Données actuelles sur la composante radioactive de la pollution de l'air dans les mines d'uranium (*)

A. RENOUX (**), G. MADELAINE (***), P. ZETTWOOG (***)

(Manuscrit reçu le 5 mai 1982)

RÉSUMÉ

Une radioprotection efficace des travailleurs opérant dans les mines d'uranium nécessite une bonne connaissance de la composante radioactive de l'aérosol minier. Dans ce but, des expériences ont été développées dans la mine de Fanay, à La Crouzille près de Limoges. Menées essentiellement sur le dépôt actif du radon 222, dont on montre que la nuisance potentielle est la plus importante, elles portent sur le déséquilibre radioactif entre le radon et ses descendants, la fraction libre, la distribution granulométrique et l'état de charge électrique de l'aérosol radioactif minier.

ABSTRACT

An efficient radiation protection of uranium mine workers requires that the radioactive component of the mine aerosol be well known. Investigations were developed to that purpose in the Fanay mine, La Crouzille near Limoges. Carried out mainly on radon 222 daughters, whose potential hazard is demonstrated to be the main one, they considered the radioactive disequilibrium between radon and its daughter-products, the free fraction, the particle size distribution and the electric charge of the mine radioactive aerosol.

I. INTRODUCTION

Dans les chantiers souterrains, l'atmosphère se charge de différentes sortes de polluants sous forme de gaz, d'aérosols ou de poussières [4, 12]. Ces polluants entraînent, pour les travailleurs, des risques sanitaires à court ou à long terme, que les services de sécurité doivent minimiser. Dans cet article, on s'intéressera à la composante radioactive de cette pollution. Du reste, si, dans une mine d'uranium, les roches présentant une certaine radioactivité naturelle, le risque sanitaire lié à cette composante

(*) Communication présentée au Colloque sur les techniques de radioprotection des travailleurs de l'énergie nucléaire, Cadarache, 5-7 mai 1981.

(**) Laboratoire de physique des aérosols et de transfert des contaminations, Université Paris XII, 94000 Créteil.

(***) Commissariat à l'énergie atomique, IPSN/DPr/STEP, Service de protection technique, BP 6, 92260 Fontenay-aux-Roses.

existe toujours, une étude récente des Communautés européennes [2] montre qu'il ne faut pas non plus le négliger dans certaines mines métalliques non uranifères, ni même, bien sûr, au cours du creusement des galeries dans certains massifs granitiques.

Dans une mine d'uranium, la composante radioactive de la pollution de l'air comprend trois sous-composantes :

- Les isotopes du radon (222, 220, 219) provenant de la décroissance des isotopes du radium, eux-mêmes, généralement en équilibre radioactif avec leur tête de file respective (^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th).

- Les descendants à vie courte des isotopes du radon, provenant de la désintégration des atomes de ce gaz dans l'air. Solides à l'état naturel (isotopes du Pb, Bi, Po), ils se fixent rapidement sur les particules présentes dans l'air [14].

- Les poussières de minerai, mises en suspension dans l'air au cours des opérations d'extraction, et trop fines pour sédimenter.

II. NUISANCE POTENTIELLE COMPAREE DES TROIS SOUS-COMPOSANTES DE LA POLLUTION RADIOACTIVE DE L'AIR DES MINES D'URANIUM

Dans le cas d'un minerai d'uranium à un pour mille contenant 10 ppm de ^{232}Th , la théorie simplifiée ne prenant en compte que l'influence des périodes radioactives indique que les flux des isotopes 222, 220 et 219 du radon devraient être entre eux, respectivement, comme les nombres 1 ; $4,7 \cdot 10^{-5}$ et $1,5 \cdot 10^{-4}$. Une analyse plus fine prenant en compte le fait que les atomes parents de ces isotopes (isotopes 226, 224, 223 du radon), ne sont pas situés aux mêmes endroits dans les associations minéralogiques, indique que le flux de ^{220}Rn est surestimé par la théorie simplifiée. Celle-ci est cependant la base de la comparaison qui suit, qui surestime donc la nuisance relative du ^{220}Rn .

