

SUR LES CARACTÉRISTIQUES DES AÉROSOLS RADIOACTIFS PRÉSENTS DANS LES MINES FRANÇAISES D'URANIUM (*)

J. PRADEL (**), A. CHAPUIS, A. LOPEZ et Ch. CABROL (***)

(Manuscrit reçu le 5 juin 1970)

RÉSUMÉ

Dans le cadre de la radioprotection dans les mines d'uranium françaises, une étude des caractéristiques des aérosols radioactifs a été entreprise (concentration en ions ultrafins, en noyaux de condensation, en radon : granulométrie, état de charge et nature).

La mesure expérimentale de f^+ (fraction de la radioactivité totale existant sous forme ultrafine ionisée) est faite par précipitation électrostatique. Pendant les périodes d'activité minière la valeur de f^+ est aux environs de 5 % tandis qu'en l'absence d'activité cette valeur devient 3 à 4 fois plus forte.

Le spectre en taille des particules chargées (positives et négatives) est compris entre 0,02 μm et 0,1 μm en diamètre. Environ 55 pour cent de la radioactivité est fixée sur les particules chargées.

Il n'y a pas de notable différence dans les distributions granulométriques du RaA et du RaC'.

SUMMARY

Important parameters for the protection of the miners are measured in the French uranium mines :

- concentration of radioactive ultrafine ions (f^+);
- concentration of condensation nuclei (N);
- size spectrum, sign of charge and nature of the radioactive aerosols.

Value of « f^+ » vary between 8 % and 20 %. The size spectra for both positive and negative radioactive nuclei were similar and ranged in diameter between 0,02 μm and about 0,10 μm .

(*) Présenté par M. le Professeur D. Blanc au Congrès International de Brighton — A.I.R.P. 3 — 8 Mai 1970.

(**) Service Technique d'Etudes de Protection du C.E.A., B.P. n° 6, 92-Fontenay-aux-Roses.

(***) Centre de Physique Atomique et Nucléaire, Université de Toulouse, 118, route de Narbonne, 31-Toulouse.

INTRODUCTION

Dans les mines d'uranium, les travailleurs sont exposés à une irradiation externe due au rayonnement γ émis par l'uranium et certains de ces descendants, et à une irradiation interne due à l'inhalation de radon, de son dépôt actif, et de poussières en suspension dans l'air.

Le radon 222, descendant gazeux de la famille radioactive naturelle (uranium-radium), se forme au sein des roches; une partie diffuse dans l'air des galeries et s'y désintègre en donnant des produits de filiation solides (émetteurs α ou β). Au moment de leur formation ces produits se présentent sous la forme d'ions de recul positifs. Ils évoluent rapidement pour donner :

- par agglomération avec des molécules neutres, des ions de mobilité plus faible;
- par neutralisation avec les ions normalement présents dans l'air, des particules neutres;
- par fixation sur les poussières en suspension, des particules chargées ou neutres de dimension plus grande.

Les mineurs travaillant dans cette atmosphère inhalent des aérosols radioactifs ionisés et neutres de dimensions variables. Il est très important pour la radioprotection de connaître la granulométrie des aérosols radioactifs, car le mécanisme du dépôt de ces aérosols dans les voies respiratoires en dépend.

On sait d'autre part que la concentration maximale admissible (C.M.A.) pour le radon est obtenue à partir de la formule proposée par la C.I.P.R. [1] :

$$(\text{C.M.A.})_{\text{radon}} = \frac{3 \cdot 10^{-6}}{1 + 1000f} \mu\text{Ci/cm}^3$$

où « f » représente la fraction du radium A existant sous forme libre. Jusqu'à présent on avait pris pour « f » une valeur de 10 % [2]; cela entraîne une valeur de la C.M.A. de $3 \cdot 10^{-8} \mu\text{Ci/cm}^3$ [3]. On voit ainsi combien il s'avère important de préciser la valeur de ce coefficient « f » pour le calcul des normes de protection à adopter.

