

**Dégâts radiatifs naturels
dans des matériaux asphaltiques uranifères.**

**I — LE GRÈS ASPHALTIQUE DU MAS ALARY
(HÉRAULT-FRANCE),**

par J. JEDWAB.

INTRODUCTION.

Depuis quelques années, on voit paraître des indications sur les effets des éléments radioactifs inclus naturellement dans les charbons et asphaltes, soit sous forme de minéraux discrets (uraninite, pechblende, thucholite, coffinite, zircon), soit sous forme de dispersions infra-microscopiques.

Ces effets, groupés sous le nom de dégâts radiatifs (« radiation damage »), sont à rapprocher de ceux que l'on observe fréquemment dans certains minéraux (biotite, orthite, fluorite, etc.) sous forme de halos et de craquelures. Ici aussi ce sont des modifications physiques et chimiques de la matière (non plus cristallisée comme dans les minéraux cités), soumise à un rayonnement très localisé et prolongé sur des temps longs.

Une liste des auteurs qui ont observé et souvent figuré des effets de dégâts radiatifs dans divers matériaux carbonés uranifères est donnée dans le tableau I. On peut penser que si la cause des effets optiques observés est bien due dans chaque cas à la radioactivité, on a affaire à un phénomène relativement répandu dans l'espace et le temps.

On a reconnu dans les matières organiques solides soumises naturellement au rayonnement, des effets que l'on a pu reproduire parfois dans les réacteurs, et partant de là, les expliquer par analogie.

a) Effets physiques.

Augmentation de la dureté : apparition d'un relief positif autour des inclusions par polissage (STACH, 1950 et 1958).

Augmentation du pouvoir réflecteur : apparition d'un halo clair autour des inclusions radioactives (STACH, 1950 et 1958; HOEHNE, 1957; TEICHMÜLLER, 1958; ZOUBOV, 1960).

Apparition d'une anisotropie de réflexion (LIEBENBERG, 1956; DAVIDSON et BOWIE, 1951; RAMDOHR, 1955 et 1960).

**Observations de phénomènes optiques dans des matières carbonées
thori- et uranifères attribuables à la radioactivité.**

Date	Auteurs	Type de matière carbonée (désignations des auteurs)	Matière radioactive (désignations des auteurs)	Localité	Age géologique
1950 (et 1958)	STACH	Charbon	Zircon	Allemagne	Carbonifère
1951	DAVIDSON et BOWIE	Hydrocarbure	Uraninite	Ile de Man	Carbonifère
	»	Hydrocarbure	Uraninite	Union sud-africaine	Précambrien
	»	Hydrocarbure	Min. à Th-U	Canada	Précambrien
1952	TEICHMÜLLER	« Kolm »	Inclusions complexes	Suède	Cambrien
1955	RAMDOHR	Matière charbonneuse	Pechblende	Union sud-africaine	Précambrien
1956	LIEBENBERG	Hydrocarbure	Uraninite	Union sud-africaine	Précambrien
1957	HOEHNE	Charbon	Zircon et malacon	Sarre, France et Allemagne	Carbonifère
	»	Charbon	Zircon et malacon	Inde	?
1958	TEICHMÜLLER (M. et R.)	Charbon	Inclusions complexes	Allemagne	Trias
1960	ZOUBOV	Bitume	Uraninite	U.R.S.S.	Dévonien supérieur et Carbonifère inférieur et moyen
1960	UYTENBOGAARDT	Thucholite	Uraninite	Suède	Précambrien
1961	PIERCE et ROSHOLT	Asphaltite	Uranium dispersé (?)	U.S.A.	Permien

b) **Effets chimiques et physico-chimiques.**

Apparition de radicaux libres dans des matières carbonées irradiées naturellement (DUCHESNES et al., 1961) ou artificiellement (FRIEDEL et BREGER, 1959).

Rupture des liaisons aliphatiques, libération d'hydrogène, augmentation du nombre des liaisons C-C, dans les matériaux irradiés artificiellement (CHARLESBY, 1954).

Augmentation de la densité et du pouvoir réflecteur et diminution du rapport H/C avec l'augmentation de la teneur en U (ERGUN, DONALDSON et BREGER, 1960).