Dans les chantiers miniers, on s'arrange, grâce à un aérage suffisant, pour que les concentrations en ^{222}Rn soient au plus égales à $2,22 \text{ Bq l}^{-1}$, soit 10^6 atomes l^{-1} , ce qui, pour un ouvrier travaillant 2000 h, correspond à une limite annuelle d'exposition égale à $2,22 \text{ Bq} \times 2000 \text{ l}^{-1}$.

II.1. Les isotopes du radon et leurs descendants à vie courte

Les atomes de radon qui sont inhalés se désintègrent dans le poumon et sont sources d'irradiation par les émetteurs alpha. Leurs descendants à vie courte, notamment les isotopes du polonium, émetteur alpha, restent dans le poumon et constituent, eux aussi, des sources d'irradiation alpha. Les irradiations bêta (isotopes du plomb et du bismuth) existent également, mais leur contribution à l'effet biologique est négligeable devant celle des alpha.

Portés généralement par les noyaux de condensation (ainsi que nous le montrerons plus loin), les descendants des isotopes du radon, tout comme l'aérosol minier, sont aussi inhalés et une fraction d'entre eux se dépose dans les poumons. De ce fait, soit parce qu'il est lui-même émetteur alpha, soit parce qu'il va engendrer un émetteur de ce type, chaque descendant

Fig. 1. — Pour une concentration initiale en radon ^{222}Rn de 10^6 atomes l-1 :

- 1 Débit d'énergie délivré au poumon par le ^{222}Rn .
- 2 Débit d'énergie délivré au poumon par le ^{219}Rn .
- 3 Débit d'énergie délivré au poumon par le ^{220}Rn .
- 4 Débit d'énergie α potentielle dû aux descendants à vie courte du ^{222}Rn au poumon
- 5 Débit d'énergie α potentielle dû aux descendants du ^{219}Rn au poumon.
- 6 Débit d'énergie α potentielle dû aux descendants du ^{220}Rn au poumon.
- 7 Débit d'énergie α potentielle "15 jours" au poumon dû aux émetteurs α à vie longue de 1 mg.m^{-3} à 1 %

inhale est une source potentielle d'irradiation alpha. On peut donc, à toute concentration dans l'air d'un descendant à vie courte (exprimée en atomes $\cdot m^{-3}$) associer l'énergie potentielle alpha qui pourra être délivrée au poumon si les atomes correspondants sont inhalés et s'y déposent (joule $\cdot m^{-3}$). La figure 1 représente l'évolution du débit de l'énergie alpha potentielle au poumon, due à chaque isotope du radon et à ses descendants à vie courte, en considérant un volume d'air unité pollué par les isotopes du radon émis par du minerai à un pour mille et 10 ppm de thorium, et renfermant 10^6 atomes de radon par litre [8].

Sur cette figure, on constate que la contribution essentielle est celle des descendants à vie courte du ^{222}Rn . Pour fixer l'ordre de grandeur de l'importance de cette radioactivité, rappelons que la Commission internationale de protection radiologique (CIPR) recommande de limiter l'énergie alpha potentielle des descendants à vie courte du ^{222}Rn , inhalé annuellement, à 20 mJ : sur la base de 2000 h de travail par an, la limite dérivée de débit d'énergie alpha potentielle est de $10 \mu\text{J}\cdot\text{h}^{-1}$ [6, 9].

II.2 Les poussières de minerai

Les radioprotectionnistes estiment que les radionucléides susceptibles de délivrer les doses les plus importantes sont les cinq émetteurs alpha à vie longue de la chaîne ^{238}U . Une fois incorporés, tous ces radionucléides constituent, pour l'organisme, des sources alpha d'intensité constante, l'irradiation des organes ne s'arrêtant que lorsqu'ils sont éliminés biologiquement.

Dans le tableau I, on indique les concentrations de ces radionucléides, dans une atmosphère en travaux souterrains, chargée à $1 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ de poussières de minerai à un pour mille. La valeur de $1 \text{ mg}\cdot\text{m}^{-3}$ pour un minerai à un pour mille peut être considérée comme une valeur de référence en-dessous de laquelle il convient de se maintenir si l'on veut respecter les limitations sur l'exposition annuelle aux émetteurs alpha à vie longue. En effet, l'activité volumique de chaque radionucléide est alors de $0,11 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$. Sur la base de 2000 h de travail par an et d'un débit inhalé de $1,2 \text{ m}^3\cdot\text{h}^{-1}$, l'activité totale inhalée est de 1320 Bq, à comparer avec la limite annuelle recommandée par la CIPR (1700 Bq) [6, 9].

