



dosage du radon dans les gaz du sol

application à la recherche d'eau en milieu fissuré
étude bibliographique

B. R. G. M.
31. JUIL. 1986
BIBLIOTHEQUE



dosage du radon dans les gaz du sol

application à la recherche d'eau en milieu fissuré
étude bibliographique

B. Henou

février 1986
86 SGN 299 EAU

BUREAU DE RECHERCHES GÉOLOGIQUES ET MINIÈRES
SERVICE GÉOLOGIQUE NATIONAL
Département EAU

B.P. 6009 - 45060 ORLÉANS CEDEX 2 - Tél. : (33) 38.64.34.34



AVANT-PROPOS

La prospection hydrogéologique des roches dures consiste à détecter les discontinuités de massif sains et sélectionner parmi ces discontinuités celles qui sont perméables. Si l'on admet que les zones perméables à l'eau sont également au dégagement gazeux, par ascension, qui émanent de la roche mère, la détection des points d'émission devrait informer passages perméables et fournir une méthode de prospection indirecte.

Il se trouve que l'uranium, présent en traces dans de nombreuses formations, donne en se dégradant du radon, radioactif, détectable à très faible concentration dans le sol.

Des tests probants ont été faits sur des sites où la fracturation avait été préalablement reconnue, en Bretagne et en Corse.

Ces tests ont aussi montré que les altérites dispersent les signaux, et que ces signaux apparaissent discontinus le long des fractures identifiées. Ceci pose un certain nombre de questions sur les déplacements du gaz dans le milieu non saturé, en particulier le milieu altéré et le sol, et sur le rôle de la pression atmosphérique et de ses variations, qui ont guidé la présente révision bibliographique.

SOMMAIRE

1 - CARACTERISTIQUES GENERALES DU RADON	1
1.1 Origine du radon	1
1.2 La radioactivité	1
1.3 Valeurs numériques	5
1.4 Solubilité du radon	5
1.5 Solubilité de l'uranium et du radium	5
2 - MIGRATION DES ISOTOPES	9
2.1 Migration dans les roches	9
2.1.1. Pouvoir d'émanation	9
2.1.2. Processus d'émanation par l'énergie de recul	9
2.1.3. Processus d'émanation dû à l'effet indirect de l'énergie de recul	12
2.1.4. Processus de diffusion	12
2.1.5. Influence de l'humidité et de l'adsorption sur le pouvoir d'émanation	13
2.1.6. Influence de la taille du grain sur le pouvoir d'émanation	15
2.2 Migration du radon dans le milieu poreux	15
2.2.1. Distribution des isotopes du radon parmi les fluides	16
2.2.2. Diffusion du radon dans le milieu poreux	16
2.3 Migration dans les roches non saturées, anisotropes et les sols	19
2.3.1. Mécanismes du mouvement	19
2.3.2. Influence des conditions météorologiques	21
2.3.3. Migration dans les roches non saturées, fracturées et dans les sols dérangés	23
2.4 Migration dans les roches saturées et dans les sols	23
3 - APPLICATIONS GEOLOGIQUES	29
3.1 La prospection de l'uranium	29
3.2 Prévision des éruptions volcaniques et des séismes	33
3.2.1. Eruptions volcaniques	33
3.2.2. Prévisions des séismes	33
3.3 Localisation de failles enterrées et de structure géologique	35
3.4 Prospection de champ géothermique	39
3.5 Prospection des eaux thermominérales en vue d'un captage ou d'un recaptage	43
CONCLUSION	47
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	49

LISTE DES FIGURES

Figure 1 -	Origine et migration de quelques gaz dans des fractures profondes	2
Figure 2 -	Chaîne de désintégration radioactive des familles de l'uranium 238, de l'uranium 235 et du thorium 232	3
Figure 3 -	Profil vertical du radon dans les masses d'air atmosphériques au dessus des continents (Ohio), au dessus de la mer (Californie)	4
Figure 4 -	Solubilité du radon dans l'eau à 1 atm	4
Figure 5 -	Décroissance et accumulation du radon	6
Figure 6 -	Diagramme Eh-pH des ions complexes de l'uranium	7
Figure 7 -	Schema du processus d'émanation	11
Figure 8 -	Echappement du radon par énergie de recul à partir d'une surface plane	11
Figure 9 -	Emanation du radon en fonction de la taille du grain	14
Figure 10 -	Relation entre le pourcentage du taux d'émanation du radon et le diamètre du grain	14
Figure 11 -	Effets des précipitations sur la teneur en radon du sol	20
Figure 12 -	Variation saisonnière des pluies et du taux d'émanation du radon dans les eaux des sources de Richford	20
Figure 13 -	Evolution du taux de rayonnement d'une station de mesure de "bruit de fond" à différentes périodes en parallèle avec la température journalière moyenne et de la pression atmosphérique moyenne	22
Figure 14 -	Gradients de concentration du radon dans l'eau normaux à la surface de la roche pour le phénomène de diffusion et trois vitesses différentes de transport	25
Figure 15 -	Influence de l'humidité du sol sur la teneur en thoron	25
Figure 16 -	Influence des différentes utilisations du sol sur les teneurs en thoron	25
Figure 17 -	Schéma de connexion du fluide en subsurface et influence sur le taux d'émanation du radon	27
Figure 18 -	Effet d'un flux convectif ascendant ou descendant sur la courbe de diffusion du radon dans le sol	28
Figure 19 -	Ajustement graphique des teneurs en radon d'eau naissant dans une formation géologique homogène	30
Figure 20 -	Ajustement graphique des teneurs dans des formations géologiques recélant des minéralisations uranifères	31

Figure 21 -	Durée des divers signaux précurseurs en fonction de la magnitude pour 11 évènements sismiques	32
Figure 22 -	Modèles de dilatance-diffusion et dilatance-instabilité et évolutions des signaux précurseurs de l'activité sismique	32
Figure 23 -	Concentration de radon dans les gaz du sol au dessus des failles	34
Figure 24 -	Teneur en radon en fonction des formations perméables	34
Figure 25 -	Concentration en radon dans le sol sur différents profils perpendiculaires à la direction des failles	36
Figure 26 -	Localisation des profils I et II sur la faille de Bad Naheim et localisation des points de prélèvement à 1 et 2 m de profondeur	38
Figure 27 -	Concentration du radon et du thoron dans le sol sur la faille de Bad Nauheim	38
Figure 28 -	Rapport des comptages de deux échantillons successifs sur un même site, représenté en fonction du comptage moyen de deux échantillons	40
Figure 29 -	Diagramme de distribution des activités volumiques relevés au cours de la prospection	40
Figure 30 -	Mise en évidence d'une faille active par la prospection du radon	42
Figure 31 -	La Martinique, prospect du Lamentin. Carte géochimique (concentrations exprimées en pci/l)	44
Figure 32 -	Thermes du Salut, Bagnères-de-Bigorre. Relevés de fracturation, prospection du radon	45

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 -	Exemple de coefficients d'émanation	9
Tableau 2 -	Emanation du radon en fonction de la nature de la roche et du diamètre des grains de sable dans une phase liquide	10
Tableau 3 -	Concentration du radon dans le sol (pci/l) à 1 et 2 m de profondeur à cinq lieux différents à Bad Nauheim	39

1. CARACTERISTIQUES GENERALES DU RADON

Parmi les nombreuses émanations gazeuses CO₂, He, H₂, N₂, O₂... provenant du sous-sol, le radon occupe une place spécifique, dans la recherche d'informations sur les structures géologiques (fig.1).

Le radon de numéro atomique 86 est un gaz radioactif de courte période. C'est un gaz inerte ; son analyse est du domaine de la physique. Sa détection s'effectue au moyen de diverses techniques de métrologie nucléaire. Il a été découvert en 1900 par Dorn, et isolé en 1908 par Ramsay et Gray.

1.1 - Origine du radon

Le groupe du radon est formé de 3 isotopes : le radon sensu-stricto $^{222}_{86}\text{Rn}$, le thoron $^{220}_{86}\text{Rn}$ et l'actinon $^{219}_{86}\text{Rn}$.

Les 3 isotopes du radon s'inscrivent dans la filiation des familles radioactives naturelles (fig.2) entre un isotope du radium et un isotope de polonium :



Une de leurs caractéristiques essentielles est d'être pratiquement les seuls gaz radioactifs naturels. Si d'autres gaz peuvent se former également à l'occasion de transmutations par fissions naturelles, les concentrations atteintes sont difficilement mesurables.

Le radon étant issu de la famille de l'uranium, sa répartition dans les différentes formations géologiques dépendra de celles de ses parents radioactifs. Or une large distribution de l'uranium résultant des cycles géochimiques est observable au sein des roches de la croûte terrestre. La concentration moyenne en uranium des roches magmatiques a été estimée à 3,5 ppm. Ce matériel magmatique peut à la suite de remaniement intervenir dans les cycles sédimentaires. Ainsi, les grès ont une concentration moyenne en uranium de l'ordre de 0,45 ppm. Les roches carbonatées aux alentours de 2,2 ppm et les schistes argileux ont une concentration moyenne comparativement plus forte de 3,7 ppm (Andrews, 1972).

1.2 - La radioactivité

Les isotopes du radon sont tous radioactifs par émission de particules alpha. Ils aboutissent avec des périodes plus ou moins longues à des descendants solides émetteurs de particules alpha et beta. C'est le radon 222, issu de l'uranium 238 qui a la période la plus longue avec 3,82 jours (fig.2). L'actinon 219, issu de l'uranium 235, n'aura qu'une influence négligeable sur les mesures, du fait de la courte période (3,9 s) et de la faible abondance (0,71 %). Quant au thoron 220, issu du thorium 232, il aboutit également très vite (55 s) au Th qui possède une période de 10,6 h avec une émission de particules beta.

Le radon et ses isotopes se dégagent des minéraux radioactifs contenus dans le sol, mais seul le radon a une période assez longue pour diffuser ou être entraîné à distance soit dans l'atmosphère, soit en solution dans les eaux souterraines.

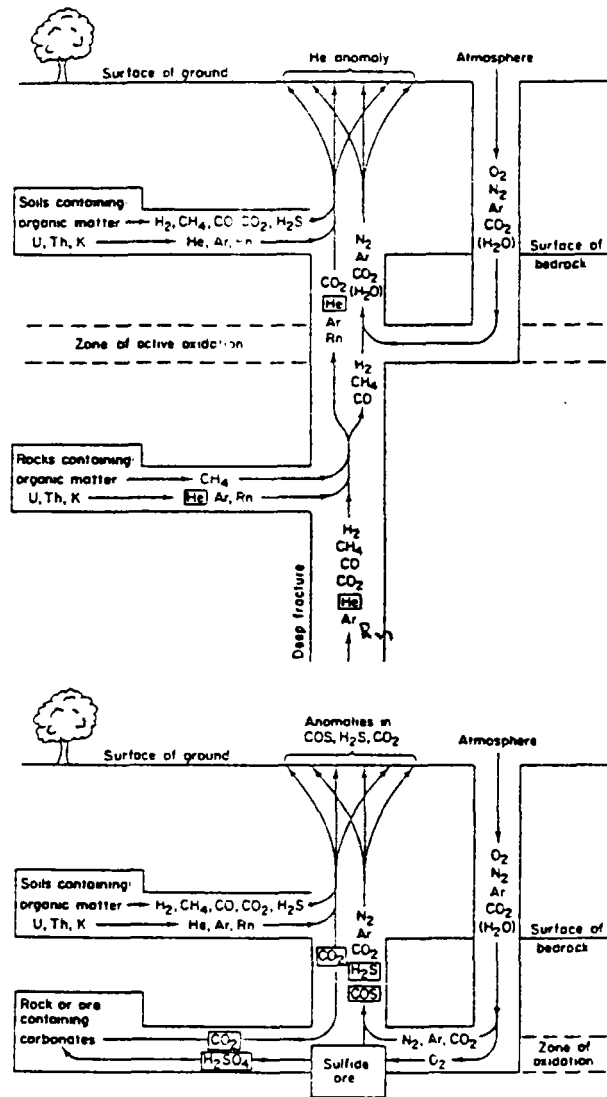


Figure 1 - Origine et migration de quelques gaz dans des fractures profondes (extrait de : Vandebloom G. et Poppelbaum M. : Geochemistry in Mineral Exploration. - 2nd Ed., 657 p. - New York, Acad. Press)

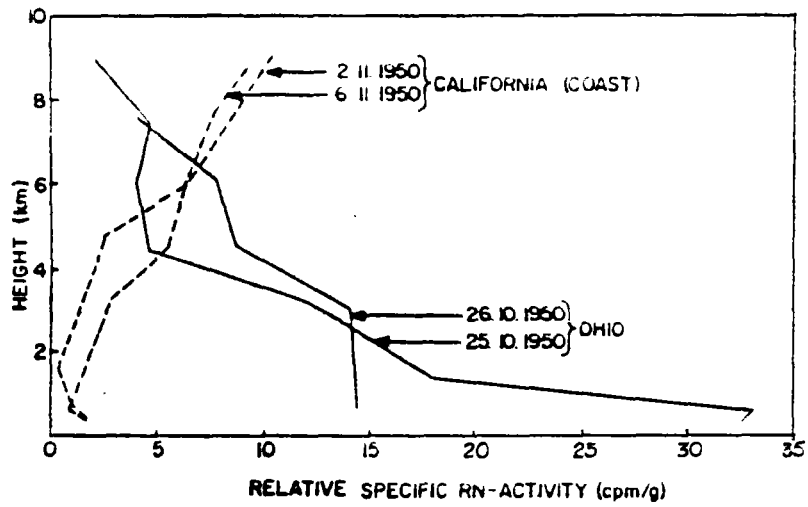


Figure 3 - Profil vertical du radon dans les masses d'air atmosphériques au dessus des continents (Ohio), au dessus de la mer (Californie) (extrait de : Bunge C.E., 1963, p.219)

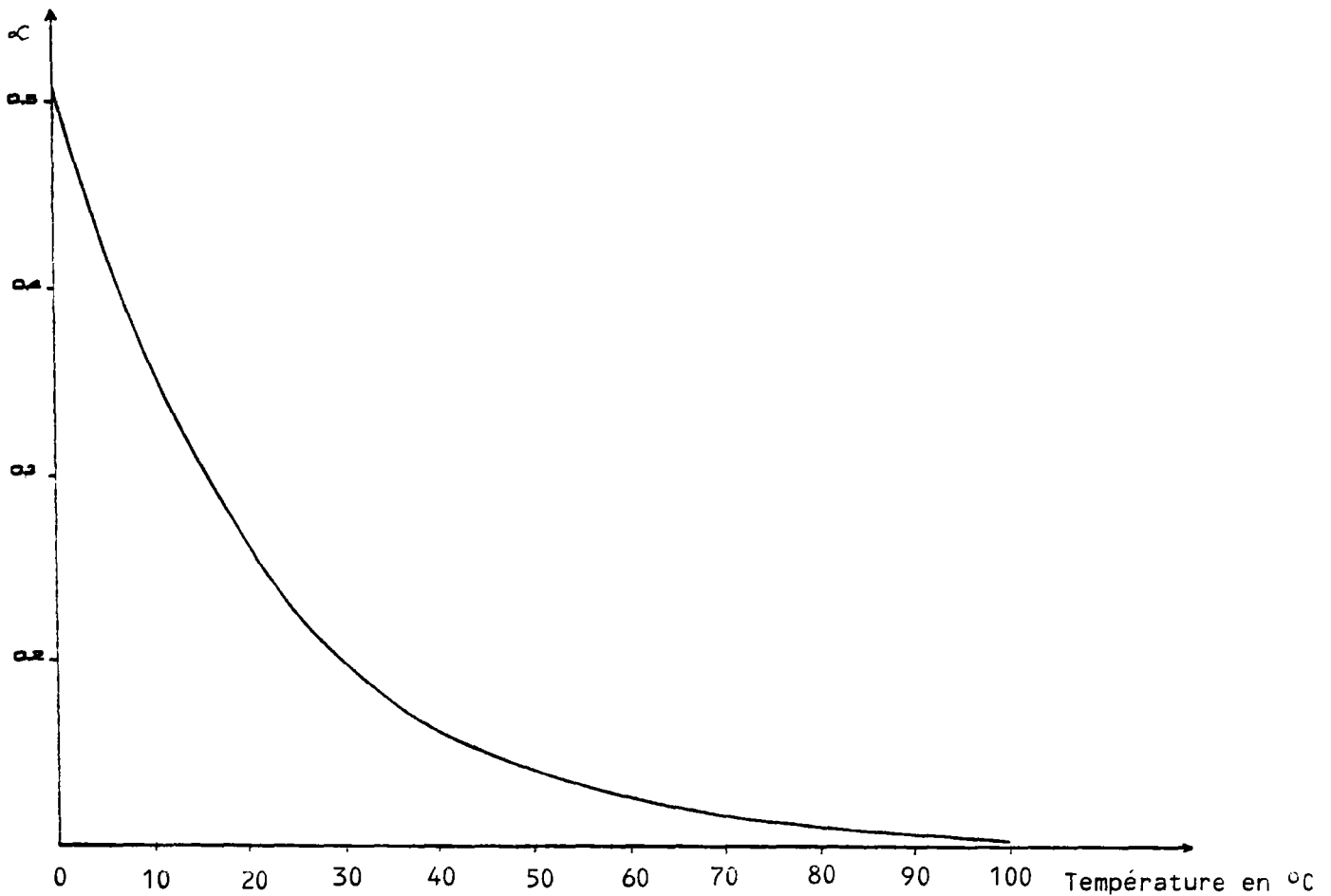


Figure 4 - Solubilité du radon dans l'eau à 1 atm $\alpha = C_{\text{eau}} / C_{\text{air}}$ (extrait de : Vuillemot P., 1982, p.39)

1.3 - Valeurs numériques

Constantes de décroissance :

$$\begin{aligned}\lambda_{R_n^{219}} &= 1,8 \cdot 10^{-1} \cdot s^{-1} \\ \lambda_{R_n^{220}} &= 1,27 \cdot 10^{-2} \cdot s^{-1} \\ \lambda_{R_n^{222}} &= 2,1 \cdot 10^{-6} \cdot s^{-1}\end{aligned}$$

Masse spécifique du radon : 9,73 g/l à 0°C.

A titre de comparaison, la masse spécifique du CO₂ est 1,98 g/l à 0°C.

La masse spécifique de l'air est 1,29 g/l.

Densité Rn/air : 7,526

Densité Rn/Oxygène : 6,809.

A titre de comparaison, la densité du CO₂/air est de 1,53.

Malgré sa densité élevée, le radon a pu être observé sur des profils verticaux jusqu'à 10 km d'altitude par **Wexler** (1956) et **Junge** (1963) (fig.3).

1.4 - Solubilité du radon

Le radon est soluble dans l'eau et encore plus dans les solvants organiques. Sa solubilité dépend dans une large mesure de la température du solvant. Dans l'eau, le coefficient décroît quand la température augmente (fig.4) :

$$a = 0,105 + 0,405e^{-0,0502t}$$

formule empirique de **Meyer** (**Vuillemenot**, 1982).