Augmentation du rapport O/C en fonction de la teneur en U (MUELLER, 1960). L'existence côte à côte de bitumes à teneurs très différentes d'uranium, signalée dans ce travail, fait supposer que le pouvoir d'adsorption d'une matière carbonée peut être cause et effet de la concentration de l'uranium.

L'intérêt de l'étude de ces effets a déjà été souligné de plusieurs côtés :

L'histoire de l'uranium dans des gisements du type Witwatersrand, qui coïncide au moins partiellement avec celle des matières carbonées, pourrait être suivie grâce aux effets optiques aisément reconnaissables par un observateur prévenu, et mesurables.

Les indications « topographiques » données par STACH (1958) sur l'état d'induration très précoce des zones irradiées, ou par RAMDOHR (1955) et PIERCE et ROSHOLT (1961) sur les mouvements de l'asphalte encore fluide pourraient être multipliées.

L'étude de la structure et des dimensions des halos, souhaitée par STACH en 1958, pourrait apporter des lumières sur la structure fine des charbons et sur les processus de la houillification.

De même, l'étude objective des pouvoirs réflecteurs et de l'anisotropie des matières organiques condensées, menée concurremment à celle de leur radioactivité propre et de celle des roches encaissantes pourrait éclairer certains points obscurs de l'origine de ces matières (induration des asphaltes non-uranifères des roches du Colorado par l'action de solutions hydrothermales suivant la théorie d'ABDEL-GAWAD et KERR, 1961).

Ce groupe de phénomènes qui s'offre à notre observation, constitue par lui-même un moyen d'investigation de processus variés, dont nous ne saisissons certainement pas encore toutes les implications.

La fréquence et la variété d'expressions microscopiques que les phénomènes de dégâts radiatifs présentent, nous ont incité à publier quelques notes descriptives dont le lecteur a la première sous les yeux.

Nous tenons à remercier le Commissariat à l'Énergie Atomique qui nous a autorisé à recueillir les matériaux décrits ici.

Nous remercions également le Prof^r WATZNAUER, de Freiberg (Saxe), à qui nous devons d'avoir eu l'attention attirée sur les phénomènes décrits ici.

LE GRÈS ASPHALTIQUE DU MAS ALARY.

Les échantillons étudiés proviennent des travaux de surface du C.E.A. dans le Permien de la région de Lodève, au lieu-dit du Mas Alary.

Nous renvoyons pour les précisions géologiques à un travail de KERVELLA (1958) puisque aussi bien elles ne sont pas importantes pour le sujet qui nous occupe ici.

Le grès contient de nombreux granules irréguliers d'asphaltes ⁽¹⁾, s'arrangeant parfois en lits peu distincts. Leurs dimensions sont très variables : de quelques dizaines de microns, et peut-être moins, à quelques millimètres.

A l'état inaltéré, le grès est gris-noir, et devient jaune et vert lorsqu'il est oxydé. N'ayant eu que des échantillons de surface, il faut prendre la qualification « d'inaltéré » comme toute relative.

De nombreux minéraux secondaires y ont été décrits, notamment des molybdates d'uranyle.

(1) Les termes « asphalte, asphaltique » sont utilisés ici pour désigner des matières hydrocarbonées noires, solides.

MINÉRAGRAPHE DES GRAINS D'ASPHALTE.

Des enrobages de roches et de concentrés de densité inférieure à 1,8 ont été faits dans du polystyrène polymérisé à froid, puis polis suivant les techniques courantes de la pétrographie des charbons.

Toutes les observations (et photographies) ont été faites sous immersion d'huile avec les objectifs Leitz recommandés pour la pétrographie des charbons.

On observe deux types de grains d'asphalte :

1. Des grains ternes, peu réfléchissants.
2. Des grains très réfléchissants et très anisotropes.

1. **Grains d'asphalte ternes** (photos 1, 2, 3, 12).

Ces grains ont une couleur noir de poix, légèrement bronzée, et présentent fréquemment des craquelures. La dureté de polissage est relativement faible. Le pouvoir réflecteur, comparé à celui des grains du type 2, est faible (photo 12, coin inférieur droit), et les effets d'anisotropie font défaut. Les plages sont généralement homogènes. Lorsque l'on y trouve des sulfures (photo 2), ils n'y provoquent aucun effet de tension comme dans les grains du type 2.

