

Abteilung Strahlenschutz
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
des Landes Nordrhein-Westfalen

**Sur la proportion des produits de filiation du thoron dans
l'activité des aérosols de l'air à proximité du sol et mesures
comparatives au moyen d'appareils de différente fabrication**

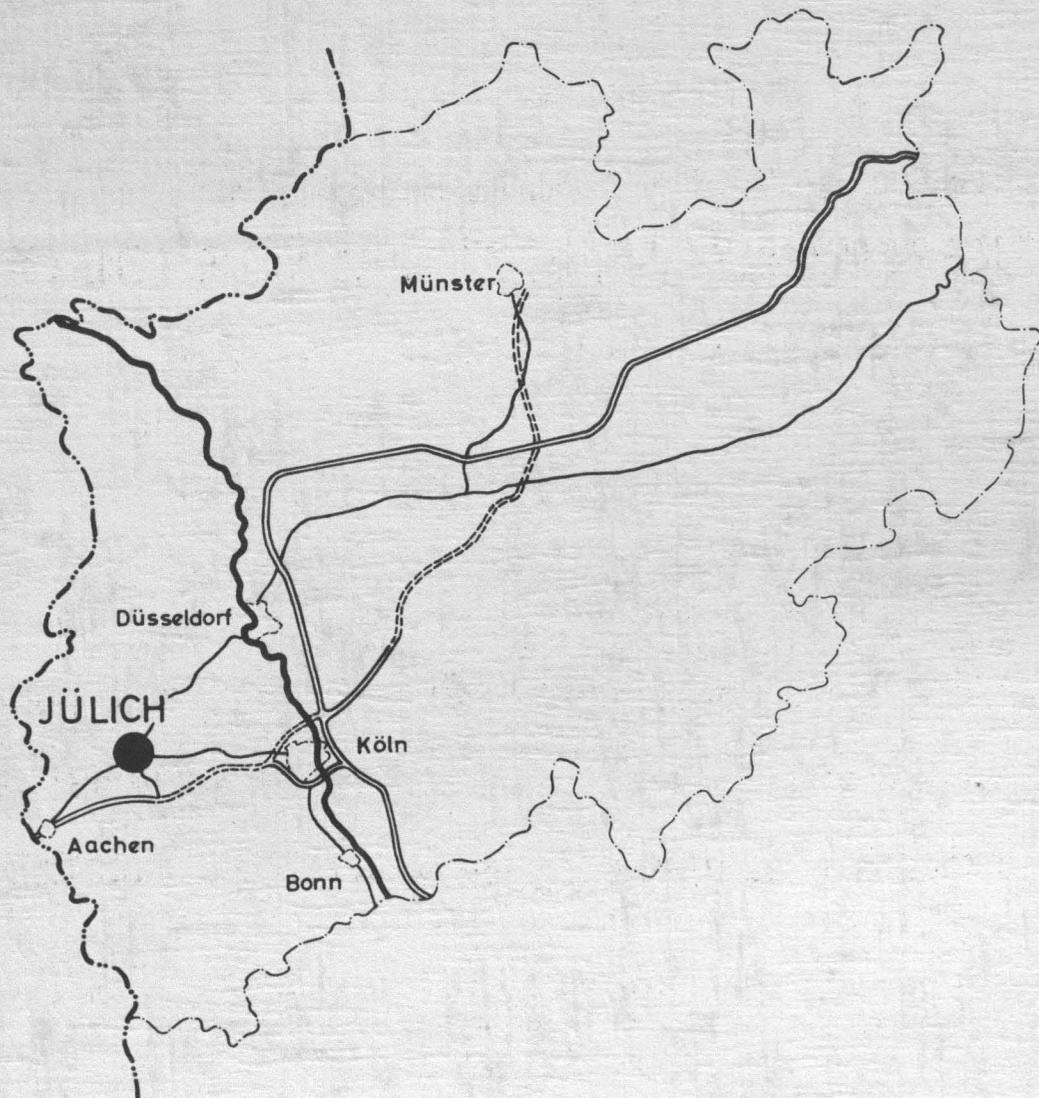
par

A. M a a s

JÜL - 7 - ST

Mai 1961





Berichte der Kernforschungsanlage Jülich - Nr. 7

Abteilung Strahlenschutz Jül - 7 - ST

Dok.: ENVIRONS MONITORING * DK 551.510.721

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Sur la proportion des produits de filiation du thoron dans l'activité des aérosols de l'air à proximité du sol et mesures comparatives au moyen d'appareils de différente fabrication

