

Quelques éléments relatifs à la radioactivité atmosphérique naturelle à Brest

par André RENOUX et Georges TYMEN*

Parmi les pollutions insidieuses, celle due à la radioactivité risque d'occuper un rang de tout premier plan dans les décennies à venir. Que peut-on actuellement en penser ? Nous avons demandé à MM. RENOUX et TYMEN, spécialistes de ces questions, d'en entretenir nos lecteurs. Il n'est pas aisé de vulgariser de tels problèmes qui requièrent toujours quelques développements techniques. Ceux-ci ont été simplifiés au maximum. Nous espérons ainsi que cet article ne sera pas de lecture trop ardue.

C. B.

Le 6 août 1945, à 8 h 15 mn 17 s exactement, une torpille de cinq tonnes, baptisée « Little boy », se détache du ventre du bombardier B 29 Enola Gay, à 10.000 m de la grande ville japonaise d'Hiroshima. Elle a été réglée de telle sorte qu'elle doit exploser à 600 m du sol. Quarante-cinq secondes plus tard (le B 29 est déjà à 18 km du point de lancement), une lueur fantastique illumine le ciel et la fin du monde semble arrivée : 101.000 morts, disparus ou blessés graves, des ravages qui s'étendent sur une distance de 12 km. Le monde, ahuri et effrayé, découvre les effets dévastateurs de la bombe atomique. Depuis, pour un très grand nombre de gens, la radioactivité est une chose à la fois mystérieuse et terrifiante, qui intrigue certes, mais surtout fait peur. Et pourtant...

Et pourtant, depuis toujours notre globe a été soumis à la radioactivité. Mais c'est une radioactivité naturelle, insensible à l'action de l'homme. Seulement il a fallu attendre 1901 pour que les deux Allemands ELSTER et GEITEL (1) la mettent en évidence, après que le Français Henry BECQUEREL eut découvert la radioactivité spontanée des composés d'uranium (1896) (2). Et cette radioactivité naturelle n'est pas dangereuse, puisqu'elle n'a pas empêché le développement de l'humanité.

* Laboratoire de Physique des Aérosols et de la Radioactivité Atmosphérique, Faculté des Sciences de Brest (U.B.O.).

TABLEAU 1

NOM DE LA FAMILLE (PARENT)	TYPE	NOYAU FINAL STABLE	VIE MOYENNE DU PARENT (ANNÉES)
Thorium ^{232}Th	4 n	208 Pb	1, 39. 1010
Neptunium ^{237}Np	4 n + 1	209 Bi	2, 20. 106
Uranium radium ^{238}U	4 n + 2	206 Pb	4, 5. 109
Actinium ^{235}U	4 n + 3	207 Pb	7, 13. 108

Avant de regarder ce que l'on observe à Brest, il sera bon de donner au lecteur une idée sur l'origine et la nature de cette radioactivité.

I. — ORIGINE DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE

1) Les familles radioactives naturelles

La radioactivité naturelle de l'air est due, soit à la présence de radionuclides provenant des minéraux radioactifs de la croûte terrestre, soit à l'action des rayons cosmiques sur les gaz atmosphériques (produits de spallation). Dans cet article, nous n'étudierons que le premier mode de formation. On trouvera des indications sur les produits de spallation dans RENOUX (3).

Les corps radioactifs existant dans la nature peuvent être classés en trois grandes familles. Chacune de ces familles est caractérisée par son parent (élément dont sont issus tous les membres de la famille) et le type de la série. Ainsi, la première famille est celle du Thorium ^{232}Th . Elle est de type 4 n, ce qui veut dire que le nombre de masse A de tous les membres de la famille est de la forme 4 n (pour $^{232}_{90}\text{Th}$, n = 58 et pour les suivants, n = 57,56, etc.). Une telle loi de filiation entraîne que les seuls changements possibles d'un membre à l'autre correspondant soit à $\Delta A = 4$ (émission α), soit à $\Delta A = 0$ (émission β^- ou β^+). Rappelons que l'émission γ correspond à un changement dans l'état d'excitation du noyau, sans variation de A et de Z.