Des craquelures affectent la plupart des grains d'asphalte. Dans les grains du type 1, peu réflecteur, elles semblent dues à des causes mécaniques tardives (polissage éventuellement), car elles ne présentent pas de remplissages de minéraux secondaires.

La photo 12 montre autour du grain central, des grains de pouvoirs réflecteurs très divers, intermédiaires entre les types 1 et 2.

2. **Grains d'asphalte réfléchissants** (photos 3 à 15).

Des phénomènes de renforcement du pouvoir réflecteur et de l'anisotropie de réflexion se développent autour des inclusions de pechblende enrobées dans l'asphalte.

Les photos 3 et 5 montrent l'aspect de ces grains éclairés sous un nicol, les photos 4 et 6 leur aspect sous nicols croisés. Des halos sombres s'interposent fréquemment entre la pechblende et le halo réfléchissant (photos 5, 7 et 8).

On trouve fréquemment des grains d'asphalte dans lesquels les zones les plus réfléchissantes ne contiennent pas de pechblende visible (photo 9, deux tiers inférieurs). Ils sont néanmoins fortement anisotropes.

Lorsque de tels grains contiennent des sulfures (plus durs que l'asphalte), des houppes de tension apparaissent en nicols croisés, d'autant plus marquées que l'anisotropie et le pouvoir réflecteur sont forts. La photo 11, vue partielle agrandie de 9, montre un « golfe » anisotrope s'avancant dans une zone isotrope. Les grains de sulfures situés dans la zone anisotrope développent des houppes de tension, alors que ce n'est pas le cas des autres.

Un phénomène semblable a été décrit récemment dans des tectites par BARNES (1960); des houppes de tension se développent autour des cristallites noyés dans le verre isotrope de la tectite.

Les grains d'asphalte peuvent avoir un caractère mixte, être constitués de plages de pouvoirs réflecteurs très différents. Ces plages sont nettement séparées (photo 3), ou imbriquées comme dans 9 et 12 (la photo 5 est une partie agrandie de 12). Les formes des limites entre zones isotropes et anisotropes laissent supposer une certaine plasticité de l'asphalte et des mouvements postérieurs à l'anisotropisation.

La structure totale peut être finalement très complexe, comme dans les photos 13, 14 et 15. Des halos nettement développés autour d'inclusions de pechblende (13 et 14 à gauche et en haut) sont séparés par des zones sombres. Celles-ci délimitent une plage centrale très blanche, où des inclusions de pechblende ne sont pas visibles. Les inclusions microscopiques ou inframicroscopiques de sulfures sont rendues très visibles dans cette plage centrale grâce aux houppes de tension (photo 15).

Les grains d'asphalte du type 2 présentent parfois des craquelures radiales et concentriques (photo 13). Elles sont fréquemment remplies de minéraux secondaires et font penser aux fissures de retrait des matières colloïdales en voie de dessiccation (synérèse).

CONCLUSION.

Ce bref travail descriptif a permis de montrer qu'il existe dans le grès asphaltique du Mas Alary des grains d'asphalte différant fortement par leurs pouvoirs réflecteurs et leurs propriétés en lumière polarisée. Les grains de faible pouvoir réflecteur ne contiennent généralement pas d'inclusions de pechblende. Les grains de fort pouvoir réflecteur peuvent contenir ou ne pas contenir de pechblende. Les effets optiques développés autour des inclusions de pechblende sont complexes et ne peuvent encore être interprétés complètement. La complexité de ces effets (halos à contours redoublés, structures plastiques) peut être attribuée provisoirement aux effets superposés suivants : condensation de liquides et gaz par irradiation, mouvements plastiques (écoulement) et cassants (synérèse), effets de halo, d'anisotropisation et de durcissement à l'échelle microscopique par irradiation.

Des conclusions à rapprocher des nôtres ont été atteintes par F. CHANTRET et R. POUGET (1961), par des méthodes différentes (par exemple calcul du coefficient de corrélation C/H et U), qui montrent qu'il y a dans le gisement des matières organiques appartenant à plusieurs types ou à des mélanges en proportions différentes. Des écarts au rapport moyen C/H favorable à l'enrichissement en uranium indiqueraient l'existence de remaniements.

BIBLIOGRAPHIE.

