

Histoire et découvertes de la radioactivité atmosphérique naturelle

The Discovery and history of knowledge of natural atmospheric radioactivity

Professeur André RENOUX (*)

RÉSUMÉ

Chacun sait que la radioactivité a été découverte, il y a 100 ans, par le Français Henri Becquerel, à Paris (Février 1896), à la suite de travaux qu'il effectuait sur les rayons X découverts par Röntgen un an plus tôt.

En Juillet et Décembre 1898, les Curie découvraient et séparaient le Polonium et le Radium et, en 1899, Debierne et Giesel isolaient l'actinium. La découverte du Radon, gaz rare radioactif, est due à P. et M. Curie en 1898 et F. Dorn en 1900. Le Thoron (^{220}Rn) était découvert par Rutherford et Owens en 1899-1900, et l'actinon (^{219}Rn) par Debierne et Giesel à peu près au même moment.

Mais, en fait, ce sont les Allemands Elster et Geitel qui, en 1901 environ, furent les premiers à constater que la radioactivité est présente dans l'atmosphère. A partir de là, beaucoup d'études furent réalisées (par Marie Curie, par exemple) mais c'est à partir des années cinquante que les travaux et progrès les plus importants ont été réalisés.

L'accent sera mis sur les pionniers de l'après seconde guerre mondiale, les Evans, Kawano, Wilkening, Israel, Junge, Schuman, Siksnas, Chamberlain, Dyson, Nolan, Bricard, Pradel... Renoux, Madelaine, Blanc, Fontan... jusqu'aux travaux plus récents.

Et finalement, nous atteindrons nos années 90, période qui voit un nouvel essor des recherches sur la radioactivité atmosphérique naturelle, orientées surtout sur l'étude du radon et ses descendants à l'intérieur des locaux. Nous constaterons que dans ce domaine, tout comme dans celui de la radioactivité de l'air extérieur ou celle de l'air des mines d'uranium, la contribution française est d'une particulière importance.

ABSTRACT

Everybody knows that the radioactivity was discovered, 100 years ago, by the Frenchman Henri Becquerel at Paris, in Feb. 1896, stemmed from the discovery of X-rays by Röntgen in the preceding year. In 1899, Rutherford was able to show the existence of α and β rays, and in 1900 Villard showed the presence of a third class of rays, the γ rays.

The discovery of the rare radioactive gas radon is attributed to P. and M. Curie in 1898 and F. Dorn in 1900. Thoron (^{220}Rn) was discovered by Rutherford and Owens in 1899-1900 and Actinon (^{219}Rn) by Debierne and Giesel about the same time. The radon's radiotoxicity was studied in France since 1904 by Bouchard and Balthazard and in 1924 it was formulated the hypothesis that the great mortality observed in the uranium miners of Schneeberg in Germany and Joachimsthal in Czechoslovakia was maybe due to the radon. But, in fact, Elster and Geitel was the first to see that the radioactivity is present in the atmosphere in about 1901. After this date, many investigations were made (M. Curie, for example), but it is during the fifties and, of course, until today that the most numerous works were developed.

In this paper, we speak about the researches of the after second war pioneers : Evans, Wilkening, Kawano, Israel, Junge, Schuman, Bricard... Renoux, Madelaine, Blanc, Fontan, Siksnas, Chamberlain, Dyson, Nolan, etc. and the works developed later. Finally, we reach to the nineties, period where the works are particularly directed in the aim of radon and radon progeny indoor, with in particular, many works effected in France.

1. Introduction

C'est en 1896, par le plus grand des hasards du reste, et alors qu'il travaille sur les rayons X mis en évidence par Röntgen, un an plus tôt, que Henri Becquerel [1] découvre la radioactivité. On peut

encore voir l'emplacement de son laboratoire au Jardin des Plantes, à Paris. Et en 1899, toujours à Paris, les Curie commencent leurs monumentales séries d'expériences. En 1899, Owens [2] et Rutherford [3] découvrent le thoron appelé, à cette époque, « émanation ». La figure 1 montre le dispositif original utilisé par Rutherford.

Et on peut dire que 1900 marque le début de la grande aventure de la radioactivité... et de la radioactivité atmosphérique naturelle. En ce qui concerne cette dernière, nous envisagerons trois périodes successives : 1900-1950, 1950-1980, 1980...

(*) Laboratoire de Physique des Aérosols et de Transfert des Contaminations (LPATC), Faculté des Sciences, Université Paris XII, avenue du Général de Gaulle, 94010 Créteil Cedex.

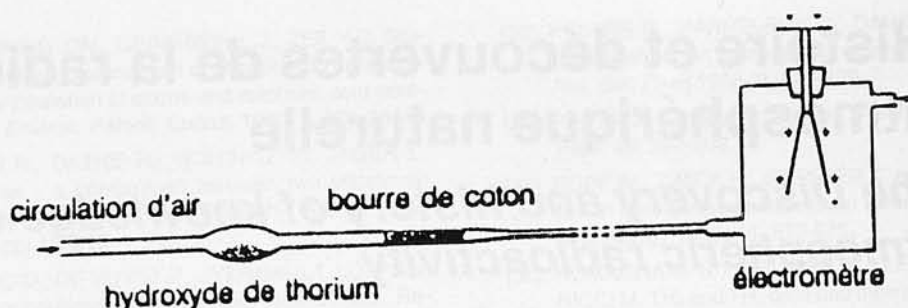


Figure 1.
Le dispositif original de Rutherford.
The original device of Rutherford.

2. De 1900 à 1950

Durant cette période, on observe un parallélisme étroit entre l'ensemble des recherches qui s'amplifient autour de ce tout nouveau phénomène qu'est la radioactivité, et sa conséquence dans l'environnement, la radioactivité atmosphérique naturelle.

Ainsi, en 1901, en étudiant les petits ions atmosphériques et après avoir développé la théorie des ions formulée par J.-J. Thomson en 1898, Elster et Geitel découvrent que la radioactivité est présente dans l'air [4].

En Juillet et Décembre 1898, respectivement, Pierre et Marie Curie [5] séparent deux nouveaux radioéléments, le Polonium et le Radium, dont, maintenant, nous connaissons l'importance vis-à-vis de l'aérosol radioactif naturel. Ces découvertes sont faites à Paris, dans un laboratoire qu'on peut encore voir actuellement, et que le hasard a placé à environ 300 m du Panthéon, où les corps de Pierre et Marie Curie reposent depuis Avril 1995. En 1899, Debierne et Geisel, indépendamment l'un de l'autre, isolent l'Actinium. Et en 1900, F. Dorn et P. et M. Curie [6] isolent le Radon. L'Actinon (^{219}Rn) est découvert par Debierne et Geisel en 1899-1900. Le tableau I indique les dates et les noms des découvreurs des différents radioéléments. Bien entendu, on constate combien grand est le parallélisme entre les recherches de base sur la radioactivité et celles portant sur la radioactivité atmosphérique naturelle. Il ne faut pas oublier non plus que ce début du 20^e siècle est, dans ces domaines, une période de découvertes intenses, avec des compétitions farouches entre différentes équipes de pays différents (France, Grande-Bretagne, Allemagne, principalement). Ceci conduit à une publication scientifique pratiquement tous les quinze jours !

Il est amusant (Tab. II) d'observer l'évolution de l'évaluation du nombre de masse du radon (222) entre 1901 et 1908 et, à cette date, on est encore relativement loin de la bonne valeur. La figure 2 montre la connaissance des éléments liés à la

Tableau I.
Les éléments radioactifs naturels (découvreur et date).
Naturally Radioactive Elements (discover and date).

Série (4 n)		
Elément	Découvreur	Date
Thorium	Mme Curie ; Schmidt	1898
Mesothorium I	O. Hahn	1907
Mesothorium II	O. Hahn	1908
Radiothorium	O. Hahn	1905
Thorium X	Rutherford and Soddy	1899/1900
Thoron	Rutherford and Owens	1899/1900
Thorium B	Rutherford	1904
Thorium C	Rutherford	1904
Série (4 n + 2)		
Elément	Découvreur	Date
Uranium	Becquerel	1896
Uranium X ₁	Crookes	1900
Uranium X ₂	Fajans and Göhring	1913
Ionium	Bolrwood	1907
Radium	Mme Curie	1898
Radon	Mme and P. Curie ; Dorn	1898/1900
Radium B + C	Mme Curie	1899
Radium D	Hoffmann and Strauss	1901
Polonium	Mme Curie	1898
Série (4 n + 3)		
Elément	Découvreur	Date
Acrino-Uranium	Dempster	1935
Uranium Y	Antonoff	1911
Protactinium	Hahn, Soddy, Meitner	1918
Actinium	Debierne ; Geisel	1899
Radioactinium	O. Hahn	1906
Actinium X	Geisel and Godlewsky	1904
Actinium K	Mlle Perey	1939
Actinon	Debierne and Geisel	1899/1900
Actinium B + C	Geiger, Debierne, Brooks and Rutherford	1899/1911

Tableau II.
Historique de la valeur de la masse du Radon.
History of the mass number of the Radon.

Chercheur	Année	Poids moléculaire
Rutherford et Brooks	1901	40 à 100
Curie et Danne	1903	40 à 100
Bumstead et Wheeler	1904	180
Makower	1905	85,5 à 97
Perkins	1908	235

radioactivité atmosphérique naturelle que possède J.-J. Thomson en 1906 [7]. Si on les compare aux valeurs actuelles données par le tableau III [8], on observe des erreurs énormes.