Supposer que les cinq émetteurs à vie longue sont en équilibre radioactif est une hypothèse simplificatrice qu'il convient de vérifier pour chaque minerai. L'équilibre des quatre premiers émetteurs est assez bien atteint pour des gisements anciennement en place, dans toutes les parties des minéraux uranifères, donc dans les poussières. Par contre, ^{210}Po , issu du radon et de période relativement courte, n'est pas, au niveau des minéraux de base, à la place occupée par ses parents à vie longue. Il peut aller dans les joints de grains non radifères, formant des poussières enrichies en ^{210}Po . On a mesuré une activité ^{210}Po égale à deux fois celle de ^{238}U .

Les colonnes 5 et 6 du tableau I fournissent l'énergie produite au bout de 15 jours et de 2 ans de rétention pour chacun des radionucléides présents à raison de $0,11 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ dans chaque mètre cube d'air inhalé.

Sur la figure 1, on a représenté le débit de l'énergie alpha potentielle "15 j" au poumon due aux émetteurs alpha à vie longue, dans les conditions identiques à celles du tableau I.

TABLEAU I

1 Radionucléide	2 Période	3 Energie par désintégration (MeV)	4 Concentration (atomes .m ⁻³)	5 Energie délivrée (J .m ⁻³)		6
				après 15 j de rétention	après 2 ans de rétention	
²³⁸ ₉₂ U	4,9.10 ⁹ a	4,2	2,5.10 ¹⁶	10 ⁻⁷	4,8.10 ⁻⁶	
²³⁴ ₉₂ U	2,5.10 ⁵ a	4,7	1,3.10 ¹²	1,1.10 ⁻⁷	5,3.10 ⁻⁶	
²³⁰ ₉₀ Th	8.10 ⁴ a	4,7	4,1.10 ¹¹	1,1.10 ⁻⁷	5,3.10 ⁻⁶	
²²⁶ ₈₈ Ra	1617 a	4,8	8,2.10 ⁹	1,1.10 ⁻⁷	5,4.10 ⁻⁶	
²¹⁰ ₈₄ Po	138 j	5,3	1,9.10 ⁶	1,2.10 ⁻⁷	5,9.10 ⁻⁶	
Total				5,5.10 ⁻⁷	2,7.10 ⁻⁵	

Le tableau II montre, pour cinq organes ou tissus, l'équivalent de dose engagé pondéré (Sv) correspondant à l'inhalation de 1 Bq de chacun des radionucléides. On a fait des hypothèses sur la répartition de chaque nucléide dans les différentes parties de l'organisme, ainsi que sur les temps de rétention dans chaque organe. Le plus critique est le poumon, à cause des deux uraniums et du thorium, suivi de l'os à cause du radium.

TABLEAU II

Radionucléide Organe	²³⁸ U	²³⁴ U	²³⁰ Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Po	Total
Moelle osseuse			8,4.10 ⁻⁶			8,4.10 ⁻⁶
Poumon	3,2.10 ⁻⁵	3,6.10 ⁻⁵	3,6.10 ⁻⁵	1,9.10 ⁻⁶	1,5.10 ⁻⁶	1,1.10 ⁻⁴
Cellules endosteales			2,6.10 ⁻⁵	2,3.10 ⁻⁷		2,6.10 ⁻⁵
Reins					2,3.10 ⁻⁷	2,3.10 ⁻⁷
Rate					4.10 ⁻⁷	4.10 ⁻⁷

II.3. Influence de la granulométrie et de l'état de charge des aérosols radioactifs sur la nuisance radiologique, sur sa mesure et sur sa prévention

