

MINISTERE DES AFFAIRES ECONOMIQUES

Mémoires pour servir à l'Explication  
des Cartes Géologiques et Minières  
de la Belgique  
Mémoire N° 32



Toelichtende Verhandelingen  
voor de Geologische en Mijnkaarten  
van België  
Verhandeling N° 32

MINISTERIE VAN ECONOMISCHE ZAKEN

## **RADON ET GAZ RARES DANS LES SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'ENVIRONNEMENT**

Actes du Colloque International sur la Géochimie des Gaz  
(Mons - 3-6 octobre 1990 - Belgique)

Editeurs Responsables  
P. DOREMUS, L. DEJONGHE, J.-M. CHARLET

**Rn**

# **RADON ET GAZ RARES DANS LES SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'ENVIRONNEMENT**

**EDITEURS : P. Doremus, L. Dejonghe, J.-M. Charlet**

**avec la contribution de :**

J. Andru, M. Aoki, F. Aumento, T.K. Ball, R. Barillon, M. Berrada, A. Blave, F.Z. Boujral, J. Carretero, A. Chambaudet, J.-M. Charlet, A. Choukri, M. Cieur, W. Ciekowski, M.C.G. Clarke, D. Defoix, M. Delcourt-Honorez, J.R. Disnar, P. Doremus, B. Ducarme, Ma.C. Duenas, G. Eggermont, T. El Khoukhi, M.C. Fernandez, P.B. Finazzi, J.-M. Flemal, H. Friedmann, J.-L. Genicot, F. Guérin, S. Hallez, J. Heinicke, M.R. Iraqi, J. Kemski, A. Khalil, D. Klein, Z. Kobiela, U. Koch, V. Kotzmann-Routier, V. Labed, J. Le Bronnec, J. Lebecka, K. Lebecki, G. Martinelli, F. Medici, K. Mnich, K. Müller, T. Nishikawa, P.J. O'Connor, S. Okabe, A. Peckdeger, A. Poffijn, T. Pointet, A. Polaceck, Y. Quinif, A. Rannou, M.C. Robe, A. Rorive, L. Rybach, H. Schneiders, A. Siehl, J. Skowronek, A. Solecki, R. Stamm, H. Sturbeck, L. Tommasino, G. Torri, G. Tymen, H. Vanmarcke, H. Woith

Mém. Expl. Cartes Géologiques et Minières de la Belgique	1992	N°32	322 p/b
Toelicht. Verhand. Geologische en mijnkaarten van België			

La coordination de l'ouvrage a été assurée par **P. Doremus**

Chaque contribution a été soumise à la critique du comité de lecture

#### **COMPOSITION DU COMITE DE LECTURE**

T.K. Ball, J.-M. Charlet, L. Dejonghe, P. Doremus, I. Godfriaux, S. Hallez, D. Klein, G. Martinelli, C. Paquet, A. Peckdeger, T. Pointet, A. Rannou, A. Rorive, L. Rybach, A. Siehl, L. Tommasino, G. Tymen, H. Vanmarcke.

#### **COMPOSITION DE L'EQUIPE TECHNIQUE**

Au secrétariat : Ghislaine **Huberland** (préparation du Colloque, accueil des participants),  
Fabienne **Place** (dactylographie et maquette du volume des Actés) et Ariane **Fiévez**  
Dessin de couverture : Marie-Renée **Ducarme** et Flavia **Venuti**  
Organisation technique : Brigitte **Pierart** et Claudio **Barcella**

# TABLE DES MATIERES - CONTENTS

## PREAMBULE

### PREMIERE PARTIE: Exposés introductifs :

J.-M. Charlet : De l'exploration minière à l'environnement, le radon, outil commun d'investigation. 7

G. Eggermont : The recommendation of the belgian national science policy council (NCSP) on radon research - Its context and implications. 17

### DEUXIEME PARTIE : Radon et Environnement

F. Aumento : Northern Latium - a Radon hot-spot. 23

P. Doremus, V. Kotzmann-Routier, J.-M. Charlet, Y. Quinif, J.-M. Flemal : La pollution domestique par le Radon, études de cas : région de Mons, région de Monceau en Ardenne (Belgique). 33

J.-M. Flemal, S. Hallez : Prospection et analyse du Radon dans les eaux souterraines en Wallonie. 47

J.-L. Genicot, H. Vanmarcke : Le Radon dans l'environnement intérieur, Radon and gas rare in earth and environmental science. 53

S. Hallez, A. Poffijn, J.-M. Flemal : Cartographie communale des risques de hautes concentrations de Radon à l'intérieur des habitations : exemple de Visé. 63

J. Kemski, M. Schneiders, A. Siehl, R. Stamm : Geological factors controlling Radon potential. 71

P.-J. O'Connor : Recognition of Radon hazard in western Ireland : the role of geological factors. 83

M.-C. Robe, A. Rannoù, J. Le Bronnec, G. Tymen : Le Radon dans les habitations : identification des sources et des voies de transfert et, caractérisation des aérosols radioactifs produits. 93

L. Rybach, F. Medici and H. Sturbeck : Geological aspects of Radon exposure in Switzerland. 105

S. Skowronek : Risque radiologique dû au Radon et à ses descendants dans les mines de charbon en Pologne. 115



### **TROISIEME PARTIE : Radon, Séismes et Volcanisme.**

- J.-M. Charlet, A. Blave, B. Ducarme : La mesure en continu de l'émanation Radon intérêt dans un contexte microsismique : la station d'Hornu. 123
- W. Cieczkowski, A.-T. Solecki : Radon cartography as a tool of reasearch examples from the Sudety Mts area (SW Poland). 133
- M. Delcourt-Honorez : The effects of earth tidal and seismic foreces upon groundwater levels, a contribution to the radon problem. 141
- J. Lebecka, K. Mnich, K. Lebecki, Z. Kobiela : Radon as an indicator of hazard of instantancous outbursts of rock and gas in coal mines. 147
- G. Martinelli, F.-B. Finazzi : Earthquake prediction experiments in northern Italy : recent developments in automatic geochemical monitoring. 155
- A. Peckdeger, H. Woith : Radon in groundwater : a contribution to the joint german-turkish earthquake prediction research project. 171
- H. Woith, A. Peckdeger : Radon in soil gas : a contribution to the joint german-turkish earthquake prediction project. 181

### **QUATRIEME PARTIE : Radon, Hydrogéologie et Géochimie.**

- T.-K. Ball, M.C.G. Clarcke : Gas geochemistry in exploration for geothermal energy sources. 191
- P. Doremus, V. Kotzmann-Routier, Y. Quinif, A.Rorive : Distribution de l'émanation Radon en fonction de l'hydrogéologie, de la lithologie, de la radiogéochimie (U-Th-K<sub>2</sub>O). Cas du puits de l'Ecole des Mines de Mons (Belgique). 205
- F. Guérin, T. Pointet : La variabilité du Radon dans les gaz des sols : modélisation et application à la prospection hydrogéologique en milieu fissuré. 213
- V. Kotzmann-Routier : La cartographie du radon dans les eaux naturelles du Hainaut occidental. 231
- Y. Quinif, P. Doremus, V. Kotzmann-Routier : Le Radon dans les eaux souterraines, relations avec l'hydrogéologie. 233

### **CINQUIEME PARTIE : Méthodes de mesure et d'exploitation des résultats.**

- J. Andru : Specific charcacteristics of Radon "passive/open" model detectors compared to "passive/close" and "charcoal" devices. 245
- M. Berrada, F.-Z. Boujrhal, A. Choukri, T. El Khoukhi, M.-R. Iraqi : Emanation Radon de phosphates sédimentaires et phosphogypses correspondants. 253

J.-R. Disnar, D. Defoix : Use of volatile organic compounds held in rocks for mineral exploration.	259
Ma C. Duenas, M.-C. Fernandez, J. Carretero : Measurement of the $^{222}\text{Rn}$ flux and the $^{222}\text{Rn}$ activity concentration profiles in some soils.	263
H. Friedmann : An inexpensive and highly sensitive method for continuous Radon monitoring.	269
J. Heinicke, U. Koch : Radon measurements for the solution of problems of engineering geology and geophysics for earthquake prediction in eastern Germany.	275
D. Klein, R. Barillon, A. Chambaudet, M. Cieur, A. Khalil : Caractérisation de l'émanation Radon par un compteur proportionnel et par des détecteurs solides de traces nucléaires.	281
V. Labed, A. Rannou, G. Tymen : Etude de la perméation du Radon $^{222}$ dans les membranes plastiques : application à une balise de mesure Radon dans les sols.	289
K. Müller, A. Polacek : Rn detection answering of engineering geology.	297
T. Nishikawa, S. Okabe, M. Aoki : Vertical distribution of alpha-ray density Radon and Thoron near the ground surface.	301
L. Tommasino, G. Torri : Results of short and long-term Radon measurements in soil and dwellings by alpha track detectors.	309
<b>ANNEXES : Liste des participants.</b>	<b>319</b>

# **PREAMBULE**

## PREAMBULE

La géochimie des gaz fait actuellement l'objet de nombreuses applications dans le domaine des Sciences de la Terre et de l'Environnement: exploration minière, prévision des risques géologiques, hydrogéologie, géothermie...

En outre, le Radon peut lui même constituer un risque pour la santé dans les lieux de travail(mine...), dans les habitations ou les lieux de stockage souterrain de déchets. Ces risques sont surtout liés au processus de migration des gaz dans les formations géologiques, les sols et les eaux souterraines.

Actuellement, dans les régions à haute sismicité, l'accent est surtout mis sur la prévention des risques géologiques(séismes, volcanisme) tandis que dans d'autres parties du Monde, les recherches sont orientées vers les problèmes de pollution domestique par le Radon en raison des conditions de vie.

Le but de ce colloque, dont voici les actes, était de réunir des scientifiques concernés par l'étude des gaz rares(Rn, He, Ar...) dans les Sciences de la Terre et de l'Environnement, de confronter les méthodes de mesures et les techniques de mesure.

Pour l'équipe de la Faculté Polytechnique de Mons ( Service G.F.A., Prof. Charlet) organiser un Colloque International sur la Géochimie des Gaz était, à la fois une conséquence logique de 10 années de recherches sur le Radon dans les Sciences de la Terre et de l'Environnement, et une gageure car l'objectif avoué était de réunir, à Mons, un maximum de scientifiques de tous pays et de toutes disciplines. En effet, géologues, les membres de notre équipe avaient surtout des contacts avec des collègues de même formation. La confrontation avec des physiciens, des spécialistes de l'environnement de l'électronique... ne pouvait qu'être profitable à tous. Une fois le congrès terminé, nous pouvons écrire aujourd'hui que ce fut le cas, le présent volume en est l'illustration.

Il ne faut cependant pas oublier que cette initiative n'a pu voir le jour et prendre corps que grâce à l'appui et au soutien d'un certain nombre de personnes et d'institutions. Nous tenons une fois de plus à leur exprimer notre reconnaissance pour leur assistance que nous avons su apprécier à leur juste valeur.

Que chacun d'entre eux trouve ici l'expression de notre gratitude pour leur aide:

\* *le Ministère des affaires économiques et le secrétariat d'Etat à l'Energie en la personne de **Monsieur le Ministre Elie DEWORME** qui a accepté la Présidence d'honneur du Colloque, des membres de son cabinet et du Service Géologique de Belgique;*

\* *la Faculté Polytechnique de Mons, son recteur **Monsieur Christian BOUCQUEGNEAU**, également Président d'honneur de notre manifestation;*

\* *le Ministère de la Région Wallonne - Direction Générale des Technologies et de la Recherche: **Monsieur le Ministre Albert LIENARD**;*

\* *le Ministère de la Région Wallonne - Direction Générale des Relations Extérieures: **Monsieur le Ministre Robert URBAIN**;*

\* *la Direction de l'Enseignement Supérieur de la Communauté française de Belgique;*

\* *le Fonds National de la Recherche Scientifique (F.N.R.S.);*

\* *l'Association des Ingénieurs de Mons (AIMs).*

L'organisation pratique de cette manifestation dépendait aussi de la compétence et de la disponibilité de personnes qui ont travaillé dans l'ombre et qu'il convient de remercier ici. Ce sont les membres du *personnel de la Faculté Polytechnique de Mons (Service Géologie Fondamentale et Appliquée (G.F.A.), Rectorat, Services Généraux)* ainsi que le *personnel du Projet PRIME N° 10237, géré par l'A.S.B.L. GREN (Géologie, Radioactivité, Environnement).*

N'oublions pas non plus les firmes et institutions commerciales qui ont apporté leur concours financier et technique pour aider à la bonne tenue de ce colloque :

*Le Centre de Radioprotection dans les Mines (C.R.P.M.), Kodak - groupe Radon, Akka S.A. (film CR 39), la C.G.E.R., EG et G ORTEC, Pylon Electronics Development (Canada), Canberra instrumentation, Genitron et Ort Electronic.*

Enfin remercions encore et surtout les scientifiques, orateurs ou participants, de 14 nationalités différentes qui ont fait de ce colloque une manifestation scientifique de haute qualité. Sans eux rien n'aurait de sens dans le travail que nous avons fourni. Merci à tous !



# **I<sup>ère</sup> PARTIE**

Exposés introductifs

## DE L'EXPLORATION MINIERE A L'ENVIRONNEMENT, LE RADON, OUTIL COMMUN D'INVESTIGATION.

**Professeur J.-M. CHARLET**

Faculté Polytechnique de Mons, rue de Houdain 9 - 7000 Mons Belgium.

### INTRODUCTION

Le titre du colloque ganisé en octobre 1990 à la Faculté Polytechnique de Mons sur la géochimie des gaz suggère à priori un intérêt général pour les gaz dont la concentration est plus élevée dans le sol ou le sous-sol que dans l'atmosphère. Ce sont les gaz rares mais également des gaz comme l'hydrogène, le méthane, les vapeurs de mercure.

Le colloque a cependant été plus particulièrement orienté vers les gaz rares, gaz qui proviennent principalement de la désintégration des radioéléments naturels (radon, helium, argon) et dont l'origine est ainsi spécifiquement interne. Ce sont donc des éléments particuliers par leur origine mais aussi par leurs propriétés chimiques (puisque ce sont des gaz inertes). Il n'existe pas de véritable cycle géochimique des gaz rares comme on peut le définir pour la plupart des éléments du tableau de Mendéléiev (on parle du cycle du carbone, du phosphore,...). Les gaz rares se bornent à rejoindre l'atmosphère lorsqu'ils peuvent échapper des matériaux (cristaux ou roches) qui les emprisonnent. Ils constituent ainsi des indicateurs précieux de phénomènes internes comme les activités sismiques et volcaniques, mais aussi de phénomènes qui affectent la subsurface (présence de minéralisations uranifères, fracturation, etc...). Ainsi l'étude de la répartition de ces gaz dans les sols ou les eaux peut être très utile en prospection minière, recherche hydrogéologique en milieu fissuré, géothermie, thermalisme...

Parmi ces gaz, le radon occupe une

place particulière. Il suffit de voir le nombre de communications qui lui est consacrées dans cet ouvrage. Il occupe une place particulière en raison du fait qu'il est lui-même radioactif et qu'il génère des radioéléments émetteurs de rayonnement alpha ou gamma. C'est ce qui facilite sa détection en faibles traces dans les sols ou les eaux mais c'est aussi ce qui pose des problèmes quand ce même radon venant du sol, migre dans les maisons créant parfois une augmentation de dose de radiation et un risque pour la santé des habitants. C'est cet aspect du radon qui frappe plus particulièrement les médias. Les relations radon-environnement ont fait l'objet de nombreuses communications au cours du C.I.G.G. Plusieurs colloques et réunions de travail ont en outre été organisée au cours de l'année 1990 en Belgique sur ce thème particulier et le Dr Eggermont, conseiller scientifique au "Centre de l'Energie nucléaire" à Mol nous fait un exposé sur le problème radon dans les habitations. Nous avons également pu bénéficier des contributions de nombreux spécialistes de la géochimie des gaz en relation avec la prévision des séismes ou des éruptions volcaniques. Je n'ai pas voulu empiéter sur les exposés très documentés scientifiquement qui ont été présentés par ces auteurs mais il me semble par contre que l'utilisation des gaz et en particulier du radon dans l'exploration minière a été un thème peu traité au cours du C.I.G.G., peut être en raison de la diminution de l'activité en prospection de l'uranium suite à la chute du prix de ce métal.

Cette application minière est cependant à l'origine du développement de nos recherches à Mons dans le domaine du radon et illustre un peu la manière dont, à partir d'une méthodologie de base, les cas d'applications

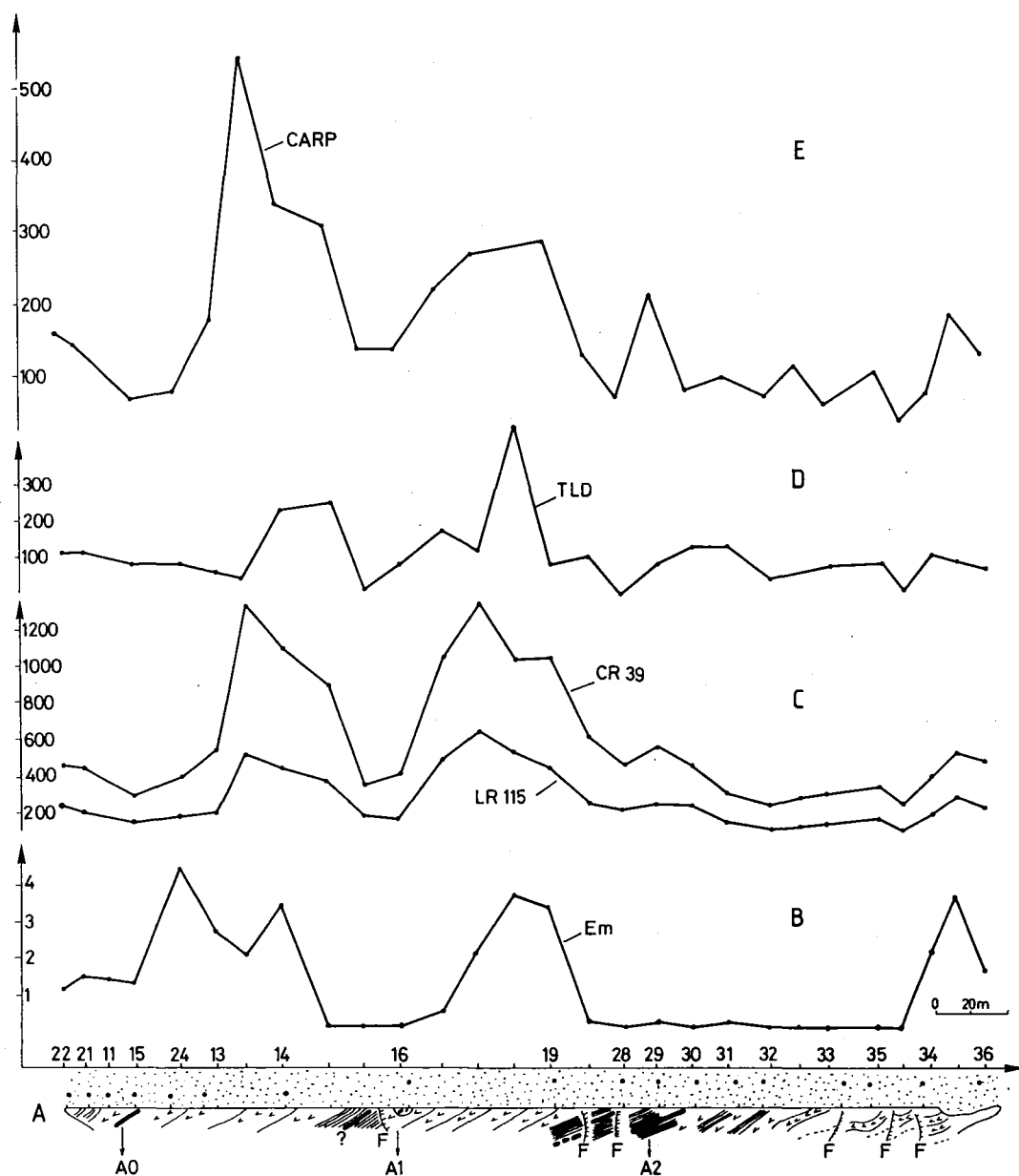


Figure 1. Comparaison émanomètre - détecteurs plastiques type track etch, détecteurs thermoluminescents TLD - charcoal, site de Blaton.

A) coupe géologique

A0 - A1 - A2 anomalies uranifères (eU < 100 ppm) dans les formations du Viséen - Namurien ou dans un paléochenal crétacé recouvert par les sables du Tertiaire.

B) Emanométrie (en coups/sec)

Moyenne des résultats obtenus de juillet à décembre 1980 afin de tenir compte des variations climatologiques

C) Détecteurs plastiques type "track Etch" (en traces/mm<sup>2</sup>) Résultats obtenus par le Dr. MC LAUGHLIN

D) Dosimétrie par thermoluminescence (TLD) en utilisant des détecteurs au fluorure de calcium (unité arbitraire :  $\text{para } H = (H3 + 10H4)/4$  corrigé du bruit de fond ( $H3 - H4$  : intensités des pics de haute température de la fluorine)

E) Détecteurs charcoal ou ROAC system (comptage en C.P.M. avec corrélation du bruit de fond). Résultats obtenus par le Dr. MC LAUGHLIN.

peuvent évoluer en s'adaptant aux besoins de nos sociétés. C'est ce qui nous a poussé à essayer de mettre ensemble des scientifiques intéressés par, la géochimie des gaz rares avec peut être des objectifs différents mais la possibilité de confronter leurs méthodes d'études et leurs techniques de mesures.

### La thermoluminescence appliquée à la recherche des zones de migration du radon à la prospection minière.

C'est en 1977 que nous avons publié au compte rendu de l'Académie des Sciences une première note sur la possibilité de prospecter des gisements cachés d'uranium par la mise en évidence d'une effet de dose dans le minéraux des formations de couverture, effet de dose en relations avec la migration du radon (Charlet et al, 1977). Cet effet était révélé par la propriété de thermoluminescence du quartz et des feldspaths, minéraux souvent présents dans les formations géologiques superficielles. Intéressée par l'idée la COGEMA (en France) nous a proposé de travailler sur certains sites, notamment dans le cadre d'un projet de recherche soutenu par les Communautés européennes (Charlet et al, 1982). C'était le point de départ des contacts noués avec les équipes géochimie des gaz de la COGEMA et des équipes engagées dans les projets des Communautés européennes (Dr. MC. Laughlin et al, 1982).

Ce fut notamment en 1980 la campagne d'intercomparaison des techniques de détection menées avec l'"University college" à Dublin et les campagne d'échantillonnage sur le site de la COGEMA dans la région de Vichy.

La campagne d'intercomparaison a été menée avec le Dr. MC. Laughlin et a été effectuée en juillet 1980 sur un profil qui avait été précédemment étudié en thermoluminescence au dessus de formations appartenant au Viséen-Namurien avec quelques niveaux enrichis en uranium (Charlet et al,

1979). Le premier site test localisé à Blaton près de Mons a un intérêt méthodologique car on peut détecter le radon sur des formations sableuses du Tertiaire qui recouvrent une source locale constituée par les niveaux radioactifs du Viséen-Namurien (fig. 1). Toutes ces formations affleurent bien grâce à la tranchée du canal Nimy-Blaton. Les premières études de la thermoluminescence des feldspaths des sables du Landénien a montré une intensité plus forte que la valeur normale au-dessus des horizons radioactifs du Namurien-Viséen (fig. 2). L'histogramme (a) représente un facteur de forme de la courbe de thermoluminescence du quartz et montre que le matériel est homogène, l'histogramme (b) représente l'intensité de thermoluminescence des feldspaths avec plusieurs modes. Ces résultats constituent le point de départ de la méthode de prospection des gisements cachés d'uranium par l'étude de la TL des minéraux des formations géologiques

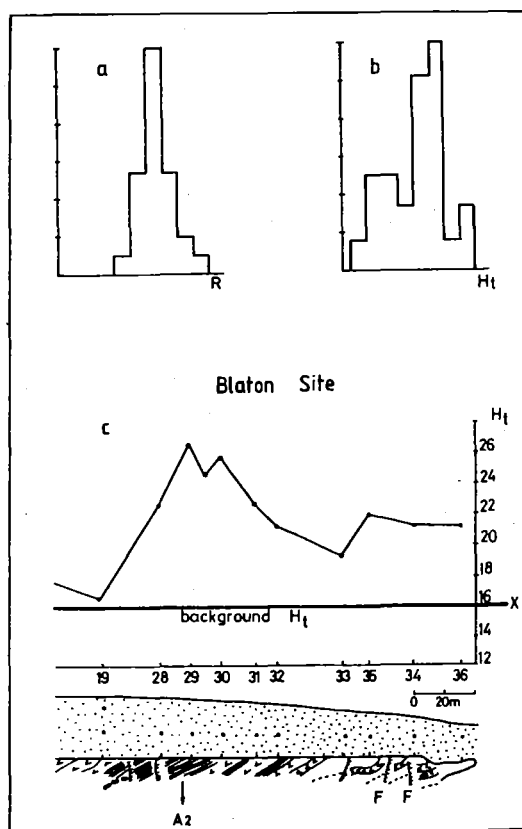


Figure 2. Le site de Blaton.  
(Légende dans le texte).

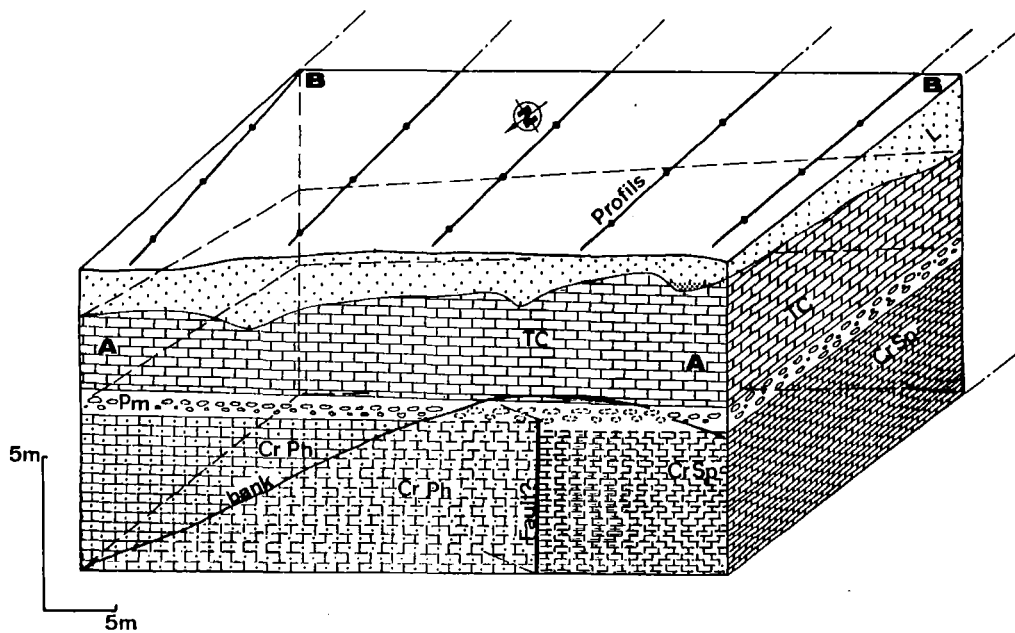


Figure 3. Le site de Cibly (Légende dans le texte).

de couverture. Il ont été aussi à l'origine d'un test d'intercomparaison entre différentes méthodes instantanées ou intégrées de détection. En juillet 1980 nous avons aménagé sur le site 28 points de mesures dans lesquels on a placé simultanément des détecteurs au charbon actif appelé CARP par Mc Laughlin (charcoal absorbed radon prospecting), des films alpha (CR 39 et Kodak L 115), et des détecteurs TL au fluorure de calcium et cela pendant 43 jours. Pendant l'année 80 et 81 plusieurs émanométries avaient en outre été effectuées si bien que l'on a finalement une assez bonne comparaison entre toutes ces méthodes. On peut ajouter que la période d'implantation de 43 jours a été trop longue pour les charbons et c'est probablement la raison pour laquelle les résultats sont différents sur la hauteur relative des anomalies.

Un second exemple concerne un site localisé à Cibly dans un contexte géologique analogue à celui décrit dans le livret guide de l'excursion du Congrès (Malogne). La possibilité d'utiliser la thermoluminescence des formations superficielles (ici des limons) pour détecter des zones préférentielles de migration du radon (Charlet, 1985). Soixante quatre points de mesures et d'échantillonnage ont été

implantés suivant une maille régulière de 10 m de côté. Le contexte géologique peut être observé dans une carrière proche et a été étendu à tout le site par l'application des méthodes géophysiques (électrique et sismique). On peut y observer (fig.3) :

- la craie phosphatée de Cibly, uranifère (35 à 45 ppm U),
- le conglomérat de la Malogne (Pm),
- le Tuffeau de Cibly (TC), une calcarénite sur une épaisseur de 5-6 m,
- des limons (L) sur une épaisseur de 1,5 à 2m

Une faille limite le gisement des phosphates vers le Sud en mettant au contact les craies phosphatées et des craies blanches sans uranium (Crsp). Les échantillons ont été prélevés suivant un suivi de profils à la même profondeur et toute une série de paramètres ont été mesurés (fig. 4) : des paramètres sédimentologiques comme la granulométrie (moyenne et écart-type) ou la teneur en carbonates (Cal), des paramètres radiométriques comme la radioactivité des échantillons mesurés par une technique en bas comptage, (GAM), des paramètres radon comme trois émanométries réalisées à des périodes différentes (EM 1-2-3) et l'utilisation de



charbon actif (Bou), des paramètres de thermoluminescence sur les minéraux des formations superficielles (les intensités TL des quartz et des feldspaths (Ht et Hp)). Une analyse en composantes principales montre plusieurs pôles :

Un pôle lithologique qui regroupe toutes les données sédimentologiques. Un pôle radioactivité des limons opposé au pôle lithologique, ce qui veut dire notamment que la radioactivité diminue lorsque la quantité en carbonates augmente.

Un pôle TL non corrélé avec les deux précédents et donc lié à un autre facteur. Remarquons que tous les paramètres TL sont groupés ce qui traduit la relation entre la TL du quartz et des feldspaths. Cette corrélation apparaît bien dans un diagramme donnant l'intensité TL du quartz en fonction de l'intensité TL des feldspaths (fig.5). Ce sont deux

dosimètres naturels utilisés d'ailleurs par les géologues pour dater les dépôts du Quaternaire.

Les résultats des campagnes radon montrent une évolution entre le pôle lithologique et radioactivité ce qui semble-t-il traduit l'existence de deux sources de radon : une source superficielle liée aux radioéléments présents dans les limons et une source plus profonde influencée par les propriétés physiques des formations (perméabilité...).

Selon les conditions climatiques et géologiques, l'une ou l'autre source joue préférentiellement. Une distribution spatiale des intensités TL (fig. 6) et des mesures au charbon actif (fig. 7) montrent des surfaces qui s'inclinent vers le Sud-Est, plus élevée dans la partie Nord-Ouest où affleure une faille qui affecte la craie phosphatée. A noter, la différence entre les mesures TL qui intègre l'effet radon à l'échelle des temps géologiques et les mesures au charbon actif qui intègre seulement l'effet radon sur quelques jours.

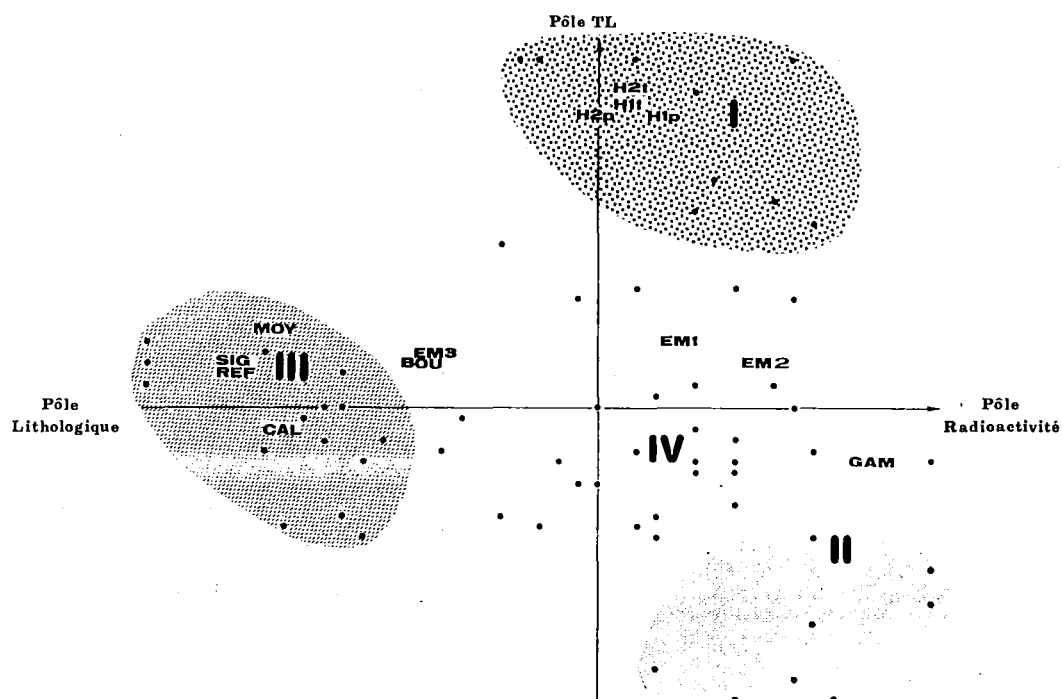


Figure 4. Le site de Ciplý - Traitement statistique des données - Explications dans le texte.

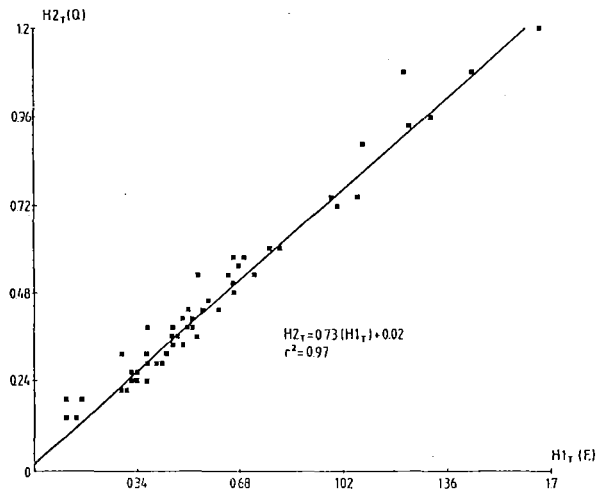


Figure 5. Site de Cibly, relations TL du quartz (Q) en fonction de la TL des feldspath (F).

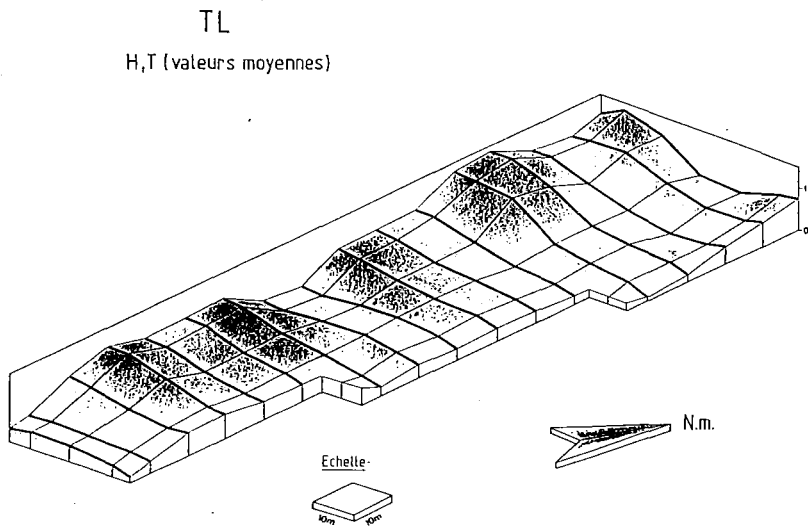


Figure 6. Site de Cibly, répartition spatiale des intensités TL.

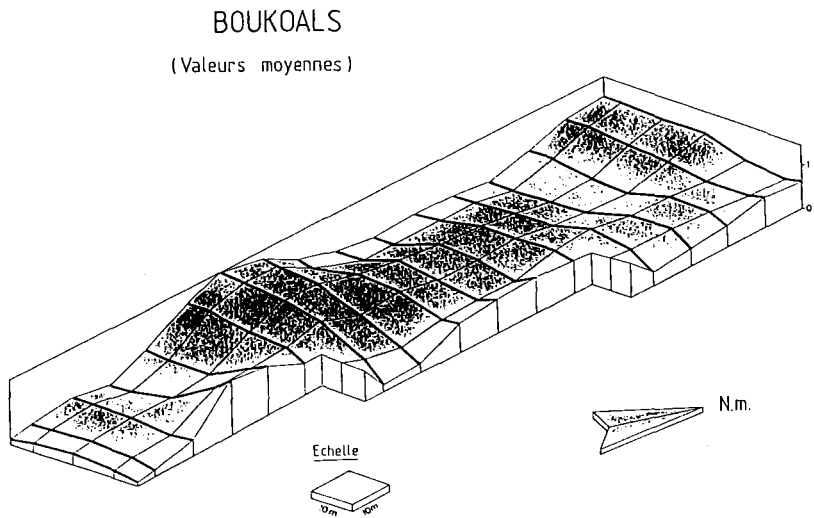


Figure 7. Site de Cibly, représentation spatiale mesures radon au charbon actif.

Un troisième exemple concerne un prospect de la COGEMA situé en France dans la région de Vichy. (Charlet et al, 1985 et 1987). Le contexte géologique correspond à un bassin tertiaire avec un remplissage sablo-argileux reposant sur un socle granitique (fig. 8). Les granites affleurent à l'Est et contiennent des gisements d'uranium. L'uranium remobilisé s'est déposé dans des chenaux des formations sableuses et argileuses du Tertiaire. Un des sites qui avait été retenu par la COGEMA avait fait l'objet d'une campagne de forage suivant une maille régulière de 25 m de côté.

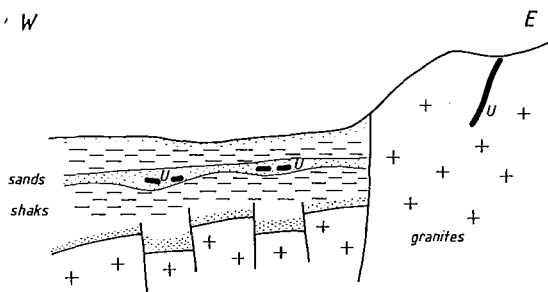


Figure 8. Contexte géologique du prospect de la COGEMA (région de Vichy) (explication dans le texte).

Nous avons chaque fois prélevé la 3<sup>ème</sup> tige ce qui correspondait à une profondeur constante de prélèvement en-dehors des perturbations de surface liées par exemple à l'effet de photodésexcitation de la TL par la lumière solaire. Une zone de faille coupe le prospect en deux parties, à gauche la minéralisation est à une profondeur de 10 mètres, à droite à une profondeur de 60 mètres. C'est la TL des feldspaths qui a donné les meilleurs résultats. Les sédiments étant plus anciens que ceux étudiés dans le 2<sup>ème</sup> exemple, la TL des quartz a atteint une zone de saturation et ne peut être utilisée comme dosimètre. L'intensité TL des feldspaths (fig. 9) montre par contre une bonne corrélation avec la projection en surface du contour de la

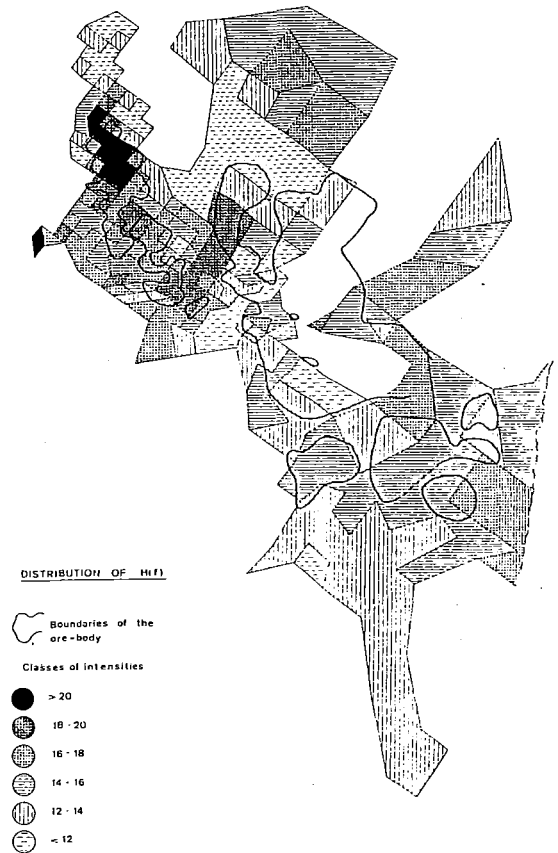


Figure 9. Prospect COGEMA : cartographie des intensités TL des feldspaths - Relation avec les limites de la minéralisation.

minéralisation. A gauche de la faille, on observe une très bonne correspondance entre la limite de la zone minéralisée et les plus fortes intensités TL. A droite, où la minéralisation est plus profonde, les contrastes sont plus faibles. On voit cependant une zone allongée avec des valeurs qui ressortent du "background" situé autour de 12. Des résultats obtenus dans la 3<sup>ème</sup> dimension ne sont pas présentés car ils ne concernent pas, à proprement parler, le radon mais plutôt la migration des solutions minéralisées dans les gisements de type "sandstones" (Charlet et al, 1986).

Des exemples analogues ont été traités dans le cadre d'un contrat avec Total Compagnie Minière au cours des années 1984-1985. Malheureusement la chute du prix de l'uranium a conduit un peu partout à une réduction des travaux d'exploration et donc à un manque d'intérêt pour l'utilisation de méthodes nouvelles propres à l'exploration de gisements cachés.

### **L'avenir des méthodes radon en prospection minière.**

Au cours de ces dernières années nous avons maintenu une activité R-D dans le domaine de l'exploration tout en redéployant nos objectifs vers les problèmes de risques géologiques et d'environnement. Au niveau de la prospection ce sont les méthodes radon qui nous ont permis de découvrir en 1986 et 1987 des indices en uranium dans le Dévonien inférieur de la Belgique. Les minéralisations trouvées dans des tranchées et en sondages prouvèrent le bien fondé de la méthode appliquée. Si ces études ne débouchèrent pas sur la découverte d'un gisement, elles furent cependant à l'origine des travaux actuels sur les problèmes radon dans les habitations de cette région (Doremus et al, 1990 a) actuellement menés en collaboration avec l'Institut d'hygiène de Bruxelles (Doremus et al, 1990 b).

Enfin nous étions en bonne marche pour développer la méthodologie en vue de la prospection des gisements à cuivre-cobalt du Shaba et où l'uranium est associé à ces minéralisations (Makabu et al, 1990). On connaît bien sûr le gisement célèbre de Shinkolobwe qui joua un grand rôle dans l'approvisionnement en uranium à des fins militaires au cours de la guerre 40-45 mais à d'autres endroits (Kamoto par exemple) il y a des milliers de tonnes d'U en minéralisations dissimulées dans les gisements à Cu-Co. Un tel uranium ou ses descendants peuvent servir de traceur dans la recherche de minéralisations

cachées à cuivre-cobalt. Nous avons entamé ce travail en étudiant le comportement des radioéléments dans les sols latéritiques des environs de Lubumbashi. Un projet de recherche sur les possibilités d'utiliser des méthodes radon en vue de localiser les minéralisations cachées à cuivre-cobalt a été proposé avec la collaboration du service géologique de la Gecamines et de la Faculté Polytechnique de l'Université de Lubumbashi.

Il y a donc de grandes possibilités dans le domaine de l'application de techniques radon à la prospection minière. Il y a la recherche de toutes les substances minérales associées à l'uranium (comme les phosphates, les Terres Rares,...) mais il y a aussi la localisation des filons en tant que zones fracturées, altérées et donc susceptibles de constituer des zones préférentielles de migration des gaz.

En 1989 au cours du camp de géophysique appliquée des étudiants de la Faculté Polytechnique de Mons, nous avons effectués quelques profils radon sur la zone du filon minéralisé de Vierves en Belgique, filon à barytine et sulfures. L'utilisation d'un détecteur au charbon actif montre un pic très net au droit du filon minéralisé. C'est un petit exemple qui illustre les possibilités d'extension de la méthode. (fig. 10).