Par exemple, en ce qui concerne les périodes radioactives du ThA, ^{216}Po , 11h au lieu de... 0,145s, celle de l'AcA, ^{215}Po , 36 min. au lieu de $1,83.10^{-3}\text{s}$. Le mot « Radon » n'apparaît pas : il s'appelle « émanation », mais la précision sur sa période est assez bonne. Enfin, pour Thomson, un même radioélément pouvait être émetteur α , β , γ à la fois.

Ainsi, dès 1901, on connaît l'existence d'une radioactivité atmosphérique naturelle. Mais ce n'est qu'en 1903 que Rutherford et Soddy développent leur théorie de la décroissance radioactive montrant, pour chaque radioélément, l'existence d'un paramètre caractéristique, la constante radioactive λ . C'est aussi en 1903 que Rutherford [9] et J.-J. Thomson [10] (mais lui en 1904) prouvent que les rayons α sont des particules chargées positivement en mouvement. La figure 3 montre l'appareillage original de J.-J. Thomson. Et toujours en 1903, H. Becquerel (11) obtient la photographie de la trajectoire des α émis par du bromure de radium dans un champ magnétique. Mais il a fallu attendre 1904 pour que la nature exacte des α soit confirmée par Rutherford et Roy.

Une remarque amusante. Dans son livre de 1906 [7], Thomson indique la date de 1905 pour les expériences de Rutherford (qui fut son élève) (Phil. Mag., 1905, p. 193), omettant de citer ses expériences de 1903, donc antérieures aux siennes !

Dès la fin de 1898, on sait que les rayons β sont des électrons se déplaçant rapidement, et en 1900, Villard montre la présence d'un troisième type de rayonnement radioactif : les rayons ϕ , plus pénétrants que les β mais moins ionisants. Mais en 1911, on ignorait toujours la nature électromagnétique de ces γ et par exemple, J.-J. Thomson sub-

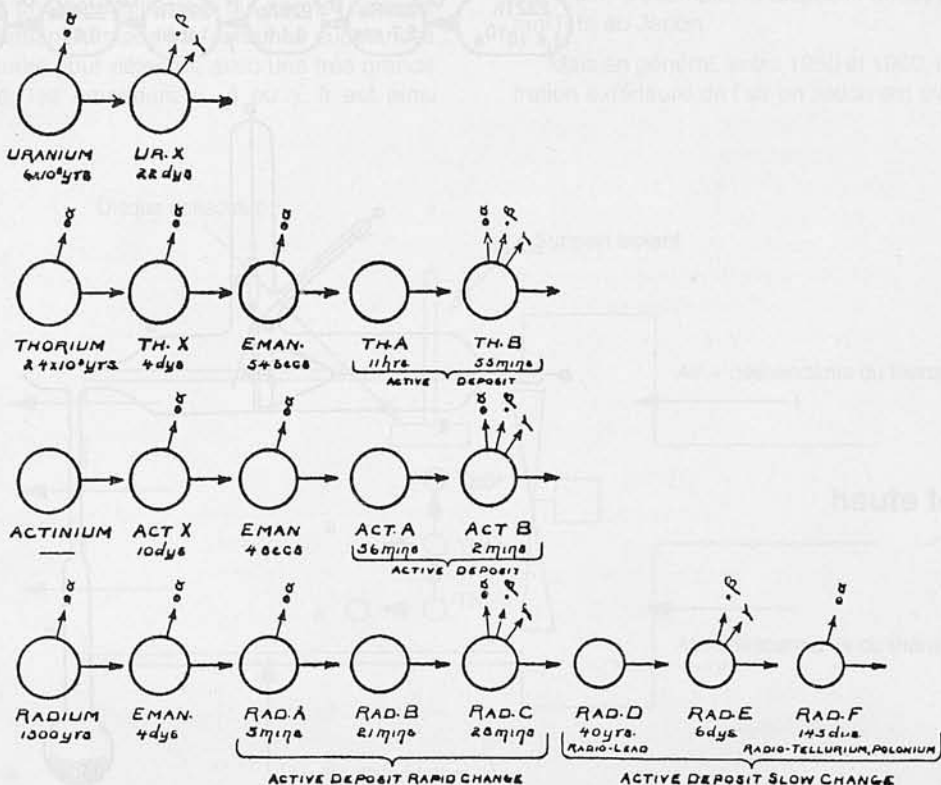


Figure 2.
Les radioéléments naturels vus par Thomson en 1906.

The natural radioelements by Thomson in 1906.

Tableau III.
Les caractéristiques actuelles des trois familles radioactives naturelles.
The actual values concerning the three radon families

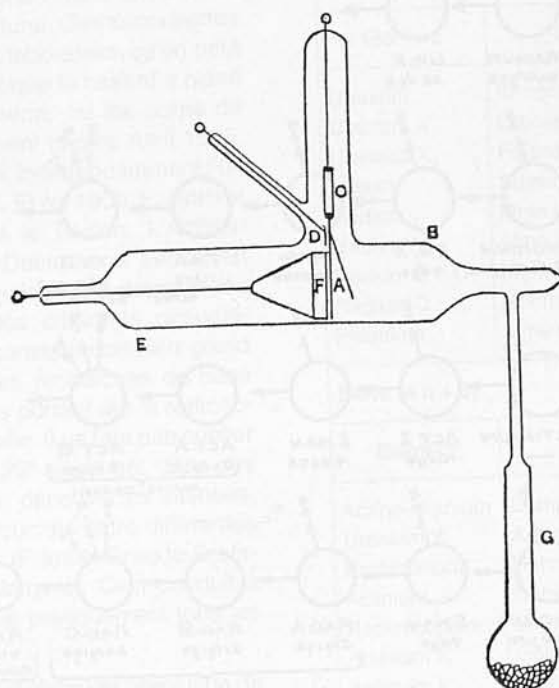
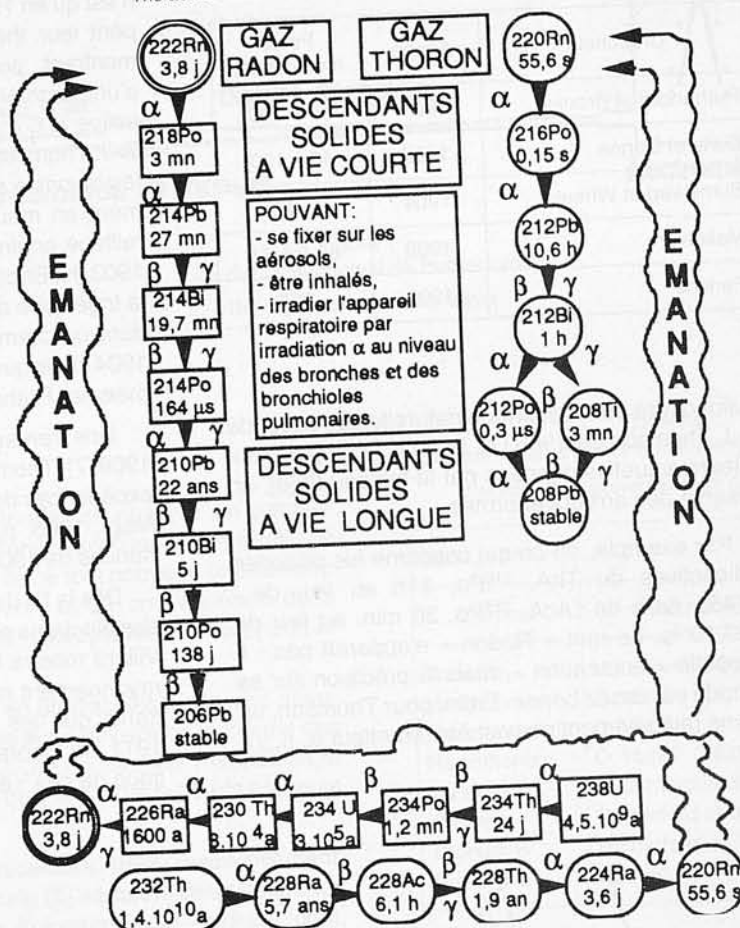


Figure 3.
L'appareil original utilisé par J.-J. Thomson pour montrer la charge électrique positive des α .
The original device used by J.-J. Thomson for to show the positive electrical charge of the α rays.

odorait seulement une certaine analogie entre eux et les rayons Röntgen (les rayons X).

Et c'est seulement en 1932 que Chadwik, reprenant des expériences mal interprétées par F. et I. Joliot-Curie, découvre le neutron qui permet d'expliquer la radioactivité β (celle du RaB, par exemple). En 1930, Pauli prédit l'existence du neutrino.

En fait, en 1930, la présence du radon, gaz noble radioactif, dans l'air est bien connue. Mais les mesures de radon et de thoron dans l'atmosphère et, plus encore, de leurs descendants, sont limitées par la faible sensibilité des mesures, basées en général sur la détection d'ions par un électromètre. Aux Etats-Unis, Aliverti en 1932 [12] et Evans en 1935 [13] développent les premières mesures significatives de concentration du radon dans l'air. En 1939, Evans [14] met au point un appareil mesurant le Thoron (Fig. 4), mais seulement pour les concentrations élevées rencontrées dans les industries raffinant et utilisant des substances radioactives. Dès 1931, Becker [15] montre que le radon est un excellent tracteur des mouvements des masses d'air.

