

Propriétés statistiques d'aérosols radioactifs

Autor(en): **Metzger, C. / Rossel, J.**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **38 (1965)**

Heft II

PDF erstellt am: **08.08.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-113590>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

Haftungsausschluss

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

Propriétés statistiques d'aérosols radioactifs

par C. Metzger et J. Rossel

Institut de Physique, Université de Neuchâtel

(5. XI. 64)

Introduction

La distribution de la radioactivité α et β sur les aérosols produits, à haute altitude, par les explosions nucléaires atmosphériques peut fournir des renseignements sur la nature et le mécanisme de formation des particules chaudes, en plus d'une meilleure connaissance du hasard biologique qu'elles représentent.

Dans le cadre des travaux de la Commission fédérale de contrôle de la radioactivité, nous avons étudié le matériel recueilli sur filtres, placés sous l'aile d'un avion 1), à diverses altitudes (de 4000 m à 10000 m) au-dessus du territoire suisse. Les filtres de cellulose à disposition (SCHLEICHER et SCHUELL, N° 2430) proviennent de vols effectués les 19 et 20 septembre 1962*). Les mesures faites 14 et 18 mois après la collection ne présentent pas de différence hors des limites d'erreurs, mais elles sont compatibles avec une légère diminution de l'activité.

Méthode expérimentale

Pour étudier la radioactivité β des particules jusqu'à de très faibles valeurs ($< 0,5$ pC), la technique utilisée consiste à introduire les cendres des filtres, calcinés par infrarouge à 500°C , dans une émulsion photographique nucléaire «in gel form» qui est coulée ensuite. Après une exposition d'une dizaine de jours, l'émulsion est développée (méthode à deux températures) et l'on peut observer, au microscope, des points chauds (figure 1 et 2). Nous avons utilisé l'émulsion Ilford L4 coulée en couche de $300\ \mu$ d'épaisseur.

Comme l'activité A d'une particule est trop faible, dans notre domaine d'investigation, pour être mesurée par un compteur, nous avons cherché à utiliser les lois du noircissement photographique pour la déterminer. Les figures 1 et 2 montrent que chaque point chaud présente un centre opaque. Le diamètre apparent Φ de ce dernier, observé visuellement au microscope, est une bonne mesure de l'activité pour les points chauds qui ne présentent pas encore de saturation du noircissement:

*) Ce matériel nous a été fourni par MM. O. HUBER et J. HALTER de l'Institut de Physique de l'Université de Fribourg que nous remercions vivement.

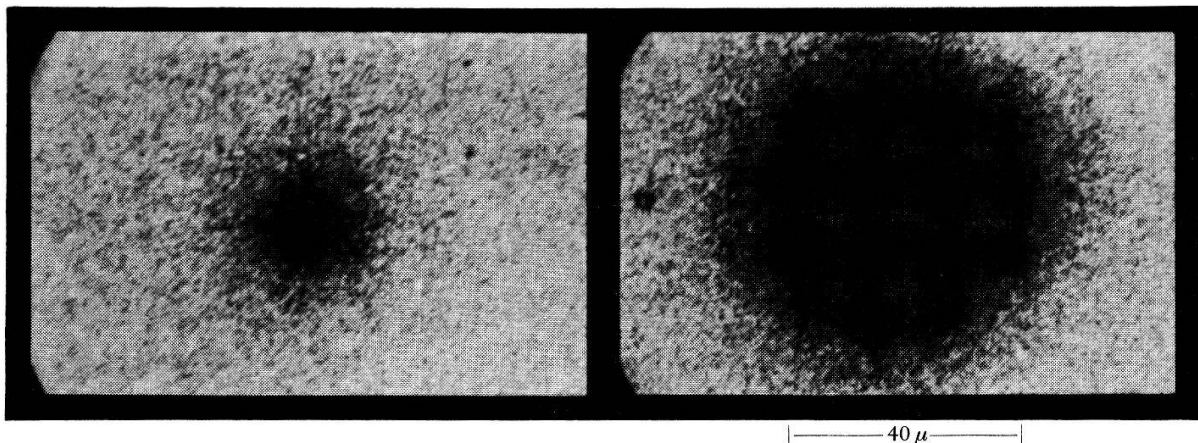


Fig. 1 et 2

Points chauds β -actifs (groupe 5 et 4 de la figure 3)