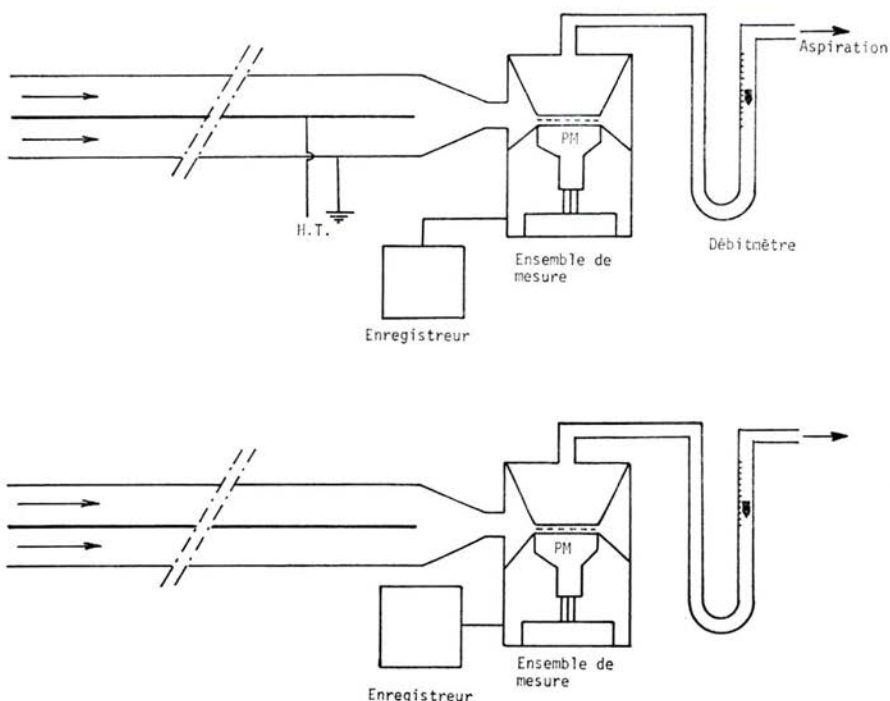
CLASSEMENT DES AÉROSOLS RADIOACTIFS

Il est nécessaire tout d'abord de préciser la définition des aérosols radioactifs ultrafins (sous forme libre). Nous les classons en 2 groupes :

- les particules radioactives ionisées de coefficient de diffusion compris entre 10^{-2} et $5 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ (c'est-à-dire de mobilité comprise entre 0,4 et $2 \text{ cm}^2\text{s}^{-1}\text{v}^{-1}$). (f^+);
- les particules neutres radioactives obtenues par combinaison d'un ion radioactif ultrafin (+) avec un petit ion ordinaire (créé par rayonnement α , β , γ) de signe contraire. Le coefficient de diffusion est de 10^{-2} à $10^{-1} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$. (f^0).

1. MESURE DE f^+

Nous utilisons deux précipitateurs électrostatiques cylindriques en parallèle suivis d'un système de collection et de comptage de l'activité α [4] (fig. 1). Un des ensembles précipitateurs — comptage α — sert de référence. Le débit traversant le second ainsi que la tension interélectrodes sont choisis de façon à piéger toutes les particules radioactives ionisées ultrafines. Des différences dans la lecture des enregistrements (compte tenu des rendements) on déduit la valeur de f^+ . Cette valeur varie entre 5 % environ pendant une activité minière normale et 20 % pendant une période d'arrêt de travail (voir tableau I).


 FIG. 1 — Schéma de principe de la mesure de la fraction libre « f^+ ».

2. MESURE DE LA CONCENTRATION EN NOYAUX DE CONDENSATION

Une étude théorique [5] montre que la valeur de f^+ (et aussi de f^0) dépend de la concentration en poussières. C'est dans ce but que nous avons mesuré en parallèle avec la mesure de f^+ , la concentration en noyaux de condensation. Nous utilisons un compteur autonome, automatique et portatif fabriqué par nos soins, fonctionnant selon le procédé de Pollak [6, 7] (fig. 2). L'air à analyser est échantillonné dans une chambre cylindrique traversée par un faisceau lumineux. Une détente adiabatique place les noyaux en milieu sursaturé ce qui entraîne une formation de brouillard dans la chambre. La concentration en noyaux est déduite du