3. De 1950 à 1980

C'est certainement la période la plus productive quant aux découvertes concernant la radioactivité atmosphérique naturelle. En effet, après la seconde guerre mondiale, un nouveau détecteur apparaît : le photomultiplicateur qui permet d'utiliser les scintillations émises par certaines substances fluorescentes pour détecter, avec une très grande sensibilité, les émetteurs α , β ou γ . Il est ainsi

possible de détecter le RaA (^{218}Po) avec des scintillateurs de sulfure de zinc. Et, petit à petit, le photomultiplicateur remplace l'électromètre.

On peut classer les travaux qui se développent durant cette période en deux catégories : ceux portant sur la radioactivité naturelle de l'air extérieur et ceux consacrés à la radioactivité de l'atmosphère des mines d'uranium.

3.1. La radioactivité extérieure naturelle de l'air

En 1950, les caractéristiques essentielles du radon et de ses descendants : période radioactive, masse atomique, énergie des α , β , γ émis, sont relativement bien connues. Et cette année marque le départ de recherches particulièrement attractives et originales portant sur la mesure directe du Radon et du Thoron (^{220}Rn), la détection des ions radioactifs naturels, la distribution granulométrique des descendants du radon, principalement en France, Japon, Etats-Unis, Allemagne, Grande-Bretagne, Suède et Russie.

3.1.1. Mesures directes du Radon (^{222}Rn) et du Thoron (^{220}Rn)

Une des premières méthodes utilisées pour la mesure directe de la concentration du Radon dans l'air utilise le charbon actif, car le radon est adsorbé par un piège de charbon refroidi. La figure 5 montre, à titre d'exemple, le dispositif utilisé par Nakatani [16] au Japon.

Mais en général, entre 1950 et 1960, la concentration extérieure de l'air en radon est évaluée par

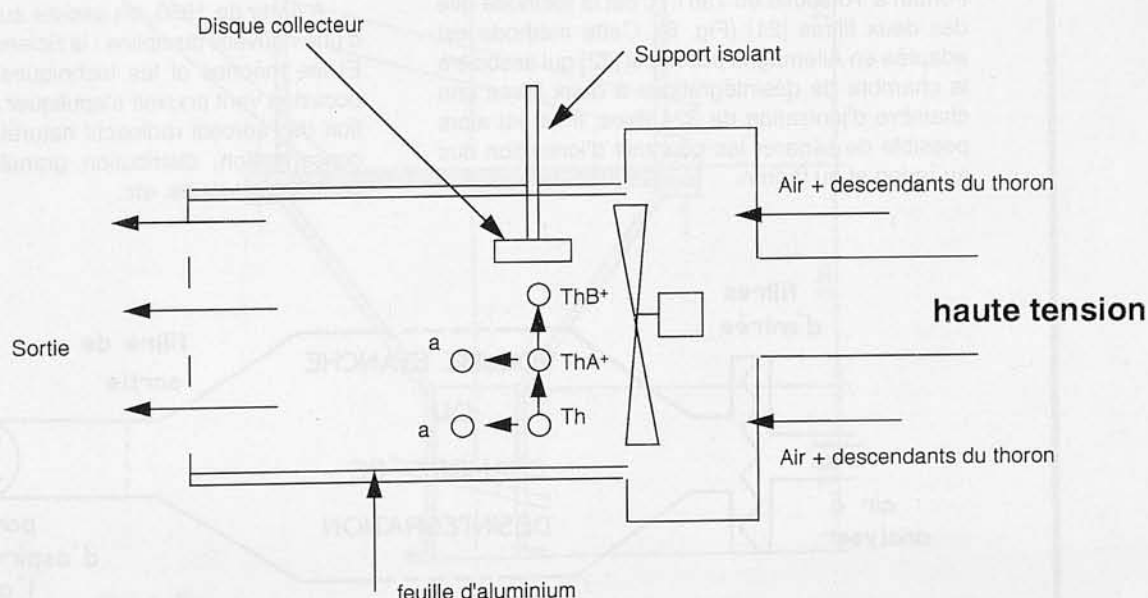


Figure 4.
L'appareil d'Evans.

The Evans apparatus.

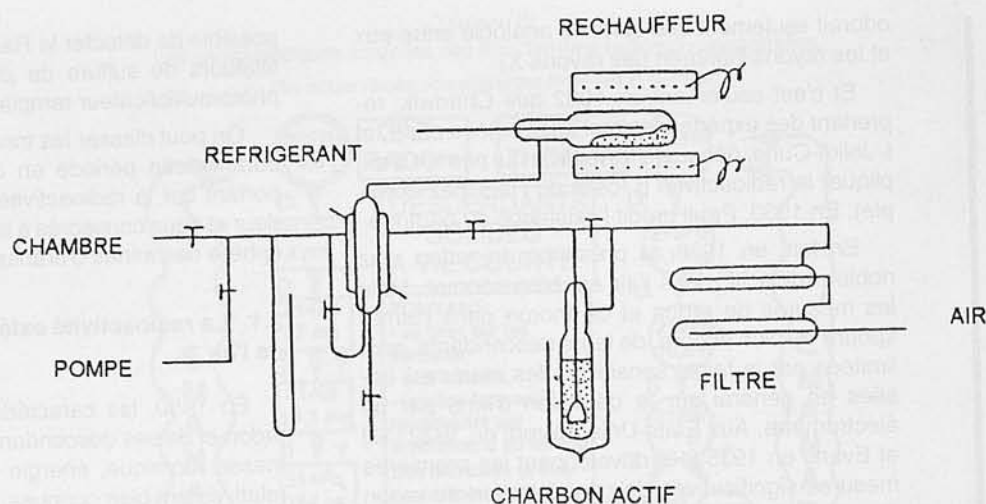


Figure 5.

Le piégeage du radon sur du charbon actif.

The collection of radon by means of activated charcoal.

des méthodes indirectes reposant sur l'hypothèse d'un équilibre radioactif, à tout moment, entre le radon et son dépôt actif. Ainsi, Hess en 1950 [17] et Cotton en 1955 [18] utilisent des chambres d'ionisation basées sur cette hypothèse.

Mais avec l'apparition du photomultiplicateur, il devient très facile de mesurer la radioactivité d'un filtre de très haute efficacité ayant collecté les descendants solides du radon. Cette méthode est utilisée, par exemple, par Wilkening [19] aux Etats-Unis, Renoux [20] en France, et de par de nombreux autres chercheurs.

En fait, les premières mesures directes du radon dans l'atmosphère sont réalisées par Blanc et Fontan à Toulouse en 1961 : c'est la méthode dite des deux filtres [21] (Fig. 6). Cette méthode est adaptée en Allemagne par Israel [22] qui associe à la chambre de désintégrations à deux filtres une chambre d'ionisation de 324 litres. Il lui est alors possible de séparer les courants d'ionisation dus au radon et au thoron.

En 1979, cette technique est perfectionnée, à Brest, par G. Tymen [23] (Fig. 7) qui construit, sur ce principe, un appareil automatique permettant de mesurer la concentration de l'air en radon toutes les trente minutes. La figure 8 montre quelques-uns de ses résultats typiques obtenus à Brest. Bien entendu, ici également, la détection des α émis est faite par une association scintillateur au SZn-photomultiplicateur.

Ainsi, à la fin des années 70, on peut dire que les techniques permettant la mesure directe du radon dans l'air sont parfaitement au point.

3.1.2. Mesure des descendants à vie courte du ^{222}Rn et du ^{220}Rn

A partir de 1950, on assiste au développement d'une nouvelle discipline : la Science des Aérosols. Et les théories et les techniques créées à cette occasion vont pouvoir s'appliquer à la caractérisation de l'aérosol radioactif naturel issu du radon : concentration, distribution granulométrique, propriétés électriques, etc.



Figure 6.

La méthode des deux filtres.

The two filters method.