Le tableau 1 signale les principales caractéristiques des familles radioactives naturelles. Le parent possède la vie moyenne la plus longue de la famille. La famille du neptunium n'apparaît pas dans la nature parce que la vie moyenne du membre le plus stable, le ^{237}Np est mille fois plus faible que l'âge de la Terre. Il est juste de remarquer que si les minerais de thorium et d'uranium n'étaient pas radioactifs, nos connaissances en Physique Nucléaire seraient certainement nulles, ces minerais contenant des substances radioactives dont les périodes sont de l'ordre de l'âge de notre planète (quelques 10^9 années). On peut donc penser que ces matériaux, ainsi du reste que les noyaux stables, sont les survivants d'une époque lointaine où, peut-être, les noyaux ont été formés par agrégation de nucléons (on appelle nucléon toute particule élémentaire entrant dans la composition du noyau : proton ou neutron). De ce fait, tous les éléments radioactifs à vie trop courte ont disparu, et on en conclut qu'il n'existe aucune

différence entre la nature de la radioactivité naturelle et celle de la radioactivité artificielle. En effet les éléments artificiels ont dû, à l'origine, être présents sur la Terre, mais ont disparu progressivement, leur durée de vie étant trop courte. La plupart des noyaux radioactifs naturels ont pu être obtenus en laboratoire, ce qui confirme la similitude entre la radioactivité artificielle et naturelle.

Les terrains, les roches, les matériaux de construction (pierre, bétons, briques, etc.) contiennent de l'uranium et du thorium en faible concentration. Par filiation radioactive, ces éléments donnent naissance à trois radioéléments appartenant à la famille des gaz rares : le ^{232}Th produit le ^{220}Tn (Thoron), le ^{238}U donne le ^{222}Rn (Radon), et le ^{235}U fournit le ^{219}An (Actinon). Une partie de ces gaz formés dans les roches contenant de l'uranium et du thorium, est susceptible de se dégager et de se répandre dans l'air où elle se désintègre en produisant, à l'état gazeux, une série d'atomes d'éléments solides dans les conditions normales. Il semblerait également qu'une partie du radon présent dans l'air des cités industrielles provient de la combustion du charbon.

La période très brève de l'actinon (3,92 sec) et sa faible concentration dans l'air entraînent que la radioactivité qui lui est due est pratiquement négligeable devant celle provenant du radon et du thoron.

D'après ce que nous venons de dire, le radon et le thoron se rencontrent surtout dans les basses couches atmosphériques : à 10.000 m d'altitude, il n'y a pratiquement plus de radon et à... 100 m, il n'y a pratiquement plus de thoron.

2) Les aérosols radioactifs

Un aérosol est une particule en suspension dans l'air, ou plus généralement dans un gaz, de dimension linéaire moyenne comprise entre $0,01\ \mu\text{m}$ et quelques microns. Lorsque le radon et le thoron se désintègrent, ils donnent naissance à des atomes de Ra A et de Th A qui sont presque tous chargés positivement. Leur grande mobilité entraîne leur fixation rapide sur les aérosols atmosphériques. Mais ils se désintègrent à leur tour, avant ou après leur fixation sur une particule pour donner des descendants radioactifs RaB, RaC, ThB, ThC. Le RaC conduit au RaD dont la période est grande (22 ans). Les aérosols fixant ce RaD sont entraînés vers le sol par leur poids ou par les précipitations, avant qu'un équilibre radioactif ait pu être atteint. De ce fait, la radioactivité due aux descendants à vie longue (RaD, RaE, RaF) du radon est très faible. Quant au ThD, il est stable.

Par contre, le tableau 1 nous montre que l'équilibre radioactif peut être réalisé entre le radon et le Ra A, le Ra B, et le Ra C, la période apparente de l'ensemble (RaA, RaB, RaC) étant de l'ordre d'une demi-heure. Donc si le gaz radioactif reste en présence des poussières suffisamment longtemps (au moins 1 h. 30), l'équilibre radioactif sera atteint dans l'air. Dans le cas du thoron, il faudrait environ deux jours. Il semble bien que, en général, cet équilibre radioactif ne soit que très rarement réalisé.

On a l'habitude de classer les aérosols atmosphériques en plusieurs catégories :

a) les petits ions, positifs ou négatifs. Ce sont des molécules

ou des groupes de molécules ayant gagné ou perdu un ou plusieurs électrons sous l'action des radiations ionisantes : rayon γ , rayons cosmiques, etc... On a l'habitude de caractériser un ion par sa mobilité k , liée à la vitesse $\bar{v}$ que prend l'ion sous l'action d'un champ électrique $\bar{E}$ par la relation $\bar{v} = k\bar{E}$.

