Méthode pratique d'évaluation de l'activité alpha dans l'air au moyen d'un détecteur solide de traces, le LR 115

L. JEANMAIRE, M. VERRY (*)

(Manuscrit reçu le 23 février 1984)

RÉSUMÉ

Cet article décrit une méthode pratique pour l'évaluation de l'activité alpha dans l'air des habitations. Cette méthode utilise un détecteur solide de traces nu, le LR 115 ; elle est simple d'emploi ; après un mois d'exposition du détecteur, le seuil de détection est de 2 mBq.j.l^{-1} ($0,06 \text{ pCi.j.l}^{-1}$).

ABSTRACT

A practical method has been developed in order to evaluate alpha activity indoors. This method of easy application uses a naked solid state track detector LR 115. After one month's exposure indoors, the detection limit is 2 mBq.d.l^{-1} ($0,06 \text{ pCi.d.l}^{-1}$).

INTRODUCTION

Les études effectuées sur la radioactivité alpha naturelle présente dans l'air ont montré que cette source d'irradiation pouvait contribuer pour une fraction importante à l'irradiation naturelle des populations. Ceci explique l'effort entrepris dans plusieurs pays pour déterminer le niveau d'irradiation provoqué par le radon, le thoron et leurs descendants. Bien qu'existant partout, le radon et le thoron ont, en général, des teneurs plus élevées dans les habitations qu'à l'extérieur ; pour surveiller une population, de nombreuses mesures sont nécessaires et il est donc intéressant de disposer d'une méthode simple, ce qui nous a conduit à tester la méthode proposée.

(*) Commissariat à l'énergie atomique, IPSN, Département de protection sanitaire, B.P. 6, 92260 Fontenay-aux-Roses.

I. PRINCIPE

Un détecteur solide de trace (DST) est exposé à l'air où il est soumis au rayonnement alpha du radon, du thoron et de leurs descendants. Après développement, les traces sont comptées à l'aide d'un microscope. Le nombre de traces est proportionnel à la valeur de la radioactivité alpha de l'air.

II. DÉTECTEUR

II.1. Description

Le détecteur est le nitrate de cellulose LR 115 type II de Kodak. Le film a une épaisseur de 12 μm . Pour l'utilisation présentée, il est découpé en bandes de 90 mm de long sur 25 mm de large. Lorsqu'il n'est pas utilisé, il est recouvert de la feuille de protection d'origine ; l'ensemble est glissé dans un étui en rhodoïde. Pour l'emploi, l'étui est placé verticalement dans la pièce que l'on veut contrôler, le DST est aux trois quarts sorti de l'étui ; la face sensible doit être à l'air libre sans obstacle dans un rayon d'au moins 10 cm.

II.2. Mode d'action d'un aérosol alpha

Lorsqu'une particule alpha atteint perpendiculairement le film avec une énergie comprise entre 2 et 4,5 MeV [1, 2, 3], un trou de quelques micromètres apparaît lors du développement. Si l'énergie est plus faible, le film n'est pas traversé ; si l'énergie est plus forte, le développement pratiqué ne se traduit pas par une trace visible.

TABLEAU I
Caractéristiques du Rn, du Tn et de leurs descendants

Famille de l'uranium				
Elément	Emission	Période	Energie MeV	Energie potentielle MeV/pCi
^{222}Rn	α	3,82 j	5,48	
^{218}Po (RaA)	α	3,05 min	5,99	134
^{214}Pb (RaB)	β	26,8 min		659
^{214}Bi (RaC)	β	19,7 min		485
^{214}Po (RaC')	α	164 μs	7,7	8.10^{-5}
^{210}Pb (RaD)	β	22 a		
Famille du thorium				
^{220}Rn (Tn)	α	52 s	6,28	
^{216}Po (ThA)	α	0,158 s	6,77	0,123
^{212}Pb (ThB)	β	10,64 h		15 900
^{212}Bi (ThC)	β	60,5 min		
	α	60,5 min	6,09	1 510
^{212}Po (ThC')	α	0,304 μs	8,77	$1.4.10^{-7}$

Le tableau I montre les radionucléides des familles naturelles que l'on peut trouver dans l'air extérieur et dans les habitations. Les plus importants

sont, pour la famille de l'uranium, le radon et ses descendants à courte période c'est-à-dire jusqu'au ^{214}Po ; il y a trois émetteurs alpha d'énergie 5,5 - 6 et 7 MeV. Pour la famille du thorium, il y a également dans la chaîne trois radionucléides émetteurs alpha dont les énergies sont comprises entre 6,1 et 8,8 MeV. Tous ces radionucléides ont des énergies supérieures à 4,5 MeV, mais quelle que soit l'énergie des particules alpha, il est toujours possible de sensibiliser le détecteur si un écran d'air diminue suffisamment l'énergie pour l'amener dans la zone détectable ; c'est sans doute le cas lorsque les divers radionucléides présents sont bien répartis dans l'air qui se comporte alors vis-à-vis du détecteur comme une source en couche épaisse. Par contre, le dépôt actif qui se fixe sur le film n'est pas détecté car son énergie est trop grande.