En mode de conclusion on pourrait rappeler les travaux effectués par différentes équipes sur la géochimie des gaz non radioactifs appliquée à la prospection minière. Des études ont été effectuées sur les hydrocarbures gazeux, le CO<sub>2</sub>, les composés sulfurés, le mercure; en liaison directe ou indirecte avec la minéralisation suivant l'origine de ces gaz. Les gaz rares peuvent également jouer ce double rôle : l'origine de ces gaz en liaison directe avec la minéralisation (radon mais aussi helium en relation avec l'uranium ou les minéralisations associées, argon en relation avec les altérations potassiques) ou en liaison indirecte liée à la

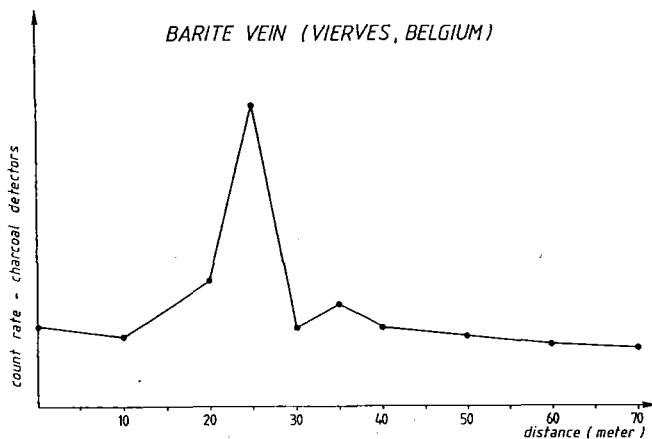


Figure 10. Mise en évidence par le radon du filon de Barytine de Vierves.

fracturation et à l'entraînement éventuel des gaz rares par d'autres gaz. C'est un mécanisme qui a été proposé par Monin et Siedel pour expliquer les fortes anomalies qui précèdent les séismes et où le radon serait poussé vers le haut par un flux gazeux plus profond (Monin, Seidel, 1988).

Avec la modélisation de Monin et Siedel appliquée à la prospection nous retrouvons l'objet de ce colloque, mettre en relation des scientifiques qui travaillent sur la géochimie des gaz avec parfois des objectifs différents mais où la confrontation des idées ne peut qu'être bénéfique aux uns et aux autres.

## REFERENCES

**CHARLET J.M., DUPUIS Ch. QUINIF Y.** 1977. Application de la thermoluminescence à la prospection des gisements d'uranium cachés. C.R. Acad. Sc. Paris, 284; 1447-1499.  
**CHARLET J.M., DUPUIS Ch., QUINIF Y.** 1979. Mise en évidence par la thermoluminescence des sables landéniens d'anomalies radiométriques nouvelles dans la coupe de Blaton. Ann. Soc. géo. Belgique, 101 : 337-349.

**CHARLET J.M., DUPUIS Ch., QUINIF Y., BOUKO Ph., LAIR Ph.**, 1982. Natural thermoluminescence of quartz and feldspars, application of a new method in uranium exploration. Symposium "Uranium Exploration Methods", O.C.D.E. : 545-555.

**CHARLET J.M., QUINIF Y., BOUKO Ph.**, 1985. Facteurs susceptibles de modifier les propriétés de thermoluminescence des couvertures limoneuses, le cas des formations superficielles de la région de Cipluy (Bassin de Mons, Belgique) Ann. Soc. géol. Nord : 77-85.  
**CHARLET J.M., QUINIF Y., DUPUIS Ch., LAIR Ph.**, 1986. A case study of thermoluminescence in uranium exploration Uranium, Elsevier, 2 : 279-285.

**CHARLET J.M., QUINIF Y., LAIR Ph.**, 1987. Thermoluminescence in Mineral and Energie ressources exploration, some case of applications. Bull. Soc. Belg. Géologie, 96, 1, 15-21.

**DOREMUS P., QUINIF Y., CHARLET J.M.**, 1990. La cartographie radon des eaux naturelles appliquées à la détermination des zones à risques domestiques de pollution par le radon. (cas de la région de Monceaux en Ardenne, Belgique). Ann. Soc. géol. Nord, 59 : 157-167.

**DOREMUS P., CHARLET J.M., QUINIF**



Y., FLEMAL J.M., 1990. La pollution domestique par le radon, étude de cas, région de Monceau en Ardenne, région de Mons, Belgique. Colloque international sur la géochimie des gaz, 3-6 octobre 1990, Ce volume.

**Mc. LAUGHLIN J., CHARLET J.M., DUPUIS Ch. QUINIF Y., BOUKO Ph., RAMU J.P.**, 1982. An intercomparaison of several methods of detecting radon -222 in over burden gases. Ann. Soc. Géol. Belgique, 105 : 211-221.

**MAKABU K., CHARLET J.M., DOREMUS P., QUINIF Y.**, 1990. Comportement des

radioéléments radioéléments dans quelques formations latéritiques des environs de Lubumbashi (Shaba, Zaïre) Application à la prospection des gisements Cu-Co-U. Ann. Soc. Géol. Belg., 113 : 315-327.

**MONIN M., SEIDEL J.L.**, 1988. Sur une hypothétique émission intense de radon avant un événement géophysique majeur : une analyse théorique. CR. Acad.s. Paris, 307, série 2 : 1363 - 1368.

**TELFORD W.M.**, 1983. Radon mapping in the search for uranium. In Developemnts in geophysical exploration methods - 4 Ed. A.A. Fitch. : 155-194.

## THE RECOMMENDATION OF THE BELGIAN NATIONAL SCIENCE POLICY COUNCIL (NSPC) ON RADON RESEARCH - ITS CONTEXT AND IMPLICATIONS

### Dr. EGGERMONT

Member of the NSPC and of the General Management of SCK/CEN (Mol)  
Boeretang, 200, 2400 MOL

### Radon Research - An Opportunity for the Public to Perceive Science and Technology

For the past ten years, radon research has led to remarkable results of public interest, clarifying a societal problem of prime importance for radiation protection and public health in Europe.

Belgium, with her European headquarters and her important nuclear developments, has not paid much attention to the radon problem. Compared to other countries in Europe, Belgium generally scores rather negatively as to the quality of the environment and the spending of public funds for research.

For many years, the Belgian National Science Policy Council (NSPC), the advisory board on science policy, representing most authorities from the academic and industrial scientific world, has advocated the necessity of investing more money in Science and Technology and in the development of human resources in research.

It is the NSPC's objective to convince politicians and the public opinion that growth in research and development is important for society.

In this approach, the NSPC has paid attention, in an increasing degree, to the social implications of science and Technology. Radon impact is very illustrative in this regard. The President of the NSPC and several of its members have been involved in an active way in national and international efforts to promote technology assessment, the "early warning" methodology.

This new priority can be compared with the long tradition of professional scientific societies, such as the American Physical Society (APS), in nuclear as well as in non-nuclear developments.

Recently, in 1989, the APS granted the Szilard Award for Physics in Public Interest to Antony Nero of the Lawrence Livermore Labs, the

worldwide "éminence grise" of radon research (1)

Radon research programmes are rather original developments, characterized by a multidisciplinary approach. They can provide the public opinion with a clear illustration of the societal benefit of expenditures for research. Radon research, as part of the nuclear technological research, undoubtedly contributes in a measurable way to the improvement of the quality of life of numerous families.

The indoor air is main subject of radon research. It is the micro-environment in which we all spend most of our lifetime. The quality of indoor air is thus of prime importance for public health. An ILO commission has even extended this problem to the working environment of office workers.

The indoor aerosol studies, clarifying the inhalation source term and contributing to the basic knowledge of a range of risk factors. Moreover, radon research offers promising ALARA opportunities to reduce collective dose and health detriment.

### The NSPC-Activities and Impact.

The NSPC, installed by Royal Decree, is chaired by Prof. R. Van Geen, physicist, former rector of the University of Brussels. The Council is composed of rectors of universities and representatives of private and public research institutions and socio-economic organizations, having particular competence in research policy. A quarter of its members are researchers.

The Council makes recommendations to the Belgian Government in all aspects of research policy, particularly concerning priorities and budgets.

Research institutions and programmes can be regularly evaluated through hearings and working groups.

The impact on policy making is more long-term rather direct through a stimulating effect on new research initiatives (e.g. societal

research programmes, new risk assessment programmes).

Advisory Reports are published on technical problems being considered of prime importance.

Recent important advices concerned Microelectronics, science and Technology Policy, Supercomputing, and, lately, Radon.

### **Radon Impact - a Surprising Scientific Evidence.**

In 1989, an analysis of the radon problem was presented to the council questioning why 100 years of nuclear R and D had taken place all over the world without timely assessment of the main radiation protection problem, the RADON EXPOSURE. Radon could be considered a chaos phenomenon in science philosophy. It has seriously disturbed the health criteria in radiation protection and nuclear energy, since it was noticed that living conditions were found in houses with yearly dose levels that equal accident emergency reference levels and mean doses approaching dose limits for individuals in the population.

The introduction of a new fundamental concept, the dose equivalent effective, has clarified the radon problem. This coherent system for internal and external exposure allows to estimate organ risks as a part of the global health risk, taking into consideration relative cancer probabilities. This ICRP way of presenting dose has enabled to illustrate the relative importance of the major lung dose related to radon, compared to the general radiation background. A survey of results of Belgian and international radon research and references was presented to the Council. This could be accomplished through collaboration of most Belgian radon researchers.

It was realized that radon could cause more victims per year than the accumulated exposure from Chernobyl, even in the Eastern part of Europe will ever do. This could cause serious difficulties in the public perception of nuclear risks. The potential impact of this problem came as a surprise for several members of the NSPC and showed the need to improve scientific information and communication at all levels.

### **Radon Research and Actions in Belgium - Historical Overview**

The Belgian contributions to radon research can historically be summarized as follows :

1960-70 - Radium and Radon know-how in SCK-CEN - Lucas method. (Koch)

1970 - RUG establishes Lucas method. (Prof. Segaert).

Problems in water well Visé. (Dr. Bourgoignie)  
1978-90 - University of Antwerp : Safety Courses (G. Eggermont).

Radon actual topic in radiation protection?

1979 - RUG starts radon research (G. Eggermont, A. Janssens, E. Cottens, R. Jacobs, F. Raes).

1978-88 - Scientific data and evidence.

Research in international context (RUG, FPM, WTCB).

Advice of Duch Health Council.

Industrial problems : phosphate industry  
radium industry nuclear waste.

1982-89 - NSPC promotes technology assessment.

Start of Rn-epidemiology. (RUG, UCL)

Association of Consumers offers measurements (RUG)

1989 - Advice of the Belgian Assoc. Radiation Protection.

Recommendation of Nat. Science Policy Council.

SCK/CEN starts Radon R and D in an international framework (Dr. H. Vanmarcke)

1990 - Research programme "New Risks".

CEC research "Epidemiology".

Industrial problems reassessed. (MHO, Tessengerlo)

Regulations Ra/Rn reassessed. (CEC directive)  
SCK starts Radophone (11 41 38).

In 1988, the Belgian Administration for Nuclear Environment suggested a radon R and D action programme to the political authorities.

The Belgian Association for Radiation Protection was asked for advice by the State Secretary for Environment. This Association states an average exposure of 2 mSv/Y, corresponding to 50 % of the total exposure to ionizing radiation of the Belgian population. Part of this radon exposure can be considered unavoidable. A campaign of radon measurements in houses indicated an average of 50 Bq/m<sup>3</sup> with peak values of more than 5000 Bq/m<sup>3</sup>. This corresponds to average of 2 mSv/y, which may be the cause of up to 10 % of the lung cancer occurrences in Belgium, or 600 cases per year.

The Belgian Association for Radiation Protection (affiliated to the IRPA) has considered two essential questions :

\* How far is enhanced exposure acceptable ?

\* How could exposure be decreased ?

and recommended the following measures (2) :

- ALARA based evaluation policy of controllable part of exposure;
- Increase of knowledge on exposure in buildings by measurement campaigns;
- Examination of sanitaire measures
- Establishment of feasible standards for existing and new constructions
- Better knowledge of risks epidemiology

Up to now, the Government has not followed up this recommendation.

### The NSPC Attitude (3)

The Council has taken notice of the difficulties met by Belgian research teams to continue work at international level, whereas the Belgian radon situation needs the same urgency as in the US considering that 1000 to 10000 buildings are having serious radon contamination in Belgium.

The Council concludes :

### CONSIDERING

- the risk for public health
- the availability of Belgian know-how at international level
- the multidisciplinary nature of the problem
- the lack of national R and D support
- the lack of coordination of authorities
- the important development of R and D programmes abroad

the NSPC recommends the Government :

- to take coordinated initiatives following advices of competent bodies (e.g. the Belgian association for Radiations Protection)
- to examine immediate support of
  - \* available expertise
  - \* joint action of multidisciplinary research
- to participate in international R and D collaboration (e.g. CEC)

A better integration of social, ethical and environmental aspects in technological research and development had been advocated before by the NSPC. A structured approach was suggested to the Government, which decided to launch a Societal Science Programme (including TA) and a New Risks Programme (including Epidemiology). The first programme is essentially oriented towards social sciences whereas the latter has not started yet. The State Secretary of Science Policy agreed to reserve part of this new R and D programme on New Risks for radon research.

### Actual Situation

During 1990, industrial radium and radon problems from the past have been rediscovered in Belgium. Measurements have been proposed by research institutions for workers and local populations. The Waste problem is being assessed by NIRAS/ONDRAF.

Nevertheless, the competent authorities for the regulation and control of ionizing radiation have not taken any action yet to decrease all these potential health effects. The implementation of the research evidence stemming from 10 years of radon research carried out in Belgium is an international framework has not resulted in policy actions yet.

This attitude will have to change after the initiative of the European Commission to stimulate the drawing up of radon standards for indoor air. Very recently, a controversial relation was established by Henshaw (4) between radon and leukemia, increasing the potential health impact.

The Rn actions in the USA now have an international impact. The long-term objective of EPA is to bring down indoor radon concentrations to that of the outdoor air. However, this objective will be very difficult to realize.

Meanwhile, the US army has taken action overseas and has adopted earlier EPA guidelines for family houses, buildings, schools, and hospitals in the USA as well as abroad. Generally, all US schools are advised to execute radon measurements. As considerable US army sites exist in Belgium, this initiative will stimulate at least systematic school investigations in the southern part of this country (5).

The continuous efforts of scientists, scientific and professional institutions, consumers' organisations, media, even the Union's press, will certainly result in governmental actions as to this major health problem.

Meanwhile, Greenpeace International has decided to give no priority to radon in its nuclear campaign.

## CONCLUDING REMARKS

In his APS Award lecture, A. Nero already stated the importance of the micro-environment in which we live and work. Public opinion is still focussing on regional environmental problems and global long-term problems such as the greenhouse effect, which recently received national and international support.

A multidisciplinary R and D programme for radon research with the following items should be realized now :

- Radon cartography of houses/geology
- Development of Remedial Actions
- Development of Building Codes
- Development of Regulations for houses
  - building materials
  - industrial processes
- Basic research on behaviour and risk
- Epidemiology

A. Nero had the interesting idea to compare extreme radon measures with the Star Wars shielding programme, with its enormous cost and doubtful outcome.

We should not exaggerate, but should, by a coordinate national effort, try to reduce what is reducible, taking social and economical considerations into account.

ALARA should become a more common practice in decision making.

A study of EPA has already made clear to the politicians that radon regulations are as cost-effective and thus have as much sense as seat-belts for saving lives in our society (6).

## REFERENCES

**A.W. NERO**, Szilard Award Lecture (APS), From Reactors to Radon - Towards a new Environmental Consciousness, Physics and Society, vol. 18, 4, Oct. 89.

**IRPA**, Point of View of the Belgian Association for Radiation Protection Related to the Radon Problem.

**National Council for Science Policy**, Recommendation of the N.C.S.P. for the support R&D on Radon.

**HANSHAW D.L. et al.**, Radon : A Causative Factor in the Induction of Myeloid Leukemia and other Cancers in Adult, The Lancet, 1990.

**DHARLAVARAN**, Clean Air Congress, La Hague, Sept. 1989.

**Technical Support Document of the 1990 Citizen Guide to Radon**, Draft, August 1990, US-EPA.

## ACKNOWLEDGEMENTS

The helpfulness of Mr. Van de Vijver, Secretary of the National Council for Science Policy, the help of Mrs. Kr. Bloem in typing, organising and laying out this paper and the valuable discussions and continual scientific consultations of Dr. H. Vanmarcke are highly appreciated.



# **II<sup>ème</sup> PARTIE**

Radon et Environnement

## NORTHERN LATIUM : A RADON HOT-SPOT

**Dr. F. AUMENTO**

3R-Radon Radiation research laboratory

Piazza 5 Giornate 4

Arese (Mi) Italy

### ABSTRACT

*Fifteen percent of the population of Italy lives in areas of potentially high ground radon emanation levels in the volcanic province of Central Italy. Detailed radon investigations over 4 000 km<sup>2</sup> of Northern Latium, just north of Rome, have included temporal variations, ground emissions, levels in water supplies, emissions from the different lithologies and building materials and concentrations in houses.*

*The high uranium content of the volcanics, the porous nature of the ubiquitous pyroclastics, and the residual volcanic heat and vapours in the area combine to convey to ground level exceptional concentrations of radon. The emissions show strong lateral variations which are geologically and tectonically controlled, such that only detailed surveys reveal the extent and locations of anomalous radon emanations. Risks to the population are compounded by the widespread use of natural lithic materials of local origin in the construction of houses.*

*Whereas the arithmetic average radon concentrations for the greater part of Italy are low (40 Bq/m<sup>3</sup>), in these volcanic regions the average indoor values are around 295 Bq/m<sup>3</sup>. Where volcanic materials have been used in the construction of the dwellings, the average increases further to 320 Bq/m<sup>3</sup>. For certain towns, unfortunately built over, and also built with highly emissive tuffs, the average climbs to well over 450 Bq/m<sup>3</sup>.*

### 1. INTRODUCTION

Until quite recently, the only radon considered potentially dangerous was that which entered, from below ground, those buildings sited directly over certain volcanic, granitic or metamorphic terrains. This gas, released from the underlying rocks, filters into cellars and lower floors through the small cracks, joints, and spaces around tubings which abound in most buildings. More recently, attention has also been drawn to that radon introduced into buildings by the water supply : the latter, when still in aquifers below ground, absorbs and concentrates the radon released locally from the surrounding rocks, transports it via the water supply system, and releases it indoors as the water is used when showering, running a bath or using a washing machine.

### 2. THE RADON POTENTIAL IN ITALY

Although the individual rocks underlying the Italian peninsula do not contain as much uranium, thorium and radium as some of the U.S. granites and schists, Italians are subjected to a higher level of natural radiation exposure than are U.S. citizens and inhabitants of most of the other industrialized countries

(Grasty, 1983). This is due in large part to the volcanic origin of a large part of central and southern Italy. The volcanism, recently or currently active, is somewhat exceptional, being unusually enriched in the alkaline and radioactive elements and is predominantly pyroclastic, that is to say made up of poorly lithified material, highly fractured and very porous.

The volcanics include tephrites, phonolites, leucitites, trachytes, latites, rhyolites and their pyroclastic equivalents in the form of stratified lapilli and pozzolanic deposits, ash and scoriaceous beds, tuffs and ignimbrites. The combination of the high concentrations of radioactive elements, the fluids, gases and residual heat of the volcanics, together with the high permeability of the rocks, develop an effective level of radon emission from these rocks which is often higher than that from larger granitic masses, less permeable to the migration of gases, no matter how radiogenic or fractured. Fracturing, as in some granites, certainly increases the permeability to radon and other gases, but not to the extent of a pyroclastic; an equivalent granite would have been in a state of complete pulverization.

Geologically speaking, therefore, one can expect radon emanations in Italy to be at

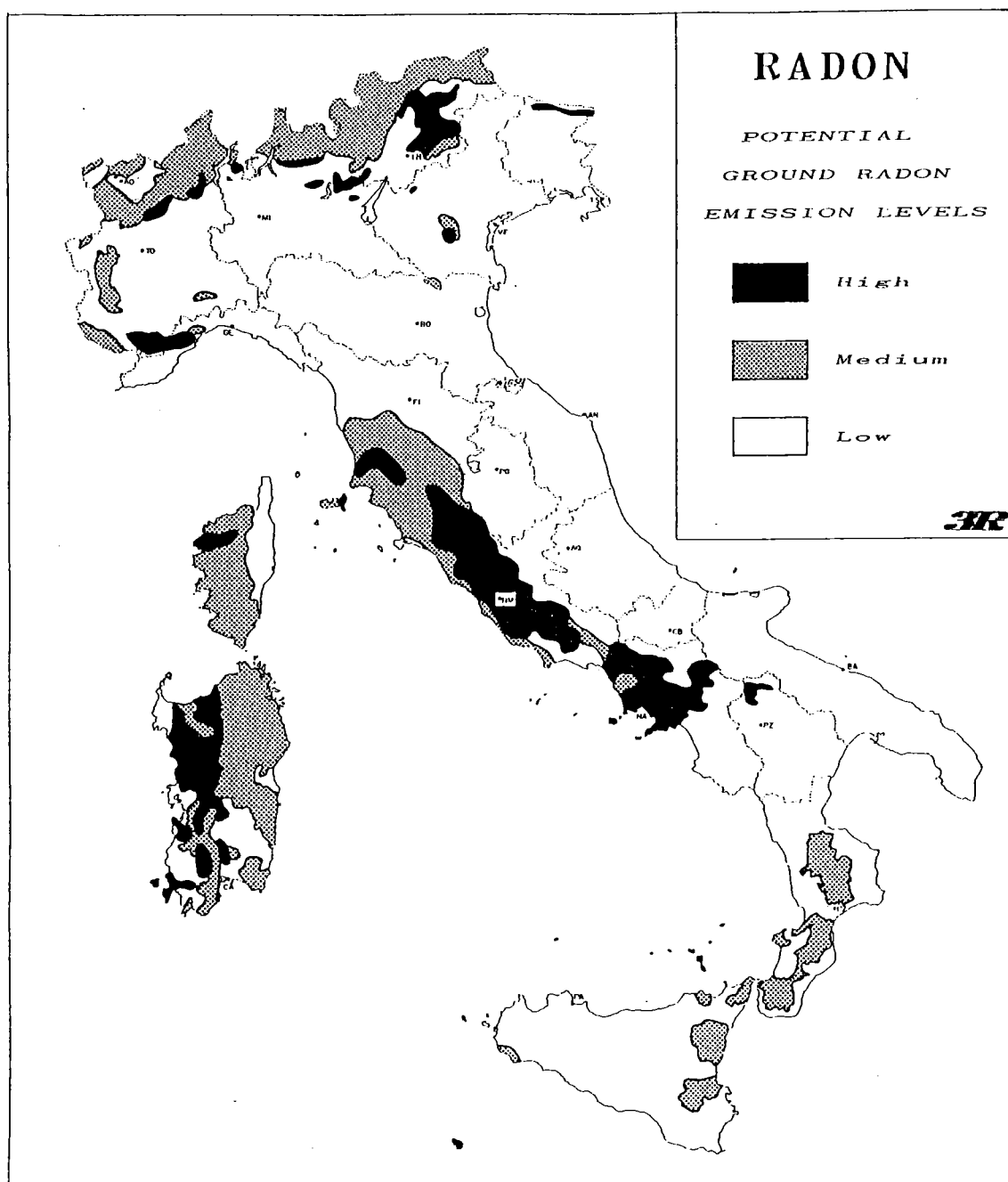


Figure 1. Ground radon risk map for Italy, based on the geology and geochemistry of the peninsula and on the recent volcanological and geothermal situation. Details on the original 1 : 1.000.000 map have been simplified to facilitate reduction and publication.

levels at least comparable to those cited for the U.S.A., and for these high levels to occur over a higher percentage of the national territory.

Keeping this "scenario" in mid, we commenced by generating a ground radon risk map for the Italian peninsula. The map is based not only on the geology and geochemistry of the peninsula, but also incorporates modifications due to close to ten thousand actual measurements over currently active, dormant and extinct volcanic and geothermal terrain; these two factors contribute a "dynamic" element (ie., rapid transport for

any radon emitted) to the straightforward lithological/geochemical effect, the results of which cannot be neglected.

The map (Figure 1) shows that about 75 % of the country (in which there lives 78 % of the population) can be considered risk-free (well under 50-70 Bq/m<sup>3</sup>) as far as ground radon is concerned. Similarly, 16 % of the territory (with 7 % of the population) is at a low to medium risk level (still less than 120-150 Bq), whereas the remaining 9 % of the territory, with 15 % of the population, - represented by 9 million inhabitants, is exposed

to a considerable risk from radon emissions (well into the hundreds of Bq/m<sup>3</sup>). The "risk" areas include such heavily populated centres as Rome and Naples.

To complicate matters further, some of our early measurements (similar to those reported by the National Radiological Protection Board of Great Britain; see Clarke and Southwood, 1988) had shown that, in contrast to the North American situation where most single family dwellings are built of wood and the radon danger is restricted to underground sources or to the water supply, in Europe there comes into play a third important source of radon : that generated from the mildly radioactive natural building materials used in the construction of the buildings themselves.

In Italy the typical dwelling is a multi-family building constructed out of lithic materials, preferably local in origin. Consequently, in the central provinces of Latium, Campania, Umbria and Tuscany, it is quite common to find villas and apartment buildings, be they of recent construction, old or even historic, built out of lava and tuff blocks. Even the structural concrete is rich in pozzolanic and other volcanic inert fillers. Every wall, floor and ceiling of such a building becomes a very efficient radon emitter, and no subsequent plaster or commonly used "breathable" paint coating is going to block these emanations.

### 3. THE MEASUREMENTS

With our "risk" map in hand, we selected an area representative of one of the highest risk situations within the Italian peninsula and measured the radon emanations from the ground and the radon concentrations in the different floors of overlying buildings; measurements were of the integrative solid state track detector type, with minimum periods of signal integration of two months during the autumns/winters of 1988-1989 and 1989-1990. Furthermore, temporal radon emanation variations were monitored with repetitive weekly and monthly measurements from March 1988 to September 1990 in selected locations where access and local assistance was made available to us. An example of the measurements is shown in Figure 2.

We also measured, directly at the sampling sites, the "environmental" radon (that stripped from the country rock by underground waters) and in the laboratory the "in situ" radon (generated by radium held in solution by the same waters) of several potable waters from these zones (including private wells, municipal water supplies, public fountains and springs, and bottled mineral waters).

In the laboratory we also measured the radon emissions from several hundred samples of the more common lithologies and building materials (both natural and man-made) found and used in the areas. Results of equilibrium

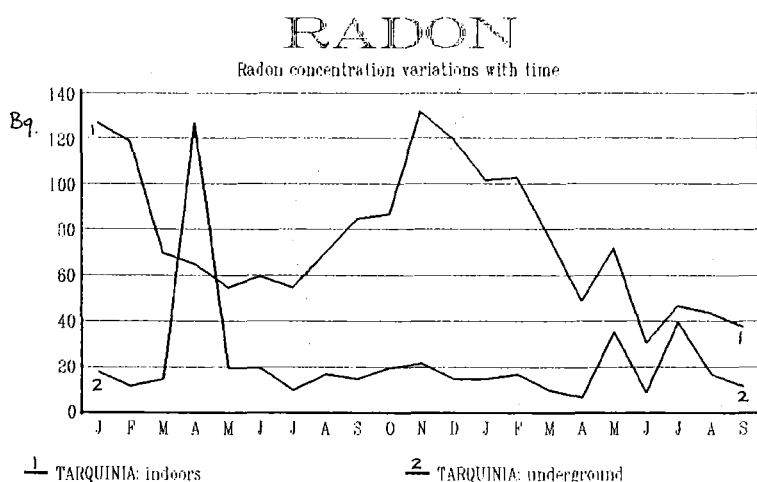


Figure 2. Variations in radon concentrations with time in Tarquinia (Vt), measured both indoors and in the soil surrounding a house built out of radon-emitting tuff blocks on radon-poor soil.

RADON EMISSION FROM ROCKS OF  
NORTHERN LATIUM

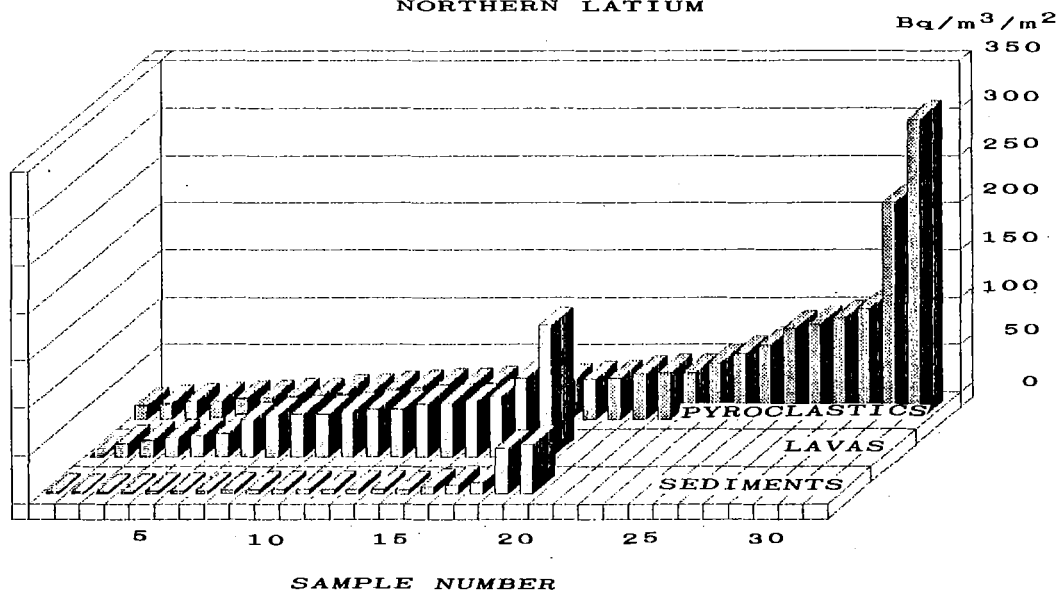


Figure 3. Radon emissions from the more important lithologies outcropping in Northern Latium. The identities corresponding to sample numbers available from the author. Radon units are given in  $Bq/m^3/m^2$ , that is to say the radon activity within the cubic metre of air overlying the square metre of soil or rock being analysed.

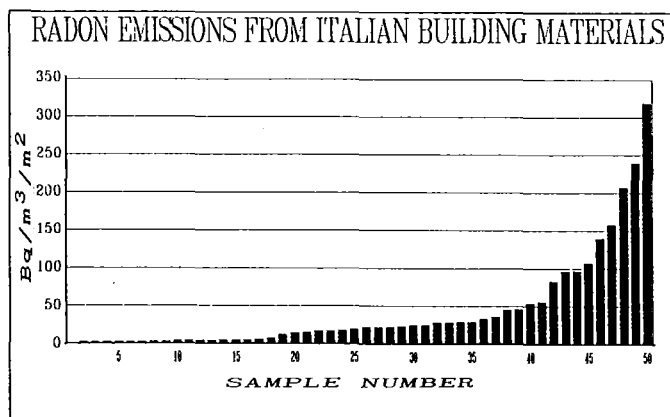


Figure 4. Radon emissions from fifty different building materials on sale in Northern Latium. Identities and units as per figure 2.

concentrations of radon in sealed volumes of air overlying these samples are represented graphically in figures 3 and 4, and the effects of the different thicknesses shown in Figure 5.

We combined the data of the radon emissions from the different lithologies with that from well over 5 000 direct measurements in the field to prepare ground radon emission maps of central Italy at a 1 : 100 000 scale and at 1 : 50 000 scale for selected areas; figure 7 illustrates the situation over part of the North Latium region, in the province of Viterbo.

## 4. RESULTS

### 4.1. Indoor Measurements

We examine this situation first, even though it represents the compounded result of several other factors which will be discussed subsequently, since it is the one which bears directly on the health of the population. The results from over 5 000 indoor measurements in dwellings are condensed in Table 1. The data are classified into two basic groups :

A - those from buildings sited on land with appreciable radon emissions from the subsoil. Here "appreciable" ranges from 30 to 1 000 Becquerels per cubic metre of air generated from every square metre of soil exposed. As noted previously, we expect that up to 25 % of the Italian territory will fall within these limits.

Table 1. Radon concentrations measured in Italian houses during the autumns/winters of 1988-1989 and 1989-1990.

RADON EMISSION FROM THE SUBSOIL	AGE OF BUILDING	USE OF RN-EMITTING MATERIALS	FLOOR	INTERNAL RADON Bq/m <sup>3</sup>	
				AV.	(Max -Min)
CONSIDERABLE	NEW	YES	2	179	(238 - 136)
			1	217	(260 - 165)
			G	220	(254 - 188)
			C	271	(447 - 132)
		NO	2	54	(142 - 46)
			1	72	(178 - 87)
			G	141	(287 - 79)
			C	256	(377 - 141)
	OLD	YES	2	117	(217 - 126)
			1	148	(248 - 67)
			G	258	(354 - 92)
			C	698	(1125 - 400)
		NO	2	nm	
			1	nm	
			G	nm	
			C	174	(307 - 91)
WEAK	NEW	YES	2	105	(176 - 59)
			1	127	(247 - 91)
			G	172	(780 - 61)
			C	307	(542 - 134)
		NO	2	33	(75 - 9)
			1	44	(71 - 14)
			G	42	(107 - 14)
			C	58	(149 - 7)
	OLD	YES	2	129	(212 - 67)
			1	128	(174 - 83)
			G	81	(100 - 46)
			C	107	(278 - 49)
		NO	2	15	(18 - 13)
			1	46	(70 - 22)
			G	19	(62 - 8)
			C	39	(143 - 8)

nm = no measurement available.

B - that from buildings sited on radon-free land (less than 30 Bq/m<sup>3</sup>), a situation representing some 75 % of Italy, including small fractions of Latium.

The two groups have been subdivided further according to :

- the age of the building,
- the use or not of radon emitting building materials,
- the elevation (floor).

Our overall average for all dwellings measured on all floors is of 95 Bq/m<sup>3</sup>. However, we do not consider this value as truly representative of the Italian situation because, in addition to the random measurements of statistical significance, in many cases measurements were purposely made to illustrate specially selected anomalous situations of extremes in radon concentrations.

What is quite significant is the average indoor value of 295 Bq/m<sup>3</sup> obtained in buildings sited on radon-emitting land, a situation not difficult to find over 9 % of the Italian territory. Examples include Viterbo, Vetralla and Montefiascone (see Figure 7). Maximum values exceeded 1 000 Bq in houses of the town of Vetralla, where the average value is well over 450 Bq/m<sup>3</sup>. The high concentrations on the lower levels decrease on the upper floors only in those buildings built of non-radiogenic materials (generally bricks). Unfortunately, in these volcanic areas, the use of brick is kept to a minimum since natural building materials are often readily and cheaply available close to the building sites. Even the most modern villas and apartment buildings use radon emitting tuffs and pozzolanic cements often concealed behind thin brick veneers.

Average radon concentrations for dwellings sited over radon-free land, such as Tarquinia and Monteromano, drop to 84 Bq/m<sup>3</sup> (max : 780; min : 7 Bq/m<sup>3</sup>). The level is kept high by the common use of lavas, tuffs and pozzolans in the construction. In such cases, even on the upper floors the radon level does not manage to drop below that emitted by the walls.

For example, in the town of Monte Romano (Vt), sited on a calcareous/arenaceous

hill with very low radon emanations ( $\leq 10$  Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>), most of the buildings, old and new alike, are constructed out of tuff quarried a short distance away. These tuffs emit approximately 50 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>. The average value measured indoors is around 68 Bq/m<sup>3</sup>, with a minimum of 11 in a modern concrete and brick apartment building, and a maximum of 174 on the second floor of a very old house built out of tuff of unknown origin.

In Tarquinia, on the other hand, there is no local tuff available, so that tuff blocks are brought in from several different localities, with varying radon emission characteristics : hence the greater spread in values. Fortunately the average is kept low by the widespread use, especially in older and historic buildings, of the local building stone, called "macco", a non-radioactive calcarenite.

Our average drops to 38 Bq/m<sup>3</sup> if we consider only those buildings sited on radon-free soils and built out of bricks, calcareous blocks and reinforced concretes free from granitic gravels, pozzolans and other such radiogenic materials. Fortunately, this type of construction should represent almost 80 % of the cases in the rest of Italy.

#### 4.2. Radon Emissions from different Rock Types

Figure 3 shows the radon emissions from the different rock types outcropping in the Viterbo province of Northern Latium. These include :

- the sedimentary sequence from Cretaceous/Eocene calcarenites to Pliocene sands, clays and local limestones, and Pleistocene to Holocene sands, limestones and travertines; the younger rocks have frequent intercalations of Pleistocene volcanic detritus.
- the complex series of Pleistocene volcanics, each magma type represented by both crystalline and pyroclastic equivalents.

In Figure 3 a simple distinction is made between the two volcanic lithologies, and is compared to 20 examples from the sedimentary sequence. Amongst the latter, only the more recent deposits with their variable concentrations of volcanic detritus give any significant radon emissivity. In fact, the higher values (48 - 54 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>) come from poorly consolidated Holocene (Thyrrhenian) sands

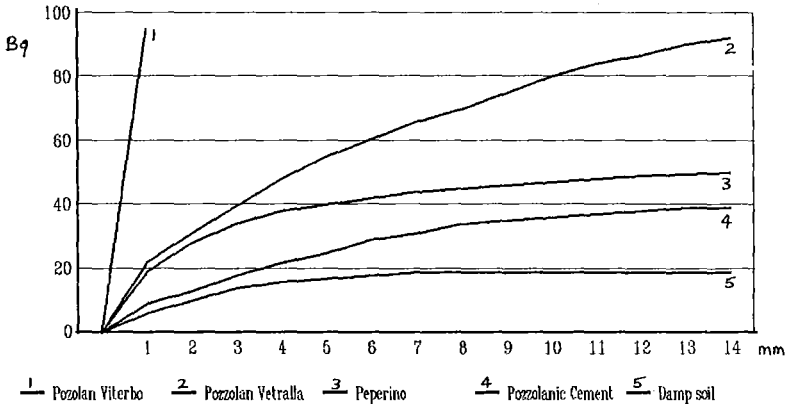


Figure 5. Variation in radon emanation as a function of thickness of the emitting material.

RADON DISTRIBUTION IN LATIUM TOWNS

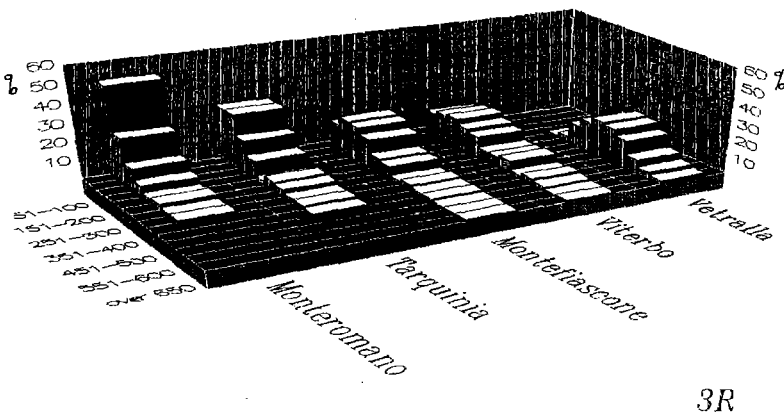


Figure 6. Histogramms of radon concentrations measured indoors of the emitting material.

EMISSIONE RADON DAL SOTTOSUOLO DEL VITERBESE



Figure 7. 3D ground radon emission map of a area of 750 km<sup>2</sup>, comprising Viterbo, Montefiascone and Vetralla, originally produced at a 1 : 50000 scale. Radon units as per figure 3.

outcropping along a strip parallel to the coastline and the "Aurelia" national highway. Other sands, clays and calcarenites give from 2 to 5 Bq, with the occasional 8 - 10

Bq from Cenomanian (Cretaceous/Oligocene) sandstones.

The lavas, which include a vast assortment of magma-types (tephrytes,



phonolites, leucitites, basanites, latites, rhyolites and trachytes), generally emit radon in the 40 - 60 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> range, with the occasional high (e.g., a phonolitic tephryte with 140 Bq) and low value (e.g., 14 Bq from a massive, columnar jointed trachytic latite).

The pyroclastics offer a complete range in emissivity from 20 to 320 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>. The important aspects of this range are the variation found within apparently similar units : for examples two samples of ignimbrite taken from the same depositional horizon some distance apart can give values of 50 and 230 Bq, just as similar tuffs can range from 20 to 50 Bq. The most disturbing variation is that exhibited by pozzolans extracted from different active quarries : 19 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> from Valentano (near Viterbo) and 320 Bq from just outside Viterbo itself. Both pozzolans are currently employed in the local building trade.

#### 4.3. Radon from Building Materials

As shown above, the enormous variations encountered amongst natural building materials of apparently similar appearance and origin make it very difficult to control the suitability of such materials for domestic use. The 19 Bq pozzolan, quite harmless in itself, could well be substituted unwhittingly with the 320 Bq equivalent by either the contractor or the whims of geological diversity.

Figure 4 gives the radon emission from building materials on sale today in Northern Latium. Bricks, tiles, travertines and marbles make up the lower third of the diagram with radon values below 10 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>; the intermediate range includes lava and ignimbritic blocks as well as some tuff blocks, and pozzolanic cements and concrete blocks manufactured locally. The upper range is formed by various tuff blocks and pozzolans.

Considering that the effective concentration of radon in a room whose walls are constructed out of these materials is between two and three times the emission level of the material itself, then a high proportion of the materials tested are obviously not suitable for use in dwellings and civic constructions.

#### 4.4. Ground Radon

Figure 7 is an example of a detailed

ground radon map of an area of 750 km<sup>2</sup> of Northern Latium which, in Figure 1, had been foreseen as having potentially dangerous radon emanations.

The several radon anomalies found represent the sum of the combined effects of the underlying lithology, the topography, the soil thickness and soil types, the local tectonic and geothermal activity, and the hydrology of the area.

Notable features exhibited by the map include the rapid variations from place to place typical of underground radon emissions in volcanic zones (from 20 to over 200 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>, over short distances), and the extreme values which can be encountered over certain areas (just over 300 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>, increasing some kilometers to the South, where they reach over 1.000 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> locally). The provincial capital city, Viterbo, is seen to straddle one of the larger anomalies (see Figure 8), such that part of the city lies over weakly emitting group (20 Bq), whereas suburbs to the South and West are built over 200 - 300 Bq/m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup> anomalies (these levels were clearly reflected in the indoors measurements of houses we made in Viterbo).

#### 4.5. Waterborne Radon

Italy abounds in mineral waters, 270 different types of which are bottled and sold nationally, and a few of the more famous ones exported (S. Pellegrino, for example). Some enhance their "desirability" by advertising they are "mildly radioactive".

All the bottled mineral waters we have measured, even the "mildly radioactive ones", have "in situ" radon levels ranging from 10 000 to 125 000 Bq/m<sup>3</sup>, levels which are well within the limits of acceptability according to recent estimates (Lemire, 1987). The "environmental" radon, which has decayed completely by the time one can obtain a bottle of mineral water, is another matter, but there are preliminary indications that some spring locations have very high levels.

We can observe in Table 2 that some public fountains in Latium have very high "environmental" radon levels, with concentrations well beyond acceptable values (up to 6 million Becquerels per cubic metre). The "in situ" radon of around 10.000 - 30.000 Bq/m<sup>3</sup>,

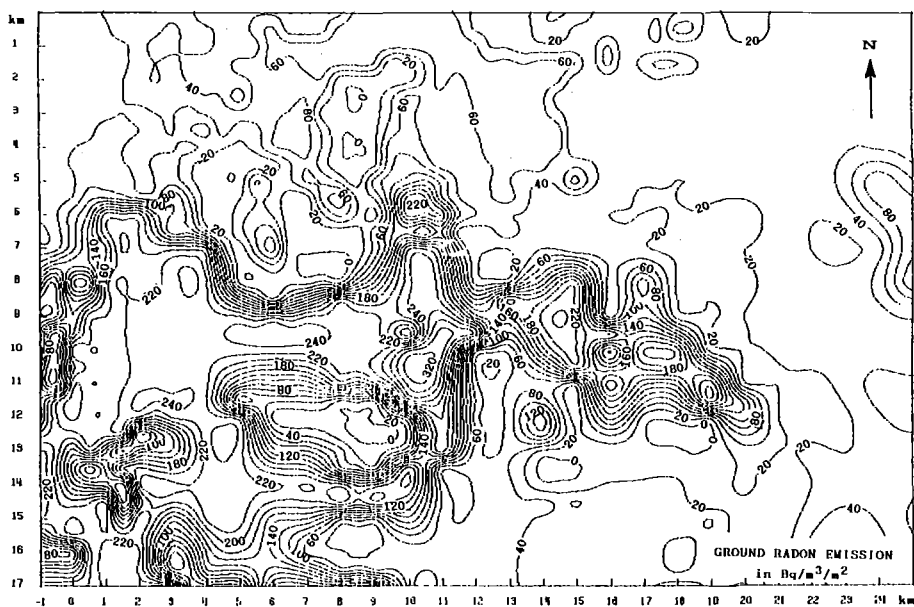


Figure 8. 3D. closeup of the ground radon emission of the area around Viterbo (provincial capital of Northern Latium), originally produced at a : 1 : 25000 scale. Radon units as per figure 2.

