CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DE LA POLLUTION DE L'ATMOSPHÈRE DES MINES D'URANIUM

F. BILLARD, G.J. MADELAINE*, A. CHAPUIS,
J. FONTAN et A. LOPEZ**

(Laboratoires Associés de Physique des Aérosols)

(Manuscrit reçu le 8 octobre 1970)

RÉSUMÉ

On précise tout d'abord la notion « d'ions libres » et on rappelle les techniques utilisées pour la détermination de la concentration et de la dimension des particules en suspension dans l'atmosphère des mines d'uranium françaises. La mesure au compteur de noyaux de condensation montre que la concentration moyenne des particules présentes dans l'air de la mine est de l'ordre de $5 \cdot 10^4$ particules/cm³, leur diamètre moyen étant de l'ordre de 0,1 à 0,2 μm . Le spectre de mobilité des particules chargées montre que 60 % du RaA, B et C est fixé sur des particules inférieures à 0,1 μm environ et que moins de 1 % est fixé sur les « ions libres ». Les résultats sont ensuite discutés, comparés à la théorie et à ceux obtenus par différents chercheurs étrangers.

Le radon se désintègre par émission α pour donner du polonium 218 (RaA). Au moment de sa formation, c'est un atome de recul possédant une énergie initiale de l'ordre de 100 keV, 80 % environ de ces atomes atteignent le niveau thermique sous forme d'ions positifs [1]. Ils évoluent très rapidement et donnent par agglomération et recombinaison, soit des particules que l'on peut assimiler à des petits ions positifs, soit des particules ultrafines électriquement neutres. Ces particules se fixent ensuite sur les noyaux de condensation, gros ions et poussières présentes dans l'atmosphère de la mine.

Les descendants du radon (²¹⁸Po, ²¹⁴Pb, etc) peuvent donc exister dans l'atmosphère d'une mine d'uranium sous la forme neutre ou ionisée dans une gamme de dimensions comprises entre quelque 10^{-4} μm jusqu'à plusieurs microns et constituent ainsi la majeure partie de la pollution radioactive de l'air ambiant.

(*) Service Technique d'Etudes de Protection, Commissariat à l'Energie Atomique, Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, France.

(**) Centre de Physique Atomique et Nucléaire, Faculté des Sciences de Toulouse, France.

Les particules, radioactives ou non d'ailleurs, auront un comportement différent dans l'appareil respiratoire des travailleurs suivant leur granulométrie et le calcul des limites de tolérance tient compte de ce facteur essentiel. Pour les mines d'uranium, la C.I.P.R. propose pour le radon une concentration maximale admissible (C.M.A.) de 3.10^{-8} Ci/cm³ pour 40 heures de travail par semaine, le RaA, RaB et RaC étant supposés présents à l'équilibre radioactif. Cette limite a été calculée en considérant la dose délivrée par le RaA sous forme « d'ions libres » dont la fraction présente « f » est supposée égale à 10 % du RaA total. On voit donc l'importance que revêt la connaissance de la répartition de la radioactivité sur les différentes dimensions de particules en suspension dans l'air.

Ce travail a pour but de préciser les derniers résultats que nous avons obtenus tant sur la répartition de la radioactivité que sur la concentration et la granulométrie des particules rencontrées dans l'atmosphère des mines.

I - IONS LIBRES - PARTICULES NON RECOMBINÉES

Il serait utile tout d'abord de préciser la dénomination ions libres « free ions » et atomes non recombines « uncombined » ou « unattached radon daughters », termes rencontrés fréquemment dans la littérature anglo-saxonne.

Les auteurs des principaux travaux traitant de ce sujet [2] [3] [4] [5] [6] appellent « ions libres » ou « particules non recombines » les particules de radium A, B ou C ayant un coefficient de diffusion de $5,4.10^{-2}$ cm² s⁻¹ se référant la plupart du temps aux résultats obtenus par CHAMBERLAIN et DYSON [2] en 1956 et considèrent que cette valeur est bien représentative du coefficient de diffusion des particules non recombines.

Or, il a été montré [7] [8] que si cette valeur correspond bien au coefficient de diffusion des particules de radium A pratiquement à leur naissance, celles-ci se groupent ensuite presque instantanément, d'une façon qui reste encore à préciser, en agglomérats. Ces agglomérats se répartissent en plusieurs groupes de mobilités distinctes et préférentielles, ($k = 2,1 - 1,35 - 0,88 - 0,55 - 0,43$ cm² s⁻¹ V⁻¹), les ions de mobilité $k = 2,1$ cm² s⁻¹ V⁻¹, donc de coefficient de diffusion $D \approx 5.10^{-2}$, étant en proportion relativement très faible [7].

Ces résultats montrent donc qu'avant de se fixer sur les noyaux ou poussières présents, une partie de ces « ions libres » ou « particules non recombines » grossissent et qu'il n'est certainement pas juste de considérer, soit pour des calculs théoriques, soit pour des conceptions d'appareillages, le coefficient de diffusion des particules non recombines comme étant égal à $5,4.10^{-2}$ cm² s⁻¹. Il semble qu'il serait plus conforme à la réalité de prendre un coefficient environ quatre fois moins élevé. On notera que des expérimentations récentes [9] [10] montrent que le coefficient de diffusion de ces ions primaires neutralisés peut atteindre des valeurs de l'ordre de 10^{-1} cm² s⁻¹.

Nous appellerons donc *petits ions* les particules chargées dont la mobilité est comprise entre 2 et $0,4$ cm² s⁻¹ V⁻¹ ($10^{-2} < D < 5.10^{-2}$ cm² s⁻¹) et *particules neutres ultrafines* les particules dont le coefficient de diffusion est compris entre 10^{-1} et 10^{-2} cm² s⁻¹.

II - MESURE DE LA CONCENTRATION ET DE LA DIMENSION DES PARTICULES DANS UNE MINE D'URANIUM

Il est indispensable pour obtenir une valeur précise de la répartition des descendants du radon sur les différentes particules de connaître la concentration et le spectre granulométrique de l'aérosol présent dans l'atmosphère de la mine. Pour essayer de préciser le problème, nous avons procédé à plusieurs séries d'expérimentations en trois emplacements différents :

- au voisinage d'une station météorologique située en pleine campagne en dehors de toute pollution urbaine (cette mesure nous servant de référence),
- à la sortie du ventilateur d'extraction d'un retour d'air général de la mine,
- à l'intérieur même de la mine dans une galerie de retour d'air.

a) MÉTHODES EXPÉRIMENTALES - MOYENS DE MESURE

La mesure de la concentration en particules s'effectue à l'aide d'un compteur de noyaux de condensation de la « General Electric ». Ce compteur détecte les particules de rayon supérieur à 10^{-7} cm environ. On détermine la dimension des particules au moyen de batteries de diffusion, constituées de 200 plaques métalliques verticales de hauteur $b = 10$ cm et de longueur $l = 35$ cm, distantes les unes des autres de $2a = 0,06$ cm.