Dans l'eau à la température ambiante, le thoron est environ cinq fois plus soluble que le radon.

La solubilité du radon augmente avec la pression (Loi de **Henry**). Dans les circuits hydrothermaux ou à 1 km de profondeur, on trouve 100 bars de pression approximativement, ce facteur est essentiel : le radon est donc transporté à l'état dissous comme les autres gaz, et comme les autres gaz il se dégage à l'émersion par suite de la baisse de pression hydrostatique. Compte-tenu de sa période courte, les eaux drainent des roches proches de la surface qui dégagent le radon. On estime qu'une eau qui contient du radon doit avoir perdu le contact avec la roche-mère depuis 20 à 30 j, pour garder une radioactivité notable (fig.5).

1.5 - Solubilité de l'uranium et du radium

Le radium ne présente pas le même comportement physico-chimique que l'uranium. C'est ainsi qu'en milieu oxydant, la mobilité de l'uranium est supérieure à celle du radium. Cette mobilité différente peut entraîner des reconcentrations différentielles. Par exemple, une eau oxydante chargée en uranium peut, sous l'effet d'une barrière physico-chimique (front d'oxydo-réduction par exemple), voir son uranium précipiter.

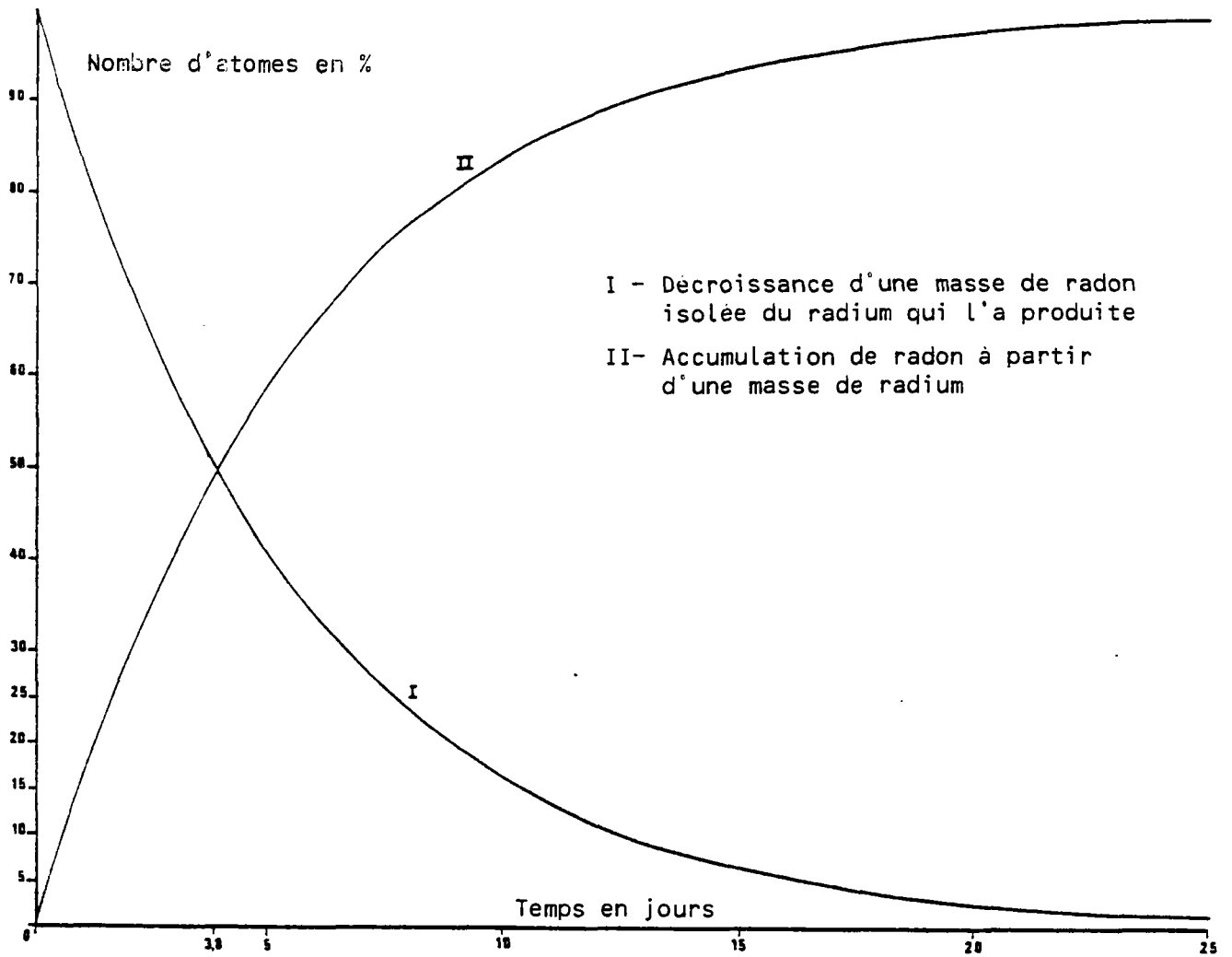


Figure 5 - Décroissance et accumulation du radon (extrait de : Vuillemot, 1982, p.49)

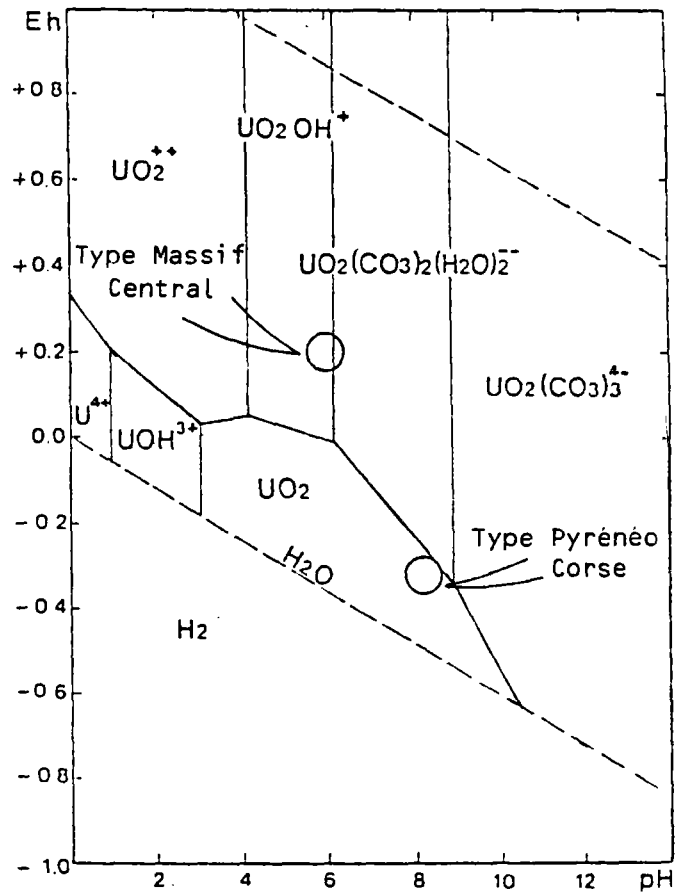


Figure 6 - Diagramme Eh-pH des ions complexes de l'uranium
(extrait de : Maisonneuve et Rémy, 1984, p.202)

Bien que l'uranium soit un élément courant dans les roches cristallines, les eaux issues de granites riches en uranium n'en contiennent pas ou très peu (moins de 1 ppb ou de 1 g/l). Car c'est essentiellement par des eaux agressives (le pH jouant simultanément avec le potentiel d'oxydo-réduction) que l'uranium va entrer en solution. L'uranium a deux états de valences U^{4+} et U^{6+} dont les solubilités sont très différentes. La forme réduite (U^{4+}) est pratiquement insoluble. **Maisonneuve et Rémy (1984)** ont montré les relations entre le potentiel d'oxydoréduction avec les ions complexes de l'uranium et le type d'eaux minérales.

Les eaux thermominérales du type pyrénéo-corse (qui sont peu agressives, correspondant au domaine U^{4+}) contiennent peu d'uranium dissous, bien que ces eaux lessivent du granite. Par contre, les eaux thermominérales du Massif central, eaux agressives à potentiel d'oxydo-réduction positif, contiennent souvent de l'uranium, car elles se situent dans le domaine de l'uranium à la valence U^{6+} (fig.6).

Le radium est un élément alcalino-terreux proche du baryum. Il possède comme lui un sulfate très peu soluble. A 20°C, la solubilité du sulfate de baryum est de 21.10^{-4} g/l.

Le carbonate de radium, bien que très peu soluble, semble avoir une solubilité plus grande que le carbonate de baryum.

Par contre, le sulfure est soluble, et le chlorure est très soluble : à 20° la solubilité du chlorure de radium est de 245 g/l. Dans certains cas, l'ion chlorure est un agent actif de lessivage du radium des roches .

2. MIGRATION DES ISOTOPES DU RADON

2.1 - Migration dans les roches

2.1.1. Pouvoir d'émanation (pouvoir émanateur, taux d'émanation)

Les atomes de radon nouvellement formés ont pris la place d'atomes de radium, initialement placés dans le réseau cristallin, là où se trouvaient l'uranium ou le thorium parent.

Le taux de production des atomes de radon par unité de temps et de volume est égal à l'activité volumique du radium parent, exprimé en becquerel par unité de volume de roche (ou en pico-curie/litre : pci/l).

L'expérience montre qu'une fraction notable des atomes de radon formés ne reste pas confinée à l'intérieur du réseau où se trouvait prisonnier l'atome de radium initial. La situation est donc différente de ce qui se passe pour Ar 40 qui, prenant dans le réseau cristallin la place de K40, y reste piégé au point que le taux de Ar 40 fournit une méthode de datation des roches.

Le pouvoir d'émanation se définit comme étant la fraction des émanations du radon formé par la désintégration des substances radioactives contenues au sein des particules minérales et libérées de la roche hôte, par rapport à l'autre partie qui reste piégée et qui se désintègre à l'intérieur même de la roche hôte (Oddou, 1982).

Roche	Sols
Conglomérat 2 à 27 %	Alluvions 17 à 50 %
Gneiss 2 à 15 %	Calcaires 18 à 55 %
Granite 3 à 17 %	Granitique 37 à 45 %
Grès 4 à 12 %	Sableux 10 à 20 %

Tableau 1 - Exemple de coefficient d'émanation
(Barreto et al., 1972)

2.1.2. Processus d'émanation par l'énergie de recul

A partir de la désintégration d'un atome de radium, la plus grande partie de l'énergie en excès est transportée par la particule α , le résidu (10^4 à 10^5 fois plus grand que l'énergie de liaison typiquement chimique) est porté par l'atome de radon qui en résulte.

A l'intérieur d'un grain minéral où la désintégration prend place, l'énergie de recul du radon se traduit par un déplacement sur distance de 20 à 70 nm pour les minéraux de densité commune (Quet, Rousseau-Violet, Bussière, 1975).

Si un atome de radium est situé à la périphérie du grain (ou du réseau cristallin), l'énergie emportée par l'atome de radon formé le rend susceptible de quitter le grain pour pénétrer avant décroissance radioactive dans l'espace des pores ou des fissures (fig.7).

Si le pore est rempli de gaz, la distance de recul de l'atome de Rn est égale à la fraction de son énergie cinétique restante, par sa distance de recul dans l'air, qui est de 63 m pour le ^{222}Rn , 83 m pour le ^{220}Rn et 92 m pour le ^{219}Rn .

Dans beaucoup de matériaux naturels compacts, les tailles de grains sont beaucoup plus grandes que la distance des énergies de recul, parcourue par les atomes de radon, à tel point que peu d'atome de radon s'échappent des grains dans lesquels ils ont pris naissance.

Si les pores sont trop petits, l'énergie de recul peut être suffisante pour que l'atome de radon pénètre dans le grain situé à proximité.

En conséquence, dans les cas défavorables, compacité de la roche et faible porosité, le pouvoir d'émanation peut être inférieur à 1 %.

Si les pores sont remplis d'eau ou par tout autre liquide, la distance parcourue par l'atome de radon mu par son énergie de recul sera au maximum de 0,1 m. La probabilité pour que l'atome de radon éjecté du grain soit retenu, dans la phase liquide du pore, est bien plus grande que pour des pores remplis d'air. Ainsi la présence d'un liquide dans les pores augmente le taux du pouvoir d'émanation.

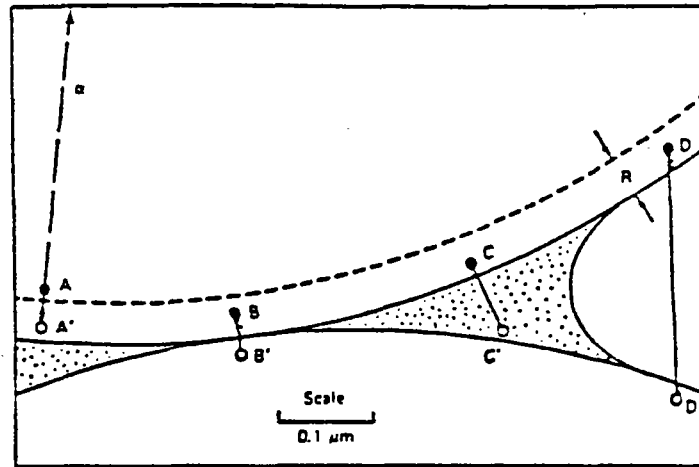
Particle diameter, μm	Radon	Radon	Radon	Radon
	release, pCi/g	release, %	release, pCi/g	release, %
	Carboniferous Limestone*		Old Red Sandstone†	
25 000 average	—	—	0.038	13.1
9525-12 700	0.0040	0.99	—	—
6350-9525	0.0047	1.16	—	—
4445-6350	0.0078	1.92	—	—
2411-4445	0.0081	1.99	0.0332	11.45
1204-2411	0.0155	3.82	0.0330	11.38
599-1204	0.0135	3.32	0.0277	9.55
295-599	0.0158	3.89	0.0223	7.69
149-295	0.0288	7.09	0.0262	9.03
<149	0.0678	12.56	0.0720	14.43
	Midford Sand‡			
90-150	0.064	15.3		
60-90	0.059	6.4		
30-60	0.121	16.2		
5-30	0.237	26.5		

*Radium content 0.540 pCi/g for less than 149 μm and 0.406 for other particle sizes

†Radium content 0.499 pCi/g for less than 149 μm and 0.290 for other particle sizes

‡Radium content 0.82 pCi/g

Tableau 2 - Emanation du radon en fonction de la nature de la roche et du diamètre des grains de sable dans une phase liquide (d'après Andrews et Wood, 1977, p.B.202)



Two very fine spherical grains of 2- μ m diameter are in contact near B. Water is present in the stippled zone of the pore ; the open zone is air-filled. Radium-226 atoms (.) decay in the upper grain, each yielding an alpha particle (as shown at A), and a ^{222}Rn atom (O). Atom A lies at greater depth within the grain than the recoil range, R ; recoil ^{222}Rn atom A' is contained within the grain. Atom B' escapes from the upper grain but buries itself in the lower grain. After escape from the upper grain, atom C' loses the remainder of its recoil energy in the water and is free to diffuse through the pores. Atom D' loses little of its recoil energy in the air and buries itself in the lower grain. Atoms B' and D' may escape from their recoil pockets by diffusion before condensation of the excited atoms of the grain (indirect-recoil effect). Within a mean life of ^{222}Rn (5.5 days), its diffusion distance in the solid grain is less than the width of any line in the figure. The circles greatly exaggerate the atomic dimensions.

Figure 7 - Schéma du processus d'émanation (extrait de : Tanner, 1980, p.7)

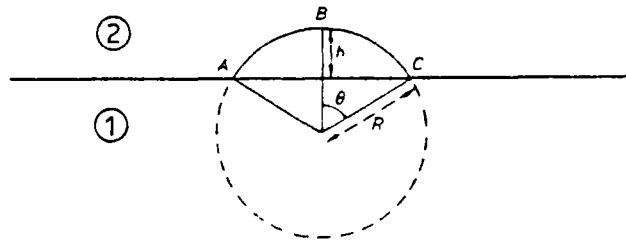


Figure 8 - Echappement du radon par énergie de recul à partir d'une surface plane (extrait de : Andrews et Wood, 1977, p.B203)

Domaine 1 position initiale de l'atome de Radium
 Domaine 2 positions possibles de l'atome de Radon résultant de la désintégration

Andrews et Wood (1977) ont calculé le taux d'émanation théorique de l'atome du radon due à l'énergie de recul. La probabilité de l'échappement du radon à partir d'une structure cristalline limitée par une surface plane, est calculée par le ratio de la surface du dôme ABC à l'aire de la surface de la sphère de rayon R (fig.8). La probabilité d'échappement est :

$$\frac{2 \pi R h}{4 \pi R^2} = \frac{h}{2 R}$$

où $h = R (1 - \cos \theta)$

La probabilité d'échappement intégrée pour tous les atomes de radon formés à l'intérieur d'une distance R de la surface, est donnée par la formule :

$$\int_{\theta=0^{\circ}}^{\theta=30^{\circ}} \frac{1 - \cos \theta}{2} d\theta$$

La résolution de cette intégrale montre, ainsi que 23,5 % des atomes de radon formé à l'intérieur de la structure, peuvent s'échapper par énergie de recul.

2.1.3. Processus d'émanation dû à l'effet indirect de l'énergie de recul

Si un atome de radon est mue par une énergie suffisante pour trouver l'espace poreux et pénétrer la surface solide adjacente, il peut former une "poche" dont la profondeur est égale à l'énergie nécessaire pour la traversée, réduit de la fraction d'énergie de recul déjà dépensée.

Selon les auteurs, cette poche peut atteindre 10 nm en profondeur et en diamètre (**Flugge et Zimmens, 1939**) ou 10 nm de profondeur et 1 nm de diamètre (**Zimen et Mertens, 1971**). Ils ont calculé que l'énergie adsorbée par le grain, le long du parcours était suffisant pour désorganiser le réseau et permettre ainsi à l'atome de radon de s'échapper à nouveau vers le milieu poreux.

2.1.4. Processus de diffusion

Les conclusions tirées de la littérature indiquent que les constantes de diffusion des gaz à l'intérieur des minéraux sont caractéristiques de ces minéraux plutôt que des gaz de diffusion (exemples tirés des expériences sur l'origine de l'hélium) et les études effectuées pour des gaz inertes comme l'hélium sont valables pour le radon.

Les coefficients de diffusion dans le zircon et la monazite ont des valeurs comprises entre 10^{-21} et 10^{-23} cm/s. De tels coefficients de diffusion limitent le mouvement des isotopes du radon à l'intérieur des structures cristallines d'un minéral, et compte-tenu de leurs petites durées vie, les isotopes du radon ont peu de chances de sortir des cristaux.