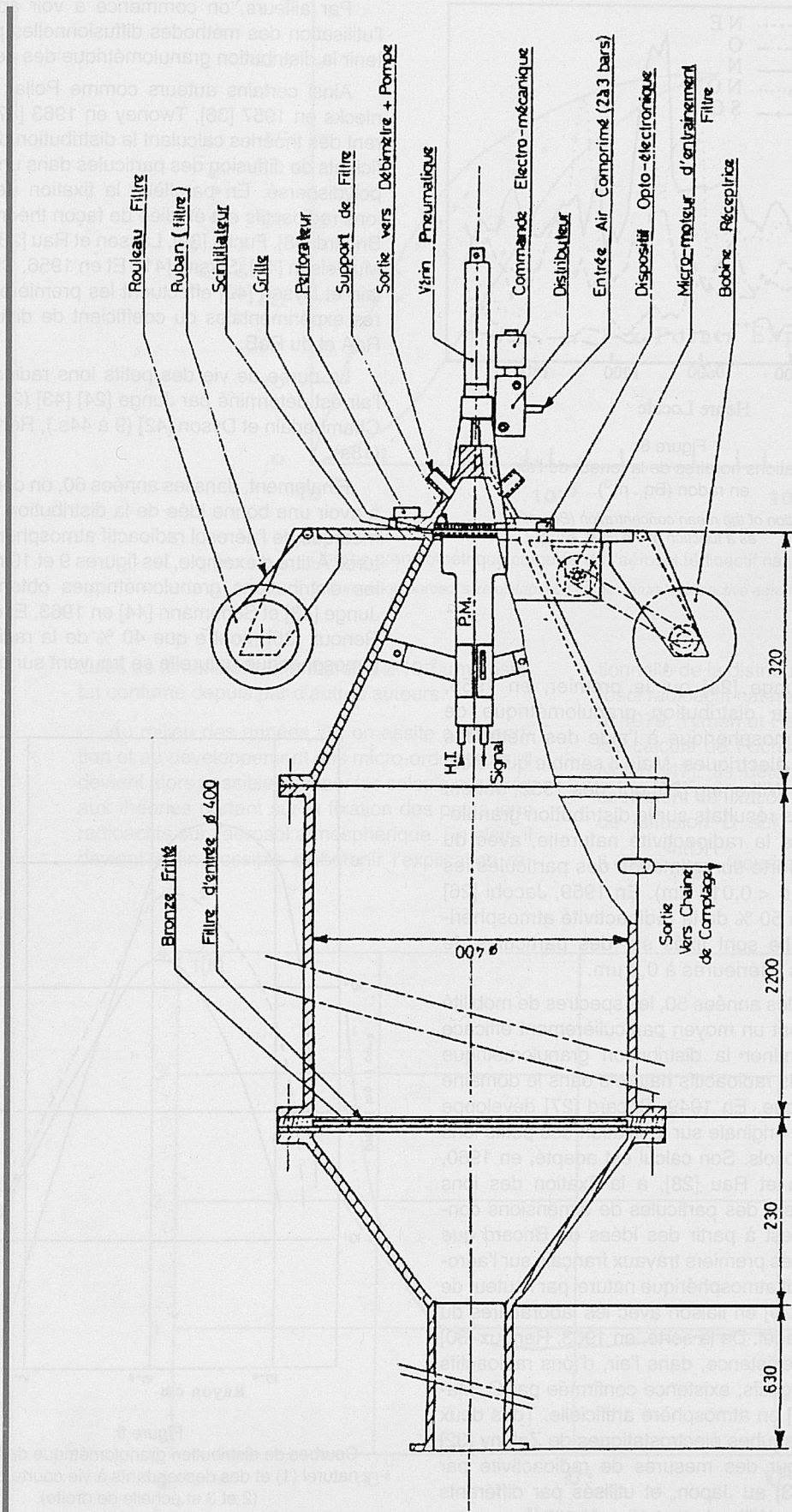


Figure 7.
La chambre de désintégration de G. Tymen.
The G. Tymen desintegration chamber.

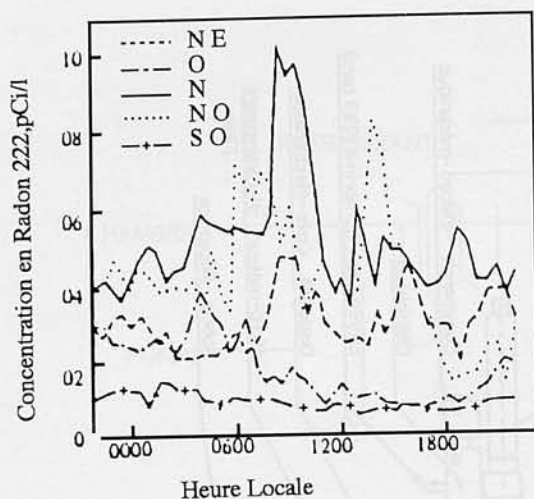


Figure 8.
Variations horaires de la teneur de l'air
en radon ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$).
Variation of the mean concentration ($\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$)
as a function of the time.

C'est Junge [24] qui le premier, en 1955, détermine la distribution granulométrique de l'aérosol atmosphérique à l'aide des méthodes optiques et électriques. Mais il semble que c'est l'Américain Wilkening [25] qui, dès 1952, obtient les premiers résultats sur la distribution granulométrique de la radioactivité naturelle, avec du reste, une forte surestimation des particules les plus fines ($d < 0,015 \mu\text{m}$). En 1959, Jacobi [26] montre que 50 % de la radioactivité atmosphérique naturelle sont fixés sur des particules de dimensions inférieures à $0,2 \mu\text{m}$.

A la fin des années 50, les spectres de mobilité des ions sont un moyen particulièrement efficace pour déterminer la distribution granulométrique des aérosols radioactifs naturels dans le domaine submicronique. En 1949, Bricard [27] développe une théorie originale sur la fixation des petits ions sur les aérosols. Son calcul est adapté, en 1960, par Lassen et Rau [28], à la fixation des ions radioactifs sur des particules de dimensions connues. Et c'est à partir des idées de Bricard que démarrent les premiers travaux français sur l'aérosol radioactif atmosphérique naturel par l'auteur de cet article [29] en liaison avec les laboratoires du CEA de Pradel. De la sorte, en 1963, Renoux [30] découvre l'existence, dans l'air, d'ions radioactifs naturels négatifs, existence confirmée par G. Madelaine [31] en atmosphère artificielle. Tous deux utilisent des tubes électrostatiques de Zeleny [32] adaptés pour des mesures de radioactivité par Kawano [33] au Japon, et utilisés par différents auteurs tels Wilkening et Kawano [34] pour les petits ions, Nakatani [16], Renoux [35] pour les gros ions.

Par ailleurs, on commence à voir apparaître l'utilisation des méthodes diffusionnelles pour obtenir la distribution granulométrique des aérosols.

Ainsi certains auteurs comme Pollak et Metniecks en 1957 [36], Twoney en 1963 [37] élaborent des théories calculant la distribution des coefficients de diffusion des particules dans un aérosol polydispersé. En parallèle, la fixation des petits ions radioactifs est étudiée de façon théorique par Bricard [38], Fuchs [39], Lassen et Rau [28], Holl et Muhleisen [40], Siksha [41]. Et en 1956, Chamberlain et Dyson [42] effectuent les premières mesures expérimentales du coefficient de diffusion du RaA et du RaB.

La durée de vie des petits ions radioactifs de l'air est déterminé par Junge [24] [43] (21 à 80s.), Chamberlain et Dyson [42] (9 à 44s.), Renoux [35] (18s).

Finalement, dans les années 60, on commence à avoir une bonne idée de la distribution granulométrique de l'aérosol radioactif atmosphérique naturel. A titre d'exemple, les figures 9 et 10 montrent les distributions granulométriques obtenues par Junge [43] et Schumann [44] en 1963. Et en 1965, Renoux [35] montre que 40 % de la radioactivité atmosphérique naturelle se trouvent sur des parti-

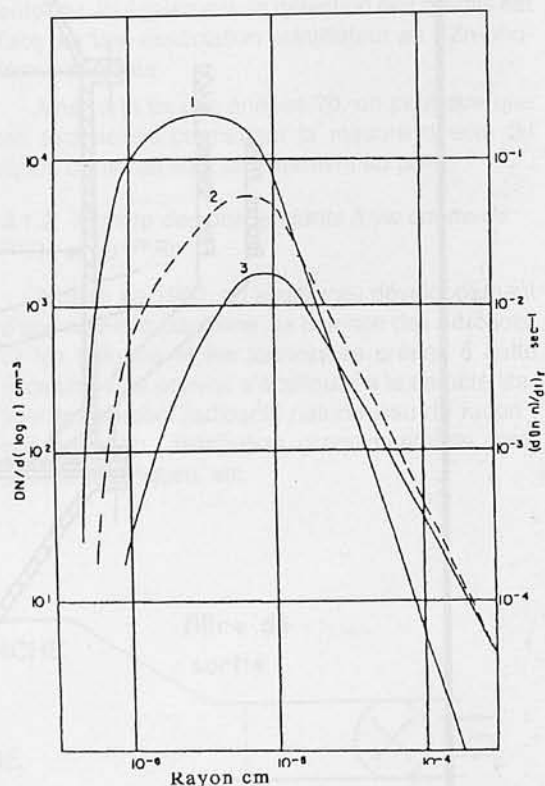


Figure 9.
Courbes de distribution granulométrique de l'aérosol
naturel (1) et des descendants à vie courte du radon
(2 et 3 et échelle de droite).

Natural aerosol size distribution (Curve 1) and the attachment
of radon and thoron decay products (Curves 2 and 3
and scale on the right).

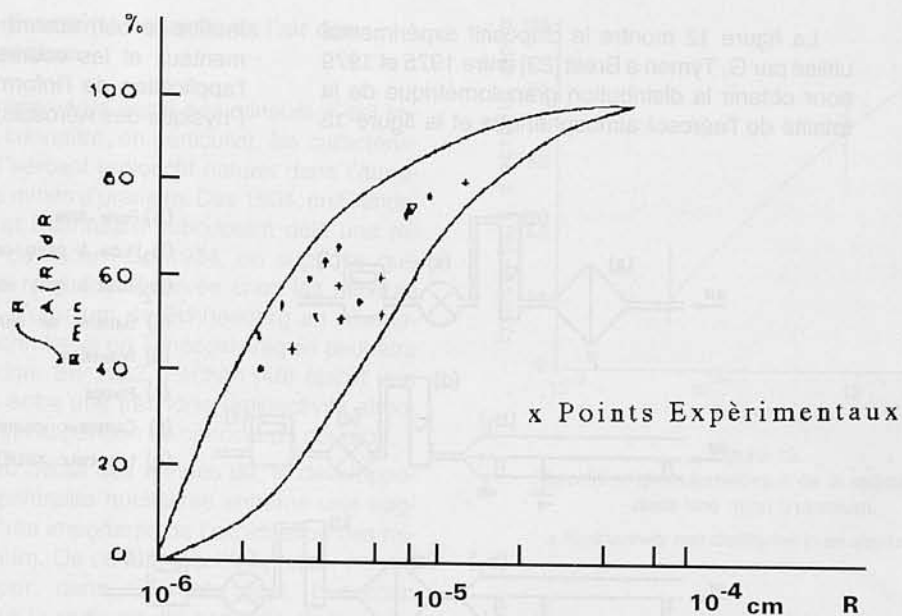


Figure 10.
Courbe granulométrique cumulée de l'aérosol radioactif naturel.
Cumulated aerosol size distribution of the natural radioactive aerosol.

cules de dimensions inférieures à $2 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$, résultat confirmé depuis par d'autres auteurs.