Par A. Maas

Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen

Introduction

Une tâche importante des services de protection contre les radiations dans les centres de recherches nucléaires est le contrôle de charges d'irradiation résultant d'émissions radioactives éventuelles dans les alentours. Il est donc nécessaire de contrôler de façon continue la radioactivité de la biosphère. Dans tout l'univers des transformations nucléaires et les rayonnements qui en résultent ont toujours existés. D'après nos connaissances actuelles il faut admettre, que la vie biologique sur notre planète a évolué au cours des millions d'années sous l'influence des rayonnements et qu'elle s'est adaptée au radioclima existant aujourd'hui. Nous avons suffisamment de connaissances sur l'influence des variations du rayonnement lumineux et du rayonnement de la chaleur sur la vie terrestre. Par contre, en ce qui concerne les effets du rayonnement radioactif plus riche en énergie sur les divers mécanismes vitaux, nous manquons pour beaucoup de problèmes d'une expérience suffisante. Vue la rapidité du développement de l'industrie nucléaire, l'éclaircissement de tous les problèmes ayant éventuellement un rapport avec les émissions radioactives des installations nucléaires est devenu très urgent. Un exemple alarmant du manque de prévoyance est la contamination de l'air et l'encrassement des eaux, qui sont sur le point de devenir insupportables dans les grands centres d'industrie conventionnelle. En ce qui concerne la surveillance de la radioactivité artificielle de la biosphère, ce sont surtout deux problèmes qui exigent des études à longue échéance. D'une part les émissions radioactives doivent être détectées à temps, et d'autre part, on ne dispose pas encore de données suffisamment éprouvées sur le mécanisme de diffusion de cette activité, surtout en ce qui concerne les observations météorologiques nécessaires [1], [2]. La con-

naissance des variations de la radioactivité naturelle est indispensable à la solution de ces deux problèmes. Un autre point, auquel on n'a jusqu'à présent guère attribué l'attention qu'il mérite, est le souci de ce que les mesures de radioactivité, qui se font actuellement de partout dans le monde, soient effectuées sous des conditions, qui permettent la comparaison des résultats. La communication des observations suivantes pourra contribuer à répondre à ces questions.

Comparaison des mesures de l'activité d'aérosols au moyen de deux appareils de fabrication différente

Le service de protection contre les radiations du centre nucléaire à Jülich du pays fédéral Nordrhein-Westfalen procède depuis 1959 à des observations des conditions d'activité, se présentant avant la mise en service des réacteurs et des instituts de recherches et provenant de sources radioactives naturelles existant dans les alentours du centre de recherche, ou, le cas échéant, de la retombée d'explosions nucléaires [3].

Pour déterminer la radioactivité de l'air à proximité du sol, on emploie entre autre un appareil, dans lequel la poussière de l'air se dépose de façon continue sur une bande de filtre fibreuse dont l'activité est mesurée [4]. Afin de contrôler à quel point ces mesures sont comparables à celles obtenues par le réseau de surveillance du Service Météorologique d'Allemagne, où l'on emploie dans le même but un appareil de fabrication différente [5], l'appareil A était utilisé à côté de l'appareil du Service Météorologique d'Allemagne aux mois d'avril et de mai 1960 à l'observatoire météorologique de Aachen.

Nous nous abstenons d'indiquer les valeurs des activités de courte période, car leur comparaison est à priori

Tableau 1 Mesures comparatives (moyennes quotidiennes) de l'activité des aérosols à l'observatoire météorologique de Aachen

avril 1960 date	20.	21.	22.	23.	24.	25.	26.	27.	28.	29.	30.				
appareil A	41,2	34,3	23,0	30,9	23,0	17,2	17,2	20,6	30,9	17,2	6,9	10 ⁻¹⁴ μC/cm ³ air			
appareil B	74	66	53	47	43	29	33	21	24	26	44				
rapport A : B (%)	56	52	43	66	54	59	52	99	128	66	16				
mai 1960 date	2.	3.	4.	5.	6.	7.	8.	10.	11.	12.	13.	16.	17.	18.	
appareil A	10,3	23,0	34,3	54,9	41,2	41,2	41,2	44,4	58,3	61,7	51,5	23,0	20,6	13,7	10 ⁻¹⁴ μC/cm ³ air
appareil B	31	39	56	74	78	84	76	63	63	62	45	30	40	41	
rapport A : B (%)	33	59	60	75	53	49	54	71	93	100	114	76	52	33	