Table 2. Radon concentrations in waters from Northern Latium

SOURCE	RADON, Bq/m <sup>3</sup> x 1,000	
	ENVIRONMENTAL	IN SITU
Bottled Mineral Waters	(1,700)*	9 - 124
Thermal Springs	34 - 120	5 - 60
Artesian Wells	1 300 - 2 800	13 - 60
Public Fountains	187 - 6 000	8 - 133
Viterbo	1 000	133
Vetralla	6 400	14
Monteromano	664	34
Montefiascone	187	
Valentano	274	
Marta	514	20
Public Canino	931	127
Bolsena	2 600	23
Tarquinoa	219	33
Tuscania	2 000	17
Watering Troughs	1 000 - 5 000	17 - 90

\* = single measurement

i.e. quite harmless.

Similar situations are encountered in artesian wells where very high "environmental" radon levels (1.3. to 2.8 million Becquerels) give way, after radioactive decay, to 13 000 to 60 000 Bq/m<sup>3</sup> "in situ" radon. We have measured similar high and subsequent low values in cold spring waters, some of which are used for drinking, others for filling livestock watering troughs. Surprisingly, the "environmental" radon of levels warm to hot thermal springs in the same areas remain low (34 000 to 120 000 Bq/m<sup>3</sup>).

## 5. CONCLUSIONS

We conclude that the problem of natural radon pollution in Italy is a serious reality, and that it affects between 10 and 25 % of the national territory. Where it occurs, it does so at such levels as to endanger the health of the inhabitants of some of the most important and densely populated centres.

The hazards described in these areas are primarily geological in origin, with

secondary complications due to the local building practices. As is typical of geological phenomena, the intensity of the effect is not uniform, but is subject to strong temporal and spacial variations. The health of the afflicted population can be safeguarded only through local, detailed investigations, managed under strict geological control.

## 6. REFERENCES

- BUTLER, G.C.** Radioactivity in the Canadian Environment. National Research Council of Canada Report 18134, Ottawa (1980).  
**CLARKE, R.H. and SOUTHWOOD, T.E.R.** Nature, V. 338, 197-198 (1989).  
**GRASTY, R.L.** Radiation Sources. Geos, V.1983/2, 1-5, (1983).  
**LEMIRE, A.E.** Radon in Ground Waters, A.W.W.A. Symp., 97-110 (1987).  
**NERO, A.V.Jr.** The control of internal pollution in buildings, Scientific American, V. 258, 42-48 (1988).  
**N.C.R.P.** Report 93, Washington, D.C. (1987)

**LA POLLUTION DOMESTIQUE PAR LE RADON  
ETUDES DE CAS : REGION DE MONS, REGION DE MONCEAU-EN-ARDENNE  
(BELGIQUE).**

**P. DOREMUS\*, V. KOTZMANN-ROUTIER\*, Y. QUINIF\*, J.-M. CHARLET\*,  
J.-M. FLEMAL\*\*.**

\* Faculté Polytechnique de Mons, Service G.E.P., rue de Houdain, 9, 7000 MONS.

\*\* Institut d'Hygiène et d'Epidémiologie, Section Radioactivité, Rue J. Wytzman,  
1050 BRUXELLES.

**RESUME**

*Le traitement du problème de la pollution radon dans l'habitat passe par une bonne connaissance de la géologie, de la radiométrie, du potentiel radon d'une région.*

*A partir de deux études de cas, les auteurs proposent un guide pour la mise en évidence de zones à risques radon. Le premier cas est pris dans un bassin sédimentaire crétacé : le Bassin de Mons; le second dans l'Ardenne belge : dans la zone anticlinale de l'Ardenne où affleurent les couches fracturées du Paléozoïque. Finalement, un schéma de travail est proposé.*

**ABSTRACT**

*The approach to the issue of indoor radon concentration need good knowledge of geology, radiometry, radon potential of the studying area.*

*With two examples it's purpose a guide from radon risk zone determination.*

*First example is a cretaceous sedimentary basin : the "Bassin de Mons", a second in the belgian Ardenne in the "zone anticlinale de l'Ardenne" area of outcrop of Paleozoic formations.*

*In finest, one typical schematic work plan it's purpose.*

**INTRODUCTION**

L'ensemble de la communauté scientifique qui mène des travaux sur le comportement du radon dans la croûte terrestre reconnaît que la concentration en radon de l'atmosphère de certaines habitations est inquiétante et peut être à la base de certains cancers du poumon (Clarcke R.H. et Southwood, 1989; Hubert-Habart M., 1989; Nero A., 1988; 1989). De plus en plus, il est admis que, sauf exception, la majeure partie de ce gaz provient du sous-sol et non pas des matériaux de construction. Ceci donne de plus en plus de poids aux études géologiques et radiogéologiques menées et à mener dans le cadre de la détermination et de la prévention du risque radon. Nous allons, à partir de deux études de cas voir comment les connaissances géologiques et radiométriques régionales permettent d'aboutir à la détermination de zones à risques. Nous avons choisi de travailler dans deux types d'environnement géologique différents. Le point commun est la présence d'uranium dans le sous-sol constituant ainsi une source de radon bien définie dans l'espace. En conclusion à l'exposé des résultats obtenus

nous tenterons de proposer un guide de détermination des différentes zones à risque.

**ETUDE LA LA REGION DE MONS-  
CIPLY**

**1°) Situation géologique et radiogéologique.**

CiPLY est une agglomération située dans le Bassin de Mons (fig.1). Dans cette région affleurent des craies phosphatées datées du Maestrichtien. Ces formations sont bien connues des géologues (Marlière, 1976; Charlet et al, 1982; Charlet, 1988) du fait de leurs intérêts économique (phosphates), stratigraphique et paléontologique.

Des études récentes (Charlet, 1988) ont visé à estimer les teneurs en phosphates que recèle encore le bassin de Mons. Ces craies phosphatées sont riches en uranium (30 à 50 ppm d'Um), cette caractéristique a été un des outils qui a servi à l'estimation en ressources phosphatières par diagraphie gamma en sondage. L'avantage de ces travaux a été, entre autre, de donner aux géologues une bonne connaissance radiométrique de cette formation.

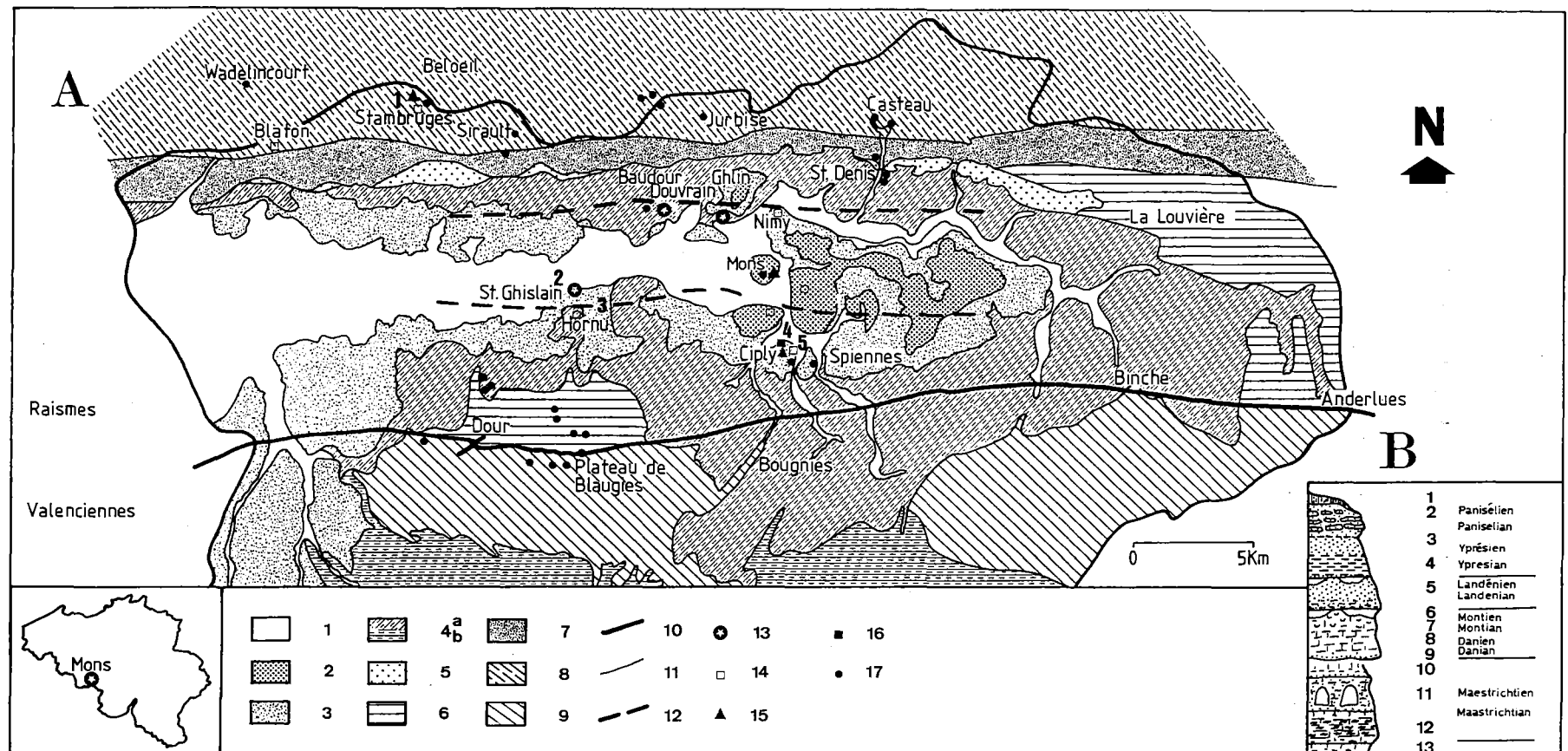


Figure 1. Cadre géologique régional :

A. Situation géologique des points de mesure de l'émanation radon dans le Bassin de Mons et sur ses bordures.

1 : Plaine alluviale de la Haine; 2 : Yprésien; 3 : Landénien; 4 : Turonien; dièves et craies (a) rabots (b); 5 : Wealdien; 6 : Wesphalien; 7 : Namurien; 8 : Carbonifère; 9 : Dévonien; 10 : faille; 11 : limite du Bassin de la Haine; 12 : délimitation approximative du réservoir géothermique de Saint-Ghislain; 13 : arrêt de l'excursion; 14 : site de mesure en sol (boukoals); 15 : site de mesure dans l'eau (détecteur organique); 16 : carrières souterraines de la malogne; 17 : sources étudiées.

B. Lithostratigraphie du Cénozoïque.

1 : limons quaternaires; 2 : sables et quartzites; 3 : sables fins; 4 : argiles téglines; 5 : sables glaunifères; 6 : couches lacustres; 7 : calcaire de Mons; 8 : tuffeau de Ciplu; 9 : discordance; 10 : tuffeau de Saint-Symphorien; 11 : craie phosphatée de Ciplu; 12 : craie de Spiennes; 13 : craie de Nouvelles; 14 : craie d'Obourg; 15 : craie de Trivières; 16 : craie de Saint-Vaast; 17 : craie de Maisières; 18 : rabots et meulrières; 19 : dièves; 20 : conglomérats; 21 : sables et gaizes; 22 : couches fluviolacustres; 23 : socle devono-carbonifère.

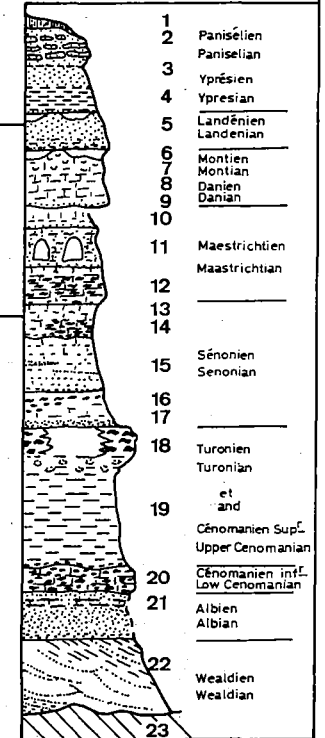
Figure 1. Regional geological frame :

A. Geological situation of radon emanation measurements points in the Mons Basin and on its borders.

1 : the Haine alluvial; 2 : Ypresian; 3 : Landenian; 4 : Turanian; "dièves" and chalks (a) "rabots" (b); 5 : Wealdian; 7 : Namurian; 8 : Carboniferous; 9 : Devonian; 10 : fault; 11 : the Haine Basin limit; 12 : approximative demarcation of the Saint-Ghislain geothermic reservoir; 13 : field session stop; 14 : ground measurement site (boukoals); 15 : water measurements site (organic detector); 16 : "la Malogne" underground quarries; 17 : studied springs.

B. Cenomesozic lithostratigraphy.

1 : quaternary loams; 2 : sands and quartzites; 3 : fine-grained sand; 4 : tile-clay; 5 : green sand; 6 : lake deposits; 7 : Mons limestone; 8 : Ciplu sandy chalk; 15 : Trivières chalk; 16 : Saint-Vaast chalk; 17 : Maisières chalk; 18 : "rabots" and silicean limestone; 19 : "dièves"; 20 : conglomerates; 21 : sands and gaize; 22 : fluviolacustrine deposits; 23 : devono-carboniferous bed rock.



Ainsi, nous savons grâce à son extension géographique que nous sommes en présence d'une source de radon d'un volume non négligeable située immédiatement sous une zone à forte urbanisation. Dans quelques secteurs nous savons qu'il existe des écrans naturels : l'argile yprésienne par exemple (Charlet et al, 1990), par contre aux endroits où les craies uranifères sont à l'affleurement ou faiblement couvertes (limons quaternaires, sables landéniens) tout porte à croire que là le radon migre facilement de sa source vers la surface du sol.

## 2°) Etat des connaissances sur le radon dans le sol de la zone concernée.

Nous possédons un certain nombre d'indications grâce notamment à nos études sur la sismicité du Bassin de Mons (Charlet et al 1990). Celles-ci nous permettent (fig.2) de classer la zone de Cibly où affleurent les craies phosphatées parmi les plus riches en radon de la région de Mons.

Au-delà de cette constatation grâce à la présence des carrières souterraines de la Malogne, situées à Cibly, et où furent exploitées les craies phosphatées, nous avons pu tester l'intensité du dégagement de radon à partir de la source même (fig.3 et 4). Dans la Malogne, il existe un facteur de dilution très important entre la roche et l'air situé immédiatement au droit du point de mesure dans la roche. Le facteur de dilution entre la roche et l'air est de l'ordre de 10, mais la quantité de radon présente dans l'air est très importante (de l'ordre de  $3.000 \text{ Bq/m}^3$ , tableau I,II). Outre le fait d'apprécier la quantité de radon dans les galeries souterraines, l'intérêt de cette mesure est qu'elle permet d'apprécier la quantité de radon susceptible de pénétrer dans une maison dont les fondations reposent sur la craie phosphatée, le poudingue de la Malogne ou le Tuffeau de Cibly (fig.4).

A partir de ces faits, on peut avancer que l'ensemble de la zone d'affleurement des craies phosphatées ou des formations perméables.

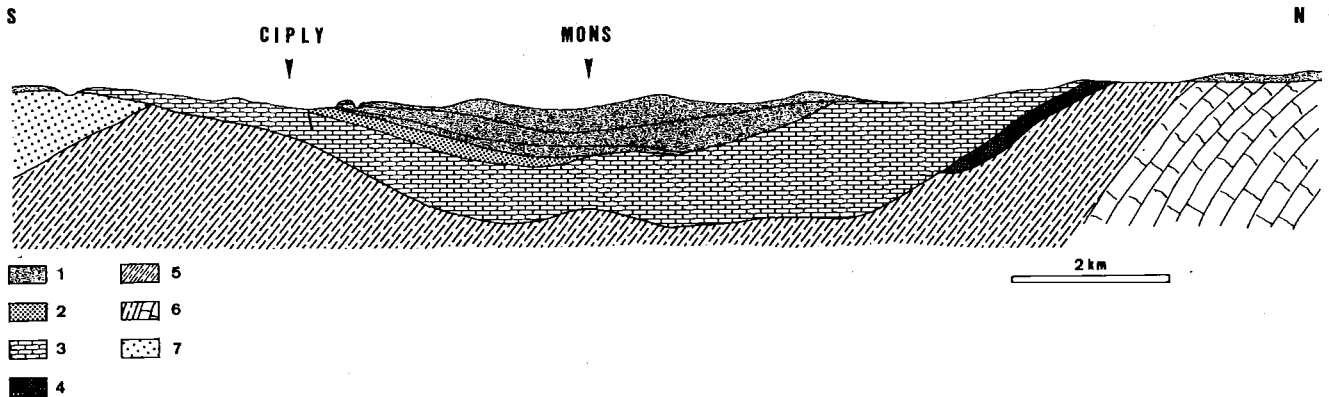


Figure 2. Coupe géologique simplifiée du Bassin de Mons.

1. Couverture tertiaire indifférenciée (sables et argiles).
2. Craies phosphatées maastrichtiennes enrichies en uranium : source radon.
3. Craie blanche du Crétacé du Bassin de Mons (non phosphatée).
4. Wealdien
5. Schistes carbonifères
6. Calcaires carbonifères
7. Dévonien

Figure 2. Schematic geological cross section of the "Bassin de Mons".

1. Tertiary formation (Sand and clay)
2. Maastrichtians phosphatic chalk in uranium : radon source.
3. Cretaceous white chalk.
4. Wealdian.
5. Carboniferous shale.
6. Carboniferous limestone.
7. Devonian.

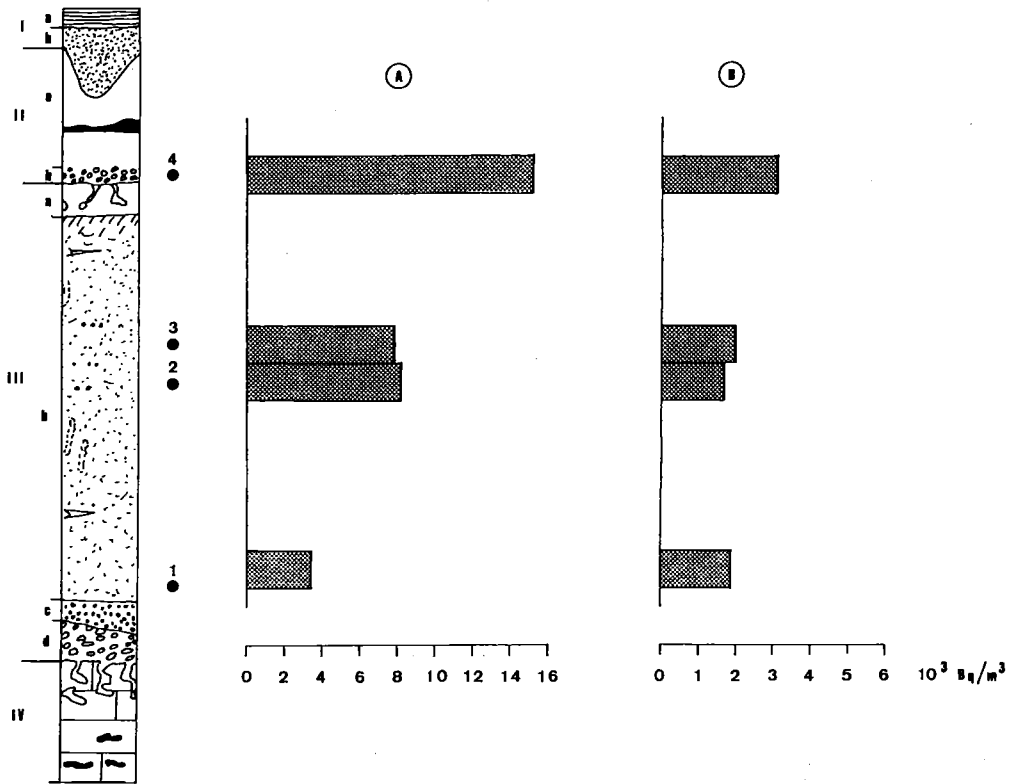


Figure 3. Situation stratigraphique des différents points de mesures du radon dans les carrières souterraines de la Malogne. Comparaison des taux d'émanation dans la roche et dans l'atmosphère des galeries immédiatement au droit de ces points.

Figure 3. Localization of the radon measurements points in the underground quarries of "la Malogne". Comparaison between the radon rock emanation and the metamorphic radon in the underground galleries.

qui la couvrent (tuffeaux, sables landéniens) constitue une zone de risques potentiels de pollution domestique par le radon.

**3°) Résultats d'une première campagne de mesure du radon dans les caves de quelques habitations de Cibly.**

Un premier test de la qualité de l'air dans 21 habitations de Cibly a été réalisé. Les résultats sont portés en fig.5 et tableau III. Il en ressort que 20% des mesures révèlent des concentrations supérieures à 200 Bq/m<sup>3</sup>, 5% sont au-delà de 480 Bq/m<sup>3</sup>. Ceci confirme le risque potentiel de pollution radon de l'habitat à Cibly. L'analyse cas par cas indique que le site n°16 mesuré une première fois à 2.130 Bq/m<sup>3</sup> et la seconde à 2.123 Bq/m<sup>3</sup> est une maison, sans cave, où le détecteur avait été placé dans une pièce d'habitation. Cette construction est implantée juste au-dessus des craies

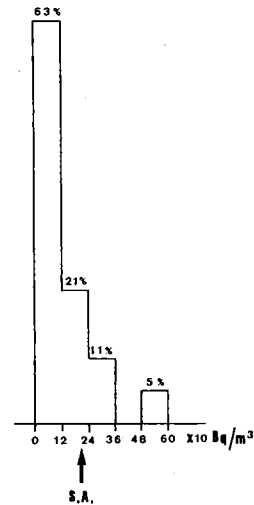


Figure 5. Test sur 21 maisons de Cibly. Histogramme de distribution des mesures. Moyenne 673 Bq/m<sup>3</sup>, écart-type 617 Bq/m<sup>3</sup> S.A. (Seuil d'anomalie) 200 Bq/m<sup>3</sup>.

Figure 5. Test in 21 houses of Cibly. Distribution of measurements, mean : 673 Bq/m<sup>3</sup>, mean deviation : 617 Bq/m<sup>3</sup>, S.A. (anomalous threshold) : 200 Bq/m<sup>3</sup>.

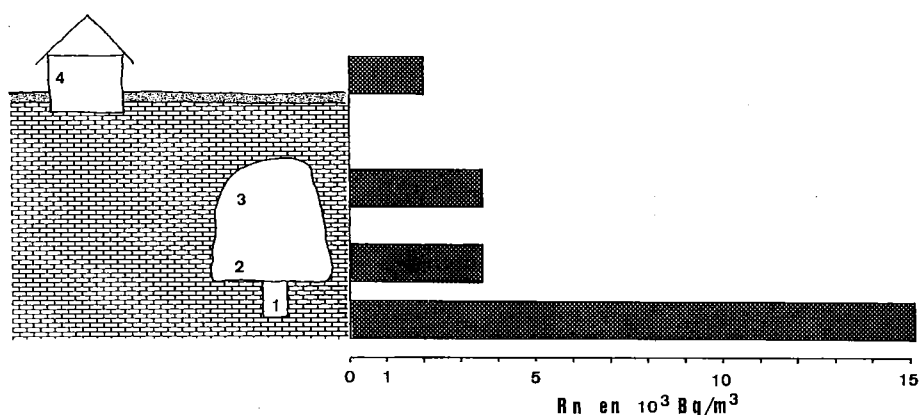


Figure 4. Schéma interprétatif du passage du radon du substrat de craie phosphatée à l'atmosphère d'une maison. 1 : détecteur dans le substrat rocheux, 2 et 3 détecteurs dans l'ambiance d'une galerie de l'exploitation, 4 détecteur dans une maison implantée sur la craie phosphatée.

Figure 4. Schematic interpretation of the radon migration from phosphatic chalk to the indoor environment. 1 : Charcoal detector in rock, 2 and 3. Charcoal detector in the underground galleries, 4 : Charcoal detector in a house.

Tableau I

Le radon dans la Malogne en fonction de l'environnement rocheux.

Table I

Radon in "la Malogne" in relation with the rock environment.

N° site	Roche (Bq/m <sup>3</sup> )	Surface du sol (Bq/m <sup>3</sup> )	Nature de l'encaissant
1	3421	1822	Base de la craie phosphatée
2	8171	1728	Craie phosphatée
3	7808	1901	Craie phosphatée
4	15166	3061	Poudingue de la Malogne

phosphatées. On peut proposer comme interprétation de cette concentration celle de la figure 4.

Dans le cas où l'enquête serait étendue on peut prévoir de rencontrer d'autres logements présentant des anomalies de ce type.

Dès maintenant, il est possible de classer Ciplly dans les zones à risques de pollution par le radon.

### III. Etude de la région de Monceau-en-Ardenne.

#### 1°) Situation géologique et radiogéologique.

Le territoire étudié couvre celui des

trois agglomérations rurales d'Oizy, Baillamont et Monceau en Ardenne soit au total un minimum de 300 habitations (fig. 6 et 7). Le point de départ de cette étude a été l'utilisation à des fins de radioprotection d'une banque de données constituée lors de la prospection en uranium de l'Ardenne (Charlet et al, 1983; Charlet et al, 1987). Un certain nombre des résultats et interprétations ont déjà été présentés par ailleurs (Doremus et al, 1990).

Géologiquement le territoire étudié est situé dans la zone d'ennoyage du Gédinnien inférieur de la zone anticlinale de l'Ardenne, immédiatement à l'Est du Massif Cambrien de Rocroi (fig.6); La géologie régionale est bien connue du fait des études du Professeur A.



Tableau II. Cibly : Résultats des mesures dans les habitations, Cibly : results on indoor measurements.

Mesures (Bq/m <sup>3</sup> )		
Maisons	Série 1	Série 2
1	403	365
2	33	61
3	32	58
4	26	26
5	67	326
6	21	25
7	112	27
8		39
9		532
10		66
11	41	139
12		128
13	63	66
14	160	211
15	55	93
16	2130	2123
17		112
18		49
19		137
20		44
21	70	135
x (1)	247	227
s (1)	575	453
x (2)	90	132
s (2)	106	133

(1) calculs faits en tenant compte de l'anomalie du point 16.

(2) calculs faits en excluant le point 16.

Tableau III. Le radon dans la Malogne, concentration en fonction de la situation géométrique du point de mesure. Radon in "Malogne" variation of the concentration, relation with geometrics parameters.

N° site	Radon dans l'air Bq/M <sup>3</sup>	Géométrie de la mesure
1	3613	Niveau du sol dans une galerie de 2 m de haut
2	3613	A 1 m du sol au-dessus du n°1
3	3426	Dans une galerie en cul de sac

Beugnies (1982) qui font que nous possédons une cartographie géologique assez précise de la zone. En outre, la prospection radiométrique autoportée du Paléozoïque de l'Ardenne menée par notre équipe fait que nous disposons en plus d'une bonne connaissance de la répartition de l'uranium, source de radon dans la zone étudiée (Charlet et al, 1983).

Une étude plus poussée de quelques anomalies radiométriques (Doremus, 1985; Charlet et al, 1987) a permis la mise en évidence de quelques indices miniers à Autunite-Torbernite (phosphate d'U, Cu et Ca) dans des zones fracturées de quartzophyllades de Braux, terme de passage du Gédinnien inférieur au Gédinnien supérieur.

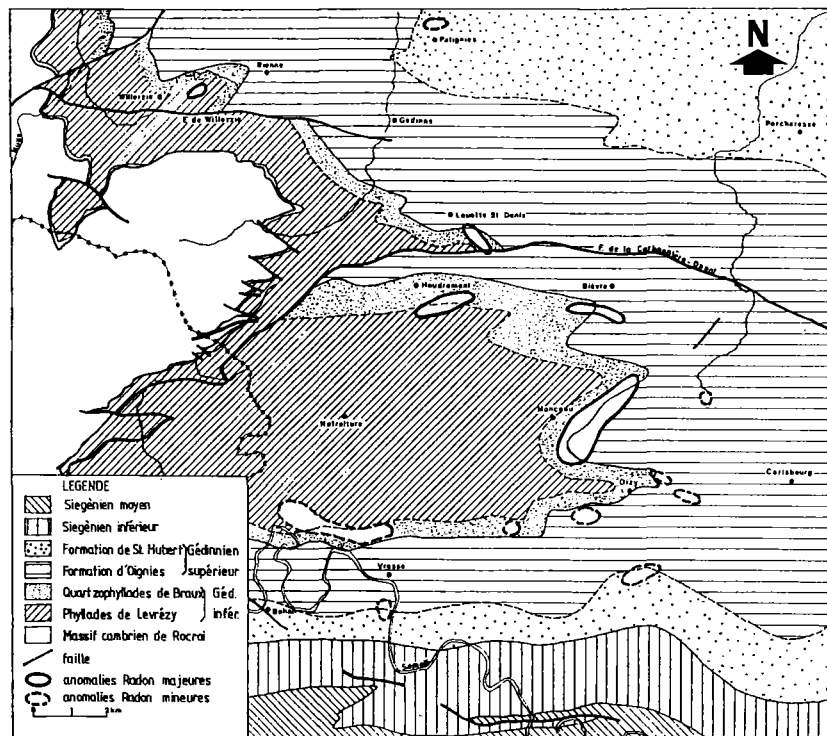


Figure 6. Carte de synthèse de la prospection radon des eaux naturelles de l'aire anticlinale de l'Ardenne. Noter la répartition des principales anomalies le long de la zone d'affleurement des quartzophyllades de Braux.

Figure 6. Synthetic map of radon prospection of the natural ground water in the "zone anticlinale de l'Ardenne".

Note the anomalous range at the quartzophyllite of Braux outcrop area.

## 2°) Etat des connaissances sur le radon dans l'eau de la zone concernée.

### A. Introduction.

La prospection est passée par le biais d'une étude de la concentration en radon dans les eaux de source. La méthode utilisée est basée sur la capacité qu'ont les liquides organiques à concentrer le radon, un mode de prospection a été développé par notre laboratoire (Quinif et al, 1984; Doremus, 1985), il est actuellement utilisé dans le Hainaut occidental (Kotzmann-Routier 1990). L'ensemble des mesures conduit à la carte de synthèse de la figure 6. Son

examen permet de constater que les principales anomalies sont calées sur les quartzophyllades de Braux qui se sont postérieurement révélées être, localement, des pièges tectono-sédimentaires à uranium.

Le nombre assez important d'anomalies, nos connaissances géologiques sur les conditions d'affleurement de la roche en place : faible couverture récente, assez forte porosité des roches grésoschisteuses fracturées et soumises au Cénozoïque à une forte altération chimique dont les traces sont conservées par endroit, nous ont conduit à considérer l'impact de ces concentrations en radon sur l'environnement.

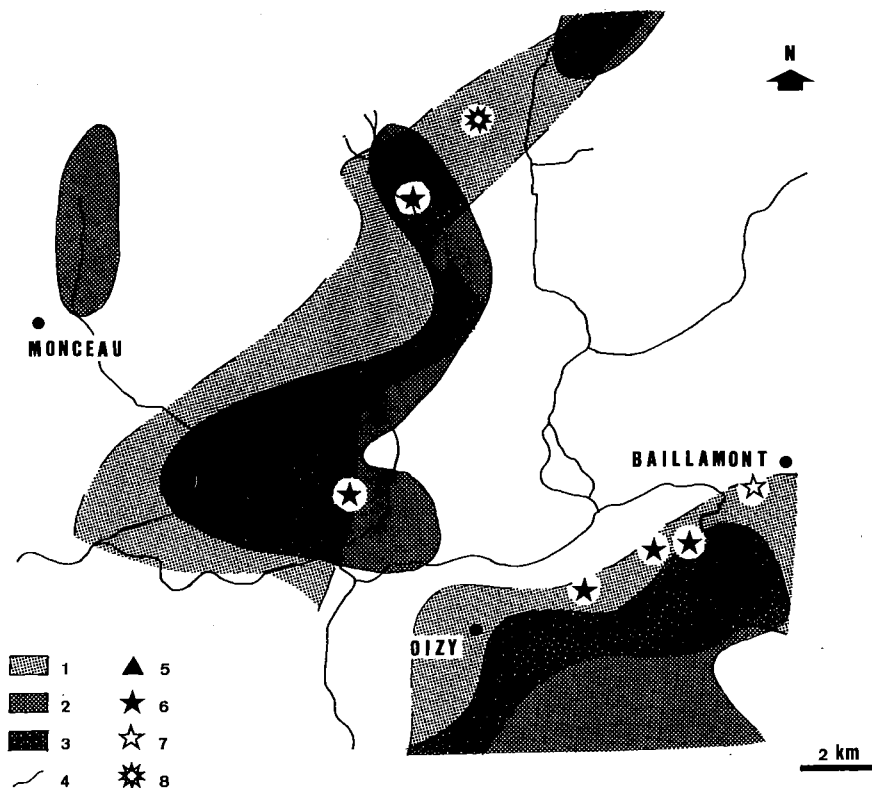


Figure 7. La zone de Monceau : carte détaillée et situation des principales anomalies radon et uranium.

1. Zone d'extension des eaux dosées à 4.000 pCi/l de radon 222 et plus.
2. Zone d'extension des points dont le taux d'anomalie est supérieur ou égal à 60%.
3. Intersection des deux zones précédentes.
4. Réseau hydrographique.
5. Source anormale en radon.
6. Anomalie en uranium ; limonite uranifère colmatant des fractures.
7. Indice minier à torbernite associée à des limonites dans des fractures.
8. Indice minier à torbernite-autunite dans une gangue d'altération argilo sableuse.

Figure 7. Monceau area : detailed map and localization of major uranium and radon anomalies.

1. Spring waters dosing at 4000 pCi/l, and more, of radon 222.
2. Anomalous level at 60% and more.
3. Intersection of area 1 and 2.
4. Hydrography.
5. Radon anomalous spring.
6. Uranium anomaly : uraniferous limonite in fractures.
7. Mining seepage with torbernite and limonite association in fractures.
8. Mining seepage with torbernite autunite in argilloarenaceous alterite.

#### B. Focalisation sur la zone de Monceau-en-Ardenne (fig.7).

Nous avons choisi cette zone parce que c'est là que nous avons relevé les plus fortes teneurs en radon dans l'eau, que nous avons mis en évidence des minéralisations macroscopiques à torbernite-autunite (fig.7).

De fait, la carte de synthèse simplifiée les contours d'une zone plus complexe (fig.7, fig.8). Celle-ci reportée sur carte permet de dis-

tinguer que les agglomérations d'Oizy, Baillamont et Monceau-en-Ardenne sont comprises dans des zones où une teneur en radon dans les eaux supérieures à 4.000 pCi/l ou alors dans celle où les sources présentent un taux d'anomalie de 60% (Doremus et al, 1990) ou plus. La figure 9A présente l'histogramme de distribution des valeurs rencontrées sur les sources du territoire de Monceau, Oizy et Baillamont, 18% d'entre elle ont été dosées au-delà de 3.000 pCi/l (92 mesures au total).

A titre d'éléments de comparaison, nous avons considéré les résultats que divers auteurs donnent (Longtin, 1988; Lowry et al, 1988; Dixon et al, 1988; Diffre, 1988). Cette comparaison est délicate du fait des méthodes d'analyses parfois assez différentes, il n'en reste pas moins que les informations convergent sur certains points. Notamment, aux U.S.A. sur 377 mesures seules 4,2 % d'entre elles sont au-delà de 3.000 pCi/l et 10,3 % au-dessus de 2.000 pCi/l. Ceci tend à conforter notre définition de la zone à risque à partir du dosage du radon dans l'eau. L'étude des chiffres présentés plus haut souligne le caractère anormal des teneurs en radon des eaux de source du territoire étudié.

### 3°) Résultat des mesures du radon dans les caves de quelques habitations de la région de Monceau-en-Ardenne (figure 8, figure 9B, tableau IV).

Pour dépasser le stade de la définition de zone à risque à partir de l'étude géologique et des mesures de radon dans les eaux, trois séries de mesures ont été faites dans des habitations. Celles-ci au nombre de 29 (11 à Monceau, 10 à Oizy, 8 à Baillamont) ont été choisies de façon aléatoire. Trois séries de mesures à trois niveaux différents ont été faites, nous les commentons dans ce qui suit.

#### a) Résultat de la première série de mesures.

11 habitations ont été testées cette fois là, en première approche. Les mesures ont été faites à l'aide d'un détecteur au charbon actif développé par le Service G.F.A de la Faculté Polytechnique de Mons dans le cadre de ses activités de recherche sur le comportement du radon.

Immédiatement nous avons eu confirmation de la réalité du risque radon sur le territoire étudié. Les chiffres sont éloquentes (tableau IV), la moitié des mesures étant au-dessus de 1.000 Bq/m<sup>3</sup>, le maximum étant à 7.768 Bq/m<sup>3</sup>. Un programme d'intercomparaison méthodologique étant en cours avec l'Institut d'Hygiène et d'Epidémiologie de Bruxelles, nous avons rapidement décidé de réaliser une seconde campagne de mesure dans ce cadre.

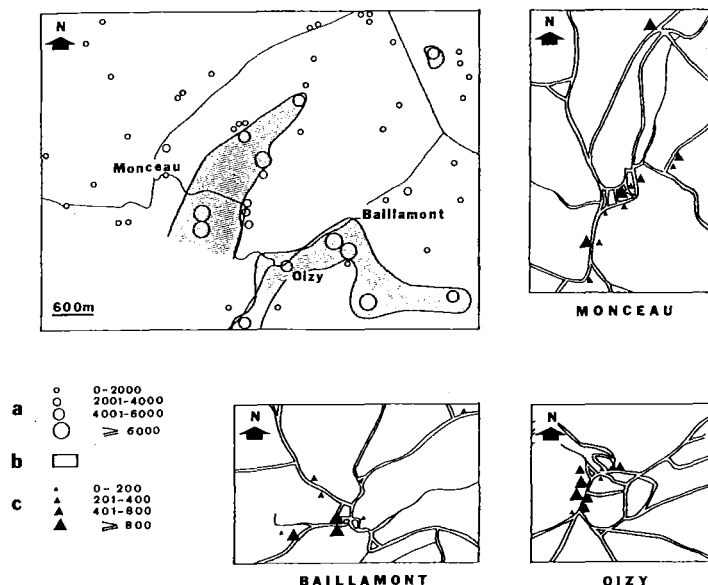


Figure 8. La zone de Monceau : localisation des surfaces où les eaux sont à plus de 4.000 pCi/l et des principaux points de mesures, situation des maisons étudiées.

a : le radon des eaux de source exprimé en pCi/l.

b : zones à 4.000 pCi/l ou plus.

c : le radon dans l'air des maisons en Bq/m<sup>3</sup>

Figure 8. Monceau area localization of radon water measurements and studied houses.

a) radon spring water in pCi/l.

b) area with 4000 pCi/l and more.

c) indoor radon in Bq/m<sup>3</sup>.

#### b) Résultats de la seconde série de mesures.

29 maisons ont été testées, les résultats sont présentés en figure 9B et au tableau IV. La confirmation du risque radon est apportée. En effet, 79% des mesures sont au-delà de 200 Bq/m<sup>3</sup>, norme maximale (maison à construire) recommandée par la CEE, 21% dépassent les 3.300 Bq/m<sup>3</sup>.

Une autre commune belge (Visé) a été étudiée de cette façon et nous apporte des éléments de comparaison (Hallez et Flegal, 1990.). Sur le territoire de cette dernière 20% des maisons testées se sont révélées être anormales, les maxima enregistrés n'excèdent pas les 9.000 Bq/m<sup>3</sup>. Ceci est déjà non négligeable, des contre mesures au niveau des habitations ont été prises visant à minimiser la concentration du radon (étanchéification des caves, meilleure ventilation...). Aussi les chiffres obtenus sur le territoire étudié ici (le

maximum est à  $16.000 \text{ Bq/m}^3$  : 80 fois la recommandation des CEE!) révélant un nombre important d'habitations à risques rend nécessaire une étude poussée du problème.

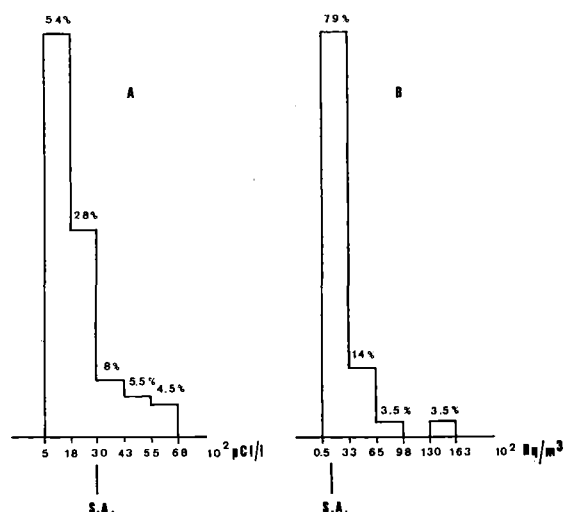


Figure 9. A. Histogramme de distribution de 90 mesures radon d'eau de source effectuées sur le territoire étudié. Moyenne 2.111 pCi/l, sigma 1.382 pCi/l, S.A. (seuil d'anomalie) 3.000 pCi/l.

B. Histogramme de distribution de 29 mesures radon dans des caves d'habitations situées sur le territoire étudié. Moyenne 2.789 Bq/m<sup>3</sup>, sigma 2.735 Bq/m<sup>3</sup>, S.A. (recommandation CEE, maison à construire) : 200 Bq/m<sup>3</sup>.

Figure 9. A. Distribution of 90 water radon measurements in Monceau area.

Mean 2111 pCi/l, mean deviation 1382 pCi/l, S.A. 3000 pCi/l.

B. Distribution of 29 indoor radon measurements in Monceau area.

Mean 2789 Bq/m<sup>3</sup>, mean deviation 2735 Bq/m<sup>3</sup>, S.A. (EEC recommendation) 200 Bq/m<sup>3</sup>.

c) Résultats de la troisième série de mesures.

Il s'agit en fait d'un test préliminaire à une campagne de mesures beaucoup plus importante. Seules 5 maisons parmi celles présentant les plus fortes concentrations ont été testées. Une mesure a été faite dans les pièces suivantes : cave, salon, chambre. D'une manière générale les fortes concentrations des caves sont confirmées. Les pièces d'habitation de 4 maisons sur 5 montrent des concentrations au moins égales à  $200 \text{ Bq/m}^3$  (maximum à  $1.900 \text{ Bq/m}^3$ ). Le test a été déterminant pour

décider les autorités communales à apporter son soutien logistique à une campagne de mesures portant sur l'ensemble des maisons des trois agglomérations concernées.

Signalons en outre que le site le plus critique a été mesuré avec un détecteur solide de traces (DST) LR115 Kodalpha dont les résultats pour 30 jours d'exposition sont :  $20.338 \text{ Bq/m}^3$  dans la cave et  $2.217 \text{ Bq/m}^3$  dans le salon.

d) Conclusion

Les résultats obtenus dans les habitations sur trois séries de mesures confirment la réalité de la zone à risque de pollution par le radon dans les habitations pour la région de Oizy, Monceau et Baillamont. La campagne de mesure systématique dont les résultats devraient être exploités en 1991 doit donc conduire à des recommandations à chacun des habitants en fonction du résultat qui sera obtenu.

La confirmation de la zone à risque de Monceau dépasse le niveau local puisqu'ainsi nous l'avons indiqué plus haut (fig.6) un certain nombre d'agglomération se trouve sur des zones où les sources ont été déterminées comme étant à teneurs anormales en radon. Une enquête plus vaste serait sans aucun doute très utile.