Dans les mines d'uranium, la nuisance radiologique qui résulte de l'inhalation des aérosols radioactifs est une des nuisances fondamentales. Il est donc nécessaire d'avoir une connaissance approfondie de l'aérosol minier radioactif afin de pouvoir maîtriser la nuisance radiologique qui lui est associée. Parmi les caractéristiques physiques de cet aérosol, deux éléments retiennent particulièrement l'attention : sa granulométrie, et son état de charge électrique qui déterminent, en effet :

a) l'importance des phénomènes de dépôt des aérosols sur les parois des galeries de la mine, qui peut conditionner de façon substantielle la teneur de l'air de la mine en descendants à vie courte ;

b) la fraction effectivement inhalable et les dépôts sur les différents compartiments pulmonaires, ainsi que l'efficacité biologique des émetteurs, donc la correspondance entre énergie alpha potentielle (joule) et l'équivalent de dose engagé pondéré (sievert) ;

c) l'efficacité de prélèvement des appareils de contrôle de la radioactivité de l'air et des dosimètres alpha ;

d) les performances des épurateurs fixes ou individuels destinés à protéger les travailleurs.

III. CARACTÉRISTIQUES PHYSIQUES DE L'AÉROSOL RADIOACTIF MINIER

III.1. Origine des aérosols radioactifs présents dans l'air d'une mine d'uranium

Aussitôt formé, le radon se dégage et diffuse dans l'air de la mine. Ses descendants, solides dans les conditions normales, se fixent sur les particules présentes dans l'air et, bien que produits par désintégration alpha, ils sont, au moment de leur formation, porteurs d'une charge électrique positive. Ils constituent l'aérosol radioactif qu'on peut séparer en trois groupes :

1. *La fraction libre.* Dans les modèles dosimétriques qui permettent de calculer la dose reçue par les poumons par joule d'énergie alpha potentielle inhalée, on constate que celle-ci est très sensible à la fraction libre. Paradoxalement, ce terme n'est pas toujours parfaitement défini. Pour notre part, nous adopterons la formulation donnée par BILLARD et MADELAINE [3, 12] distinguant, dans la fraction libre :

— des petits ions, particules chargées électriquement, de mobilité électrique k comprise entre 2 et $0,4 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$, de coefficient de diffusion D compris entre $5 \cdot 10^{-2}$ et $10^{-2} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, de rayon R compris entre $3 \cdot 10^{-4} \text{ } \mu\text{m}$ et $10^{-3} \text{ } \mu\text{m}$, presque tous portant une charge électrique positive [14] ;

— des particules neutres ultrafines, de coefficient de diffusion D compris entre 10^{-2} et $10^{-1} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, de rayon R compris entre $3 \cdot 10^{-4} \text{ } \mu\text{m}$ et $10^{-3} \text{ } \mu\text{m}$.

De ce fait, la fraction libre est composée essentiellement de particules électriquement positives et neutres, de rayons compris entre $3 \cdot 10^{-4} \mu\text{m}$ et $10^{-3} \mu\text{m}$. Constituée par les descendants à vie courte du radon non encore fixés sur les particules solides ou liquides de l'air, elle correspond au mode de nucléation de la *Physique des aérosols*.

2. *Les noyaux de condensation radioactifs*, dont les dimensions sont supérieures à quelques $10^{-3} \mu\text{m}$, et portant ou non des charges électriques. Électriquement chargés, ils prennent le nom de "*gros ions*". Tous constituent la fraction des particules fines constituant le mode d'agglomération.

3. *Les poussières et noyaux géants*, de dimension supérieure à $10^{-5} \mu\text{m}$, constituant le mode des grosses particules.

Enfin, on trouve également les *poussières de minerai* dont nous dirons quelques mots plus loin.

III.2. Localisation des expériences

L'aérosol minier a été étudié, en France, dans la mine expérimentale du Service de protection technique à La Crouzille (mine de Fanay), par Barzic et Duport [1, 7]. Des expériences ont également été menées en chantier exploité (point 132 de la mine de Margnac, de type sous dalles bétonnées). Rappelons que, dans les travaux, on distingue cinq phases principales :

- a) La foration : les mineurs forent des trous d'environ 2 m de profondeur, et y placent une charge de dynamite ;
- b) Le tir, pendant lequel on arrête la ventilation ;
- c) L'après tir : on rétablit la ventilation ; les fumées produites par l'explosion sont évacuées ;
- d) Le déblayage assuré par les engins diesels ;
- e) L'aménagement pendant lequel il n'y a pas d'extraction du minerai. Les mineurs sont occupés au "boisage" du chantier, au coulage d'une dalle de béton, ou à la pose de grillages de protection.