En électricité atmosphérique, on exprime les mobilités à l'aide d'une unité un peu bicornue le $\text{cm}^2 \text{v}^{-1} \text{s}^{-1}$.

Une autre caractéristique importante d'une particule est son coefficient de diffusion D . Sans entrer dans une formulation compliquée, nous dirons que ce coefficient caractérise la possibilité, pour un aérosol, de diffuser vers une paroi ou un autre aérosol, sans que la charge électrique intervienne. Le coefficient de diffusion s'exprime en $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$.

Entre D et k existe la relation d'Einstein

$$\frac{k}{D} = \frac{e}{KT}$$

K étant la constante de Boltzman, c'est-à-dire le rapport entre la constante moléculaire des gaz parfaits R et le nombre d'Avogadro N_A ($K = \frac{R}{N_A}$) e la charge de l'électron et T la température absolue.

En moyenne, la mobilité des petits ions atmosphériques semble être de l'ordre de $1,5 \text{ cm}^2 \text{v}^{-1} \text{s}^{-1}$, leurs dimensions linéaires étant, bien évidemment, voisines des dimensions moléculaires (quelques 10^{-8} cm).

b) *les noyaux de condensation* (quelques 10^{-6} cm). On les appelle ainsi car c'est sur eux que s'effectue la condensation de la vapeur d'eau atmosphérique... ce qui permet, du reste, de les mettre en évidence et de les compter (compteurs d'Aitken et de Pollack). Une partie d'entre eux possède une charge électrique : on les appelle les gros ions, positifs et négatifs se trouvant en nombre sensiblement égal dans l'air. Les autres sont électriquement neutres et on les appelle les noyaux neutres, tout simplement.

Ces noyaux de condensation sont présents à raison de 10.000 par cm^3 à la campagne, de 100.000 à 150.000 dans une région polluée (Paris, par exemple). Leur nombre est une caractéristique important de la pollution atmosphérique. A Brest, on en dénombre en moyenne 20.000 par cm^3 ce qui indique que notre région échappe à la pollution... pour le moment. Il est évident qu'une industrialisation plus poussée de Brest augmentera ce nombre, mais il est tout à fait possible de maintenir l'augmentation de la pollution qui en résultera inéluctablement, dans des limites raisonnables. Ces gros ions ont des rayons qui vont de $7,8 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$ ($k = 10^{-3} \text{ cm}^2 \text{v}^{-1} \text{s}^{-1}$) à 10^{-5} cm .

c) *les poussières* sont les particules ayant un rayon supérieur à 10^{-5} cm ($0,1 \mu\text{m}$).

Les éléments radioactifs peuvent donc se fixer sur n'importe lesquels de ces aérosols. L'utilité des aérosols radioactifs tient dans le fait que, beaucoup plus faciles à mettre en évidence du fait de leur radioactivité, ils permettent des études fondamentales sur la formation des aérosols radioactifs. Signalons également que les applications pratiques de la radioactivité atmosphérique sont fort nombreuses. On en trouvera quelques-unes exposées dans RENOUX (3).

3) Captation des aérosols

Il faut, bien sûr, être capable de capturer ces aérosols. Et l'idéal serait que l'on puisse disposer de capteurs spécialisés, permettant de discriminer entre les différentes catégories d'aérosols. Il se trouve que de tels appareils existent. Nous allons en passer quelques uns en revue.

a) *Le tube de Zélény* (fig. 1). C'est un tube en laiton de 3,4 cm de diamètre, dans l'axe duquel est tendu un fil de cuivre (recuit) de 3/10 mm. Le tube est mis à la terre, l'électrode axiale portée à un potentiel qui, si il est négatif, lui permettra de capter les ions positifs, si il est positif lui fera prendre les ions négatifs. Ce dispositif a l'avantage de sélectionner les ions suivant leurs dimensions.