On mesure la concentration en particules en amont (n_0) et en aval (n) à l'aide du compteur de noyaux. Du rapport n/n_0 on déduit la valeur du coefficient de diffusion apparent de l'aérosol étudié à l'aide de la formule [11] :

$$\frac{n}{n_0} = 0,9099 \exp(-1,885 \mu) + 0,053 \exp(-21,43 \mu) + \dots$$

avec $\mu = Dl/2a \bar{U}$, D désignant le coefficient de diffusion, l la longueur des plaques, $2a$ la distance entre les plaques et $\bar{U}$ la vitesse moyenne à l'intérieur de l'appareil.

On calcule ensuite le rayon apparent des particules par la formule de Stokes-Cunningham :

$$D = \frac{KT}{6 \pi \eta r} \left(1 + 0,86 \frac{\lambda^*}{r} + 0,29 \frac{\lambda^*}{r} e^{-1,25r/\lambda^*} \right)$$

expression dans laquelle K , T , η représentent respectivement la constante de Boltzmann, la température Kelvin et la viscosité de l'air, λ^* est la valeur du libre parcours moyen des molécules d'air utilisé par Millikan et compatible avec les valeurs des constantes.

Il n'est pas inutile de signaler que la valeur du coefficient de diffusion obtenue à partir de la valeur n/n_0 , n'est en réalité qu'un ordre de grandeur. En effet, si l'aérosol est polydispersé, le débit du courant d'air a une influence marquée sur la valeur de D obtenue, autrement dit, pour chaque débit on a une valeur différente du coefficient de diffusion, c'est la raison pour laquelle on appellera « coefficient de diffusion apparent » et « rayon apparent » les valeurs obtenues dans cette série d'expérimentations.

b) RÉSULTAT DES MESURES

1. Station météorologique

Cette station est située en pleine campagne en dehors de toute pollution urbaine. La concentration en particules a été déterminée pendant une période de 24 heures, le temps était ensoleillé mais nuageux. La concentration n'a jamais dépassé 10 000 particules par centimètre cube. La valeur minimum obtenue la nuit est de l'ordre de 800 particules par centimètre cube. Il est intéressant de noter que le nombre des particules décroît après le coucher du soleil pour recroître après son lever.

Ces résultats sont à rapprocher de ceux que nous avons obtenus dans un travail précédent [12] [13] sur la formation de particules en atmosphère préalablement exempte de poussières sous l'action du rayonnement solaire. La variation est à peu près identique. Le lieu de mesure étant très éloigné de toute pollution humaine, il est possible que cette variation de la concentration en particules soit étroitement liée à des phénomènes de nucléation par photolyse. Cette hypothèse a d'ailleurs déjà été émise par VERZAR et EVANS [14] qui ont observé une telle variation diurne à 1 800 m d'altitude sur un sol recouvert de neige.

On a également mesuré le rayon « apparent » des particules à l'aide de la batterie de diffusion, la valeur du coefficient de diffusion apparent est de $D_a = 2,4 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, ce qui donne un rayon de $2,4 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$, ce résultat n'étant évidemment, pour les raisons signalées ci-dessus, qu'un ordre de grandeur.

2. Retour d'air

Les mesures sont effectuées à la sortie du ventilateur d'un retour d'air général de la mine, extrayant l'air de plusieurs galeries situées à différents niveaux. On a suivi tout d'abord la variation du nombre de particules pendant une période de 24 heures.

Il est à signaler que l'exploitation de la mine se fait en deux postes : 5 - 13 h, 13 - 21 h. Le nombre de particules est compris entre 60 000 et 100 000 durant les périodes de travail. Il est d'environ 1 000 particules par centimètre cube pendant la nuit où cesse toute activité.

On a ensuite mesuré au moyen de la batterie de diffusion le rapport n/n_0 pour déterminer le coefficient de diffusion apparent, cette valeur a été déterminée pour deux débits, on a trouvé que pour 6 l/mn le coefficient de diffusion apparent D_a est de $3,8 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ($r_a \approx 7 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$) et que pour 36 l/mn il est de $6,6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ($r_a \approx 6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$). POLLACK et METNIECKS [15] ont montré que le coefficient de

diffusion apparent tendait vers le coefficient de diffusion moyen de l'aérosol au fur et à mesure que la vitesse de l'air à travers la batterie augmente. Il est vraisemblable que pour un débit de 36 l/mn on doit obtenir une valeur du rayon apparent très proche du rayon moyen de l'aérosol. En prenant comme diamètre moyen représentatif de l'ensemble des particules de la mine la valeur 0,12 μm , on ne doit pas être très éloigné de la réalité.

Ces résultats, évidemment très fragmentaires, puisqu'on ne connaît pas la répartition spectrale de l'aérosol, ont été complétés par des mesures effectuées au fond de la mine.

3. Mesures effectuées dans la mine

Pour préciser les résultats, on a effectué des mesures au fond de la mine dans une galerie de retour d'air.

Malgré les conditions très défavorables existantes (humidité relative $> 99\%$) un certain nombre d'expérimentations ont pu être effectuées. La concentration en particules est très variable et change rapidement. Cette variation dépend étroitement de toute modification de l'activité à l'intérieur de la mine : passage de personnel, de locotracteur et évidemment tir de mine. Ces événements peuvent se passer à de grandes distances, mais ils sont assez rapidement détectés, à cause de la vitesse importante de l'air dans les galeries.

La concentration en particules, en l'absence de perturbations évidentes, est comprise entre 20 000 et 70 000 particules/cm³. Le maximum obtenu après un tir de mine se situe aux environs de 85 000 particules/cm³. Un passage de locotracteur à 30 m environ du point de prélèvement a fait monter la concentration en particules jusqu'à une valeur de plus de 150 000 particules par centimètre cube.