#### IV. Conclusion générale

L'objet de cet article était d'illustrer le rôle important de la géologie dans la détermination de zones à risques de pollution domestique par le radon et de tenter de proposer une démarche à suivre permettant d'aboutir à une cartographie du risque utile aux collectivités comme aux individus. Nous proposons donc la démarche résumée au tableau V. Nous pensons qu'elle peut avec un faible coût financier permettre de distinguer rapidement les zones où il sera utile de focaliser les efforts à fournir pour minimiser le problème radon. Le résultat de ce type de démarche serait également en fin d'étude de disposer d'une carte de zone de risques radon qui, à l'évidence, serait un outil intéressant pour les praticiens du bâtiment, les chercheurs en médecine (épidémiologie), les individus soucieux de bien connaître le lieu où ils vivent...

Tableau IV  
 Région de Monceau - résultats des mesures dans les habitations.  
 Monceau - Area results of indoor measurements.

Mesure 3 Bq/m <sup>3</sup>						
Localité	N°site	Mesure 1 Bq/m <sup>3</sup>	Mesure 2 Bq/m <sup>3</sup>	cave	salon	chambre
M O N C E A U	1		650			
	2	1039	1010	1100	450	470
	3		325			
	4		245			
	5	307	1230			
	6		250			
	7		550			
	8	7768	16290	15000	580	1300
	9	1050	6310	830	260	200
	10		320			
	11		620			
O I Z Y	12	287	530			
	13		670			
	14		780			
	15		115			
	16		8800			
	17	21	820			
	18		3690	1500	140	99
	19		45			
	20		130			
	21	283	670			
B A I L L A M O N T	22	120	130			
	23		555			
	24	4003	3530	12000	1900	640
	25	633	1220			
	26		470			
	27		115			
	28		160			
	29	1083	3790			

Tableau V  
Détermination et étude des zones de risques.

ETAPE	INTITULE	TRAVAUX A EFFECTUER	EXEMPLES BELGES
1	Investigations géologiques et estimation des teneurs régionales en uranium. DERTERMINATION DE ZONES D'INTERET	Bibliographie. Mesure de radioactivité sur le terrain (le cas échéant) Compilation de banques de données existantes.	Prospection autoportée de l'uranium du Paléozoïque belge. Géologie du Bassin de Mons.
2	Cartographie du radon dans l'eau, test de détermination de présence de radon dans le sol des zones d'intérêt.	Mesures du radon dans les eaux, des sources. Mesures de radon dans le sol.	Cartographie radon de la zone anticlinale de l'Ardenne. Radon dans le sol du Bassin de Mons.
3	CONFIRMATION DU RISQUE	Mesures radon-air dans l'habitat des zones de risques potentiels.	Cas de Cibly. Cas de Monceau-en-Ardenne.
4	EXTENSION DE L'ENQUETE. (en fonction des résultats de 3).	Mesure systématique des habitations des zones concernées.	Cas de Visé. Cas de Monceau-en-Ardenne.

Cette démarche se développe en 4 temps :

1. Détermination de zones d'intérêt.
2. Détermination de zones de risques potentiels.
3. Confirmation du risque.
4. Extension de l'enquête.

Le premier pas permet de cibler rapidement les régions où des concentrations importantes de radon liées à la nature du sous-sol peuvent se réaliser. Dans ces territoires se développe la seconde étape de la démarche : on y cherche des zones de risques potentiels par des méthodes rapides : dosages du radon dans l'eau, bilan des études géologiques détaillées qui peuvent exister, acquisition des données hydrogéologiques... Lorsqu'une telle zone est définie on peut passer à la confirmation du risque par des mesures en habitat : c'est la troisième étape. Si cette confirmation est effective une cartographie de l'habitat, une définition des zones construites et constructibles vis-à-vis du radon peut être proposée à la fin de l'étude (4ème étape).

## BIBLIOGRAPHIE

**A. BEUGNIES**, 1982. Structure de l'aire anticlinale de l'Ardenne à l'ouest du Méridien de Libramont. *Annales Soc. géol. du Nord* 1984, t.C II, 1982, p. 165, 173.

**J.-M. CHARLET**, 1988. Interprétation quantitative des diagraphies gamma naturel, application à la détermination des teneurs en P205 dans les craies phosphatées du Bassin de Mons. *Annales Soc. géol. du Nord*, t. CVIII, 1988, p. 177, 186.

**J.-M. CHARLET, C. DUPUIS, Ph. LAIR, Y. QUINIF**, 1982. Dosage de l'uranium dans les phosphates sédimentaires par spectrométrie gamma in situ. Essais préliminaires dans les craies phosphatées du Bassin de Mons (région de Cibly). *Annales Soc. Géol. du Nord*, 1982 t.CII, p. 93-101.

**J.-M. CHARLET, L. DEJONGHE, S.M. DE WITTE, B. DRUMEL, J. HENRY, A. HERBOSCH, J.P. LEFIN, H. MARTIN**, 1983. Reconnaissance survey for uranium in the Belgian Paleozoic in Service géologique de Belgique. *Professional paper 198/1 n° 196*. 189 pages.

**J.-M. CHARLET, P. DOREMUS, Y. QUINIF**, 1987. Concentration mechanisms of uranium in the mineralized fractures of the lower Devonian of the Belgian Ardennes. The case of the Oizy Area in uranium 3, 1987, pp 387-406.

**J.-M. CHARLET, P. DOREMUS, Y. QUINIF, A. LOSFELD, F.GARCIA**, 1990a. Réalisation et Exploitation d'une campagne de mesures des émanations radon dans le Bassin de Mons, essai d'application à la prévision des risques sismiques. *Annales Soc. Géol. de Belgique*, 1989 T.112 - F2 pp. 381-392.

- J.-M. CHARLET, P. DOREMUS, V. KOTZMANN-ROUTIER, F. LECLERCQ, S. VANDYCKE**, 1990b. Livret guide de l'excursion du CIGG-Radon dans le Bassin de Mons. CIGG 1990 40p.
- RH. CLARCKE, T.R.E SOUTHWOOD**, 1989. Risks from ionising radiation in nature, 1989, vol 338 pp. 197-198.
- Ph. DIFFRE**, 1988. Principaux radionucléides présents dans les eaux in *Hydrogéologie*, n°3, 1988, pp. 175-188.
- K.L. DIXON, R.G. LEE**, 1988. Occurrence of radon in well supplies. *Journal A.W.W.A.* 1988, V. 80, n°7, pp. 65-70.
- P. DOREMUS**, 1985. Les anomalies uranifères dans le Gédinnien inférieur de l'anticlinal de l'Ardenne (Oizy, Belgique) : prospection, sédimentologie, tectonique et géochimie. Thèse univ. Lille, 1985, 352 pages.
- P. DOREMUS, Y. QUINIF, J.-M. CHARLET**, 1988. Mise au point d'un détecteur passif du radon 222 en milieu saturé. Premiers résultats in *Annales Soc. géol. du Nord*. t. CVII p. 211-219.
- P. DOREMUS, Y. QUINIF, J.M. CHARLET**, 1990. La cartographie radon des eaux naturelles appliquée à la détermination de zones à risques domestiques de pollution par le radon (cas de la région de Monceau en Ardenne, Belgique). *Ann soc. géol. du Nord*, t. CIX 1990, pp. 157-167.
- S. HALLEZ, J.M. FLEMAL**, 1990. Cartographie communale des concentrations de radon à l'intérieur des habitations. Exemple de Visé (Belgique). I.H.E. Bruxelles 1990, 32 pages.
- M. HUBERT-HABART**, 1989. Radon et cancer in *l'actualité chimique*, 1989, pp. 157-158.
- V. KOTZMANN-ROUTIER**, 1990. La cartographie du radon dans les eaux naturelles du Hainaut occidental. Présenté au CIGG Mons, octobre 1990. Le volume.
- J.P. LONGTIN**, 1988. Occurrence of radon, radium and uranium in groundwater in *Journal of A.W.W.A.*, 1988, vol 80 n°7, pp. 84-93.
- J.D. LOWRY, S.B. LOWRY**, 1988. Radionuclides in drinking water in *Journal of A.W.W.A.*, 1988, vol 80 n° 7, pp. 50-64.
- R. MARLIERE**, 1970. Géologie du Bassin de Mons et du Hainaut : un siècle d'histoire in *Annales soc. géol. du Nord* t. XC, 4, pp 171-189.
- A. NERO**, 1988. Les contrôles de la pollution dans les logements in *Pour la Science*, 1988, n° 129, pp. 24-31.
- A. NERO**, 1989. Earth, Air, Radon and Home in *Physics Today*, 1989, pp. 32-39.
- Y. QUINIF, P. DOREMUS, Ph. BOUKO et J.M.CHARLET**, 1984. Une méthode d'analyse du radon 222 dans les eaux naturelles. Application à la prospection de l'uranium (région d'Oizy, Belgique). *C.R. Acad. Sc. Paris*, t. 299, Série II n° 17 1984



# PROSPECTION ET ANALYSE DU RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES EN WALLONIE

**J.M. FLEMAL, S. HALLEZ**

INSTITUT D'HYGIENNE ET D'EPIDEMIOLOGIE

rue J. WYTSMAN, 14 - 1050 BRUXELLES

## RESUME

*La mesure du radon -222 dans les eaux naturelles constitue une méthode intéressante pour une première détermination des zones à risques liés au radon.*

*Une des méthodes les plus faciles pour la détermination du radon dans l'eau est la scintillation liquide. Cette méthode combine les avantages d'un faible volume d'échantillonnage, d'un temps de préparation très court des échantillons, d'un système automatique et d'une bonne limite de détection. 216 échantillons furent prélevés en Wallonie entre les mois de mai et de novembre 1989.*

*Il apparait une différence significative entre les valeurs trouvées dans le Dévonien inférieur et les autres zones géologiques.*

*Cela peut être comparé avec les valeurs plus élevées trouvées en radon domestique dans cette région.*

## ABSTRACT

*Measurements of radon -222 concentrations in natural waters is an interesting method for a first determination of indoor radon risk.*

*One of the most practical methods for measurement of radon in water is the liquid scintillation counting. This technique combines the advantages of minimal sample preparation time, small size, automatic sample changing and a good detection limit.*

*216 samples were taken in Wallonia between May and November 1989.*

*A significant difference appears between the values measured in the lower Devonian and the others.*

*This result is to be compared with the higher concentrations in radon home found in this country.*

## INTRODUCTION

Dans l'état actuel des connaissances, on estime compris entre 100 et 1 000 le nombre de décès annuels, en Belgique, dus à l'explision au radon.

Il n'y a pas beaucoup de voies possibles pour tenter de résoudre cette problématique.

Une carte des risques, basée sur une statistique de mesures systématiques en radon domestique, ne pourrait donner qu'une idée approximative de l'étendue du problème et, en tout cas, occulterait bon nombre de problèmes à échelle locale.

Le rôle des données géologiques dans la distribution des zones à risques est clairement établi.

L'un des outils utilisé en géologie dans la recherche des sites uranifères consiste en l'analyse du radon dans les eaux naturelles. Une cartographie des variations de concentrations de radon dans les eaux, à condition qu'elle soit obtenue à partir d'un nombre suffisamment d'échantillons, offrira un bon outil de prospection pour une première approche du problème et pour l'obtention d'une image des effets globaux des sources régionales de radon.

Dans le cadre de la "décennie internationale de l'eau potable et de l'assainissement", l'Institut d'Hygiène et d'Epidémiologie a apporté son soutien analytique à une opération menée par la fédération wallonne des scouts. Cette opération

consisterait en une campagne systématique de prélèvement des eaux de source en wallonie, dans le but d'établir une carte des risques par rapport à la quantité de nitrates.

La campagne était prévue le 8 mai 1989, et un millier d'échantillons devaient être prélevés dans l'après-midi.

Nous avons eu la possibilité d'y inclure des prélèvements spécifiques à la mesure du radon.

### METHODE DE MESURE.

Etant donné l'aspect quelque peu particulier de cette campagne, il était important :

- de disposer d'une méthode permettant d'analyser un grand nombre d'échantillons en un minimum de temps.
- de simplifier au maximum la méthode de prélèvement.

l'Institut d'Hygiène : il s'agit de la méthode de Lucas après concentration sur du charbon actif et de la méthode de scintillation liquide après extraction en phase organique.

La méthode de Lucas est certainement la plus spécifique pour la détermination du radon <sup>222</sup> dans l'eau. Cependant, de par la longueur des manipulations, elle est en fait très mal adaptée à une campagne de mesure intensive.

Par contre, la technique par scintillation liquide combine les avantages d'un temps de préparation des échantillons très court, d'un faible volume d'échantillonnage et d'une limite de détection suffisante pour les mesures envisagées.

Le radon présente une grande facilité à se dissoudre dans les composés organiques ainsi qu'à migrer de l'eau vers ces derniers lorsqu'ils sont en présence.

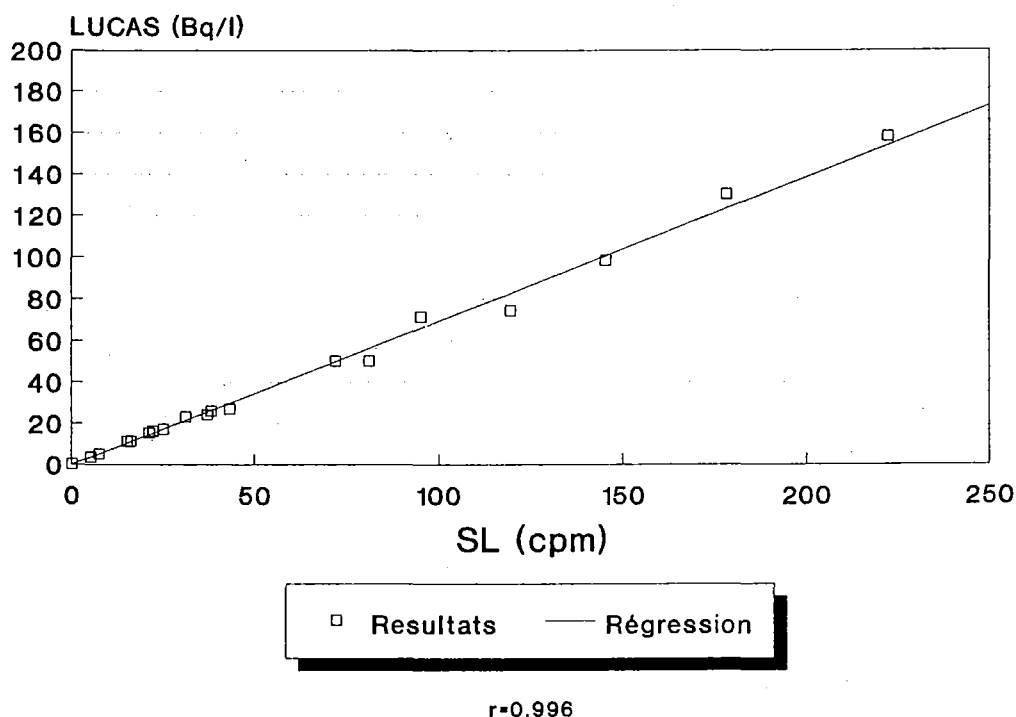


Figure 1. Comparaison des méthodes de Lucas et Scintillation liquide (S.L.)

Il existe plusieurs méthodes pour la détermination du radon dans l'eau. Deux méthodes furent principalement développées à

Beaucoup de ces composés, tels le toluène et le xylène, sont utilisés comme matrice organique dans les liquides scintillants.

Le radon en équilibre avec ces produits de filiation entraîne l'émission de trois particules  $\alpha$  et deux particules  $\beta$  qui peuvent être comptées avec un rendement de pratiquement 100 %, bien que la conversion de l'énergie du rayonnement  $\alpha$  en lumière soit moins efficace que pour les électrons.

Une limitation intrinsèque de la méthode réside dans son manque de spécificité. En effet, tout émetteur  $\alpha$  ou  $\beta$  soluble dans le liquide scintillant contribuera au taux de comptage, et ceci par opposition à la méthode de Lucas qui n'est sensible qu'au gaz émetteurs  $\alpha$ .

C'est dans cette optique qu'une intercomparaison fut menée entre les deux méthodes lors d'une campagne relative à la radioactivité des eaux minérales (Gillard et al. 1985). 19 analyses en parallèle furent faites sur des eaux à caractère chimique parfois très différent. On remarquera l'excellent coefficient de corrélation obtenu entre les deux méthodes (fig. 1).

Packard, nous nous sommes inspirés du protocole de mesure fourni par cette firme m 10 ml du liquide scintillant Optifluor O sont mélangés à 10 ml d'eau dans des fioles à scintillation. Le seuil inférieur du discriminateur est placé après "le end" point du tritium et le comptage s'effectue pratiquement sur le reste du spectre.

le rendement de comptage a pu être déterminé par une solution standard de radium 226 fournie par Amersham. Dans la méthode qui fut employée pendant la campagne "eaux minérales" (Gillard et al. 1985) les prélèvements s'effectuaient directement en mélangeant in situ le volume d'eau, prélevé à la seringue hypodermique, au liquide scintillant, de façon à minimiser au maximum les pertes. Cette solution n'était pas envisageable ici.

Des essais furent faits afin de comparer la méthode habituelle et une méthode plus simplifiées.

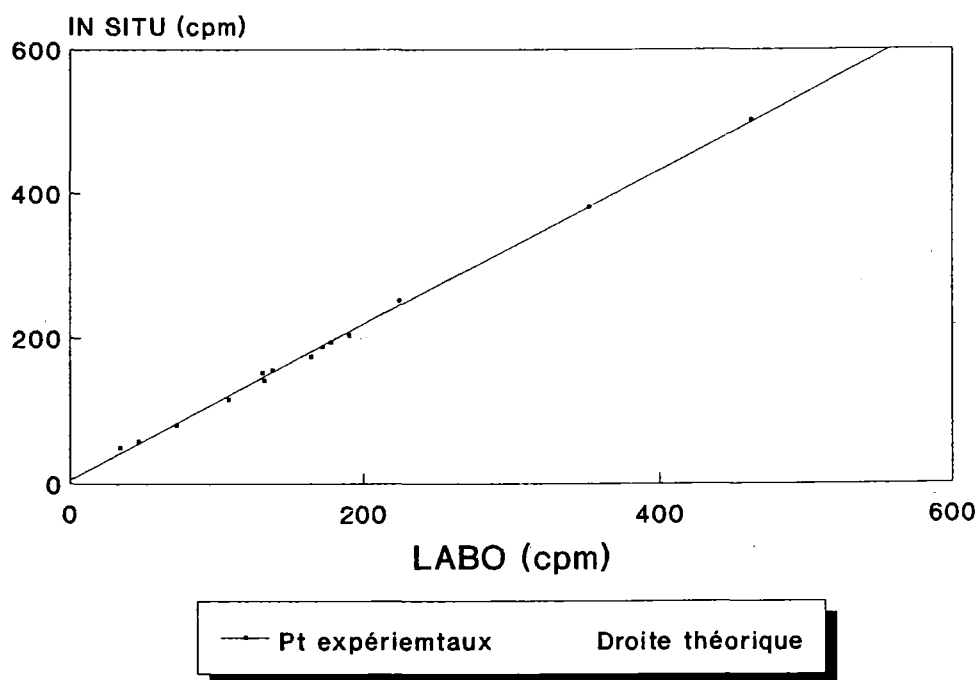


Figure 2. Comparaison de méthodes de prélèvements.

Disposant, lors de la campagne "scout", d'un scintillateur liquide modèle 2000CA de la firme

Dans celle-ci, le prélèvement s'effectue dans des fioles en verre, celles-ci sont complètement

remplies, de préférence par immersion complète, et fermées par un bouchon de plastique recouvert intérieurement d'un disque de téflon.

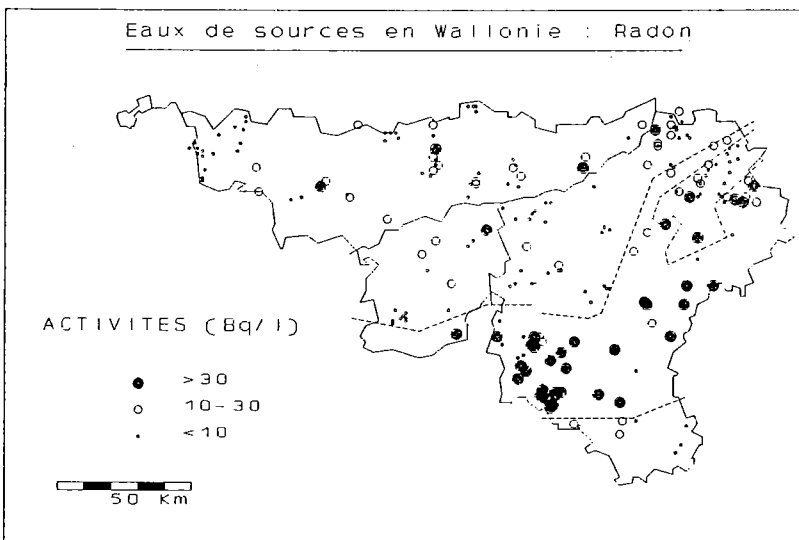
En laboratoire, 10 ml d'eau sont prélevés à la seringue et injectés directement dans une fiole à scintillation contenant le liquide scintillant. Seize sources furent testées par les deux méthodes (figure 2). On remarque une erreur relative pratiquement constante et de l'ordre de 8 %.

pourquoi, il fut décidé de procéder à quelques tests quant à la variabilité des teneurs en radon de ces eaux :

8 échantillons hebdomadaires de la source du Tragnire furent prélevés à partir de janvier 1990.

Les résultats figurent sur le graphique 3.

On remarque peu de variations de la teneur en radon en fonction du temps.



Carte 1. Cartographie des concentrations.

## RESULTATS

Il avait été prévu, pour cette campagne, une collecte de 1 000 échantillons. Il n'y eut en fait que 185 échantillons mesurables prélevés le 8 mai entre 15 et 16 heures. Il semble que, pour une première opération, le but n'ait pas été totalement atteint et que l'organisation se soit heurtée à des problèmes d'intendance, par ailleurs bien compréhensibles.

Etant donné la présence de quelques zones inexplorées, 31 échantillons supplémentaires furent prélevés suivant le même protocole par le personnel de l'I.H.E. pendant le mois de novembre 1989.

Les résultats globaux figurent sur la carte 1.

La valeur de l'opération initiale dépendait bien sûr de la quantité des échantillons, mais aussi du caractère instantané de ceux-ci. C'est

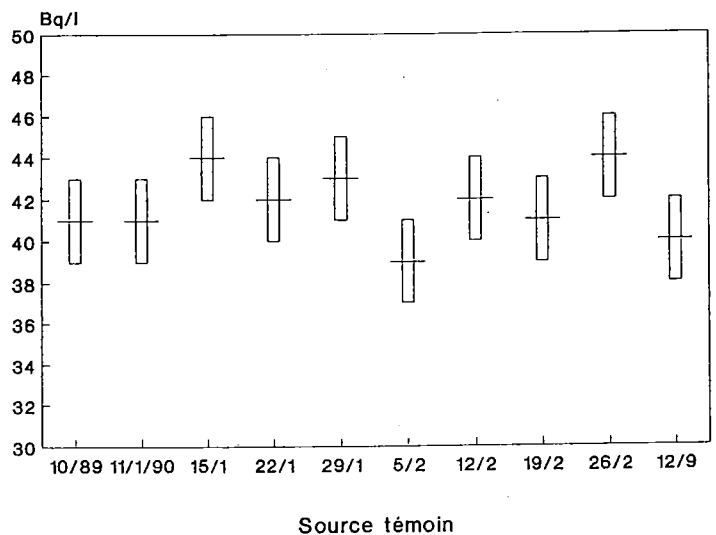


Figure 3. Variabilité de l'activité en radon (Source témoin).

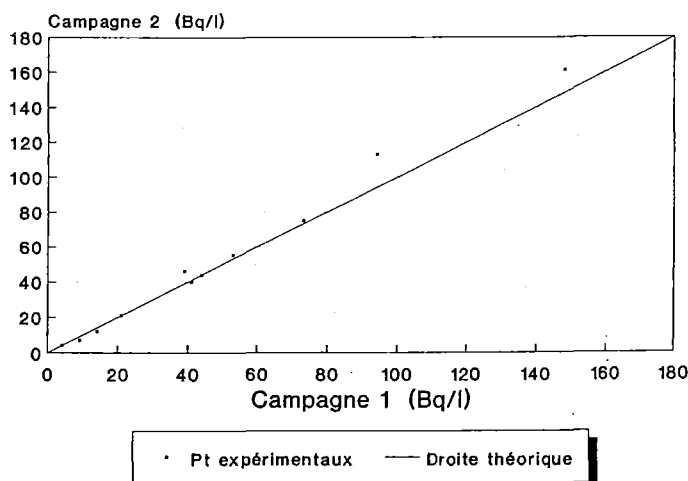


Figure 4. Variabilité de l'activité en radon.

13 échantillons parmi les 31 furent prélevés une deuxième fois pendant le mois de septembre 1990.

Les résultats figurent sur le graphique 4.

On remarque ici également peu de variation de la teneur en radon de ces sources, présentant une gamme de concentrations de 4 à 150 Bq/l et de débit de 0,4 à 25 l/min.

### INTERPRETATION.

Le nombre insuffisant de valeurs ne permet pas de définir de façon très précise les zones où peuvent se présenter des problèmes de radon domestique.

Cependant, en se basant sur le comportement chimique de l'uranium, nous avons séparé les valeurs observées dans la zone du dévonien inférieur. (fig. 5)

Ces dernières s'adaptent assez bien à une distribution lognormale, de moyenne géométrique égale à 42 Bq/l, pour une déviation standard géométrique de 2,1.

Les mesures situées hors de cette zone comprenaient de nombreuses valeurs situées sous la limite de détection. Celles-ci furent distribuées de manière itérative pour s'adapter le mieux possible à un lognormale. On observe

une distribution ayant une moyenne géométrique de 5,4 Bq/l et de déviation standard géométrique de 3,2.

Cette différence significative des moyennes peut être mise en relation avec les concentrations dans l'habitat plus élevées dans le sud, sur le socle paléozoïque, que dans le nord du pays.

D'un point de vue local, on remarquera surtout la région de Monceau en Ardennes, où nous avons trouvé les résultats les plus élevés de notre enquête, et où d'importants problèmes de radon domestique ont été trouvés récemment. Remarquons également que la haute valeur trouvée dans le Brabant Wallon confirme le taux important de radon dans les sources d'eaux minérales de Sty, ceci pouvant être mis en relation avec les valeurs importantes en radon trouvées dans l'air de certaines habitations de Court-Saint-Etienne.

### CONCLUSIONS.

Le but de cette campagne était la détermination des zones à risques de pollution en radon domestique par l'intermédiaire de la mesure du radon dans l'eau. Malheureusement le nombre insuffisant de valeurs ne permit pas d'atteindre ce but.

Cette enquête semble toutefois confirmer l'idée émise par l'équipe du Pr. Charlet (Doremus et al. 1990) : la détermination du radon dans l'eau est un indicateur valable et ces mesures devraient être développées et étendues de manière intensive au moins sur l'ensemble de la Wallonie.

Cette enquête doit donc surtout être considérée comme une étude pilote, nous ayant permis de développer la méthode par scintillation liquide, qui d'après certainement être la méthode la plus adaptée, de par la facilité du prélèvement et de la préparation de l'échantillon, mais aussi de par l'automatisation des mesures et du traitement des données.

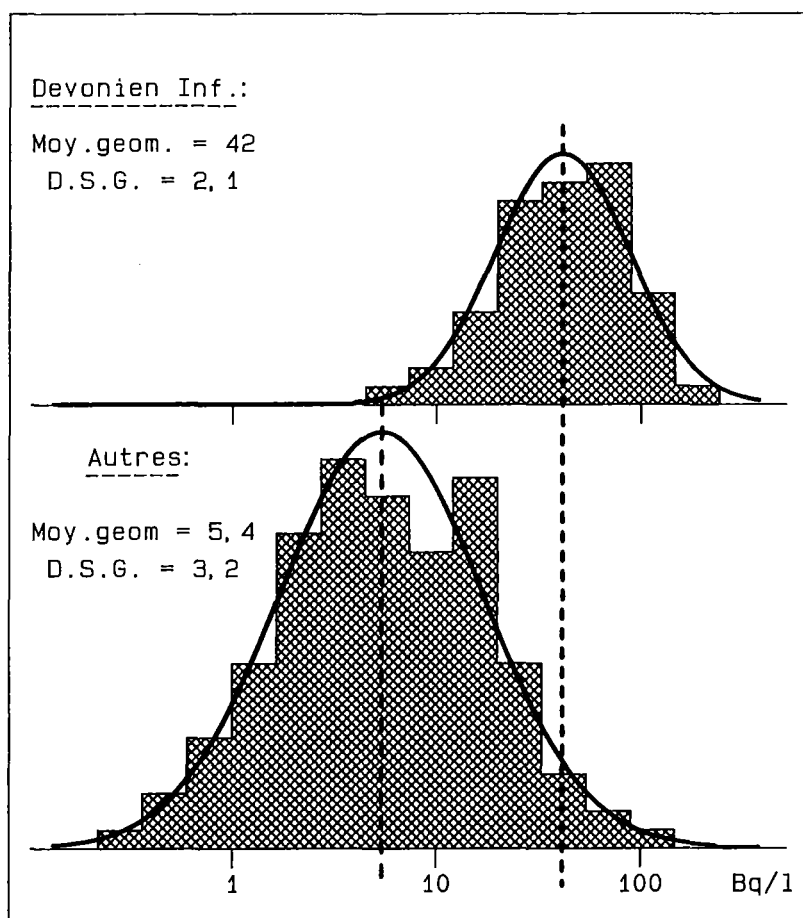


Figure 5. Histogramme des concentrations.

## BIBLIOGRAPHIE.

**JM. CHARLET, JP. LEFIN, L. DEJONGHE, SM. DE WITTE, B. DUMEL, J. HENRY, A. HERBOSCH, H. MARTIN**

"Reconnaissance survey for uranium in the belgian Paleozoic".

Professional paper n° 196 (1983)

**P. DOREMUS, Y. QUINIF, JM. CHARLET**

"La cartographie de radon des eaux naturelles appliquée à la détermination des zones à risques domestiques de pollution par le radon".

Annales de la Société Géologique du nord, 157 - 167, juin 1990

**H.M. PRICHARD, T.F.GESELL**

"Rapid measurements of Rn-222 concentrations in water with a commercial liquid scintillation counter".

Health physics Vol 33, 577 - 581 (1977)

**B. PARSA, T. HORTON**

"Radon in drinking water : an NJDEP-EERF collaborative study"

Health Physics Vol 58, 209 - 212 (1990)

**J. GILLARD, JM. FLEMAL, P. GILLET**

"Etude de la radioactivité des principales sources d'eau minérale en Belgique".

## LE RADON DANS L'ENVIRONNEMENT INTERIEUR RADON AND GAS RARES IN EARTH AND ENVIRONMENTAL SCIENCE

J.-L. GENICOT - H. VANMARCKE

C.E.N./S.C.K.  
Boeretang, 200  
Mol, Belgium

### RESUME

*Le radon, gaz inerte, est généré par décroissances successives à partir de l'U-238 et du Th-232 présents dans la croûte terrestre et dans de nombreux matériaux de construction. Par ses propriétés de fluidité, il peut s'infiltrer à travers les failles et les fissures et s'accumuler dans les bâtiments où il induit chez les occupants le cancer des poumons.*

*La corrélation entre la teneur en radon du milieu occupé et l'apparition de cancer a été prouvée par des études épidémiologiques chez les travailleurs des mines d'uranium.*

*Après une description des propriétés physiques du radon et de la façon dont il peut être source de risques carcinogénétiques, les techniques utilisées pour sa détection sont exposés ainsi que les processus d'induction de cancer et sa synergie avec d'autres facteurs (comme le tabac).*

*Enfin les moyens de prévention et les remèdes sont mentionnés, de même que les risques de mortalité consécutifs au radon comparés aux autres causes de décès non naturels.*

## 1. THE RADON GAS

### 1.1. Sources (figure 1)

Radon (Rn-222) and thoron (Rn-220) are generated in the soil and in the building materials by alpha-decay of Ra-226 and Ra-224 which are isotopes of the natural radioactive families initiated by U-238 and Th-232. The radioactive half-lives of these gases (3.8 days and 56 sec) are long enough to allow part of them to escape from the material and to reach the indoor air, where they can accumulate in closed rooms.

### 1.2. Effect on the health.

Radon and thoron are inert gases and are therefore not so dangerous by themselves but their solid decay products (Po, Bi and Pb) may attach to the surface of the respiratory tract.

From epidemiological studies including 25000 to 30000 underground uranium miners and from radon inhalation studies on animals, it can be stated that the decay of the daughter products of radon can induce lung cancer.

### 1.3. Risks compared with other sources of ionising radiation (figure 2)

Radon is responsible for about half of the radiation dose to the average member of the belgian public.

The radon concentrations in belgian houses cover several orders of magnitude from 10 Bq/m<sup>3</sup> to tens of thousands Bq/m<sup>3</sup>.

The annual average radon concentration in belgian houses is 50 Bq/m<sup>3</sup> (Poffijn, 1985). About 100000 houses are expected to have concentrations above 150 Bq/m<sup>3</sup> and 10000 houses could potentially have indoor concentrations higher than 400 Bq/m<sup>3</sup>. The former value is the EPA guideline in the USA and the latter is the action limit for existing houses advised by the CEC.

### 1.4. Difference between attached and unattached forms of radon daughters.

When it reaches the indoor air, the radon gas decays into chemically active daughters which can attach themselves to dust particles (aerosols). Inhaled aerosols are partly trapped by the sticky mucus of the bronchial airways, where the radon daughters have a high probability to emit alpha-particles which can reach the basal cells just beneath the inner surface of the bronchi.

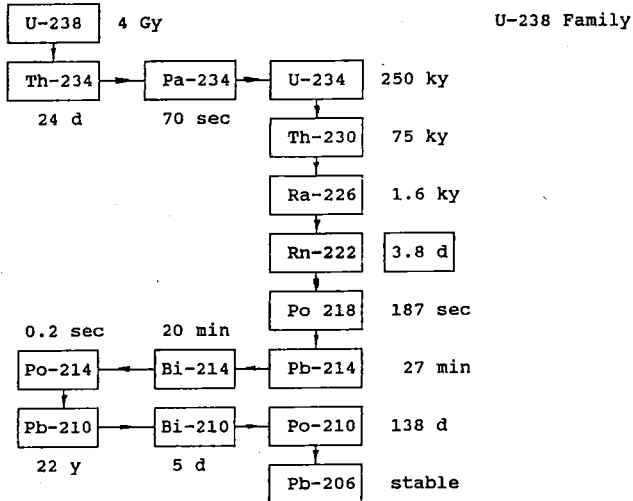


Figure 1. Uranium- 238 and Thorium- 232 families.

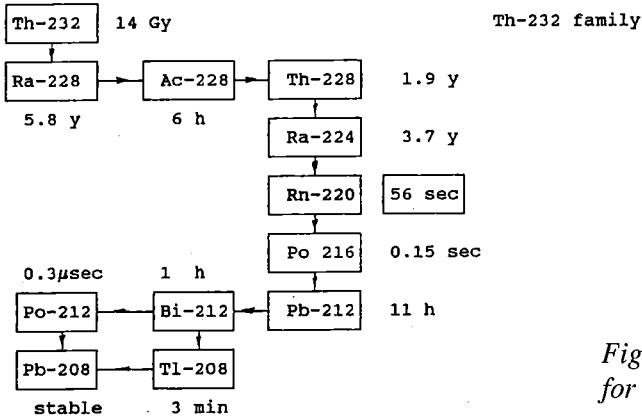
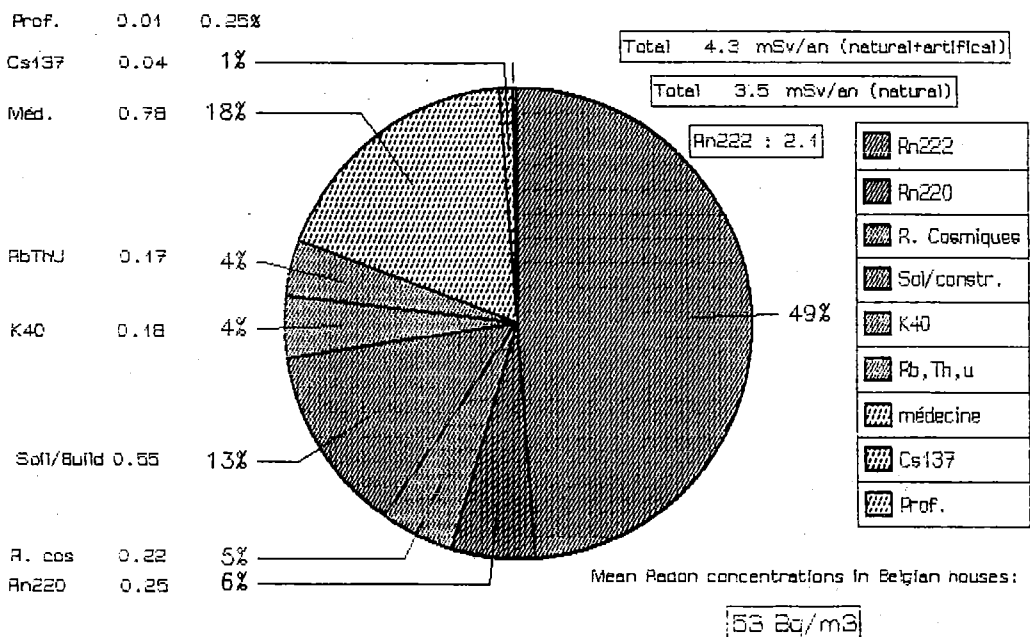


Figure 2. Origins of the radiation mean dose for the Belgian public.





The unattached radon daughters attach themselves in a large measure to the surface of the bronchi. They are 10 to 20 times more harmful than the attached radon daughters. The unattached fraction is in the indoor environment between 5 and 15 % of the total decay product concentration so that both fractions (attached and unattached) contribute about equally to the lung dose. The dose in the indoor environment is relatively independent of the equilibrium factor between radon and its decay products so that it is better to use a conversion factor based on the radon concentration than on the radon decay products concentration.

The conversion factor is (Vanmarcke 1989) :

**1 mSv/year for 20 Bq/m<sup>3</sup>**

(assuming an occupancy factor of 100 %)

## 2. THE DIFFUSION PHENOMENA

(figure 3)

The amount of radon which can escape from the soil and the building materials and reach the indoor atmosphere is determined by the uranium and thorium concentrations in the soil and in the building materials but also by the transport possibilities. The pores in the soil, the moisture contents of the soil and the pressure gradients in the building are all factors playing a role in the radon entry rate.

## 3. STORAGE EFFECT IN DWELLINGS

(figure 4)

Pressure differences induce gas displacements in porous materials. A depression of a few Pa in the dwelling during a windy day for instance produces a seeking effect on radon existing in the underground or in building materials.

Atmospheric conditions, heating and ventilation are among other things responsible of the variations of radon concentrations in dwellings.

## 4. Measurement techniques

. Radium and radon in building materials

- The measurement of the specific activity and of the exhalation of materials used

in the construction of buildings allows to make some assumptions on the exposure risks for new constructions.

a) Specific Ra-226 activities (figure 5) :

The analysis by means of gamma spectrometry shows that the radium concentration can greatly vary from one building material to another and for one material, discrepancies appear between ores of different origins.

b) Radon and thoron exhalation (figures 6 and 7) :

Exhalation and diffusion of radon in materials also are important parameters because they determine the rate at which the gas can leave the material and reach the indoor air. The diffusion lengths of radon are 15. cm in concrete, 30. cm in bricks and 1. m in gypsum. The diffusion lengths of thoron in the same materials are about 100 times lower than the previous values due to the short half-life of this isotope.

. Radon from the soil (figure 8)

The most important source of radon in dwellings is due to infiltrating gas from the soil. Radon is moved by pressure differences between subsoil and dwelling. High indoor radon concentrations can be due to a high Ra-226 concentration in the soil or to the permeability and dryness of the subsoil. Easy radon entry points also contribute to high indoor radon concentrations.

- The direct measurement of radon in dwellings :

Several types of systems are used : The most used techniques are based on activated charcoal and on the alpha track detector.

. The charcoal detector (figure 9) is an air tight bottle containing charcoal which is opened during one or two days in the investigated room. This time is long enough to allow the charcoal to absorb radon. The charcoal detector is measured in the lab by means of liquid scintillation. This method

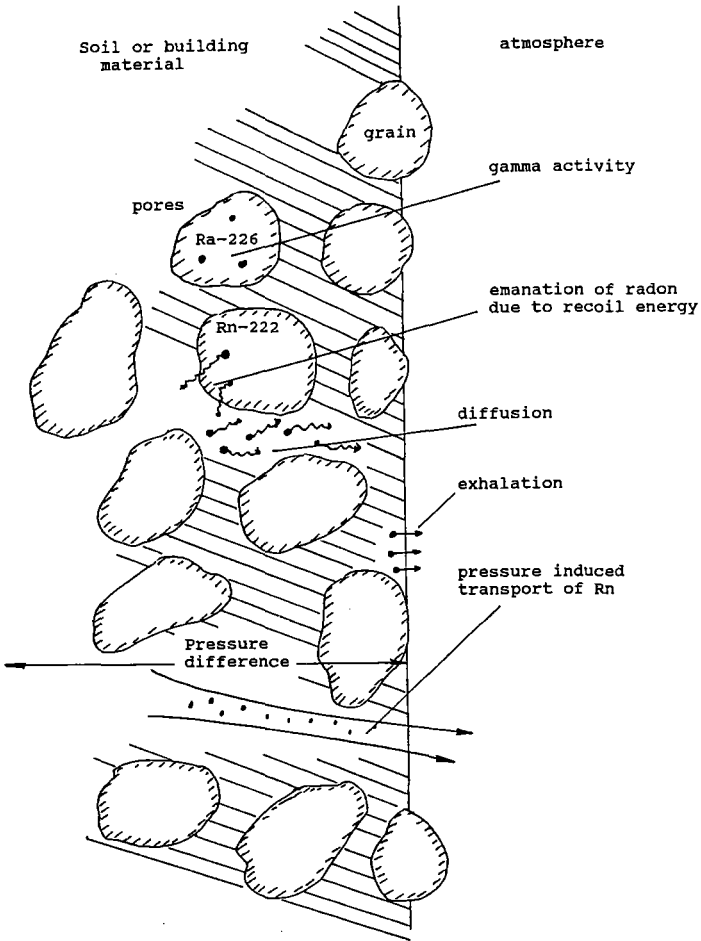


Figure 3. Diffusion model of radon in building materials.

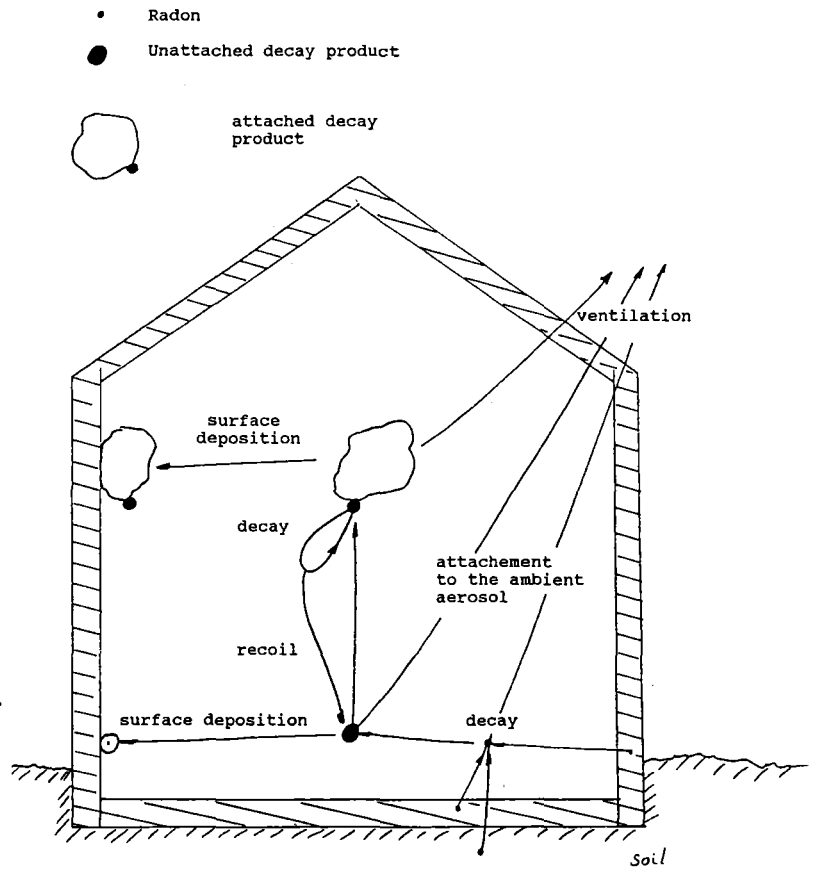


Figure 4. History of radon in dwellings.