moyenne: 64,5%

Le rapport de l'activité mesurée avec l'appareil A à celle mesurée avec B est de 1 : 1,5

problématique; avec l'appareil B on mesure l'activité au moment de la collection de la poussière, tandis qu'avec l'appareil A, la première mesure ne s'effectue qu'après un retard de 3 heures. Cela correspond pour les filiations RaA, B et C du Rn, qui sont responsables de la majeure partie de l'activité, à environ 6 périodes. Il en suit que leur teneur initiale s'est abaissée à 1 à 2%; et comme au moment de la mesure on ne dispose pas de données éprouvées sur le rapport Rn/Tn, on ne peut rien dire sur le facteur d'extrapolation pour l'échantillon composite mesuré après 3 heures, facteur qui permettrait de comparer cette activité à celle mesurée au moment de la collection. (Une description détaillée de ces faits est donnée par H. Israel [6]).

Une seconde mesure des échantillons se fait dans les deux appareils après 48 heures. Les valeurs mesurées sont indiquées dans le tableau 1 sous forme de moyennes quotidiennes.

La proportion d'activité du thorium B dans l'activité des aérosols à longue période

Quand on compare les mesures faites après 3 heures à celles faites après 48 heures — les deux rapportées au moment de collection — on est frappé par la variation relative égale des deux courbes. La figure 1 montre

les enregistrements de l'activité des aérosols à l'aide de l'appareil A (moyennes horaires en impulsions par minute) sur le terrain du centre de recherches à Jülich aux mois de juillet et août 1960. Le centre de recherche se trouve dans une forêt très éclaircie. Le lieu d'aspiration de l'air à filtrer est situé à peu près 10 m au-dessus du sol au niveau des sommets d'arbres. A cet endroit la forêt est très peu dense. Jusqu'au 8 août les deux enregistrements montrent la même variation de l'activité des aérosols.

La courbe I représente les taux d'impulsions mesurés dans un détecteur 3 heures après la collection de la poussière sur la bande de filtre; la courbe II (III) est mesurée après un retard de 2 (4) jours dans un second détecteur. Jusqu'au 8 août on constate un net parallélisme des deux courbes. A partir du 8 août le retard de la seconde mesure était étendu à 96 heures et dès alors on ne constate plus de rapport entre la variation des deux courbes.

On doit en tirer la conclusion, qu'à l'heure actuelle la teneur dans l'atmosphère en produits de fission provenant de la retombée d'explosions nucléaires, s'est amoindrie de telle façon, qu'après un retard de deux jours la majeure partie de la radioactivité d'un échantillon d'aérosol est constituée par la radioactivité naturelle. A ce propos la thorium B (période 10,6 heures), qui se forme à proximité du sol, à partir de l'émanation du thorium est d'une importance particulière. Dans le