Au milieu des années 70, on assiste à l'apparition et au développement des micro-ordinateurs. Il devient alors possible d'affiner les calculs associés aux théories portant sur la fixation des petits ions radioactifs sur l'aérosol atmosphérique. En clair, il devient enfin possible d'obtenir l'explication ra-

tionnelle de la distribution granulométrique de l'aérosol radioactif naturel. C'est ainsi que, entre 1975 et 1979, Tymen et Renoux [45] peuvent améliorer les calculs de Fuchs [39], Bricard [46], Keefe et Nolan [47]. Ils déterminent la fonction $I(R)$ du coefficient de fixation des petits ions de coefficient de diffusion D sur les particules de rayon R ,

$$\beta(R) = \frac{4\pi DR}{I(R)} \text{ (courbe 1 de la figure 11).}$$

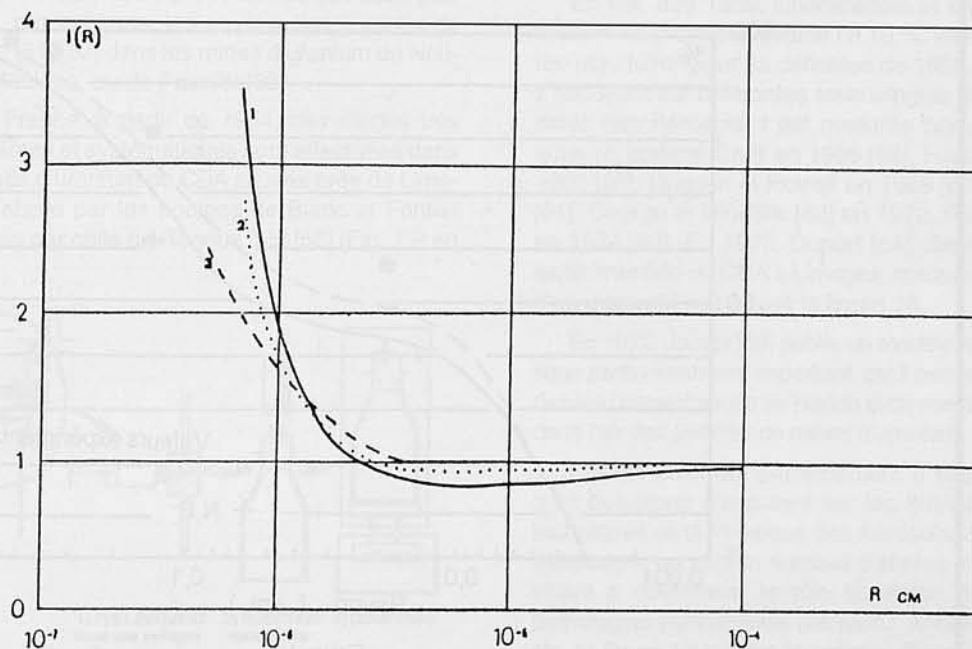


Figure 11.
La fonction $I(R)$.
The $I(R)$ function.

La figure 12 montre le dispositif expérimental utilisé par G. Tymen à Brest [23] entre 1975 et 1979 pour obtenir la distribution granulométrique de la totalité de l'aérosol atmosphérique et la figure 13

montre le bon accord entre les résultats expérimentaux et les courbes théoriques résultant de l'application de l'informatique aux théories de la Physique des Aérosols.

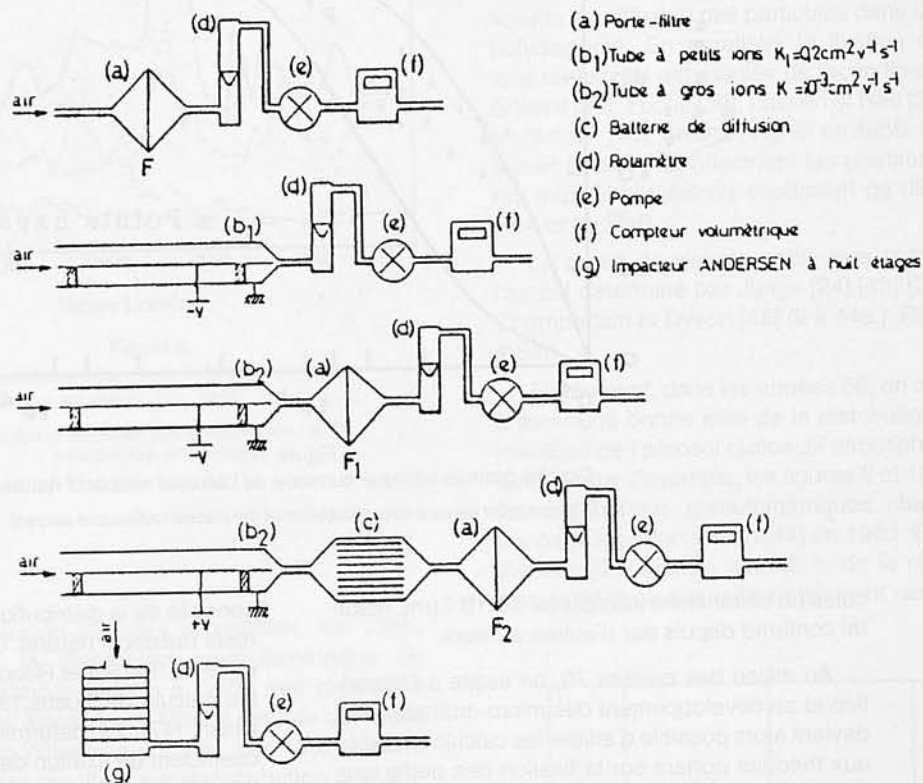


Figure 12.
 Le dispositif expérimental de G. Tymen.
 The G. Tymen experimental device.

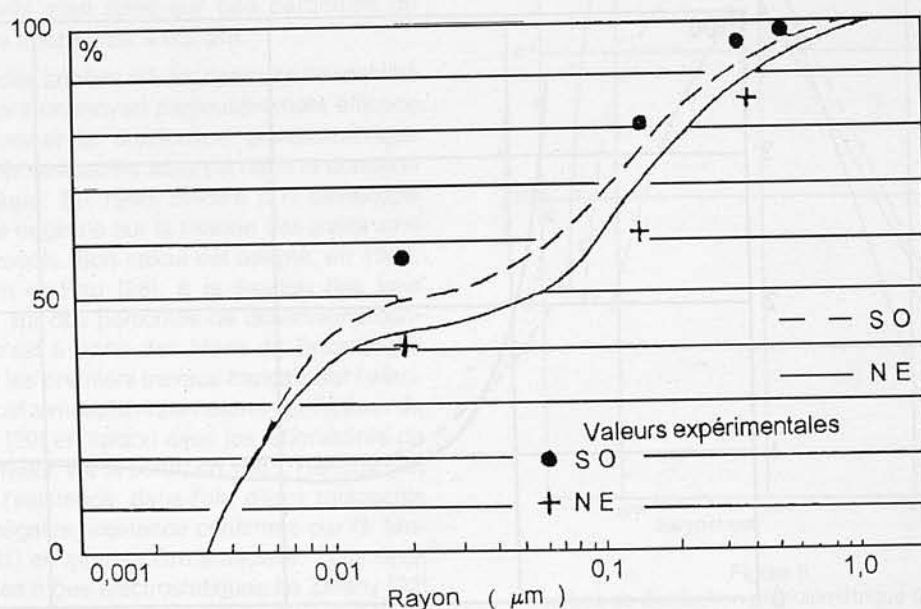


Figure 13.
 Distributions granulométriques théoriques (courbes) et expérimentale (points) de l'activité α des descendants à vie courte du radon ^{222}Rn .
 Theoretical (curves) and experimental (points) distribution of α activity for short lived ^{222}Rn daughters.

3.2. La radioactivité naturelle de l'air des mines d'uranium

Pour préserver la santé des mineurs, il est important de connaître, en particulier, les caractéristiques de l'aérosol radioactif naturel dans l'atmosphère des mines d'uranium. Dès 1904, en France, Bouchard et Balthazard subodorent déjà une radiotoxicité du radon. En 1924, on suppose que l'importante mortalité observée chez les mineurs des mines d'uranium de Schneeberg en Allemagne et Joachimsthal en Tchécoslovaquie peut être due au radon. En 1932, Pirchan [48] établit une corrélation entre une très forte radioactivité atmosphérique et l'apparition de cancers du poumon.