III.3. Etat d'équilibre entre le radon et ses descendants

On appelle fraction d'équilibre le rapport entre l'activité d'un descendant donné et celle du gaz radioactif "père" (ici le radon), soit F_A pour le RaA (^{218}Po), F_B pour le RaB (^{214}Pb), F_C pour le RaC (^{214}Bi) ; $F_i = 1$ s'il y a équilibre entre le radon et son descendant de rang i .

1. *Mine expérimentale hors activité* : On trouve en moyenne : $F_A = 0,46$; $F_B = 0,22$; $F_C = 0,12$

2. *Chantiers en activité* : Les résultats sont plus dispersés et sont résumés dans le tableau III.

TABLEAU III

F_A	F_B	F_C
0,26	0,039	0,03
0,25	0,015	$8 \cdot 10^{-4}$
0,45	0,054	0,003
0,43	0,047	0,006

L'existence d'un déséquilibre aussi marqué entre le radon et ses descendants montre que ce gaz est jeune et qu'il ne s'accumule pas dans le chantier, ce qui est important pour la radioprotection.

DUPORT [7] a montré que les concentrations en RaA, RaB, RaC varient sensiblement suivant une loi exponentielle décroissante, en fonction du débit Q de l'air dans la mine : $C_i = C_{oi} \exp(-0,32 Q)$ pour des débits Q inférieurs à $8 \text{ m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$. C_i est la concentration de l'élément i (RaA, B ou C) dont la concentration serait C_{oi} à débit nul.

III.4. Répartition granulométrique de la radioactivité alpha dans une mine d'uranium

Soit n_A^+ la concentration du descendant primaire du gaz radioactif ($\text{Ra} \rightarrow \text{RaA}$; $\text{Th} \rightarrow \text{ThA} \dots$) qui, nous l'avons vu, est chargé positivement. Quand l'équilibre est réalisé,

$$\frac{dn_A^+}{dt} = q_A - n_A^+ (\alpha n^- + M + \lambda_A) = 0 \quad [5, 14]$$

q_A est le nombre d'atomes radioactifs apparaissant par cm^3 et par seconde,

n^- est la concentration de l'air en petits ions négatifs ordinaires,

M est une sorte d'indice de pollution, produit du nombre (par cm^3) de particules par un coefficient de fixation bêta, dont on connaît les valeurs en fonction du rayon R, et qui dépend de l'état de charge et de la granulométrie des particules,

λ_A est la constante radioactive du RaA.

De ce fait, si on connaît la concentration de l'air de la mine en gaz radioactif et l'état d'équilibre de ce gaz avec ses descendants ainsi que la granulométrie de l'aérosol préexistant, on peut, à partir de la théorie, prévoir, pour chaque condition rencontrée dans une mine d'uranium, la répartition granulométrique de la radioactivité de son atmosphère.

1. Fraction libre

Par son influence sur la concentration maximale admissible du radon, la valeur de la fraction libre f, telle que nous l'avons définie précédemment, a une grande importance dans la radioprotection des mines d'uranium, comme le montre la figure 2 [10].

Fig. 2. — Valeurs du coefficient de correspondance entre l'équivalent de dose effectif et l'énergie alpha potentielle inhalée en fonction de la fraction libre et du diamètre aérodynamique médian (DAM) des noyaux de condensation porteurs de la radioactivité (Modèle de James Birchall), d'après [10].