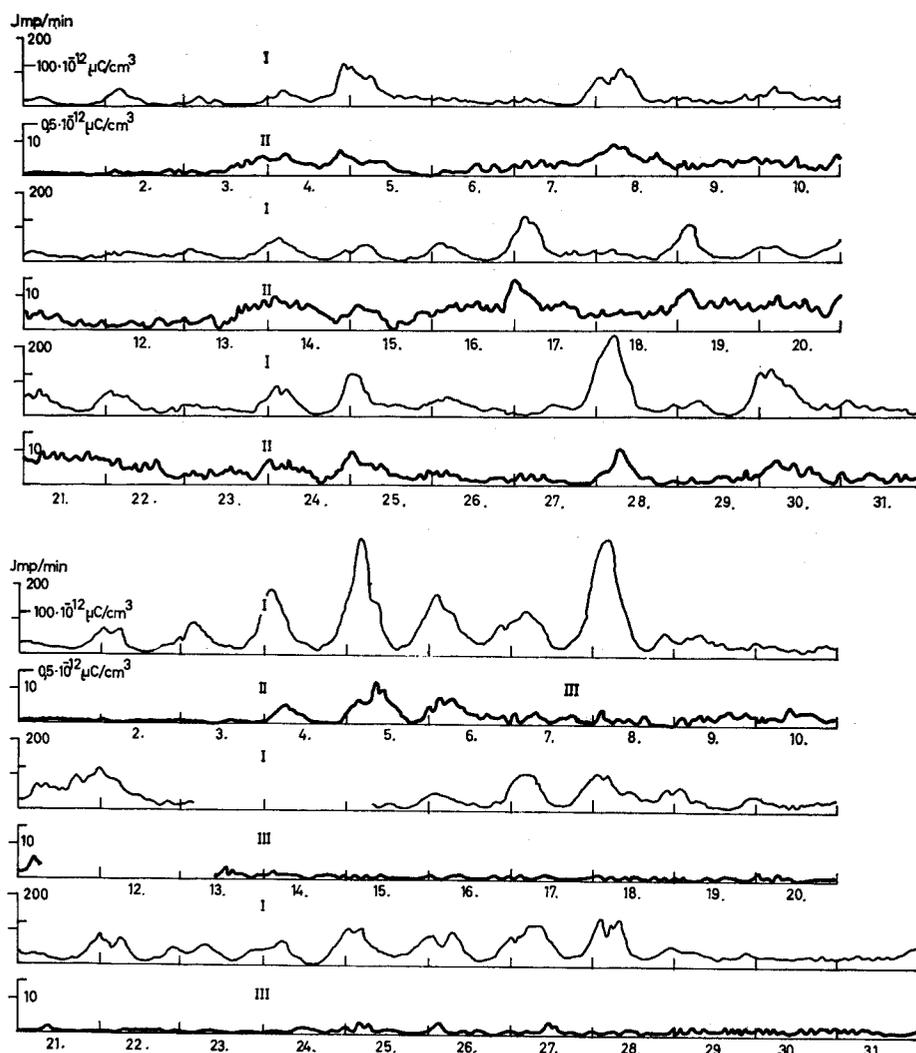


Fig. 1. Activité des aérosols sur le terrain du centre nucléaire à Jülich; juillet 1960, courbe I: mesurée 3 h après la collection, courbe II: mesurée 48 h après la collection; août 1960, courbe III: mesurée 96 h après la collection)

Tableau 2 Moyenne quotidienne de l'activité des aérosols (imp/min) sur le terrain du centre de recherches nucléaires à Jülich

date	mesures retardées de		date	mesures retardées de	
	3 heures	2 jours		3 heures	4 jours
1. 7.	7	0,0	9. 8.	45	2,6
2. 7.	14	1,0	10. 8.	31	3,1
3. 7.	8	2,7	11. 8.	69	—
4. 7.	41	4,1	12. 8.	45	—
5. 7.	45	3,0	13. 8.	—	—
6. 7.	11	1,6	14. 8.	—	0,7
7. 7.	14	3,5	15. 8.	—	0,3
8. 8.	47	5,5	16. 8.	30	0,4
9. 7.	17	3,6	17. 8.	59	0,1
10. 7.	29	3,5	18. 8.	60	0,3
11. 7.	12	2,4	19. 8.	29	0,4
12. 7.	17	1,7	20. 8.	25	0,5
13. 7.	17	4,1	21. 8.	33	0,5
14. 7.	29	6,0	22. 8.	44	0,5
15. 7.	19	4,3	23. 8.	38	0,1
16. 7.	24	7,0	24. 8.	37	0,9
17. 7.	50	7,5	25. 8.	59	0,9
18. 7.	20	5,4	26. 8.	50	0,6
19. 7.	35	8,2	27. 8.	71	1,0
20. 7.	28	7,2	28. 8.	68	0,8
21. 7.	39	7,8	29. 8.	34	1,3
22. 7.	32	4,7	30. 8.	26	1,4
23. 7.	23	3,6	31. 8.	32	0,8
24. 7.	43	4,4			
25. 7.	45	4,3			
26. 7.	29	2,0			
27. 7.	30	1,3			
28. 7.	90	3,5			
29. 7.	28	1,7			
30. 7.	67	4,0			
31. 7.	26	2,1			
1. 8.	29	0,0			
2. 8.	36	0,0			
3. 8.	59	0,0			
4. 8.	80	1,7			
5. 8.	128	5,0			
6. 8.	90	4,1			
7. 8.	82	1,7			
8. 8.	144	1,3			
moyenne	40,6	3,5			

Rapport moyen des mesures retardées de 3 heures aux mesures retardées de 4 jours en % = 1,7

Rapport moyen des mesures retardées de 3 heures aux mesures retardées de 2 jours en % = 8,6

Tableau 2 sont indiquées les moyennes quotidiennes des taux d'impulsions mesurés, correspondant aux courbes de la figure 1.