BUILDING MATERIAL	NUMBER OF SAMPLES	Ra-226 Bq/kg
Cement	20	47
Sand, gravel	3	19
Clay brick	47	34
Blast-furnace slag	2	85
Gypsum Natural	5	<11
Gypsum By-product :		
- sulphogypsum	3	25
- phosphogypsum		
- marocan ore	27	442
- south-Africa ore	5	180

Figure 5. Specific Ra-226 activities

BUILDING MATERIAL	EXHALATION RATE PER UNIT MASS (Bq/kg.s)
Bricks	$10^{-6}$
Concrete	$10^{-5}$
Phosphogypsum (Marocan origin)	$10^{-4}$

<b>Typical chamber</b>	
- room dimensions	4 x 5 x 3 = 60 m <sup>3</sup>
- ventilation rate	0.7/h
- thickness of the walls	0,12 m
- concrete density	2500 kg/m <sup>3</sup>
* contribution to the radon concentration	13 Bq/m <sup>3</sup>
* walls & ceiling covered with phosphogypsum (marocan ore)	1.5 cm
* contribution to the radon concentration	10 Bq/m <sup>3</sup>

Figure 6. Exhalation rate of radon (Rn-222) from building materials

<p><b>Typical chamber</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- room dimensions</li> <li>- ventilation rate</li> <li>- wall and ceiling covered with phosphogypsum (South Africa)</li> </ul> <p>* The effective dose equivalent due to the thoron exhalation (uncovered gypsum) is :</p> <p><b>Painting the gypsum lowers the Rn-220 dose by a factor of 10 to 20.</b></p>	<p><math>4 \times 5 \times 3 = 60 \text{ m}^3</math></p> <p>0,5/h</p> <p>74.m<sup>2</sup></p> <p><math>1.0 \pm 0.3 \text{ mSv/Y.}</math></p>
---	--

Figure 7. Exhalation rate of thoron ( $\text{Rn}^{220}$ ) from phosphogypsum of South African origin.

<p><b>Typical soil</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- density</li> <li>- porosity</li> <li>- emanation fraction</li> <li>- Ra-226 concentration in the pores</li> </ul> <p>Assuming under the dwelling a radon concentration of</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>- volume</li> <li>- ventilation rate</li> <li>- fraction of the infiltrating air coming from the soil</li> </ul> <p><b>Contribution to the radon concentration</b></p> <p>The infiltration of radon from the soil can results in very high concentrations in dwellings</p> <p>Three prerequisites for infiltration of radon from the soil :</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>source : permeable subsoil, radium concentration</li> <li>force : pressure difference</li> <li>routes of soil gas entry</li> </ul>	<p>1600 kg/m<sup>3</sup></p> <p>40 %</p> <p>20 %</p> <p>20000 Bq/m<sup>3</sup></p> <p>5000 Bq/m<sup>3</sup></p> <p>300 m<sup>3</sup></p> <p>0.5/h</p> <p>0.6 %</p> <p><b>30 Bq/m<sup>3</sup></b></p>
--	--

Figure 8. Radon from the soil.

allows to have very quickly an idea of the radon concentration in a dwelling. The method

is cheap and simple but sensitive to moisture. Therefore it is only suitable as a first

diagnostics. Besides the radon concentrations varies from day to day.

. When the result is above 150 Bq/m<sup>3</sup>, a confirmation measurement by means of the track-etch system is made. (figure 10).

A track-etch detector consists of a plastic foil placed inside a small can covered by a filter through which the Rn-222 diffuses. When an alpha particle hits the plastic foil, it leaves a tiny track. After an electro-chemical process, a spot appears where each of the alpha particle hit the detector (figure 11). From the number of spots, counted by means of a microfiche reader, the concentration of radon in the air can be determined. The track-etch detector is designed to be placed in the home for periods of two to twelve months.

## 5. CANCER INDUCTION RISKS

Alpha-particles are capable of breaking the strands of the DNA of a living cell. The mutation produced in the cell by this breaking can lead to a pre-cancerous state of the cell. A second step, promoted for instance by tobacco smoke, may force the cell to turn into a cancerous state.

Statistical data (figure 12), from experiments on animals have shown correlation between the exposition to radon and lung cancer generation (ROSE, 1988). The studies show that the tumorigenic potential increases with different factors : the increase of exposure, the decrease of exposure rate, the increase of unattached fraction and the increase of disequilibrium.

The radon inhalation studies in animals also state that the simultaneous exposure to elevated levels of ore dust or diesel-engine exhaust did not increase the number of tumours produced by radon decay exposures.

The synergies between radon and tobacco smoke is also established but depending on the temporal sequence of the exposures. From experimental studies with animals, we know that (figure 13).

. Smoke exposures completed before radon-progeny exposures did not alter the lung-

cancers incidence in rats,

. Smoke exposures following completed radon-progeny exposures produced a synergistic effect on cancer development.

## 6. REMEDIES

For new buildings, the indoor radon problem is a problem of design. The choice of building materials and the prevention of gas entries from the subsoil are important aspects to keep in mind.

For existing buildings, the mitigation of high-radon concentrations is always possible. In most of the cases, this can be done by simple methods like the sealing of the entry points in cellars or by enhancing the ventilation of the dwelling. When these actions are not enough, (figure 14) the principle of subfloor suction, for instance, is used : Pipes, attached to a suction fan, are inserted in the ground below the basement floor, creating a low-pressure region under the house.

## 7. CONCLUSIONS (figure 15)

Radon may or may not be important factor in the risk of early death when it is compared to the other risks of early death (tobacco smoke, car accident, work accident,...). However when it is compared to the other sources of ionising radiations, it is the most important radioprotection problem of the general population.

## REFERENCES

- POFFIJN A., MARIJNS R, VANMARCKE H and UYTENHOVE J.**, (1985) Results of a preliminary survey on radon in Belgium. - *The Science of The Tot. Env.* 45 : 335-342 (1985)
- VANMARCKE H., BERKVENS P., POFFIJN A.**, (1989) Radon Versus Rn Daughters. *Health Physics*, Vol 56, N°. 2 (February), pp 229-231, 1989.
- ROSE L.S.**, (1988) Radon Inhalation Studies in Animals. DOE/ER-0396 - September 1988.
- DAVID J. BRENNER**, (1989) Radon : Risks and Remedy. W.H. Freeman and Company, New-York 1989.

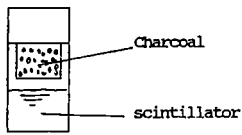


Figure 9. Active Charcoal detector

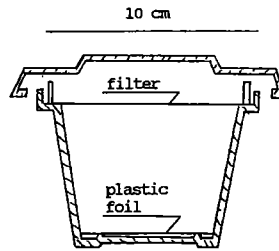


Figure 10. Track-etch detector.

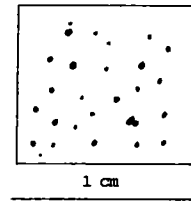


Figure 11 : Spots developed by electrochemical process

Radon inhalation studies at the Compagnie générale des Matières Nucléaires1.

Group mean exposure	Nominal exposure rate	Number of animals examined	Tumors
WLM	WLM/week		%
20-25	2-4	1000	1.7 *
50	4-8	800	2.9 *
290	9	21	10
860	370	20	20
1470	370	20	25
1800	200	50	34
1900	310	20	35
2100	220	54	43
2800	310	180	41
3000	370	40	43
4500	370	40	73

\* value corrected for lung tumor incidence in control rats (0.83 %)

Lifetime exposure in a home with radon concentration :

- 50 Bq/m<sup>3</sup> = 19 WLM
- 400 Bq/m<sup>3</sup> = 153 WLM
- 4000 Bq/m<sup>3</sup> = 1530 WLM

Figure 12 : Studies on cancer induction risks

## Risk of early death

<b>Lung cancer</b>	
. 10 cigarettes a day	6 %
. Average risk from lung cancer	5 %
. Average risk from indoor radon in Belgium : (50 Bq/m <sup>3</sup> = 2 mSv/y)	0.3 %
. absolute risk concept	0.2 %
. relative risk concept	0.5 %
. Lifetime occupancy of home with indicated radon concentration :	
. 150 Bq/m <sup>3</sup> (6 mSv/y)	1 % (100000)
. 400 Bq/m <sup>3</sup> (16 mSv/y)	2.5 % (10000)
. 800 Bq/m <sup>3</sup> (32 mSv/y)	5 %
. 4000 Bq/m <sup>3</sup> (160 mSv/y)	25 % (1000)
Car accidents	1.5 %
Home accidents	0.7 %
Occupational risk :	
. Average risk	0.2 %
. Construction	1 %

Figure 13 : Comparison between different risks of early death

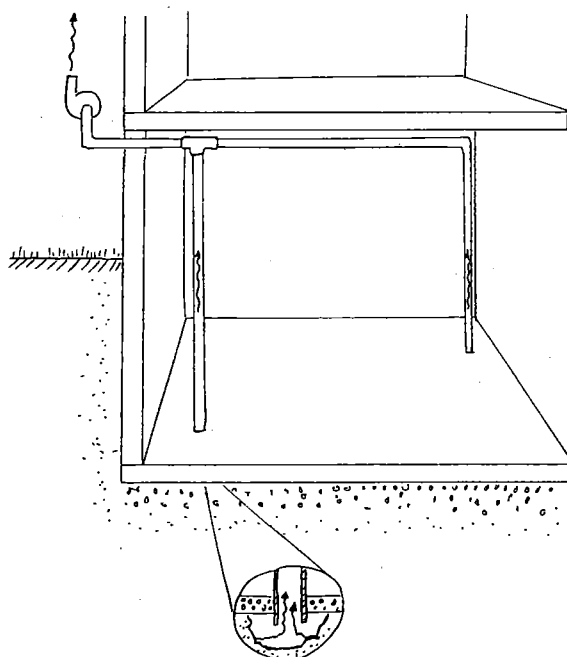


Figure 14 : Example of remedy sub-slab soil ventilation

<b>CONCLUSION</b>		
Average radon concentration in Belgium		
<b>50. Bq/m<sup>3</sup> → 2. mSv/year</b>		
Very large range of radon concentrations		
100000 dwellings > 150Bq/m <sup>3</sup>	6 m Sv/y	1 %
10000 dwellings > 400 Bq/m <sup>3</sup>		
1000 dwellings > 4000 BQ/m <sup>3</sup>	16 m Sv/y	1%
	160 m Sv/y	25 %
The risks are based on :		
. animal studies		
. epidemiological studies	- miners	
	- general public	

Figure 15 : Radon in the indoor environment is an important radioprotection problem.



## CARTOGRAPHIE COMMUNALE DES RISQUES DE HAUTES CONCENTRATIONS DE RADON A L'INTERIEUR DES HABITATIONS : EXEMPLE DE VISE

S. HALLEZ (1), A. POFFIJN (2), J.M. FLEMAL (1)

(1) INSTITUT D'HYGIENE ET D'EPIDEMIOLOGIE

Rue J. WYSTSMAN, 14 - 1050 BRUXELLES

(2) RIJKSUNIVERSITEIT GENT

PROEFTUINstraat, 86 - 9000 GENT

### ABSTRACT

*The purpose of this study consists in finding an accurate and cheap method for drawing a monitored map of risk assessment due to high indoor radon concentrations in an urban area.*

*The three points of the method are :*

- *uniform and aleatory selection of 5 % of the houses.*
- *radon concentration measurement in the dwelling based on liquid scintillation techniques.*
- *map representation in function of the dwelling proportion with radon concentration higher than a fixed value inside a fixed area (the considered values for this study are 150 Bq/m<sup>3</sup> and 1 km<sup>2</sup>).*

*The method was tested in Visé, a belgian town well known for its high radon concentrations.*

### RESUME

*Le but de ce travail est de mettre au point une méthode simple et efficace de représentation cartographique des risques liés au radon domestique au sein d'une entité communale.*

*La méthode adoptée peut se résumer en trois principes fondamentaux :*

- *choix aléatoire et uniforme de 5 % des habitations de la commune.*
- *détermination par scintillation liquide des concentrations de radon dans les caves de ces maisons.*
- *représentation cartographique par classes déterminées en fonction du pourcentage de caves dépassant, dans un périmètre donné, une activité de radon spécifiée (les valeurs adoptées dans cette étude sont 1 km<sup>2</sup> et 150 Bq/m<sup>3</sup>).*

*La méthode a été appliquée sur la commune de Visé, commune belge connue pour ces hautes valeurs de radon.*

### INTRODUCTION

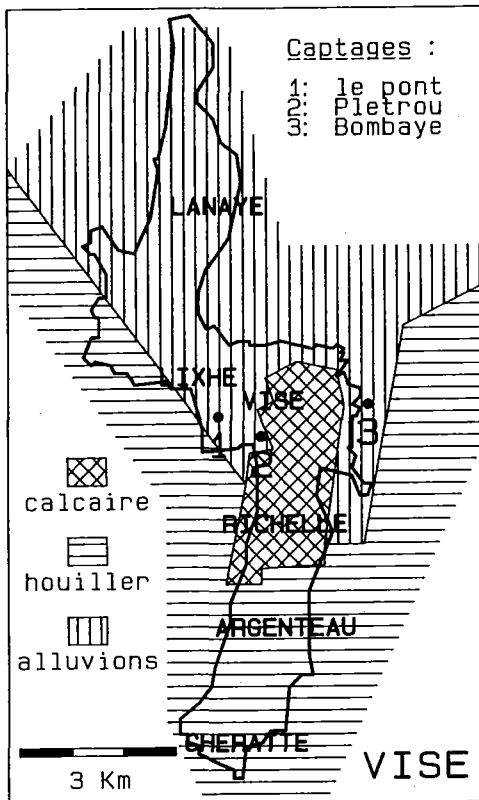
La commune de Visé, située au NNE de la Belgique, dans la province de Liège, à la frontière hollandaise, peut être divisée, schématiquement, en trois zones géologiques distinctes (carte 1) :

- au Nord : la zone où les schistes et grès namuriens sont recouverts par la plaine alluviale.

- au Centre : la zone où les dépôts crétacés supérieurs surmontent les calcaires viséens.

- au Sud : la zone du houiller, présentant des affleurements de schistes et grès namuriens et de schistes westphaliens.

C'est en 1956, au cours de relevés radiométriques effectués de manière systématique par le Service Géologique de Belgique, que l'on découvrit quelques sites



Carte 1. Aperçu schématique des différentes zones géologiques sur le territoire de la commune de Visé.

Tableau 1.

Enquête R.U.G. (1988)

54 habitations at random.

Saison	Moyenne arithmétique
hiver	73 Bq/m <sup>3</sup>
printemps	72 Bq/m <sup>3</sup>
été	70 Bq/m <sup>3</sup>
automne	85 Bq/m <sup>3</sup>
année	75 Bq/m <sup>3</sup>
classe	%
[Rn] < 50	37
50 < [Rn] < 400	46
100 < [Rn] < 100	15
400 < [Rn]	2

anormalement radioactifs. Cette radioactivité, plusieurs dizaines de fois supérieure au bruit de fond, fut attribuée à la présence de brèches phosphatées dans les calcaires viséens.

En 1973, une radioactivité anormale des eaux de distribution de la ville fut découverte fortuitement : de très fortes teneurs en Rn222 furent mesurées dans les eaux du captage du Plétrou, de Bombaye et de Devant-le-Pont (carte 1).

Ces teneurs élevées, furent attribuées par les experts à la présence d'uranium dans le sous-sol.

Comme, à cette époque, le rapport entre contexte géologique et "radon domestique" n'était pas établi, les enquêtes ultérieures furent plus particulièrement consacrées à la géologie et à la recherche de site de minéralisation uranifère.

La première enquête sur la teneur en radon des habitations de Visé n'a démarré qu'en décembre 1988. Elle fut menée par l'Université de Gand dans le cadre d'une vaste enquête nationale. Elle dura une année, pendant laquelle 4 séries de mesures, intégrées sur 3 mois, furent effectuées dans les lieux de séjour de 54 habitations choisies au hasard (tableau 1).

Cette enquête estimait à +/- 150 le nombre d'habitations présentant des "concentrations" de radon supérieures à 400 Bq/m<sup>3</sup>.

La plus forte activité (3500 Bq/m<sup>3</sup>) fut trouvée dans une habitations construite au pied d'anciennes carrières creusées dans les calcaires viséens.

L'explication avancée par le Dr. GRAULICH (Herbosch et al. 1979) est la suivante :

Tableau 2. Enquête R.U.G. (1989)  
13 habitations dans la zone calcaire.

Classe (Bq/m <sup>3</sup> )	%
[Rn] < 50	23
50 < [Rn] < 100	23
100 < [Rn] < 400	31
400 < [Rn]	23

"Des schistes noirs, fins, pyriteux et radioactifs se sont normalement déposés sur les calcaires viséens. A la suite d'un ridement, ce massif a été exondé, ce qui a entraîné une oxydation de la pyrite avec libération d'acide sulfurique dissolvant les sels d'urane. Ceux-ci précipitèrent après neutralisation de l'acide sulfurique par le calcaire sous-jacent".

On devait donc s'attendre à trouver d'autres maisons à problèmes dans la zone des calcaires : une étude pilote sur 13 habitations de ce quartier y fut menée en 1989. Les résultats trouvés dans cette enquête confirment ces hautes valeurs (tableau 2).

• Si les hautes activités (>1000 Bq/m<sup>3</sup>) dans les zones d'affleurements des calcaires du Viséen et du Frasnien, des activités de 200 à 400 Bq/m<sup>3</sup> ont été mesurées à Cheratte, sur le houiller, ainsi qu'à Lixhe et à Lanhay, sur les

alluvions.

Il semble donc dangereux de circonscire spatialement le problème à la seule zone des anomalies liées au calcaire. C'est la raison pour laquelle il fut décidé d'organiser une campagne de mesures sur une plus grande échelle, afin d'obtenir une localisation plus précise des zones "à risque".

## METHODE DE MESURE

La mesure utilisée dans cette étude se

base sur l'adsorption du radon sur charbon actif, son élution dans un liquide scintillant. La méthode est très sensible et permet des déterminations rapides (24 h.). Elle présente toutefois le désavantage de ne pouvoir intégrer que sur de courts intervalles de temps (< 48 h.).

Les détecteurs utilisés sont des fioles "PICORAD" de la firme Packard. Ces détecteurs sont composés d'une fiole à scintillation en polyéthylène contenant un canister poreux fixé dans la partie supérieure.

Celui-ci contient une quantité contrôlée de charbon actif (+/- 1 g) et est surmontée d'une couche de dessicatif jouant un double rôle : protection contre l'humidité et barrière de diffusion facilitant une adsorption représentative de la période d'intégration.

Les taux d'accumulation du radon en

fonction du temps sont fournis par le constructeur et vérifiés en laboratoire. La durée idéale d'exposition est comprise entre 24 h. (80 % de la saturation et aucune influence de l'humidité) et de 48 h. (90 % de la saturation mais apparition de problèmes liés aux fortes humidités).

Une fois exposée, la fiole est refermée et envoyée au laboratoire pour élution immédiate.

Le contact du liquide scintillant (matrice de xylène) provoque une réaction exothermique qui a pour effet de dégazer le radon.

L'équilibre radioactif entre le radon et ses descendants est atteint après 3 h. mais le comptage ne démarre qu'après 6 à 8 h. pour compléter la désorption.

L'appareil utilisé est un compteur à scintillation TRICARD 2000 CA de Packard. Les coefficients de calibration ont été fournis par le constructeur et vérifiés en laboratoire par comparaison avec des canisters analysés par spectrométrie gamma.

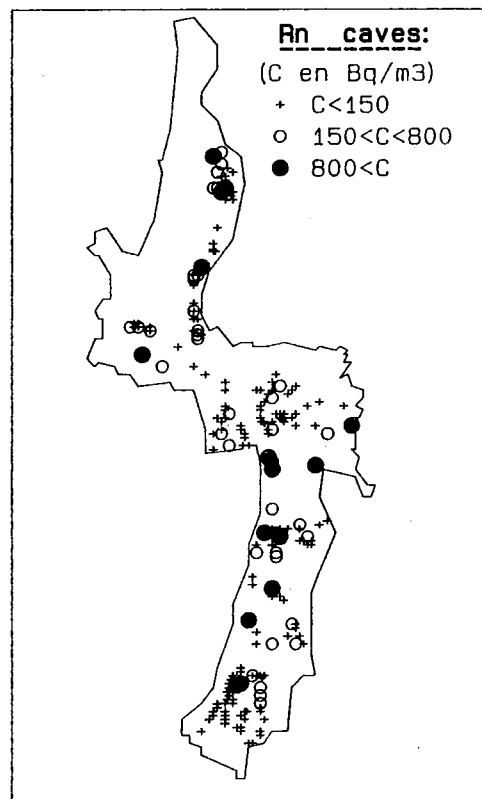
Le problème majeur de la méthode est que le canister intègre mal les variations d'activité durant le temps d'exposition. Ce phénomène peut être minimisé en plaçant le détecteur dans un local le moins ventilé possible (cave) et préalablement confiné pendant quelques heures.

Les mesures obtenues seront bien évidemment des résultats "maximalistes" et ne reflèteront pas toujours la situation au niveau des pièces de séjour.

Elles permettent cependant de définir, de manière standardisée, le risque potentiel lié à une habitation.

## RESULTATS ET REPRESENTATION.

Une liste de 277 habitations fut dressée par l'administration communale de Visé, de manière à couvrir, de façon aléatoire et uniforme, les différents quartiers de la commune.



Carte 2. Mesures de Rn dans les caves de Visé.

Le pourcentage de mesures validées atteint 75 %, ce qui est tout à fait raisonnable.

La carte 2 situe les points de mesures validées, représentés par la classes de radioactivité observée. L'histogramme, ainsi que les principaux paramètres de distribution, sont représentés sur la figure 1.

Comme pour tous les problèmes de cinétique, les phénomènes de diffusion devraient entraîner une distribution log-normale des résultats : on peut constater que tel n'est pas le cas. Il faut en rechercher l'explication dans la structure de nombreuses anomalies uranifères non uniformément réparties.

La seconde caractéristique intéressante de cette distribution est le très haut pourcentage de maisons fortement exposées : près de 10 % des habitations de la commune ont des concentrations de radon dans les caves dépassant 800 Bq/m<sup>3</sup>.

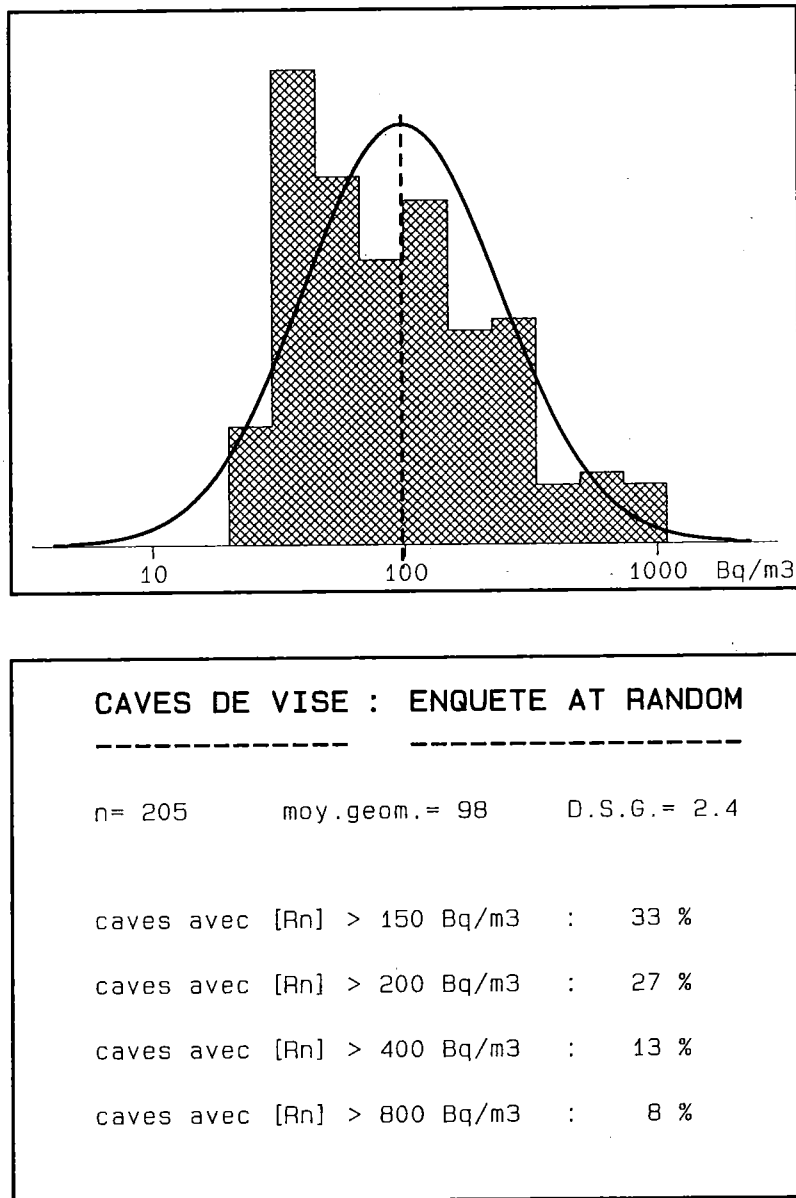


Figure 1. Distribution des concentrations de Rn dans les caves de Visé.

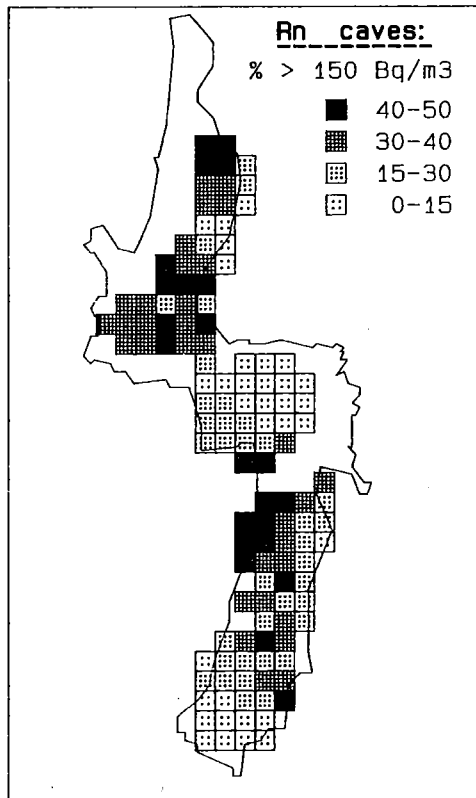
Le problème majeur posé par une représentation cartographique est le choix du paramètre le plus représentatif du problème exposé.

Le procédé adopté fut le suivant : le centre de chaque carré représenté sur la carte 3 correspond au centre d'un cercle de 1 km<sup>2</sup> dans lequel se trouve un minimum de 5 mesures validées. La représentation se base sur le pourcentage de maisons présentant une activité

de radon dans la cave supérieure à 150 Bq/m<sup>3</sup>.

En se référant à cette cartographie, cette enquête révèle une dispersion des zones à problèmes plus large que ne le laissait supposer la campagne de 1988 faite par l'Université de Gand.

les zones exposées qui apparaissent dans la partie Nord peuvent difficilement s'expliquer, étant donné que les roches primaires qui s'enfoncent vers le Nord sont



Carte 3. Cartographie des zones exposées au Rn dans la commune de Visé.

recouvertes par un épais manteau d'alluvions déposé par la Meuse.

La zone des carrières et des anomalies liées aux calcaires apparaissent très nettement et correspond assez bien aux anomalies détectées en 1979 (Herbosch et al. 1979).

Dans la partie sud, les zones exposées semblent se distribuer sans règle apparente et pourraient correspondre à des affleurements plus intenses de schistes ou de grès. Il faut en effet noter que, lors de l'enquête de 1979, plusieurs anomalies uranifères avaient été signalées dans cette zone du houiller.

## TEST D'UTILISATION DE LA CARTOGRAPHIE

La représentation cartographique adoptée trouvera une certaine légitimité si les

maisons situées dans les zones dites à risque se révèlent effectivement contenir de fortes activités de radon.

C'est la raison pour laquelle une seconde enquête fut menée, qui portait sur quarante caves choisies dans les zones exposées.

Les résultats de cette enquête peuvent se résumer comme suit : moyenne géométrique de 268 Bq/m<sup>3</sup>; médiane de 210 Bq/m<sup>3</sup>; 55 % des caves contenant des activités supérieures à 800 Bq/m<sup>3</sup>.

Ce dernier chiffre, à lui seul, fournit une légitimité certaine à la représentation choisie.

Habiter dans une zone à risque n'est pas forcément synonyme d'être exposé à une présence importante de radon. La définition du risque est statistique et différents facteurs peuvent l'atténuer : localisation dans la zone, isolation de l'habitation par rapport au sol, ventilation,...

Il était intéressant de jauger le risque réel à partir de mesures effectuées dans les lieux de séjour. Cette enquête sur 21 habitations choisies parmi celles dont les caves contenaient des concentrations de radon, exprimées en activité, supérieures à 400 Bq/m<sup>3</sup>. Les mesures sont obtenues par détecteurs de traces laissés plus d'un mois dans la salle de séjour.

Les résultats de cette enquête sont donnés dans le tableau 3 et précisent la notion de risque : plus de 40 % des salles de séjour mesurées ont des concentrations de radon, exprimées en activité, supérieures à 200 Bq/m<sup>3</sup> et 5 salles sur 21, soit approximativement un quart, ont des concentrations supérieures à 400 Bq/m<sup>3</sup>.

Au passage, on note l'utilité de la cartographie : un nombre très limité de mesures permet de localiser un nombre important de maisons à problèmes auxquelles des remèdes devraient être appliqués rapidement.

Le rapport entre les concentrations dans

Tableau 3. Enquête R.U.G. (1990).

21 lieux de séjour avec Rn (cave) > 400 Bq/m <sup>3</sup>		
Moyenne arithmétique	Moyenne géométrique	Médiane
294 Bq/m <sup>3</sup>	176 Bq/m <sup>3</sup>	142 Bq/m <sup>3</sup>
Rn (séj.) > 200 Bq/m <sup>3</sup> : 43 %		
Rn (séj.) > 400 Bq/m <sup>3</sup> : 24 %		

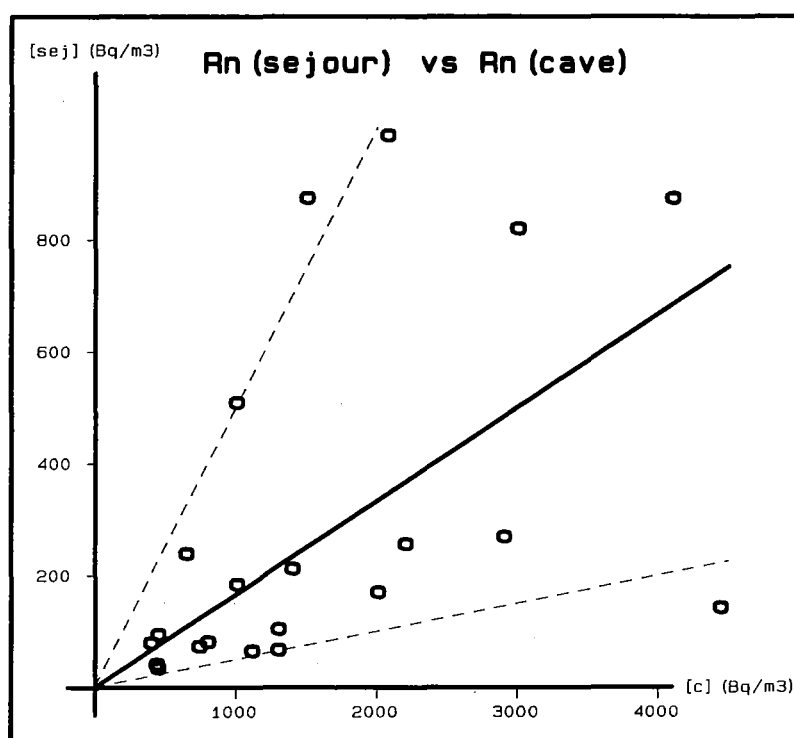


Figure 2. Relation entre l'activité de Rn dans les caves et dans les salles de séjour.

la salle de séjour et dans la cave est représenté sur la figure 2. Celui-ci varie entre 1/2 et 1/20 avec une valeur moyenne de 1/6.

## CONCLUSIONS

La méthode adoptée dans cette étude peut se résumer en trois principes fondamentaux :

1°) choix aléatoire et uniforme de 5 % des

habitations de la commune étudiée.

2°) détermination par scintillation liquide des concentrations de radon dans les caves.

3°) détermination des zones à risque par classes de pourcentage, par km<sup>2</sup>, de caves ayant une activité de radon supérieure à 150 Bq/m<sup>3</sup>.

Cette méthode semble donner de bons résultats : les zones déclarées comme fortement exposées comprennent effectivement un

pourcentage très élevé d'habitations à très haute activité de radon.

Pour ce qui concerne plus particulièrement la commune de Visé, la conclusion de l'étude est que les zones à risque sont beaucoup plus répandues que prévu.

Seuls les quartiers du centre-ville et du sud de Cheratte semblent épargnés.

Il y aurait donc lieu de conseiller à tous les habitants des autres quartiers de faire contrôler les niveaux de concentration de radon dans leur habitation.

## BIBLIOGRAPHIE

**A. HERBOSCH, S.M. DE WITTE, A. PREAT** "Recherches sur les indices de minéralisation uranifères dans la région de Visé".

Professional Paper 1979/6 n° 162

Ministère des affaires économiques. 1979

**G. HOFMAN** "Contamination d'habitations par le radon à Visé.

Enquête et expérimentation d'un remède".

Communication au colloque S.R.B.I. du 17.01.90

**H.M. PRICHARD, K. MARLEN** "Desorption of radon from activated carbon into a liquid scintillator".

Analytical Chemistry, vol. 55, n°1. 1983

**M. RONCA-BATTISTA, D. GRAY** "The influence of changing exposure conditions on the measurements of radon concentrations with the charcoal adsorption technique".

Radiation Protection Dosimetry, vol. 24, N° 1/4. 1988

**M.C. SCHROEDER, U. VANAGS, C.T. HESS** "An activated charcoal-based liquid scintillation analysed airborne Rn detector".

Health Physics, vol. 57, N°1. 1989



## GEOLOGICAL FACTORS CONTROLLING RADON POTENTIAL

J. KEMSKI, B. PLATE, H. SCHNEIDERS, A. SIEHL, R. STAMM, TH. WERNER, J. WIEGAND

Geological Institute, University of Bonn, Nußallee 8, D-5300 Bonn 1, FRG

### ABSTRACT

*Field measurements of Rn-222 and Rn-220 in soil gas combined with geological investigations have shown that radon availability from soil and subsoil depends on a variety of geological factors. Radium concentration of rocks and soils and petrophysical characteristics like density, porosity, permeability, radon emanation power and soil humidity influence principally the diffusive radon component in the interstitial pore volume of soils and rocks. Because of the short half-life times, diffusive Rn-222 migrates at maximum a few meters and Rn-220 not more than a few centimeters. An example for principally geochemically-controlled radon anomaly is given for the site on an abandoned opencast uranium mine in the Saar Nahe Basin, SW Germany. Dissolved in circulating subsurface waters and transported by other soil gases, Rn-222 with its 3.8 d half-live period can migrate over longer distances (up to some hundreds of meters), depending on the velocity of the transporting medium along caverns, fractures, faults, shear zones and cleavage plains. Examples for such structurally-controlled convective radon anomalies are given from areas with low level radium in the eastern Eifel region at fracture zones surrounding a maar volcano, along active fault systems in the Cenozoic Neuwied Basin of the Middle Rhine aera and at shear zones in Paleozoic granites in the southern Oberpfalz of eastern Bavaria.*

### INTRODUCTION

Radon concentration in soil gas is not always directly correlated with radium contents of soils and rocks. Various petrophysical and soil parameters influence the relationship.

Diffusive radon migration does not exceed 5-10 meters (TANNER 1964). It can be superimposed by convective radon. Ground water or soil gas flux can carry advective radon through permeable soils and fractured rocks over considerable distances. The migration distance depends on the velocity of the transporting media and on the half-live times of the radon isotopes. Convective thoron transport is negligible because of its short half-life (55 sec.). Ground water velocities can be several meters per hour in fractured rocks. A mean migration distance of several 100 meters hence is possible.

Development and testing of radon potential mapping techniques have been done in some selected areas of the Federal Republic of

Germany with high total gamma ray signal, active tectonics, Tertiary and Quaternary volcanism and post-volcanic phenomena like CO<sub>2</sub> degassing and mineral sources. The case studies are located near the village Ellweiler in the vicinity of an abandoned uranium mine at the northern border of the Saar Nahe Basin, at the village Döttingen in the Eifel mountains, in the Cenozoic Neuwied Basin in the Middle Rhine valley, and in an area of Paleozoic (Hercynian) granites of the Moldanubian zone in the southern Oberpfalz in Bavaria (fig. 1).

### SOIL GAS SAMPLING AND MEASUREMENT

Rammed boreholes of 22 mm in diameter and 2 m depth are used to sample the soil gas. In this depth most of the foundations of houses are laid and shorttime meteorological influence is reduced. An aluminium tube 20 mm in diameter is inserted into the borehole, the latter being sealed at top by a cone to prevent

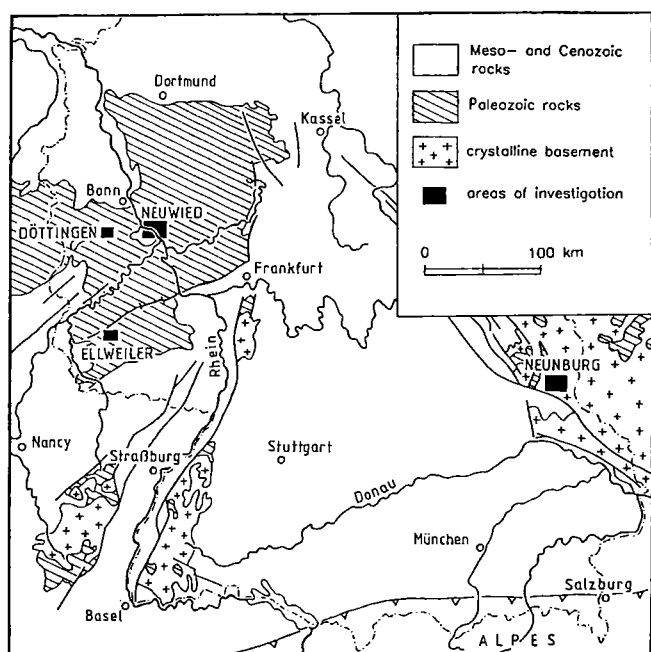


Figure 1. Geological sketch map of the southwestern part of the federal Republic of Germany with location of studied sites.

contamination of soil gas with atmospheric air. 15 l of soil gas are pumped through a measuring chamber of 2.5 l volume with a steady flow rate of 1-2 l/min to obtain stable measurement conditions. The concentrations of  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{H}_2\text{S}$  and  $\text{O}_2$  are measured by different gas sensors and are continuously recorded in a data logger connected with a laptop PC. Constant values are generally obtained after 10-15 min. of pumping time.

For radon activity measurements, 2 l of soil gas is sucked into an evacuated metallic measuring chamber through a drying tube filled with Sicapent ( $\text{P}_2\text{O}_5$ ) and a dust filter to retain radon decay products adhered to aerosols. Radon-222 and Radon-220 are measured by alpha-spectrometry of their direct decay products Polonium-218 and Polonium-216 after electrostatic deposition on a surface barrier detector (KELLER et al. 1982). The measuring chambers are calibrated for radon and thoron.

Time-integrating radon measurements are carried out using the track etch technique. Dosemeters with polycarbonate foil (Makrofol) are buried 2-3 days in 40-50 cm depth.

Calibration, counting and etching of the SSNTD have been done by the Kernforschungszentrum Karlsruhe.

Rock and soil samples from the boreholes have been analyzed for their radionuclide contents (Ra-226, Th-232, K-40) by high resolution gamma spectrometry.

## CASE STUDIES

### 1. Ellweiler

At the northwestern border of the Saar Nahe Basin hydrothermal uranium mineralisation occurs in the late Permian subvolcano complex of the Nohfelden Rhyolite near the small village of Ellweiler (BÜLTEMANN, 1970). Mineralized joints and fissures gave rise to a small and now abandoned uranium mine. They extend with lower uranium concentrations also to the north and south of the mining site. Indoor radon measurements in the neighbouring village of Ellweiler showed the exceedingly high value of  $30 \text{ kBq/m}^3$  in a cellar of a recently constructed house, while other homes gave intermediate values of 0.5 to  $1 \text{ kBq/m}^3$  or less. The main reason for these variations are different types of foundation constructions, but also the natural subsurface radon potential is locally highly variable in this region. In cooperation with the Institute for Biophysics, University of Saarland, which performed indoor and exhalation measurements, we investigated the regional distribution of radon gas concentrations in soils and rocks above and around the nearby uranium mine to find out if there is a correlation with the geological pattern.

At small hills the bedrock is cropping out, mantled by a layer of saprolite and covered by

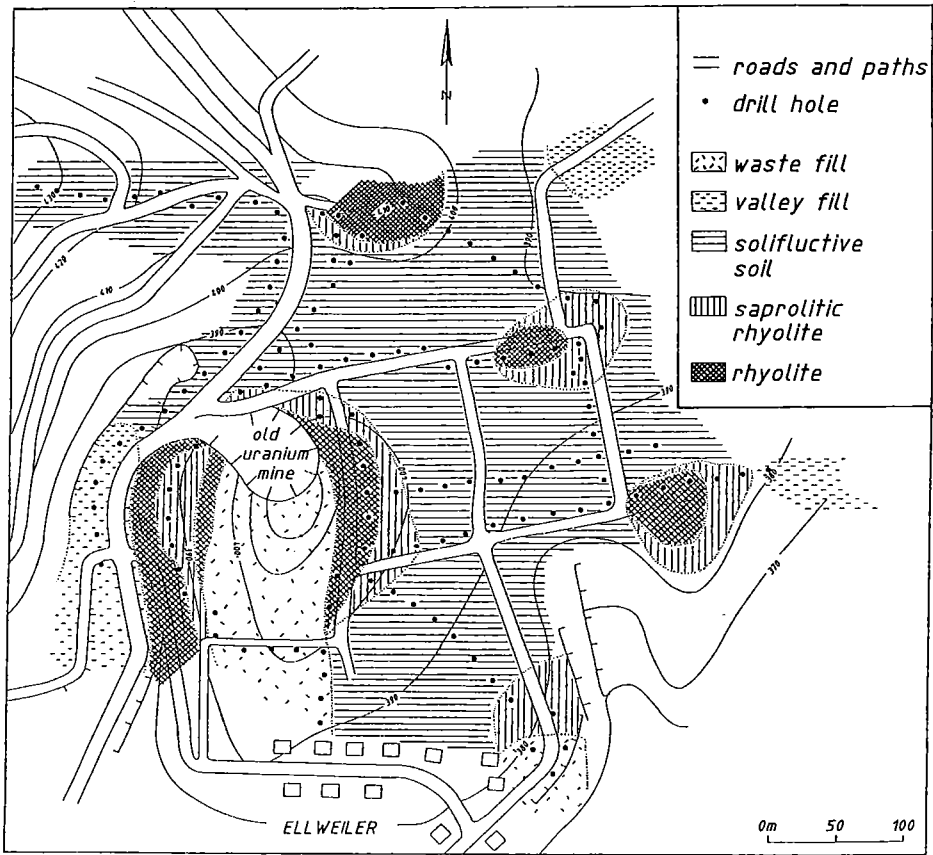


Figure 2. Geological map of Bühlkopf area Ellweiler (Saar-Nahe Basin).