L'opacité photographique, dans l'unité de volume situé à la distance r du centre, doit obéir à une loi du type :

$$O(r) = \left[a A t^p \frac{e^{-\lambda r}}{r^2} \right]^\gamma \quad (1)$$

Les constantes a , p , λ et γ définissent respectivement une constante de l'émulsion considérée, un exposant du type de SCHWARZSCHILD, l'affaiblissement de la radiation β et le contraste. Dans notre cas $p = 1$ puisque pour les rayonnements particuliers ionisants, on peut considérer que la loi d'action photographique est réciproque²)*. L'opacité observée le long d'un rayon, dans le plan de la plaque et résultant de l'effet spatial ci-dessus, peut s'écrire sous la forme :

$$O(\varrho) = (A t)^\gamma \frac{F(\lambda \varrho)}{\varrho^\delta}, \quad (2)$$

c'est-à-dire pour la densité photographique $D = \log O$

$$D(\varrho) = \gamma \log A t - \delta \log \varrho + \log F(\lambda, \varrho). \quad (3)$$

L'expérience (figure 3a) nous indique qu'une telle loi est plausible et que $F(\lambda, \varrho)$ est à variation lente sur un domaine suffisant de ϱ .

Comme il n'est pas possible d'affirmer a priori que le spectre β soit identique pour tous les aérosols, nous ferons l'hypothèse que $F(\lambda, \varrho)$ est peu dépendant du type d'émetteur β lorsque ϱ est petit. Cette hypothèse est valable pour autant que l'énergie max. des électrons émis ne soit pas trop faible. Cette indépendance a été confirmée par nos mesures pour les faibles activités.

La densité photographique prise au centre (pour $\varrho = \varrho_0$ petit) apparaît proportionnelle au log de l'activité :

$$D_0 = \gamma \log A t - \delta \log \varrho_0 + \log F(\lambda, \varrho_0). \quad (4)$$

D'autre part, le diamètre apparent Φ correspond à la moitié de D_0 , déduction faite du voile V (figure 3b) :

$$\frac{D_0}{2} = \gamma \log A t - \delta \log \frac{\Phi}{2} + \log F\left(\lambda, \frac{\Phi}{2}\right) + \frac{V}{2}. \quad (5)$$

*) L'effet de fading est considéré séparément (voir fig. 5).