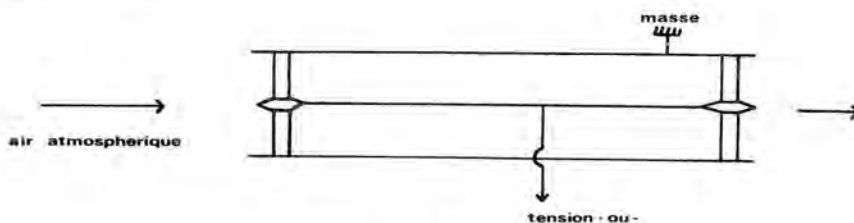


Fig. 1. — Tube de Zélény.

b) *La batterie de diffusion* (fig. 2). Ce sont des plaques verticales parallèles. L'air passe lentement à travers l'appareil, et les aérosols se fixent, par diffusion, sur les plaques. Ce dispositif, également sélectif en dimensions, permet d'arrêter les particules neutres que ne peuvent capter les tubes de Zélény.

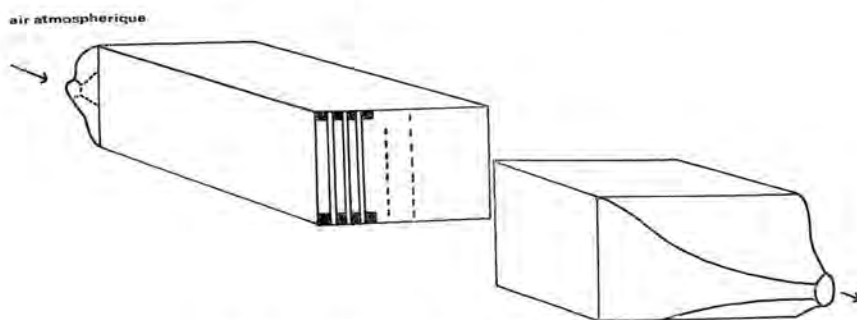


Fig. 2. — Batterie de diffusion (coupe).

c) *Le cascade impactor* (fig. 3). C'est un appareil de prélèvement par impact permettant de capter les poussières dont les dimensions sont supérieures à $0,25 \mu\text{m}$. Il utilise le fait que lorsqu'un jet d'air est soufflé perpendiculairement à une plaque ou un disque de verre, les particules en suspension se déposent sur cette surface sous l'effet de leur inertie, tandis que les filets d'air sont déviés. Dans le cascade impactor que nous utilisons

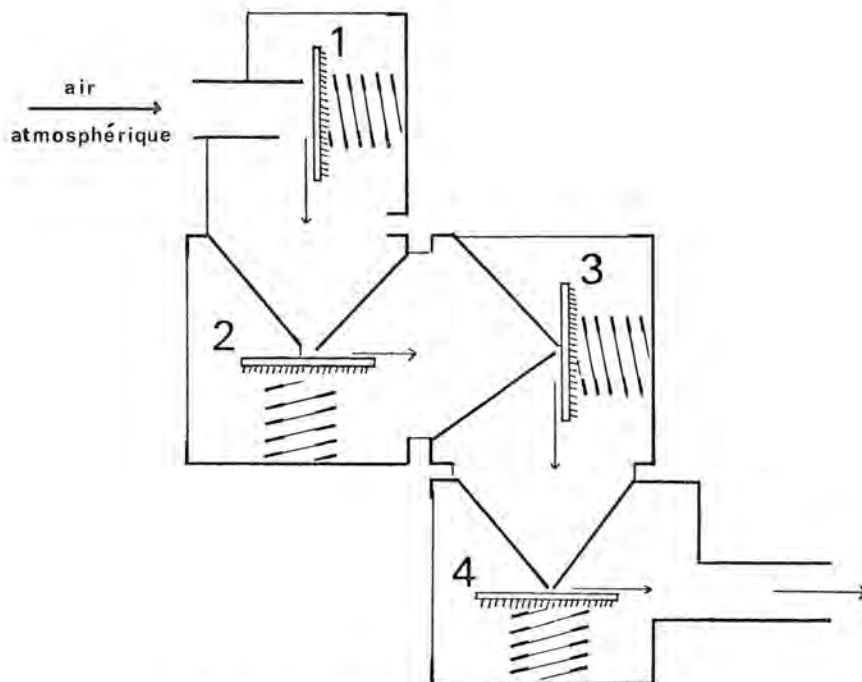


Fig. 3. — Le cascade impactor Casella MK 2

(Casella M.K 2), quatre ajutages sont disposés les uns à la suite des autres. Ils sont de section rectangulaire de largeur de plus en plus petite, les particules les plus grosses étant captées sur le premier disque, les plus fines se fixant sur le dernier disque auquel correspond l'ouverture minimum. Les disques, en verre, peuvent être examinés directement au microscope optique. La fig. 4 indique les courbes de pénétration, tracées pour un débit d'air à travers l'appareil de 17,5 l/mn, les aérosols étant supposés sphériques et de densité unité (4).