Dans l'intervalle entre le 1 juillet et le 8 août, après un retard de 2 jours, lors d'une seconde mesure (différence de temps par rapport à la première mesure = 45 heures) les taux d'impulsions décroissent en moyenne jusqu'à 8,6%, et dans l'intervalle entre le 9 et le 31 août, après un retard de 4 jours (différence de temps entre première et seconde mesure = 93 heures) jusqu'à 1,7%.

L'activité du ThB décroît après 4 périodes (42,4 heures) jusqu'à 6,3% et après 9 périodes (95,4 heures) jusqu'à 0,3%. De cette comparaison on tire la conclusion, que la radioactivité des aérosols mesurés provient essentiellement du thorium B. (A ce sujet voir aussi H. Israel [6]).

Dans la figure 2 sont indiquées les moyennes mensuelles de l'activité des aérosols mesurés aux stations suivantes: Aachen, Essen, Emden, Berlin, Hannover, Schleswig, Königstein et Munich (en tirets) faisant partie du réseau

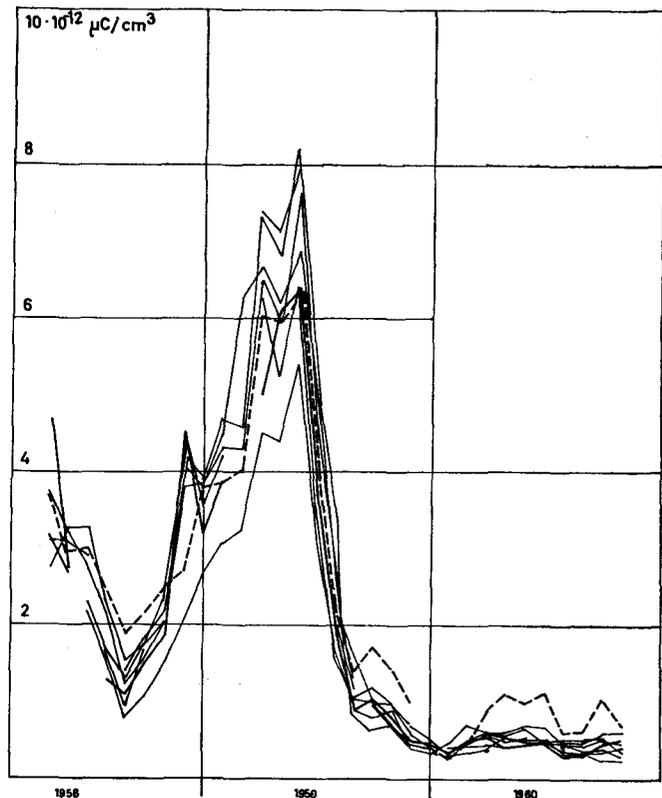


Fig. 2. Moyennes mensuelles de l'activité des aérosols déterminées par le réseau de surveillance du Service Météorologique d'Allemagne (mesurées 48 h après la collection). - - - Munich

de surveillance du Service Météorologique d'Allemagne [7]. De la comparaison du caractère des courbes ressort, que les mesures sont comparables, à condition d'employer des appareils de même construction et fabrication et d'exploiter les mesures selon les mêmes méthodes, ce qui est le cas ici.

On remarque dans ce graphique, que les mesures de Munich aux moments où la teneur en produits de fission était faible (été 1958 et automne 1959) fournissent des valeurs plus élevées, que celles de toutes les autres stations, tandis qu'aux moments de croissance de la radioactivité artificielle, elles se situent dans le cadre des valeurs mesurées dans les autres régions. Si l'on tient compte du fait que le clima radioactif naturel de Munich est influencé par la proximité d'un massif de roches primitives avec une teneur plus élevée en matières radioactives naturelles et par une plus grande superficie d'exhalation pour l'émanation, on peut interpréter cette observation en admettant, qu'au moment des mesures des aérosols, après un retard de 2 jours, on détecte essentiellement les effets du thorium B. Remarquons aussi les mois d'hiver 1959/60 et les mois de juillet et d'août 1960 très riches en précipitations, durant lesquels les mesures de Munich ont, à cause de la faible exhalation, les mêmes valeurs que celles des autres stations.

