

## La radioactivité naturelle de l'air hors des maisons\*

A. RENOUX\*\*

(Manuscrit reçu le 3 décembre 1984)

### RÉSUMÉ

Après avoir rappelé l'origine de la radioactivité atmosphérique naturelle, nous indiquons les concentrations en radon de l'air et ses variations au cours du temps, obtenues grâce à un appareillage original mis au point à Brest. L'état d'équilibre radioactif du radon et de ses descendants est ensuite abordé, de nombreuses expériences montrant que cet équilibre est très rarement atteint, même pour le  $^{218}\text{Po}$  (RaA). Enfin, on développe quelques éléments concernant l'aérosol radioactif naturel : état de charge, distribution granulométrique (on s'aperçoit qu'il s'agit d'un aérosol fin, puisque seulement 30 % de cet aérosol sont formés de particules de rayon supérieur à  $0,1 \mu\text{m}$ ).

### ABSTRACT

Following a short account of natural atmospheric radioactivity, radon concentrations are given as well as their variations with time obtained by means of an original apparatus developed in Brest. The radioactive equilibrium of radon and its daughters is then considered, many experiments demonstrating that equilibrium is seldom reached even for  $^{218}\text{Po}$  (RaA). Finally, some characteristics of natural radioactive aerosols are studied : charge, particle size distribution (demonstrating they are fine aerosols since only 30 per cent are made of particles with radii exceeding  $0,1 \mu\text{m}$ ).

## 1. INTRODUCTION

Depuis toujours, la terre est soumise à une radioactivité naturelle. Mais ce n'est qu'en 1901 que le phénomène a été mis en évidence par Elster et Geitel [4]. A partir de cette date, et plus particulièrement depuis une trentaine d'années, cette radioactivité atmosphérique naturelle a fait l'objet de nombreux travaux car elle donne lieu à des applications très variées.

---

\* Communication présentée lors des journées organisées par la Société française de radioprotection sur les " Données actuelles sur la radioactivité naturelle ", Monte-Carlo, 5-7 novembre 1984.

\*\* Université de Paris-Val-de-Marne, Faculté des sciences, Laboratoire de physique des aérosols et de transfert des contaminations, avenue du Général de Gaulle, 94000 Créteil.

Elle constitue d'abord le "bruit de fond radioactif de l'air", et on doit la retrancher de la radioactivité produite artificiellement (centrales nucléaires, essais atomiques).

Les techniques développées pour la mesurer dans l'air sont mises en application dans les mines d'uranium et servent à la radioprotection des travailleurs.

En déterminant la teneur de l'air en radioéléments naturels, il est possible d'avoir des indications sur la nature des terrains rencontrés, ou bien de localiser à distance des terrains uranifères.

Le dépôt actif du radon ainsi que ses descendants à vie longue permettent d'étudier la stabilité de l'atmosphère, les échanges troposphère - astmosphère, etc.

Enfin, l'étude de la radioactivité naturelle fixée sur les différentes catégories de particules atmosphériques permet de vérifier les lois de la physique des aérosols et de l'électricité atmosphérique [2, 3].

## 2. ORIGINE DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE

Les terrains, les roches, les matériaux de construction (pierres, béton, briques...) contiennent de l'uranium ou du thorium en faible concentration. Or, chacune des chaînes radioactives naturelles,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{235}\text{U}$ , produit un gaz rare radioactif de courte période : le radon  $^{222}\text{Rn}$ , le plus abondant dans l'air, provenant de la désintégration  $\alpha$  du  $^{226}\text{Ra}$  ; le thoron  $^{220}\text{Tn}$  produit par la désintégration  $\alpha$  du  $^{224}\text{Th}$  ; l'actinon  $^{219}\text{An}$  provenant de la désintégration  $\alpha$  du  $^{222}\text{Ac}$ . En fait, la période très courte de l'actinon (3,92 s) fait que sa concentration dans l'air est très faible, de sorte que sa contribution à la radioactivité naturelle de l'air est négligeable, cette dernière étant donc due au radon et, à un degré moindre, au thoron. Une partie de ces gaz, formée dans les roches contenant du thorium ou de l'uranium, est susceptible de se dégager, de diffuser vers la surface, et de se répandre dans l'air où elle se désintègre en produisant des atomes d'éléments solides dans les conditions naturelles.