II.3. Développement

Selon les recommandations du fabricant, le développement est effectué dans la soude, à 10 %, à une température de 60°C sans agitation. Les essais effectués dans notre laboratoire ont permis d'examiner l'influence du temps de développement sur le nombre de traces du film vierge et du film exposé (tabl. II et fig. 1). Dans les conditions de traitement, le nombre de traces des films exposés croît de façon régulière avec le temps de développement. Bien que le meilleur rapport signal sur bruit de fond ait été obtenu avec un temps de 90 min, en définitive un temps de 110 min a été retenu car les traces sont alors plus visibles au microscope. Le bruit de fond est alors d'environ 4 traces par centimètre carré.

TABLEAU II

Influence du temps de développement sur le nombre de traces détectées

Temps de développement (min)	Film exposé Traces par champ de microscope	Film non exposé Traces par champ	Rapport $\frac{\text{signal}}{\text{bruit}}$
90	$2,8 \pm 18 \%$	$3,6 \cdot 10^{-2} \pm \geq 100 \%$	77
100	$3,8 \pm 16 \%$	$2 \cdot 10^{-1} \pm 70 \%$	19
110	$7 \pm 11 \%$	$4,5 \cdot 10^{-1} \pm 50 \%$	15
120	$8,2 \pm 10 \%$	$3,9 \cdot 10^{-1} \pm 50 \%$	21
130	$9,8 \pm 9 \%$	$5,7 \cdot 10^{-1} \pm 40 \%$	17
140	$73,4 \pm 8 \%$	$1,1 \pm 30 \%$	12

Fig. 1. — Influence du temps de développement sur le nombre de traces.

Après le développement dans la soude, le film est rincé à l'eau pendant une demi-heure, et plongé dans l'éthanol titré à 45 degrés environ pendant quelques minutes.

II.4. Lecture

La lecture est faite au microscope à faible grossissement (objectifs x 3, oculaire x 10) en plaçant un écran vert Wratten n° 40 sur le trajet lumineux. Le champ examiné a un diamètre de 4 mm et une surface de 12,5 mm². La surface du détecteur est balayée avec un pas de 5 mm lorsque l'activité est faible, ce qui permet de compter plus de 50 champs, soit 6 cm². S'il y a de nombreuses traces par champ, le quadrillage est réduit.

II.5. Étalonnage

L'étalonnage devrait être effectué en plaçant le détecteur pendant une durée connue dans une atmosphère dont la teneur en radon est constante, assez élevée et dont on connaît l'état d'équilibre des descendants. Ces conditions ne sont pas faciles à réaliser.

En pratique, plusieurs séries de détecteurs sont exposés pendant 24 heures, dans une pièce contenant par litre d'air 20 à 100 pCi de radon dont on ignore l'état d'équilibre avec les descendants ; le radon est mesuré par scintillation avant et après l'exposition des DST. Un coefficient moyen est tiré de l'ensemble des mesures. Cet étalonnage est particulièrement délicat et il est possible que les conditions d'exposition ne soient pas strictement reproductibles.

C'est pourquoi il a paru important de disposer d'une source radioactive stable dans le temps et facile d'emploi pour vérifier les différents lots de détecteurs et la constance du développement. En outre, il semble préférable d'employer une source épaisse qui émet des rayons alpha dont le spectre d'énergie s'étale de l'énergie maximale à zéro, et se comporte ainsi comme l'air vis-à-vis du détecteur. Une source d'oxyde d'uranium dilué dans la résine époxy donne la même courbe d'évolution du rendement en fonction du temps de développement que celle obtenue à partir de l'air. Il est ainsi possible de contrôler aisément les détecteurs et éventuellement d'ajuster les conditions de développement.