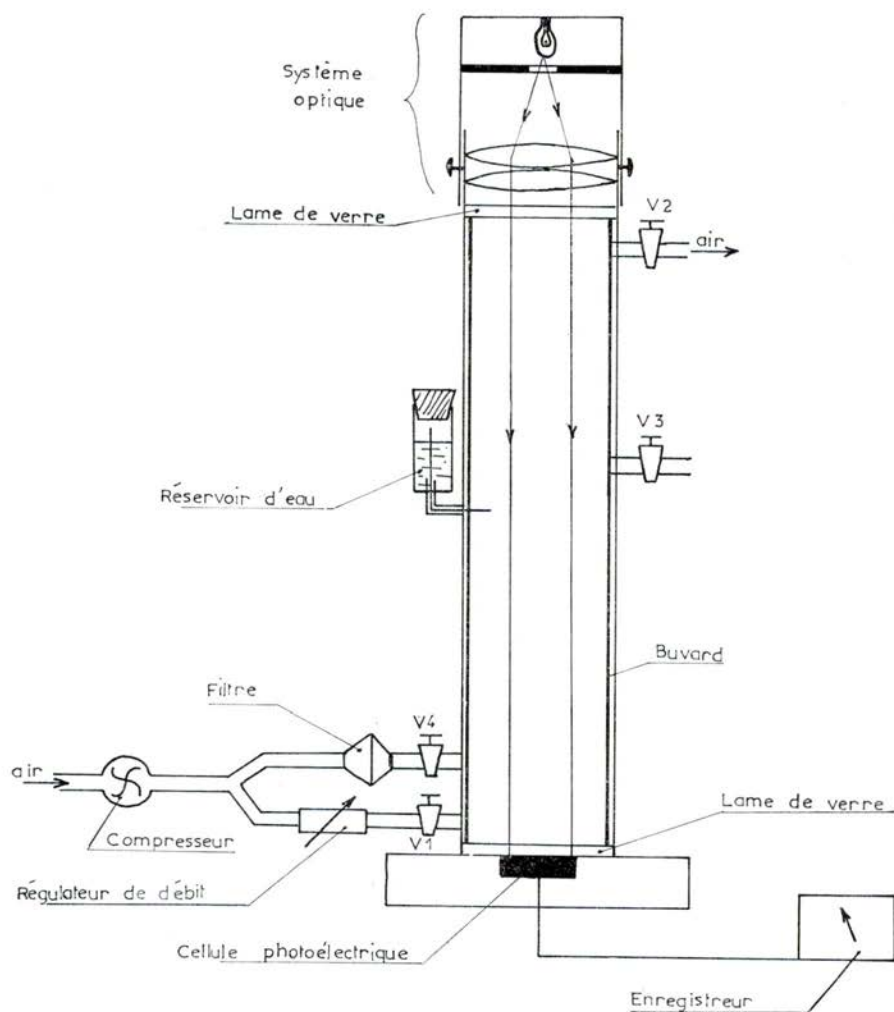


FIG. 2 — Schéma de principe de la mesure des noyaux de condensation.

taux d'extinction du faisceau lumineux. Quelques valeurs caractéristiques de la concentration en noyaux dans les mines d'uranium sont données ci-dessous :

- | | | |
|-----------------------------------|---|---|
| • Arrêt nocturne | $5 \cdot 10^3$ particules/cm ³ | |
| • Retour d'air loin d'un chantier | $3 \cdot 10^4$ | — |
| • Près d'un chantier | | |
| — Tir | $2 \cdot 10^5$ | — |
| — Foration | 10^5 | — |
| — Passage de locotracteur | $3 \cdot 10^5$ | — |

La valeur moyenne de la concentration en aérosols de rayon supérieur à $0,5 \mu\text{m}$ mesurée à l'aide d'un spectrophotomètre Royco est de 100 part./cm^3 pendant le jour et nulle lors de l'arrêt de l'activité.

ÉTUDE DES AÉROSOLS RADIOACTIFS

1. GRANULOMÉTRIE

Le spectre granulométrique des particules chargées est obtenu en mesurant leur mobilité; pour les particules neutres, on déduit ce spectre de la mesure de leur coefficient de diffusion.

1° *Etude des particules chargées*

On utilise la méthode de ZÉLÉNY [8]. Les aérosols chargés sont précipités dans un tube cylindrique muni d'une électrode axiale portée à différentes tensions par rapport au cylindre.

Pour éliminer les phénomènes d'effluves apparaissant au-dessus de 3000 V dans le précipitateur cylindrique, un précipitateur plan est utilisé.

Le spectre de mobilité obtenu s'étend entre $3,7 \cdot 10^{-3}$ et $3,2 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1} \text{ V}^{-1}$, ce qui correspond (si on suppose que les particules ne portent qu'une charge) à un intervalle en diamètre de $0,02 \mu\text{m}$ à $0,1 \mu\text{m}$ analogue aux résultats trouvés en atmosphère libre par de nombreux auteurs [9, 10]. La fraction globale de radioactivité fixée sur les ions est d'environ 55% .

2° *Etude des particules neutres*

Des batteries de diffusion à tubes ou à plaques sont utilisées. Pour l'aérosol radioactif global (neutre + chargé) nous avons trouvé un rayon moyen de $6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$.