Lorsque le radon et le thoron se désintègrent, ils donnent respectivement naissance à des atomes de  $^{218}\text{Po}$  (RaA) et de  $^{216}\text{Po}$  (ThA) qui portent presque tous une charge électrique positive [17]. Leur grande mobilité entraîne leur fixation rapide sur les aérosols atmosphériques. Mais ils se désintègrent à leur tour, avant ou après leur captation par une particule pour donner des descendants radioactifs :  $^{214}\text{Pb}$  (RaB),  $^{214}\text{Bi}$  (RaC),  $^{212}\text{Pb}$  (ThB),  $^{212}\text{Bi}$  (ThC). Le RaC conduit au  $^{210}\text{Pb}$  dont la période (22 ans) est grande. Les aérosols contenant ce RaD sont entraînés au loin bien avant qu'un équilibre radioactif ait été atteint. De ce fait, la radioactivité due aux descendants à vie longue du radon (RaD, RaE, RaF) est très faible devant celle due aux descendants à vie courte. Quant au ThD, il est stable.

L'aérosol atmosphérique peut, grossièrement, se décomposer en trois parties :

a) *Les petits ions*, positifs ou négatifs. Ce sont des molécules ou des groupes de molécules ayant gagné ou perdu un électron. Leurs dimensions linéaires sont voisines de celles des molécules, bien entendu, soit quelque  $10^{-8}$  cm, leur mobilité moyenne se situant aux environs de  $1,5 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ . Rappelons que la mobilité  $k$  d'un ion est liée à la vitesse  $\vec{v}$  qu'il prend sous l'action d'un champ électrique  $\vec{E}$  par la relation  $\vec{v} = k\vec{E}$ .

b) *Les noyaux de condensation* dont une partie possède une charge électrique : ce sont les gros ions, positifs et négatifs se trouvant en nombre sensiblement égal dans l'air. Les autres, électriquement neutres, sont appelés noyaux neutres. Les gros ions ont des rayons allant de  $8 \cdot 10^{-7}$  cm ( $k = 10^{-3} \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ) à  $10^{-5}$  cm (0,1  $\mu\text{m}$ ).

c) *Les poussières* qui ont des dimensions supérieures à  $10^{-5}$  cm (0,1  $\mu\text{m}$ ).

Les descendants du radon et du thoron peuvent donc se fixer sur ces différentes catégories de particules.

### 3. CONCENTRATION DE L'AIR EN RADON ET EN SES DESCENDANTS RADIOACTIFS

En réalité, le radon et le thoron se trouvent essentiellement dans les couches inférieures de l'atmosphère (tableau I) [13].

TABLEAU I

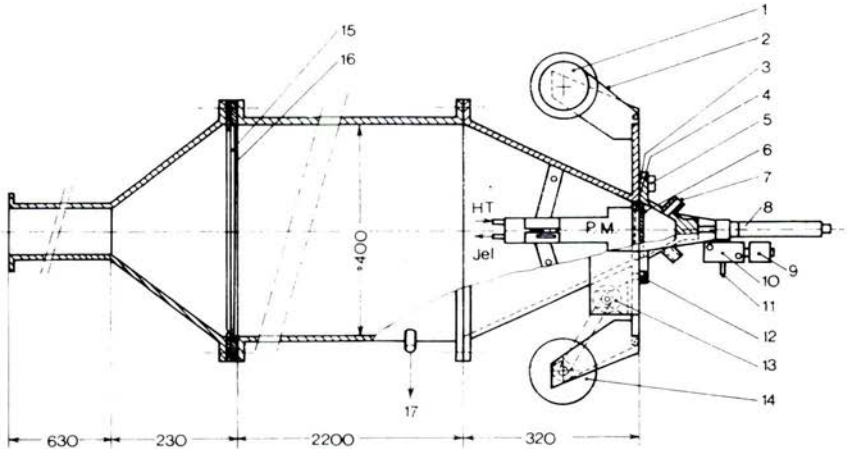
Radon (unités arbitraires)		Thoron (unités arbitraires)	
Au niveau du sol :	100	Au niveau du sol :	100
A 1 m d'altitude :	95	A 5 m d'altitude :	70
A 10 m d'altitude :	87	A 10 m d'altitude :	50
A 100 m d'altitude :	69	A 50 m d'altitude :	5
A 1000 m d'altitude :	38	A 100 m d'altitude :	0,5
A 7000 m d'altitude :	7		