Si la possibilité de diffusion du radon 222 au travers des zones endommagées par les dégats de radiation, due au processus du recul, est l'une des théories expliquant le phénomène de diffusion dans les pores de la roche, les expériences réalisées par **Lambert et Bristeau (1973)** montrent que ce phénomène

ne participerait que de quelques pourcents dans le phénomène de diffusion. Le principe de l'expérience est basé sur l'exposition d'un film de Radium 226 sur un cristal ou une roche pendant une durée de 1 à 5 semaines à la température ambiante ou à 573°K. Après irradiation, la surface de la roche ou du minéral était analysée par un spectromètre alpha, pour une évaluation de la diffusion du radon d₀ à l'énergie de recul indirecte. Les pertes en radon ont été de :

1,7 ± 0,7 % à la température ambiante pour un monocristal de NaCl
 3,1 ± 2,7 % à T = 573°K pour un calcaire à grains fins
 0 à 2 % à T = 573°K pour un basalte.

Barreto (1973) a évalué que le pouvoir d'émanation pour un zircon en radio-activité était de 12,1 % pour le radon 222. Or la plupart des zircons contiennent de l'eau. L'auteur en a conclu que le pouvoir d'émanation d₀ à l'énergie de recul indirect était augmenté par la présence de l'eau au travers des chenaux provoqués dans la structure cristalline par les effets de l'énergie de recul indirect.

Les mesures du taux d'émanation du radon 222 effectué par le CEA (**Zettwood**, 1984) sur des minerais d'uranium et des résidus radifères donnent des valeurs comprises entre 1 et 99 %. Les mesures ont été effectuées après broyage de blocs dont l'activité radiogénique était connue. Les valeurs alors trouvées pour le pouvoir d'émanation ne sont explicables (d'après l'auteur) que parce que les atomes de radium 226 ne sont pas profondément insérés dans le réseau cristallin. L'uranium 238 n'est pas compatible avec les réseaux cristallins de la majeure partie des espèces minérales formant les roches usuelles, et se retrouve en fait dans les petites formations minoritaires, dans les joints des grains, ou adsorbés sur les argiles. Quelques mailles alors séparent le radon 222 formé de l'espace des pores.

En 1957, **Starik et Melikova** ont montré que les échantillons de roches saines, sans altération, avaient un faible pouvoir d'émanation ; par contre les échantillons altérés et exposés aux intempéries avaient un pouvoir d'émanation élevé.

Les isotopes du radon situés à l'intérieur des cristaux ne sont pas disponibles, sans développement de la surface interne, tel qu'elle peut résulter de la corrosion chimique, du climat, ou d'une intense fracturation sur une échelle microscopique.

2.1.5. Influence de l'humidité et de l'adsorption sur le pouvoir d'émanation

L'eau présente dans les pores, les capillaires et les espaces structuraux dans les cristaux des minéraux, augmente la probabilité que les atomes d'isotopes de radon terminent leur chemin d'énergie de recul dans ces espaces.

Whol et Bonner (1951) ont établi une relation entre le pouvoir d'émanation et l'adsorption du radon dans la diabazite (zéolite naturelle dont le degré d'hydratation naturelle peut varier sans changer sa structure cristalline). Les expériences ont été réalisées à une température de 293°K et un degré d'hydratation variant de 7,3 à 0 moles d'eau. Le pouvoir d'émanation du radon 222 s'échelonnait entre 63 et 1 %, et le pouvoir d'adsorption entre 1 et 73 % (en unité relative). Ces résultats permettent d'affirmer que l'hydratation d'un minéral augmente le taux d'émanation d₀ aux énergies de recul directe et indirecte.

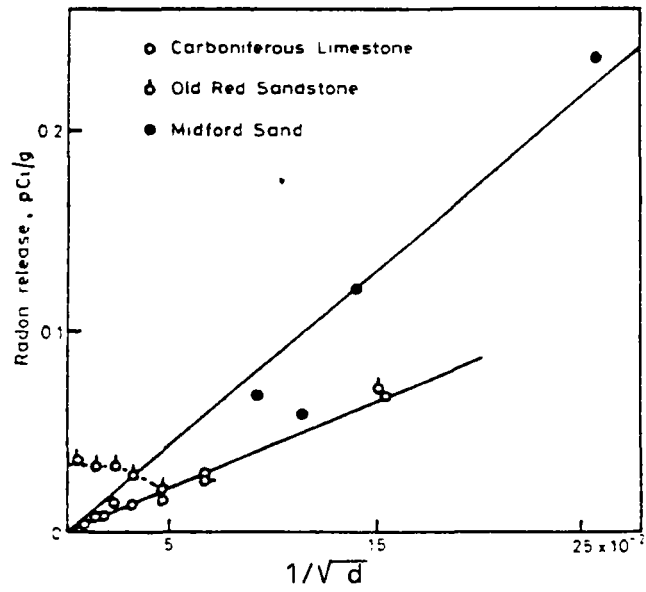


Figure 9 - Emanation du radon en fonction de la taille du grain (extrait de : Andrews et Wood, 1972, p.B 202 et B 205)

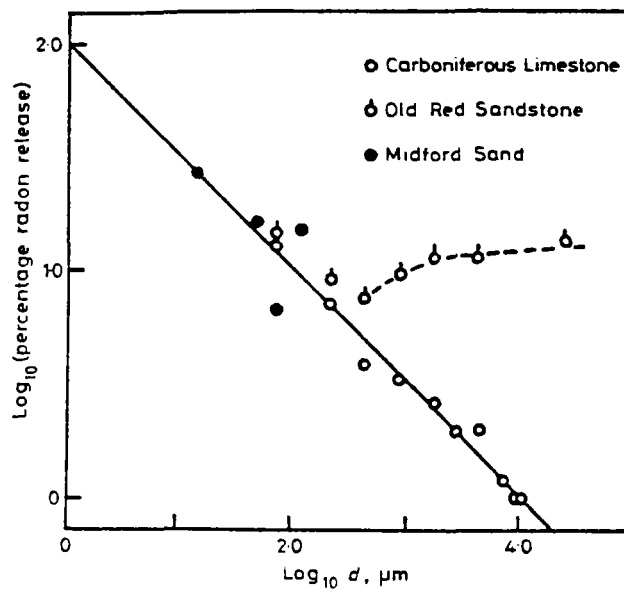


Figure 10 - Relation entre le pourcentage du taux d'émanation du radon et le diamètre du grain (extrait de : Andrews et Wood, 1972, p.B.202 et B.205)

Zettwood (1982) a étudié la relation entre le taux d'humidité et les pouvoirs d'émanation du radon 222 sur les minéraux d'uranium broyés, il n'a tiré aucune conclusion nette sur ces résultats.

2.1.6. Influence de la taille du grain sur le pouvoir d'émanation

De nombreuses recherches ont démontré la relation entre la taille du grain et le pouvoir d'émanation.

Andrews et Wood (1972) ont étudié l'émanation du radon 222 dans l'eau à partir d'échantillons de roche sédimentaire de différentes tailles préalablement broyés et tamisés. En partant de l'hypothèse d'une distribution homogène du radon dans les grains, ils ont travaillé sur les échantillons dont la taille la plus petite des grains était supérieure à la distance d'énergie de recul. Ils ont calculé que le pouvoir d'émanation issu du processus d'énergie de recul ou de la diffusion à travers les mailles du cristal serait proportionnel à $1/\sqrt{d}$ (d = diamètre du grain) (fig.9).

L'extrapolation des relations sur le pouvoir d'émanation et sur le diamètre de la particule donnerait un résultat de 100 % d'émanation pour une particule de taille inférieure à 1 nm pour les calcaires étudiés (fig.10).

Par contre, pour des grès, le pouvoir d'émanation est pratiquement indépendant de la taille du grain de sable, ou des agrégats de grains. Ceci tient à la position de l'uranium dans ce type de roche. L'uranium est localisé principalement dans un ciment composé d'oxydes, de carbonates et de silicates.

Megumi et Mamuro (1974) ont étudié l'émanation des isotopes du radon dans deux sols issus du granite. L'augmentation des concentrations du radon 220 et du radon 222 était inversement proportionnelle à la taille des grains, pour un diamètre compris entre 20 et 2800 microns. Pour un des sols le pouvoir d'émanation mesuré sur la fraction la plus fine de grain était de 25 % pour le radon 222 et de 10 % pour le radon 220. Pour l'autre sol, le pouvoir d'émanation était de 13 % pour le radon 220. Le pouvoir d'émanation du radon 220 était pratiquement indépendant de la taille des grains (c'est dans les parties les plus fines que la concentration des atomes précurseurs du radon 220 était la plus élevée).

2.2 - Migration du radon dans le milieu poreux

Les variables les plus importantes qui participent à la migration du radon dans le sol sont :

- le taux de désintégration de l'isotope
- la constante de diffusion dans le liquide remplissant le pore
- la composition du fluide
- le mouvement du fluide
- le nombre de phase du fluide et la distribution de l'isotope parmi les phases.

Un liquide, en général de l'eau, augmente le processus d'émanation, et réduirait l'adsorption des isotopes du radon. Une fois que l'isotope du radon a perdu son énergie de recul, le liquide empêche sa migration en abaissant le coefficient de diffusion et en l'absorbant.

Il faut donc distinguer deux mécanismes différents pour la migration du radon :

- la diffusion : c'est le processus par lequel l'isotope de radon se meut dans le liquide qui remplit les pores ;
- le transport : c'est le processus par lequel le liquide lui-même se meut à travers le milieu poreux et transporte les isotopes du radon.

2.2.1. Distribution des isotopes du radon parmi les fluides

Dès le début du siècle, des expériences avaient mis en évidence la distribution des isotopes du radon dans des systèmes à phases liquide et solide, avec des températures différentes.

Pour des températures moyennes à la surface de la terre, les concentrations des isotopes du radon sont plus importantes dans un liquide organique que dans la phase gazeuse, et les concentrations les moins importantes sont observées dans la phase liquide.

Dans un système à deux phases, liquide et gaz, la concentration dans la phase gazeuse augmente avec la température.

Le ratio de concentration du radon 222 d'une phase liquide par rapport à une phase gazeuse est de 0,52 à 0°C et de 0,16 à 40°C (fig.4).

2.2.2. Diffusion du radon dans le milieu poreux

Les études sur la diffusion des gaz ont été effectuées pour l'hydrogène et peuvent être généralisées pour le radon.

Soit D le coefficient de diffusion, p la pression et T la température. Le coefficient de diffusion D_i dans un gaz ou dans la vapeur par rapport à des conditions standard D_0 est donné par la fonction :

$$\frac{D_i}{D_0} = \left(\frac{T}{T_0} \right)^n \left(\frac{P}{P_0} \right)$$

- $n = 1,75$ pour les gaz
- $n = 2,0$ pour la vapeur.

La diffusion à travers un matériau poreux, granuleux et sec, dépend de la porosité, du compactage et de la taille des grains ainsi que de la composition, de la température et de la pression du liquide remplissant les pores.

Dans les solides, le coefficient de diffusion est de la forme :

$$D / D_i = \gamma \epsilon^\mu$$

- D_i est le coefficient de diffusion standard,
- ϵ est la porosité,
- γ est une constante de 0,8 à 1,
- μ est une constante supérieure ou égale à 1, fonction de la forme du pore.

Des valeurs des constantes a et b ont été utilisées lors d'applications pratiques. Pour des colonnes de laboratoire, les constantes ont données :

$$a = 0,9 \text{ et } b = - 0,12.$$

Il faut tenir compte aussi de la tortuosité (rapport entre la longueur du chemin moyen à la longueur de la ligne droite dans la direction de diffusion :

$$D / D_i = \epsilon / \xi^2$$

Cette équation donne un meilleur ajustement expérimental que la relation linéaire habituellement utilisée.

$$D / D_i = a . \epsilon + b$$

Dans la nature, l'hétérogénéité des matériaux géologiques, en particulier des minéraux feuilletés, donnerait des résultats bien inférieurs à ceux obtenus en laboratoire. Dans le cas du mica et de la vermiculite, le rapport D/D_1 donnera des valeurs qui seront égales à la moitié ou au tiers, de celles que l'on aurait dû avoir théoriquement.

Les argiles et les schistes contiennent des proportions importantes de minéraux feuilletés, et généralement leur orientation gêne les mouvements verticaux. La diffusion et le transport des isotopes du radon dans ces milieux devront donc être moins importants que dans des milieux de même porosité, mais constitués de particules sphériques.

L'étude de la forme de la particule est de moindre intérêt lorsque le milieu est humide. Le coefficient de diffusion dans un milieu poreux humide est moins important pour un milieu de même porosité uniquement rempli d'air. La cause est due probablement au blocage des chemins interpores par l'eau.

Si l'on considère le ratio D/D_i comme le rapport entre le coefficient de diffusion dans un milieu humide et dans un milieu sec, et si on appelle : le rapport entre la fraction de porosité d'air du milieu humide sur la porosité lorsque le milieu est sec, on aura la formule suivante :

$$D / D_d = (\epsilon_o / \epsilon_d)^\sigma \quad \sigma \simeq 4$$

Si les grains eux-même sont poreux, la formule n'est plus adaptée.

La porosité doit nécessairement intervenir dans les calculs de diffusion et de transport dans le milieu poreux. La plupart des auteurs ont déterminé les coefficients de diffusion sans tenir compte de la porosité. Et les publications établies à ce sujet ne précisent pas comment le coefficient de diffusion a été obtenu. Pour la plupart, il doit s'agir du coefficient de diffusion dans un milieu considéré comme continu (appelé coefficient de diffusion effective) (D^*). Le coefficient de diffusion effective est plus grand que le coefficient de diffusion vraie dans un rapport égal à l'inverse de la porosité.

Bulashevich et Kartashov (1967), avec **Bashorin (1970)**, ont mesuré les coefficients de diffusion dans des roches en place, en introduisant artificiellement du radon en un point. Les résultats donnent des coefficients de diffusion $D^* = 2,9$ à $3,3 \cdot 10^{-2}$ cm/s dans les roches.

Ghosh et Sheikh (1976) ont mesuré les coefficient de diffusion du radon 222 à travers des roches non radioactives :

$$\begin{aligned} D^* &= 1,4 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ pour des schistes à chlorite et muscovite,} \\ D^* &= 1,15 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ pour une épidiorite,} \\ D^* &= 0,79 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s} \text{ pour une quartzite.} \end{aligned}$$

Pour **P. Zettwood (1984)**, la concentration en atome de radon dans l'espace des pores est donnée par :

$$N_{\text{Rn}} = \frac{A}{\lambda_{\text{Rn}}} \cdot \frac{E}{\epsilon}$$

où E est le taux d'émanation,
 ϵ est la porosité,
 A est l'activité volumique du radium père
 λ_{Rn} est la constante de décroissance du radon.

Le terme E/ϵ est en général pour les roches compactes, très grand devant l'unité. En tout état de cause pour le radon 222, E reste supérieur à 10^{-2} , et dans la gamme 10^{-3} à 10^{-5} pour beaucoup de roches. Le rapport E/ϵ peut donc varier de 10 à 10^5 . N_{Rn} peut donc varier de $4 \cdot 10^8$ à $4 \cdot 10^{12}$ atomes/l.

Ces valeurs peuvent être comparées avec celles que l'on rencontre dans l'atmosphère libre : 2 000 à 50 000 atomes de radon 222 par litre d'air (500 000 atomes de radon 222 représente une activité de 1 Bq = 270 pci/l).

Pour les autres isotopes, le rapport devrait être moins grand, E220 et E219 étant plus faible que E222.

Zettwood a étudié le processus de transfert dans l'espace des pores par diffusion moléculaire, en utilisant la loi de Fick :

$$\frac{\partial N_{\text{Rn}}}{\partial t} + \frac{D}{\partial x^2} \frac{\partial^2 N_{\text{Rn}}}{\partial x^2} - \lambda_{\text{Rn}} N_{\text{Rn}} + \frac{A_{\text{RA}} E}{\epsilon} = 0$$

où D est le coefficient de diffusion moléculaire du radon
 $D = 1,02 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ dans l'air
 et $D = 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ dans l'eau.

L'auteur utilise la longueur H_D appelée longueur de relaxation :

$$H_D = D / \lambda_{\text{Rn}}$$

en écoulement permanent. La solution est de type :

$$N_{\text{Rn}} = N_{\text{Rn}}^0 + N_1 e^{-x/H_D} + N_2 e^{x/H_D}$$

avec :

$$N_{Rn}^0 = \frac{A_{Ra}}{\epsilon} \cdot \frac{E}{\lambda_{Rn}}$$

N_1 et N_2 étant des constantes dépendant des conditions aux limites.

Si l'on considère une fissure plane minéralisée, l'épaisseur de la fissure étant x , si A_{Re} est l'activité volumique de U_{238} dans les roches encaissantes, elle est égale à $A_{Ra} + \Delta A_{Ra}$ dans les fissures.

La distance maximale entre le plan de fissure minéralisée en U_{238} et l'anomalie de la concentration des isotopes du radon en diffusion moléculaire sera :

$$\begin{aligned} H_D &= 2,2 \text{ m pour Rn } 222 \\ H_D &= 2,8 \text{ cm pour Rn } 220 \\ H_D &= 8,2 \text{ mm pour Rn } 219. \end{aligned}$$

Dans un deuxième cas de situation, **Zettwood** calcule la quantité du radon provenant d'une distance $x = H_D$ à l'intérieur d'un grain et arrivant à la paroi de ce grain. En estimant que l'activité volumique est uniforme, il a effectué ses calculs dans un système monodimensionnel. En admettant que la concentration des atomes de radon est nulle à la surface de la paroi, placée en $x = 0$:

$$N_{Rn} = N_{Rn}^0 (1 - e^{-x \cdot H_D})$$

A une profondeur $x = H_D$, la concentration est égale à la concentration d'équilibre :

$$= N_{Rn}^0 \cdot \frac{e-1}{e} = 0,6 \cdot N_{Rn}^0$$

Dans l'espace des pores, le flux à la paroi vaut :

$$D \frac{N_{Rn}^0}{H_D} = \frac{A \cdot E \cdot x \cdot D}{\epsilon \lambda_{Rn} H_D} = A E \frac{H_D}{\epsilon}$$

Le résultat des développements mathématiques montre que 63 % des atomes de radon arrivant à la paroi a été produit sur la couche d'épaisseur H_D et 86 % dans la couche d'épaisseur $2 H_D$.

2.3 - Migration dans les roches non saturées, anisotropes et les sols

2.3.1. Mécanisme du mouvement

Le transport et la diffusion dans les fluides en mouvement sont caractéristiques des mouvements du radon dans les sols. En général, la diffusion est le mécanisme dominant dans les chenaux intergranulaires, les capillaires et les plus petits pores. Dans les plus grands pores et les plans de fractures, c'est le transport par entraînement qui est le mécanisme le plus important.