On a mesuré également le rayon apparent des particules; il varie en fonction des différentes conditions. Ce rayon a été obtenu à un débit à travers la batterie de 6 l/mn. Les valeurs obtenues sont : dans le cas de pollution normale : $r_a \approx 4,2 \cdot 10^{-6}$ cm; après un passage de locotracteur, le rayon est de $5,5 \cdot 10^{-6}$ cm, il atteint $6,2 \cdot 10^{-6}$ cm après un tir de mine.

Il nous a été extrêmement difficile de procéder à une série complète d'essais en faisant varier la vitesse de passage à travers la batterie, la concentration en amont de celle-ci n'étant pas constante et ses variations très rapides.

4. Conclusion

On constate que la dimension des particules mesurée au fond de la mine ou à la sortie générale du retour d'air varie peu autour d'un rayon moyen de l'ordre de $r = 6 \cdot 10^{-6}$ cm. La concentration moyenne, en dehors de toutes perturbations inhabituelles est de l'ordre de 50 000 particules/cm³; elle semble légèrement inférieure à celle rencontrée dans l'atmosphère des villes, puisque des mesures effectuées à Fontenay-aux-Roses (10 km au sud de Paris) ont donné des concentrations de l'ordre de 80 000 à 100 000 particules/cm³, mais la dimension moyenne est d'environ trois fois supérieure puisque l'on trouve dans ce dernier cas et pour des conditions de mesures identiques $r_a = 2 \cdot 10^{-6}$ cm.

Ces résultats sont évidemment très fragmentaires et l'on se propose, après une adaptation de ces techniques aux conditions particulières de la mine, de systématiser ce genre d'expérimentation.

III - RÉPARTITION DE LA RADIOACTIVITÉ SUR LES DIFFÉRENTES PARTICULES PRÉSENTES DANS LES MINES

A. PARTICULES CHARGÉES

Le spectre de mobilité des particules chargées porteuses de radioactivité a été obtenu par CHAPUIS et LOPEZ [16] [17] [18], en utilisant un tube de Zélény [1]. Par variation de la tension de captation, ils obtiennent alors la répartition représentée dans le tableau I ci-dessous.

TABLEAU I

Dimensions (rayons en cm)	Pourcentage d'activité
$r < 1,1 \cdot 10^{-6}$	1 %
$r < 1,5 \cdot 10^{-6}$	2 %
$r < 1,9 \cdot 10^{-6}$	4 %
$r < 2,2 \cdot 10^{-6}$	6 %
$r < 2,8 \cdot 10^{-6}$	18 %
$r < 3,4 \cdot 10^{-6}$	40 %
$r < 3,8 \cdot 10^{-6}$	50 %
$r < 4,5 \cdot 10^{-6}$	59 %

Ces expérimentations sont effectuées au même emplacement où les mesures sur la totalité des particules ont été faites. Les teneurs en radon sont de l'ordre de $4,4 \cdot 10^{-10}$ Ci/l. Ces résultats sont à rapprocher de ceux que nous avons obtenus dans l'air atmosphérique enrichi en thoron [12]. Pratiquement, dans les deux cas, il n'y a pas de particules radioactives au-dessous de 10^{-6} cm. Ceci signifie que la fraction de la radioactivité fixée sur les « ions libres » est très faible, de l'ordre de 1 % au plus, et vient confirmer les résultats que nous avons obtenus en 1963 [19].

De plus, compte tenu de la concentration moyenne ($50\,000$ particules/cm³) et du rayon apparent des particules ($6 \cdot 10^{-6}$ cm), le temps de vie des ions et des particules neutres ultrafines est extrêmement court.

Les résultats ensuite divergent, en effet pour un rayon de l'ordre de $4 \cdot 10^{-6}$ cm, on ne capte que 30 % environ de la radioactivité fixée sur l'aérosol atmosphérique, tandis que près de 60 % de cette radioactivité est fixée sur l'aérosol chargé en suspension dans l'air des mines. Si l'on continue d'explorer les dimensions supérieures, il faut atteindre $7 \cdot 10^{-6}$ cm pour capter toute la radioactivité fixée sur les particules chargées de l'atmosphère, tandis que dans le cas des mines au-dessus de $4,5 \cdot 10^{-6}$ cm, on ne détecte plus de radioactivité.

Ces résultats appellent quelques remarques.

a) Cette répartition de la radioactivité n'est faite qu'en tenant compte des particules ionisées.

b) Les mesures sont effectuées avec des tubes de Zélény à entrée totale et l'imprécision sur le spectre granulométrique obtenu est grande.

c) On a considéré que toutes les particules chargées captées ne sont porteuses que d'une charge électrique, ce qui n'est certainement pas le cas, surtout dans les mines.

B. PARTICULES NEUTRES

Pour compléter les résultats obtenus sur les particules chargées et les comparer à ceux obtenus sur la totalité des particules mesurées avec le compteur de noyaux de condensation, il était nécessaire d'obtenir des informations sur les particules neutres porteuses de radioactivité. De plus, ces résultats sont importants, car ils peuvent plus aisément être mis en parallèle avec ceux des chercheurs étrangers.

Des mesures effectuées par nous-mêmes sur la variation, pendant plus de 24 heures, du rapport n/n_0 (n_0 : nombre de particules à l'entrée de la batterie; n : nombre de particules à la sortie), nous ont permis de mesurer la variation du coefficient de diffusion apparent de la totalité des particules radioactives (neutres et chargées). Ces mesures ont été effectuées à trois débits différents à travers la batterie, 10, 15 et 28 l/mn. Les résultats sont reportés figure 1. On peut voir qu'il n'y a pratiquement pas de variation du coefficient de diffusion apparent de l'aérosol pendant toute la période de mesure.

Sur la figure 2, on a reporté la variation de D_a et r_a en fonction du débit à travers la batterie. On a une variation du coefficient de diffusion apparent de 2 à 6.10^{-6} cm². s⁻¹, ce qui donne une variation en rayon de 10^{-5} à 6.10^{-6} cm environ. La valeur 6.10^{-6} cm représentant sans doute la mesure la plus approchée du rayon moyen réel de l'aérosol puisque POLLACK et METNIECKS [15] ont montré que pour les grandes valeurs du débit, le coefficient de diffusion tendait vers le rayon moyen de l'aérosol. Ces résultats sont en bon accord avec les résultats obtenus sur la totalité des particules (voir chapitre II, b, 2^o et 3^o) et avec ceux obtenus par les chercheurs de Toulouse.