Les valeurs moyennes observées ont été :

$$f_A = 0,30 \text{ (RaA)} \quad f_B = 0,16 \text{ (RaB)} \quad f_C = 0,15 \text{ (RaC)}$$

DUPORT a pu expliquer ces résultats à partir de la théorie de BRICARD [5]. Il faut insister sur le point que ces résultats ont été obtenus dans une mine laboratoire, sans activité d'exploitation, avec un aérage constant. L'aérosol atmosphérique, en faible concentration ($15\,000 \text{ particules.cm}^{-3}$) est entraîné par la ventilation dans la mine, où il rencontre une atmosphère enrichie en radon (concentration de l'ordre de $7,4 \text{ Bq.l}^{-1}$). Les valeurs de f obtenues dans ces conditions sont importantes, mais influencées fortement par des variations de la concentration et de la distribution granulométrique de l'aérosol initial. Quelques expériences menées en chantier par J.Y. BARZIC [1] montrent que f diminue lorsque la concentration de l'air de la mine en noyaux de condensation augmente, sa réduction étant encore accentuée par la présence de fumées de diesel ou de tirs ainsi que de brouillards d'huile. Mais il s'agit là de mesures fragmentaires, et il serait utile d'effectuer une campagne de mesures systématiques de f dans les chantiers exploités des mines d'uranium en France, la méthode la plus efficace à retenir semblant être celle du tube de diffusion [7].

2. Granulométrie de l'ensemble de l'aérosol radioactif

L'aérosol présent dans une mine d'uranium comprend :

- l'aérosol atmosphérique aspiré par l'aérage ;
- l'aérosol produit par les différentes opérations d'extraction ;
- les particules ultrafines provenant des désintégrations de la chaîne du radon et produites par radiolyse des impuretés gazeuses de l'air [12].

Dans la mine, l'aérosol radioactif sera surtout dû à la combinaison, par coagulation, de la première et de la troisième catégories.

2.1. Les noyaux de condensation radioactifs

Dans la mine expérimentale hors exploitation, DUPORT [7] indique les valeurs suivantes obtenues à l'aide d'une batterie de diffusion de 200 plaques et résumées dans le tableau IV :

TABLEAU IV

Coefficient de diffusion apparent $D(10^{-6} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1})$			Rayon apparent $R (\mu\text{m})$		
RaA (^{218}Po)	RaB (^{214}Pb)	RaC (^{214}Bi)	RaA	RaB	RaC
5,9	5,3	5,6	0,056	0,060	0,059

En ce qui concerne l'ensemble des noyaux de condensation radioactifs, DUPORT obtient un rayon moyen $R = 0,05 \mu\text{m}$, plus élevé que le rayon moyen de l'ensemble des noyaux de condensation (radioactifs et non radioactifs) $R = 0,038 \mu\text{m}$ (concentration $15\,000 \text{ cm}^{-3}$).

2.2. Répartition granulométrique de la radioactivité alpha dans une mine d'uranium

a) Mine expérimentale

La figure 3 indique la répartition cumulée de la radioactivité alpha de la mine expérimentale hors exploitation. La majeure partie de la radioactivité alpha (90 % environ) se trouve sur des aérosols de rayon inférieur à $0,42 \mu\text{m}$, le maximum se situant dans le domaine (en rayon) $10^{-2} \mu\text{m}$ — $0,15 \mu\text{m}$. PALMER et al [13] ont trouvé un résultat identique (majeure partie de la radioactivité alpha fixée sur des particules de rayon inférieur à $0,25 \mu\text{m}$). On remarque, enfin, que 46 % environ de l'activité alpha totale sont sur des aérosols de rayon inférieur à $2 \cdot 10^{-2} \mu\text{m}$, en bon accord avec les mesures de LE GAC, RENOUX et TYMEN [11, 14, 17] en atmosphère naturelle, MADELAINE [12] en atmosphère artificiellement enrichie en radon.

Fig. 3. — Répartition granulométrique de la radioactivité alpha de la mine expérimentale.

b) En chantier

Opérant avec un impacteur Andersen à sept étages dont il a, expérimentalement (et dans la mine), déterminé le rayon moyen de chaque étage, BARZIC [15] obtient, pour l'aménagement, la foration et le déblayage, les résultats suivants (tableau V) :

TABLEAU V

Aménagement	rayon moyen (μm)	> 0,77	0,72	0,65	0,31	< 0,15
	% radioactivité	0	2,39	4,36	9,09	84,16
Foration	rayon moyen (μm)	> 1,53	1,09	0,78	0,38	< 0,15
	% radioactivité	0	2,92	5,49	9,90	81,69
Déblayage	rayon moyen (μm)	> 1,15	0,63	0,29	0,24	< 0,15
	% radioactivité	0	1,24	3,61	7,83	87,32