Au niveau du sol, la teneur de l'air en thoron est déjà environ 200 fois plus faible que celle du radon [3, 17, 24], de sorte que, à 10 m d'altitude, sa contribution à la radioactivité naturelle devient négligeable devant celle du radon. On peut donc affirmer que, dans les basses couches de l'atmosphère (0 à 100 m), la radioactivité naturelle de l'air est due pratiquement au seul gaz radon.

#### 3.1. Variations de la teneur de l'air en radon

Il est possible de mesurer de façon continue la concentration de l'air en radon à l'aide de la méthode des deux filtres développée en France par Fontan [5], perfectionnée par Thomas et Le Clare [23], et aboutissant à un appareil semi-automatique mis au point par G. Tymen [24]. On utilise une chambre cylindrique de grand volume (fig. 1) aux deux extrémités de laquelle on place un filtre absolu, l'air étant aspiré de façon continue à travers l'ensemble. Le filtre d'entrée capte la totalité des aérosols présents dans l'air aspiré, et en particulier les descendants du radon. Le radon, quant à lui, pénètre dans le dispositif dans lequel, si son temps de séjour est suffisant, il se désintègre en donnant naissance à des atomes de RaA dont la plus grande partie est recueillie par le filtre de sortie, le reste diffusant sur les parois internes du cylindre. La mesure en continu de l'activité  $\alpha$  du second filtre permet d'obtenir la teneur en radon de l'échantillon

d'air prélevé [24]. L'appareil mesure 2,40 m de long et 40 cm de diamètre, pour un volume de 290 l.



**Fig. 1. - Schéma d'un dispositif de mesure directe du radon atmosphérique**  
 (1) : filtres d'entrée ; (2) filtre ; (3) scintillateur au SZn ; (4) photomultiplicateur ;  
 (5) perforateur ; (6) support de filtre ; (7) sortie vers débitmètre, pompe ; (8) vérin  
 pneumatique ; (9) contrôle électromagnétique ; (10) air comprimé ; (11) photodiode ;  
 (12) Micromoteur d'entraînement du filtre ; (13) bobine réceptrice ; (14) sortie vers  
 la chaîne de comptage  $\alpha$ .

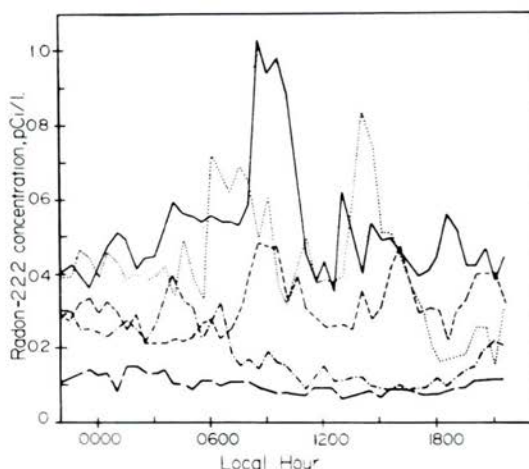
Fait important à remarquer, la concentration de l'air en radon varie dans des proportions considérables, selon les conditions météorologiques. Ainsi, à Brest, elle varie entre  $1 \text{ Bq.m}^{-3}$  et  $100 \text{ Bq.m}^{-3}$ , pour une valeur moyenne de  $13 \text{ Bq.m}^{-3}$  ( $0,35 \text{ pCi l}^{-1}$ ). Cette valeur moyenne est, du reste, trois fois plus forte que celle qu'on mesure à Paris [17]. En fait, la direction du vent joue, en ce qui concerne la concentration de l'air en radon, un rôle très important. A Brest, les vents venant soit de la mer, soit des terrains granitiques, les valeurs moyennes par direction de vent présentent des différences considérables (tableau II) [18].