II.6. Résultats

Dans les conditions de mesure choisies, les caractéristiques du LR 115 actuellement utilisé sont les suivantes :

- mouvement propre : environ 0,4 trace par champ, soit 4 traces par cm^2 ;
- l'activité par litre d'air est calculée au moyen de la formule suivante :

$$A = k \times N$$

A : activité en picocurie . jour par litre (pCi.j.l^{-1}),

N : nombre de traces par unité de surface,

k : facteur de transformation ;

si l'unité de surface est le champ, $k = 6,66$;

si l'unité de surface est le centimètre carré, $k = 0,836$;

- la limite de détection dépend du mouvement propre du détecteur. En admettant que ce mouvement propre n'évolue pas de façon appréciable durant l'exposition le seuil de détection sera :

$$SD = \frac{2 \sqrt{2N} \times p \times 6,66}{p \times t}$$

N : mouvement propre par champ

p : nombre de champs comptés

t : temps d'exposition en jours.

Exemples :

pour N = 0,4	p = 50	t = 1 jour	SD = 1,7	pCi.j.l^{-1}
		7 jours	0,25	pCi.j.l^{-1}
		15 jours	0,11	pCi.j.l^{-1}
		30 jours	0,06	pCi.j.l^{-1}

TABLEAU III

Essais de reproductibilité du LR 115
Comparaison avec la mesure du radon par scintillation

Durée exposition jours	LR 115 Activité exprimée en Rn pCi.l ⁻¹	Moyenne	Scintillation Rn pCi.l ⁻¹
1	89 ± 3,5 * 84 89	87 ± 3 **	90 — 65
7	3 ± 0,25* 2 ± 0,2 2,3	2,4 ± 0,5**	0,5-0,7 — < 0,2
33	2,5 ± 0,1 * 2,5 2,9 2,4	2,6 ± 0,2**	2,7 ± 0,8** (17 mesures)
35	2 ± 0,1 * 2,3 2,1 2,4	2,2 ± 0,2**	2,9 ± 0,4 (14 mesures)

* 2σ sur le nombre de traces comptées

** σ sur une mesure

LR 115 ne mesure pas que le Rn.

Le tableau III présente des séries de résultats lorsque plusieurs détecteurs sont exposés simultanément pendant des durées allant de 1 à 35 jours, dans des locaux différents. L'erreur indiquée après les mesures obtenues avec le LR 115 correspond seulement aux erreurs sur le nombre de traces comptées (2σ). Ces résultats montrent que les détecteurs ont une bonne reproductibilité.

La dernière colonne du tableau III indique les résultats de radon mesurés par scintillation sur des prélèvements d'air effectués dans ces locaux. Trois séries de mesures (1,33 et 35 jours) donnent des résultats comparables par les deux techniques. La quatrième (7 jours) montre un décalage entre les résultats du LR 115 (2,4 pCi) et ceux de la scintillation (inférieur à 0,7). L'écart provient de la présence en qualité inhabituelle [4] de descendants de la famille du thorium, qui impressionnent le DST, et ne sont pas comptés lors de la mesure du radon par scintillation.

II.7. Remarques

Développé jusqu'à deux ans après exposition à une source alpha, le rendement du LR 115 reste stable. Il n'y a pas de fading, et le mouvement propre varie peu si les conditions d'isolement de l'air ambiant sont correctes.

Le détecteur ne doit pas être exposé en plein soleil, sinon il perd sa coloration au développement et la lecture devient pratiquement impossible.

Certains auteurs [5, 6] décrivent des systèmes plus sophistiqués pour l'exposition. Souvent, le détecteur est placé dans une boîte ouverte ou poreuse de façon à ne laisser diffuser que le radon. Après quelques essais faits de cette manière dans le laboratoire, le principe a été abandonné pour deux raisons : le nombre de traces comptées est plus faible qu'avec un détecteur nu ; il varie avec la géométrie du système et la nature des matériaux.

III. JUSTIFICATION

III.1. Mines

Le problème de la dosimétrie du radon et de ses produits de filiation s'est posé avec acuité dans les mines et leur étude est à la base des conceptions actuelles en ce domaine.

L'irradiation de l'appareil respiratoire provient essentiellement de l'exposition aux produits de désintégrations à courte période et non au radon lui-même. Pour une concentration en radon, l'énergie effective contenue dans un aérosol dépend des activités relatives des descendants. Lorsque l'ensemble des descendants à courte période (jusqu'à ^{214}Po) est à l'équilibre avec le radon à une teneur de 100 pCi.l^{-1} , l'énergie potentielle des descendants est de $1,3 \times 10^5 \text{ MeV}$ d'énergie alpha par litre d'air. C'est ce que l'on nomme le *niveau dérivé de travail* (NDT). En cas de ventilation, l'équilibre n'est plus respecté entre le radon et ses descendants, et l'énergie potentielle sera proportionnellement plus faible (tabl. IV). C'est la valeur réelle en NDT qui importe du point de vue radioprotection, et non la valeur en radon. Le rapport entre la valeur réelle de l'énergie potentielle et celle théorique obtenue à partir du radon à l'équilibre est appelé facteur d'équilibre F.