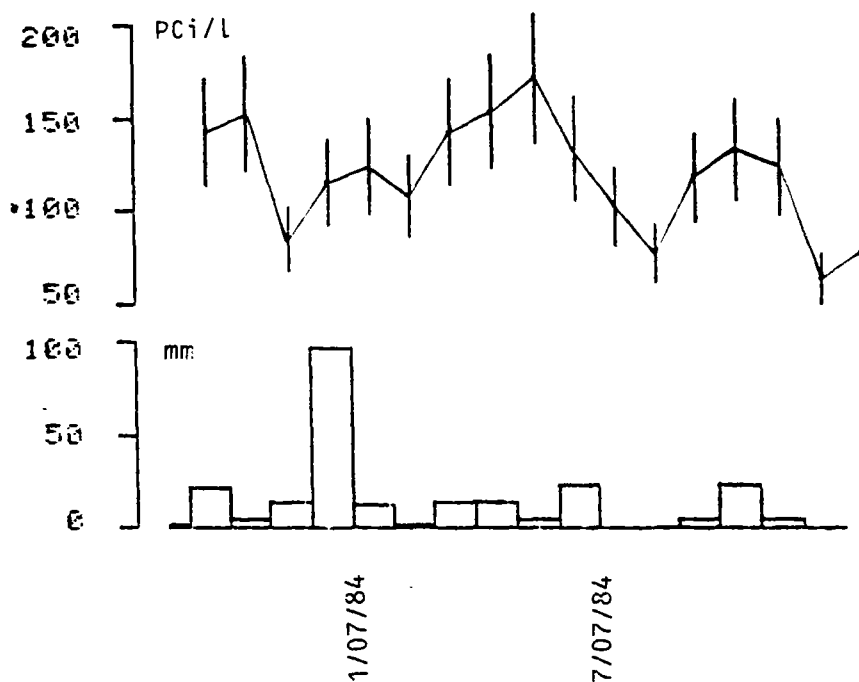


Figure 11 - Effets des précipitations sur la teneur en radon du sol (Site de référence du Parnasse) (extrait de : Baubron et Sabroux , 1984, p.54)

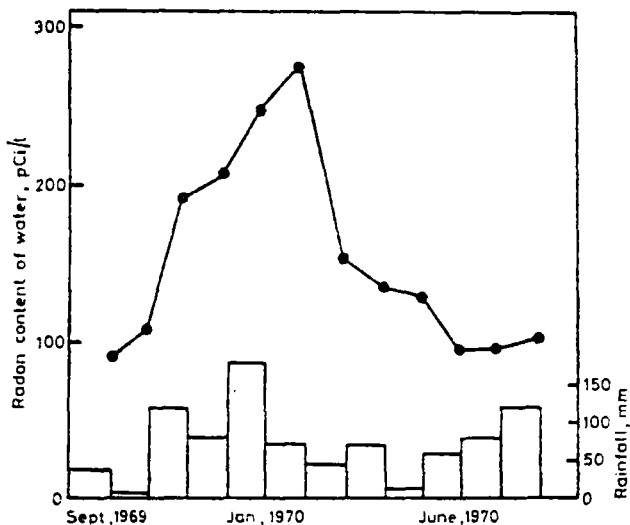


Figure 12 - Variation saisonnière des pluies et du taux d'émanation du radon dans les eaux des sources de Richford (extrait de : Andrews et Wood, 1972,p.B201)

Les contributions relatives de la diffusion ou du transport dans la migration des isotopes du radon et des autres gaz, sont assez difficiles à déterminer dans la pratique.

Robertson (1969), en procédant à des injections Kr^{85} dans le sol, a trouvé des coefficients de diffusion de $0,02 \text{ cm}^2/\text{s}$ (résultats en accord avec les calculs basés sur des modèles de diffusion).

Schroeder, Kraner et Evans (1965) ont trouvé des coefficients de diffusion $Dt = 0,036 \text{ cm}^2/\text{s}$ pour le Rn 222 dans des trous de profondeur de 0,37 m, 1,50 m et 2,86 m. Dans les derniers centimètres du sol, le transport et la diffusion ont donné un coefficient de diffusion effectif de $0,1 \text{ cm}^2/\text{s}$ proche de la valeur pour le radon dans l'air.

2.3.2. Influence des conditions météorologiques

Les conditions météorologiques ont une influence non négligeable sur le transport des isotopes du radon dans les couches superficielles du sol. Le mouvement du radon vers le haut est complémentaire de l'aération du sol.

Les facteurs météorologiques les plus importants dans la modification des concentrations du radon dans le sol sont :

- la pluie et la neige (fig.11 et fig.12),
- la variation de la pression barométrique (fig.13),
- la variation de température dans le sol (fig.13).

Collectivement, ces facteurs contribuent pour moins de 10 % à l'aération normale du sol. Mais les effets de transport et de diffusion ne sont pas dans la même proportion que ceux participant à l'aération du sol.

Pearson et Jones (1966) ont observé une décroissance du taux d'exhalation du radon 222 dans les périodes où le sol était froid ou gelé. Par contre, durant le dégel, le taux d'exhalation du radon 222 doublait.

Meguni et Mamuro (1973) ont noté dans la région d'Osaka que le taux d'exhalation du radon 222 était 2 à 3 fois supérieur en hiver, compte-tenu uniquement du taux d'humidité plus important dans le sol pendant ces périodes.

Bakulin (1969) a trouvé que les variations saisonnières du radon 222 étaient inférieures à 10 % et les teneurs les plus importantes étaient observées en été.

Gabelman (1972) a observé que l'activité de rayonnement des gaz du sol était en corrélation directe avec la température, et en corrélation inverse avec la pression barométrique et la pluviosité : une pluie "lourde" imperméabilise la surface du sol et a comme conséquence d'augmenter l'activité dans les gaz du sol pendant les 12 h suivant la pluie.

Clements et Wilkening (1974) ont établi une équation différentielle combinant la diffusion et les composantes du transport induit par la pression barométrique. Pour cela, ils utilisent les paramètres de la porosité et de la perméabilité du sol, les paramètres de densité et de viscosité des fluides interstitiaux, les paramètres de décroissance radioactive du radon 222 et de son taux de percolation, le coefficient de diffusion vraie, ainsi que l'expression analytique du champ de vélocité provenant d'un changement de dépression.

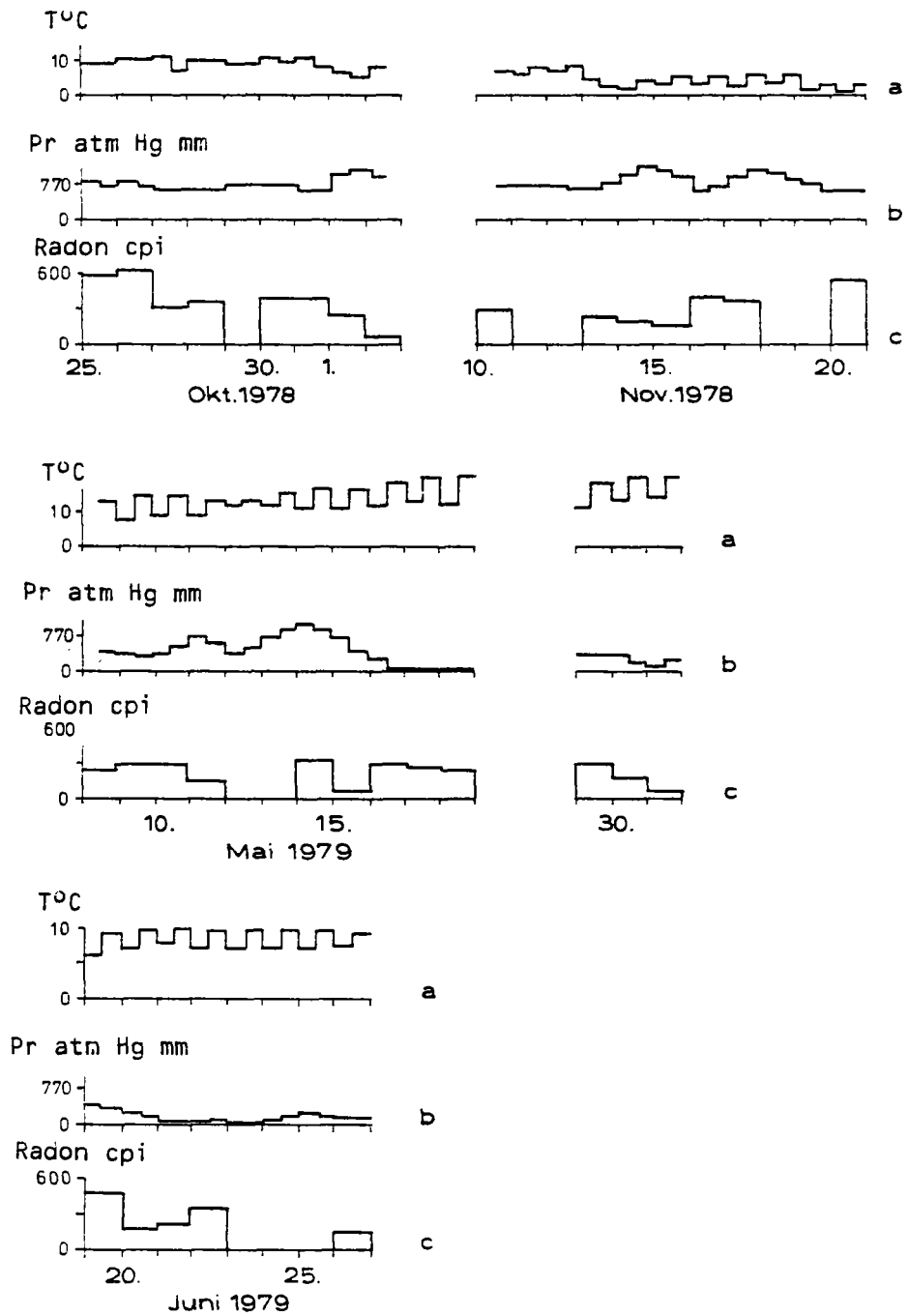


Figure 13 - Evolution des taux de rayonnement (c) d'une station de mesure de "bruit de fond" à différentes périodes en parallèle avec la température journalière moyenne (a) et la pression atmosphérique moyenne (b) (extrait : de Muller R., 1982, p. 129)

Les mesures expérimentales du taux de radon 222 qui étaient en accord avec leur modèle, utilisaient des vitesses de transport maximales de 4.10^{-6} m/s et dépendaient de la direction et de l'amplitude des changements de pression.

2.3.3. Migration dans les roches non saturées, fracturées, et dans les sols dérangés

Les systèmes de fractures et de chenaux peuvent aussi permettre la migration des isotopes du radon à partir de leur source d'émission et de points localisés, avec une dispersion moindre que par une diffusion dans toutes les directions à partir de la source d'émission elle-même.

Le transport devrait jouer un rôle progressivement de plus en plus grand dans la migration du radon de son emplacement d'origine vers l'extérieur. Dans les échanges avec l'atmosphère, le rôle de l'air dans le sol devrait être beaucoup plus grand le long du chemin de moindre résistance comme les fractures et les chenaux qu'à travers les zones non dérangées.

Les analyses mathématiques de la diffusion sont généralement établies pour un milieu homogène et isotrope. La présence de fractures et de chenaux dans les roches rendent ces formulations inapplicables.

Dans les roches et les sols non fracturés et non dérangés, le coefficient de diffusion partielle est considérablement plus petit que dans les fractures et les chenaux eux-même.

Empiriquement, la migration du radon peut être décrite qualitativement. Plusieurs exemples nous sont donnés :

- * **Kraner (1963)** a mesuré les concentrations en radon près de la surface du sol dans des tuffs soudés, des tuffs soumis aux intempéries et dans des alluvions, avant et après des explosions souterraines nucléaires. Les résultats ont montré un mouvement plus rapide du radon vers le haut après la déflagration nucléaire.
- * **Tanner (1958)** a étudié le comportement du radon dans des trous de forages pénétrant un minerai d'uranium. L'auteur a trouvé une relation entre la teneur totale du radon dans le trou et les variations de la pression atmosphérique. Dans le trou du forage, le mécanisme du transport est prédominant, car le flux du radon observé est supérieur à celui qui pourrait être dû à la seule diffusion.
- * **Holoday (1957)** a noté que le radon se trouve à des concentrations moyennes à élevées dans les mines d'uranium faiblement ventilées.

2.4 - Migration dans les roches saturées et dans les sols

Les coefficients de diffusion des isotopes du radon dans un milieu poreux saturé d'eau sont extrêmement petits.

Baranou (1949) a montré que les coefficients de diffusion dans un milieu poreux saturé sont à peine inférieurs aux valeurs observées dans l'eau. Par contre, la température joue, et le coefficient de diffusion double avec une élévation de température de 10 à 20°C.

Si les isotopes du radon dans le sol et les roches saturées doivent migrer à des distances significatives, le mécanisme de transport par un fluide doit être

prédominant. Or la circulation des liquides souterrains varie sur de grandes distances, et dépend des conditions locales.

Dans les milieux où l'eau circule à travers des matériaux plus ou moins perméables, deux cas peuvent se présenter. Si l'on considère le transport du radon dans un puits, on observe :

- a - une circulation gravitaire dans une direction : c'est le cas où le débit extrait du puits est si faible que la circulation de l'eau n'est pas dérangée ;
- b - une circulation radiale (de vitesse supérieure à la circulation gravitaire).

La distance de migration de l'isotope du radon sera la distance traversée par le liquide transporteur durant la période de durée de vie de l'isotope $1/\lambda$.

Pour le cas a, la distance de migration est accrue par l'importance de la circulation de l'eau souterraine qui peut atteindre, dans des cas très favorables, 30 m/j, mais qui se situe habituellement entre 1,5 m/an et 1,5 m/j.

Les distances auxquelles on détectera les différents isotopes ne seront donc pas les mêmes, car leur durée de vie est différente : $Rn^{222} = 5,5$ jour, $Rn^{220} = 75$ s et $Rn^{219} = 5,7$ s.

Pour le cas b, la distance de migration est proportionnelle à la racine carrée du taux de circulation de l'eau à travers le puits.

Andrews et Wood (1972) ont établi une formule mathématique concernant le mouvement du radon par transport dû à une lente percolation de l'eau à travers un milieu poreux.

Le gradient de concentration du radon à la surface de la roche sera :

$$N_x = N_0 e^{-\lambda x/v}$$

- où N_x est le nombre d'atomes de radon à la distance x de la surface
 N_0 est le nombre d'atomes de radon à la surface
 v est la vitesse du mouvement de l'eau en surface.

La figure 14 compare les gradients de concentrations qui ont été établis dans l'eau pour une migration due à la diffusion et au mécanisme de transport, pour des vitesses de transport différentes. Le coefficient de diffusion du radon dans l'eau étant de l'ordre de 10^{-5} cm²/s. Les différentes vitesses d'écoulement du fluide sont comprises entre 10^{-6} et 10^{-3} cm/s. Ce diagramme confirme que le mécanisme de transport est prédominant lors de la migration dans une phase aqueuse.

Toujours dans cette même publication, **Andrews et Wood** ont calculé l'activité du radon dans les eaux des formations aquifères étudiées. Nous citerons l'étude sur la formation des sables de Midfort : "C'est un milieu très poreux à travers lequel il y a une lente infiltration de l'eau. La porosité est de 50 %, mais dans les niveaux compacts elle est de 25 à 50 %. Le temps de séjour de l'eau dans l'aquifère peut être de plusieurs mois, mais plus long que le temps nécessaire pour établir l'équilibre du radon dans l'eau des pores."

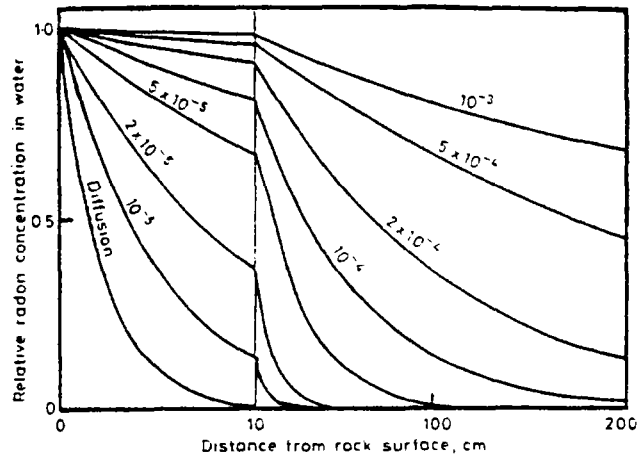


Figure 14 - Gradients de concentration du radon dans l'eau normaux à la surface de la roche, pour le phénomène de diffusion et trois vitesses différentes de transport (cm/s.) (d'après J.N. Andrews, 1972, p.B205)

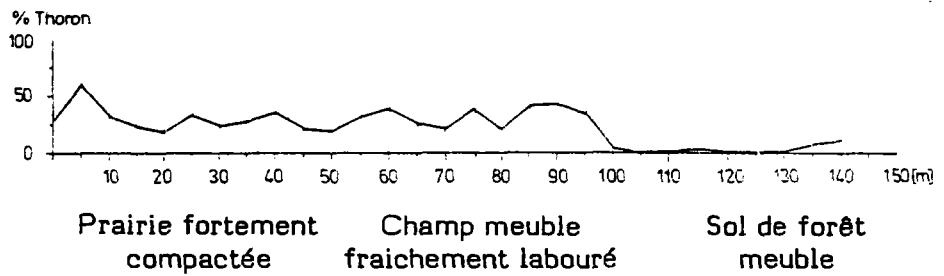


Figure 15 - Influence des différentes utilisations de sol pour les teneurs en thoron (extrait de Muller R., 1982, p.131)

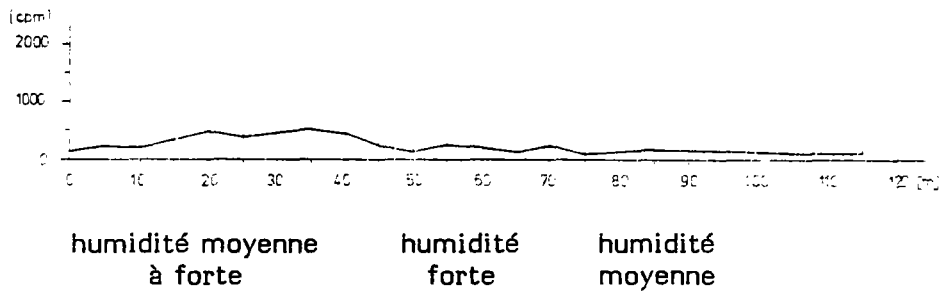


Figure 16 - Influence de l'humidité du sol sur la teneur en thoron (extrait de : Muller, 1982, p.130)

La concentration du radon exprimée en pci/cm^3 dans l'eau en mouvement à travers un tel matériel est donné par la relation :

$$[\text{Rn}] = \frac{a \rho [\text{Ra}]}{f} (1 - e^{-\lambda x/v}) (e^{-\lambda x'/v'})$$

- où Ra est la teneur en radium dans le sable (pci/gr),
 ρ est la densité du sable,
 f est la porosité du sable,
 v est la vitesse de l'eau dans le sable,
 v' est la vitesse de l'eau après avoir quitté le sable,
 x est la longueur du trajet de l'eau à travers le sable,
 x' est la longueur du trajet de l'eau après avoir quitté le sable,
 a est le facteur variable qui tient compte du calibre des particules, de leur distribution dans le sable et il est égal au ratio de l'équilibre de l'activité du radon dans l'eau et du radon dans le sable ; il est déterminé expérimentalement par la libération du radon d'un échantillon de sable dans l'eau.