**TABLEAU II**  
**Concentration moyenne de l'air en radon ( $\text{pCi.l}^{-1}$ )**  
**en fonction de la direction du vent**

N	NW	W	SW	S	SE	E	NE
0,51	0,32	0,17	0,13	0,17	0,18	0,28	0,30

L'influence maritime correspond aux directions W, SW et S. De plus, dans une même journée, la concentration en radon est fonction de l'heure. On observe généralement, du fait du minimum de convection thermique,

un pic de concentration le matin, et un maximum très important vers 11 h (heure locale), ce phénomène ayant été signalé par de nombreux auteurs [5, 6, 9, 14, 18, 24]. Cependant, dans certains cas, on peut observer, suivant les directions de vent, des profils journaliers très divers. C'est ce que montre le figure 2, obtenue à partir de mesures effectuées à Brest [9, 18]. Ainsi, sous influence maritime très marquée, on constate un tracé monotone tout au long de la journée.



**Fig. 2. - Variations moyennes de la concentration de l'air en radon suivant la direction du vent.**

-----NE; -.-.-W; -.-.-SW; -.-.-N; -.-.-NW;

Certains auteurs [7, 11, 22] signalent, en fonction du temps, des variations de la concentration de l'air en radon présentant une structure périodique.

Quoi qu'il en soit, en général, on peut donc dire que l'air présente une teneur maximale en radon vers 10-11 h, la décroissance commençant au début de l'après-midi.

### 3.2. Etat d'équilibre radioactif entre le radon et ses descendants

Il s'agit là d'un paramètre fondamental lorsqu'on veut connaître la concentration réelle de l'aérosol radioactif naturel. Ce degré d'équilibre est défini par les trois rapports :  $F_A = C_A/C_{Rn}$  ;  $F_B = C_B/C_{Rn}$  ;  $F_C = C_C/C_{Rn}$ , où  $C_A$ ,  $C_B$ ,  $C_C$ ,  $C_{Rn}$  sont les concentrations respectives en  $^{218}Po$  (RaA),  $^{214}Pb$  (RaB),  $^{214}Bi$  (RaC) et en radon. Les concentrations des descendants du radon sont obtenues en les recueillant, pendant un temps donné, sur un filtre absolu, dont on étudie ensuite la décroissance de l'activité  $\alpha$  qu'on exploite mathématiquement suivant une méthode préconisée par Raabe et Wrenn [15] et reprise en France par G. Tymen [24] à l'aide d'un traitement informatique.

Le tableau III indique les résultats obtenus à Brest. Là encore, l'influence de la direction du vent est prépondérante.

TABLEAU III  
Fractions d'équilibre radon-descendants en fonction des directions du vent

Direction du vent	$F_A$	$F_B$	$F_C$
N	0,30	0,27	0,18
NW	0,50	0,49	0,28
W	0,58	0,26	0,19
SW	0,60	0,39	0,37
S	0,31	0,30	0,28
E	0,64	0,49	0,37
NE	0,52	0,39	0,32
Moyenne	0,5	0,38	0,29

On a longtemps postulé que, du fait de sa très courte période (3,06 m)  $^{218}\text{Po}$  (RaA) est en équilibre avec le radon. Le tableau III montre qu'il n'en est rien : les fractions d'équilibre sont plus faibles lorsque l'air traverse des terrains granitiques (N, par exemple), ce qui peut être dû au fait que le radon est jeune, car on peut faire une analogie avec ce qu'on observe dans l'air des mines d'uranium [19]. Par contre, sous influence maritime, on observe souvent des valeurs de  $F_A$  égales à l'unité. Quant aux valeurs de  $F_B$  et  $F_C$  données par le tableau III, elles sont voisines de celles indiquées par la littérature [1, 12]. Enfin, certains auteurs, à partir des valeurs du rapport  $F_C/F_B$ , testent leur modèle de diffusion atmosphérique. C'est ainsi que Rangajaran et al. [16] indiquent des valeurs comprises entre 0,6 et 0,9, Schapiro [20] trouvant, quant à lui, 0,7. Ces résultats sont en bon accord avec  $C_C/C_B = 0,78$  donné par le tableau III.