Bien entendu, les résultats obtenus en chantier sont moins précis que ceux provenant de la mine expérimentale. On peut, quand même, remarquer que l'aérosol radioactif est plus fin au cours du déblayage que lors de l'aménagement et de la foration. En plus, et il s'agit là d'un résultat très important pour la radioprotection des mineurs, on constate que, dans la mine en exploitation (et il en est de même, du reste, en mine expérimentale),

la radioactivité alpha portée par les grosses particules ($R > 1 \mu\text{m}$) est très faible : pratiquement nulle lors de l'aménagement et du déblayage, elle atteint à peine 3 % de l'activité alpha totale au cours de la foration.

Une dernière remarque : l'impacteur Andersen est particulièrement bien adapté à la détermination de la répartition granulométrique de l'aérosol minier à condition de prendre certaines précautions. En effet, si on n'y prend garde, la fraction libre, du fait de son coefficient de diffusion élevé, se fixe sur les premières étapes de l'impacteur, faisant croire à la présence de particules radioactives de grand diamètre qui, en fait, n'existent pas dans l'air de la mine. Il faudra donc, à chaque fois, placer devant l'impacteur une batterie de diffusion qui éliminera la fraction libre.

A titre indicatif, signalons que des mesures pondérales effectuées dans la mine en exploitation ont donné des teneurs en poussières de $6,1 \text{ mg.m}^{-3}$ pendant la foration et de $1,27 \text{ mg.m}^{-3}$ pendant le déblayage [16]. (Pour Paris, on évalue la teneur moyenne en poussières à $0,1 \text{ mg.m}^{-3}$).

3. Premiers éléments sur l'état de charge de l'aérosol radioactif minier

Utilisant une méthode (tubes de Zeleny) mise au point par l'un d'entre nous [14], DUPORT montre que, dans la mine, la fraction libre chargée du RaA représente 7 % de l'ensemble du RaA, soit environ 30 % de la fraction libre RaA. Ces résultats peuvent être expliqués théoriquement par les équations classiques de BRICARD [5] :

- les ions RaB ultrafins sont positifs,
- le RaC ultrafin semble neutre.

Si on désigne par N_i^- et N_i^+ les concentrations respectives des gros ions Ra i négatifs et positifs, on trouve [7] :

$$\text{RaA} : \frac{N_A^-}{N_A^+} = 0,75 ; \text{RaB} : \frac{N_B^-}{N_B^+} = 0,6 ; \text{RaC} : \frac{N_C^-}{N_C^+} = 1,6$$

Globalement, on constate que 30 % de la radioactivité alpha totale se trouvent sur des ions positifs ou négatifs.

Enfin, si on assimile l'aérosol radioactif minier à un aérosol monodispersé de rayon $R = 5.10^{-6} \text{ cm}$, la charge moyenne (en nombre de charges élémentaires) portée par un ion est voisine de l'unité : $n = 0,80$.

4. Les poussières de minerais

A l'heure actuelle, on dispose de fort peu d'indications sur le comportement de ces aérosols radioactifs à vie longue dans l'air d'une mine d'uranium. Des expériences menées dans les mines du Service de protection technique par J.-F. PINEAU (Communication personnelle) à La Crouzille, utilisent des impacteurs en cascade Andersen à huit étages [15] suivis d'un filtre rose. Les prélèvements effectués au débit de $28,4 \text{ l.min}^{-1}$, durent plus de 24 h, les comptages radioactifs ayant lieu quatre jours après l'arrêt du prélèvement afin d'éliminer les descendants à vie courte des isotopes

du radon. Les premiers résultats semblent indiquer que 40 % de la radioactivité à vie longue se fixent sur des particules de diamètre inférieur au micromètre. Ceci paraît surprenant, car on pourrait s'attendre, pour ce type d'aérosol, à des particules plus grosses. Il est possible que la cause de ce phénomène soit une action chimique : lors du tir, se produit un très fort échauffement, provoquant la mise en phase vapeur de l'uranium contenu dans le minerai, puis une condensation s'effectue, ce processus remplaçant l'action mécanique qu'on croyait devoir intervenir ici. Mais, soulignons-le bien, il ne s'agit que de premiers résultats qui demandent confirmation.