A Midfort, le coefficient a est de 0,15 ; la densité volumique est de $2,65 \text{ g}/\text{cm}^3$. Le radon contenu dans l'eau de l'aquifère calculé par la formule est 300 à 800 pci/l pour une teneur en radon de 0,7 pci/gr dans le sable. Le temps minimal de séjour dans le sable pour que la teneur en radon dans l'eau atteigne l'équilibre est de 25 j, et l'épaisseur de sable nécessaire pour une vitesse de transport de 0,86 m/j est d'environ 22 m.

R. Muller (1982) a souligné l'importance du contexte pédologique dans les mesures des isotopes du radon dans les gaz du sol :

- 1 - **Influence due à l'utilisation du sol.** Selon l'utilisation du sol, on pourra avoir des tassements différents : un sol où l'on vient d'effectuer la récolte sera plus dense et plus compact qu'un sol qui vient d'être labouré. Il y aura une perméabilité différente et donc un pouvoir d'exhalation différent (fig.16).
- 2 - **Influence due à l'humidité du sol.** Les plus fortes concentrations en radon sont obtenues sur des sols moyennement humides. Dans un sol à eaux stagnantes, les prélèvements sont impossibles. Dans un sol trop sec, les teneurs en radon seront les plus faibles, pour deux raisons principalement :
 - a) le radon s'échappera facilement dans l'atmosphère et ne sera pas retenu dans les couches supérieures par l'intermédiaire de film d'eau interstitiel.
 - b) le gaz radon formé à grande profondeur est transporté par l'eau souterraine, le taux de diffusions du gaz est trop petit pour que de grandes distances soient couvertes en période sèche, l'entraînement par l'eau souterraine est donc restreint. Le comportement du radon et du thoron est affecté par l'humidité. Pour les sols humides, les concentrations en thoron sont relativement moins importantes. Sur la figure 15, le thoron disparaît là où apparaît une forte humidité du sol.
- 3 - **Influence de la composition du sol.** Des forages effectués sur les sites où ont été mesurés les gaz du sol, ont permis de déterminer la composition des matériaux et la granulométrie du sol. Dans les sols argilo-sableux, les concentrations en radon sont les plus faibles, ce qui s'explique facilement par l'action d'écran des argiles. Ce sont les sols sableux ou sablo-argileux qui donnent les plus fortes concentrations. Des intercalations argilo-sableuses ne semblent pas gêner de façon significative les migrations du radon.

En conclusion, **Muller** précise les conditions optimales pour réaliser des mesures correctes : "Il faut effectuer des mesures de concentrations des isotopes de radon dans les gaz du sol, sur des sols ayant une même forme d'utilisation et de préférence sur des surfaces libres à usage agricole. Les mesures (dans un pays comme l'Allemagne) devront avoir lieu à l'automne et au printemps pour que le sol présente une teneur en humidité moyenne. Afin de tenir compte de l'influence de la composition du sol sur la migration des isotopes du radon, il faudra éviter les sols trop argileux".

Fleisher et Mogro-Campero (1976) ont introduit le concept de mouvement de convection du radon au travers des fluides dans le sol (fig.17). Ces mouvements de convection d'origine thermique pourraient avoir selon les saisons des effets différents. En été, la température plus élevée dans les couches supérieures du sol produirait une barrière à l'émanation du radon. En hiver, l'émanation élevée dans certaines zones et basses dans d'autres, en l'absence de toute autre cause, serait dû à ces circuits de convection.

Ces mêmes auteurs ont montré l'effet d'un flux convectif du gaz ascendant ou descendant sur la courbe de diffusion (fig.18) du radon dans les sols (**Fleisher et Mogro-Campero**, 1980). Pour **Sabroux M.C.** (1984), l'intérêt d'un tel schéma montre son application dans les techniques de prospection : "Dans un sol homogène, un flux de gaz ascendant n'augmente pas de plus d'un facteur 3 une concentration en radon mesurée à 50 cm de profondeur dans le sol : en effet, un tel flux déforme le profil de diffusion, mais ne déplace pas son asymptote". Diminuer la profondeur d'investigation augmenterait la capacité de détecter de telles anomalies, mais augmenterait l'incertitude sur les mesures, car la courbe de diffusion a une pente très forte au voisinage immédiat de la surface. En conséquence, il ne paraît pas souhaitable de réduire la profondeur d'investigation à moins d'une cinquantaine de centimètres.

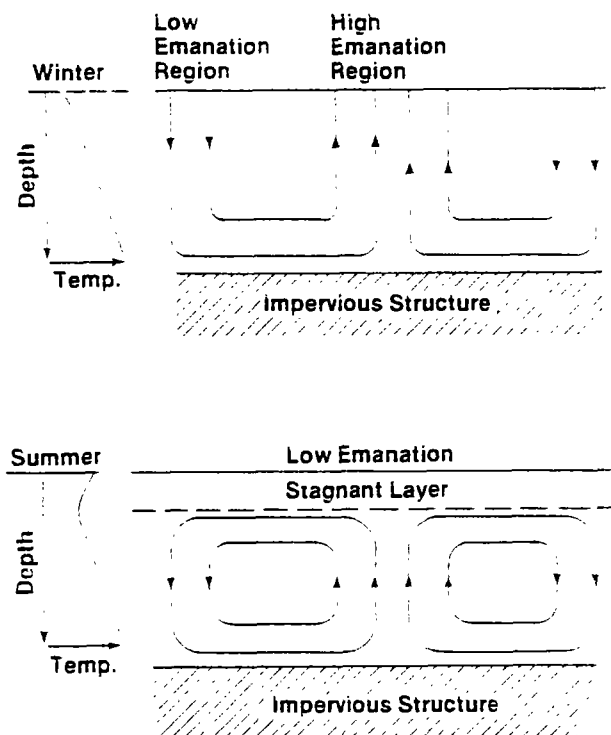


Figure 17 - Schéma de connexion du fluide en subsurface et influence sur le taux d'émanation du radon (extrait de : **Gingrich**, 1984, p.26)

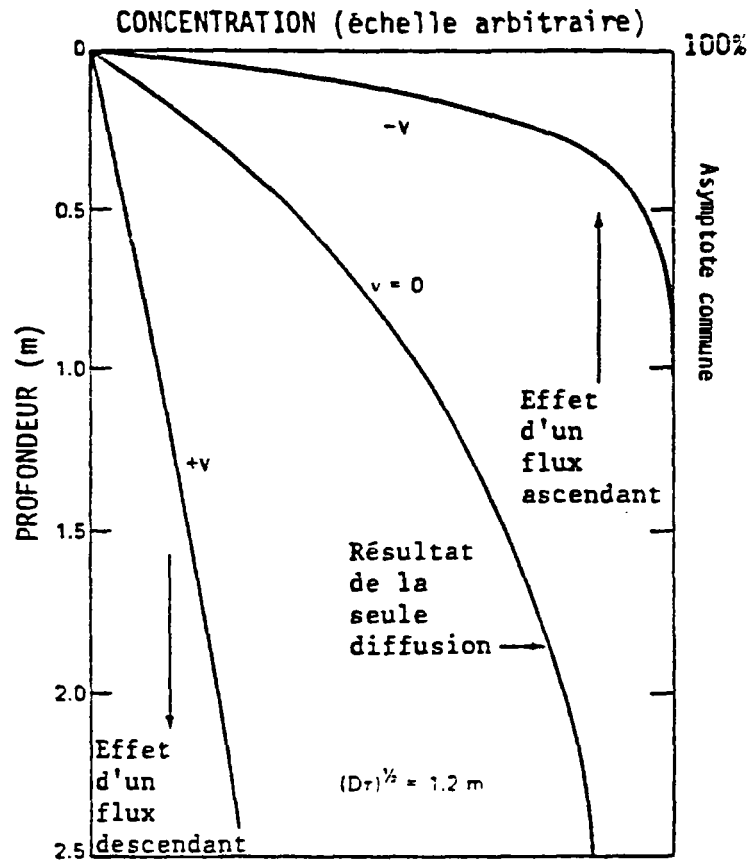


Figure 18 - Effet d'un flux convectif ascendant ($v < 0$) ou descendant ($v > 0$) sur la courbe de diffusion du radon dans le sol $\tau = 1/\lambda$ et $v = 2 \cdot 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ la porosité du sol (d'après Fleisher et Mogro-Campero, 1980)

3 - APPLICATIONS GEOLOGIQUES

Les isotopes du radon, et principalement le radon 222 grâce à la combinaison de ses propriétés radioactives et physiques, constituent un signal potentiel caractéristique d'évènements géologiques, signal dont la détection est facilitée par le développement intensif des techniques de métrologie nucléaire.

Les mesures de concentrations des émanations du radon provenant du sous-sol, appliquées aux sciences de la terre, sont actuellement :

- la localisation de gisements uranifères,
- la prévision d'évènements géologiques dans les domaines de la volcanologie et de la sismologie,
- la localisation de failles et de structures géologiques dans la recherche de réservoirs géothermiques et en hydrothermalisme.

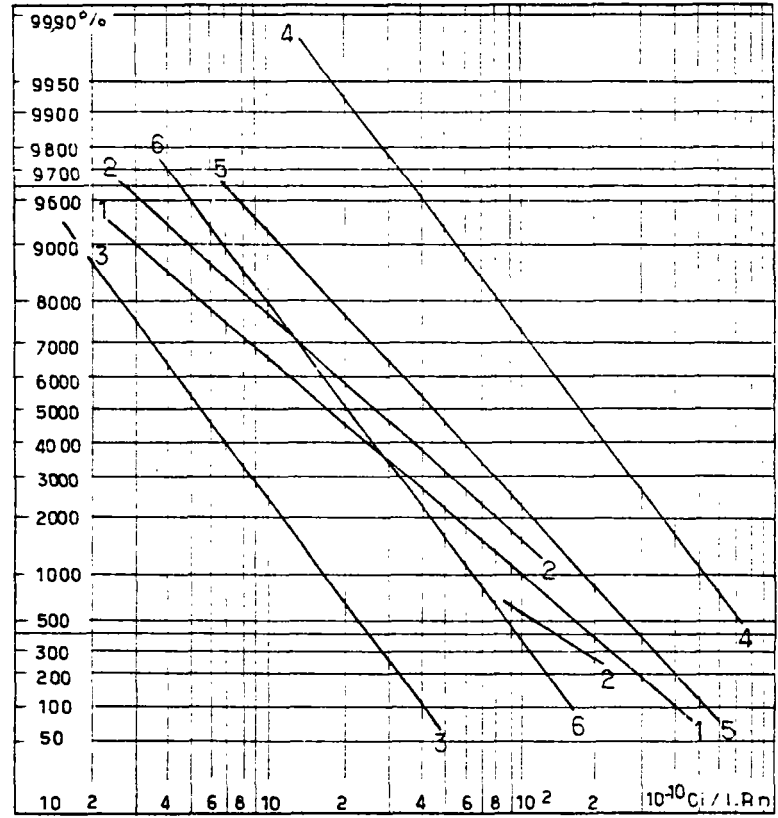
3.1 - La prospection de l'uranium

Le radon étant un produit de désintégration de la famille de l'uranium, il a été utilisé depuis longtemps comme guide de prospection des gîtes uranifères.

Parmi les premiers travaux établissant la relation : "concentration des teneurs en radon dans les eaux" et "prospection géochimique de l'uranium", figurent les travaux de **G. Jurain** (1962). Pour cet auteur, le dosage systématique du radon dans les eaux souterraines (fig.19), en vue de servir de guide à la prospection de l'uranium doit être effectués si trois conditions peuvent être réalisées simultanément :

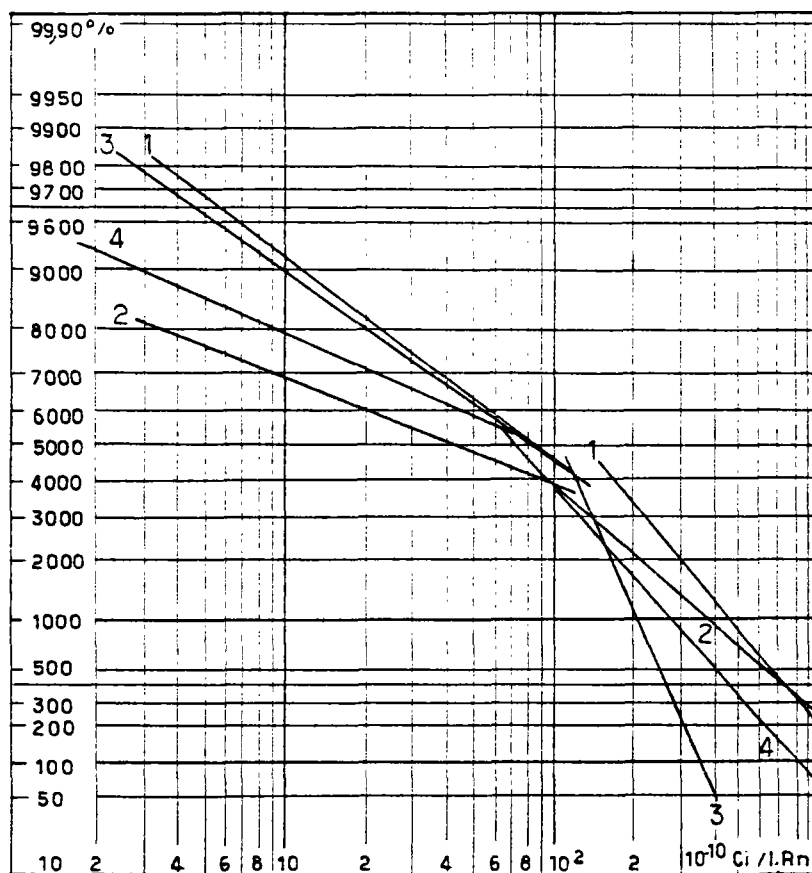
- 1 - La distribution statistique des teneurs doit présenter deux modes, correspondant à deux populations de teneurs (fig.20),
- 2 - Les teneurs d'une des populations doivent être supérieures à 1000-1200 pci/l, cette valeur représentant le fond géochimique (**Clarke**),
- 3 - La population des hautes teneurs doit représenter environ 40 % de la population totale des prélèvements.

Il faut souligner une limite aux méthodes de prospection classique. Le radon provient de la désintégration de radium, or ce radioélément migre dans les eaux souterraines plus rapidement que ses progéniteurs. Dans un gisement uranifère sédimentaire (site de Treville, Aude, France), on observe une distribution des radioéléments suivant le gradient hydraulique de l'aquifère. D'amont en aval, on trouve une répartition des familles radioactives régie par les propriétés radiochimiques de chacun de ses membres. Ainsi une forte teneur en radon dans les gaz du sol n'implique pas forcément l'existence d'un gîte uranifère à l'aplomb du site. Il faut alors se référer au régime hydraulique de la nappe, ainsi qu'aux propriétés chimiques des radioéléments pour essayer de localiser la position du corps radioactif supposé.



- 1 = Roches granitoides des Vosges 1958.
- 2 = Granite des Vosges 1959.
- 3 = Grès Vosges 1959.
- 4 = Granulite Questembert 1958.
- 5 = Gneiss et Micaschistes - Questembert 1958.
- 6 = Schistes Pontivy 1959.

Figure 19 - Ajustement graphique des teneurs en radon d'eau naissant dans une formation géologique homogène (extrait de : Jurain G., 1962, p.270)



- 1 = Les Epesses-Mallièvre 1958.
- 2 = La Chapelle-Largeau 1959.
- 3 = Pontivy 1959 (Granulite).
- 4 = Permis exclusif de Recherches de Bonnac 1960.

Figure 20 - Ajustement graphique des teneurs dans des formations géologiques recelant des minéralisations uranifères (extrait de : Jurain G., 1962, p.271)

Phénomènes précurseurs

- a mouvements crustaux
- b résistivité électrique
- c émanation de radon
- d anomalie V_p/V_s
- e valeur b

Intervalle de temps précurseur :

I nombre de jours

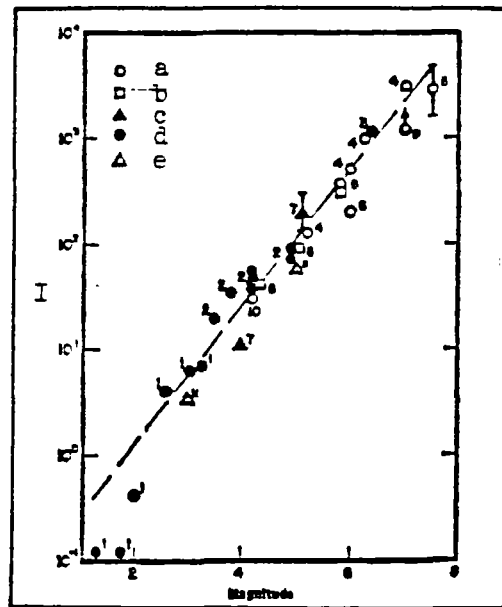


Figure 21 - Durée de divers signaux précurseurs en fonction de la magnitude pour 11 événements sismiques (USA, URSS et Japon) (d'après C.H. Scholz, 1973)

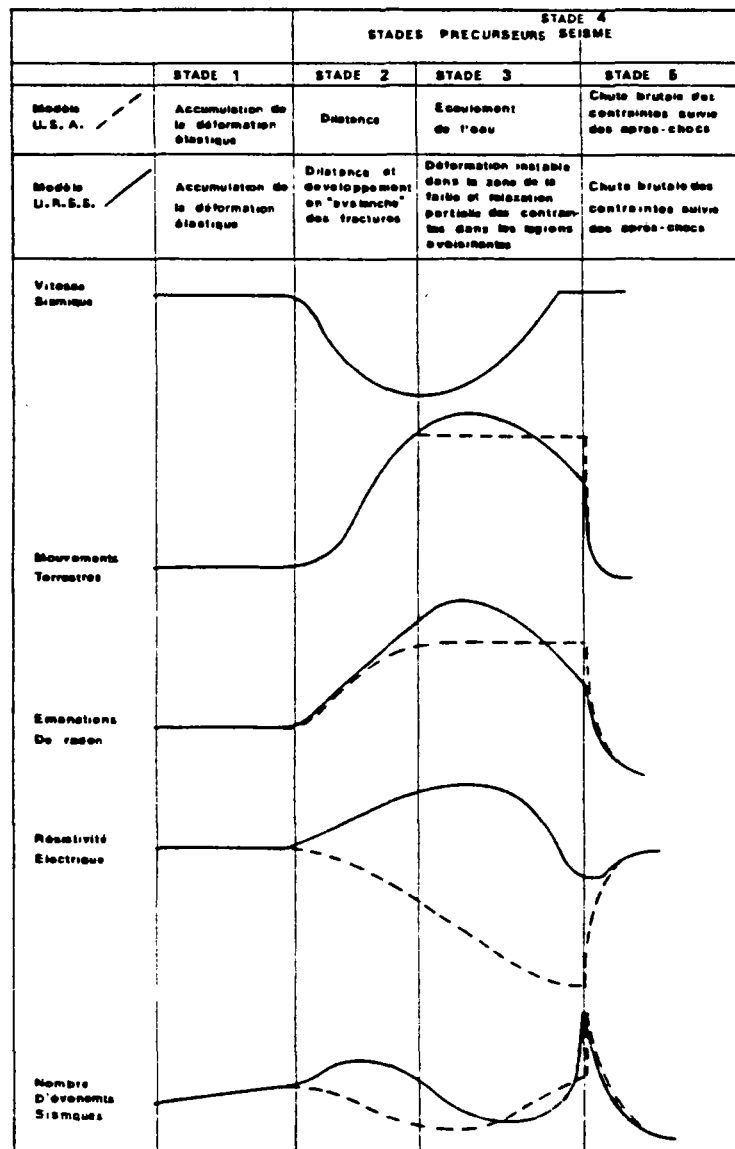


Figure 22 - Modèles de dilatance-diffusion et dilatance-instabilité et évolutions des signaux précurseurs de l'activité sismique (d'après F. PRESS, 1975)

3.2 - Prédiction des éruptions volcaniques et des séismes

3.2.1. Eruptions volcaniques

L'étude des variations des concentrations du radon appliquée aux volcans en activité se propose d'étudier dans quelle mesure ce gaz radioactif représente un éventuel signal précurseur des éruptions volcaniques.