Conclusions

Pour la surveillance de l'air à l'égard d'une présence éventuelle de particules radioactives artificielles, on déduit de ce qui précède, que sans analyse exacte des substances rayonnantes une détection sûre au moyen d'un échantillon composite n'est possible qu'à condition de retarder les mesures d'au moins 4 jours. Mais comme dans les centres de recherche et dans les installations nucléaires il ne s'agit pas seulement — ou moins pas en premier lieu — d'émissions radioactives de très longue

période, il est très important pour la surveillance continue des environs, de connaître les variations de l'état radioactif dans les couches d'air à proximité du sol. Cette connaissance permettrait du moins une détection qualitative des changements de cet état par la présence éventuelle de sources radioactives artificielles. La radioactivité naturelle dans la biosphère est étroitement liée aux conditions météorologiques. Son extraction du sol avec les émanations dépend de l'état du sol (sec, humide, gelé, couvert de neige), à son tour conditionné par le temps. Pour les produits de filiation solides des émanations, l'atmosphère sert de véhicule. Leur teneur dans l'air varie avec le changement des conditions d'échanges verticales et advectives et dépend donc des mêmes causes que celles-ci (irradiation, radiation, température, vents) [8]. La radioactivité naturelle qui nous entoure, a donc le caractère d'un réel facteur climatique, qui subit les mêmes fluctuations que les autres éléments climatiques [9]. Le clima météorologique d'un lieu géographique est caractérisé par les moyennes de longues années et les marges de fluctuation des différents éléments climatiques et dans le cadre du développement des installations nucléaires, il sera absolument nécessaire d'élaborer les mêmes données relatives à la variation de l'état de radioactivité naturelle de la biosphère.

Heureusement que dès le début du développement des recherches nucléaires non militaires — et probablement stimulées par les expériences que l'on avait acquises sur la propagation sur toute la terre des produits de fission provenant des explosions de bombes atomiques — toutes les sciences qui se préoccupent de la propagation à grandes distances des matériaux radioactifs et des conditions de transport ont été mises en jeu. Le clima radioactif naturel — dont on parle d'ailleurs depuis le commencement des études sur la radioactivité du sol et de l'air [10] — était fortement perturbé par la retombée des explosions

nucléaires. Or, comme depuis peu de temps il semble ne plus en être ainsi, les études sur la radioactivité naturelle devraient être poussées autant que possible. Ceci est d'autant plus important que les variations de l'état climatique ne peuvent être jugées qu'à la suite d'une série d'observations s'étendant sur de longues années.

Bibliographie

- [1] Wippermann F. und Klug W.: „Die Verwendung von Gesetzmäßigkeiten der turbulenten Diffusion in der Atmosphäre zur Bestimmung von Schornsteinmindesthöhen.“ Arbeitsunterlage für VDI-Kommission Reinhaltung der Luft
- [2] Franklin A. und Gifford Jr.: „Activity Release and Consequences, Atmospheric Dispersion.“ Nuclear safety 1 (1960)
- [3] Jensen H. W., Maas A., Tzschaschel R. und Vogt K. J.: „Radioaktivität in der Umgebung der Atomforschungsanlage des Landes Nordrhein-Westfalen bei Jülich.“ Jahresbericht 1959 der Abteilung Strahlenschutz in der Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen
- [4] Buchner W.: „Kontinuierliche Messung des radioaktiven Aerosolgehaltes der Luft.“ Atompraxis 3, 382—388 (1957)
- [5] Hinzpeter M., Becker F. und Reifferscheid H.: „Atomtechnisches Aerosol und atmosphärische Radioaktivität.“ Schriftenreihe des Bundesministers für Atomkernenergie und Wasserwirtschaft, Strahlenschutz Nr. 7 (1959)
- [6] Israel H.: „Zur Vergleichbarkeit von Radioaktivitätsmessungen.“ Atomkernenergie (im Druck)
- [7] Monatliche Mitteilungen des Zentralamtes des Deutschen Wetterdienstes, Offenbach/Main, Frankfurter Str. 135
- [8] Jehanno C., Tanaefsky O., Labevrie J. et Vassy E.: «Radioactivité de l'air et des précipitations au niveau du sol dans la région parisienne, (1955 à 1958).» Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay, Service de Documentation, Rapport CEA Nr. 1421 (1959)
- [9] Israel H.: „Das natürlich-radioaktive Milieu unserer Umwelt.“ Naturwissenschaftliche Rundschau 7, 249—252 (1957)
- [10] Kosmath W. und Gerke O.: „Das radioaktive Klima von Badgastein, seine bioklimatische und balneologische Bedeutung.“ Berichte der Akademie der Wissenschaften in Wien, Mathem.-naturwissensch. Klasse, Abt. II a, 144 (1935)