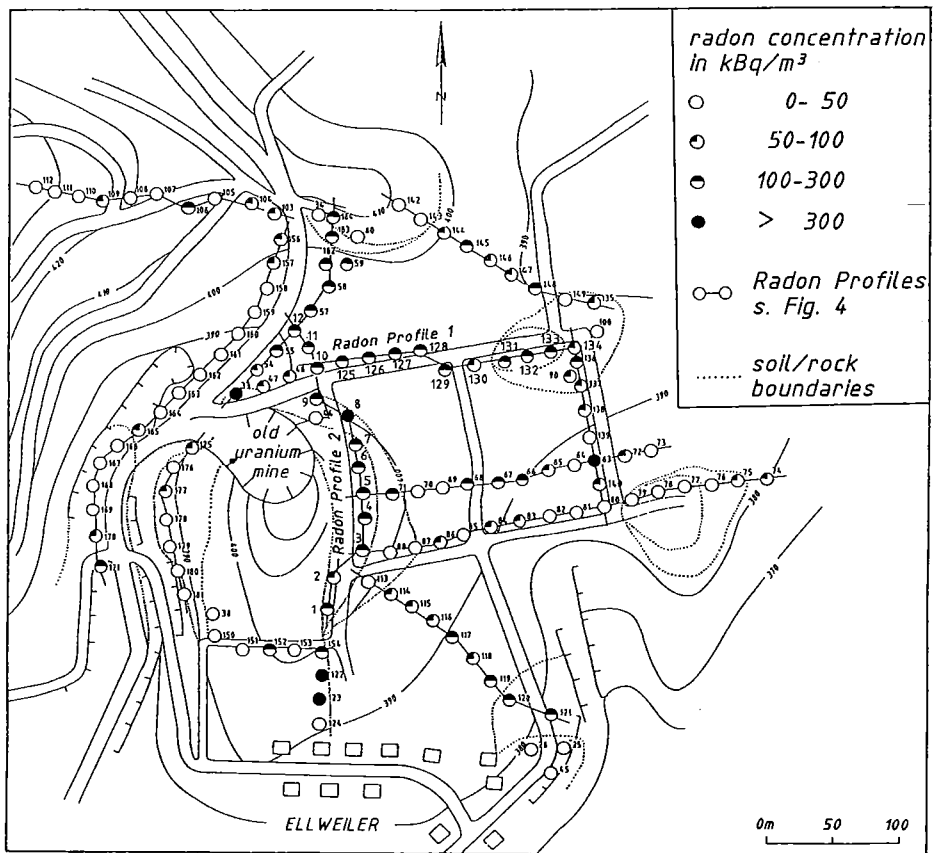


Figure 3. Sample sites and radon activity concentrations in Bühlkopf area.

late Quaternary solifluctive soils, as well as by valley fill and mining tip (fig. 2).

Radon in soil gas was measured as described above in closely spaced 2 m deep boreholes along lines. The radon concentration pattern proved to be rather irregular with a few and long-time persistent "hot spots" (fig. 3). It fits well to the irregular type of uranium mineralization at veins and joints. Generally, the outcropping rocks and saprolites which are highly permeable are degassing readily to the atmosphere, they show low radon concentrations. Where a thin layer of low permeability soil is present, radon may be trapped and this situation gives rise to higher values where the soil is penetrated by the borehole. On the other hand, where a thick cover of low permeability is present, as in the case of the valley fill, only very low concentrations can be found.

Additionally, radon concentrations have been measured by active and passive methods in various depths. Compared with the active methods track etch detectors buried in 40 cm depth show the lowest values (fig. 4). Generally they follow the trend but with minor variations than the active methods. Their concentrations reach only half to one quarter of the higher concentrations measured by the active method at 2 m depth. Similar effects have been mentioned by TANNER (1990) who found that passive detection methods show generally lower signals than active ones because they only register the radon diffusing into the apparatus, whereby dilution may occur. The active measurements at 40 cm are lying in the middle, with stronger variations, they seem to be influenced by atmospheric air.

From specific Ra-226 activity concentration (Ra) of samples, specific density (D), effective porosity (P) and radon emanation power (E) of soil and rock material (BARRETTO, 1970; KÄPPLER, 1984) a tentative activity concentration of radon in the soil gas was calculated to determine diffusive Rn-222

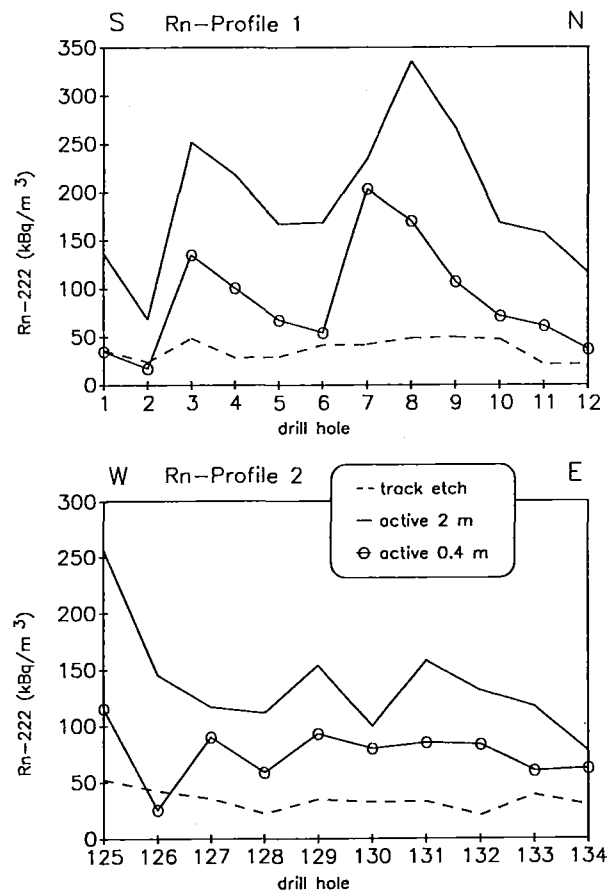


Figure 4. Radon activity concentration profiles in Bühlkopf area.

potential (Rn) of the ground by :

$$Rn(Bq/l) = Ra (Bq/kg) \times E \times D (kg/l)/P$$

Calculated concentrations correspond well with the *in situ* measured effective radon potential (fig. 5). The *in situ* radon values in this case seem to reflect the diffusive radon potential. The small and irregularly distributed anomalies coincide with the subsurface location of mineralized veins.

## 2. Döttingen

A radon screening campaign in the Federal Republic of Germany, initiated by the federal government in 1980, led to the detection of several houses with indoor radon concentrations of more than 500 Bq/m<sup>3</sup> and up to 3000 Bq/m<sup>3</sup> in the small village of Döttingen in the Eifel mountains, western part of the Rheinisches

Schiefergebirge. These indoor concentrations belong to the highest values obtained in that study, where only 3 percent of the investigated houses show values of more 300 Bq/m<sup>3</sup>. Supplementary indoor measurements by the Institute of Biophysics, University of Saarland, confirmed the high indoor radon levels (KELLER et al., in press) in Döttingen. The older houses with insufficient

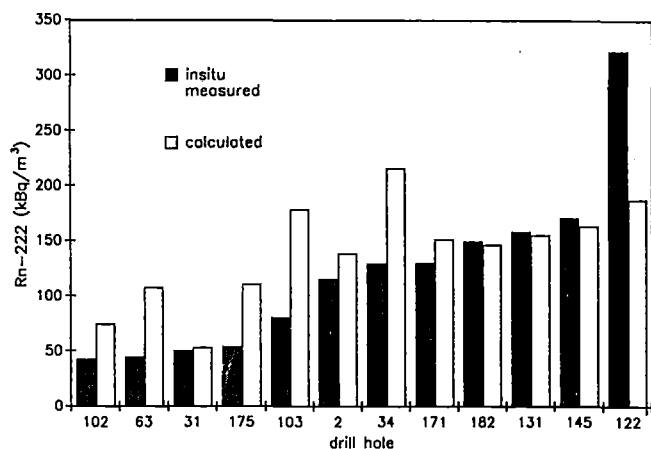


Figure 5. Comparison between measured in situ radon activity concentration and calculated diffusive radon potential in Bühlскопff area.

ground insulation, e. g. where concrete slabs in cellar rooms were lacking, show especially high radon activity. Building materials could be excluded as radon source. The village lies on a narrow E-W striking ridge between a small creek valley in the north and a nearly circular depression of 1.2 km in diameter in the south (fig. 6, 7). Geomagnetic and gravimetric investigations demonstrate that the southern depression was created by the eruption of an early Quaternary maar type volcano (STACHEL and BÜCHEL, 1989). Today the volcanic vent is buried under a thick cover of late Quaternary lake sediments, solifluction sheets and basaltic lapilli tuffs from the Niveligsberg volcano which erupted on the southwestern border of the maar in late Quaternary. The bedrock of this region consists of folded silt- and sandstones of Lower

Devonian age (Upper Siegenium). The oldest volcanic rocks of the region are small basaltic pipes of Tertiary age which penetrate the Paleozoic sedimentary rocks.

the Paleozoic basements is intersected by a younger NW-SE striking system of normal faults, probably of Tertiary age. The Eschbach fault runs along the Eschbachtal east of Döttingen (fig. 6). The major Döttingen fault striking parallel to it was discovered by our geological observations and radon measurements. A series of about 90 boreholes was set up in the area of the village and its surroundings. Rock and soil samples show very low radionuclid concentrations devonian and Quaternary sediments and their soils have a mean equivalent concentration of 2,5 ppm uranium and 11.1 ppm thorium. The mean values of the volcanic rocks are very similar with 2.6 ppm uranium and 10.7 ppm thorium. The measured Rn-222 concentrations in soil gas range from 5 to 60 kBq/m<sup>3</sup>. A comparison between diffusive radon potential, calculated from Ra-226 activity as described above, and the effective in situ radon values show clearly that in most sample sites only diffusive Rn-222 which does not exceed 15 kBq/m<sup>3</sup> occur (fig. 6). Higher values are located along the Döttingen and Eschbach faults. North of Döttingen, the fault is flanked by a basalt pipe. South of the village, it is covered by the young filling of the maar volcano, except at the southern wall, where high radon values mark the other end of the fault. The southernmost radon anomaly may also be caused by the maar surrounding fracture zone, as well as the isolated high values at the eastern wall. The interference of maar-surrounding fractures and the fault at Döttingen ridge may be the reason for the concentration of radon anomalies in and near the village.

At several locations time series of radon measurements in the boreholes were taken in 1988 and 1989. The background level of up to 5-10 kBq/m<sup>3</sup> showed good stability. The

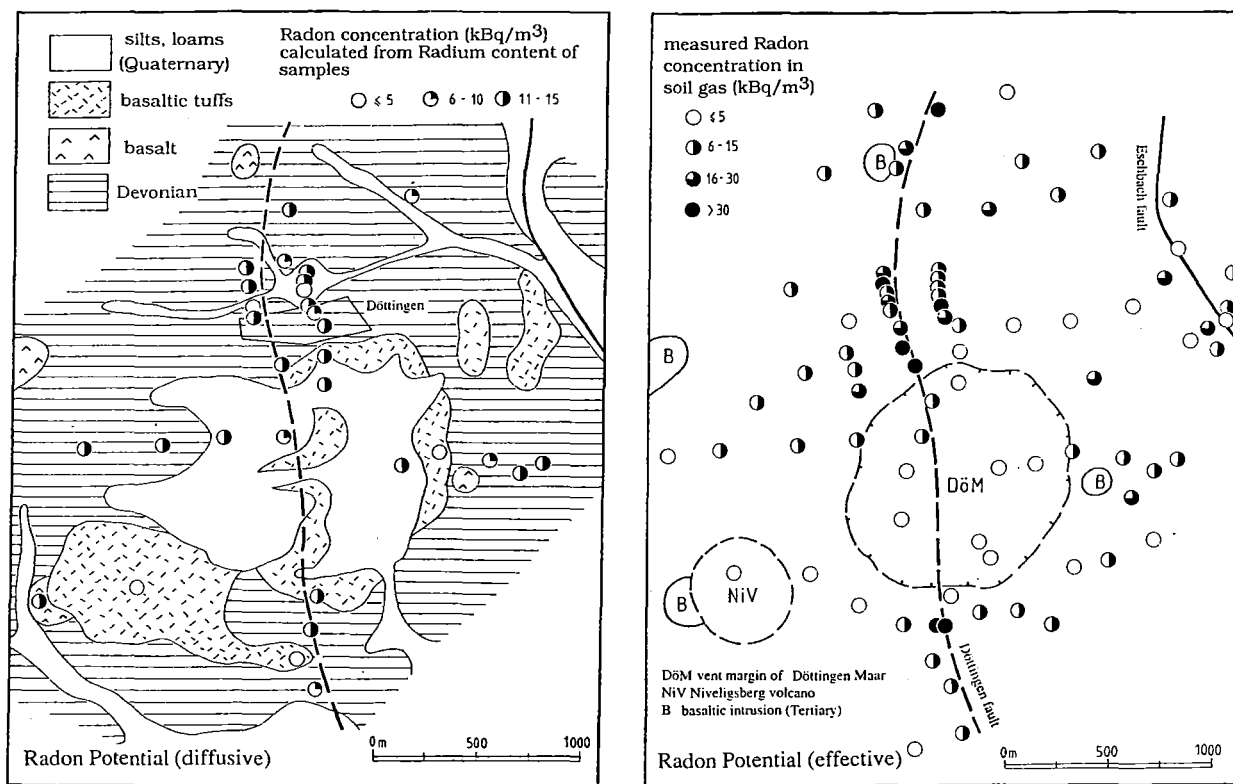


Figure 6. Diffusive and effective radon potential in Döttingen area.

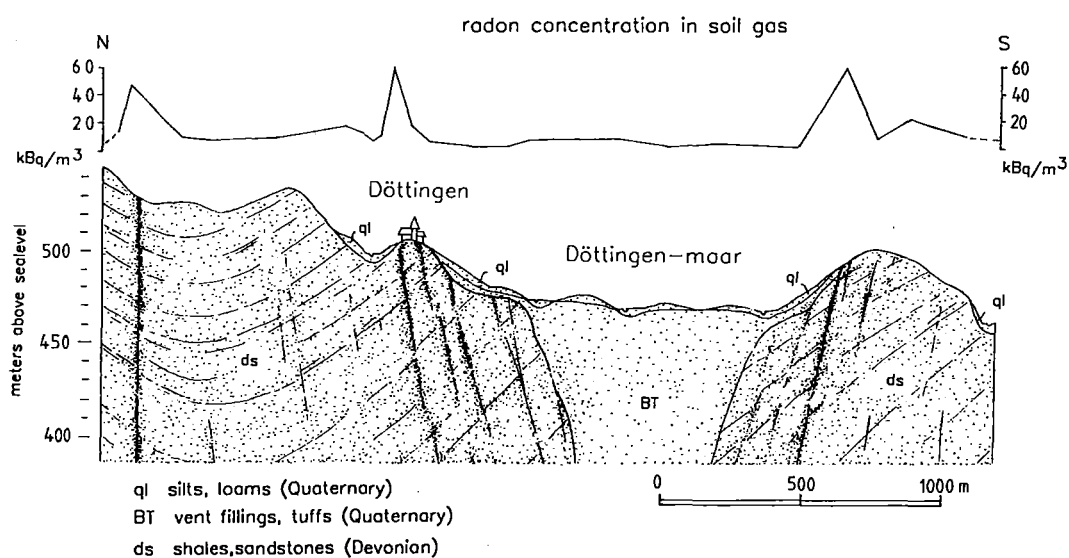


Figure 7. Geological cross section (N-S) and potential radon pathways of Döttingen area.

anomalies with higher values up to  $60 \text{ kBq/m}^3$  were fluctuating in time with values down to  $1/3$  or less.

From fig. 6, it is evident that locations with radon concentrations above the background level of the diffusive radon potential are caused by convective transport of radon with groundwater and soil gases over longer distances. Faults and fracture zones obviously act as pathways for convective radon transport (fig. 7). The possible carrier media and driving forces for this type of transport of radon are still unexplored in detail. It could be postvolcanic  $\text{CO}_2$  as well as groundwater circulating in the fault zones, which are known in this region as important aquifers. Of course, the 3.8 d half life of radon limits the transport range of dissolved radon in water to a few hundred meters, but dissolved radium in some cases might also be a source for newly produced radon. It is well known from literature (SCHERY & al., 1982; HOLUB & BRADY, 1981) that pressure-induced flow in porous and fractured media is a possible mechanism for radon migrations in the ground, with channeling of flux in cracks and faults.

Even a "pumping effect" due to episodic tectonic stress variation at active faults or by periodic pressure variation due to earth tides may occur as a driving force.

### 3. Neuwied Basin

The Cenozoic Neuwied Basin (fig. 8) is a young structural depression at the southern extension of the Lower Rhenish graben system. Its subsidence started in the lower Tertiary (Upper Eocene to Lower Oligocene). Present seismic activity and displacement of very young sediments show that the tectonic movements are still going on, especially in the southwestern part of the basin.

The Paleozoic basement consists of Lower Devonian sedimentary rocks (clay shales, greywackes, sandstones) with rather low uranium (3-4 ppm) and thorium (10-14 ppm) contents. The Tertiary and Quaternary history of the basin is characterized by river-, lake- and aeolian sediments (gravel, sand, clay, loess) and volcanic rocks (selbergitic tuff, foiditic lava). The main part of the basin is covered by a layered sheet of pumice, deposited by the

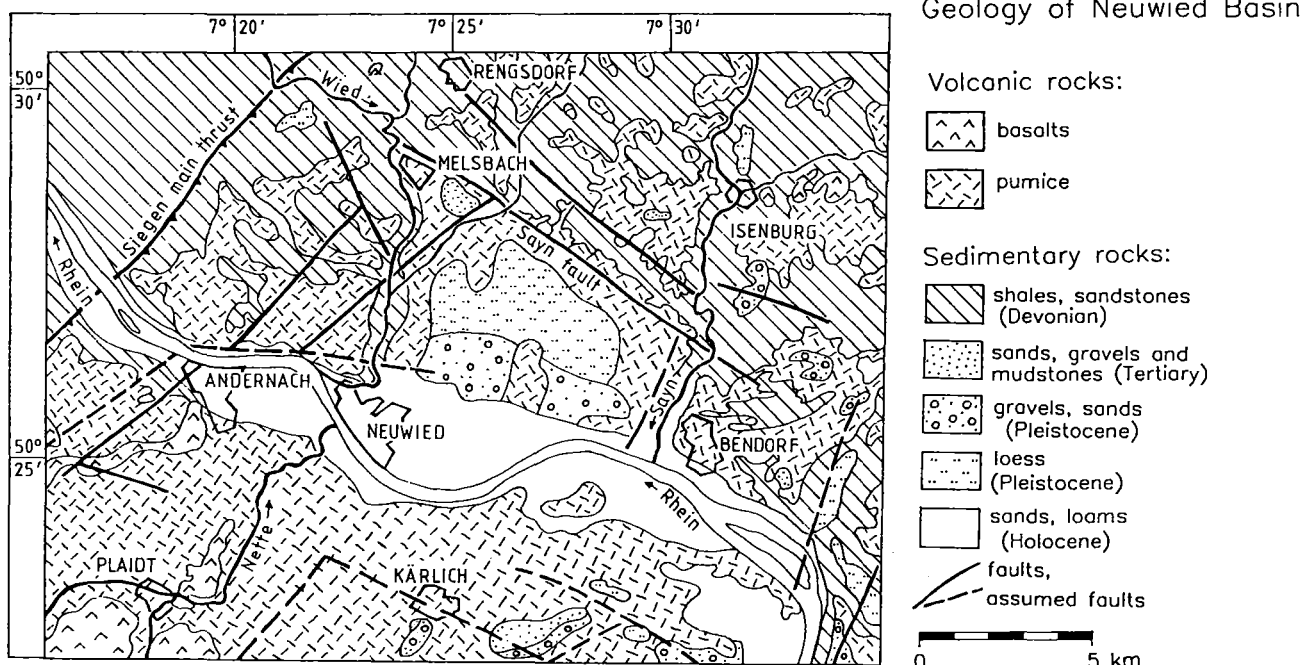


Figure 8. Geological sketch map of Neuwied Basin, Middle Rhine (from AHRENS & SCHMIDT).

Laacher see volcano some 11 000 years ago. Only its lowest layers of restricted occurrence have high radionuclide contents (uranium 40 ppm, thorium 120 ppm), whereas the upper ones are characterized by 2-3 ppm uranium and 7-13 ppm thorium (WÖRNER et al. 1983).

The Sayn fault system at the northeastern border near Neuwied has been selected to investigate correlations between tectonic features, radon activities and the composition of soil gas.

One method to estimate the diffusive radon potential is based on the simultaneous measurements of Rn-222 and Rn-220. Because of its short half life thoron can migrate only by diffusion with a maximum migration distance of less than 1 m (TANNER, 1964). On the assumption that emanation rate into the pore volume is the same for Rn-222 and Rn-220, thoron (Tn) concentration in soil gas and Ra-226 (i.e. Ra-224) content of soil and rock allow a rough estimation of the expected radon (Rn) concentration in soil gas as follows :

$$\text{Rn}(\text{kBq}/\text{m}^3) =$$

$$\text{Tn}(\text{kBq}/\text{m}^3) \times \text{Ra-226}(\text{Bq}/\text{kg})/\text{Ra-224}(\text{Bq}/\text{kg}).$$

At the northeastern boundary of the Neuwied basin the transition zone between the young sediments of the basin and the old Devonian bedrock was investigated in small scale near Melsbach (fig. 9).

Radon profiles 50-100 m long were measured across the NW-SE striking Sayn fault.

The distance between the boreholes is generally 5 m.

The profiles are characterized by radon anomalies of 80-120 kBq/m<sup>3</sup>, which exceed the background values by about four to five times. Every peak shows ascending and descending flanks and is stable in time, as repeated measurements have demonstrated. The number of peaks indicate that there is not just one single fault but a fault system. One peak is situated at the lithologic boundary between Devonian rocks and young sediments (meter 10 in fig. 9). The other peaks (meter 50 and 75 in fig. 9) point to a stepwise displacement of the younger sediments at auxiliary faults.

The difference between the *in situ* measured Rn-222 concentration in soil gas and the calculated diffusive Rn-222 potential (fig. 10) may be regarded as the convective radon

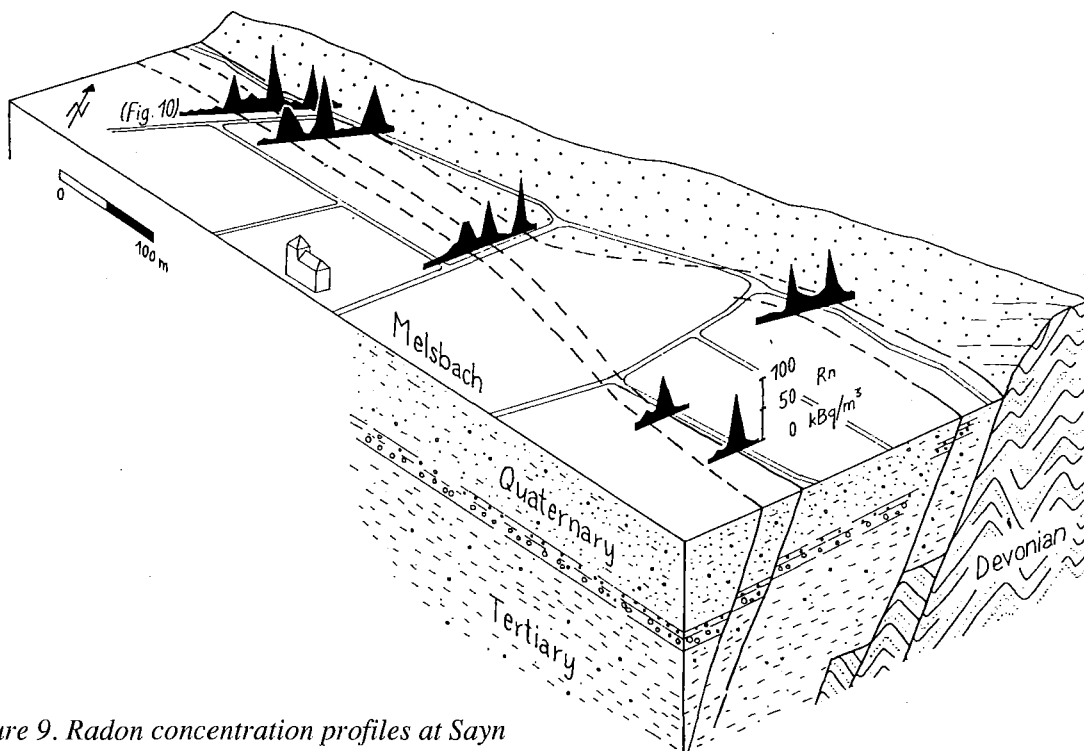


Figure 9. Radon concentration profiles at Sayn system in the eastern part of Neuwied Basin.



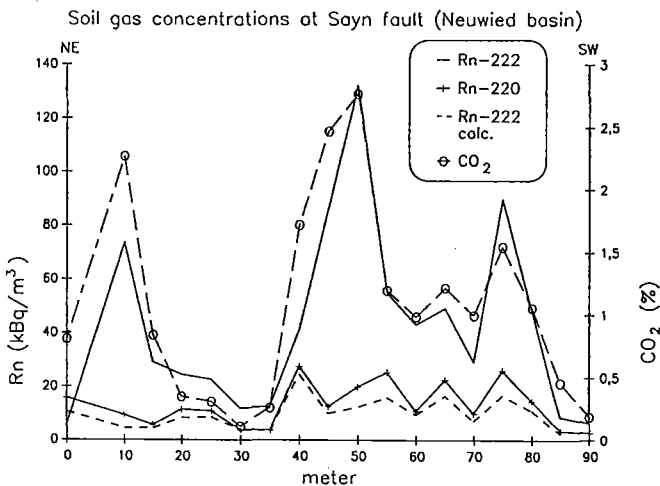


Figure 10. Soil gas concentrations at Sayn fault.

component, which in this case is the major contribution to the structurally-controlled radon anomalies. The strong positive correlation between radon and  $\text{CO}_2$  points to the carrier medium, fracture zones and faults being the pathways. For  $\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$  and  $\text{SO}_2$  no mutual relation with concentration of radioactive noble gases has been found.  $\text{H}_2\text{S}$  and  $\text{SO}_2$  (both  $<5$  ppm) vary slightly, while  $\text{O}_2$  is negatively correlated with  $\text{CO}_2$ .

#### 4. Neunburg Granite

The Precambrian to Paleozoic basement of NE Bavaria consisting of igneous and high grade metamorphic rocks is one of the regions with high natural background radiation level in the western federal Republic of Germany (BMI 1978). The outcrop area of the Neunburg Granite, southern Oberpfalz, has a mean exposure rate of 300 nSv/h.

The Neunburg Granite belongs to the older Hercynian granites ( $300 \pm 6 \times 10^6$  years) which intruded into Moldanubian gneisses of various composition (BADER, 1959). The granite is coarse-grained porphyritic, with euhedral K-feldspar phenocrysts of maximum size of 6 cm. Two steeply dipping shear zones

striking NW-SE transect the massif and the surrounding gneisses (fig. 11). They are composed of cataclastic and mylonitic deformed granites and gneisses. Near the NW junction of these zones, several smaller uranium mineralizations have been found.

The northern, major shear zone traverses the center of the intrusion and separates the granite into two different blocks (fig. 12). A finegrained northern part with mean K-feldspar phenocrysts of 1.3-1.5 cm and intrusions of aplites contrasts with a coarser grained southern part containing K-feldspar phenocrysts up to 6 cm in size and large xenoliths. The northern granite is enriched in Ti, Rb, Zr, La and Ce compared to the southern part. The uranium concentration of both parts is similar, but the thorium content in the northern granite (and to some extent also in the cataclastics and mylonites of the northern shearzone) considerably exceeds that of the southern part. One assumption to explain these differences is a major vertical movement along the shearzone which brought together two different intrusive levels of the granite by dislocation. Another possibility are two separate intrusions and development of a shear zone along the contact. A section across one of the shear zones (fig. 12) shows radon activities as calculated from uranium and thorium concentrations in the northern as well as in the southern part, a typical indications of a high portions of diffusive radon. In the fracture zone, high radon values accompanied by normal thoron values definitely point to a substantial component of convective radon.

Influence of the geomorphological situation and the distribution of alluvial and solifluction soil cover are demonstrated by measurements of radon and thoron activities along a builtup slope in the village of Thanstein in the northern part of the massif (fig. 13).

Low concentrations occur in soil gas at the top of the slope where the outcropping bedrock is readily degassing, and in the regions of thick

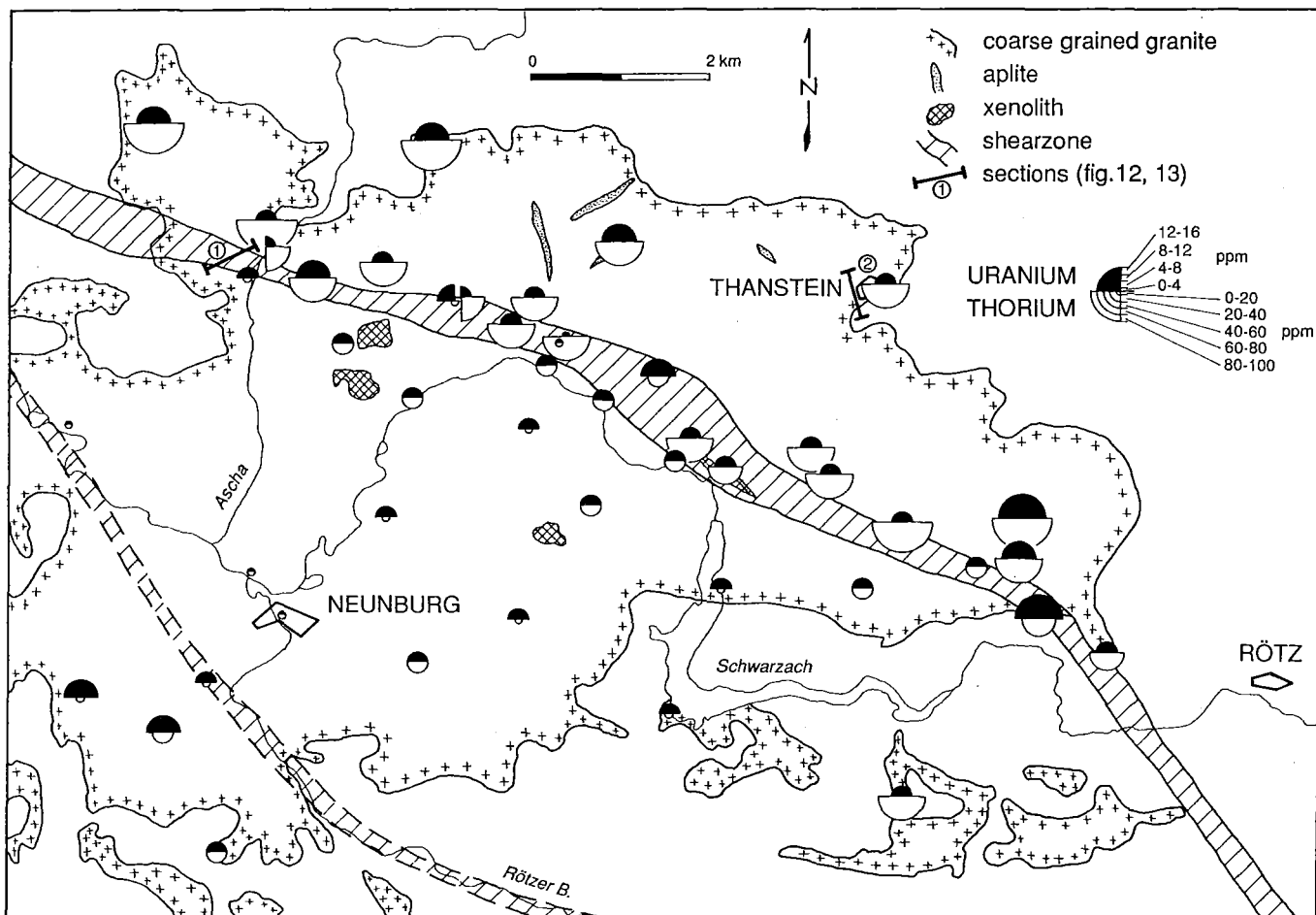


Figure 11. Geological sketch map of Neunburg granite with uranium and thorium concentrations.

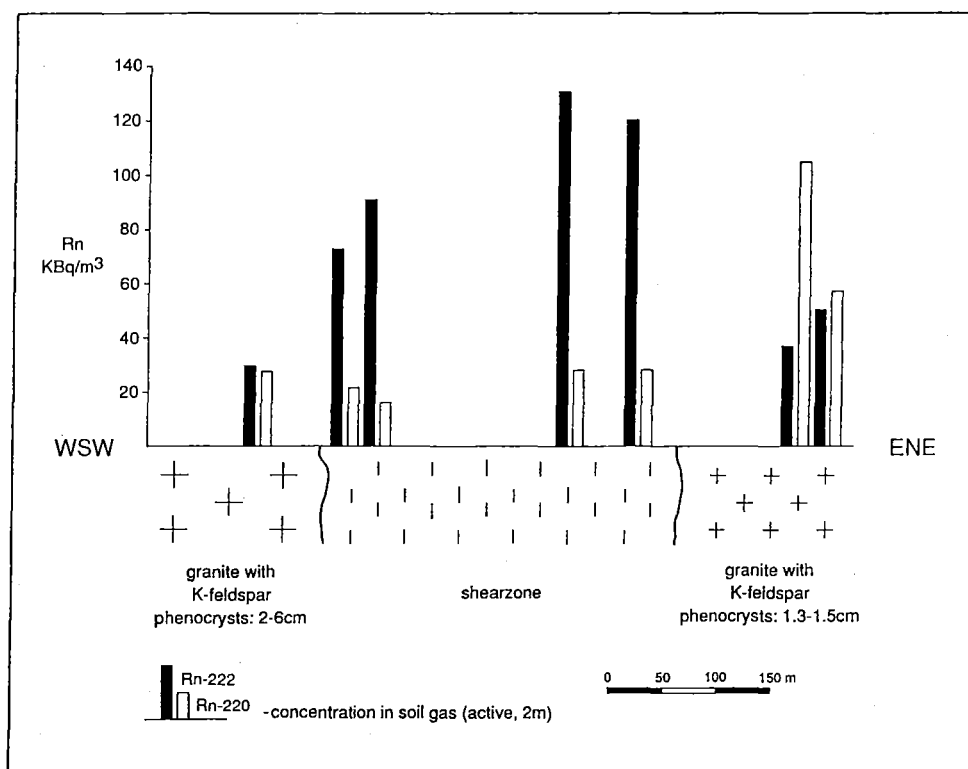


Figure 12. Radon and thoron activity concentrations across the main shear zone (section 1, fig. 11).

and impermeable soil cover at the foot of the slope, which seals the bedrock and structural pathways. The middle part of the slope is characterized by higher radon concentration in the soil air probed by the boreholes. Here, a thin soil caprock is sheltering and trapping the upward-migrating radon, which might enter into houses if their foundations penetrate the soil cover, as the boreholes did.

**CONCLUSION**

In conclusion, it is shown that the subsurface geological framework governs the radon potential and that both diffusive (geochemical) and convective (structural) components could be discriminated. The large scale effect of deeper seated geological bodies and structures is modified locally in smallscale at the

earth's surface by the geomorphological situation, i.e. the distribution and thickness of overlying soil cover. The soil cover controls the radon exhalation to the atmosphere and the transition into houses.

**ACKNOWLEDGEMENTS**

The investigations were financially supported by the Bundesminister für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Friendly support and help in the field and in the laboratory by Priv. Doz. Dr. G. Keller and Dipl.-Phys. M. Schütz (Institut für Biophysik, Univ. d. Saarlandes), Dr. A. Reineking (Zentr. Isotopenlabor Univ. Göttingen), Dr. P. Herzog (Staatl. Materialprüfungsamt Dortmund) and Dr. J. Schmitz (Kernforsch-Zentrum Karlsruhe) are highly appreciated.

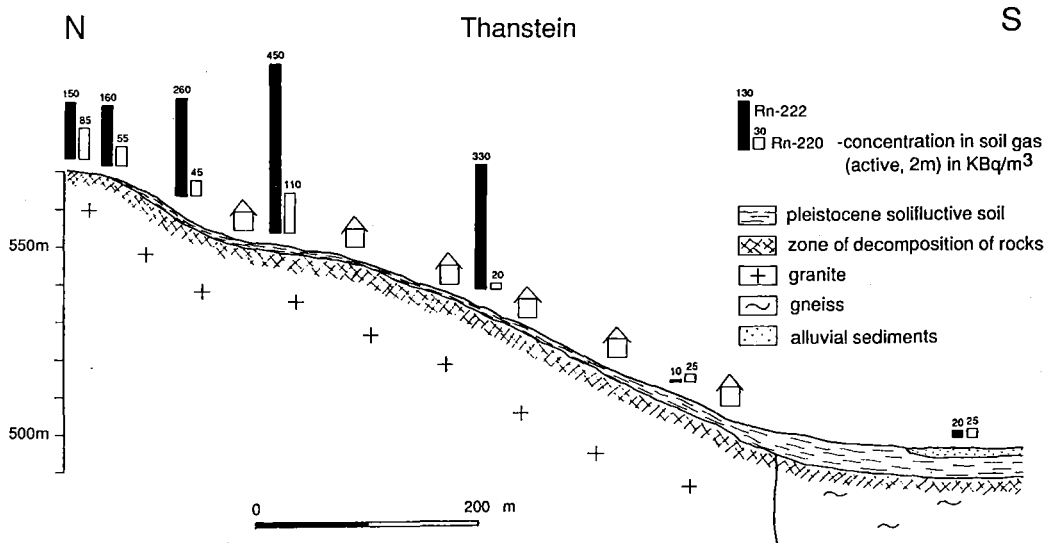


Figure 13. Radon and thoron activity concentrations along a built-up slope at Transtein (section 2, fig. 11).

## REFERENCES

- AHRENS, W. & SCHMIDT, W.** (without year) : Erläuterungen zur Geologischen Übersichtskarte der Eifel 1 : 200000.- 16 p., Bonn.
- BADER, H.** (1959) : Erläuterungen zur Geologischen Karte von Bayern 1 : 25000, Blatt Nr. 6640 Neunburg vorm Wald - 132 p. München.
- BARRETTO, P.M.C.** (1975) : Radon -222 emanation characteristics of rocks and minerals.- Radium in uranium mining, IAEA - PL - 565/1, p. 129-150., Vienna.
- BMI** (Bundesminister des Innern), (1978) : Die Strahlenexposition von außen in der Bundesrepublik Deutschland durch natürliche radioaktive Stoffe im Freien und in Wohnungen -BMI Forsch. Berht, 40 p., Bonn.
- BÜLTEMANN, H.** (1970) : Die Uranlagerstätte Bühlkopf bei Ellweiler.- Der Aufschluß, Sonderheft 19 zur Jahrestagung der VFMG in Idar - Oberstein, p. 129-134, Heidelberg.
- HOLUB, R.F. & BRADY, B. T.** (1981) : The effect of Stress on Radon Emanation from Rock.- J. Geophys. Res., v. 86, n° B3, p. 1776 - 1784, Washington D.C.
- ISRAEL, H. & BJÖRNSON, S.** (1967) : Radon and Thoron in Soil Air over Faults.- Zeitschrift f. Geophysik, v. 33, p. 48-64., Berlin.
- KÄPPLER, R.** (1984) : Integrierende Radonmessungen mittels Festkörperspurdetektoren für die Lösung ausgewählter ingenieurgeologischer Probleme.- Freiburger Forschungshefte, v. C-392, 129 p., Leipzig.
- KELLER, G. FOLKERTS, K.H. & MUTH, H.** (1982) : Method for the determination of  $^{222}\text{Rn}$  (radon) - and  $^{220}\text{Rn}$  (thoron) - exhalation rates using alphaspectroscopy. - Radiation Protection Dosimetry, v. 24, n° 1/4, p. 43-46, Ashford.
- KELLER, G., SCHNEIDERS, H., SCHÜTZ, M., SIEHL, A. & STAMM, R.** (in press) : Indoor radon correlated with soil and subsoil radon potential - a case study.-Environmental Geology, New York.
- SCHERY, S.D., GAEDDERT, D.H. & WILKENING, M.H.** (1982) : Transport of radon from Fractured Rocks.- J. Geophys. Res., v. 87, n° B4, p. 2969 - 2976, Washington D.C.
- STACHEL, Th & BÜCHEL, G.** (1989) : Das Döttinger Maar : Fallstudie eines großen tertiären (?) Tuffschotes im Vulkanfeld der Hoheifel.- Zeitschrift d. Deutschen Geol. Ges., v. 140, p. 35-51, Hannover.
- TANNER, A.B.** (1964) : Radon migration in the ground : A review.-in : ADAMS, J.A.S.; LOWDER, W.M. (eds.) : the Natural Radiation Environment, v. 1, p. 161-190, Chicago.
- TANNER, A.B.** (1990) : Error in Measuring Radon in Soil Gas by means of Passive Detectors.- Nuclear Geophysics, (to appear).
- WÖRNER, G. BEUSEN, J.M., DUCHATEAU, N., GIJBELS, R. & SCHMINCKE, H.U.** (1983) : Trace elements abundances and mineral/melt distribution coefficients in phonolites from the Laacher See Volcano (Germany).- Contrib. Mineral. Petrol., v. 84, p. 152-173, Berlin, Göttingen, Heidelberg.

## RECOGNITION OF RADON HAZARD IN WESTERN IRELAND : THE ROLE OF GEOLOGICAL FACTORS

**P.J. O'CONNOR**

Geological Survey of Ireland, Beggar's Bush, Haddington Road, Dublin 4

### ABSTRACT

*Recent indoor radon reconnaissance surveys in Ireland have identified high radon sites overlying Carboniferous rocks in the western part of the country. Soil radium anomalies are broadly coincident with the radon pattern. It is not known, with any certainty, which particular uranium-bearing, rock type or stratigraphic formation is acting as a source for the geographically widespread Ra and Rn anomalies. Uraniferous phosphorites, which actively exhale radon, are known from the Carboniferous succession in western Ireland but their outcrop is restricted. The most recent field studies suggest that several geological factors influence radon availability and migration including fractures zones, overburden composition and aquifer characteristics.*

### INTRODUCTION

In the course of a national radiometric survey carried out by the Geological Survey (partly funded by the EC) and aimed at delineating those areas of the state where there is the greatest probability of finding radioactive mineral deposits, some 20000 km of carbone reconnaissance were completed in five major geographic regions of the Irish Republic (O'Connor 1981). The carbone data are supplemented by over 100 gross-count gamma readings on representative rock lithologies from these regions. The regions are dominated by pre-Carboniferous rocks and are peripheral to the central limestone area of the country (Fig. 1). The latter area was not reconnoitered as it is mainly drift-covered and underlain by limestone which possesses a low geochemical favourability for uranium enrichment.

The reconnaissance survey was successful in detecting a large number of radiometric anomalies. These anomalies represent sites at which a greater than average concentration of one or more of the radioactive elements uranium, thorium and potassium have accumulated in rocks or soils. As an potential indigenous energy resource, uranium is by far the most important of these radioelements.

Some of the more promising radioactive target identified by the limited reconnaissance survey include :

I. Caledonian granite plutons (e.g. Leinster, Galway, Barnesmore, Rosses, Main Donegal).

II. Ordovician acid volcanic rocks of Counties

Wicklow and Wexford.

III. Old Red Sandstone rocks southwest of the Leinster Massif.

IV. Namurian phosphates of the Clare/Kerry basin.

V. Tertiary granophyres of the Carlingford Complex.

VI. Associations of radioelements with volcanogenic base metal deposits (e.g. Avoca).

These lithologies also represent sites of potentially high radon emanation.

### INDOOR RADON IN IRLAND

With the gradual recognition that radon-222 and its short-lived daughter products (Po-218, Pb-214, Bi-214 and Po-214) in indoor air represented a significant health risk in radiological terms, regional surveys aimed at assessing indoor levels of radon in Irish homes commenced in 1983. Following an initial reconnaissance of indoor radon, carried out by workers at University College Dublin (UCD) in the period 1983-1985, a more extensive national survey was completed in the period 1985-1989 (Mc Laughlin and Wasiolek 1988). The surveys, partly funded under the EC Radiation Protection Programme, were population-weighted with most solid state nuclear track detectors (SSNTD's) placed in the larger cities and towns; a relatively small number of detectors were placed in rural households. No significant account was taken

of geological factors in the design of these population-oriented surveys.

The national surveys, based on 1259 households nationwide, showed that the median level of indoor radon in Ireland was 34 Bq/m<sup>3</sup> (arithmetic mean 60 Bq/m<sup>3</sup>) which corresponds to an estimated dose equivalent of 1.7 mSv/year from radon alone. The findings were similar to those found in other EC countries (e.g. Belgium, Denmark and Germany) but were somewhat higher than the reported U.K. mean of 22 Bq/m<sup>3</sup>. Some 4 % of houses (representing 140 000 people nationwide) had indoor radon concentrations in excess of 200 Bq/m<sup>3</sup>, the reference level recently adopted by the NRPB in Britain and the Nuclear Energy Board (NEB) in Ireland.