- ABDEL-GAWAD, A. M. and KERR, P. F., 1961, Urano-organic mineral association. (*Am. Min.*, vol. 46, pp. 402-419.)
- BARNES, V. E., 1960, Significance of inhomogeneity in tektites. (*Intern. Geol. Congress, Rep. of the XXIst Sess.*, XIII, pp. 328-338.)
- CHARLESBY, A., 1954, The cross-linking and degradation of paraffin chains by high-energy radiation. (*Roy. Soc. London Proc.*, Ser. A, vol. 222, pp. 60-74.)
- CHANTRET, F. et POUGET, R., 1961, Étude préliminaire des relations uranium-matières organiques dans le gisement de l'Hérault. (*Rapport du C.E.A.*, n° 2069, 11 p., 1 tabl., 6 fig.)
- DAVIDSON, C. F. and BOWLE, S. H. U., 1954, On thucholite and related hydrocarbon-uraninite complexes with a note on the origin of the Witwatersrand gold ores. (*Geol. Surv. G.B.*, Bull. n° 3, pp. 1-19.)
- DAVIDSON, C. F. et PONSFORD, D. R. A., 1954, On the occurrence of uranium in coals. (*The Min. Magaz.*, 91, pp. 265-273.)

- DUCHESNE, J., DEFIREUX, J. and VAN DER KAA, J. M., 1961, Origin of free radicals in carbonaceous rocks. (*Geoch. et cosmoch.*, acta 23, pp. 209-218.)
- ERGUN, S., DONALDSON, W. F. et BREGER, I. A., 1960, Some physical and chemical properties of vitrains associated with Uranium. (*Fuel*, vol. 39, pp. 71-77.)
- FRIEDEL, R. A. and BREGER, I. A., 1959, Free-radical concentrations and other properties of pile-irradiated coals. (*Science*, vol. 130, pp. 1762-1763.)
- HOEHNE, K., 1957, Zirkonkristalle in Kohlenflözen. (*Chem. Erde*, vol. 19, pp. 37-50.)
- KERVELLA, F., 1958, Les gisements uranifères dans les formations sédimentaires en France et dans l'Union française. (*Bull. Inf. scient. et tech. du C.E.A.*, n^{os} 16-19.)
- LIEBENBERG, W. R., 1956, The occurrence and origin of gold and radioactive minerals in the Witwatersrand System, the Dominion Reef, the Ventersdorp Contact Reef and the Black Reef. (In *Uranium in South Africa 1946-1956*, Johannesburg, 1957, vol. 1, pp. 20-218.)
- MUELLEB, G., 1960, The distribution of Uranium in naturally fractionated organic phases. (*Intern. Geol. Congress, Rep. of the XXIst Sess.*, XV, pp. 123-132.)
- PIERCE, A. P. and ROSHOLT, J. N., 1961, Radiation damage and isotopic disequilibria in some uranium-bearing asphaltite nodules in Back-reef dolomites, Carlsbad, New Mexico. (In *U.S.G.S. Prof. Paper 424-D : Geological Survey Research 1961*, pp. D 320 et 321.)
- RAMDOEB, P., 1955, Neue Beobachtungen an Erzen des Witwatersrands in Südafrika und ihre genetische Bedeutung. (*Abh. d. Ak. Wiss. zu Berlin, Kl. Mathematik und allg. Naturwiss.*, n^o 5, 43 p., 33 pl.)
- 1957, Neue Beobachtungen über radioaktive Höfe und über radioaktive Sprengungen. (*Ibid.*, *Kl. Chemie, Geologie u. Biologie*, n^o 2, 17 p.)
- 1960, Neue Beobachtungen an radioaktiven Höfen in verschiedenen Mineralien mit Kritischen Bemerkungen zur Auswertung der Höfe zur Alterbestimmung. (*Geol. Rundschau.*, vol. 49, pp. 253-263.)
- STACH, E., 1950, Vulkanische Aschenregen über dem Steinkohlenmoor. (*Glückauf*, vol. 86, pp. 41-50.)
- 1955, Die Petrographie der Kohle als Hilfsmittel bei der Flözparallelisierung. (*Z. Geol. Ges.*, vol. 107, pp. 103-115.)
- 1958, Radioaktive Inkohlung. (*Brennstoff Chem.*, vol. 39, pp. 329-331.)
- TEICHMÜLLER, R., 1952, Zur Metamorphose der Kohle. (*C. R. III^e Congr. Stratigr. Géol. Carbonifère*, pp. 615-623.)
- TEICHMÜLLER, M. und R., 1958, Inkohlungsuntersuchungen und ihre Nutzanwendung. (*Geol. en Mijnb.*, vol. 20, pp. 41-66.)
- ZOUBOV, A. J., 1960, Les bitumes solides uranifères. (En russe.) (*Geol. Rudn. Mestor.*, n^o 5, pp. 6-24.)
- UYTENBOGAARDT, W., 1960, Uranium mineralization in the Västervik area. (*Intern. Geol. Congress, Rep. of the XXIst Sess.*, XV, pp. 114-122.)