#### 4. QUELQUES NOTIONS SUR L'AEROSOL RADIOACTIF NATUREL

##### 4.1. Etat de charge

Une certaine partie de l'aérosol atmosphérique possède une charge électrique. On peut l'évaluer à l'aide d'une méthode imaginée au Japon par Kawano [8] en 1957 et reprise, en France, par Renoux [17] en 1960. On aspire l'air à travers un condensateur cylindrique dont l'électrode externe, de diamètre de l'ordre de 4 cm, est reliée à la terre. L'électrode interne, constituée par un fil métallique de quelques dixièmes de millimètre de diamètre, est portée à une tension continue positive ou négative, d'autant plus élevée que les ions à capter sont plus gros, donc moins mobiles. Ce fil capte les ions de signe contraire à sa polarité. A la fin du prélèvement, on le démonte, on l'enroule entre deux scintillateurs au sulfure de zinc, et on place le tout sur un photomultiplicateur (comptages  $\alpha$ ) [17].

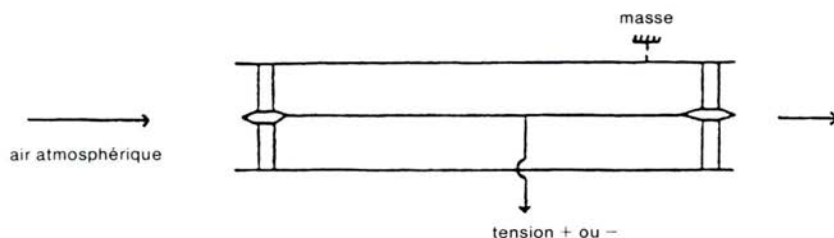


Fig. 3. - Captation des ions radioactifs.

Le tableau IV indique les pourcentages de radioactivité  $\alpha$  qu'on observe, en moyenne, sur les différentes catégories d'ions atmosphériques.

TABLEAU IV

Petits ions positifs (quelques $10^{-4} \mu\text{m}$ )	Gros ions positifs (quelques $10^{-2} \mu\text{m}$ )	Gros ions négatifs (quelques $10^{-2} \mu\text{m}$ )	Noyaux neutres (quelques $10^{-2} \mu\text{m}$ )
2 %	11 %	5 %	24 %

On remarque qu'il n'existe pas de petits ions radioactifs et que les gros ions radioactifs positifs ( $N^+_R$ ) sont plus nombreux que leurs homologues négatifs ( $N^-_R$ ). Ainsi, l'ensemble des ions radioactifs représente près de 20 % de la radioactivité naturelle de l'air. Le tableau V donne les valeurs moyennes du rapport  $N^-_R/N^+_R$  sous différentes influences à Brest et à Paris, ces résultats s'expliquant parfaitement à partir des théories classiques de la physique des aérosols [2, 24].

TABLEAU V

$N^-_R/N^+_R$	Influence maritime	Influence urbaine	Paris
	0,64	0,29	0,28

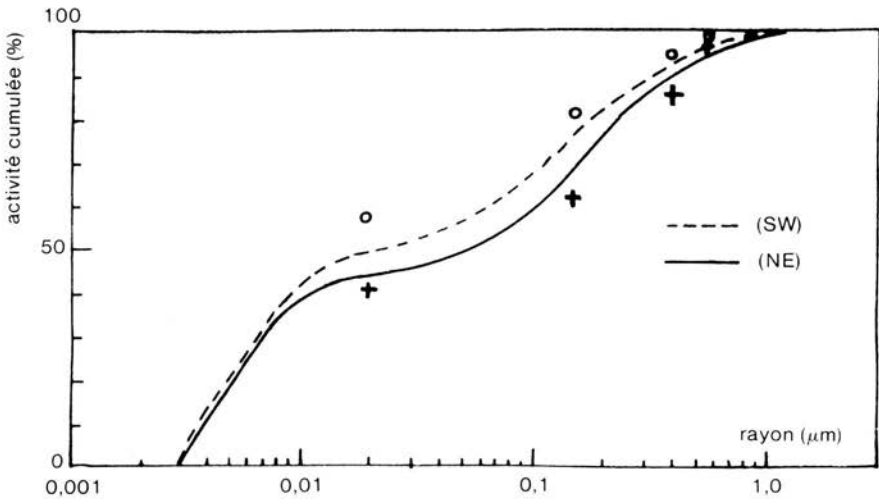
#### 4.2. Distribution granulométrique

Il s'agit d'un paramètre très important si on veut appréhender d'éventuels effets de la radioactivité atmosphérique naturelle sur l'homme ou sur la végétation. On dispose d'un certain nombre de dispositifs pour arriver à déterminer le spectre dimensionnel de l'aérosol radioactif naturel : batteries de diffusions, condensateurs cylindriques, impacteurs en cascade, filtres absolus...