Enfin, au début des années 60, le développement des centrales nucléaires entraîne une augmentation très importante de l'exploitation des mines d'uranium. De ce fait, à cette époque, on voit se développer, dans différents pays, beaucoup d'études sur la radioactivité naturelle de l'air des mines d'uranium. De sorte que différentes méthodes de mesure du radon dans l'air sont mises au point. C'est ainsi que, en France, Pradel, en 1954 [49], utilise la méthode des fioles scintillantes (Fig. 14). On voit aussi apparaître la méthode continue de la chambre de désintégration basée sur les calculs de Thomas [50]. Tout cela entraîne l'apparition de nouveaux paramètres : le « Working Level » (W.L.) et, plus tard, l'Energie Alpha Potentielle (EAP), basés tous les deux sur l'énergie des α émis par les descendants à vie courte du radon.

De la sorte, dans les mines d'uranium de différents pays, on voit se développer un certain nombre de recherches portant sur la concentration de l'air en radon et en thoron, la distribution granulométrique des aérosols provenant de ces deux gaz. Citons, par exemple, les travaux des équipes de George [51] [52] dans les mines d'uranium du Nouveau Mexique, ou de Palmier [53].

En France, à partir de 1954, des études très importantes et systématiques sont effectuées dans les mines d'uranium du CEA situées près de Limoges, d'abord par les équipes de Blanc et Fontan [54], puis par celle de Renoux [55] [56] (Fig. 15) en

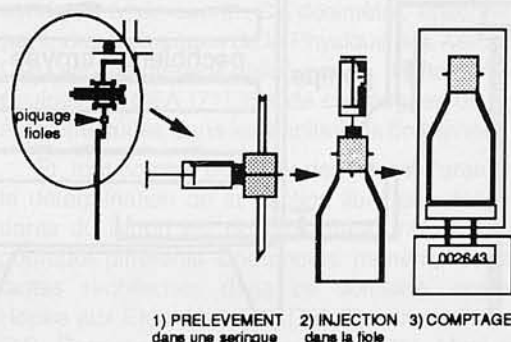


Figure 14.
La méthode des fioles scintillantes.

The scintillating flask method.

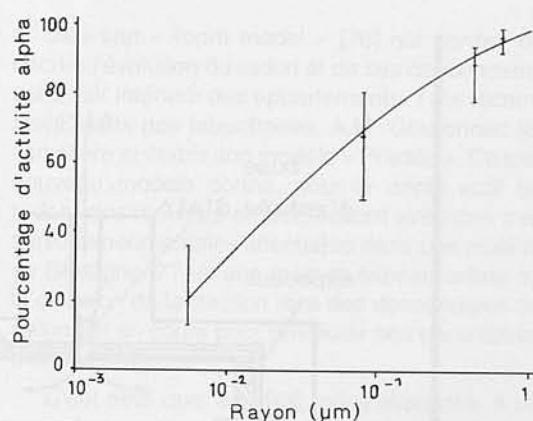


Figure 15.
Répartition granulométrique de la radioactivité α dans une mine d'uranium.

α Radioactivity size distribution in an uranium mine.

liaison, bien entendu, avec les chercheurs du CEA dirigés par J. Pradel et P. Zettwoog. Ces travaux bénéficient de la mise à disposition d'une galerie de mine entière dans laquelle se déroulent les expériences.

En 1959, l'ICRP [57] définit la concentration maximale admissible du radon (C.M.A.) par la relation : $CMA = \frac{3 \cdot 10^{-6}}{1 + 1\,000 f}$ $\mu\text{Ci} \cdot \text{cm}^{-3}$ qui montre,

dans le domaine de la prévention du risque Radon, l'importance de la fraction libre f du Radon. Rappelons qu'on appelle ainsi la proportion de particules ultrafines (quelques nanomètres) issues du radon (essentiellement du RaA , ^{218}Po) non encore fixées sur l'aérosol atmosphérique.

En fait, dès 1956, Chamberlain et Dyson [42] avaient les premiers, évalué f à 10 %, valeur adoptée par l'ICRP pour sa définition de 1959. Ensuite, s'appuyant sur différentes technologies de la Physique des Aérosols, f est mesurée par plusieurs auteurs, comme Craft en 1966 [58], Fusamara en 1967 [59], Duggan et Howell en 1969 [69], James [61], George et Hincliffe [62] en 1972, Raghavaya en 1974 [63]. En 1975, Duport [64], dans la mine expérimentale du CEA à Limoges, mesure f à l'aide d'un dispositif illustré par la figure 16.

En 1972, Jacobi [65] publie un modèle mathématique particulièrement important, car il permet de prédire les concentrations du Radon et de son dépôt actif dans l'air des galeries de mines d'uranium.

Et bien entendu, parallèlement à ces travaux dont beaucoup s'appuient sur les théories et les techniques de la Physique des Aérosols, on voit se développer un certain nombre d'études médicales visant à déterminer le rôle du radon dans des pathologies pulmonaires (cancers). A titre d'exemple, la figure 17 montre le premier dispositif utilisé en 1963 dans les mines d'uranium du CEA pour l'inhalation du Radon (mesuré par la méthode des fioles scintillantes), par des rats.

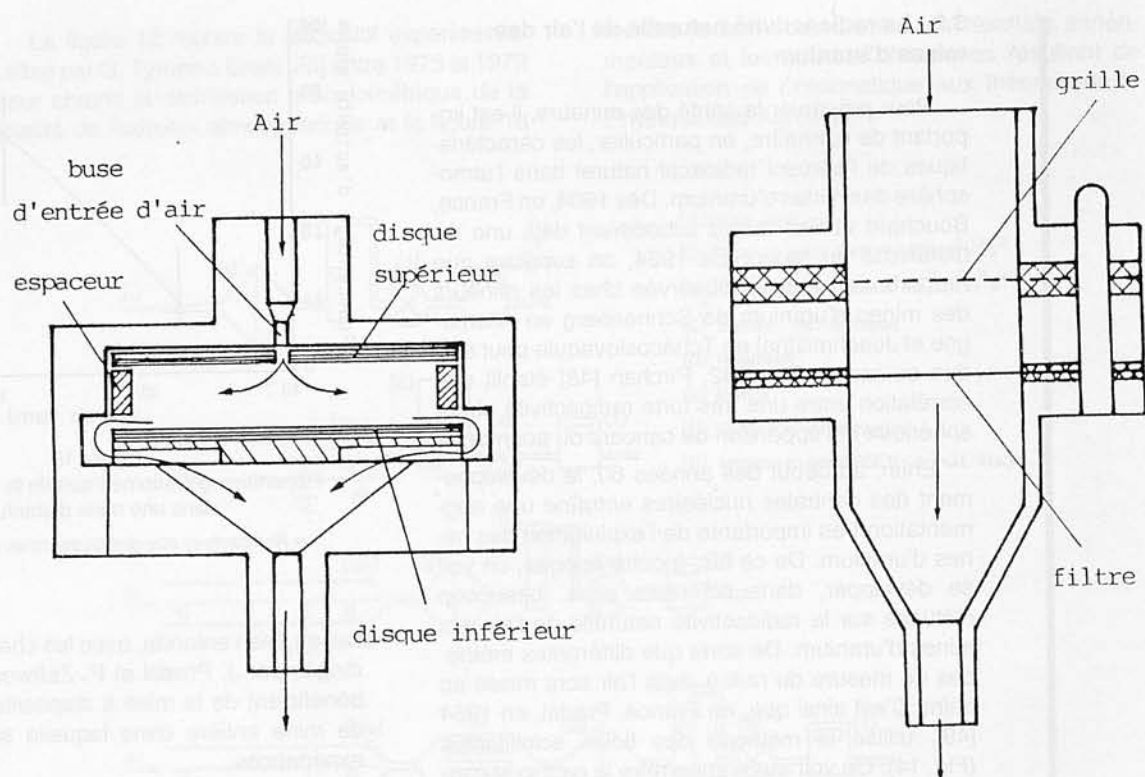


Figure 16.

Appareils utilisés pour mesurer la fraction libre du Radon.

Device for the measurement of the radon unattached fraction in uranium mines.

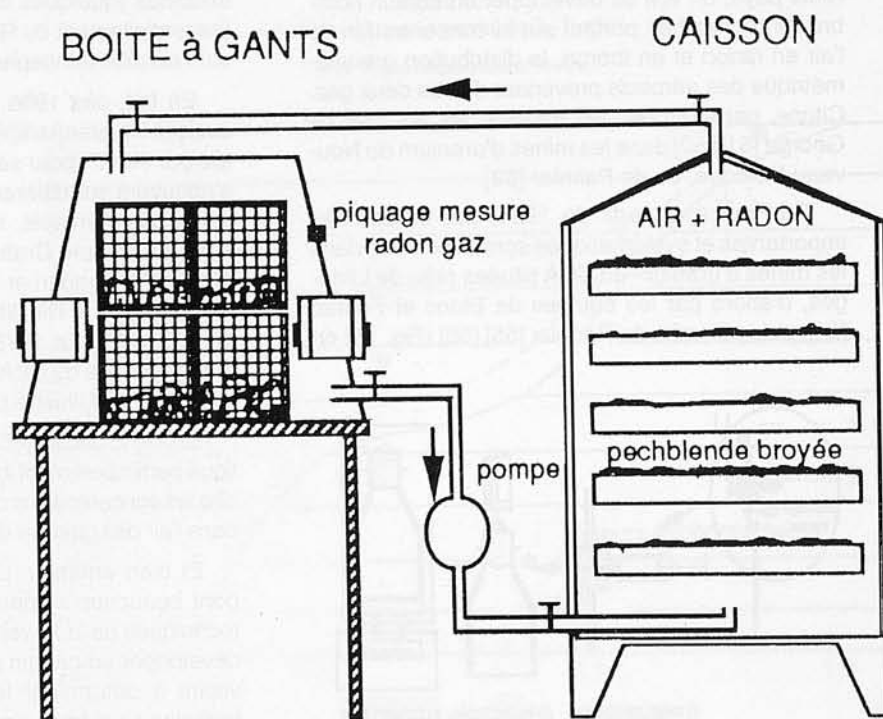


Figure 17.