Toutes ces études ont été faites dans le cadre des Laboratoires Associés de Physique des Aérosols par les chercheurs du Centre de Physique Atomique et Nucléaire de la Faculté des Sciences de Toulouse.

Pour étudier les particules neutres radioactives, différentes batteries de diffusion ont été utilisées, soit des batteries cylindriques, soit des batteries à plaques, les caractéristiques de ces batteries (longueur, diamètre des canaux, débit, etc.) sont variables et adaptées aux différentes catégories de particules à étudier [16] [17].

Plusieurs séries de mesures ont été effectuées :

- a) sur la totalité des particules radioactives (neutres + chargées),
- b) sur les particules neutres uniquement, en éliminant par précipitation électrostatique les ions et particules chargées.

Si la mesure est effectuée sur la totalité des particules radioactives (neutres + chargées) le rayon apparent déterminé à partir du rapport n/n_0 (n_0 : nombre de particules à l'entrée de la batterie, n : nombre de particules à la sortie) est de l'ordre de 6 à 7.10^{-6} cm, correspondant à celui obtenu pour les particules non radioactives présentes dans la mine.

Si la mesure est effectuée sur les seules particules neutres, c'est-à-dire après avoir capté toutes les particules chargées à l'aide d'un condensateur plan ou

cylindrique, le rapport n/n_0 est de l'ordre de 0,95, ce qui signifie que la batterie de diffusion utilisée dans des conditions identiques ne capte pratiquement plus de particules, le rayon apparent est alors de l'ordre de 2.10^{-5} cm. Ces résultats sembleraient montrer qu'il n'y a pas de radioactivité fixée sur les particules neutres dans le domaine de dimensions des particules chargées. Cela revient à dire que la répartition de la radioactivité dépend de la charge des particules, les particules neutres se trouvant dans une gamme de dimensions supérieures à 2.10^{-5} cm.

En d'autres termes, il faudrait admettre que 60 % de la radioactivité, due aux descendants du radon, se trouvent fixés sur des ions de rayon compris entre 10^{-6} et $4,5.10^{-6}$ cm (tableau I) et que les 40 % de la radioactivité restante le sont sur des particules neutres de dimensions supérieures à 2.10^{-5} cm. Comme les ions RaA ne peuvent se fixer que sur les particules présentes et jouer ainsi, compte tenu de quelques réserves, le rôle de traceurs pour l'aérosol support, cela revient à avoir comme composition de l'aérosol minier :

- pas de particules au-dessous de $0,01 \mu\text{m}$,
- une importante concentration d'ions positifs et négatifs dans le domaine de dimension $0,01 < r < 0,05 \mu\text{m}$,
- des particules supérieures à $r = 0,2 \mu\text{m}$ électriquement neutres.

Il semble bien que cela ne puisse être possible, car la présence de particules chargées des deux signes $N^+/N^- \neq 1$, [16] [17] [18] [19] dans le domaine 10^{-6} cm $< r < 5.10^{-6}$ cm entraîne, en vertu des équations d'équilibre, la présence de particules neutres. De plus, il est fortement improbable que les particules de rayon supérieur à 2.10^{-5} cm soient toutes électriquement neutres. A l'équilibre de Boltzmann, pour cette dimension, on ne compte que 20 % de particules électriquement neutres.

En reprenant les résultats obtenus par LOPEZ [17] pour les conditions opératoires suivantes : mobilité limite du capteur à ions (efficacité 100 %) $k_1 = 1,4.10^{-3} \text{ cm}^2. \text{s}^{-1}. \text{V}^{-1}$ ($r \approx 1,9.10^{-6}$ cm); pouvoir d'arrêt de la batterie de diffusion $n/n_0 = 0,95$ pour $D = 4,5.10^{-5} \text{ cm}^2. \text{s}^{-1}$ ($r \approx 1,9.10^{-6}$ cm) on a :

- pourcentage d'activité capté par le tube à ions (particules chargées) : 4 %,
- pourcentage d'activité capté par la batterie de diffusion (particules neutres + chargées) : 30 %.

Si les pouvoirs de captation des deux appareils sont identiques, ce qui est vrai en première approximation [1], on doit donc avoir un pourcentage de radioactivité de l'ordre de 25 % fixé sur des particules neutres de rayon inférieur ou égal à $1,9.10^{-6}$ cm. Ce pourcentage doit correspondre à celui trouvé avec la batterie de diffusion quand toutes les particules chargées sont piégées, or dans ce cas la batterie de diffusion retient moins de 5 % de la radioactivité. Ces résultats semblent donc incompatibles.

Compte tenu des remarques précédentes, il semble qu'il faille donc mettre en doute soit l'une, soit les deux méthodes de mesure utilisées puisque les résultats expérimentaux sont reproductibles [16] [17]. Deux techniques sont utilisées :

1. la captation des particules chargées par la méthode de Zélény,

2. la rétention des particules neutres et chargées par batteries de diffusion.

Dans les deux cas l'exploitation des résultats est délicate et imprécise. En effet, il est très difficile d'obtenir un spectre de mobilité à partir d'un capteur à ions à entrée totale (tube de Zélény) et la batterie de diffusion ne peut donner qu'un ordre de grandeur du coefficient de diffusion moyen de l'aérosol. Cependant, l'imprécision due aux techniques utilisées ne peut à elle seule expliquer les résultats obtenus. L'interprétation tirée des mesures expérimentales repose sur l'hypothèse que toutes les particules chargées ne sont porteuses que d'une charge électrique unitaire.

Examinons successivement ce qui se passe s'il n'en est pas ainsi avec les capteurs à ions et les batteries de diffusion.

1. Capteur à ions

Si l'on considère le pouvoir d'arrêt réel d'un capteur à ions à entrée totale dans les conditions d'utilisation maximale, c'est-à-dire avec la tension nécessaire pour capter la totalité des particules chargées supposées ne porter qu'une charge ($r = 4,5 \cdot 10^{-6}$ cm) [17] et si l'on suppose que l'aérosol de la mine a un rayon moyen de $0,2 \mu\text{m}$, il suffit de 10 charges pour que cet aérosol soit capté à 100 % par le capteur à ions avec un rayon apparent de $4,5 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$. Cette valeur de 10 charges élémentaires sur des particules de $\varnothing = 0,4 \mu\text{m}$ n'est absolument pas extraordinaire si l'on considère le mode de production des particules dans la mine (foration, explosion, etc.). Il n'est donc pas impossible que le spectre granulométrique des particules chargées soit modifié par la présence des charges multiples.