Adresse de l'auteur: A. Maas, Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen, Abteilung Strahlenschutz

Traduit par Dipl.-Phys. Karl Breh, Karlsruhe

Sur la proportion des produits de filiation du thoron dans l'activité des aérosols de l'air à proximité du sol et mesures comparatives au moyen d'appareils de différente fabrication

Deux appareils (l'un nommé A, utilisé par le service de protection contre les radiations du centre nucléaire à Jülich du pays Nordrhein-Westfalen, l'autre nommé B, utilisé par le Service Météorologique d'Allemagne) ont été employés aux mois d'avril et de mai 1960 à l'observatoire météorologique de Aachen pour étudier à quel point les mesures de l'activité des aérosols à l'aide d'appareils à bandes de filtre sont comparables. Après un retard de 2 jours entre la collection des poussières et la mesure on trouve le rapport activité_(appareil A) : activité_(appareil B) = 1 : 1,5. Étant donné le parallélisme de la variation temporelle de l'activité des aérosols mesurée après 3 heures et 48 heures respectivement, il est nécessaire d'attendre au moins 4 jours avant de détecter dans les échantillons composites des matières radioactives artificielles de longue période, car selon le niveau de l'activité artificielle après un retard de 2 jours, la proportion de l'activité du thorium B (période 10,6 h) peut encore être très élevée.

Über den Anteil der Thoron-Folgeprodukte bei der Aerosolaktivität in der bodennahen Luft und Vergleichsmessungen mit Geräten verschiedener Bauart

Zur Orientierung über die Vergleichbarkeit von Aerosolaktivitätsmessungen mit Filterbandgeräten verschiedener Hersteller und Konstruktion wurde in den Monaten April und Mai 1960 eine Apparatur (im folgenden Gerät A genannt), die von der Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen benutzt wird, am meteorologischen Observatorium Aachen neben einem Gerät (im folgenden Gerät B genannt), das im Deutschen Wetterdienst Verwendung findet, betrieben. Für die Meßergebnisse nach einer Wartezeit von 2 Tagen ergibt sich ein Verhältnis Aktivität_(Gerät A) : Aktivität_(Gerät B) = 1 : 1,5. Wegen der Parallelität im zeitlichen Verlauf der Aerosolaktivitäten der Messungen nach 3 Stunden und 48 Stunden Wartezeit wird auf die Notwendigkeit hingewiesen, zur Feststellung von langlebigen künstlich radioaktiven Stoffen in Sammelproben eine Wartezeit von mindestens 4 Tagen anzuwenden, weil je nach Höhe der künstlichen Radioaktivität nach 2 Tagen Wartezeit der Strahlungsanteil des Thoriums B (Halbwertszeit 10,6 h) noch einen sehr wesentlichen Prozentsatz ausmachen kann.

**The Proportion of Thoron Sequel
Products with Aerosol Activity in
Low-Altitude Air and Comparative
Measurements with Various
Devices**

To determine the comparability of aerosol activity measurements made with filter devices of various manufacture, an apparatus (hereinafter called apparatus A) used by the radiation-protection section of the atomic research center in Jülich during April and May, 1960, was compared with a second apparatus (apparatus B) used by the German Meteorological Service. After a waiting period of two days the measurement results showed the following relationship: $\text{activity}_{(\text{apparatus A})} : \text{activity}_{(\text{apparatus B})} = 1 : 1.5$. Because of the parallelism in the course of the measurements of aerosol activities after 3 hours and 48 hours waiting time, the author points out the necessity, in determining long-lived artificial radioactive substances in collected specimens, of having a waiting period of at least 4 days, since after a period of 2 days the proportion of thorium B (half-life 10.6 h) can still amount to an important percentage, depending on the level of artificial radioactivity.