d) *Les filtres papiers*, tels les filtres Schneider « roses », arrêtent tous les aérosols atmosphériques, même les plus fins. On peut aussi utiliser des filtres nuclépores (Général Electric) obtenus en utilisant des feuilles de polycarbonate. De surface très lisse, chaque filtre est transparent, les pores de même diamètre ($0,5 \mu\text{m}$ dans nos expériences) sont cylindriques et presque tous perpendiculaires à la surface. Ces filtres sont nonhygroscopiques.

Nous n'indiquons dans cet article, que les méthodes susceptibles de permettre des mesures de la radioactivité portée par les aérosols ainsi captés.

4) *Mise en évidence et mesure de la radioactivité des aérosols atmosphériques*

Parmi les descendants du radon, le RaA et le RaC' sont des émetteurs α (tableau 2). De même, parmi les descendants du thoron, le Th A et le Th C' sont également des émetteurs α . On pourra donc évaluer la radioactivité naturelle en utilisant des méthodes

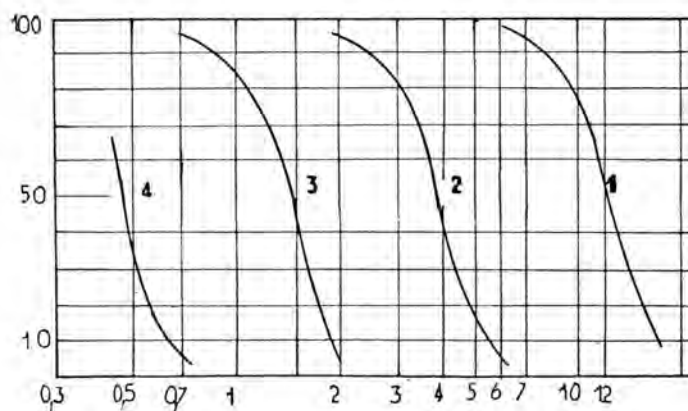


Fig. 4. — Courbes de pénétration d'un cascade impactor

de comptages α . C'est pour cette raison que nous avons choisi la méthode des scintillations. En effet, les rayons α ont la propriété d'exciter la fluorescence de certaines substances, comme le sulfure de zinc. Les scintillateurs utilisés au laboratoire sont constitués par un support transparent (plaque de rhodoïd de 12 cm de diamètre et de 1,5 mm d'épaisseur) sur lequel on a pulvérisé de façon aussi homogène que possible, une mince couche de sulfure de zinc activé à l'argent. La densité optique de l'ensemble est de 0,4. Les photons émis, sous l'action des α , par le scintillateur,