La figure 4 indique les résultats moyens obtenus à Brest [18, 24].

On constate qu'environ 40 % de la radioactivité naturelle se trouvent sur les très fines particules de rayon inférieur à  $2.10^{-2} \mu\text{m}$ . C'est un résultat déjà signalé par Renoux [17] pour l'atmosphère parisienne, par Madelaine [10]

en atmosphères artificiellement enrichies en radon, et qu'on trouve également dans les mines d'uranium [19]. On remarque également que seulement 30 % de cette radioactivité naturelle se fixent sur les particules de rayon supérieur à  $0,1 \mu\text{m}$ . En fait, les résultats illustrés par la figure 4 ne sont que des moyennes. Là encore, les directions de vent conduisent à des écarts importants, et les distributions granulométriques sont très différentes dans le cas d'influences maritimes ou continentales. Quoi qu'il en soit, ces résultats s'expliquent à partir des théories classiques de la physique des aérosols et conduisent aux courbes tracées sur la figure 4, dont on voit qu'elles sont très voisines des points expérimentaux correspondants. En fait, toutes les courbes théoriques présentent un point d'inflexion entre  $0,001 \mu\text{m}$  et  $0,1 \mu\text{m}$ , suggérant une forme bimodale de la distribution granulométrique de la radioactivité naturelle. Ce fait a été signalé aussi par Sinclair [21], à partir de mesures effectuées à l'aide de batteries de diffusion. Enfin, des mesures récentes effectuées dans l'air urbain de villes d'Europe centrale par Becker et coll. (1) indiquent, pour  $^{214}\text{Pb}$  (RaB) et  $^{212}\text{Pb}$  (ThB) une concentration maximale autour de  $0,2 \mu\text{m}$  en rayon.



**Fig. 4. - Distribution granulométrique théorique et expérimentale de la radioactivité atmosphérique naturelle des descendants du radon 222.**

Valeurs expérimentales SW : o ; Ne : +

(1) Cité par R. Jaenicke. Our Knowledge about the atmospheric aerosol. Proceedings of the 11. international conference on atmospheric aerosols, condensation and ice nuclei, Budapest, Sept. 1984, 99-108.

## 5. CONCLUSION

Issue, depuis des milliards d'années, des profondeurs de la terre, la radioactivité naturelle est une composante active de l'atmosphère dont elle commande, en particulier, l'équilibre ionique. En effet, 80 % de l'intensité d'ionisation de l'air (c'est-à-dire le nombre de petits ions créés, pendant une seconde, dans 1 cm<sup>3</sup> d'air) sont produits par elle : il s'agit là d'un paramètre fondamental de l'électricité atmosphérique influant fortement sur nos conditions de vie. Il est indispensable de la connaître, puisqu'elle constitue le bruit de fond de radioactivité à laquelle sont soumis les hommes. Et même si, à l'heure actuelle, on commence à avoir une idée de son comportement, il ne faut pas oublier que, comme tout phénomène atmosphérique, elle est très fluctuante, et nécessite, de ce fait, un certain nombre d'études systématiques.

### ANNEXE

#### PRINCIPE DU FONCTIONNEMENT D'UNE CHAMBRE DE DESINTEGRATION AUTOMATIQUE POUR LA MESURE DIRECTE ET CONTINUE DU RADON ATMOSPHERIQUE