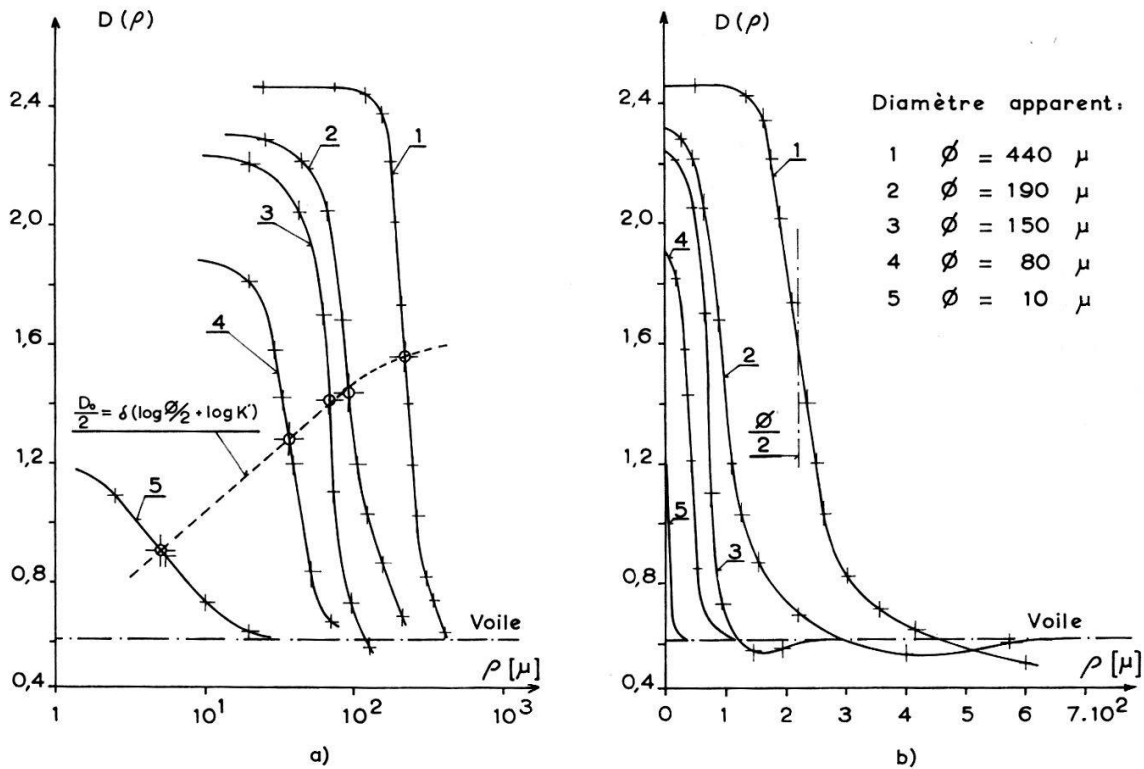
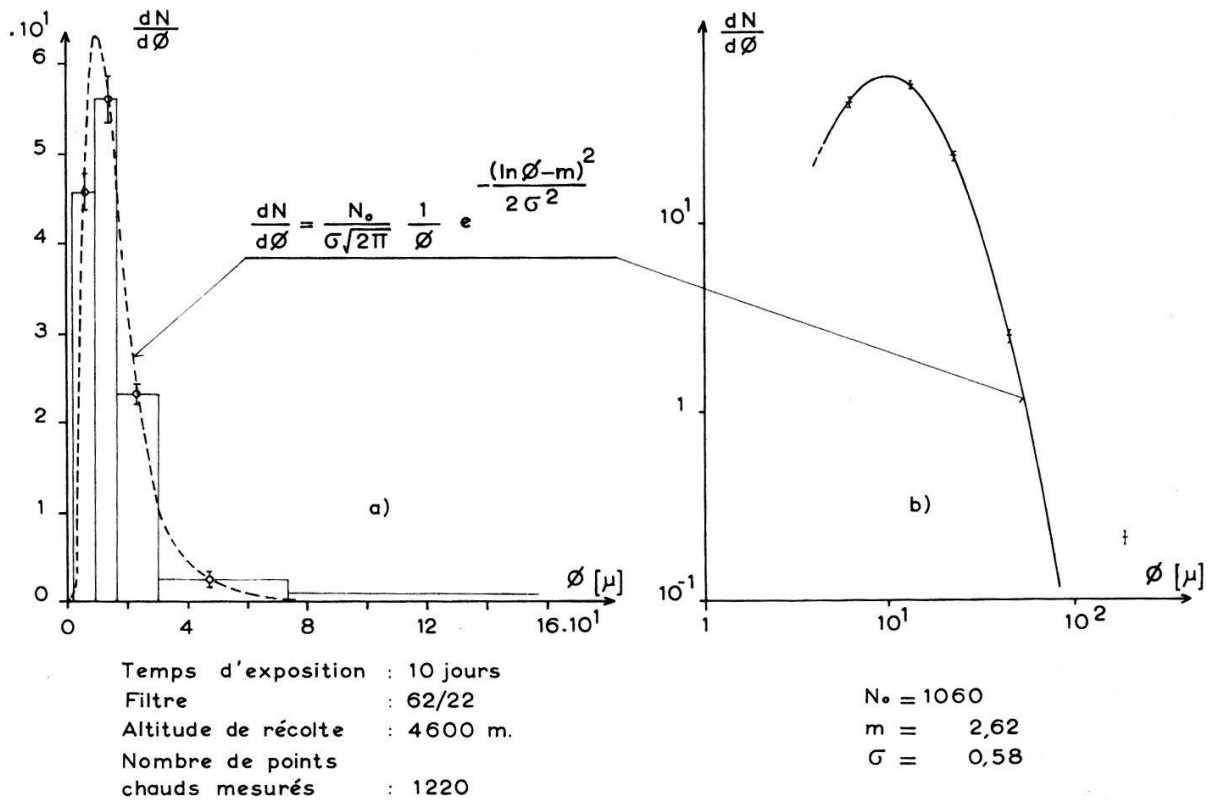


Fig. 3

Densité optique des points chauds β le long d'un rayon. Seules les taches de noircissement inférieures à 70μ (catégories 4 et au-dessous) satisfont à la relation $\Phi \sim At$.

- a) la droite reliant D_0 à $\log \Phi$ est valable pour les points chauds sans saturation au centre,
- b) on constate à la périphérie des taches de grand Φ une « inversion » du noircissement qui s'explique par une migration des ions Ag^+ lors du développement.