In certain rural households, particularly in western Counties (Galway, Clare, Mayo), indoor radon levels as high as 1700 Bq/m<sup>3</sup> were detected. No obvious geological factors could be found to account for the distribution of anomalous sites over a widespread region mainly underlain by Carboniferous carbonate rocks. A further, more detailed and geographically-based survey in preliminary results (Table 1) show that up to 27 % of the 538 houses surveyed had indoor radon levels in excess of 200 Bq/m<sup>3</sup> while 7.8 % of houses had levels in excess of 400 Bq/m<sup>3</sup> (corresponding to a dose equivalent of 20 m Sv/year and lifetime risk of contracting lung cancer of 5 %).

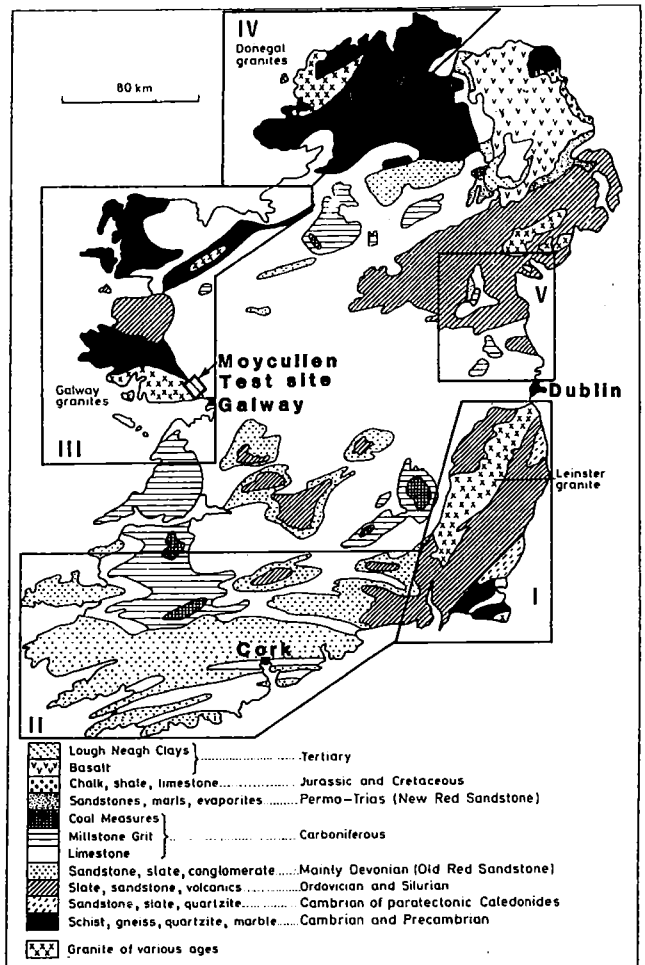


Figure 1. Location and extent of regions covered by national radiometric survey.

Table 1  
Household Exposure to Radon in Ireland

Region Surveyed	Number of Houses	Percentage of houses in excess		
		100 Bq/m <sup>3</sup>	200 Bq/m <sup>3</sup>	400 Bq/m <sup>3</sup>
National	1,259	12.0	4.0	1.6
Galway	213	28.2	15.0	4.7
Clare	174	9.2	2.3	1.1
Mayo	151	25.8	9.9	2.0

Table 2

Mean and standard deviations of K, U and Th and heat production estimates in the Main Galway Granite and country rocks. Determinations from each of the Murvey Granite locations sampled are also shown separately.

Unit	Lithology (No. of samples)	Mean and Standard Deviation			
		K %	U ppm	Th ppm	Heat Prod. u Wm <sup>3</sup>
Spiddal Dome	Granodiorite (75)				
Carna Dome	Granodiorite (50)	3.20 (.50)	4.66 (1.84)	16.08 (4.77)	2.67 (.75)
Galway-Kilkieran Dome	Granodiorite (140)	3.30 (.55)	4.38 (1.38)	15.75 (4.84)	2.53 (.50)
	Adamellite (262)	3.70 (.36)	6.39 (1.52)	22.10 (3.25)	3.50 (.52)
Banded Zone	Diorite and granodiorite (22)	3.11 (.59)	4.47 (1.83)	14.91 (4.79)	2.48 (.75)
Murvey Granite	Granite and alkali granite (74)	3.97 (.40)	9.67 (4.35)	32.91 (8.40)	5.14 (1.43)
Minoir Plugs (Lettrmore)	Granodiorite (6)	3.46 (.50)	4.79 (1.83)	17.96 (4.78)	2.81 (.75)
Granite Dykes	Aplites, porphyries (11)	3.74 (.49)	7.78 (1.91)	33.68 (5.79)	4.70 (.85)
Country'rock South Connemara Group	Metasediments + metavolcanics (21)	1.71 (.66)	1.90 (1.9)	6.95 (5.54)	1.13 (.86)
Murvey Granite	Costelloe (31)	3.89 (.50)	12.38 (2.72)	41.21 (7.63)	6.41 (1.18)
	Lettermullan-Gorumna (23)	4.06 (.50)	5.43 (2.23)	28.57 (5.93)	3.77 (.91)
	Kilkieran (8)	3.94 (.50)	11.35 (2.44)	24.11 (5.85)	4.96 (.95)
	Carna (6)	3.75 (.50)	9.10 (2.32)	24.65 (5.87)	4.40 (.93)
	Murvey (6)	4.32 (.51)	10.30 (2.41)	26.65 (5.89)	4.90 (.95)

After Feely and Madden (1986)

As a result of these findings, a project aimed at the assessment of geological factors influencing the occurrence of radon hazard areas in karstic terrains will commence in October 1990. The multidisciplinary project, which has received support under the Radiation Protection Programme of the EC, will combine knowledge from the fields of geology, hydrogeology, geochemistry and radiation physics. The institutes involved are the Geological Survey of Ireland (Co-ordinator), the Nuclear Energy Board, the Physics Dept. University College Dublin, the Physics Dept. Trinity College Dublin and the Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover (F.R.G.). A test site, on the boundary between a uraniferous granite and overlying karstic limestones has been selected in western Ireland for detailed investigation.

## THE MOYCULLEN TEST SITE

### A) Geological Setting

The Moycullen test site straddles the NE contact zone of the late Caledonian Galway Granite (Fig. 2). Carboniferous limestones unconformably overlie the granite to the north and east. The NW-trending granite-limestone

contact shows strong topographic expression and may be faulted locally with the Granite occupying the higher ground to the SW and the limestone underlying the gently undulating plain to the NE, where a number of dissolution lakes are present. NW of Moycullen, a wedge of older high grade metamorphic rocks - the Connemara Gneisses and Schists of the Argyll Group (Dalradian) - intervenes between the granite and Carboniferous limestone. The area is overlain by glacial deposits.

### 1) The Galway Granite

The Galway Granite is an E-W elongate, largely post-kinematic late Caledonian (c. 400 Ma) batholith (600 km<sup>2</sup>) that is mainly composed of four domal units in which a series of granodiorites, dominant adamellites and leucogranites are developed (Max et al. 1978). Gravity and aeromagnetic data (Murphy, 1952; Max et al., 1983) suggest that the batholith extends beneath its cover of Carboniferous rocks to the NE, E and S.

The radioelement chemistry of the batholith has recently been studied in some detail (Feely and Madden, 1986, 1987 and 1988). An earlier reconnaissance gross-count radiometric survey (O'Connor, 1981) over the

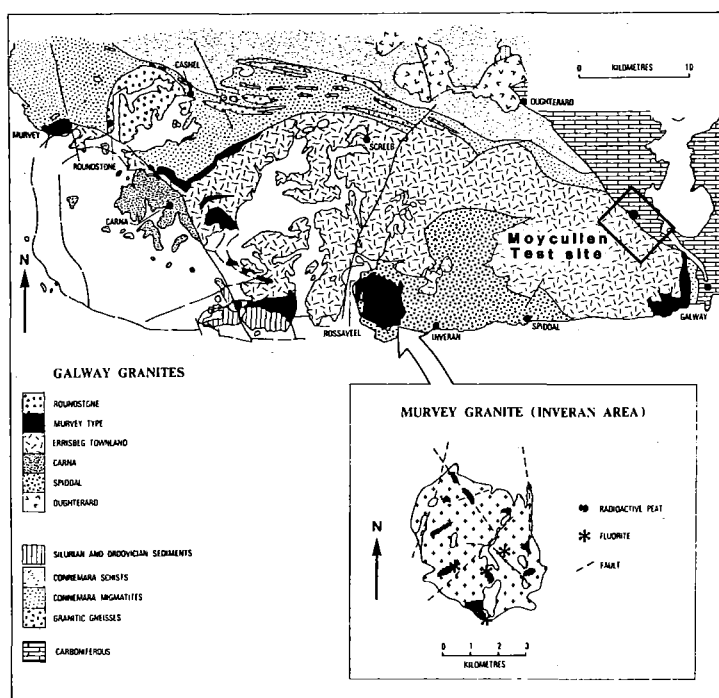


Figure 2. Sketch map of Galway batholith (after Max et al. 1978) Showing disposition of main granite lithologies and location of Moycullen test site. The distribution of radioactive peat bogs shown.



batholith had delineated major anomalies spatially associated with the distribution of late-stage leucogranite bodies (Murvey Type); portable gamma ratemeter readings of 60 uR/hr were frequently recorded on such outcrops. The leucogranite is a fine-grained equigranular rock with accessory thorite, uraninite, monacite and zircon (Feely and Madden, 1988) having a mean U content of 10 ppm and a mean Th content of 34 ppm (Table 2). It usually occurs in marginal zones of the batholith but is not known in the Moycullen area where the local granite is a medium or dark coarse-grained porphyritic adamellite (Errisbeg Townland Type) with a fairly low radiometric response (4-6 ppm U, 15 - 20 ppm Th). This adamellite comprises much of the eastern part of the batholith, although the Murvey leucogranite variety occurs again beneath part of the batholith, although the Murvey leucogranite variety occurs again beneath the western part of Galway city (Fig. 2). In the largest exposure of Murvey leucogranite at Costelloe, between Inveran and Rossaveel (Fig. 2) U has been leached by later hydrothermal processes and redeposited in fracture zones along with fluorite and sulphides (O'Connor, 1986). Such sites represent sources of easily leachable uranium and consequent high radon accumulation within the batholith.

The batholith is traversed by a multitude of fracture zones and faults seen on

aerial photographs and satellite imagery (Max et al., 1978). In the Moycullen area (Fig. 3) many of these fracture zones trend N-S or NE-SW and extend out under the limestone cover. Recent GSI mapping around Moycullen has shown that these fracture zones often have associated breccias locally. Elsewhere late porphyry and felsite dykes follow the same trend. Both the breccias and porphyry/felsite dykes show a significantly higher radiometric response compared to the host granite.

## 2) Carboniferous Rocks

The flat-lying lower Carboniferous limestone in the Moycullen area is a dark grey, thickly bedded biomicrite with some relatively unfossiliferous micrite intercalations. The faunal assemblage suggests an Asbian-Brigantian age (M. Carey pers. comm.) and in deposition occurred in a shallow marine shelf environment. A raised karstic surface in the limestone, almost 1 km<sup>2</sup> in area, is exposed 3 km north of Moycullen. Grikes 2 m deep and 50 cm in depth are developed on this deeply-jointed surface. The limestones of Moycullen form part of the extensive Burren Formation (Visean) magnificently exposed in North Co. Clare immediately to the south of the batholith where they are unconformably overlain by the condensed Namurian Clare Shale Formation with important phosphorites near its base. The

Table 3. Radioelement content of phosphorites. After O'Connor and Pyne (1986)

	Number of samples	U (ppm)	Number of samples	Th (ppm)
Country Clare, Ireland				
Phosphorite	50	158	6	7
Phosphatic shales	25	94)	8	13
Shales	29	22)		
Limestones	15	8	1	2
Marine phosphorites		50 - 300		1 - 5
Shales (Russian)	178	4	178	11

uranium content of these phosphorites and phosphatic shales is substantial (Table 3) and laterally persistent although the U content of the underlying Burren Limestone is typically low (O'Connor & Pyne 1986). In situ, radon concentrations up to 900 pCi/l were recorded in soils overlying these phosphorites in Co. Clare (Dr. J. P. Mc Laughlin, U.C.D. pers. comm.). Although now not present in the Moycullen area, such uraniferous Namurian lithologies may originally have overlain the Visean limestones and would have represented a source of leachable uranium which might be carried downwards by groundwater percolation into the underlying carbonate sequence.

### 3) Glacial Deposits

The glacial geology of the Moycullen area is not well known. Preliminary mapping by GSI has identified a number of landforms and deposits of ice-contact type including kames, kame terraces, eskers and deltaic sediments (Fig. 3) distributed in a zone trending NW-SE broadly parallel to the granite-limestone contact. Much of the clastic material in both the eskers and deltaic deposits is granitic in composition and of local origin. Sedimentary structures (cross-bedding) in these highly permeable sand and gravel deposits suggest derivation from the WNW and, locally, they may reach a thickness in excess of 10 m. Many of the houses in Moycullen and its environs are built directly on these permeable glacial materials.

### B) Ground Radiometric Surveys

A preliminary total-count gamma survey of the Moycullen area was carried out by GSI in Sept. 1990 using a portable Nutmaq (Harwell) ratemeter. Readings were taken at approximately 200 sites with the meter held at waist height. The contoured data are presented in Fig. 3 a et b superimposed on the underlying bedrock and glacial geology. The granite-limestone contact trending NW-SE is generally defined as a transition from higher total gamma values in the SW to lower values in the NE. Elevated values NE of the granite overlie glacial sand/gravel deposits (eskers and deltaic sediments) of granitic composition resting on the limestone bedrock beneath. Within the area underlain by the Galway Granite the radiometric anomalies show a good spatial correlation with known fractures zones, some of which contain slightly radioactive breccias and minor late felsic dykes (aplites, felsities, porphyries).

### C) Controls of Radon Migration

Some of the relevant factors relating to radon sources and radon migratory routes in the Moycullen area are summarized in Table 4 and shown schematically in Fig. 4.

The most obvious, geographically-widespread source of low-level uranium is the Galway Granite itself, especially its late leucogranitic differentiates which show substantial enrichment in both U and Th. Some

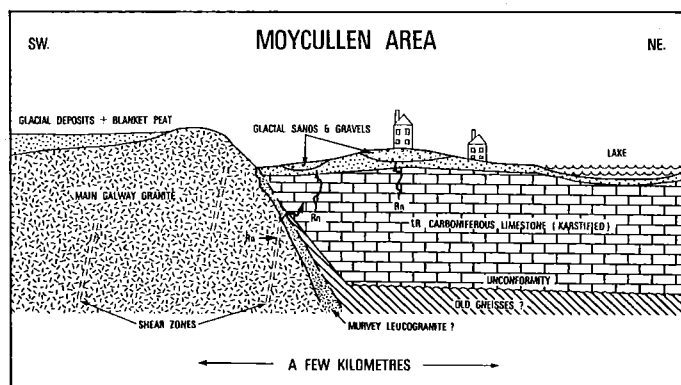


Figure 4. Schematic section (SW-NE) across the granite-limestone contact zone at Moycullen showing possible radon sources and migratory routes.

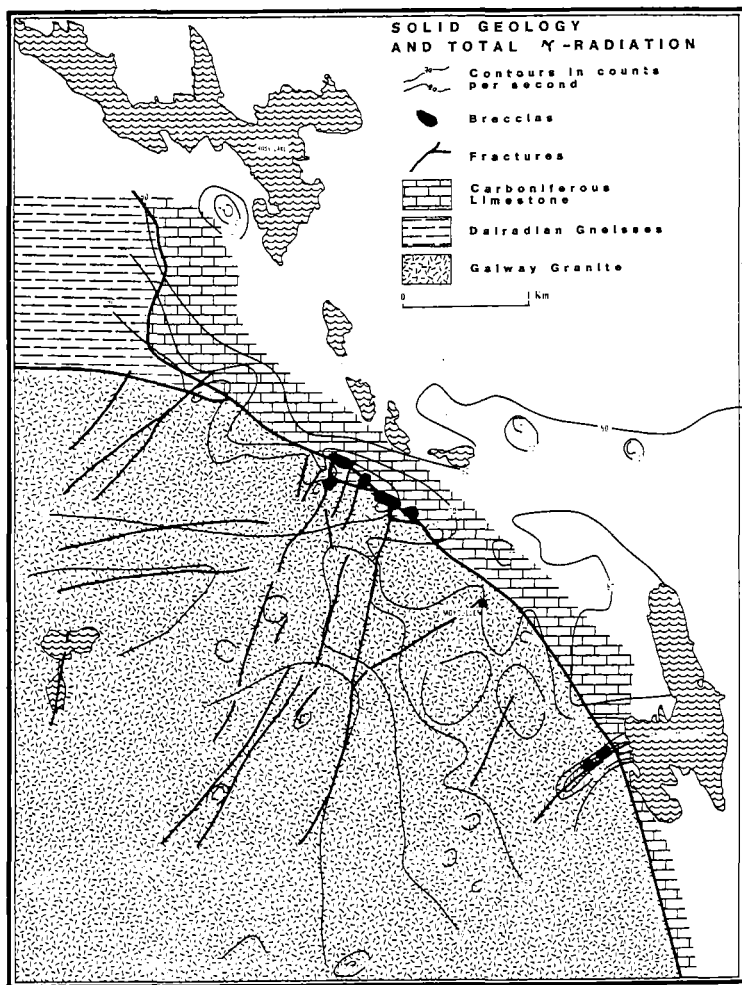


Figure 3a : Solid geology of Moycullen area, CO. Galway spatial correlation between total gamma radiometric anomalies and fracture zones.

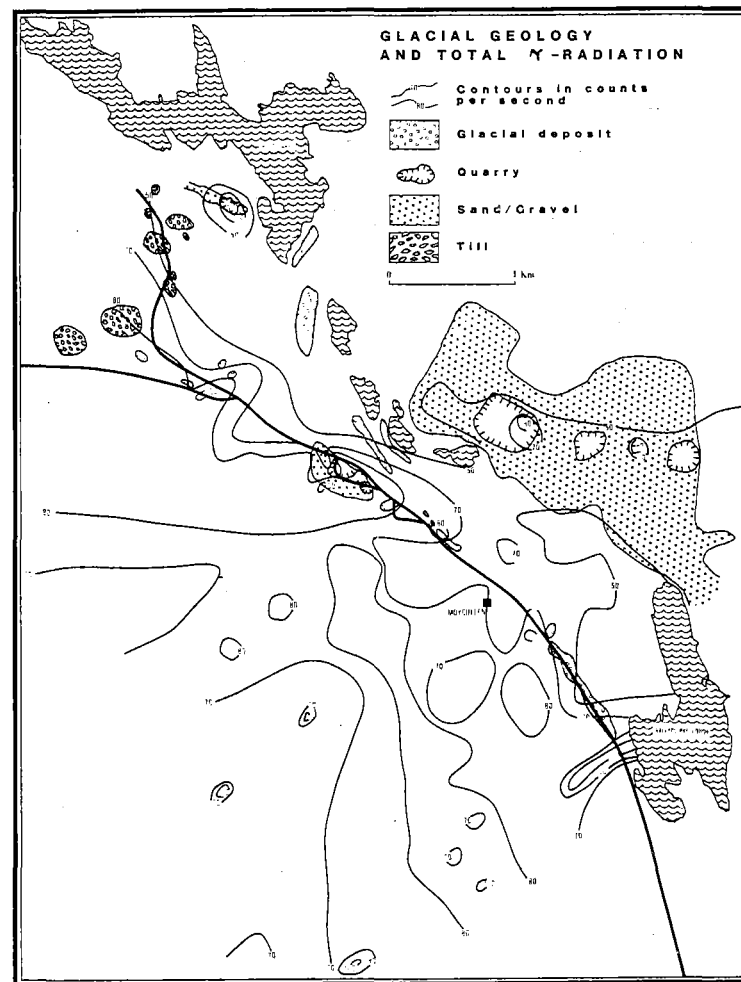


Figure 3B : Glacial deposits of Moycullen area and total gamma radiometric pattern. Sand/gravel deposits overlying Carboniferous limestone show an elevated radiometric response.

of the uranium in these Murvey leucogranites is labile and has been redistributed into fracture zones by later hydrothermal processes; such zones would now represent areas of high radon flux. Although no Murvey facies has yet been identified in the Moycullen contact zone, exposure is poor and it is still possible that a buried marginal body of uraniumiferous leucogranite might exist beneath the unconformable Carboniferous limestones (Fig. 4). In the absence of such a U-enriched source, the only other known sources within the granite but which are much less radioactive, are the structurally-controlled breccia zones and porphyry/felsite dykes. The breccias, in particular, are highly permeable, have iron oxides in their matrix and probably a certain amount of labile uranium. Delineation of their true extent in the Moycullen area is severely limited by lack of exposure.

The Visean limestones of Moycullen are typically U-depleted and non-radioactive. However, as noted above, they were probably once overlain by uraniumiferous Namurian shales with basal phosphorites which would have yielded U to circulating groundwaters. Such uranium in solution may have accumulated at lower levels in the karstic carbonated sequence from which it continues to be actively remobilized and redeposited in fracture zones by the prevailing groundwater regime.

Finally, much of the glacial material blanketing the flat-lying limestones is highly permeable granitic sands and gravel which would aid radon migration to the surface. It is also possible that these water-laid materials may contain concentrations of radioactive accessory minerals derived from the nearby granite.

Table 4. Controls of radon migration à Moycullen.

<b>RADON SOURCES</b>
<b>GALWAY GRANITE</b> (Low-level widespread source; U in resistate and accessory phases)
<b>BRECCIA ZONES &amp; PORPHYRY DYKES</b> (Moderate-level localized sources U in secondary mineral phases ? Labile)
<b>CARBONATE ROCKS</b> (as yet unidentified high-level ? Sources in Carboniferous sequence)
<b>OVERBURDEN MATERIALS</b> (as yet unidentified U-rich minerals in fluvio-glacial deposits).
<b>MOBILIZATION OF URANIUM</b>
Late hydrothermal mobilization of U from granite into breccia zones and fractures followed by later leaching by groundwaters and mobilization into permeable carbonate cover rocks and overlying fluvio-glacial deposits.
<b>RADON MIGRATORY ROUTES</b>
<b>FRACTURE ZONES (+/- BRECCIAS) IN BEDROCK</b>
<b>FRACTURED KARSTIC LIMESTONE COVER ROCKS</b>
<b>PERMEABLE OVERBURDEN</b> (fluvio-glacial deposits).
<b>LOCAL GROUNDWATER REGIME</b>

## D) Proposed Investigation Methodology

An integrated field sampling campaign will be carried out in the Moycullen area in early 1991 which will comprise;

I) Detailed mapping of bedrock geology, rock structures, overburden characteristics and hydrogeological features. Systematic soil profiling and bedrock recovery by drilling will be undertaken in the contact zone to establish its nature and the presence/absence of uraniferous leucogranites.

II) Ground geophysical surveys (VLF-EM) to delineate buried fracture zones which are likely to constrain groundwater and radon migration locally.

III) Helium gas field surveys to confirm radon migration paths.

IV) Indoor radon surveys of all households using passive alphas track detectors (SSNT's).

V) At specific radoniferous dwellings, specially fabricated soil probes will be deployed in the immediate vicinity of the dwelling to determine soil permeability and soil radon concentration.

VI) Bedrock and overburden samples and groundwater will be analysed by high resolution gamma spectrometry to determine U and Ra contents.

VII) Mineralogical investigation of uraniferous samples will be carried out by fission track registration and electron mineral phases responsible for radon exhalation.

## CONCLUSION

The Moycullen area of Co. Galway offers the possibility to investigate the complex interplay of geological factors influencing the occurrence of radon hazard in karstic terrain adjacent to a Caledonian batholith. It is hoped that the knowledge gained in the course of the project can be utilised in the construction of radon hazard potential maps for similar karstic areas in western Ireland and elsewhere in the European Community.

## Acknowledgement :

Thanks are due to Mr. M. Carey for preliminary field mapping and ground radiometric surveys in the Moycullen area while employed by GSI and to the Cartographic Office (GSI) for preparing the text illustrations. The paper is published by permission of the Assistant Director, GSI.

## REFERENCES

- FEELY, M. and MADDEN, J.S.** 1986. A quantitative regional gamma-ray survey on the main Galway Granite, western Ireland. In, *The Geology and Genesis of Mineral Deposits in Ireland* (Andrew, C.J., Crowe, R.W.A., Finlay, S., Pennell, W.M. and Pyne, J.F., eds.). Irish Association for Economic Geology, 195-200.
- FEELY, M. and MADDEN, J.S.** 1987. The spatial distribution of K, U, Th and surface heat production of the Galway Granite, Connemara, Western Ireland. *Irish Journal of Earth Sciences*, 8, 155-.
- FEELY, M. and MADDEN, J.S.** 1988. Trace element variation in the leucogranites within the main Galway Granite, Connemara, Ireland. *Mineralogical Magazine*, 52, 139-146.
- MAX, M.D., LONG, C.B. and GEOGHEGAN, M.** 1978. The Galway Granite. *Geological Survey of Ireland Bulletin*, 2, 223-233.
- MAX, M.D., RYAN, P.D. and INAMDAR, D.D.** 1983. A magnetic deep structural geology and interpretation of Ireland. *Tectonics*, 2, 431-451.
- Mc LAUGHLIN, J.P. and WASIOLEK, P.** 1988. Radon levels in Irish dwellings. *Radiation Protection Dosimetry*, 24, 383-.
- MURPHY, T.** 1952. Measurements of gravity in Ireland : gravity survey of central Ireland. *Dublin Institute for Advanced Studies Geophysical Memoir*, 2, part 3, 31 pp.
- O'CONNOR, P.J.** 1981. Report on a reconnaissance radiometric survey of the Irish Republic. *Geological Survey of Ireland Report series RS 81/1*, 26 pp.
- O'CONNOR, P.J.** 1986. Uranium mineralization in the Irish Caledonides. In, *The Geology and Genesis of Mineral Deposits in Ireland*. (Andrew, C.J., Crowe, R.W.A., Finlay, S., Pennell, W.M and <pyne, J.F eds.). Irish Association for Economic Geology, 157-175.

**O'CONNOR, P.J. and PYNE, J.F.** 1986.  
Radioelement and REE content of Namurian  
phosphorites, County Clare, Ireland.  
Transactions of the Institution of Mining and  
Metallurgy (Sect. B : Applied Earth Science),  
95, B 211- B 213.

## LE RADON DANS LES HABITATIONS : IDENTIFICATION DES SOURCES ET DES VOIES DE TRANSFERT, ET CARACTERISATION DES AEROSOLS RADIOACTIFS PRODUITS

M.C.ROBE \*, A.RANNOU \*\*, J. LE BRONEC \* et G. TYMEN \*\*\*

\* CEA-IPSN-DPT-SPIN-LRPM - 91191 Gif-sur-Yvette Cédex - France

\*\* CEA-IPSN-DPT-SPIN-LRPM - B.P. 6 - 92265 Fontenay-aux Roses Cédex - France

\*\*\* Laboratoire de Physique des Aérosols et de radioactivité Atmosphérique

Faculté des Sciences - 6, avenue Le Gorgeu - 29287 Brest - France

### RESUME

*La recherche de solutions pratiques visant à réduire les niveaux d'exposition domestique au radon, nous a conduit à mettre au point, dans quelques maisons identifiées lors d'une campagne de terrain comme présentant de fortes activités, une méthodologie d'identification des sources de radon <sup>222</sup> et de ses voies de transfert dans les pièces habitées.*

*L'investigation s'appuie sur des mesures d'activités volumiques de radon <sup>222</sup> dans l'air et de son flux d'émission à travers le sol et les parois (à l'intérieur et à l'extérieur), puis de l'énergie alpha potentielle de ses descendants et du taux de ventilation.*

*Simultanément, on détermine le pourcentage de fraction libre et les distributions mentionnelles des aérosols radioactifs issus du radon, que l'on compare avec celles des particules naturelles présentes, caractérisant ainsi l'air inhalé.*

*L'analyse de ces résultats indique qu'il est possible de sélectionner un nombre limité de paramètres permettant un "diagnostic radon" rapide.*

### ABSTRACT

*The search for practical techniques to mitigate radon in houses led us to develop a methodology for identifying radon sources and transfer ways into the upper, rooms, based on the study of some houses with relatively high radon levels.*

*This study consisted in the measurement of radon <sup>222</sup> concentration in the air, the emanation flux through the soil and walls (indoors and outdoors), potential alpha energy concentration of radon daughters and which was compared to those of non radioactive aerosol particles.*

*The analysis of the results shows that it is possible to select a few number of parameters allowing a rapid "radon diagnostic".*

### INTRODUCTION

Dans le cadre du programme national d'évaluation de l'exposition du public aux rayonnements naturels à l'intérieur des locaux d'habitation, initié en 1983 par le CEA, une étude particulière effectuée en collaboration avec l'Université de Brest a été réalisée en Bretagne, région de l'Ouest de la France caractérisée par la présence d'un sous-sol granitique sur une majeure partie de son territoire (Rannou et Tymen, 1989). Parmi les 700 habitations analysées, un certain nombre s'est avéré présenter de fortes concentrations en radon, susceptibles d'entraîner une exposition significative pour les occupants.

L'objectif recherché dans cette étude consiste à élaborer une méthodologie rapide et simplifiée de diagnostic en vue de proposer par la suite des solutions appropriées de réduction

des concentrations en radon (Robé et Zettwoog, 1989).

Ceci passe par les étapes suivantes :

- 1 - analyse des caractéristiques architecturales du bâtiment,
- 2 - identification du terme source radon,
- 3 - identification des voies de transfert dans les pièces d'habitation,
- 4 - évaluation de l'impact du comportement des occupants (Maximilien et al., 1984).

Parallèlement à ces expériences, on caractérise l'état particulaire de l'atmosphère intérieure des habitations, et notamment la distribution dimensionnelle des descendants à vie courte du radon <sup>222</sup> (c'est-à-dire <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi), dont l'inhalation constitue rappelons-le, la majeure cause de l'irradiation naturelle subie par l'individu.

Tableau 1. Principales caractéristiques architecturales des cinq maisons.

	1	2	3	4	5
Année de construction	1976	< 1900	< 1914	1962	1968
Structure de la maison	sur sous-sol	de plain-pied	de plain-pied	sur cave	sur cave
Nature du sol inférieur	dalle béton et terre battue	dalle béton + carrelage	dalle béton et terre battue	terre battue	terre battue et dalle béton
Matériaux de construction	parpaing	moellon	moellon	parpaing	parpaing
Double vitrage	non	non	oui	non	non
Cheminée	oui	non	non	oui	non

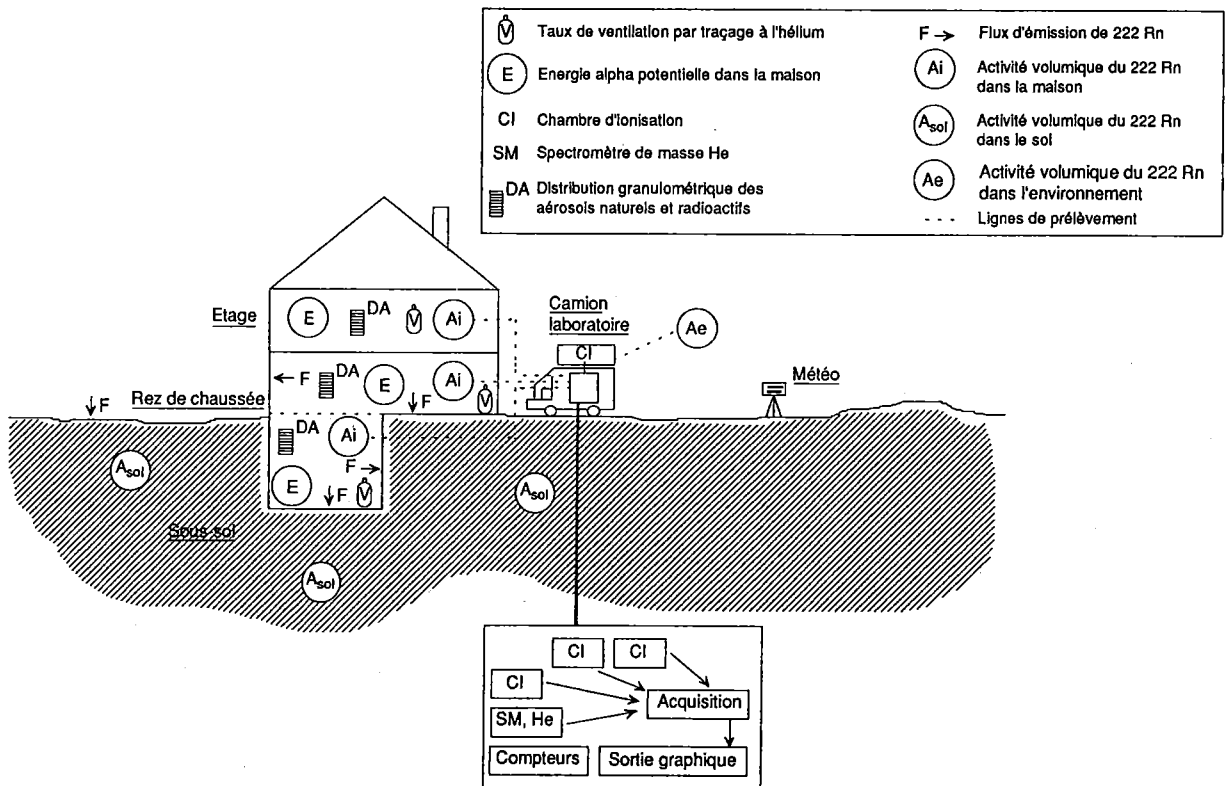


Figure 1. Mesures complémentaires pour un diagnostic radon. Moyens mis en oeuvre.



Tableau 2. Ensemble des mesures effectuées à l'intérieur ou/et à l'extérieur des maisons  
Paramètres mesurés et moyens mis en oeuvre (voir figure 1)

PARAMETRES MESURES		METHODOLOGIE	TYPE DE MESURE
Radon 222	<ul style="list-style-type: none"> <li>- activité volumique (Ai et Ae) dans l'air ambiant (h en. 1,50 m)</li> <li>- flux d'émission (F) (sols, matériaux de construction, jardin, garage, péron,...)</li> <li>- activité volumique du radon dans le sol (Asol) (0,30 à 0,80 m de profondeur)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- chambre d'ionisation (Ci)</li> <li>- sonde Barasol type S (détecteur silicium)</li> <li>- méthode d'accumulation et fioles scintillantes</li> <li>- fiole scintillante</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- en continu (temps de réponse 1 min)</li> <li>- en continu (temps de réponse 1 h)</li> <li>- ponctuelle</li> <li>- ponctuelle</li> <li>- ponctuelle</li> </ul>
Descendants à vie courte du radon	<ul style="list-style-type: none"> <li>- concentration volumique d'Energie Alpha Potentielle (EAPv)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- appareil "Mimil" (E) (méthode de Rolle) détecteur silicium</li> <li>- dosimètre alpha intégré (SID)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- ponctuelle</li> <li>- intégrée (plusieurs jours)</li> </ul>
Aérosols naturels et radioactifs	<ul style="list-style-type: none"> <li>- fraction non attachée</li> <li>- distribution en taille des descendants du radon (DA)</li> <li>- distribution en taille des particules</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- filtre et grille (méthode de Thomas)</li> <li>- impacteur d'Anderson en cascade + batterie de diffusion (SDI 2000) algorithme de Twomey non linéaire</li> <li>- TSI 3040 + CPC algorithme de Twomey non linéaire</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- ponctuelle</li> <li>- ponctuelle</li> <li>- ponctuelle</li> </ul>
Radium 226	<ul style="list-style-type: none"> <li>- activité massique du radium 226 dans le sol sous-jacent et/ou adjacent</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- spectrométrie gamma sur échantillon</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- ponctuelle</li> </ul>
Irradiation externe	<ul style="list-style-type: none"> <li>- débit de photons gamma</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- scintillomètre portatif de prospection (SPP2)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- ponctuelle</li> </ul>
Ventilation	<ul style="list-style-type: none"> <li>- taux de renouvellement d'air (V)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- traçage hélium spectromètre de masse (SM)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- ponctuelle</li> </ul>
Paramètres météorologiques	<ul style="list-style-type: none"> <li>- pression, température, humidité, vitesse du vent, pluviométrie</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- thermo-baro-hygromètre</li> <li>- anémomètre à main</li> <li>- observation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- semi-continu</li> </ul>

## CRITERES DE SELECTION DES MAISONS

La sélection des maisons s'est faite, à partir des résultats obtenus lors des campagnes de mesures, sur les critères suivants :

- une activité volumique moyenne en radon 222 supérieure à 400 Bq.m<sup>-3</sup>,

- une concentration en énergie alpha potentielle volumique (EAPv) supérieure à 10<sup>-6</sup> J.m<sup>-3(1)</sup>,

- les caractéristiques architecturales du bâtiment,

- le volontariat et la disponibilité des occupants.

Cinq maisons ont ainsi été retenues,

deux dans le département du Finistère (maisons M1 et M2 par la suite) et trois dans le département du Morbihan (maisons M3, M4 et M5).

## DIAGNOSTIC RADON

### 1. Méthodologie.

Pour chacune des maisons on a procédé à :

a) une analyse des caractéristiques du bâtiment qui comprend :

- l'établissement d'un plan schématique d'agencement de la maison,
- un relevé des caractéristiques architecturales du bâtiment (type de soubassement, nature des matériaux de construction, présence de double vitrage aux fenêtres, cheminées,...) (tableau 1),
- un examen des passages de canalisation, de l'état des sols (présence de fissures dans les dalles par exemple).

b) un ensemble de mesures, à l'intérieur et à l'extérieur de la maison, indiqué dans le tableau 2 et sur la figure 1.

En règle générale, ces mesures sont effectuées<sup>(2)</sup> :

- dans des pièces caractéristiques du bâtiment, simultanément :

- . dans la cave ou le vide sanitaire pour les bâtiments possédant une structure sous-jacente,
- . dans la pièce étudiée lors de la campagne nationale ou dans une pièce située à l'étage (chambre de préférence),
- sur les matériaux de construction, le sol adjacent ou sous-jacent au bâtiment.

c) une évaluation de l'impact du comportement des occupants (ouverture de portes ou/et fenêtres, mise en route d'éventuel ventilateur dans la cuisine,...).

Naturellement on a adapté le processus à chaque situation selon les caractéristiques du bâtiment et le mode de vie des occupants.

### 2. Résultats et commentaires.

A partir des nombreux résultats obtenus (exemples en figure 2 et 3) et résumés dans les tableaux 3,4 et 5, il est possible de tirer les enseignements suivants.

Globalement, chaque diagnostic a permis de confirmer les niveaux de concentration en radon 222 et EAPv mesurés lors des campagnes précédentes sauf dans la maison n° 2 (une réfection du sol, entreprise dans l'intervalle, semble y avoir réduit

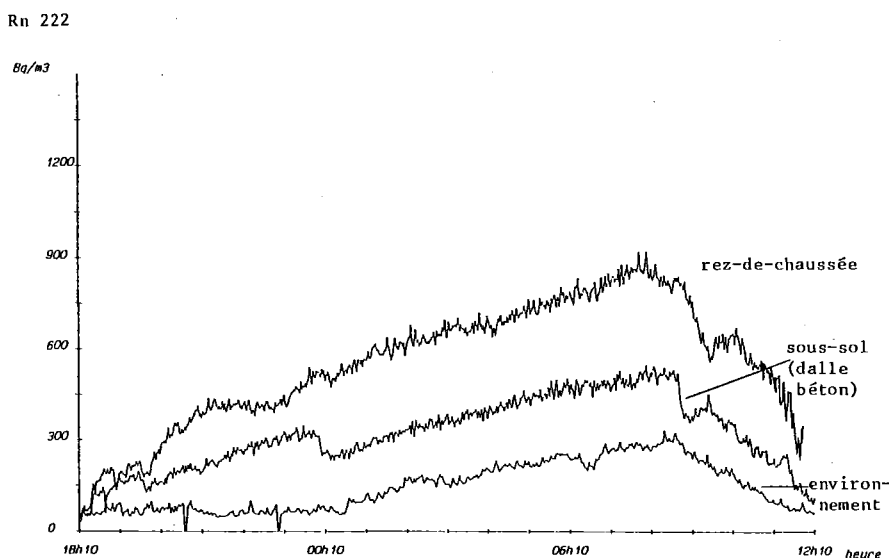


Figure 2. Variation de l'activité volumique en radon 222 à l'intérieur et à l'extérieur de la maison M1 (28 - 29 octobre 1989).

sensiblement les concentrations de radon).

On a pu par ailleurs vérifier l'influence significative de la ventilation (ouverture des fenêtres, des portes, ...) sur les teneurs ambiantes en radon comme le montre l'exemple 4.

En outre, aux niveaux inférieurs des bâtiments (cave ou rez-de-chaussée selon les cas) une bonne cohérence entre les concentrations élevées en radon et en EAPv d'une part, et les flux d'émission de radon par les sols et le débit de photons gamma d'autre part a pu être observée. Les flux mesurés sur la terre battue (maisons M1, M3, M4, M5) représentent entre 5 et 200 fois la valeur moyenne de  $10^4$  atome.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> caractéristique d'un sol standard; confirmant ainsi la présence de la source. A l'inverse, les flux sont en général inférieurs ou du même ordre de grandeur que le flux standard lorsque le sol est recouvert d'une dalle béton (M1, M3, M5). Ceci montre qu'une dalle béton en bon état constitue un moyen efficace pour réduire les émissions de radon. (Une fissure visible peut cependant suffire à décupler le taux d'émission surfacique comme certaines de nos mesures l'ont montré).

Dans les maisons étudiées, les murs ne semblent pas constituer une source directe de radon. Cependant, un transfert vertical de gaz du sous-sol dans les murs a été conclu dans la maison M4.

Selon les cas, les voies de transfert du radon (mises en évidence par des mesures de concentrations en radon) entre les niveaux inférieurs et les pièces habitées peuvent être résumées ainsi :

- les passages de canalisation (M3 et M5),
- les portes (M1, M4, M5),
- les prises d'air pour la cheminée (M4),
- une trappe de visite de fosse septique (joints non étanches, M5).

### CARACTERISATION DES AEROSOLS RADIOACTIFS ISSUS DU RADON A L'INTERIEUR DES HABITATIONS

Il est admis aujourd'hui que la composante particulaire des descendants du radon se compose de deux groupes : une fraction libre  $f_p$  qui correspond à des ions ou des atomes de <sup>218</sup>Po ayant fixé des molécules diverses (Chu et Hopke, 1988), dont le spectre

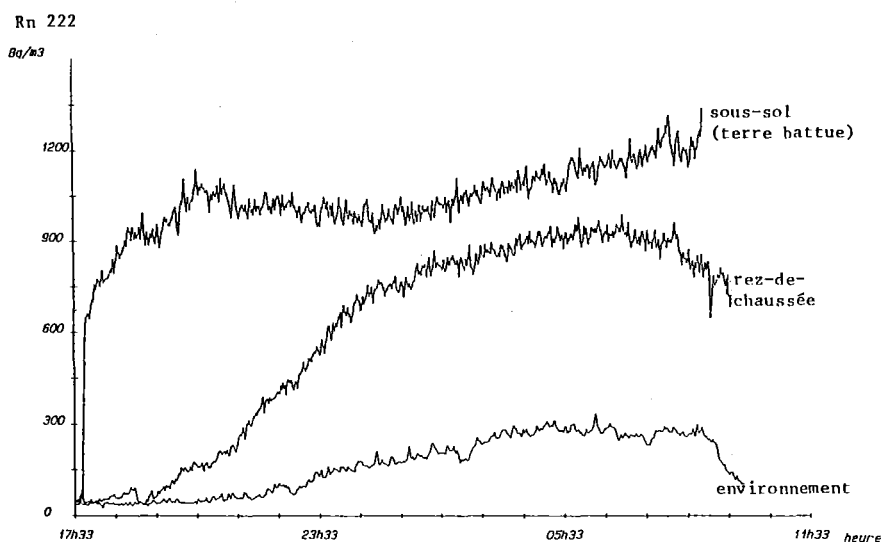


Figure 3. Variation de l'activité volumique en radon 222 à l'intérieur et à l'extérieur de la maison M1 (29 - 30 octobre 1989).