2. Batterie de diffusion

De nombreux auteurs ont déjà signalé l'influence marquée des particules chargées sur le pouvoir d'arrêt d'une batterie de diffusion. FUCHS [20] a calculé l'influence de la charge des particules sur leur dépôt dans une batterie de diffusion, ANDERSON, NOLAN et O'CONNOR [21] notent également, dans le cas des particules porteuses de charges multiples, une différence sensible dans les résultats si l'on ne tient pas compte de la correction. MEGAW et WIFFEN [22] ont montré que pour des sphères de latex de $0,088 \mu\text{m}$ la valeur du coefficient de diffusion mesuré était trois fois plus grande avant qu'après mise à l'équilibre de Boltzmann. Nous-mêmes, au cours d'une série d'expérimentations avec des sphères de latex de $0,36 \mu\text{m}$, avons montré que, non seulement la valeur du coefficient de diffusion des latex chargés était plus élevée, mais que celui-ci variait avec le débit à travers la batterie, il est par exemple de $1,9 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ pour un débit de $0,7 \text{ l/mn}$, il passe à $4,5 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ à 6 l/mn ; si les latex sont préalablement mis à l'équilibre de Boltzmann, la valeur alors mesurée est de $9,4 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, cette valeur est indépendante du débit et correspond à la valeur théorique calculée. On voit donc que pour des particules de $0,36 \mu\text{m}$, on peut obtenir suivant l'état de charge de l'aérosol des variations de D de l'ordre de 2 à 5. Là encore, il n'est pas impossible que les conclusions tirées à partir des mesures effectuées à la batterie de diffusion soient entachées d'une erreur importante. Récemment, JENNINGS et O'CONNOR [27] ont montré avec des particules de D.O.P. chargées ou neutres que les pertes à l'intérieur des batteries de diffusion étaient beaucoup plus grandes que prévu,

notamment par les calculs de FUCHS [20], ce qui a pour effet de diminuer le rayon apparent obtenu.

Toutes ces considérations sont évidemment valables pour les particules radioactives ou non radioactives.

IV - INTERPRÉTATION DES RÉSULTATS

Si certains résultats doivent être interprétés avec réserve, on peut tout de même tirer certaines indications valables pour les mines d'uranium françaises.

— La concentration en particules à l'intérieur de la mine semble assez élevée. Pendant les périodes de travail, les concentrations minimales mesurées sont supérieures à 40 000 particules par centimètre cube.

Peu de mesures de la concentration en aérosol à l'intérieur d'une mine ont été publiées. WRENN *et al.* donnent pour deux mines américaines des concentrations moyennes de l'ordre de 10 000 à 15 000 particules par centimètre cube (mesures au compteur C.N.C. de la « General Electric »). Il est à signaler que dans les mines françaises, l'humidité relative est de l'ordre de 100 % et des véhicules diesel sont utilisés. La teneur en huile est importante puisqu'elle représente en moyenne 38 % en poids de l'aérosol.

— La dimension moyenne des particules est assez élevée; en effet, si l'on considère comme représentatives les valeurs obtenues par batterie de diffusion, le rayon moyen des particules est de l'ordre de 6.10^{-6} cm. Il est à noter que cette valeur est une limite inférieure, car si l'on tient compte des effets électriques, elle augmente encore.

— Enfin, il semble que le pourcentage de radioactivité fixée sur les petits ions et particules neutres ultrafines soit très faible, de l'ordre de quelques pour cent au plus. Vu l'importance de ce dernier point et le désaccord existant entre les différents résultats expérimentaux publiés, on examinera de façon approfondie ce problème du point de vue pratique et du point de vue théorique. On passera d'abord en revue les principaux résultats obtenus; à signaler que la quasi-totalité des mesures ont été effectuées avec des batteries de diffusion.

RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX OBTENUS

Les mesures directes effectuées par CHAMBERLAIN et DYSON [2] donnent des valeurs de « *f* », fraction « d'ions libres », de l'ordre de 10 %, aucune indication n'est donnée quant à la concentration en particules, les auteurs indiquent une humidité relative de 100 %.

FUSAMURA *et al.* [6] utilisant des tubes de 43 cm de long et 1,7 cm de diamètre, trouvent des valeurs de « *f* » échelonnées entre 7 et 35 %. Toutes leurs expérimentations sont calculées en admettant que le coefficient de diffusion moyen des « ions libres » est de $0,054 \text{ cm}^2. \text{s}^{-1}$.

CRAFT *et al.* [3], utilisant également des techniques de diffusion, après étalonnage préalable de leur appareillage, trouvèrent, pour des mines américaines de l'Utah et du Colorado, des pourcentages de radioactivité fixée sur les « particules non recombinaisons » variant de 0 à 73 %. Les auteurs ne donnent aucune mesure de

la concentration en particules et indiquent des humidités relatives comprises entre 60 et 90 %. Les conditions opératoires sont telles que 90 % des particules de coefficient de diffusion $5,4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ sont captées, tandis que 90 % des particules de coefficient $5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ traversent la batterie. Il semble que des valeurs de l'ordre de 73 % soient très élevées et que dans ce cas l'empoussièrement de la mine doit être particulièrement faible.

Des mesures effectuées à la Schwartzwalder et à la Homestake Mine [23] par la méthode de CRAFT donnèrent respectivement 9,4 et 3,2 % de RaA non recombinaison. Les auteurs ne donnent aucune valeur de la concentration en particules. En utilisant les techniques de mesure par diffusion et la méthode d'exploitation de POLLACK et METNIECKS [15], les auteurs obtiennent 90 et même 95 % de RaA fixé sur des aérosols de 0,06 micron de diamètre. Ils concluent que les opérations normales de la mine n'influencent pratiquement pas la granulométrie de l'aérosol minier et que celui-ci est très proche de l'aérosol naturel.

Des mesures effectuées par PALMER *et al.* [24] et par DAHL *et al.* [25] à l'aide d'impacteurs en cascade Casella et Anderson, donnent des pourcentages de radioactivité fixée inférieurs à 10 % sur les particules supérieures à 0,5 μm environ.