The first french CEA radon inhalation device.

The first Radon inhalation by rats CEA device.

4. De 1980 à aujourd'hui

A partir des années 70, on assiste à une diminution progressive des recherches portant sur la radioactivité atmosphérique naturelle. Ainsi, en 1965, au Symposium CACR sur la Chimie de l'Atmosphère, la Circulation et les Aérosols qui se tient à Visby en Suède, 40 % des communications portent sur ce thème. Mais en 1977, au Congrès identique de Galway en Irlande, il n'y avait plus qu'une seule communication (par notre équipe, du reste) sur ce sujet, sur une centaine de présentations.

Or, au début des années 80, on voit apparaître un nouveau phénomène : la pollution intérieure. En effet, du fait de la crise mondiale de l'énergie générée par le choc pétrolier du milieu des années 70, des efforts considérables ont été faits, surtout dans les pays occidentaux, pour améliorer l'isolation thermique des appartements et des immeubles. Mais cette isolation, qui conduit à confiner les locaux d'habitation, a pour effet d'augmenter leur pollution interne [66], et, entre autre, le risque radon. Et c'est ainsi que, du fait de très fortes concentrations en radon mesurées dans certaines habitations (par exemple, plus de 10 000 Bq.m⁻³ dans certaines pièces, et jusqu'à 100 000 Bq.m⁻³ dans certaines caves de Hongrie [67]. Rappelons que la valeur moyenne à l'intérieur est de l'ordre de 50 à 60 Bq.m⁻³ et de 4 à 5 Bq.m⁻³ à l'extérieur), on pouvait craindre pour la santé des habitants [68]. C'est pourquoi, à partir de 1980, beaucoup de pays se sont intéressés au problème du radon et ses descendants à vie courte, confirmant le fait que les concentrations internes sont au moins dix fois plus fortes que les concentrations externes. Du fait que l'Homme passe plus de temps à l'intérieur qu'à l'extérieur, il risque de se trouver exposé à des doses d'irradiation relativement élevées.

Et naturellement, on s'est alors appuyé sur certaines des technologies utilisées dans les mines d'uranium pour aborder ce nouveau problème. Ainsi, à la fin des années 70, le CEA développe un dosimètre alpha basé sur la détection solide des traces par le nitrate de cellulose [69], qui permet de mesurer la teneur de l'air en radon et en ses descendants à vie courte. Ce dosimètre, étalonné à partir des techniques de la Physique des Aérosols [70], est maintenant utilisé par G. Tymen et les équipes du CEA [71] lors de campagnes de mesure effectuées dans les habitations bretonnes.

Et, tout comme pour l'air des mines d'uranium, la détermination de la fraction libre des descendants du radon est du plus grand intérêt. C'est pourquoi différents Chercheurs mènent d'importantes recherches dans ce domaine, comme Hopke aux Etats-Unis [72] [73], Tymen en France [74], Porstendorfer en Allemagne [75], MacLaughlin en Irlande, etc.

De la même façon, Porstendorfer adapte le modèle de Jacobi établi pour les mines d'uranium

et crée son « room model » [76] qui permet de décrire l'évolution du radon et de ses descendants dans l'air intérieur des appartements. Très récemment, dans nos laboratoires, A.M. Gouronnec [8] l'améliore et établit son modèle « Praddo ». Ce tout nouveau modèle donne, pour le dépôt actif du radon, des résultats en bon accord avec des mesures expérimentales effectuées dans une maison de Bretagne [77] et une mesure expérimentale de la diffusion de la fraction libre des descendants du radon est en cours pour améliorer ses paramètres d'entrée [78].

C'est ainsi que, en 1996, nous assistons, à un nouvel essor des recherches liées à la radioactivité atmosphérique naturelle. A nouveau, d'importants congrès s'intéressent à ce domaine (plus de 500 participants à l'« International Symposium » ou the Natural Radiation Environment NRE VI de Montréal en Juin 1995), prouvant que ce phénomène, découvert au début du 20^e siècle, suscite le même intérêt à l'aube du second millénaire. Et on s'aperçoit que, de Becquerel à A.M. Gouronnec, la contribution de la France a été particulièrement importante et fructueuse.

Bibliographie

- [1] BECQUEREL H. *C.R. Ac. Sc.*, Paris, 122, 1896, 765.
- [2] OWENS D. *Phil. Mag.*, 5^e série, 48, 1899, 360.
- [3] RUTHERFORD E. *Phil. Mag.*, 5^e série, 49, 1900, 161.
- [4] ELSTER J., GEITEL H. Weitere Versuche über die Elektrizität snerstruug in abgeschlossenen luftmengen. *Physi. Z.*, 1901, 560-563.
- [5] CURIE P., CURIE M., BÉMONT M. *C.R. Ac. Sc.*, Paris, 1898, 1515-1518.
- [6] CURIE P., CURIE M. Rapports présentés au Congrès International de Physique, t. III, 1900, 108-112.
- [7] THOMSON J.-J. *Conduction of Electricity through gases*, Cambridge, 1906.
- [8] GOURONNEC A.-M. Modélisation et étude expérimentale du comportement du radon et de ses descendants dans une enceinte confinée. Application à une habitation. *Thèse Paris XII*, Rapport CEA R 5695, 1995.
- [9] RUTHERFORD E. *Phil. Mag.*, 6^e série, t. 5, 1903, 177.
- [10] THOMSON J.-J. *Proc. Cambridge Phil. Soc.*, t. 13, 1904, 49.
- [11] BECQUEREL H. *C.R. Ac. Sc.*, Paris, t. 5, 1903, 177.
- [12] ALIVERTI C. Measurement of atmospheric radioactivity by flow method. *Nuovo Cimento*, 9, 1932, 313-327.
- [13] EVANS R.D. Apparatus for the determination of minute quantities of radium, radon and thoron in solids and gases. *Rev. Sci. Inst.*, 6, 1935, 99-112.
- [14] EVANS R.D., GOODMAN C. Determination of the Thoron content of air and its bearing on lung cancer hazards in industry. *Journal of Ind. Hyg. and Toxicology*, vol. 22, n° 3, 1940, 89-99.