Pour étudier les particules neutres seules, nous arrêtons à l'aide du précipitateur électrostatique plan les particules chargées; pour des débits compris entre 27 l/mn et 10 l/mn le pourcentage d'activité piégée par la batterie de diffusion (placée après le précipitateur plan) est inférieur à 5% .

Ces résultats semblent montrer que le spectre granulométrique des particules neutres se trouve dans une gamme de dimensions supérieure à celle des particules chargées. Ces résultats proviennent soit de l'existence de charges multiples, soit de l'agglomération de particules sous l'effet du champ électrique qui règne dans le précipitateur, soit encore de la forme des particules.

2. SIGNE DE LA CHARGE DES IONS

L'étude du signe de la charge des ions a été faite en mesurant successivement pour des tensions positives et négatives l'activité piégée sur l'électrode axiale du précipitateur cylindrique. Le rapport du nombre de gros ions radioactifs négatifs au nombre de gros ions radioactifs positifs varie entre 1 et $1,25$.

3. NATURE

C'est à l'aide d'un spectromètre α à 4 canaux autonome et portatif que nous avons étudié le spectre de mobilité des particules chargées en fonction de leur nature (RaA-RaC'). Le schéma synoptique de l'appareil est donné sur la figure 3. La distribution granulométrique ne présente pas de différence notable pour ces deux radionucléides.

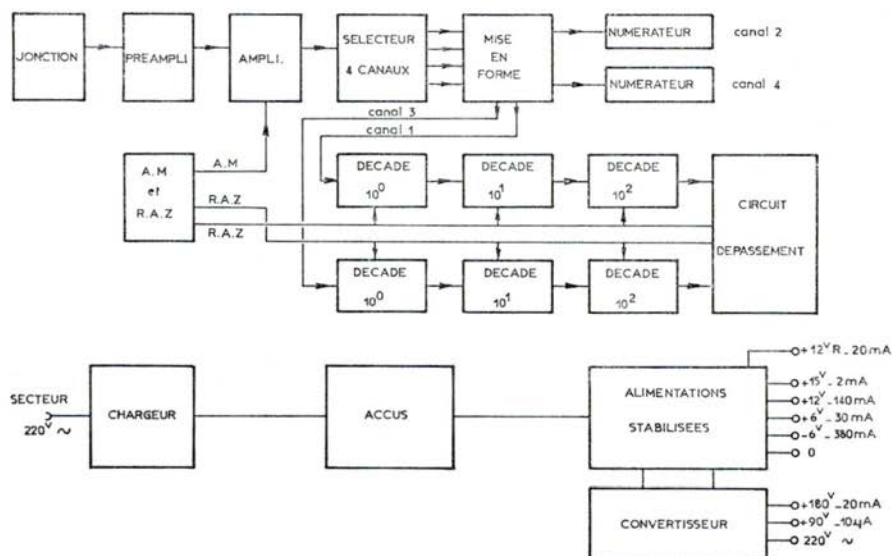


FIG. 3 — Schéma synoptique du spectromètre α

Le tableau I résume les résultats les plus caractéristiques obtenus au cours de mesures simultanées de :

- la concentration de l'air en radon (mesurée par la méthode de la chambre de désintégration);
 - la concentration en noyaux de condensation;
 - la concentration en aérosols de taille supérieure à $0,5 \mu\text{m}$;
 - le pourcentage d'activité portée par les aérosols chargés;
 - le pourcentage d'activité existant sous forme ultrafine ionisée (f^+);
- au niveau 120 de la mine d'uranium de Fanay (division minière de La Crouzille).

Les résultats obtenus montrent que la valeur de f^+ est en moyenne de 5 % pendant les périodes d'activité minière (contre 20 % en cas d'arrêt d'activité).

A partir de cette valeur le calcul de la C.M.A. donne :

$$(C.M.A.)_{Rn} = 6.10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$$

Il faut cependant noter que le calcul de la C.M.A. proposé par la C.I.P.R. suppose que l'équilibre entre le radon et ses descendants est établi. De nombreuses mesures récentes [12] montrent que cet équilibre n'est, en fait, jamais réalisé dans les zones de travail.