L'idée fondamentale est que la montée du magma entraîne une augmentation significative de la concentration des émanations du radon sur un volcan donné, par une élévation de la température, par l'augmentation des pressions au sein de l'appareil volcanique, dû par la montée du magma elle-même (Monnin, 1970).

Les premiers résultats marquants ont été obtenus quinze jours avant l'éruption en septembre 1977 du Krafla (Islande). Le taux d'émanation du radon a augmenté de 3 à 18 fois durant la période précédant cette éruption (Monnin, 1981).

3.2.2. Prévisions de séismes

Parmi les phénomènes (mouvements crustaux, perturbations de la vitesse des ondes sismiques, de la fréquence des séismes, du niveau et de la température des eaux souterraines, des champs magnétiques et électriques) qui précèdent l'activité sismique, les émanations gazeuses, en particulier celles du radon montrent d'importantes variations. A partir de leur enregistrement, les géologues ont envisagé de préciser les corrélations entre les variations de la concentration en radon et le cadre sismotectonique afin de développer une méthode de prédiction des séismes.

Il est probable que l'ensemble des signes précurseurs d'un séisme (émission de radon, mouvements terrestres, résistivité électrique, vitesse sismique) soit engendré par un phénomène géophysique unique affectant le sous-sol. En effet, lors de sollicitations sismotectoniques, les variations du champ de contraintes des roches provoquent des perturbations notables de leurs propriétés physiques intrinsèques (résistivité, porosité, fracturation...), ainsi que des paramètres hydrauliques (pression, température, vitesse de circulation...) des fluides qui les imprègnent.

De nombreuses publications ont décrit les relations reliant les variations de la concentration de radon sur des sites témoins peu de temps avant les séismes. Les anomalies de concentration en radon pouvaient être soit positives soit négatives, par rapport à la valeur moyenne. Une théorie "dilatance-diffusion" basée sur les mesures de mécanique des roches en laboratoire, a été proposée par Scholz (fig.21). Le modèle théorique a permis d'expliquer physiquement et d'une manière globale l'apparition et l'évolution au cours du temps des signaux prémonitoires de l'activité sismique.

Press (1975) a proposé des modèles plus élaborés "dilatance-diffusion et "dilatance-instabilité" pour expliquer l'évolution des signaux précurseurs de l'activité sismique, et des anomalies en radon (fig.22).

L'existence simultanée d'anomalies positives et négatives des émanations du radon précédant un séisme pourrait être due aux différences de positions des stations de mesure, par rapport aux quadrans de compression et de dilatation de la région épicertrale.

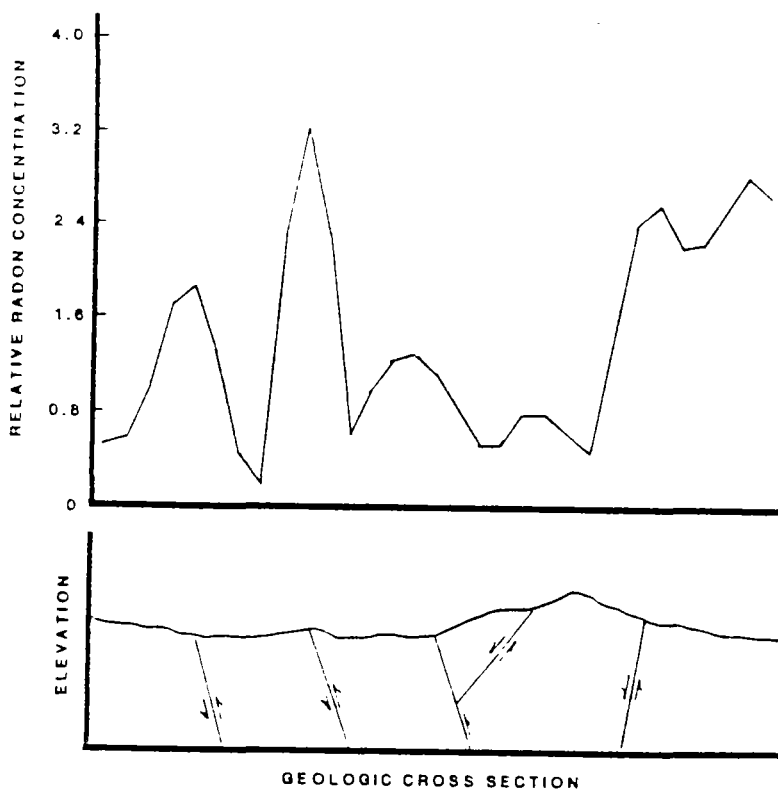
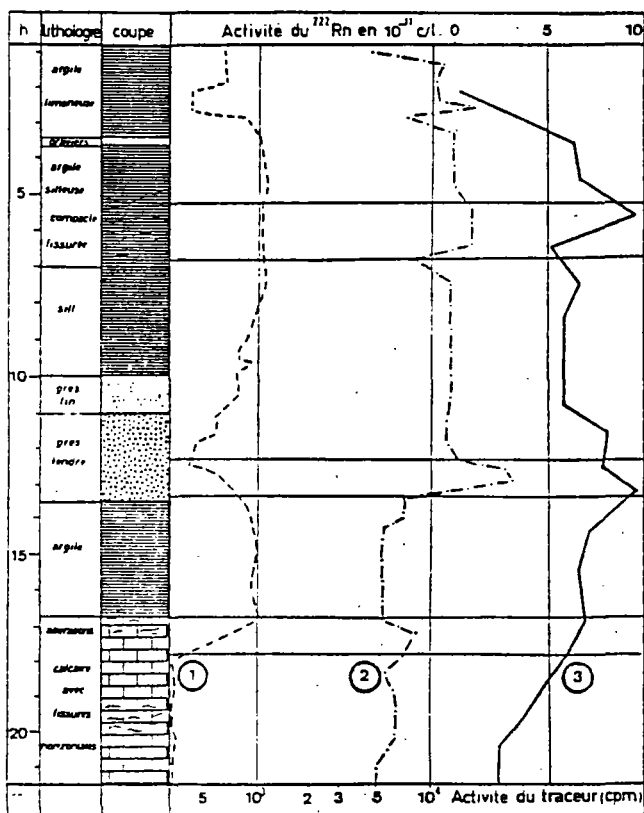


Figure 23 - Concentration de radon dans les gaz du sol au dessus des failles (extrait de Gringrich, 1984, P.36)



Courbe n° 1 : Radioactivité naturelle (50 à 800 keV) en cpm ; Courbe n° 2 : Radioactivité à la suite d'une injection de ^{82}Br en cpm ; Courbe n° 3 : Radioactivité du ^{222}Rn . Prélèvements effectués par intervalles de 0,50 m, avant toute injection de traceur radioactif artificiel (en 10^{-11} curie par litre).

Figure 24 - Teneur en radon en fonction des formations perméables (extrait de Levêque P., 1971, p.2294)

Dans un secteur en compression, la diminution de la porosité du sol augmenterait la vitesse de migration du radon, entraînant ainsi une anomalie positive alors dans un secteur en dilatation. L'accroissement de la porosité diminuerait la vitesse du flux de radon, et par conséquent sa teneur dans les eaux souterraines ou près de la surface du sol (Birchard, 1978 et Talwani, 1980).

3.3 - Localisation de failles enterrées et de structure géologique

De nombreux exemples dans la littérature ont montré que des hautes activités en rayons anormales et les fortes teneurs en radon 222 dans les gaz du sol sont associées à des failles cachées ou à des dislocations.

Les premiers travaux, sur l'utilisation des concentrations de radon dans les gaz du sol pour la localisation de failles, ont été réalisés par Abronn en 1921.

Gingrich (1984), dans son article "Radon as a geochemical exploration tool", donne un exemple de relation "radon-faille" (fig.23).

Vogler (1960) a présenté plusieurs arguments pour prouver la migration de l'uranium et du radon 226 à partir des failles et l'accumulation de ces éléments par échanges d'ions avec les argiles du sol. Ces deux phénomènes sont les causes principales des anomalies sur des failles.

Budde (1961) émet l'hypothèse que les failles créent une surface beaucoup plus grande et par conséquent provoquent une libération plus importante de radon.

Jirkovsky (1962) a présenté des exemples de l'utilisation énamométrique pour localiser des failles et des contacts géologiques masqués par des alluvions, comme une aide à la cartographie géologique.

Tanner (1964) a trouvé que les anomalies de radon 222 dans les eaux souterraines à proximité des failles étaient probablement dues à la précipitation du radium 226 au niveau de l'interaction entre l'eau circulant le long de la faille et l'eau de la nappe libre.

Lévêque (1971) a utilisé le radon 222 comme traceur naturel complémentaire en hydrologie souterraine (fig.24). L'activité du radon augmente sensiblement au droit des horizons perméables, dans lesquels l'eau circule à une vitesse appréciable, cette activité du radon étant proportionnelle à la vitesse de l'eau. Mais les horizons perméables des couches traversées par les forages ne paraissent constituer dans la majorité des cas la source du radon. Pour les nappes aquifères profondes exploitées par des forages situés à proximité de failles ou d'accidents structuraux, des quantités anormalement importantes de radon étaient détectées à proximité de ces accidents.

Les recherches les plus intéressantes ont été effectuées par Israel et Bjornsson (1966) sur les concentrations en thoron et en radon dans le gaz des sol au dessus des failles, dans la région de Aachen (Aix-la-Chapelle) et à la station des bains de Bad-Nauheim en Allemagne :

1 - Région d'Aix-la-Chapelle (fig.25)

Des profils de prélèvements ont été effectués perpendiculairement aux directions de fractures dont la localisation a été déterminée avec précision sur le terrain. 10 profils de prélèvements ont été effectués sur 4 sites différents. La longueur des profils est de 60 m, et les prélèvements de gaz

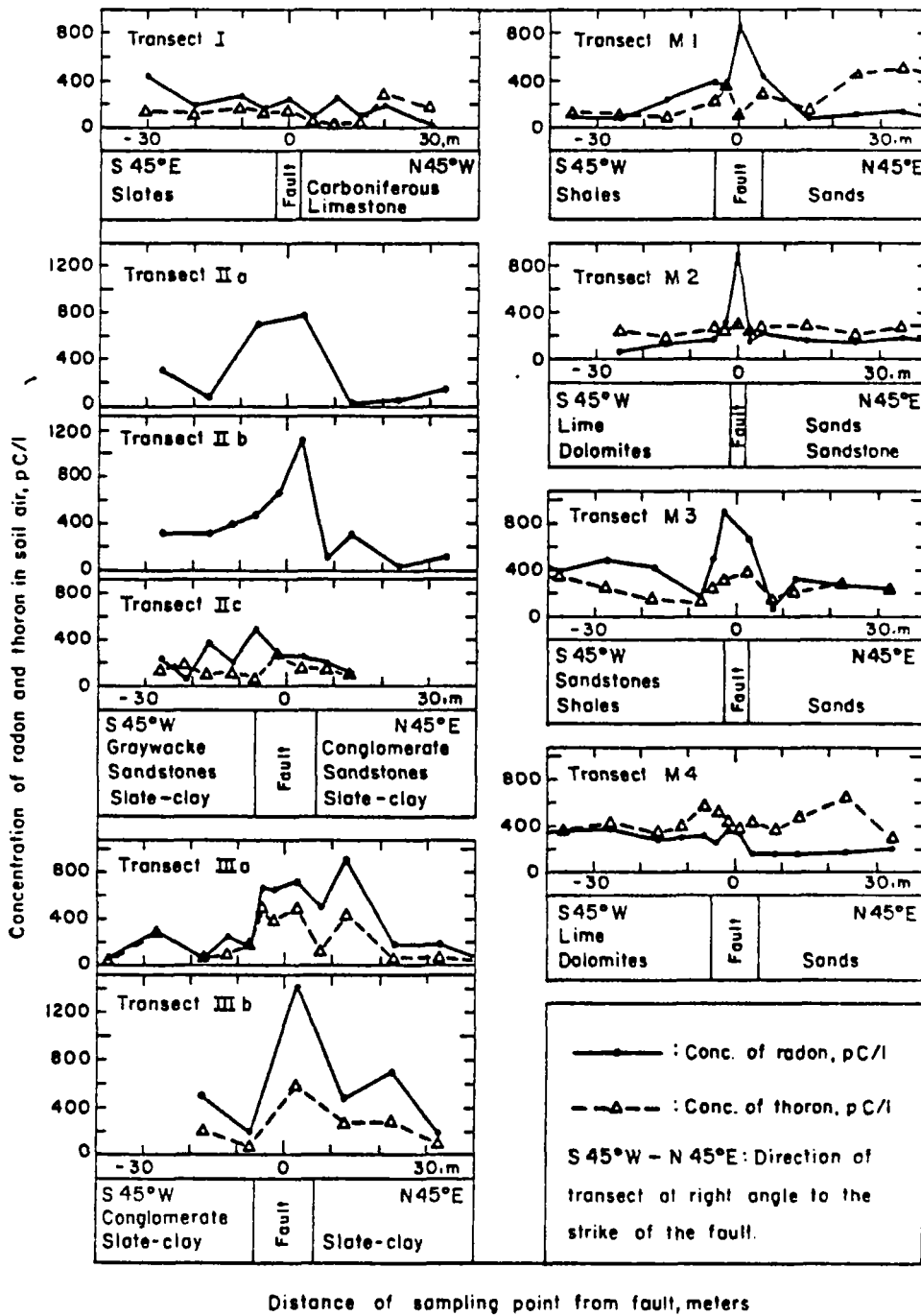


Figure 25 - Concentration en radon dans le sol sur différents profils perpendiculaires à la direction de faille aux environs d'Aix-la-Chapelle (extrait de Israel H. et Björnsson, 1966, p.53)

sont effectués tous les 10 m. Les prélèvements sont plus rapprochés au droit des fractures. Les concentrations du radon et du thoron dans le sol à 1 m de profondeur ont été de 100 à 1600 pci/l et de 100 à 600 pci/l respectivement. Sur le premier site un seul profil a été réalisé. Aucune anomalie en radon et en thoron n'a été détectée. La raison est due à un colmatage argileux de la faille peu perméable à la circulation de l'eau et des gaz.

Le deuxième site est localisé au niveau d'une faille dans les formations de grès et des schistes ardoisiers du dévonien inférieur. Sur les profils II à IIb séparés de 5 m, l'emplacement de la faille a été nettement marqué par une anomalie en radon. Le profil IIc a été effectué au niveau du profil IIb, mais à quelques jours d'intervalle, et aucune anomalie en radon et thoron n'a pu être décelée au niveau de la faille.

2 profils séparés de 50 m IIIa et IIIb ont été réalisés sur le site III, et ont montré des anomalies nettes au niveau d'une faille située dans des schistes ardoisiers avec des bancs interstratifiés de grès et conglomérats.

Le site IV est situé au niveau d'une faille importante limitant un horst du socle et un graben tertiaire.

Le profil M1 a été réalisé au niveau d'une faille mettant en contact des sables et des argilites. L'anomalie en radon est plus nette que celle du thoron. La faible augmentation des teneurs en thoron au niveau de la faille a été expliquée comme étant une conséquence du mélange des deux types de sol dans la zone frontrière. Le profil M2 a été réalisé sur la même faille, mais séparant des calcaires du carbonifère inférieur des sables du tertiaire. Les mesures du radon ont localisé avec précision la position de la faille alors que les mesures en thoron n'ont présenté aucune anomalie. Le profil M3 est positionné au niveau de la faille mettant en contact les grès et sables argileux du dévonien supérieur et des sables tertiaires. Les concentrations en thoron et en radon ont donné des variations similaires. Toujours sur la même faille, le profil M4 n'a pas présenté d'anomalies aussi nettes que dans les profils précédents. Les mesures ont été effectuées avec un appareil différent. En conclusion, **Israel et Bjornsson** attribuent l'origine d'anomalies semblables dans les teneurs en radon et en thoron sur un même site au niveau d'une faille, à un enrichissement des parents de ces isotopes dans la formation de couverture plutôt qu'à un phénomène de migration. Les seules anomalies du radon devraient être attribuées à une migration de ce gaz, mais avec la réserve suivante : la géochimie des parents du radon et du thoron est différente et l'absence d'un enrichissement en thorium du milieu n'implique pas une évolution parallèle de l'uranium et du radium.

2 - Région de Bad Nauheim (fig.26)

Ce site déjà étudié en 1935 par **Israel et Beche**, est caractérisé par une très haute teneur en radon dans les gaz du sol au niveau de la faille responsable des sources d'eau salée de Bad Nauheim. Le substratum est constitué par des quartzites et des schistes argileux du dévonien inférieur et des calcaires fissurés de dévonien moyen. Ces formations sont surmontées par des sables et graviers tertiaires de 30 à 40 m.

Les teneurs en thoron (fig.27) détectées sur les profils de prélèvements sont du même ordre de grandeur que dans le site d'Aachen : de 100 à 1000 pci/l, mais aucune anomalie n'a été mise en évidence. Par contre les concentrations en radon varient de 1000 pci/l à 33000 pci/l au niveau de l'anomalie sur le profil 1. Des valeurs similaires pour les deux isotopes ont été obtenues en mesurant les concentrations de ces gaz à partir des dépôts de travertins des sources.