Il est bien évident que devant une telle dispersion des résultats, il est extrêmement difficile de tirer des conclusions générales. Il apparaît que les conditions existantes dans chaque mine : hygrométrie, taux du renouvellement de l'air, utilisation de diesel, ou de marteau-piqueur avec de l'huile, conditions atmosphériques extérieures, etc., sont très différentes. Il serait malgré tout particulièrement intéressant de doubler certaines manipulations effectuées avec des batteries de diffusion par des mesures par précipitation électrostatique.

Les pourcentages de l'ordre de 60 ou 70 % sous forme de particules ultrafines neutres ou chargées, ne sont certainement possibles que dans des atmosphères relativement pures. La présence de fumée de diesel ou de brouillard d'huile semble toutefois jouer un rôle important et réduire considérablement le pourcentage de radioactivité fixée sur les « particules non recombinaison ».

Des erreurs peuvent se produire avec les batteries de diffusion si toutes précautions ne sont pas prises : effet de bout, vitesse laminaire, mise à la terre, etc.

Il faut considérer que la validité des différentes mesures dépend de l'hypothèse faite qu'il n'y a aucune particule entre ce que l'on peut appeler l'atome initial de RaA ($D = 5,4 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) et le début des noyaux de condensation, c'est-à-dire des particules ayant un coefficient de diffusion de l'ordre de $10^{-4} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$.

En conclusion, il semble bien que le problème de la fixation de la radioactivité sur les différentes particules présentes dans les mines d'uranium, semble loin d'être parfaitement résolu et que les mesures après un contrôle rigoureux des conditions expérimentales doivent être multipliées pour obtenir des résultats moyens pour chaque opération particulière existant dans la mine. Les Laboratoires Associés de Physique des Aérosols, en plus des études quasi-fondamentales menées sur les problèmes de photolyse, de radiolyse et de physique des aérosols (coagulation, diffusion, étude des ions, etc.), se proposent d'une part de multiplier et d'étendre à d'autres domaines les mesures systématiques déjà effectuées dans les mines et d'autre part de simuler en laboratoire une atmosphère de mine pour l'étude plus précise des phénomènes qui sont susceptibles de régir le comportement du dépôt actif du radon et pour mettre au point des techniques expérimentales appropriées.

VARIATION DU COEFFICIENT DE DIFFUSION APPARENT

FIG. 1

VARIATION DE " D_a " EN FONCTION DU DEBIT

FIG. 2

ANNEXE

CALCUL DE LA FRACTION «f»

Différents auteurs [28] [29] [30] [31] utilisant différentes hypothèses de calcul, ont évalué théoriquement la répartition de la radioactivité sur les particules présentes dans l'atmosphère des mines.

Le calcul peut être abordé de deux façons qui conduisent à des résultats similaires.

PREMIÈRE MÉTHODE

LASSEN et RAU [32] ont défini la valeur du courant d'ions sur une particule. Il peut s'exprimer par :

$$J = \frac{4 \pi r^2 v n}{1 + br} \quad (1)$$

où r est le rayon de la particule, $v = (RT/2 \pi M)^{1/2}$, $b = v/D$, avec D : coefficient de diffusion des atomes de RaA et n le nombre des petits ions par centimètre cube. Cette équation s'applique dans le domaine de dimensions comprises entre 0,05 et 0,5 μm environ. Pour les dimensions supérieures, on a proportionnalité avec le diamètre comme le prévoit la théorie de Smoluchowski et pour les dimensions très petites, on a proportionnalité avec la surface de la particule, comme le prévoit la théorie cinétique des gaz.

O. RAABE [28] [33] montra récemment au contraire que la vitesse d'attachement des descendants du radon était proportionnelle à la surface de la particule, même dans le domaine des dimensions comprises entre 0,04 et 0,5 μm .

Appelons $g(r)$ dr la densité de répartition des particules. On a :

$$\frac{dN}{N} = g(r) dr \quad (2)$$

où dN est le nombre de particules par centimètre cube, de rayon compris entre r et $r + dr$, on a : $\int_0^\infty g(r) dr = 1$.

Le nombre de petits ions radioactifs se fixant sur les particules de rayon r par centimètre cube et par seconde sera :

$$J dN$$

ou encore

$$J dN = N \int_0^\infty \frac{4 \pi r^2 v n}{1 + br} g(r) dr \quad (3)$$

Par ailleurs, l'équation d'équilibre des petits ions radioactifs s'écrit :

$$\lambda n_0 - \lambda n - \int_0^\infty J dN = 0 \quad (4)$$

où λ est la constante de désintégration radioactive, n_0 le nombre total d'atomes radioactifs fixés ou non par centimètre cube; on peut écrire l'équation (4) en posant :

$$B = 4 \pi v N \int_0^\infty \frac{r^2}{1 + br} g(r) dr$$

$$\lambda n_0 - \lambda n - Bn = 0.$$

B étant dans ce cas le taux moyen de fixation des petits ions radioactifs sur une particule. La fraction «f» s'écrira alors :

$$\text{«f»} = \frac{n}{n_0} = \frac{\lambda}{\lambda + B}.$$

La fraction de « particules non recombinaées » dépend essentiellement de la valeur de B . Or, B dépend de l'expression de la vitesse d'attachement et de la fonction de répartition de l'aérosol et de la concentration en particules. Ces deux dernières grandeurs sont très mal connues pour les mines et l'on doit faire un certain nombre d'hypothèses.

Si l'on suppose que l'aérosol minier est similaire à l'aérosol atmosphérique, on peut admettre une répartition en C/r^4 [35] [36].

La fonction $g(r)$ pourra donc s'exprimer ainsi :

$$\begin{aligned} \text{pour } r < r_0 \quad g(r) &= 0, \\ \text{pour } r > r_0 \quad g(r) &= C/r^4. \end{aligned}$$

Avec cette hypothèse, on peut déterminer la valeur de $C = 3 r_0^3$ et obtenir une valeur de r_0 en fonction du rayon moyen $\bar{r}$ défini comme

$$\bar{r} = \int_0^{\infty} r g(r) dr.$$

Cette valeur dans le cas de la fonction en C/r^4 est $\bar{r} = 3/2 r_0$. On peut donc ainsi obtenir la valeur de B

$$B = 4 \pi v N C \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2 (1 + br)} \quad (5)$$

L'intégration donne

$$B = 4 \pi v N C b \left[\ln \frac{br_0}{1 + br_0} + \frac{1}{r_0} \right] \quad (6)$$

L'équation (6) peut s'exprimer en fonction du rayon moyen $\bar{r}$ et on a :

$$B = \frac{3^2}{9} \pi v N \bar{r}^3 \left[b \ln \frac{2/3 b \bar{r}}{1 + 2/3 b \bar{r}} + \frac{3}{2 \bar{r}} \right] \quad (7)$$

Si l'on prend les valeurs obtenues au cours de notre série d'expériences on a : $\bar{r} = 6.10^{-6}$ cm, $N = 5.10^4$ cm $^{-3}$, $v = 3.5.10^3$ cm. s $^{-1}$ et $b = v/D = 7.10^4$. La valeur de B est alors de l'ordre de 6.10^{-2} s $^{-1}$ et « f » = 6 %.