- [15] BECKER F. Messungen des Emanationsgehaltes der luft in Frankfurt und am Taunus Observatorium. *Gerl. Beitr. Geophys.*, 42, 1934, 365-384.
- [16] NAKATANI S. *Planetary Electrodynamics*, Vol. 1, 1969, 173-176.
- [17] HESS V.H. Radon Thoron and their decay products in the atmosphere. *J. Atmos. Terr. Phys.*, 3, 1950, 172-178.
- [18] COTTON E.S. Diurnal variations in natural atmospheric radioactivity. *J. Atmos. Terr. Phys.*, 7, 1955, 90-98.
- [19] WILKENING M.H. Daily and annual courses of natural atmospheric radioactivity. *J. Geophys. Research*, 64, 1959, 521-526.
- [20] RENOUX A. Noyaux de condensation radioactifs électriquement neutres et répartition granulométrique de la radioactivité fixée par les aérosols naturels. *Journ. Rech. Atm.*, Vol. 1, n° 4, 1963, 197-207.
- [21] FONTAN J., BLANC D., BONNAFOUS M., BOUVILLE A. Dosage du Radon et du Thoron contenus dans l'air atmosphérique, application à l'étude de l'équilibre radioactif entre ces gaz et leurs descendants. *Journ. Physique Rad.*, 22, 1961, 179-181.
- [22] ISRAEL H., ISRAEL G.W. A new method of continuous measurements of Radon and Thoron in the atmosphere. *Tellus*, 18, n° 2-3, 1966, 557-565.
- [23] TYMEN G. Répartition granulométrique de l'aérosol naturel et des particules radioactives issues du radon, en atmosphère maritime et urbaine peu polluée. *Thèse Univ. Brest*, Rapport CEA, R 4965, 1979.
- [24] JUNGE C. The size distribution and aging of natural aerosol as determined from electrical and optical data on the atmosphere. *Journ. Met.*, 12, 1955, 13-25.
- [25] WILKENING M.H. Natural radioactivity as a tracer in the sorting of aerosols according to mobility. *Rev. Sci. Instr.*, 23, 1952, 13-16.
- [26] JACOBI W., SCHRAUB A., AURAND K., MUTH H. Über das Verhalten der Zerfallsprodukte des Radons in der Atmosphäre. *Beitr. Phys. Atmosphäre*, 31, 1959, 244-257.
- [27] BRICARD J. L'équilibre ionique de la basse atmosphère. *J. Geophys. Res.*, 54, 1949, 39-52.
- [28] LASSEN L., RAU D. Die Anlagerung radioactiver atome an aerosol. *Z. Physik*, 160, 1960n 504-519.
- [29] BRICARD J., PRADEL J., RENOUX A. La teneur de l'air en petits et gros ions radioactifs. *Geofisica pura e applicata*, 50, fasc. III, 1961, 235-242.
- [30] RENOUX A. Etude de la charge des ions radioactifs et de leur fixation sur les aérosols atmosphériques. *C.R. Ac. Sc.*, Paris, 256, 1963, 278-281.
- [31] MADELAINE G. Fixation sur les aérosols des descendants des gaz radioactifs naturels. Note CEA, 489, 1964.
- [32] ZELENY J. The velocity of ions produced in gases by Röntgen Rays. *Phil. Trans. Roy. Sc.*, A. 195, 1900, 193-224.
- [33] KAWANO M. The coefficient of eddy diffusivity estimated from the atmospheric electricity. *J. Met. Soc. Japan*, 35, 1957, 339-344.
- [34] WILKENING M., KAWANO M., LANE C. Radon daughter ions and their relation to some electrical properties of the atmosphere. *Tellus*, 18, n° 2, 1966, 679-685.
- [35] RENOUX A. Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. *Thèse Fac. Sc.*, Paris, Rapport CEA-R 2771, 1965.
- [36] POLLAK L.W., METNIEKS A.L. On the determination of the diffusion coefficient of heterogenous aerosols by the dynamic method. *Geof. pura e appl.*, 37, 1957, 183-190.
- [37] TWOMEY S. The determination of aerosol size distributions from diffusional decay measurements. *J. Franklin Inst.*, 275, 1957, 121-138.
- [38] BRICARD J., PRADEL J., RENOUX A. Equilibre ionique et spectre granulométrique des aérosols naturels. Application aux ions radioactifs. *Ann. Geop.*, 18, 1962, 384-387.
- [39] FUCHS N.A. On the stationary charge distribution on aerosol particles in a bipolar ionic atmosphere. *Geof. pura e appl.*, 56, 1963, 185-193.
- [40] HOLL W., MUHLEISEN R. Eine neue Methode zur Messung der elektrischen Raumladungsdichte der luft. *Geof. pura e appl.*, 22, 1952, 3-8.
- [41] SIKSNA R. The recombination or combination time in expressions for volume recombination and combination of air ions and other aerosol particles. *Tellus*, 18, n° 2-3, 1963, 619-622.
- [42] CHAMBERLAIN A.C., DYSON E.D. The dose to the trachea and bronchi from the decay products of radon and thoron. *Brit. J. Radiol.*, 29, 1956, 317-325.
- [43] JUNGE C. Air Chemistry and radioactivity. *Academic Press*, 1963.
- [44] SCHUMANN G. Condensation nuclei studied by means of radioactivity. *Journ. Rech. Atm.*, 1, n° 3, 1963, 145-150.
- [45] TYMEN G., RENOUX A. Calcul des coefficients de fixation des petits ions positifs en atmosphère bipolaire symétrique. *Chemosphere*, n° 7, 1977, 393-400.
- [46] BRICARD J. Problems of atmospheric and space electricity, *Elsevier*, 1965.
- [47] KEEFE D., NOLAN P.J., RICH T. Charge equilibrium in aerosol according to the Boltzmann Law. *Proc. Roy. Irish. Acad.*, 60, 1959, 27-45.
- [48] PIRCHAN A., SIKL H. Cancer of the lung in the miners of the Jachymov. *Am. J. Cancer*, 16, 1932, 681-722.
- [49] PRADEL J. La radioactivité dans les mines d'uranium. Rapport CEA n° 13, 1955.
- [50] THOMAS J.W., LE CLARE P.C. A study of the two filter method for radon 222. *Health Phys.*, 18, 1970, 113-122.
- [51] GEORGE A.C., BRESLIN A.J. Deposition of radon daughters in human exposed to uranium mine atmospheres. *Health Phys.*, 17, 1969, 115-124.
- [52] GEORGE A.C., HINCHLIFFE L., SLADOWSKI R. Size distribution of radon daughter particles in uranium mine atmospheres. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 36, 1975, 484-490.

- [53] PALMER H.E., PERKINS R.W., STEWART B.O. The distribution and deposition of radon daughters attached to dust particles in the respiratory system of human exposed to uranium mines atmospheres. *Health Phys.*, 10, 1964, 1129-1135.
- [54] BLANC D., FONTAN J., CHAPUIS A., BILLARD F., MADELAINE G., PRADEL J. Dosage du Radon et ses descendants dans une mine d'uranium. Répartition granulométrique des aérosols radioactifs. Symposium on Instruments and Technics for the Assessment of Airborne Radioactivity in Nuclear Operations, IAEA, Vienne, 1967, 229-238.
- [55] RENOUX A., BARZIC J.Y., MADELAINE G., ZETWOOOG P. Quelques caractéristiques de l'air d'une mine d'uranium. *Nuclear Technology*, 37, n° 3, 1978, 1040-1055.
- [56] RENOUX A., MADELAINE G., ZETWOOOG P. Données actuelles sur la composante radioactive de la pollution de l'air dans les mines d'uranium. *Radio-protection*, 17, n° 3, 1982, 163-177.
- [57] ICRP Report of committee II on permissible dose for internal radioactivity, Pergamon Press, Oxford, 1959.
- [58] CRAFT B.F., OSER J.L., NORRIS F.W. A method for determining relative amounts of combined and uncombined radon daughter activity in underground uranium mines. *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, 27, 1966, 154-159.
- [59] FUSAMARA N., KUROSAWA R., MARUYAMA M. Determination of f value in uranium mine air. Symposium on Instruments and Technics for the Assessment of Airborne Radioactivity in Nuclear Operations. IAEA, Vienne, 1967, 213-227.
- [60] DUGGAN M.J., HOWELL D.M. The measurement of the unattached fraction of airborne RaA. *Health Phys.*, 17, 1969, 423-427.
- [61] JAMES A.C., BRADFORD G.F., HOWELL D.M. Collection of unattached RaA atoms using wire gauze, *J. Aerosol Sci.*, 3, 1972, 243-254.
- [62] GEORGE A.C., HINCLIFFE L. Measurement of uncombined radon daughters in uranium mines. *Health Phys.*, 23, 1972, 791-803.
- [63] RAGHAVAYA M., JONES J.H. A wire screen filter paper combination for the measurement of fraction of unattached daughter atoms in uranium mines. *Health Phys.*, 26, 1974, 417-430.
- [64] DUPORT P., MADELAINE G., RENOUX A. Mesure de la fraction libre présente dans l'air d'une mine d'uranium, laboratoire Chemosphere, Vol. 4, 5, 1975, 283-288.
- [65] JACOBI W. Activity and potencial alpha energy of 222 radon and 220 radon daughters in different air atmospheres. *Health Phys.*, Vol. 22, 1972, 441-450.
- [66] VIALA A., Aspects généraux de la pollution de l'air à l'intérieur des locaux. *Poll. Atm.*, n° 134, 1992, 6-10.
- [67] TOTH E., BOROS D., SAMUELSSON L., DEAK F., MARX G. *Physica Scripta, Swedish Roy. Ac.*, 50, 6, 1994, 760-771.
- [68] RANNOU A. Contribution à l'étude du risque lié à la présence du radon 220 et du radon 222 dans l'atmosphère des habitations. *Thèse Univ. Brest*, Rapport CEA R 5378, 1987.
- [69] DUPORT P., CHAPUIS A.M., PRADEL J. Appareil individuel pour la dosimétrie des descendants du radon. IAEA, Colloque Int. sur les progrès du contrôle radiologique aux fins de radioprotection, 1978, 108-112.
- [70] MOUDEN A., RENOUX A., MADELAINE G. Etude expérimentale du comportement d'un dosimètre α vis-à-vis de certains types d'aérosols. Dans Solid State nuclear track detectors, Pergamon Press, 1980, 633-637.
- [71] TYMEN G., ROBE M.C., RANNOU A. Measurement of aerosol and radon daughters in five radon houses, *Radiat. Prot. Dosim.*, Vol. 45, 1992, 319-322.
- [72] HOPKE P.K. A critical review of measurements of the unattached fraction of radon decay products. Technical rep. series of the US department of Energy, 1990.
- [73] HOPKE P.K. Use of electrostatic collection of ^{218}Po for measuring Rn. *Health Phys.*, 57, 1989, 39-42.
- [74] KEROUANTON D., TYMEN G., BOULAUD D. Use of an annular diffusion channel for a time integrated measurement of the unattached fraction of radon 222 progeny. *J. Aerosol. Sc.*, Vol. 25, suppl. 1, 1994, 249-250.
- [75] REINEKING A., PORSTENDORFER J. Unattached fraction of short lived Rn decay products in indoor and outdoord environments : an improved single-screen method and results. *Health Phys.*, Vol. 58, 6, 1990, 715-727.
- [76] PORSTENDORFER J., WICKE A., SCHRAUB A. The influence of exhalation, ventilation and deposition processes upon the concentration of radon and thoron and their decay products in room air. *Health Phys.*, Vol. 34, 1978, 465-473.
- [77] GOURONNEC A.M., GOUTELARD F., TYMEN G., MONTASSIER N., BOULAUD D., RENOUX A. Radon and radon decay products behaviour in a house : comparison between modelling and measurements. *J. Aerosol Sc.*, Vol. 25, suppl. 1, 1994, 73-74.
- [78] MALET J., MONTASSIER N., BOULAUD D., RENOUX A. Diffusion of radon daughter in laminar tube flow. *J. Aerosol Sc.*, Vol. 26, suppl. 1, 1995, 325-326.