TABLEAU I

Jour et heure	C_R	N	N'	F	f^+	Remarques
Samedi 8/11/69 à 18 h	18	15	100	58	2	Mine en activité
Dimanche 9/11/69 à 14 h	1	3	10	52	16	Arrêt prolongé
Mercredi 12/11/69 à 16 h	20	25		54	5	Mine en activité
Vendredi 14/11/69 à 20 h	12	40		56	4,5	Mine en activité
Samedi 22 11/69 à 14 h	11	33	100	54	5	Mine en activité
Dimanche 23/11/69 à 15 h		3	10	58	20	Arrêt

Résultats caractéristiques des mesures simultanées de :

C_R = concentration en radon (en 10^{-10} Ci/l),

N = concentration en noyaux de condensation (en 10^3 part./cm³),

N' = concentration en aérosols de rayon supérieur à 0,5 μ m (en particules/cm³),

F = fraction d'activité α fixée sur les ions (en %),

f^+ = fraction d'activité α existant sous forme ultrafine ionisée (en %).

En plus de l'influence de ce déséquilibre il faudrait tenir compte dans la définition de « f » du pourcentage de particules neutres ultrafines qui peuvent intervenir de façon non négligeable.

CONCLUSION

Les aérosols radioactifs existent sous deux formes :

- ultrafins (ou libres) pendant leur vie première;
- liés, c'est-à-dire fixés sur les noyaux de condensation présents dans l'atmosphère. Les proportions respectives de radioactivité existant sous ces deux formes dépendent essentiellement des concentrations en noyaux de condensation et en radon. Des différences importantes (jusqu'à un facteur 20) sont notées expérimentalement pour les concentrations en noyaux de condensation et en radon suivant les périodes d'activité minière.

Ces valeurs influent sur la valeur de f^+ (fraction de radioactivité existant sous forme ultrafine ionisée). La comparaison du rayon moyen de l'aérosol minier 6.10^{-6} cm avec celui de l'aérosol atmosphérique, 2.10^{-6} cm montre qu'il existe une plus grande quantité de gros aérosols dans les mines d'uranium (tirs, broyages, ...). Les résultats expérimentaux obtenus sur la granulométrie des particules

radioactives semblent donner un spectre différent pour les neutres et les chargées. Ces résultats ne peuvent s'expliquer qu'en admettant certains phénomènes : existence de plusieurs charges électriques sur les ions, agglomération des aérosols dans le champ électrique du précipitateur électrostatique, forme des particules.

Ces études qui sont destinées à préciser les doses de rayonnement absorbées par les travailleurs et à mieux connaître l'atmosphère des mines d'uranium doivent permettre d'abaisser ces doses :

1° en localisant de façon précise les sources de radon et de noyaux de condensation et en essayant de les réduire;

2° en diminuant l'équilibre radioactif entre le radon et ses descendants.

REMERCIEMENTS

Ces recherches ont été effectuées dans le cadre des Laboratoires Associés de Physique des Aérosols, que dirige Monsieur le Professeur Jean BRICARD, du Laboratoire de Physique des Aérosols de la Faculté des Sciences de Paris et avec l'étroite participation de MM. les Professeurs Daniel BLANC et Jacques FONTAN du Centre de Physique Atomique et Nucléaire de Toulouse.

Nous les remercions vivement pour les conseils qu'ils nous ont donnés et pour l'aide constante qu'ils nous ont apportée.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] C.I.P.R. Task group on lung dynamics. *Health Physics*, **13**, 431, (1967).
- [2] CHAMBERLAIN (A.C.) et DYSON (E.D.). *Br. J. Radiol.*, **20**, 317, (1956).
- [3] PRADEL (J.) Symposium de Stockholm, Session n° 5, n° 34, Juin (1967).
- [4] CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), FONTAN (J.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.). *Aérosol science*, sous presses.
- [5] CHAPUIS (A.), LOPEZ (A.), CABROL (C.), FONTAN (J.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.). Staub, à paraître.
- [6] COULIER. *J. Pharm. Chim. Paris*, **22**, 165, (1875).
- [7] POLLACK (T.C.), O'CONNOR. *Geof. Pura et Apli.*, **32**, 139, (1955).
- [8] RENOUX (A.). Thèse docteur ès Sciences 5299, Paris (1965). *Rapport C.E.A. R 2771* (1965).
- [9] MADELAINE (G.). Thèse Doctorat ès Sciences, Paris (1968).
- [10] SOILLEUX (P.J.). *Health Physics*, **18**, 245, (1970).
- [11] BLANC (D.), FONTAN (J.), CHAPUIS (A.), BILLARD (F.), MADELAINE (G.), PRADEL (J.). *Rapport SM 95/3*, A.I.E.A., Vienne (1967).
- [12] CHABOT (A.). Thèse de spécialité n° 899, Toulouse (1970).