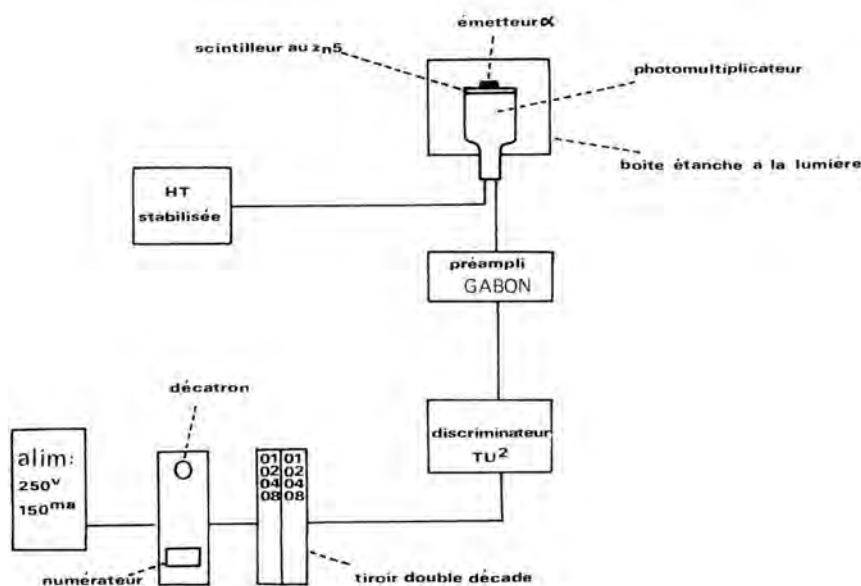


Fig. 5. — Ensemble de comptage α

sont, à l'aide d'un photomultiplicateur (P.M.), transformés en signaux amplifiés, mis en forme et dénombrés par un ensemble électronique (fig. 5) (5).

Il suffit de placer la surface ayant recueilli des aérosols atmosphériques contre un scintillateur que l'on pose ensuite sur un photomultiplicateur convenablement réglé (5), pour mesurer la radioactivité portée par ces aérosols.

II. — LA RADIOACTIVITE ATMOSPHERIQUE NATURELLE A BREST

1) Teneur de l'air en radon

Le tableau ci-dessous indique le nombre de coups comptés en dix minutes, à la suite d'un prélèvement de 1 h. 30, le débit de l'air étant de 37 l/mn, quinze minutes après l'arrêt du prélèvement.

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
41 250	139	2 980

A titre comparatif, nous indiquons les résultats obtenus, dans les mêmes conditions, par l'un d'entre nous dans la région parisienne (5).

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
4 000	200	1 030

On remarque que la radioactivité naturelle due au radon est presque trois fois plus élevée à Brest qu'à Paris. Cet état de fait est dû à la présence de nombreux terrains granitiques dans notre région, car de tels terrains sont des sources importantes de radon. Les minima sont plus faibles à Brest qu'à Paris, et là encore, l'explication est fort simple : au-dessus des mers, la radioactivité naturelle est excessivement faible. Or notre laboratoire est situé à deux kilomètres à vol d'oiseau de la mer, et nous observons nos minima lorsque le vent vient de la mer. Enfin, les maxima sont dix fois plus forts à Brest qu'à Paris. On les observe essentiellement par temps de brouillard. Les mouvements atmosphériques étant alors très faibles, l'air séjourne très longtemps au-dessus des terrains granitiques, d'où la très forte radioactivité mesurée.

On a l'habitude de ramener ces activités exprimées en coups à la teneur de l'air en radon évaluée en curie par cm^3 d'air. Rappelons que le curie (Ci) est la quantité de radioélément produisant $3,7 \cdot 10^{10}$ désintégrations par seconde. En supposant une durée de séjour des aérosols dans l'air égale à vingt minutes (5), on aboutit à une teneur moyenne de l'air brestois en radon égale à $5,5 \cdot 10^{-16}$ Ci/ cm^3 = $5,5 \cdot 10^{-13}$ Ci/ m^3 (minimum $2,6 \cdot 10^{-14}$ Ci/ m^3 , maximum $7,6 \cdot 10^{-12}$ Ci/ m^3).

La radioactivité atmosphérique naturelle est donc beaucoup plus forte à Brest qu'à Paris. Faut-il s'en inquiéter, bien que nous soyons incapables d'intervenir dans ce problème ? Absolument pas, car on estime que le taux de radon dangereux pour l'homme est de quelques 10^{-10} Ci/ m^3 . A Brest, nous sommes donc nettement en dessous de ce seuil fatidique.

2) Teneur de l'air en thoron

Le tableau ci-dessous indique nos premiers résultats. En effet, les expériences portant sur le dépôt actif du thoron nécessitant des prélèvements de longue durée (24 heures minimum), nous n'avons, actuellement, qu'un nombre relativement restreint de résultats. L'activité a est exprimée en coups comptés en dix minutes, à la suite de prélèvements de vingt-quatre heures (débit de l'air 37 l/mn), trois heures après l'arrêt du prélèvement (afin d'éliminer le dépôt actif du radon).

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
3 800	101	807

Dans la région parisienne, l'un de nous a obtenu les résultats suivants, en opérant dans les mêmes conditions (5) :

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
800	200	429

Là encore, l'activité est plus forte à Brest qu'à Paris, ce qui s'explique par les mêmes raisons que précédemment. La teneur moyenne de l'air brestois en thoron est de $2,9 \times 10^{-15}$ Ci/m³ (maximum : $13,6 \times 10^{-15}$ Ci/m³, minimum : $3,6 \times 10^{-16}$ Ci/m³).