Pour déterminer la valeur de l'énergie potentielle exprimée en NDT, plusieurs méthodes sont utilisées : mesure des descendants du radon — mesure du radon et du facteur d'équilibre. Une méthode du premier groupe, développée au Commissariat à l'énergie atomique [1, 2] semble particulièrement bien adaptée aux mines, car elle permet d'obtenir directement l'énergie potentielle alpha des descendants du radon et du thoron. Cette méthode, avec les modifications nécessaires, peut être utilisée en dehors des mines. Elle donne les informations recherchées et elle permet la comparaison avec d'autres méthodes moins élaborées.

III.2. Environnement public

Les descendants gazeux ^{222}Rn , ^{220}Th des chaînes naturelles sont présents dans l'environnement à l'extérieur et surtout dans les habitations [8] où les variations, d'un bâtiment à l'autre, peuvent atteindre un facteur 100. Quantitativement, l'irradiation due à cette composante *naturelle* est mal connue ; toutefois, comme elle ne paraît pas devoir être négligeable,

TABLEAU IV
Evolution du radon et de ses descendants pour divers taux de ventilation (partiellement d'après Harris 7)

Taux de renouvellement		en pCi.l ⁻¹ pour 1 pCi.l ⁻¹ de radon			F	$\frac{\alpha}{F}$ Rapport
par minute	par heure	Rn	RaA	RaC		
0,000	0	1,00	1,00	1,00	1	3
0,001	0,06	1	0,995	0,93	0,95	3,1
0,003	0,18	1	0,977	0,82	0,866	3,2
0,01	0,6	1	0,96	0,54	0,661	3,8
0,03	1,8	1	0,88	0,22	0,385	5,5
0,10	6	1	0,69	0,037	0,161	10,7
0,3	18	1	0,43	0,0036	0,064	22
1	60	1	0,185	# 0	0,022	54

α : activité alpha totale lorsque la concentration en radon est de 1 pCi.l⁻¹

F : facteur d'équilibre ; rapport de l'énergie alpha potentielle réelle des descendants à l'énergie potentielle théorique lorsque le radon est à l'équilibre.

il apparaît souhaitable de pouvoir, comme dans les mines, exprimer l'irradiation de la façon la plus exacte possible, c'est à dire en énergie potentielle alpha.

III.2.1. Radon

Le tableau IV montre que le facteur d'équilibre F varie considérablement avec le nombre de renouvellements d'air d'une enceinte. Entre une ventilation nulle et un renouvellement par minute, il passe de 1 à 0,022 (coefficient 45). Dans le même temps, le nombre relatif de particules alpha (pour 1 pCi.l⁻¹ de radon) auquel sera soumis le détecteur LR 115 passe de 3 à 1,19, soit un facteur 2,5 seulement. Donc l'utilisation d'un détecteur simple semblerait s'opposer à l'obtention d'informations correctes, pour l'estimation de l'irradiation des populations. En pratique, les valeurs extrêmes de renouvellement sont peu réalistes ; le rapport UNSCEAR [8] utilise 0,5 comme valeur du facteur F lorsque le radon seulement a été mesuré dans les habitations. Le tableau IV montre que les rapports α / F varient de 3,8 à 10,7 lorsque le renouvellement passe de 0,6 à 6 par heure, ce qui correspond vraisemblablement à la plupart des cas considérés. Dans ces conditions, un facteur d'étalonnage constant appliqué au détecteur nu permettra de connaître l'énergie potentielle alpha avec une erreur inférieure à un facteur 2 sur la valeur réelle.

Cette incertitude (facteur 2) n'est pas négligeable, mais elle est compensée par de grands avantages :

- possibilité de mesure de longue durée, plusieurs mois éventuellement ;
- l'exposition ne nécessite aucune source d'énergie ;
- le faible prix du détecteur et l'absence d'appareil permet de multiplier les expositions simultanées.

Les deux derniers points sont intéressants au plan pratique.