L'air est aspiré à travers la chambre schématisée par la figure 1. Le filtre d'entrée capte la totalité des aérosols et, en particulier, les descendants du radon, ne laissant passer que le gaz lui-même. Ce dernier se désintègre durant son parcours dans la chambre, donnant naissance à des atomes de RaA (<sup>218</sup>Po) dont une partie va diffuser sur les parois internes du cylindre, le reste étant recueilli sur le filtre de sortie qui, de ce fait, portera une certaine radioactivité  $\alpha$  dont la détermination permet de mesurer la teneur de l'air en radon. Dans l'appareil mis au point par G. Tyman, à Brest, on automatise cette mesure grâce à un dispositif permettant le déroulement du filtre de sortie de façon séquentielle, les impulsions étant comptées pendant l'aspiration, ce qui augmente la sensibilité de la mesure [24]. On utilise la méthode des scintillations ; le photomultiplicateur, dont la photocathode est orientée vers le filtre de sortie, est placé dans la partie conique de la chambre et maintenu au centre. Le scintillateur au sulfure de zinc est plaqué sur la tête du photomultiplicateur, à 5 mm de la face sensible du filtre de sortie. Le déroulement du filtre absolu de sortie s'effectue à l'aide d'un petit moteur électrique à chaîne, assisté d'un dispositif de serrage du filtre solide d'un piston commandé par un vérin pneumatique actionné par une électrovanne reliée électriquement à l'unité de commande du montage. L'aspiration de l'air s'effectue à l'aide d'une pompe à vide, à un débit de 250 l min<sup>-1</sup>.

La quasi-totalité des atomes RaA créés dans la chambre étant chargés positivement [17], on établit un champ électrique entre le scintillateur et le filtre en plaçant, sur le scintillateur, une série de fils de cuivre étamé de 3/10 mm de diamètre, tendus sur la collerette, et distants de 1 mm. L'ensemble est relié à la masse de l'installation. Par ailleurs, le support en nylon du filtre de sortie est recouvert d'une substance conductrice polarisée négativement par rapport à la masse (-600 V). De la sorte, la majeure partie des atomes RaA de la chambre se trouve précipitée sur le filtre de sortie.

D'une façon générale, la concentration en radon  $C_{Rn}$  s'obtient à partir de la relation :

$$C_{Rn} = \frac{0,45 \times x}{EZFV} \text{ pCi.l}^{-1}$$

$x$  est le nombre d'impulsions comptées pendant la durée de la mesure,  $E$  un coefficient tenant compte de l'efficacité de comptage du filtre et du rendement du détecteur  $\alpha$ ,  $Z$  est un terme assez compliqué qui dépend de  $t$ , durée du prélèvement,  $T_1$  temps séparant la fin du prélèvement du début du comptage,  $T_2$  temps séparant la fin du

prélèvement de la fin du comptage,  $\lambda_A$ ,  $\lambda_B$ ,  $\lambda_C$  constantes radioactives des descendants du radon [24].  $V$  est le volume de la chambre (litres).  $F_i$  est la fraction des atomes RaA arrivant sur le filtre de sortie et qui, de ce fait, tient compte des pertes par diffusion sur les parois de la chambre ; on peut la calculer mathématiquement dans le cas d'un volume cylindrique. C'est pourquoi le coefficient  $EF_i$  de la chambre de 290 l est déterminé par comparaison avec une chambre plus petite (10 l) parfaitement cylindrique. On mesure ainsi ( $EF_i = 0,29$  [24].

Chaque séquence dure 30 min au cours desquelles aspiration et comptage des impulsions s'effectuent en même temps. Au bout de ce temps, l'unité centrale commande l'arrêt de la pompe, de la haute tension alimentant le photomultiplicateur et de l'électrovanne, et le filtre se déroule. Une nouvelle séquence de 30 min démarre alors, l'intervalle de temps séparant chaque cycle étant de l'ordre de 6 s. A la fin de chaque séquence, le résultat du comptage est inscrit sur une imprimante. On arrive ainsi à une sensibilité de l'ordre de  $2 \cdot 10^{-2} \text{ pCi l}^{-1}$  ( $0,7 \text{ Bq.m}^{-3}$ ).