Si maintenant l'on considère avec RAABE que la fixation est proportionnelle au carré du rayon, l'équation (5) s'écrit :

$$B = 4 \pi v N C \int_{r_0}^{\infty} \frac{dr}{r^2} \quad (8)$$

et l'équation (7) devient :

$$B = \frac{16}{3} \pi v N \bar{r}^2$$

ce qui donne pour $B = 0.105$ et « f » = 3,5 %.

Si maintenant on suppose avec BRICARD [34] que les petits ions radioactifs sont des agglomérats de mobilité moyenne 1,4 cm ^{2} . s $^{-1}$. V^{-1} , de diamètre moyen 10^{-7} cm environ, donc constitués d'un atome de polonium et de 12 molécules d'eau en moyenne, c'est-à-dire de masse double de la masse de l'atome radioactif initial, on trouve $D = 3,5.10^{-2}$ cm ^{2} . s $^{-1}$, $v = 2,5.10^3$ cm. s $^{-1}$, $b = 7.10^4$ cm $^{-1}$, la valeur de B sera respectivement de $4,3.10^{-2}$ et $7,5.10^{-2}$ et la valeur de « f » de 8,1 % et 4,8 %.

Il est bien évident que ces calculs ne sont qu'approchés et indicatifs car par exemple on n'a pas tenu compte des proportions du RaB et RaC à « l'état libre » ainsi que des atomes de recul. Quoi qu'il en soit, si nous comparons nos résultats trouvés avec ceux de RAABE [28] [33], les ordres de grandeurs sont comparables.

DEUXIÈME MÉTHODE

Soient n les concentrations (supposées égales) en petits ions naturels de chaque signe, n^+A , n^0A les concentrations en petits ions radioactifs positifs et particules neutres ultrafines, N_0 , N^-

et N^+ les concentrations en noyaux et gros ions de l'air. Si q_A est le nombre d'atomes de RaA apparaissant par centimètre cube et par seconde, on peut écrire :

$$\frac{dn^+_A}{dt} = q_A - n^+_A [\alpha n^- + \beta^+_0 N_0 + \beta^+_- N_- + M + \lambda_A] \quad (9)$$

$$\frac{dn^0_A}{dt} = n^+_A \alpha n^- - n^0_A [\beta^0_0 N_0 + \beta^0_- N_- + \beta^0_+ N_+ + M + \lambda_A] \quad (10)$$

où α représente le coefficient de recombinaison des petits ions négatifs ordinaires sur les ions positifs RaA ($\alpha \approx 1,6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$) et β les coefficients de fixation des petits ions radioactifs sur les noyaux et gros ions, M un coefficient représentant la fixation des particules sur les poussières et λ_A la constante radioactive du RaA.

Si on néglige λ_A et que l'on pose :

$$B_t = \beta^+_0 N_0 + \beta^+_- N_- + M \quad (11)$$

$$B_n = \beta^0_0 N_0 + \beta^0_- N_- + \beta^0_+ N_+ + M \quad (12)$$

à l'équilibre, c'est-à-dire pour $dn^+_A/dt = dn^0_A/dt = 0$, les équations (9) et (10) deviennent :

$$0 = q_A - \alpha n^+_A n^- - B_t n^+_A \quad (13)$$

$$0 = n^+_A n^- - n^0_A B_n \quad (14)$$

Les coefficients B_t et B_n peuvent être appelés indices de pollution. Evaluons maintenant la valeur de ces coefficients, on peut en première approximation, négliger la fixation sur les poussières, admettre que $\beta^+_0 = \beta^0_0 = \beta^0_- = \beta^0_+$, et que pour un rayon moyen de $6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$ la valeur de $\beta^+_- = 2 \beta_0$.

Avec ces hypothèses, on peut écrire que $B_t = B_n = B$ et l'on peut écrire les équations (13) et (14)

$$0 = q_A - \alpha n^+_A n^- - B n^+_A$$

$$0 = \alpha n^+_A n^- - n^0_A B$$

A l'aide de ces deux équations, on peut tirer les valeurs de n^+_A et de n^0_A et l'on a :

$$n^+_A = \frac{q_A}{\alpha n + B} \quad (15)$$

$$n^0_A = n^+_A \frac{\alpha n}{B} \quad (16)$$

En combinant les équations (15) et (16) on a :

$$n^+_A + n^0_A = \left(\frac{q_A}{\alpha n + B} \right) \left(1 + \frac{\alpha n}{B} \right) = \frac{q_A}{B}$$

or, $N_A \lambda_A = q_A$ et finalement on peut écrire :

$$\frac{n^+_A + n^0_A}{N_A} = \frac{\lambda_A}{B} \quad (17)$$

expression qui donne le rapport du nombre d'atomes de RaA libres (petits ions et particules ultrafines) à la concentration totale de particules. Pour un rayon de $6 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$, la valeur de B est donc de $2 \cdot 10^{-6} \times 5 \cdot 10^4 = 0,100$.

Avec ces données expérimentales, nous obtenons donc la fraction de RaA non fixée sur les particules. Elle est de l'ordre de 3,8 %.