Temps d'exposition : 10 jours
 Filtre : 62/22
 Altitude de récolte : 4600 m.
 Nombre de points chauds mesurés : 1220

$N_0 = 1060$
 $m = 2,62$
 $\sigma = 0,58$

Fig. 4

Distribution des points chauds en fonction de Φ

- a) histogramme et courbe théorique,
- b) représentation logarithmique (points expérimentaux, courbe théorique ajustée).

De (4) et (5) on tire :

$$D_0 = 2\delta (\log \Phi + \log K) \quad (6)$$

et

$$\log \Phi = n (\log A t + \log k) \quad \text{avec } n = \frac{\gamma}{2\delta}, \quad (7)$$

où K et k sont des constantes appropriées.

La relation (6) est vérifiée expérimentalement, et nous avons mesuré la valeur $\delta = 0,45$ (figure 3a).

On peut attendre la valeur $n = 1$ pour la loi (7), car un γ de 0,9 est admissible pour les faibles densités, dans nos conditions de développement. Nous avons pu vérifier la relation (7) avec $n = 1$ pour les points chauds de faible activité en nous référant à une valeur de l'activité bien définie (voir l'étalonnage relatif ci-dessous). Par cette relation, il est possible, dans un certain domaine, de déduire la forme de la distribution de radioactivité des aérosols β -actifs à partir de l'étude de la distribution des diamètres apparents des taches photographiques.

Résultats et discussion

a) Distribution des points chauds

La relation obtenue entre le nombre $dN/d\Phi$ de taches et le diamètre apparent Φ est donnée figure 4. On voit que la distribution possède un maximum. Dans le domaine avoisinant ce maximum la distribution est une gaussienne logarithmique³).

$$\frac{dN}{d\Phi} = \frac{N_0}{\sigma\sqrt{2\pi}} \frac{1}{\Phi} e^{-\frac{(1n\Phi - m)^2}{2\sigma^2}}. \quad (8)$$

Les paramètres m et σ varient suivant l'altitude de collection et le temps d'exposition (tableau 1).

La répétition de ces expériences dans des conditions de développement différentes nous permet d'indiquer pour ces paramètres une erreur relative de $\pm 4\%$.

Tableau 1

Filtre	Altitude moyenne de récolte	Temps d'exposition	m	σ	N_0	N
62/20	9300 m	12 jours	2,74	0,584	1710	1860
62/20	9300 m	10 jours	2,59	0,582	705	800
62/21	10500 m	10 jours	2,58	0,669	930	1030
62/22	4600 m	10 jours	2,62	0,587	1060	1220

Par rapport à la loi (8) les distributions présentent un excès de particules chaudes de forte activité (figure 4b); c'est ce que nous indique aussi la comparaison de la norme N_0 de la gaussienne logarithmique et du nombre de points chauds mesurés N . Nous pouvons admettre qu'il s'agit de la somme de deux courbes dont l'une, beaucoup moins importante, n'influence que l'aile de la seconde. La statistique, dans ce domaine, est trop faible pour nous permettre d'interpréter cette «anomalie».

b) *Etalonnage relatif*

Le maximum de la distribution, pour un filtre donné, représente une classe d'aérosols d'activité bien définie. En suivant le déplacement de ce maximum en fonction du temps d'exposition, il est possible de vérifier, sur une partie de son domaine de validité, la loi (7)

$$\log \Phi = n (\log A + \log t + \log k) .$$

Les temps d'exposition étant différents, il est nécessaire de tenir compte du fading. L'irradiation se distribue dans notre cas sur un intervalle de temps relativement long; les valeurs du fading données par YAGODA et KAPLAN⁴) valables pour une irradiation instantanée doivent être prises en moyenne (figure 5). En portant cette correction, nous avons pu déterminer pour le filtre 62/22 que $n = 1$ donc que Φ est proportionnel au temps d'exposition et par conséquent aussi à A (figure 6).

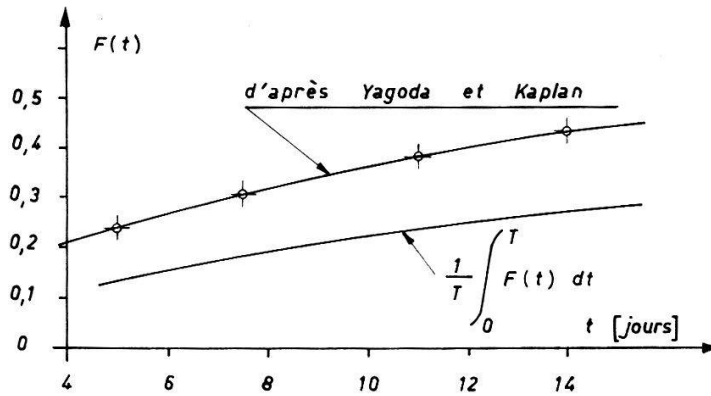


Fig. 5

Facteur de fading pour exposition instantanée (YAGODA et KAPLAN) et valeur moyenne pour exposition prolongée. Le temps t correspond pour la courbe supérieure au stockage et pour la courbe inférieure à l'exposition.