Le premier est intéressant au plan théorique ; en effet, le niveau du radon peut fluctuer [8] d'un facteur 2 ou 3 dans une journée, même dans les maisons inhabitées, d'un facteur 3 selon la direction du vent par rapport à la pièce considérée. L'ouverture des portes de communication intérieures, la température, la saison jouent également un rôle important. Tous ces facteurs montrent l'intérêt d'une mesure de longue durée par rapport à une mesure instantanée.

III.2.2. Thoron

Le rapport UNSCEAR [8] indique que les descendants du thoron ne jouent, en général, qu'un rôle secondaire par rapport à ceux du radon dans l'irradiation pulmonaire des populations.

La méthode CEA [1, 2] permet de calculer l'énergie potentielle des descendants du thoron ; ce type de méthode doit être considéré comme une base de référence.

La méthode proposée ici ne permet pas d'interprétation séparée pour T_n et R_n . Le LR 115 est impressionné par les particules alpha émises

par ^{212}Bi et ^{212}Po , derniers émetteurs alpha de la chaîne, qui ne sont jamais en équilibre radioactif avec ^{220}Tn et ^{216}Po . Ces deux premiers émetteurs alpha de la chaîne ayant des périodes très courtes, l'activité enregistrée par le détecteur dépend de la distance entre la source et le détecteur. C'est pourquoi il n'est pas facile d'interpréter l'activité alpha révélée par le LR 115 lorsqu'il s'agit de la famille du Tn, et d'en déduire l'énergie potentielle alpha.

En pratique, il semble que, le plus souvent, les résultats du DST exprimés en radon ne sont pas très différents des mesures de radon effectuées par scintillation. Lorsque la teneur en thoron est élevée, l'activité alpha détectée par le DST augmente, ce qui va dans un sens acceptable du point de vue radioprotection ; seule l'étude comparée de cas concrets avec la méthode proposée et par mesure de l'énergie potentielle alpha permettra de connaître la validité de la méthode présentée.

IV. CONCLUSION

La technique proposée, utilisant le LR 115 comme détecteur de traces entièrement passif, paraît convenable pour la mesure de l'activité alpha dans l'air des habitations, car elle est reproductible, très sensible, bien adaptée aux essais de longue durée et extrêmement simple à mettre en œuvre.

Certes, elle ne permet pas, comme les méthodes spécifiques, de mesurer l'énergie potentielle alpha des descendants à vie courte du radon et du thoron, mais cet inconvénient partagé avec la plupart des techniques utilisées aujourd'hui est compensé par de tels avantages que son emploi devrait se développer comme technique de base pour le contrôle des habitations. Les traces peuvent être comptées automatiquement au moyen d'un compteur à étincelles par exemple, ce qui permet de multiplier les essais.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] DUPORT P., MADELAINE G., ZETTWOOG P., PINEAU J.F. Enregistrement des rayonnements alpha dans le dosimètre individuel et le dosimètre de site du Commissariat à l'énergie atomique. In : Solid state nuclear track detectors, 10. International Conference (H. François et al., Eds) Lyon, 2-6 July, 1979. Oxford. Pergamon Press, 1980, 609-615.
- [2] CHAPUIS A.M., DAJLEVIC D., DUPORT P., SOUDAIN G. Dosimétrie du radon. In : 8. International Conference on nuclear photography and solid state track detector, Bucarest, 10-15 July, 1972, vol. 2, 319-325.
- [3] JEANMAIRE L., BALLADA J. Essais relatifs à l'emploi des détecteurs solides de traces dans les laboratoires d'analyses radiotoxicologiques. In : Assessment of radioactive contamination in man, Stockholm, 22-26 Nov. 1971. Vienne : AIEA, 1972, 267-281.
- [4] POSNY F. — Communication personnelle.

ÉVALUATION DE L'ACTIVITÉ ALPHA DANS L'AIR

- [5] ALTER W.H., FLEISHER R.L. Passive integrating radon monitor for environmental monitoring. *Health Phys.*, 1981, **40**, 693-702.
- [6] URBAN M., PIESCH E. Low-level environmental radon dosimetry with a passive track etch detector device. *Radiat. Prot. Dos.*, 1981, **1**, 97-109.
- [7] HARRIS R.L. Jr, BALES R.E. Uranium mine ventilation for control of radon and its daughters products (SM 41/39). In : *Radiological health and safety in mining of nuclear materials*, Vienna, 26-31 August 1963. Vienne : AIEA, 1964, 49-60.
- [8] UNSCEAR. Comité scientifique des Nations-Unies pour l'étude des rayonnements ionisants. *Ionizing radiation sources and biological effects*. New York : Nations-Unies, 1982, 141-210.