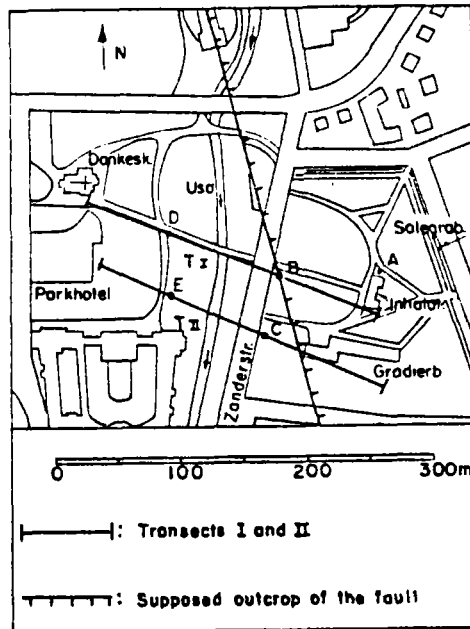


Figure 26 - Localisation des profils I et II sur la faille de Bad Nauheim et localisation des points de prélèvements à 1 et 2 m de profondeur (extrait de Israel et Bjornsson, 1966, p.57)

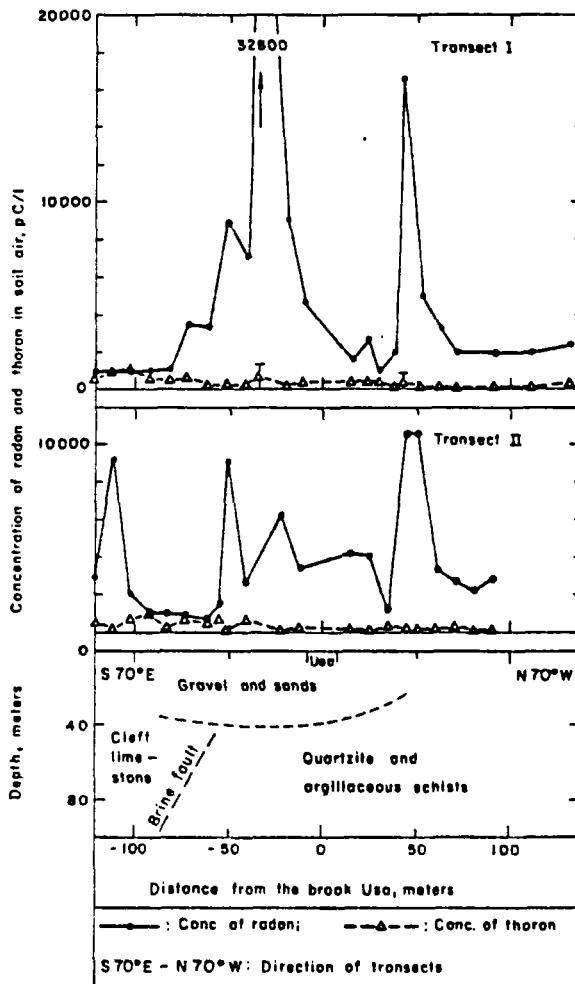


Figure 27 -

Concentration du radon et du thoron dans le sol sur la faille à Bad Nauheim (extrait de Israel et Bjornsson, 1966, p.59)

D'autre part, des mesures de radon ont été effectuées sur plusieurs endroits à des profondeurs différentes. Les résultats ont montré que les teneurs étaient plus élevées à 2 m qu'à 1 m.

Profondeur du sol	Localisation				
	A	B	C	D	E
1 m	7 000	2 940	2 880	15 200	12 100
2 m	12 600	3 720	4 020	56 000	31 600

Tableau 3 - Concentration du radon dans le sol (pci/l) à 1 et 2 m de profondeur à 5 lieux différents à Bad Nauheim

3.4 - Prospection de champ géothermique

Les anomalies thermiques ou structurales de la croûte superficielle se traduisent en principe par une modification des phases gazeuses des sols, dès lors que certains paramètres physiques ou chimiques de ces sols sont changés, ce qui modifie l'équilibre écologique naturel. Ces paramètres sont : la température, la teneur en eau, le flux des gaz inertes (le radon) ou actifs (CO_2 , SO_2 , ...).

La prospection géochimique des gaz des sols s'est avérée être un outil qui indique des discontinuités structurales et localisées, des flux d'énergie entre la croûte superficielle et l'atmosphère.

De nombreuses études en géothermie mettant à contribution la mesure du radon dans le sol ont été réalisées depuis 10 ans, et ont fait exclusivement appel à la méthode des détecteurs solides basée sur la révélation par un traitement chimique des dommages ou traces (tracks), causés sur un support de type photographique (nitrate de cellulose ou polycarbonate) par les particules alpha.

Baubron et Sabroux ont utilisé pour la première fois avec succès la méthode des fioles scintillantes en juin et juillet 1984, pour une prospection géothermique en Guadeloupe (rapport BRGM 84 SGN 400 GTH). La prospection par le radon a été intégrée dans une prospection géochimique par analyse in situ des gaz des sols : avec principalement l'hélium, le CO_2 et l'Argon dans le rapport CO_2/A_2 et l'oxygène et l'azote dans leur rapport O_2/N_2 . La conjonction des anomalies de ces trois paramètres a été interprétée en terme de fuite thermique du sol, l'anomalie de l'hélium indiquant l'aplomb de l'accident guide de la fuite. C'est un marqueur de surface directe de discontinuités sub-verticales de la croûte superficielle, alors que le gaz carbonique semble lié à des flux de gaz croûte-atmosphère, le radon, lui, étant l'indicateur d'un flux correspondant à un champ actif. Ces trois anomalies, He, CO_2 , Rn, peuvent être superposées ou découplées. Les transferts latéraux par les eaux superficielles semblent être les facteurs déterminant de la dissociation des anomalies.

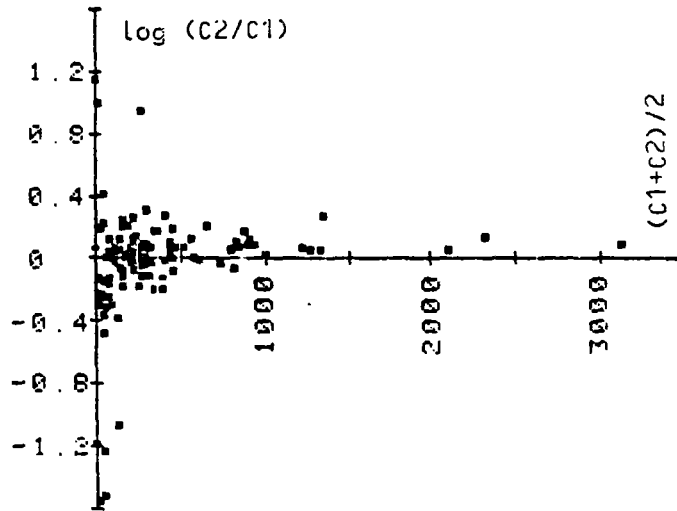


Figure 28 - Rapport des comptages de 2 échantillons successifs sur un même site représenté en fonction du comptage moyen des deux échantillons (extrait de Baubron et Sabroux, 1984, p.46/55/56)

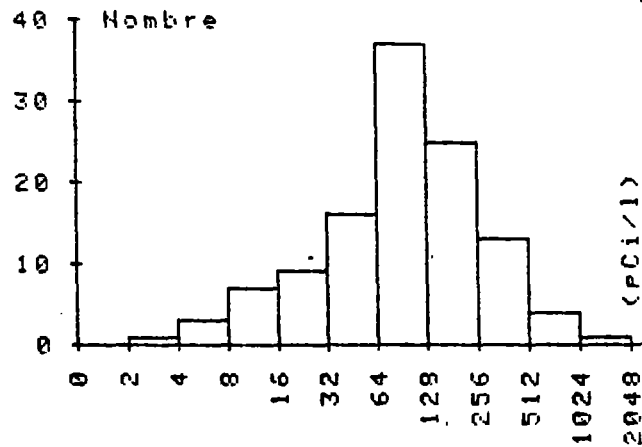


Figure 29 - Diagramme de distribution des activités volumiques relevées au cours de la prospection (extrait de : Baubron et Sabroux, 1984, p.46/55/56)

La prospection géochimique par le radon a été réalisée avec une maille d'investigation de 50 m pour un total de 116 sites étudiés. **Sabroux** insiste sur la nécessité d'effectuer deux prélèvements successifs de gaz (fig.28) dans le sol, afin d'apporter une plus grande assurance à la représentativité du prélèvement. Pour les résultats, il utilise la valeur maximale obtenue, plutôt que la moyenne des deux mesures. Les valeurs représentées sur un diagramme (fig.29) montrent une distribution sensiblement log-normale, ce qui traduit bien une prospection à anomalies. La distribution des mesures dans une zone parfaitement homogène serait en effet de type gaussienne. Les paramètres de la distribution des mesures sont les suivantes :

- activité volumique moyenne : 154 pci/l,
- activité volumique médiane : 95 pci/l,
- activité volumique modale : 73 pci/l.

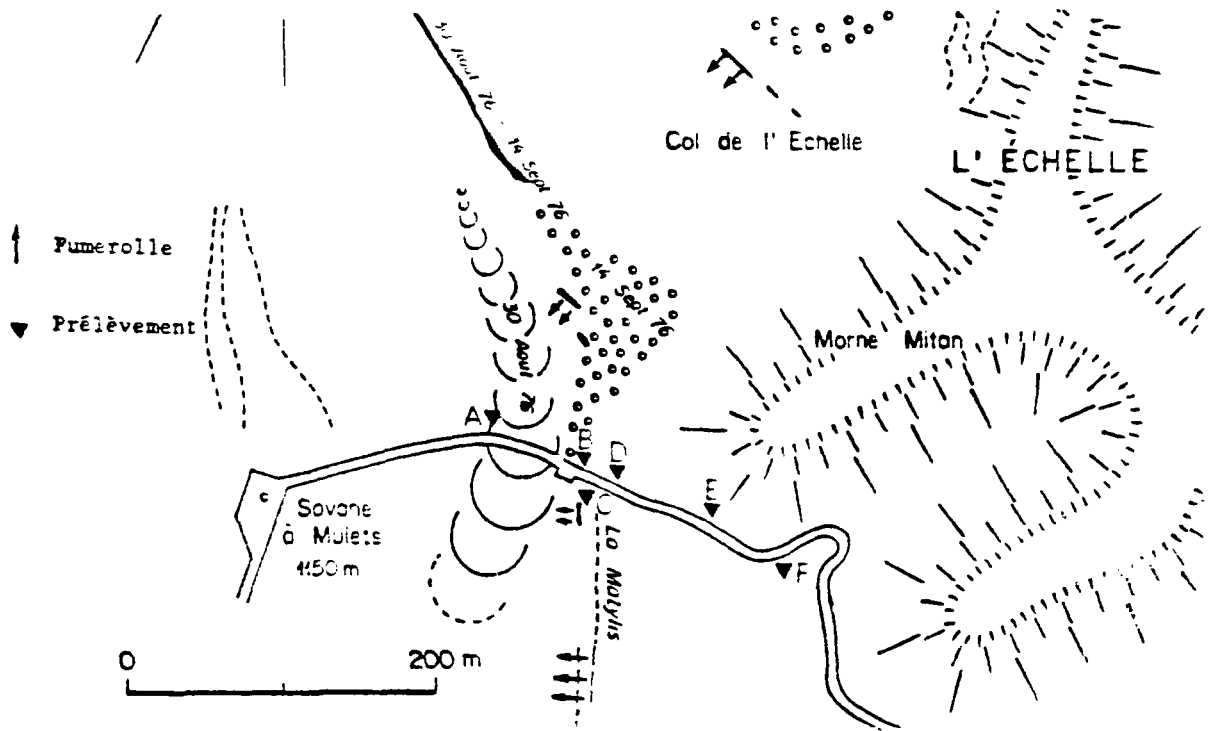
Les niveaux des plus fortes anomalies traversées sont de 20 fois le mode sur un sol géologiquement récent et pétrographiquement homogène. En prospection d'uranium, une valeur supérieure à deux fois la valeur modale (background) est généralement considérée comme une "anomalie". La plupart des gisements d'uranium détectés par la méthode du Tracketch ont donné lieu à des anomalies de 4 à 10 fois la valeur modale (**Gingrich et Fisher, 1976**).

Des mesures de la concentration en radon dissous dans les eaux ont été effectuées sur des sources thermales situées dans le champ géothermique prospecté. La très faible teneur en radon dans ces eaux thermales (< 55 pci/l) indique une origine relativement superficielle et/ou un important dégazage en amont du point d'émergence.

La figure 30 démontre l'application de la prospection du radon dans les sols pour la recherche d'une faille active matérialisée en certains endroits par des fumerolles.

La prospection géothermique par le radon doit s'affranchir des anomalies géochimiques de répartition du radium 226 dans le sol, puisque ce radium -et son parent l'uranium 238- ne constitue pas la cible de la prospection. Afin que les anomalies d'origine relativement profonde (radon importé) ne soient pas confondues avec des anomalies locales dues à des concentrations anormales de radium dans le sol superficiel, les mesures d'émanation spécifiques sur des sols secs ont été effectuées. Les mesures obtenues (1060 pci/kg et 123 pci/kg) sont d'un ordre de grandeur compatibles avec des valeurs raisonnables du pouvoir émanateur (un sol contenant 1 ppm d'uranium et pour lequel l'équilibre radium/uranium est satisfait, possède une activité spécifique en Ra²²⁶ de 340 pci/kg).

La prospection géothermique par le radon ayant été réalisée sur plusieurs jours, des mesures journalières de concentration dans le sol ont été effectuées sur un site témoin, afin de noter l'influence des conditions météorologiques (température, humidité du sol, pression barométrique, vitesse du vent...). Une certaine corrélation entre la concentration du radon dans le sol avec l'importance des précipitations a été mise en évidence (fig.11), mais avec une faible amplitude. La concentration en radon s'est établie autour d'une valeur de 119 ± 55 pci/l.



Fumerolles Matylis 96°C (% volume gaz secs)

CO ₂	H ₂ S	H ₂	CH ₄	N ₂	O ₂	²²² Rn(pCi/l)
88,47	3,63	3,11	0,003	1,31	0,42	9471

Site	A	B	C	D	E	F
pCi	29	2611	6512	2183	821	247

Figure 30 - Mise en évidence d'une faille active par la prospection du radon
(extrait de Baubron et Sabroux, 1984, pp.46/55/56)

Chovelon et Marty (1985) ont procédé à des analyses de gaz dans le sol en Martinique, dans le cadre d'une prospection géothermique. Des analyses d'hélium, de radon, de dioxyde de carbone et de monoxyde de carbone ont été effectuées sur les prospectifs du Lamentin (au centre de l'île de la Martinique) et de Morne Rouge - Montagne Pelée (au nord de l'île). Au Lamentin, l'existence d'un flux thermique (fig.31) actuel à l'aplomb des fractures majeures est mise en évidence par des anomalies importantes de radon, d'hélium et de CO. Au nord de l'île (Morne Rouge - Montagne Pelée), la prospection ne permet pas de localiser des remontées gazeuses significatives. Les mesures ont été effectuées par la méthode énamométrique utilisant les chambres à scintillation.

3.5 - Prospection des eaux thermominérales en vue d'un captage ou d'un recaptage

La remontée des eaux minérales et thermales vers la surface s'accompagne d'une baisse de pression et de dégagements plus ou moins intenses de gaz (CO₂, radon, He, S...). La prospection des teneurs anormales des gaz des sols permet de localiser les venues d'eaux thermominérales dans le sous-sol (détermination de failles productrices, implantation de forages, périmètre de protection...). Dans le contexte fortement urbanisé des stations thermales, là où les méthodes légères d'investigation en profondeur (électrique, VLF...) se révèlent souvent défaillantes (accessibilité, canalisation enterrée, lignes électriques), les mesures de gaz du sol représentent un marqueur relais de bonne qualité (Iundt, Berthier, 1985).

Recaptage des eaux thermales des thermes de Salut à Bagnères de Bigorre/65 (fig.32). Parallèlement aux outils classiques utilisés pour une investigation hydrogéologique d'un site hydrothermal (géologie structurale, hydrochimie et analyses isotopiques, prospections géophysiques VLF et électriques), une prospection des concentrations de radon a été effectuée à titre d'essai (Soulé, 1985). La méthode utilisée est celle des fioles scintillantes. Les prélèvements ont été réalisés selon la procédure définie par la note de Iundt (1985). La prospection par la détection des anomalies des concentrations du radon dans les gaz du sol a permis de mettre en évidence des zones à haute émanation de radon (supérieure à 2000 pci/l) par rapport à un "bruit de fond" d'environ 300 pci/l traduisant le passage d'une veine thermale en profondeur que les indices superficiels ne permettaient pas de déceler.