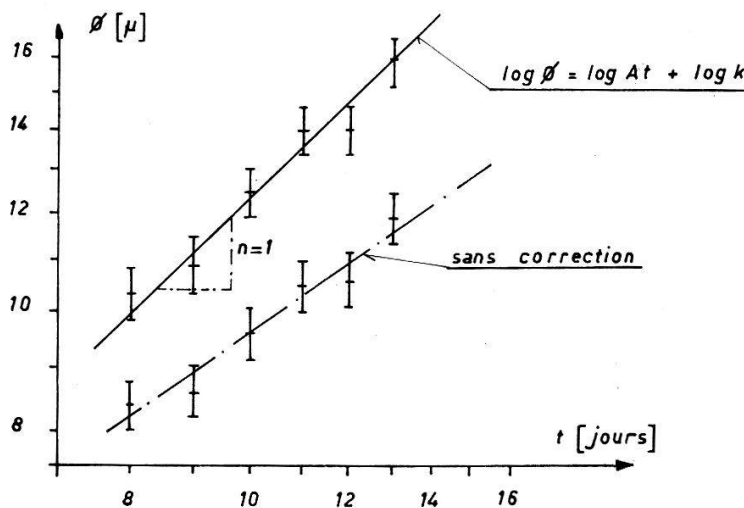


Fig. 6

Etalonnage relatif de Φ

Relation entre Φ et le temps d'exposition, pour une activité donnée, établissant la proportionnalité entre Φ et A . La courbe supérieure, avec correction de fading, a la pente 1 dans cette représentation doublement logarithmique.

Une loi du type (7) a déjà été trouvée expérimentalement pour des autoradiographies d'aérosols récoltés par filtres⁵). L'auteur de l'article auquel nous nous référons a déterminé la valeur $n = 1/2$. La géométrie de notre problème et les conditions de développement nous ont fait prévoir la valeur $n = 1$; c'est effectivement ce que nous avons trouvé.

Une similitude frappante existe entre la distribution d'activité que nous avons établie et le spectre de dimensions de certaines catégories d'aérosols naturels⁶). Cette analogie suggère que l'activité est proportionnelle à une puissance du rayon moyen de la particule. Ceci est en accord avec les conclusions de SISEFSKY⁵) suivant lesquelles l'activité est grossièrement proportionnelle au volume du grain d'aérosol.

Un spectre de dimensions de particules de retombées radioactives a été établi par O. PREINING et M. SEDLACEK⁷). Pour les faibles activités, la forme de ce spectre est semblable à une gaussienne-logarithmique en accord avec notre résultat. Leurs mesures ont été faites sur des échantillons prélevés successivement durant une période de huit mois.

c) Observations qualitatives sur la nature radioactive des aérosols

L'analyse du noircissement pour les points chauds β -actifs de forte activité (domaine de saturation de Φ , qui est due au parcours limité des électrons dans l'émulsion; voir figure 3b), nous indique que le spectre de désintégration des β n'est pas le même pour tous les aérosols. Ceci est confirmé par les travaux du SCPRI⁸)⁹) où l'on a mis en évidence que certains aérosols de grande activité sont composés de produits de fission presque purs. Des mesures analogues ont été faites à l'Institut de Physique de l'Université de Fribourg¹⁰).

