septembre, 1966.
- MO -1 MOHNEN (V.), STIERSTADT (K.). *Zeitschrift für Physik*, 173, pp. 276-293, 1963.
- NA -1 NATANSON (G.L.). Aérosols radioactifs, Ups. Khim. SSSR, 25, 12, 1429-1445, 1956.
- PL -1 PLUVINAGE (P.). *Ann. Géophys.*, 2, p. 339, 1946.
- PO -1 POLLAK (L.W.), METNIEKS (A.L.). *Geof. pura e applicata*, 47, p. 123, 1960.
- PR -1 PRADEL (J.). Séminaire de Physique des Aérosols, Paris, 1961-62.
- RE -1 RENOUX (A.). Thèses, Paris, 1965.
- RE -2 RENOUX (A.). 2^e Séminaire de Physique des Aérosols publié sous la direction du Professeur Bricard, Paris, 1963.
- RE -3 RENOUX (A.). Thèse, 3^e cycle, Paris, 1961.

- RE -4 RENOUX (A.). *Journ. Rech. Atm.*, 1, n° 4, pp. 197-207, octobre-décembre 1963.
RE -5 RENOUX (A.). *Tellus XVIII*, 2, pp. 598-609, 1966.
SC -1 SCHUMANN (G.). *Staub*, 23, p. 412, 1963.
SE -1 SERVANT (J.). Rapport intérieur CEA, 1961.
SE -2 SERVANT (J.). Thèses, Paris, 1964.
SI -1 SIKSNA (R.), LINDSAY (R.). *Ark. Geofis.*, 3, p. 141, 1959.
SO -1 SOULHIER (R.), FONTAN (J.), VEDRENNE (G.), GIRON (G.), sous la direction de BLANC (D.). Développement des Etudes fondamentales sur la radioactivité de l'atmosphère, 15 avril 1960.
ST -1 STOKES (G.G.). *Math. and Phys. Paper*, Cambridge, 1901.
TH-1 THELLIER (O.), Mme. *Ann. Phys. Globe*, Paris, 19, 1941.
TH-2 THOMAS (J.W.). *Journ. Colloid. Sc.*, 10, p. 246, 1955.
ZE -1 ZELENY (J.). *Phil. Trans. Roy. Soc. A*, 195, pp. 193-234, 1900.