3) Etat ionique des aérosols radioactifs

Il est important de connaître l'état de charge des aérosols radioactifs. Le tableau ci-dessous indique les pourcentages d'activité a fixée sur les gros ions positifs par rapport à l'activité a totale (dépôt actif du radon).

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
29,5 %	3,3 %	13,8 %

Les ions radioactifs positifs sont en plus grand nombre à Brest qu'à Paris, puisque, en moyenne, ce rapport est égal à 7,9 % dans la région parisienne.

Nous l'avons vu, il y a dans l'air autant de gros ions positifs que de gros ions négatifs. Pour les ions radioactifs, les choses sont différentes : il y a davantage de gros ions radioactifs positifs $N +$ que de gros ions radioactifs négatifs $N -$. Le tableau ci-dessous donne le rapport $N - / N +$:

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
0,675	0,16	0,35

A Paris, on obtient les résultats suivants (5) :

MAXIMUM	MINIMUM	MOYENNE
0,59	0,04	0,28

4) Répartition granulométrique de la radioactivité atmosphérique naturelle (dépôt actif du radon).

La fig. 6 indique la répartition granulométrique de la radioactivité a fixée sur des aérosols de dimensions supérieures à $0,5 \mu$. On constate que, en moyenne, 20 % de cette radioactivité

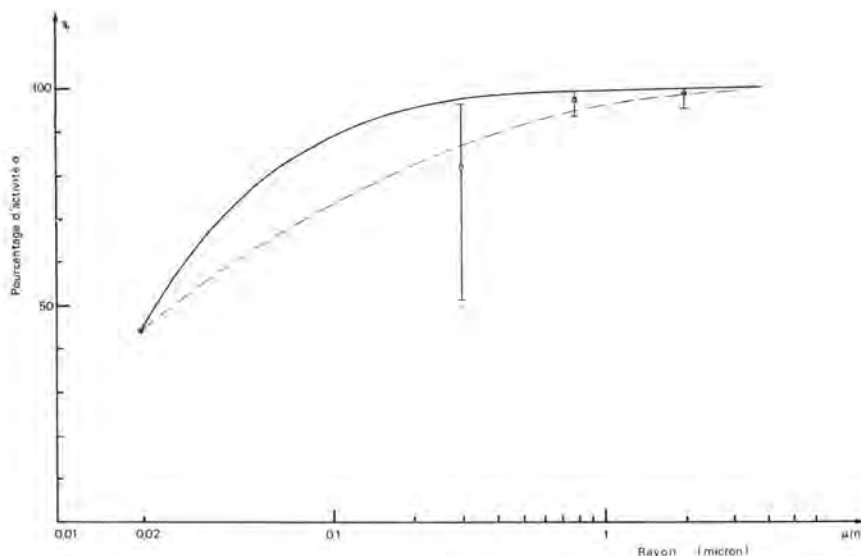


Fig. 6. — Répartition granulométrique cumulée de la radioactivité a

se trouvent sur de telles particules (minimum 4 %, maximum 51 %). Cette distribution est identique à celle observée dans la région parisienne (6).

Nous pensons que l'étude des aérosols atmosphériques radioactifs dans la région brestoise est extrêmement intéressante, car effectuée en atmosphère maritime et relativement peu polluée, elle complète les travaux qui sont développés dans les régions industrielles fortement contaminées, permettant ainsi de progresser dans la connaissance de la Physique des Aérosols.

REFERENCES

- (1) ELSTER (J.) et GEITEL (H.), 1901 - Physik Zeitsch. 560.
- (2) BECQUEREL (H.), 1896 - Comptes Rendus A. Le Paris, 122, p. 420.
- (3) RENOUX (A.), 1970 - Mises à Jour, 5, pp. 295-314.
- (4) CASELLA - Notice d'utilisation du cascade-impactor mK2, 3018/R 1.
- (5) RENOUX (A.) - Thèse Paris 1965. Rapport C.E.A. R 2771.
- (6) STOREBO (P.), MADELAINE (G.) et BRICARD (J.), 1968 - Ann. Occup. Hyg., 1, pp. 295-298.