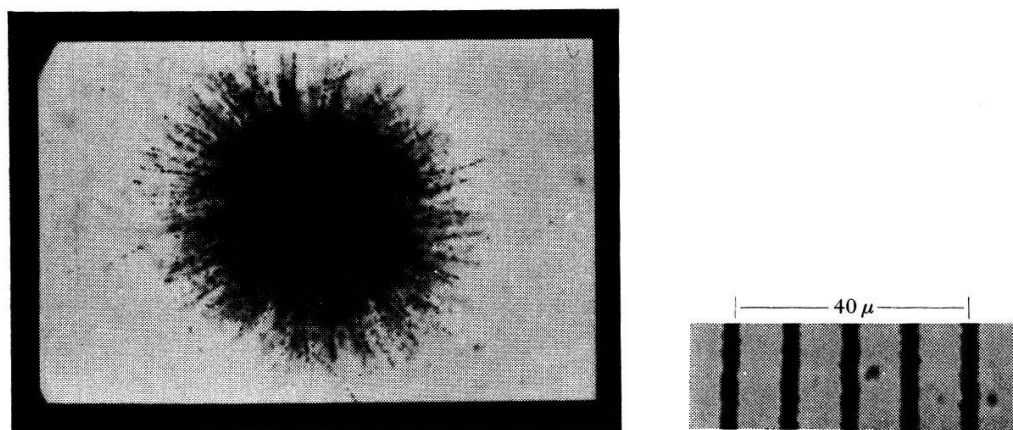


Fig. 7

Point chaud α -actif.

Lors d'un essai (calcination à 300°C), nous avons pu observer des points chauds α -actifs (figure 7). D'autres essais à des températures voisines et plus élevées n'ont pas donné de résultat; seules une centaine de traces isolées sont encore visibles dans les émulsions. Il semble donc que ces points chauds soient susceptibles d'être détruits par la chaleur et que 300°C soit une température de calcination critique pour le matériel étudié.

Les présentes observations, les résultats des travaux de P. PELLERIN⁸⁾⁹⁾, de A. SITTKUS¹¹⁾, de C. E. ADAMS¹²⁾ et de leurs collaborateurs, nous autorisent à penser que le phénomène de formation des aérosols radioactifs est similaire à celui d'une cristallisation fractionnée. Cette question est en relation avec le problème de la disparition des points chauds α -actifs qui devrait s'élucider par une calcination à basse température¹³⁾.

Conclusions

Cette étude nous a permis d'établir les points suivants pour le matériel récolté:

- la distribution en activité des aérosols β -actifs suit en partie une loi gaussienne-logarithmique.
- l'activité β est proportionnelle à la surface ou au volume de la particule pour les aérosols de faibles activités.
- la distribution présente un excès de points chauds de grande activité; ceci a son importance sur le plan sanitaire du fait des irradiations localisées considérables.
- on trouve dans les poussières radioactives d'aérosols des particules qui apparaissent comme exclusivement α -actifs.

Nous tenons à remercier nos collaboratrices, Mmes GROSJEAN et HARSANYI pour leur consciencieux travail d'observation et de mesure.

Bibliographie

- 1) P. HUBER, Bulletin du Service fédéral de l'hygiène publique, supplément B, N° 1 (1960).
 - 2) P. GLAFKIDÈS, *Chimie photographique* (1957). Publication PAUL MONTEL.
 - 3) C. E. QUENSEL, *Studies of the Logarithmic Normal Curve*, Skandinavisk Aktuarietidskrift 1945, page 141.
 - 4) A. BEISER, *Nuclear Emulsion Technique*, Mod. Phys. Rev. 24, 273 (1952).
 - 5) J. SISEFSKY, *Debris from Tests of Nuclear Weapons*, Science 133, 735 (1961).
 - 6) C. JUNGE, *Air Chemistry and Radioactivity 1963* (Academic Press).
 - 7) O. PREINING, M. SEDLACEK, *Fallout-Untersuchungen im Raum von Wien in der Zeit vom 1. September 1961 bis 30. Juni 1963*, Staub 23, 407 (1963).
 - 8) P. PELLERIN, J. P. MORINI, J. DE ZERTUCHA, Rapport SCPRI 99.
 - 9) P. PELLERIN, Rapport SCPRI 98.
- SCPRI = Service central de protection contre les rayonnements ionisants. (France)
- 10) J. HALTER, O. HUBER, Communication interne Bericht 4.
 - 11) A. SITTKUS, L. LEHMANN, *Untersuchungen über die Elementzusammensetzung von Einzelteilchen aus Spaltproduktschwaden*, Naturwissenschaften 15, 352 (1964).
 - 12) A. ADAMS, N. FARLOW, W. SCHELL, *The compositions, structures and origins of radioactive fallout particles*, Geochimica et Cosmochimica Acta 18, 42 (1960).
 - 13) C. GLEIT, W. HOLLAND, *Use of Electrically Excited Oxygen for the low Temperature Decomposition of Organic Substances*, Analytical Chemistry 34, 1454 (1962).