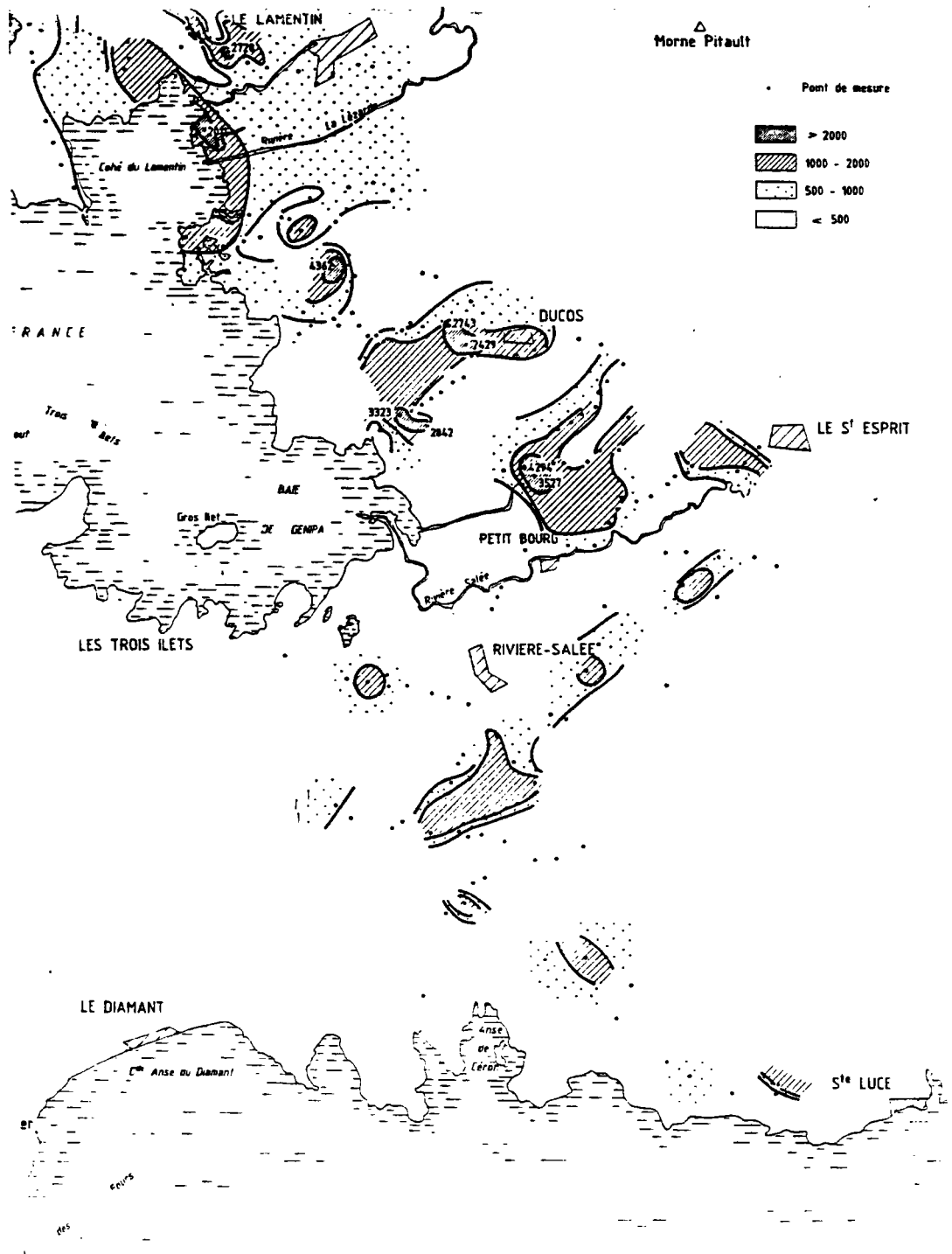


Figure 31 - La Martinique - Prospect du Lamentin. Carte géochimique du radon (concentrations exprimées en pci/l) (extrait de : Chovelon et Marty, 1985, fig.11)

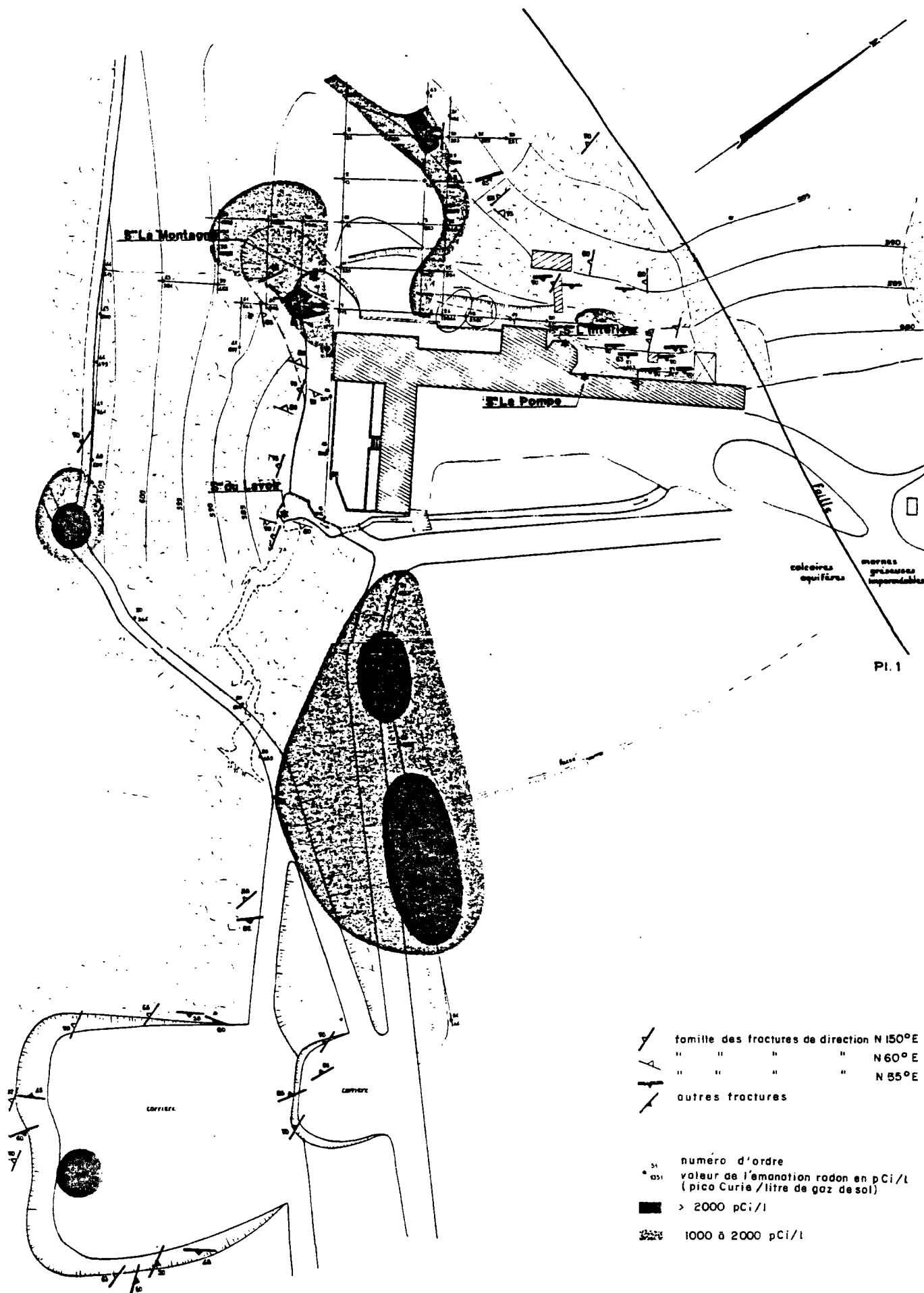


Figure 32 - Thermes de Salut - Bagnères de Bigorre. Relevés de fracturation - Prospection du radon (extrait de : Soulé, 1985 : Etude hydrogéologique en vue d'un recaptage des eaux, pl.1)

CONCLUSION

Cette étude bibliographique sur la géochimie du radon permet d'avoir un aperçu sur la complexité du cheminement suivi par ce gaz depuis la maille cristalline des minéraux à l'intérieur desquels il a pris naissance jusqu'au moment où il sera prélevé dans le sol en vue de son dosage.

La présence du radon est fonction de celle de ses parents radio-actifs (uranium 238 et 234, thorium 232, radium 226) qui se trouvent à des teneurs voisines de ppm dans pratiquement toutes les roches. Or le radon est un émetteur de rayonnements alpha très énergétique (5,49 MeV). Sa détection basée sur cette radioactivité permet de le doser par des méthodes spectaculairement sensibles, si on les compare aux méthodes chromatographiques où même spectrométriques employées pour les autres gaz.

La nature des minéraux, leurs formes, leur position dans les roches et dans les sols, la texture de la roche, la taille des grains, le degré d'altération de la roche, la porosité sont, entre autres, des facteurs importants, qui conditionnent le taux d'émanation du radon. La connaissance approfondie de la géologie du site de recherche des anomalies des isotopes du radon dans les gaz du sol, est une approche indispensable pour toute interprétation des mesures.

La spécificité de ce gaz rare réside dans sa courte durée de vie (période de 3,8 jours pour le radon 222) et à sa mobilité par diffusion et par transport. Des calculs simples ont montré que la migration du radon, si elle se limite à la seule diffusion, ne permet pas de détecter en surface des anomalies enfouies sous plus d'une dizaine de mètres de recouvrement. D'autres modes de transport peuvent-ils accélérer ce transfert, et permettre une détection sur de fortes épaisseurs d'altération ? C'est un facteur contraignant dont il faudra tenir compte pour la détection d'anomalies structurales sous une importante couverture.

Les facteurs météorologiques, tels que la pluie, la neige, la température, la pression barométrique, jouent un rôle important dans la diffusion de ce gaz dans le sol. Il faudra : disposer d'une base météo de référence, analyser ces paramètres pour les prospections se déroulant sur plusieurs jours et affecter d'un coefficient de pondération les variations du taux de radon due à ces phénomènes.

De même, il faudra noter l'utilisation des sols (labour, prairie, forêt...), et de son taux d'humidité qui influencent fortement la migration du radon.

Le facteur le plus important qui conditionne la mobilité du radon est son transport par entraînement par un fluide porteur en mouvement. Cette caractéristique lui confère la propriété de pouvoir être utilisé comme un traceur d'une fracture aquifère dans un encaissant quasi-imperméable, et donc d'être employé pour la recherche d'eau en milieu fissuré.

Les différentes applications géologiques relatives à la détection des teneurs anormales de radon : localisations de gisements uranifères, prévisions de séismes ou de volcanisme, prospection de champ géothermique, localisation d'eaux thermo-minérales, utilisent les caractéristiques spécifiques de ce gaz (radioactivité, inertie, durée de vie, solubilité...), associées aux paramètres physiques du terrain.

L'utilisation de ce gaz dans des domaines aussi variés montre tout l'intérêt du choix de cet élément en tant que traceur d'évènements ou d'anomalies géologiques. Les prochaines applications en prospection hydrogéologique des milieux de socle devraient confirmer l'intérêt de cette technique et fournir les données qui permettront d'en étendre la méthodologie.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Andrews (J.N.), Wood (D.F.), 1972 .- Mechanism of radon release in rock matrices and entry into groundwaters .- Trans. Inst. Min. Metall. Sec. B 81, 198-209

Bakulin (V.N.), 1969 .- Dependence of radon exhalation and its concentration in the soil on meteorological conditions (in Russian) .- Uch. Zap. Kirov. Gaz. Pedagog. Inst. (30), 70-79

Baretto (P.Mc), Clark (R.D.), Adams (J.A.S.), 1972 .- Physical characteristics of radon 222 emanation from rocks soils and minerals : its relation to temperature and alpha dose .- The natural radiation environment II, vol.2. Symposium proceedings, Houston, Texas, Aug.7-11, 1972, p.731-740

Barreto Paulo (M.C.), 1973 .- Emanation characteristic of rocks, soils, and Rn 222. Loss effect on the U-Pb system discordance .- Ph.D. Thesis, Rice University, Houston, Texas

Baranov (V.L.), Novitskaya (A.P.), 1949 .- In Russian, Diffusion of radon in natural muds .- Akad. Nauk. SSSR. Biogeochem. Lab. Trudy, n° 9, pp.161-71

Baubron (J.C.), Sabroux (J.C.), 1984 .- Analyses des gaz dans les sols sur les zones de Bouillante et de Moscou (Guadeloupe) .- BRGM/AFME, 84 SGN 400 GTH

Birchard (G.F.), Libby (W.F.), 1978 .-Earthquake associated radon anomalies possible mechanisms .- EOS, Trans. AGU, n° 59, 329 p.

Budde (E.), 1961 . - Emanations messungen zu Splatensuche (emanation measurements for Fault searches) .- In Lehrbuchs der angewandten Geologie I, Band Allgemeine Methoden. A-Bentz (ed.), 839 p.

Bulashevich (Yu. P.), Kartashov, 1967 .- Determination of the diffusion coefficient of radon in rocks by the instantaneous-source method .- Izv. Acad. Sci. USSR Phy. Solid Earth (10) p. 660-669

Bulashevich, Kartashov, Bashorin, 1970 .- Diffusion coefficients of radon and helium in rocks in situ .- Izv. Acad., Sci., USSR Phys. Solid. Earth. (1) p. 45-47

Chovelon (P.), Marty (B.), 1985 .- Analyses des gaz dans le sol sur les zones du Lamentin et du Morne Rouge -Montagne Pelée (Martinique) .- BRGM-AFME, 85 SGN 413 GTH

Clements, Marvin (H.), Wilkening, 1974 .- Atmospheric pressure effects on radon 222. Transport across the earth-air interface .- J. Geophys. Res. 79(33) p.5025-5029

Flugge (S.) et Zimens (K.E.), 1939 .- The determination of grain size and diffusion constant by the emanation power .- Z. Phys. Chem. (Leipzig) B42, p. 179-220

Gabelman (J.W.), 1972 .- Radon emanometry of starks salt dome, Calcasium parsh, Louisiana .- USAEC Report RME-4114. U.S.Atomic Energy Commission GPO

Ghosh (P.C.), Sheikh (I.A.), 1976 .- Diffusion of radon through inactive rocks .- Sections, Indian J.Pure Appl. Phys. 14(8) : 666-669

Gingrich (J.E.), Fischer (J.C.), 1976 .- Uranium exploration using the TRAK ETCH Method .- In Exploration for uranium ore deposits (Proceedings of a symposium held in Vienna, 29 march-2 april 1970), I.A.E.A., Paris, p.537-543

- Gingrich (J.E.)**, 1984 .- Radon as a geochemical exploration tool .- Journal of Geochemical Expl., 21(1984), 19-39
- Holaday, Rushing, Coleman, Wollrich, Kusnetz, Balf**, 1957 .- Control of radon and daughters in uranium mines and calculations on biologic effects .- US Public Health Service Pub. 494. Pp.81
- Israel (H.), Bjornsson (S.)**, 1967 .- Radon (Rn 222) and thoron (Rn220) in soil air over faults .- J. Geophys., 33(1) : 48-64
- Iundt (F.), Ausseur (J.Y.), Berthier (F.)**, 1985 .- Prospection des teneurs anormales des gaz et des sols par une technique légère et rapide .- Rapport BRGM 85 SGN 281 EAU
- Iundt (F.)**, 1985 .- Méthodologie de terrain en hydrogéochimie .- Rapport BRGM 85 SGN 404 EAU
- Jirkovsky (R.)**, 1962 .- (In Russian) : Control of water Dam basements and exploration of geological dislocations by means of radiometric survey .- In Geofizyka Jadrowa, proceedings of the nuclear geophysicists conference, Cracow - Poland. Sept.24-30. Vol.4. pp.871-883
- Jurain (G.)**, 1962 .- Contribution à la connaissance géochimique des familles de l'uranium-radium et du thorium dans les Vosges méridionales .- Thèse, 1962. Faculté des Sciences de Nancy.
- Junge (C.E.)**, 1963 (in: Wexler Jr, 1956) .- Air chemistry and radioactivity .- Vol. 4. International Geophysics series.
- Kraner (H.W.)**, 1963 .- Measurements of the effects of atmospheric variable in radon 222 flux and soil-gaz concentrations.
- Lambert (G.), Bristeau (P.)**, 1973 .- Migration des atomes implantés dans les cristaux par énergie de recul .- J. Phys. (Paris). Colloq. C5. Suppl. to n° 11-12, 34 (C5) : 137-138
- Lévêque (P.C.), Maurin (C.), Severac (J.)**, 1971 .- Le radon 222, traceur naturel complémentaire en hydrologie souterraine .- C.R. Acad. Sc. Paris. t.272 (3 mai 1971), série D-2293-6
- Maisonneuve (J.), Remy (M.L.)**, 1984 .- Les éléments radioactifs naturels et les eaux thermominérales .- Pp.186-202. Congrès sur les données actuelles sur la radioactivité naturelle. Monte-Carlo, 5.7 nov.1984
- Megumi, Mamuro**, 1974 .- Emanation et exhalation of radon an thoron gases from soil particles .- J. Geophys. Res. 79(23). 3357-3360
- Mogro-Campero (A.), Fleischer (R.L.)**, 1976 .- Changes in subsurface radon concentration associated with earthquakes .- Earth Planet. Sci. Lett., 34, 321
- Monnin (M.)**, 1980 .- Mesure de l'émanation du radon. Rapport d'activité mai 1979-1980 du programme interdisciplinaire de recherche sur la prévision et la surveillance des éruptions volcaniques .- CNRS/INAG. Labo. de physique corpusculaire. Univ. Clermont-Ferrand. 14p.

- Monnin (M.), Seidel (J.L.),** 1981 .- Radon émanométrie appliquée aux volcans en activité .- Lab. Physique corpsculeaire. Univ. Clermont-Ferrand. 10 p.
- Muller (R.),** 1982 .- Radiometrische Untersuchungen an Bruchzonenen der südlichen Oberpfalz .- Mainzer geowiss. Mitt. 11, 9.111.155-28dbb - 1 tab.
- Oddou (A.),** 1981 .- Mesures des variations de concentrations du radon dans le sol. Relations avec la tectonique active .- Thèse. Université de Nice.
- Pearson, Gary (E.) Jones,** 1966 .- Soil concentrations of "Emanating-radium 226" and the emanation of radon 222 from soils and plants .- Tellus 78(2.3)-655.602
- Press (F.),** 1975 .- Earthquake prediction .- Scientific American. Vol.232, n° 5, p.14.23.
- Quet (C.), Rousseau-Violet (J.M.), Bus,** 1975 .- Recoil emanating power and specific surface area of solids labelled by radium recoil atoms. I - Theory for single solid particles .- Radiochem. radioanal. Lett. 23(5-6) 359-368
- Robertson (John B),** 1969 .- Diffusion from a gaseous source in a porous medium. A field and theoretical comparison in Geological Survey research 1969 .-Professional paper 650.D. Chap.D pp.D265-D273. U.S. Geological Survey, GPO
- Scholz (Ch), Syker (L.R.), Aggarwal (Y.P.),** 1973 .- Earthquake prediction : a physical basis .- Sciences, Vol.181, n° 4102, p.803-810
- Schroeder, Kraner, Evans,** 1965 .- Diffusion of radon in several naturally occurring soil types .- J. Geophys. Res. 70(2):471-474
- Soule (J.C.),** 1985 .- Etude hydrogéologique en vue d'un recaptage des eaux .- Rapport BRGM 85 SGN 541 MPY
- Starik. (I), Meukova,** 1957 .- Emanating power of minerals (in Russian) .- Tr, Radio. Inst. V.G. Khlopina. Akad. Nauk SSSR ; 5(2). 184-202
- Talwani (P.), Moore (W.S.), Chiang (J.),** 1980 .- Radon anomalies and micro-earthquakes at Lake Jorasie South Carolina .- J. of Geophys. Research, Vol.85, n° 86, p.3079-3088
- Tanner (A.B.),** 1958 .- Increasing the efficiency of exploration drilling for uranium by measurement of radon in drill holes .- Proc. 2d. United Nations internat. Conf. on Peaceful uses of atomic energy. 3-42-45
- Tanner (A.B.),** 1964 .- Physical and chemical controls on distribution of radium 226 and radon 222 in groundwater near Great Salt Lake, Utah .- In the natural Radiation Environment, Symposium proceedings, Houston, Texas, Apr.10-13, 1963. John A.S. Adams and Wayne M. Lowder (Ed.), pp. 161-190
- Tanner (A.B.),** 1980 .- Radon migration in the ground ; a supplementary review .-In J.A.S. Adams, W. M. Lowder et T.F. Gesell, Eds. The Natural Radiation Environment II. US ERDA, Springfield (Va.) p. 5-56
- Vogler (G.),** 1960 .- Ursachen emanometrischer anomalien (origins of emanometric anomalies) .- Z, Geophys. 26-2) : 57-71

Vuillemot (P.), 1982 .- Contribution de l'hydrogéologie et de l'hydrogéochimie (gaz radiogeniques et autres traceurs en solution) à la prospection de l'uranium. Application à un socle sous couverture dans le Bazois (Nièvre) .- Thèse 3^o cycle : Faculté des Sciences et des Techniques de l'Université de Franche-Comté.

Zettwoog (P.), 1984 .- Exploitation des signaux fournis par les isotopes du radon pour la mesure de la vitesse effective des fluides de transport dans les milieux géologiques .- Rapport interne DPT/SPIN - 84/10 - CEA.

Zimen (K.E.), Mertens (P.), 1971 .- Nuclear Recoil in solids and the knock out effect .- Z. Naturforsch, Ser, A, 26(4) : 773-775

* *
*

réalisation
service
reprographie
du BRGM