EXPLICATION DES PHOTOGRAPHIES.

1. Grain d'asphalte du type 1 peu réflecteur. Section polie de roche. $\times 120$. 1 nicol.
Remarquer l'aspect terne, le relief et le mauvais poli.
2. Id. Montage polystyrène. $\times 330$. 1 nicol.
Inclusions de sulfure ne provoquant aucun effet optique dans l'asphalte.
3. Grain d'asphalte du type 2, très réflecteur. Section polie de roche. $\times 120$. 1 nicol.
Le grain est formé de deux parties de pouvoir réflecteur inégal. Celui qui réfléchit le plus contient des inclusions de pechblende.
4. Id. 2 nicols (légèrement décroisés).
On voit que les effets d'anisotropie les plus intenses correspondent à la partie de l'inclusion la plus réfléchissante.
5. Grain d'asphalte complexe (vue partielle de 12). Montage polystyrène. $\times 330$. 1 nicol.
Inclusions de pechblende bordées d'un halo sombre, dans de l'asphalte du type 2.
6. Id. 2 nicols (légèrement décroisés).
Les halos sombres sont masqués par les effets d'anisotropie très intenses.
7. Inclusion de pechblende dans de l'asphalte. $\times 740$. 1 nicol.
L'inclusion est entourée d'un halo sombre, à contour relativement net, puis d'un halo clair, s'assombrissant progressivement vers l'extérieur.
8. Groupe d'inclusions de pechblende (?). $\times 740$. 1 nicol.
Les halos sombres ont des largeurs assez variables et des formes ne suivant pas exactement les contours visibles des inclusions.
9. Grain d'asphalte complexe; montage polystyrène. $\times 120$. 1 nicol.
Exemple de plage très réfléchissante et anisotrope mais sans inclusions de pechblende (sauf en haut à gauche). La plage sombre du haut de la photo a des contours de netteté variable : un golfe à contours flous flanqué de lèvres nettes.
10. Id. 2 nicols (légèrement décroisés).
La lumière polarisée fait apparaître de nombreuses houppes de tension autour d'inclusions de sulfures peu visibles autrement (surtout au milieu et à droite).
11. Id. $\times 330$. 2 nicols (vue partielle de 10).
Les inclusions de sulfures situées dans la partie réfléchissante, anisotrope du grain, sont marquées de houppes de tension, contrairement à celles qui sont dans la partie sombre.
12. Grains d'asphalte. Montage polystyrène. $\times 144$. 1 nicol.
Le grain du centre se subdivise en deux parties de pouvoirs réflecteurs très différents. La ligne de contact, parfois nette, parfois floue, est très irrégulière, et semble indiquer une certaine plasticité.

13. Grain d'asphalte. Montage polystyrène. $\times 126$. 1 nicol.
Les inclusions de pechblende sont disposées en bordure du grain (qui n'a pas sa forme originelle, puisqu'il a été extrait par broyage). La plage claire du centre est dessinée par les contours des halos centrés sur les inclusions. Cette plage ne contient pas de pechblende, mais des sulfures (cf. ph. 15).
 14. Id. 2 nicols (légèrement décroisés).
La polarisation fait apparaître des contours complexes, redoublés, indiquant peut-être des mouvements plastiques.
 15. Id. $\times 430$ (vue partielle de 15).
Chaque houppe indique la présence d'une inclusion de sulfure, souvent très petite et en dessous de la limite de visibilité. En haut à gauche, un halo sombre à contour redoublé.
-