### BIBLIOGRAPHIE

- [1] BOUVILLE A., LEROY B., GUEDALIA D., DELOS Y., FONTAN J. Une méthode de mesure du déséquilibre radioactif entre le radon et ses descendants à vie courte. *J. Aerosol Sci.*, 1971, 2 (4), 381-389.
- [2] BRICARD J. Physique des aérosols. Rapport CEA-R-4831, 1977.
- [3] BRICARD J., PRADEL J. In : *Aerosol science* (C.N. Davies, Ed.). New York : Academic Press, 1966, 87-109.
- [4] ELSTER J. GEITEL H. Weitere Versuche über die Elektrizitätszerstreuung in abgeschlossenen Luftmengen. *Phys. Z.*, 1901, 2, 560-563.
- [5] FONTAN J. Le dosage des radioéléments gazeux donnant des produits radioactifs de filiation. Son application à la mesure de la radioactivité naturelle de l'atmosphère. Thèse, Toulouse, 1964.
- [6] HOSTER C.R. Vertical diffusivity from radon profiles. *J. Geophys. Res.*, 1969, 74, 7018-7026.
- [7] ISRAELSON S., KNUDSEN E., UNGETTHÜM E. Simultaneous measurements of radon and thoron in the atmospheric surface layer. *Tellus*, 1973, 25 (3) 281-288.
- [8] KAWANO M. The Meteorological Society of Japan, Series 2, 1957, 35 (6).
- [9] LE GAC J. Etude scientifique et corrélative de la radioactivité naturelle de l'air, des noyaux de condensation et de certains paramètres électriques sur un site à influence maritime ou urbaine. Thèse 3<sup>e</sup> cycle, Brest, 1979 et Rapport CEA-R-5029, 1980.
- [10] MADELAINE G. Formation et évolution des aérosols dans l'air filtré et dans l'air naturel. Thèse, Paris, 1968 et Rapport CEA-R-3614, 1968.
- [11] MALAKHOV S.G., BALUKIN N.V., DMITRIEVA G.V., KIRICHENKO L.V., SSISIGINA T.I., STARIKOV B.G. Diurnal variations of radon and thoron decay products concentration in the surface layer of the atmosphere and their washout by precipitations. *Tellus*, 1966, 18 (2) 643-654.
- [12] NAKATANI S. Characteristics of natural radioactivity appearing in its diurnal variation. Electrotechnical laboratory, Japan, Report - 755, 1975.
- [13] NATANSON G.L. Les aérosols radioactifs. *Ups. Khim. SSSR*, 1956, 25 (12) 1429-1445.
- [14] NEWSTEIN H., COHEN K.D., KRABLIN R. An automated atmospheric radon sampling system. *Atm. Environm.*, 1971, 5 (10) 823-833.

- [15] RAABE O.G., WRENN M.E. Analysis of the activity of radon daughter samples by weighted least squares. *Health Phys.*, 1969, 17, 593-605.
- [16] RANGAJARAN C., GOPALAKRISHNAN S., EAPEN C.D. The applications of least squares analysis for the estimaton of low atmospheric concentrations of short-lived radon daughters and studies of their disequilibrium. *Pageophys*, Bombay, 1977, 115.
- [17] RENOUX A. Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. Thèse, Paris, 1965 et Rapport CEA-R-2771, 1965.
- [18] RENOUX A., TYMEN G., LE GAC J., MADELAINE G. Study of the  $^{222}\text{Rn}$  short-lived daughter disequilibrium in a mixed maritime and continental atmosphere near granitic soils. *Health Phys.* 1980, 39, 291-298.
- [19] RENOUX A., MADELAINE G., ZETTWOOG P. Données actuelles sur la composante radioactive de la pollution de l'air dans les mines d'uranium. *Radioprotection*, 1982, 17 (3) 163-176.
- [20] SHAPIRO H., FORBES-RESHA J.L.  $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$  ratios in air at a height of 20 m. *J. Geophys. Res.*, 1975, 80 (12) 1605-1613.
- [21] SINCLAIR D., GEORGE A.C., KNUTSON E.O. In : (American nuclear society proceedings series) 1978.
- [22] STALEY D.O. The diurnal oscillations of radon and thoron and their decay products. *J. Geophys. Res.*, 1966, 71, 3357.
- [23] THOMAS J.W., LE CLARE P.C. A study of the two filter method for radon 222. *Health Phys.* 1970, 18, 113-122
- [24] TYMEN G. Répartition granulométrique de l'aérosol naturel et des particules radioactives issues du radon, en atmosphère maritime et urbaine peu polluée. Thèse, Brest, 1978 et Rapport CEA-R-4965, 1979.