CONCLUSION

Ces calculs très simplifiés montrent, pour le cas des mines françaises, un bon accord entre la théorie et l'expérience. Toutefois, il semble que les résultats expérimentaux soient plus faibles que ne le laisse prévoir la théorie puisqu'il apparaît que, compte tenu de la précision des expériences, la proportion de particules non fixées sur les noyaux soit très faible, de l'ordre de 1 à 2 %, alors que les calculs donnent des résultats de l'ordre de 4 à 8 %. Cette différence peut provenir soit des hypothèses et approximations faites pour les calculs, soit d'un manque de précision quant aux données expérimentales, notamment en ce qui concerne le diamètre moyen des aérosols, mesure la plus sujette à caution.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] RENOUX A. Thèse Docteur ès Sciences, Paris, 1965, *Rapport CEA-2771*.
- [2] CHAMBERLAIN A.C., DYSON E. The dose to the trachea and bronchi from the decay products of radon and thoron. *Brit. J. Radiol.*, 1956, 3171.
- [3] CRAFT B., OSER J., NORRIS W. A method for determining relative amounts of combined and uncombined radon daughter activity in underground uranium mines. *Amer. Ind. Hyg. Ass. Journal*, 1966, 154-159.
- [4] HAQUE A.K., COLLINSON A. Radiation dose to the respiratory system due to radon and its daughter products. *Health Physics*, 1967, 13, 431-443.
- [5] DUGGAN M., HOWELL D. The measurement of the unattached fraction of airborne RaA. *Health Physics*, 1969, 17, 423-427.
- [6] FUSAMURA N., KUROSAWA R. Determination of *f*-value in uranium mine air, Vienne, 3-7 juillet 1967.
- [7] GIROD P., Spectre de mobilité des petits ions radioactifs, Thèse Docteur-Ingénieur, Paris, 1965.
- [8] BRICARD J., BILLARD F., BLANC D., CABANE M., FONTAN J. Structure détaillée du spectre de mobilité des petits ions radioactifs dans l'air. *C.R. Acad. des Sciences de Paris*, 1966, 263, 761-764.
- [9] PORSTENDÖRFER. J. Geladene und Neutrale Radon-Folgeprodukte in Luft. *Zeit. für Physik*, 1968, 384-396.
- [10] FONTAN J., BLANC D., HUERTAS M.L., MARTY A.M. Mesure du coefficient de diffusion de particules radioactives neutres ultrafines. Colloque de Toulouse, 1968.
- [11] GORMLEY P., KENNEDY M. Diffusion from a stream flowing through a cylindrical tube. *Proc. Roy. Irish Acad.*, 1949, 52 [A12] 163.
- [12] MADELAINE G. Formation et évolution des aérosols dans l'air filtré et dans l'air naturel, Action de la radioactivité. Thèse Docteur ès Sciences, Paris, 1968.
- [13] BILLARD F., BRICARD J., CABANE M., MADELAINE G. Etude des noyaux de condensation qui se forment dans l'obscurité et sous l'action de la lumière, dans l'air exempt d'aérosols. *C.R. Acad. Sciences Paris*, 1967, 265, 1173-1175.
- [14] VERZAR F., EVANS H.D. Production of atmospheric condensation nuclei by sunrays. *Geofisica pura e appl.*, 1959, 43, 259.
- [15] POLLACK L., METNIECKS A. On the determination of the diffusion coefficient of heterogeneous aerosols by the dynamic method. *Geofisica pura e appl.*, 1957, 37, 183.
- [16] CHAPUIS A. Mesures de la concentration du radon et de la granulométrie des ions radioactifs dans une mine d'uranium. *Thèse de spécialité*, Toulouse, 1966.
- [17] LOPEZ A. Mesure de la granulométrie des aérosols radioactifs dans une mine d'uranium. *Thèse de spécialité*, Toulouse, 1969.
- [18] BLANC D., FONTAN J., CHAPUIS A., BILLARD F., MADELAINE G., PRADEL J. Dosage du radon et de ses descendants dans une mine d'uranium, Colloque *A.I.E.A.*, Vienne, juillet 1967.

- [19] BILLARD F., MADELAINE G., MIRIBEL J., PRADEL J. Méthode de mesure du radon dans les mines d'uranium. Colloque sur la protection radiologique, Vienne, 1963.
- [20] FUCHS N.A. *The mechanics of aerosols*, Pergamon Press, 1964.
- [21] ANDERSON F., NOLAN P.J., O'CONNOR T.C. Electrostatic deposition in ionic diffusion experiments. *Proc. of the Royal Irish Acad.*, 1968, 66, 69-78.
- [22] MEGAW W., WIFFEN R.D. Measurement of the diffusion coefficient of homogeneous and other nuclei. *J. Rech. Atmosph.*, 1963, 113-125.
- [23] HOLLEMAN D.F. Radiation dosimetry for the respiratory tract of uranium miners. *Special Report USAEC, n° AT (11-1) 500*, 1968.
- [24] PALMER H., PERKINS W., STUART B.O. *Health Physics*, 1964, 10, 1129-1135.
- [25] DAHL A.H., SCHIAGER K. Radon progeny inhalation study, COO 1500-3, 1967.
- [26] Health and Safety Laboratory, Semi-annual report 1968, USAEC, New York.
- [27] JENNINGS S.G., O'CONNOR T.C. Diffusion coefficients of charged aerosol particules. *7th I.C.C.N. Prague* 1969.
- [28] RAABE O.G. Concerning the interactions that occur between radon decay products and aerosols. *Health Physics*, 1969, 17, 177-185.
- [29] HAQUE A., COLLINSON A.D. Radiation dose to the respiratory system due to radon and its daughter products. *Health Physics*, 13, 431-443.
- [30] ALTSHULER B., NELSON N. Estimation of lung tissue dose from the inhalation of radon and daughters. *Health Physics*, 1964, 10, 1137.
- [31] JACOBI W. The dose to the human respiratory tract by inhalation of short-lived ^{222}Rn and Rn decay products. *Health Physics*, 1964, 10, 1163.
- [32] LASSEN L. Die Anlagerung von Zerfallsprodukten der natürlichen Emanationen an elektrisch geladene Aerosol. *Zeit. für Phys.*, 1961, 163.
- [33] RAABE O.G. The adsorption of radon daughters to some polydisperse submicron polystyrene aerosols. *Health Physics*, 1968, 14, 397.
- [34] BRICARD J., PRADEL J. *Electrical charge and radioactivity of naturally occurring aerosols*, *Aerosol Science*. Academic Press, Londres.
- [35] PASCERI A., FRIEDLANDER S.K. Measurement of the particle size distribution of the atmospheric aerosol. *Journal of the Atmosph. Sciences*, 1965, 22, 577.
- [36] WHITBY K.T., CLARK W. Electric aerosol particle counting and size distribution measuring system for the 0,015 to 1 μ size range. *Tellus*, 1966, 18, 573.