IV. CONCLUSION

On commence à avoir une idée assez précise du comportement de l'aérosol minier. Mais il y a encore beaucoup à faire, les principaux domaines d'expériences devant porter, à notre avis :

1. Sur les descendants à vie courte des isotopes du radon : il faudra réaliser des granulométries systématiques de la totalité de l'aérosol minier en chantier, ainsi que quelques granulométries de l'aérosol radioactif (par la méthode de la batterie de diffusion associée à un compteur de noyaux de condensation). L'état de charge électrique de cet aérosol devrait aussi être précisé.

2. Sur l'aérosol de minerai dont il faudra évaluer la granulométrie et l'état de charge électrique.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] BARZIC J.Y. — Etude de l'aérosol d'une mine d'uranium. Thèse 3^e cycle, Brest, 1975 et Rapport CEA-R-4743, 1976.
- [2] BERNHARD S., LE GAC J., SEGUIN H., ZETWOOOG P. — Radon levels and radon daughter exposures of workers in nonuranium mines of the E.C. In : Radiation hazards in mining : control, measurement and medical aspect, Golden (USA), October 4-9, 1981 (GOMEZ M. Ed.) New-York : Society of mining engineers, 1982. 625-628.
- [3] BILLARD F., MADELAINE G., CHAPUIS A.M., FONTAN J., LOPEZ A. — Radioprotection 1971, 6, 45-61.
- [4] BRICARD J., PRADEL J. — Electric charge and radioactivity. In : Aerosol science (Davies, C.N., Ed.). Londres : Academic Press, 1966, 87-109.
- [5] BRICARD J. — Physique des aérosols, Rapport CEA-R-4831, 1977.
- [6] Commission internationale de protection radiologique. Recommandations. Publication CIPR 26. Oxford : Pergamon Press, 1980.
- [7] DUPORT P. — L'aérage et les caractéristiques de l'atmosphère d'une mine d'uranium laboratoire. Thèse d'Université, Brest, 1976 et Rapport CEA-R-4927, 1978.
- [8] FOURCADE N. — Radioactivité de chaînes d'uranium et du thorium. Séminaire de Vassivière, novembre 1980.
- [9] JAMMET H., DOUSSET M. — Les recommandations de la CIPR, Applications au cas particulier des mines d'uranium. Radioprotection, 1981, 16, 25-50.

- [10] JOHNSON J.R., LEACH V.A. — An examination of the relationship between WLM exposure and dose. In : Radiation hazards in mining : control, measurement and medical aspects, Golden (USA) October 4-9, 1981 (Gomez M. Ed.). New York : Society of mining engineers, 1982, 390-397.
- [11] LE GAC J. — Etude spécifique et corrélative de la radioactivité naturelle de l'air, des noyaux de condensation et de certains paramètres électriques, sur un site à influence maritime ou urbaine. Thèse, Brest, 1979 et Rapport CEA-R-5029, 1980.
- [12] MADELAINE G. — Formation et évolution des aérosols dans l'air filtré et dans l'air naturel. Thèse, Paris, 1968 et Rapport CEA-R-3614, 1968.
- [13] 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 humans exposed to uranium mines atmospheres. Health Phys. 1964, 10, 1129-1135.
- [14] RENOUX A. — Etude des ions radioactifs de l'atmosphère. Thèse, Paris 1965 et Rapport CEA-R-2771, 1966.
- [15] RENOUX A., BARZIC J.Y., MADELAINE G., ZETTWOOG P. — Quelques caractéristiques de l'air d'une mine d'uranium. Nucl. Technol., 1978, 37, 313-327.
- [16] RENOUX A., BARZIC J.Y., MADELAINE G. — Comparaison entre la répartition granulométrique en masse des poussières et l'activité alpha, au cours des différentes phases de travaux dans une mine d'uranium, Chemosphere, 1976, 5, 173-176.
- [17] TYMEN G. — Répartition granulométrique de l'aérosol naturel et des particules radioactives issues du radon, en atmosphère maritime et urbaine peu polluée. Thèse, Brest, 1978 et Rapport CEA-R-4965, 1979.