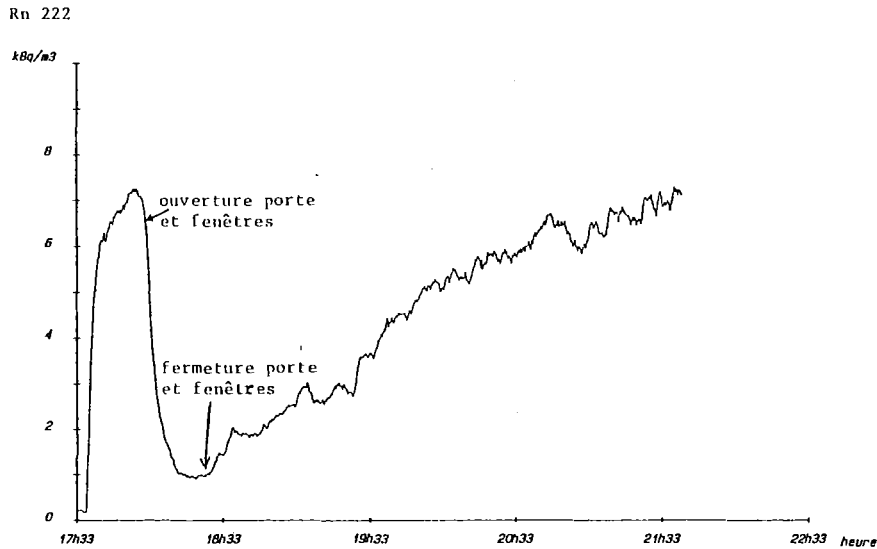


Figure 4. Effet de la ventilation dans la maison M4, rez-de chaussée (13 décembre 1989).

dimensionnel se répartit entre  $5.10^{-4}$   $\mu\text{m}$  et  $5.10^{-3}$   $\mu\text{m}$  (Ramamurthi et Hopke, 1989); une fraction attachée qui apparaît par fixation des descendants libres sur les particules naturelles en suspension dans l'air, dont la taille s'étend entre  $5.10^{-3}$   $\mu\text{m}$  et 0,5-1  $\mu\text{m}$ .

### 1. Méthodologie.

On étudie les deux composantes particulières définies précédemment à l'aide de deux systèmes d'échantillonnage différents (tableau 2).

Pour la fraction libre, on utilise un porte-filtre contenant une grille de tamis suivie d'une filtre Millipore RAWP 0,8  $\mu\text{m}$  suivant une technique classique (Ramamurthi et Hopke, 1989).

Les concentrations en  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  sur les échantillons sont calculées par la méthode de Tzivoglou modifiée (Thomas, 1970) et la fraction libre d'énergie alpha potentielle, d'après Stranden et Berteig (1984).

L'étude de la composante attachée est réalisée à l'aide du Spectrographe Diffusionnel et Inertiel (SDI 2000) mis au point au Commissariat à l'Energie Atomique (Diouri, 1987).

Les données d'activités alpha sont traitées numériquement à l'aide d'un algorithme d'inversion non linéaire (méthode de Twomey), ce qui permet de tracer le spectre en dimension

de l'activité alpha des descendants du radon entre  $4.10^{-3}$   $\mu\text{m}$  et 1  $\mu\text{m}$  (El Moussaoui, 1989).

La distribution dimensionnelle des particules naturelles présentes dans l'air intérieur, qui représente un paramètre important pour l'interprétation des données d'activité, est obtenue par la méthode classique d'une batterie de diffusion à grilles TSI 3040 associée à un compteur optique de particules mis au point au laboratoire. Un système électromécanique à valves permet l'exploration automatique des étages de la batterie pendant l'expérience. Le spectre en taille des particules s'acquiert aussi à partir d'une méthode d'inversion de Twomey.

### 2. Résultats expérimentaux.

Les expériences réalisées simultanément au diagnostic radon, ont abouti à un ensemble de résultats résumés sur les figures 5, 6 et 7 pour les maisons M1, M3, M4, M5. Le facteur d'équilibre radioactif est déterminé à partir des mesures simultanées d'EAPv et des concentrations en radon.

Dans l'ensemble, on remarque que la fraction libre  $f_p$  varie en sens inverse du nombre de particules (figure 5) et du facteur d'équilibre (figure 6). Ceci s'explique par le fait que l'augmentation du nombre d'aérosols présents, accroît la probabilité d'attachement des descendants libres du radon, qui disparaissent ainsi au profit de la fraction attachée.

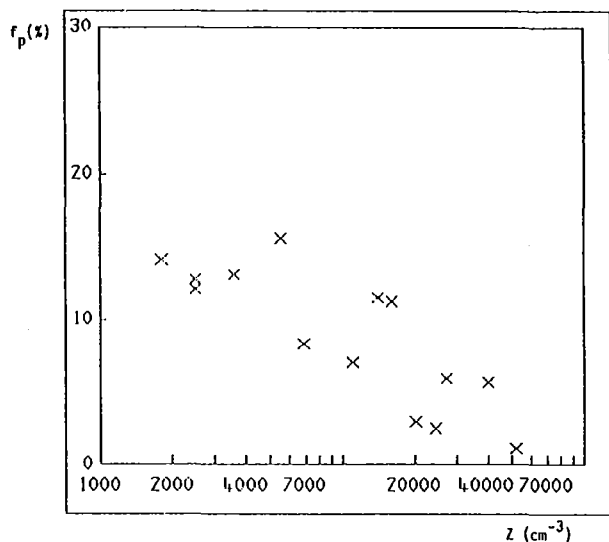


Figure 5. Fraction libre d'Energie Potentielle Alpha  $f_p$  (%) en fonction du nombre de particules  $Z$ .

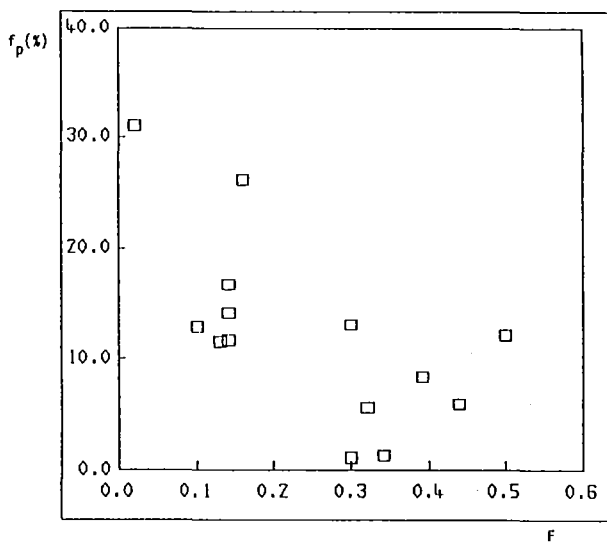


Figure 6. Fraction libre d'Energie Potentielle Alpha  $f_p$  (%) en fonction du facteur d'équilibre  $F$ .

En réalité, dans ce raisonnement simple, n'interviennent ni la concentration en radon, ni la distribution en taille des particules en suspension. Le fait de mesurer dans nos expériences, des valeurs de  $f_p$  largement supérieures à 10 % est, selon nous, une conséquence logique des atmosphères chargées en radon ( $>1000 \text{ Bq.M}^{-3}$ ) en présence d'une concentration faible en particules ( $<10^4/\text{cm}^3$ ). Ceci a déjà été observé en mine d'uranium expérimentale (Duport, 1975) et en atmosphère artificielle contrôlée en radon (Mouden, 1986).

La figure 7 illustre deux exemples de distributions de l'activité alpha des descendants

du radon comparées à celles des particules naturelles présentes. La première situation montre une répartition unimodale de l'activité centrée sur un diamètre moyen proche de  $0,2 \mu\text{m}$ , en bon accord avec le faible nombre de particules ambiantes dans le domaine de dimension  $0,01-0,1 \mu\text{m}$ .

Sur l'autre exemple, on assiste à un accroissement du nombre de fines particules, ce qui entraîne une augmentation sensible de la quantité d'aérosols radioactifs produits au-dessous de  $0,1 \mu\text{m}$ , au détriment des plus grosses. Le rôle des particules ambiantes comme support des descendants du radon est ici clairement mis en évidence.

## 5. CONCLUSION

Cette étude a permis, à partir d'une mise en oeuvre importante de moyens techniques, d'effectuer la recherche du terme source et des voies de transfert du radon dans 5 maisons individuelles.

Les enseignements que nous en tirons nous conduisent à proposer un diagnostic plus rapide et avec des moyens réduits, en préconisant tout d'abord la localisation de la (ou les) pièce(s) où est située la (ou les) source(s) de radon par :

- un examen visuel du soubassement et des matériaux de construction,
- des mesures instantanées et ponctuelles de la concentration du radon (fiolle scintillante par exemple) ou des descendants (appareils MIMIL) après une période de confinement de quelques heures.

L'identification plus précise de la source passe ensuite par des mesures de flux d'émission (méthode d'accumulation par exemple). Cette étape peut être facilitée dans certains cas par l'utilisation d'un scintillomètre portatif de prospection donnant des indications sur le débit de photons gamma.

Dans le cas d'une maison à plusieurs niveaux où des voies de transfert doivent être recherchées, des mesures instantanées de la concentration du radon ou de ses descendants sont effectuées aux différents niveaux après une période de confinement de quelques heures.

L'ensemble de ces étapes successives doit conduire en quelques heures à un diagnostic radon avec des moyens réduits.

Tableau 3

Flux d'émission du radon 222 dans mes maisons analysées exprimé en  $10^4$  atome  $\cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ Nota : (1 atome  $\cdot m^{-2} \cdot s^{-1} = 2,1 \cdot 10^{-6} Bq \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$ )

		Maisons sur sous-sol (n°)		
		M1	M4	M5
Sol adjacent au bâtiment	jardin	0,9 à 4,2	0,3 à 1,8	Non mesuré
	dalle devant la maison		0,31 à 0,35	
Sous-sol :				
Sol sous-jacent :				
. cave (terre battue)		3 à 9	74 à 190	8,6 à 13,2
. dalle béton		0,16 à 0,88		1,1
Paroi cave :		0,39 à 0,71	9,8 à 2,3	0,65 à 0,68
Rez de chaussée				
Nature du sol				
Revêtement sur la dalle béton				
. travertin			2,0 à 2,3	1,4 à 69,8 (sur joint fosse septique)
. carrelage				
		Maisons de plain pied (N°)		
		M2	M3	
Sol adjacent au bâtiment	jardin	1,7 à 2,7	0,1 à 0,8	
	dalle devant la maison	0,1 (2,4 sur fissure)		
Rez de chaussée	Nature du sol			
	. terre battue		5,2 à 9,9	
	. dalle de béton	Non mesuré	0,5 à 0,6	
	Murs intérieurs	Non mesuré	0,5 à 0,6 (côté terre battue)	0,3 à 0,36 (côté dalle béton)

Tableau 4

Activité volumique en radon 222 dans les maisons analysées, exprimée en  $10^{-3} \text{ Bq.m}^{-3}$

		Maisons sur sous-sol (N°)		
		M1	M4	M5
Environnement proche de la maison		0,02 à 0,30	0,02 à 0,06	0,01
sous-sol	terre battue	1,0 à 1,2	38	0,14 à 2,2
	dalle	0,2 à 0,4		
Rez-de-chaussée		0,2 à 0,8	4,8 à 10,8 1,0 si fenêtre et porte ouvertes	0,14 à 2,2

		Maisons de plain pied (N°)	
		M2	M3
Environnement proche de la maison		0,02 à 0,30	0,03 à 0,14
Rez de chaussée	Nature du sol	0,1 à 0,3	Non mesuré
	. terre battue		
	. dalle béton		
1 <sup>er</sup> étage			0,14 à 1,6

Tableau 5

Concentration en énergie alpha potentielle (EAPv) des descendants à vie courte du radon 222 dans les maisons analysées, exprimée en  $10^{-6} \text{ J.m}^{-3}$

Nota : ( $10^{-6} \text{ J.m}^{-3}$  à l'équilibre)

		Maisons sur sous-sol (N°)		
		M1	M4	M5
Sous-sol	terre battue	0,3 à 1,35	47,8	0,4 à 8,7
	dalle béton	0,1 à 0,5		
Rez-de-chaussée		0,1 à 1,35	5,2 à 21	0,8 à 2 4(pièces avec fosse septique)

		Maisons de plain pied (N°)	
		M2	M3
Rez de chaussée	Nature du sol	0,1 à 0,4	Non mesuré
	. terre battue		
	. dalle béton		0,2 à 28
1 <sup>er</sup> étage			0,7 à 2,9
2 <sup>ème</sup> étage			2,0 à 2,6

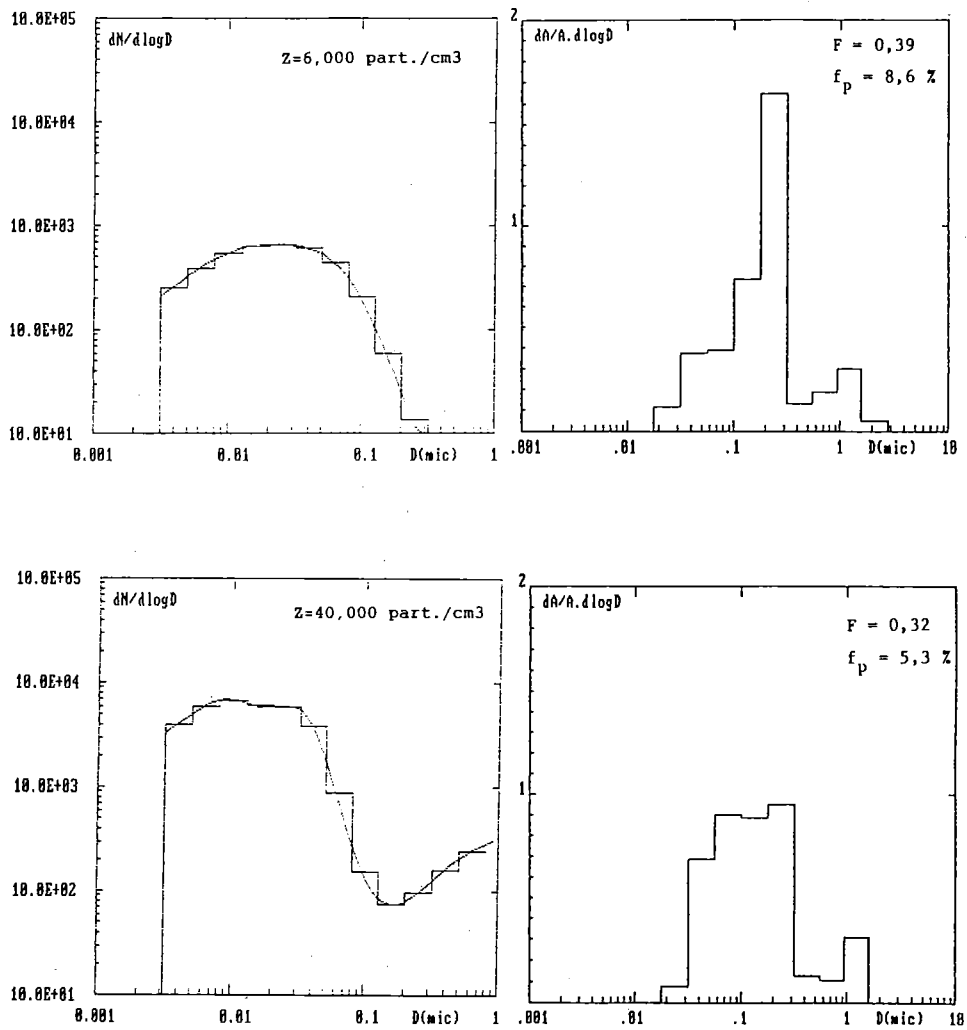


Figure 7. Comparaison entre la distribution des particules ambiantes ( $dN/d\log D$ ) et celle de l'activité  $\alpha$  des descendants du radon ( $dA/A.d\log D$ ) dans deux situations différentes (Maison M4).

(1) à l'équilibre radioactif entre les descendants à vie courte et le radon,  $10^{-6} \text{ J.m}^{-3} = 180 \text{ Bq.m}^{-3}$ .

(2) l'ensemble des instruments de mesure nécessaires au diagnostic est embarqué à bord d'un camion laboratoire (figure 1).

## BIBLIOGRAPHIE

**CHU K.D and HOPKE P.K.** (1988) Neutralization kinetics for Polonium-218, Environ. Sci Technol. 22 : 711 - 717

**DIOURI M.** (1987) "Contribution à l'étude du comportement aérodynamique des aérosols - Mise au point d'un spectromètre diffusionnel et inertiel (SDI 2000)". Thèse doctorat d'état soutenue en juin 1987 à l'Université PARIS XII

**DUPORT PH., MADELAINE G., RENOUX A.,** Mesure de la fraction libre présente dans l'air d'une mine d'uranium laboratoire. Chemosphère, Vol. 4, N°5, p. 283 - 288.

**EL MOUSSAOUI B.,** (1989)

"Contribution à l'étude théorique et expérimentale des aérosols descendants du radon 222 et à l'étude des performances de certains dispositifs filtrants". Thèse doctorat d'état soutenue le 25 avril 1989 à l'Université PARIS XII.

**MAXIMILIEN R., ROBE M.C., ROUSSEL C., SAUVE A., UZZAN G.** (1984) Influence of the way of living on indoor exposure : methodological study. Radiat. Prot. Dosimetry, Vol. 7, N° 1 - 4, p. 259 - 262.

**MOUDEN A.,** "Contribution à l'étude des propriétés physiques des aérosols naturels et radioactifs en atmosphère contrôlée", Thèse



Doct. es. Sc., rapport CEA - R - 5345.

**RAMAMURTHI M., and Hopke P.K.** (1989)

On improving the validity of wire screen "unattached" fraction Rn daughters measurements, Health Phys. 56 : 189 - 194.

**RANNOU A. et TYMEN G.** (1989) "Les résultats des campagnes de mesures de radon et facteurs explicatifs". Exposition au radon dans les habitations : aspects techniques et sanitaires (Paris 10 - 11 janvier 1989), p 42-63.

**ROBE M.C. et ZETTWOOG P.** (1985) "Techniques

de réduction du risque radon dans les habitations : aspects techniques et sanitaires (Paris 10 - 11 janvier 1985) p. 109 - 120.

**STRANDEN E. and BERTEIG L.** (1982) Radon daughter equilibrium and unattached fraction in mine atmospheres, Health Phys. 42 : 479 - 487.

**THOMAS J.W.** (1970) Modification of the Tsivoglou method for radon daughters in air, Health Phys. 10 : 691 - 693.

## GEOLOGICAL ASPECTS OF RADON EXPOSURE IN SWITZERLAND

L. RYBACH (1), F. MEDICI (1) and H. SURBECK (2)

(1) Institute of Geophysics, ETH-Hoenggerberg, CH-8093 Zurich, Switzerland

(2) Lab. Fribourg of the Federal Commission for Radioactivity Surveillance, Physics Institute, University of Fribourg, Pérolles, CH-1700 Fribourg, Switzerland

### ABSTRACT

*Regional surveys of indoor radon (Rn) levels yield individual, roughly lognormal distributions reflecting large-scale geologic/lithologic units (geometric averages : Jura, 110 Bq m<sup>-3</sup>; Molasse basin, 50 Bq m<sup>-3</sup>; Alps, 180 Bq m<sup>-3</sup>). Rn concentration in the ground is 100 to 1000 times higher than indoors. The indoor Rn originates usually from a quite limited volume around and below the building foundations (a few meters). Thus small-scale factors like local soil gas Rn content, ground porosity and permeability can also play an important role in determining indoor Rn levels. To find and characterize high Rn exposure risk areas an empirical indicator, the radon Availability Index RAV (= Rn concentration in soil gas x ground permeability) is introduced. The following classes of exposure risk are defined : Low exposure risk : RAV < 10<sup>-8</sup> Bq m<sup>-1</sup>; normal exposure risk : 10<sup>-8</sup> < RAV < 10<sup>-7</sup> Bq m<sup>-1</sup>; high exposure risk : RAV > 10<sup>-7</sup> Bq m<sup>-1</sup>. Specific examples are given as illustration : a) high ground <sup>226</sup>Ra content (locality Siat, GR); b) high ground permeability (limestone karst systems).*

### RESUME

*Les mesures régionales de la concentration de Rn dans les habitations sont distribuées de façon log-normale (moyenne géométrique : Jura : 110 Bq/m<sup>3</sup>; bassin molassique : 50 Bq/m<sup>3</sup>; alpes : 180 Bq/m<sup>3</sup>). Ceci reflète des unités géologiques et lithologiques de grande envergure. La concentration de Rn dans le sol est 100 à 1000 fois plus élevée que dans les habitations. Le Rn à l'intérieur provient, normalement, d'un volume plutôt limité autour et sous le fondement (quelques mètres). Des facteurs locaux comme la concentration de Rn dans le sol, la porosité/perméabilité du sol peuvent donc jouer un rôle dominant quant à l'exposition au Rn dans la maison. Un indicateur empirique, la disponibilité de Rn (Rn Availability, RAV : = concentratn de Rn dans le sol \* perméabilité du sol) est introduit. Les classes de risque d'exposition suivantes sont définies : bas : RAV < 10<sup>-8</sup> Bq/m; normal : 10<sup>-8</sup> < RAV < 10<sup>-7</sup> Bq/m; haut : RAV > 10<sup>-7</sup> Bq/m. Des exemples spécifiques sont donnés comme illustration : a) contenu élevé de <sup>226</sup>Ra (localité de Siat/GR); b) grande perméabilité du sol (système karstique à base de calcaire).*

### ABREGE

*L'exposition due au Rn et à ses produits de filiation dans les habitations excède 45 % de la dose équivalente effective moyenne (4.8 mSv par ans) perçue par la population suisse. La principale source de Rn se situe dans le sous-sol; les matériaux de construction et l'eau du robinet sont de moindre importance. Les mesures effectuées avec des dosimètres actifs et passifs dans un grand nombre d'habitations et d'autres bâtiments montrent de grandes variations dans la concentration de Rn (de quelques Bq/m<sup>3</sup> à quelques milliers de Bq/m<sup>3</sup>, moyenne géométrique : 62 Bq/m<sup>3</sup>). Des mesures de Rn dans le sol montrent que la concentration de Rn y est de 100 à 1000 fois plus élevée que dans les bâtiments. Le Rn à l'intérieur provient seulement d'un volume limité autour et sous le fondement (quelques mètres).*

*Les mesures régionales de la concentration de Rn dans les habitations sont distribuées à peu près de façon log-normale. Dans certaines régions, caractérisée par un contenu en <sup>226</sup>Ra relativement élevé, l'exposition due au Rn dépasse, pour quelques maisons, la limite annuelle permise pour des travailleurs (actuellement 50 mSv/ans dose effective équivalente). Néanmoins, le <sup>226</sup>Ra contenu dans le sous-sol n'est pas le seul facteur géologique déterminant le taux de Rn. D'autres propriétés du sous-sol influencent le mélange d'air sous-sol/intérieur : humidité, perméabilité, distribution de la grandeur des grains, différences de pression. Du fait de sa grande variabilité (quelques ordres de grandeur), la perméabilité joue un rôle clé. En effet, des concentrations élevées ont été constatées dans des régions caractérisées par un sous-sol perméable (karst, éboulements). Un indicateur empirique, la disponibilité de Rn (Rn Availability, RAV : = concentration de Rn dans le sol \* perméabilité du sol), peut aider à identifier des zones à haut risque. Des exemples spécifiques sont donnés : a) contenu élevé de <sup>226</sup>Ra dans le sous-sol (localité de Siat/GR); b) grande perméabilité du sous-sol (système karstique à base de calcaire).*

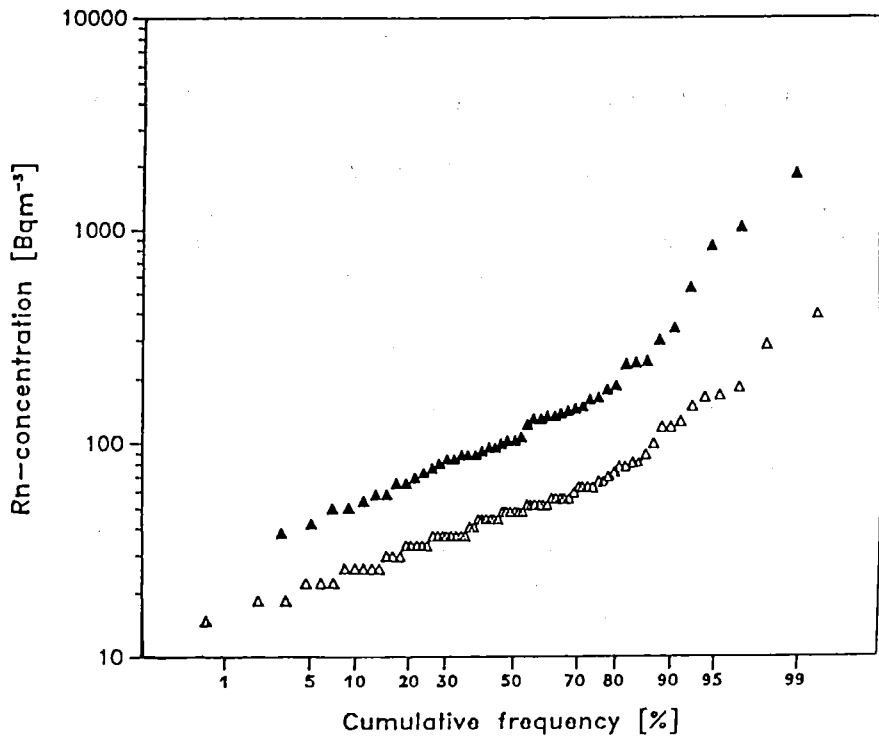


Figure 1. The results of regional Rn level surveys in ground-floor living rooms shown roughly lognormal distributions (after Cramer et al., 1989 b). Open triangles : 152 homes in the Molasse basin, black triangles : 97 homes in the Central Alps 10 % of the investigated homes have indoor Rn concentrations  $> 300 \text{ Bq m}^{-3}$

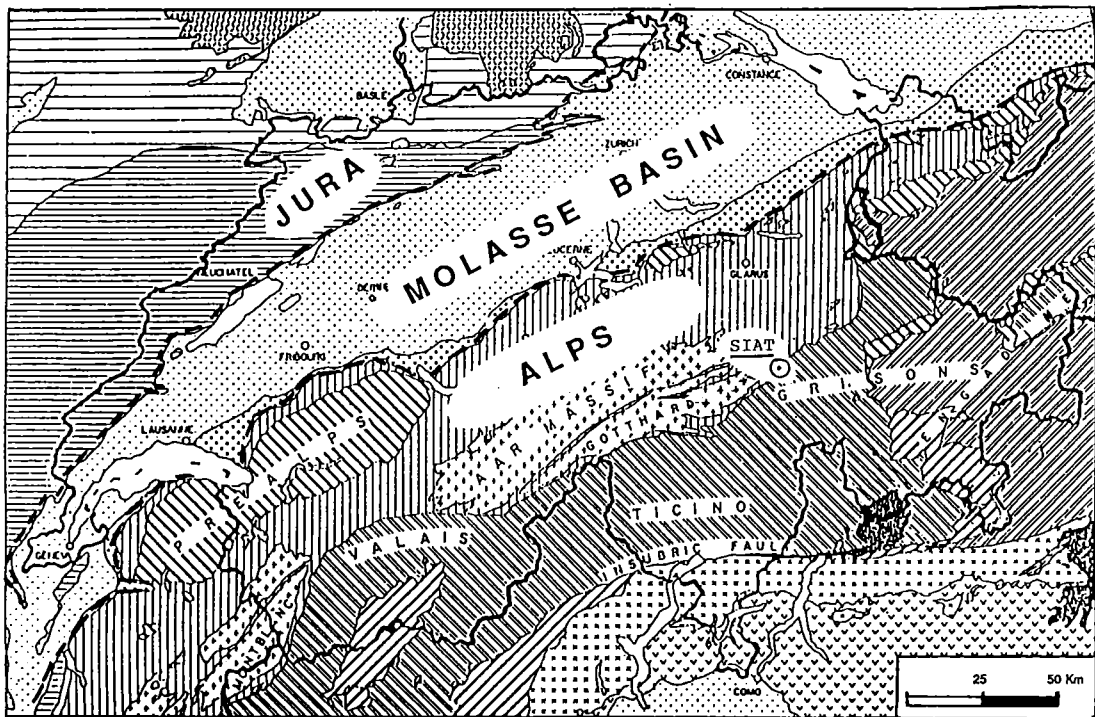


Figure 2. The main geological units of Switzerland : Jura, Molasse basin, Alps. Specific data of the Siat locality are given in Tableau 1.

## INTRODUCTION

Indoor exposure to Rn and Rn daughters represents the largest contribution (47 %) to the total effective dose received by the population in Switzerland (average : 4.8 mSv a<sup>-1</sup>, Burkart, 1989). Stimulated by nation-wide surveys abroad, the Swiss Rn investigation RAPROS (= **Radon Programm Schweiz**) was initiated in 1987. During the last four years RAPROS has addressed such questions as the origin and transfer of Rn, the radiation risk and its geographical distribution, development and testing of countermeasures, and the formulation of guidelines and standards for permissible indoor Rn levels.

Due to significant differences in geology, climate, building construction etc., the applicability of results obtained in other countries must be evaluated with care, by taking into account the relevant Swiss results. Some of the main findings of RAPROS to date are : 1) Measurements in a large number of homes and other buildings show a great variability in indoor Rn levels (from a few Bq m<sup>-3</sup> to several kBq m<sup>-3</sup>); 2) The average Rn concentration in dwellings is 62 Bq m<sup>-3</sup> (geometric mean, V Ikle and Steffes, 1989); 3) Domestic water and building materials are only minor sources of Rn (Cramer et al., 1989 a); 4) The geographical distribution of indoor Rn levels is highly heterogeneous.

Regional surveys conducted with integrating  $\alpha$ -track detectors yield individual, roughly lognormal distributions (Fig. 1) which reflect differences in large-scale geology. The complicated geologic/tectonic setting of Switzerland can be subdivided in broad terms, from north to south (cf. Fig. 2), into the following units : a) The **Jura** (Mesozoic limestones (dominant), dolomites, marls and evaporites, arranged in relatively simple, folded structures); b) The **Molasse basin** (mainly flat-lying Tertiary conglomerates, sandstones and shales); and c) The **Alps** (metamorphosed granitic, gneissic, schistose, and sedimentary rocks, arranged in complicated thrust-dominated structures). Mean Rn levels in dwellings are : Jura, 110 Bq m<sup>-3</sup>; Molasse basin, 50 Bq m<sup>-3</sup>; Alps, 180 Bq m<sup>-3</sup>. Compared to other countries, Switzerland exhibits high Rn

levels (ICRP, 1987; V Ikle and Steffen, 1989) and in some areas the Rn exposure in the upper percentile of homes exceeds the annual limit for occupational exposure (currently 50 mSv per year effective dose equivalent, according to ICRP, 1977).

In the following, some of the parameters characterising and influencing the Rn source term are addressed in more detail. It will be demonstrated that, besides regional-scale geologic characteristics like the predominant lithology of tectonic units (Rybach and Medici, 1989), small-scale factors like the local ground porosity and permeability can play a dominant role in indoor Rn exposure.

## RADON SOURCE PROPERTIES AND TRANSFER FACTORS

The predominant sources of indoor Rn are located in the ground immediately below and around the building in question. The relevant small-scale geological properties of the subsurface are its <sup>226</sup>Ra concentration  $c_{Ra}$  (Bq kg<sup>-1</sup>), emanating power  $E$  (%) and porosity ( $\Phi$ ); these factors determine the Rn concentration in soil gas,  $C_s$  :

$$C_s = E c_{Ra} \rho (1 - \Phi) / \Phi$$

Where  $\rho$  is density (kg m<sup>-3</sup>).

Surprisingly high <sup>226</sup>Ra concentrations have been found in some areas of the calcareous Jura (locally up to 800 Bq kg<sup>-1</sup> dry weight; Surbeck and Medici, 1990) as well as in the granitic regions of the Alps (central massifs). Measurements on soil gas samples taken typically at 50 cm depth with a pump-coupled Lucas cell revealed Rn concentrations of several tens of kBq m<sup>-3</sup> in the ground in many areas of Switzerland.

Indoor Rn levels are orders of magnitude lower (a few tens of Bq m<sup>-3</sup>, see above). It can be shown that only a small fraction (usually < 0.1 %) of the soil gas finds its way into indoor air. The Rn flow is governed by pressure differences between the building and the ground which are due to local atmospheric factors (barometric fluctuations, temperature differences, wind). At sites with "normal" ground permeability (i.e. in absence of

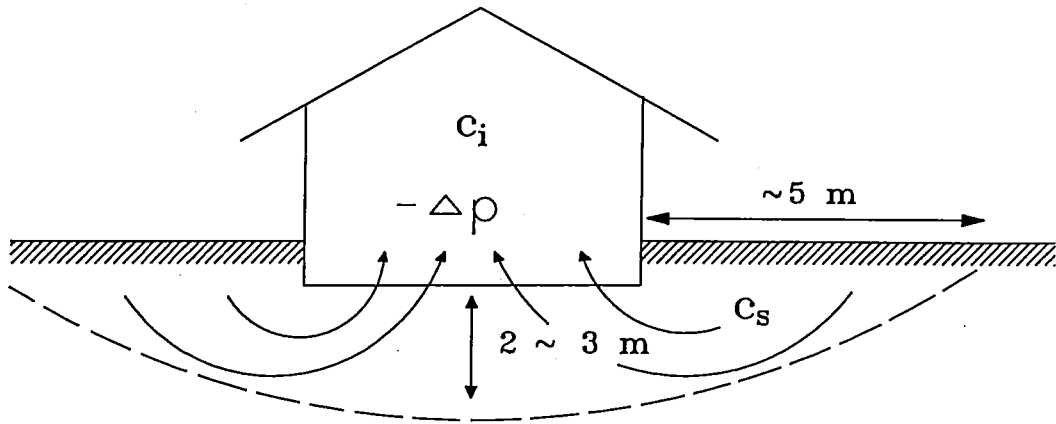


Figure 3. The Rn source is confined within a small volume which extends only a few meters below and next to the building. Indoor underpressure ( $-\Delta p$ ) is responsible for the flow lines.  $C_s$  : Rn concentration in soil gas ( $Bq\ m^{-3}$ ),  $c_i$  : indoor Rn level. Usually,  $c_s = 100 \dots 1000 \times c_i$ . For details see text.

extended fissure systems) the flow originates from a rather small volume around and below the building foundation (a few meters, according to the modeling results of de Oliveira Loureiro 1987; cf. Fig. 3.).

Besides high Rn concentrations in soil gas, the permeability of the ground is of key importance in creating high indoor Rn levels. For the RAPROS study, permeability estimates have been obtained with the same equipment as is used to measure Rn concentration in soil gas, which injects air at constant pressure into a drillhole. The injection of  $1000\ cm^3$  of air at 4 kPa gauge pressure in 10 seconds yields a

pneumatic permeability estimates of  $10^{-12}\ m^2$  (Surbeck and Piller, 1989).

The algebraic product of the two measurable ground parameters, the Rn content in soil gas ( $c_s$ , in  $Bq/m^3$ ), and the ground pneumatic permeability ( $k$ , in  $m^2$ ) proved to be indicative of sites where high indoor levels prevail. Therefore, the **Radon Availability Index RAV** is introduced :

$$RAV [Bq\ m^{-1}] = c_s \times k$$

The following classes of exposure risk can be defined on the basis of the RAV index :

RAV	$< 10^{-8}\ Bq\ m^{-1}$	$10^{-8} \dots 10^{-7}\ Bq\ m^{-1}$	$> 10^{-7}\ Bq\ m^{-1}$
Class	low exposure risk	normal exposure risk	high exposure risk

A constant RAV index defines straight lines in a  $c_s$  vs.  $k$  diagram (Fig.4); practically all sites in Switzerland with elevated indoor Rn and available  $c_s$  and  $k$  data plot in the field were  $RAV > 10^{-7}\ Bq\ m^{-1}$ . This empirical RAV index is thus for defining high RN exposure risk areas.

**SPECIFIC EXAMPLES**

High indoor Rn exposure is to be anticipated if one of the components of RAV is elevated. Two examples are given below, one with high  $c_s$  (originating from high  $^{226}Ra$  content and from locally high  $k$ ), and another with high  $k$

(karst).

**High  $^{226}Ra$  content (Siat, GR)**

The village of Siat (for location see Fig. 2) is situated on rocks which are locally high in  $^{226}Ra$ . Most dwellings are founded directly on

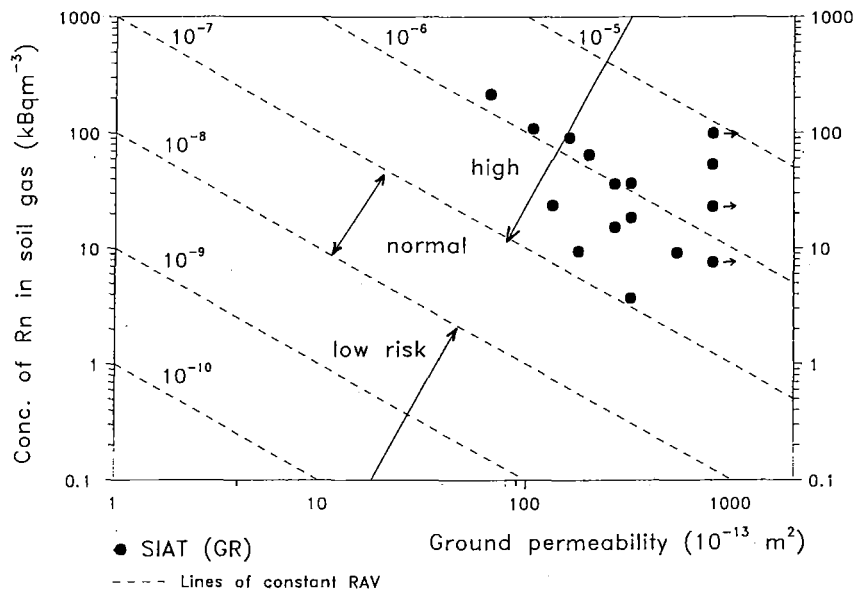


Figure 4.

The Radon Availability Index  $RAV = c_s \times k$  defines realms of low, normal and high Rn exposure risk. Dots : RAV values from the Siat, GR locality (cf. Table 1).

fractured bare rock, the Permian Verrucano, in which local uranium concentrations (uranium mineralisation; Gilliéron, 1988) are abundant. Ground permeability can locally be enhanced due to rock slides or fracture swarms.

Results of a measurement campaign conducted within the framework of RAPROS are summarized in Table 1. The high  $^{226}\text{Ra}$  concentration of the ground gives rise to correspondingly high  $c_s$  values. A correlation between RAV and indoor Rn can also be seen. The RAV data are shown in Fig. 4, where they plot in the high exposure risk field. Remedial measures at this site (subslab ventilation) are currently at the testing stage.

### High ground permeability (karst caves)

Karst systems in the subsurface represent an extreme case of elevated ground permeability. In the Jura, several sites underlain by limestone karst are known with high indoor Rn levels (Lauffenburger and Auf der Maur, 1984; Surbeck, 1988; Surbeck and Piller, 1988). Therefore, an extended survey was initiated to investigate the Rn levels in karst systems. The measurements (a total of 40 so far) were conducted in accessible karst systems in Switzerland using Lucas cells (after humidity

and Rn daughter filtering). The main results are summarized below.

Despite the fact that limestones are generally poor in  $^{226}\text{Ra}$ , Rn concentrations of between 0 and 35  $\text{kBq m}^{-3}$  were found in cave air (Table 2). The Rn levels seem to be lower in Alpine caves. Repeated measurements in several caves showed some fluctuations but the Rn obtained using integrating dosimeters agree well with the Lucas cell data. Thus it appears that Rn level is relatively constant over periods of weeks to months.

Water is present in most caves, sometimes in significant flows. The Rn content of the water range from 1 to 16  $\text{kBq m}^{-3}$ . These values must be compared with the Rn concentrations found in the cave air. For this purpose the Ostwald coefficient  $L$  can be used which is defined here as the water/air Rn concentration ratio.  $L$  depends on temperature; for the range  $4^\circ - 8^\circ\text{C}$  (the temperature range in the caves investigated)  $L$  varies between 1/3 and 1/4. In nearly all caves investigated  $L$  varies between 1/3 and 1/4. In nearly all caves investigated, more Rn was found in the water than equilibrium concentrations would require ( $L > 1/3$ ).

The large span in the Rn concentrations of cave air cannot wholly be explained by

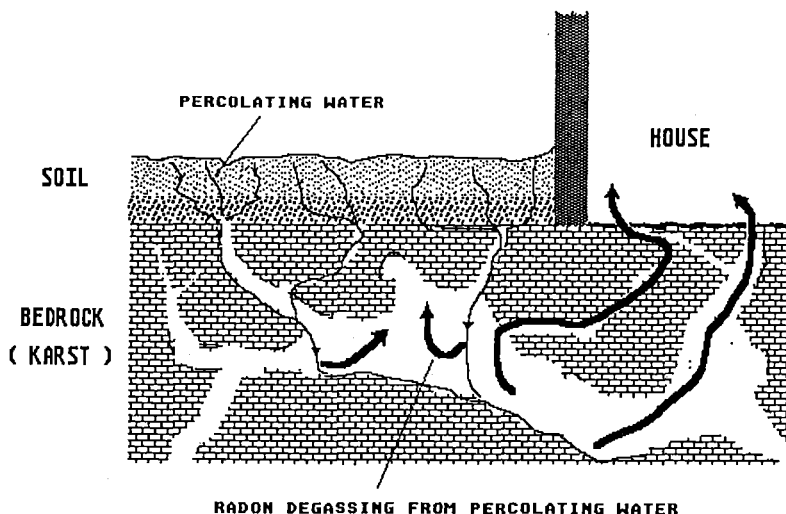


Figure 5. Model of Rn transfer from soil to karst systems by percolating water (from Surbeck and Medici 1990).

variations in emanating power of the cave wall rocks. Also, there is no obvious correlation with the lithology of the calcareous formations. The intensity of air flow (=ventilation) in the cave must certainly have influence on the Rn level, although this effect is not always straightforward: some well-ventilated caves had high Rn levels whereas poorly ventilated ones showed extremely low Rn concentrations. Thus there must be further influence factors as well.

The origin of Rn in cave air remains an important unanswered question. Excess  $^{210}\text{Pb}$  in samples of the loose sedimentary deposits in the caves points to an Rn source outside of the cave. The main source seems to be the water transporting Rn from the soil to the cave. Surbeck and Medici (1990) proposed a specific model along these lines for the entry and accumulation of Rn in karst systems (cf Fig. 5). Generally, there is a correlation between the water flow rate and the Rn level, although the highest Rn concentrations were found in caves with nearly no water.

## CONCLUSION

Several factors influence the indoor Rn level in Switzerland. Among these, building materials and domestic water are of minor importance. The main controlling factors lie in geologic parameters, that act on different scales: regional variations in Rn exposure reflect changes in lithology of the subsurface and in  $^{226}\text{Ra}$  content, whereas small-scale variations

can be attributed to local differences in rock properties like porosity, permeability, moisture content, etc...

Results of soil measurements indicate that Rn concentrations are 100 to 1000 times higher in the ground than indoors. Indoor Rn originates from a quite limited volume around and below the building foundations (a few meters). To identify high-exposure areas an empirical Rn indicator can be helpful: the Radon Availability Index RAV (Rn concentration in soil gas  $\times$  ground permeability). In areas with high exposure risk the RAV index is above  $10^{-7} \text{ Bq m}^{-1}$ .

Two examples are given: One with high  $^{226}\text{Ra}$  content in the subsurface which gives rise to high soil gas contents (Siat, GR) and another with high permeability (karst systems in low  $^{226}\text{Ra}$  concentration limestones). The high Rn levels in karstic cave air seem to originate from water percolating through the thin surface soil layer (having high  $^{226}\text{Ra}$  activity) before entering the karst system.

## Acknowledgements

We thank Prof. H.H. Loosli (Bern) for stimulating discussions, the Swiss Federal Office of Public Health (BAG, Bern) for financial support, and Dr. G. Piller (Fribourg) for various field and laboratory help. Contribution n° 663, Institute of Geophysics ETH Zurich.

Table 1. Rn in ground vs. Rn in house.

$^{226}\text{Ra}$ in soil [Bq Kg <sup>-1</sup> ]	C <sub>s</sub> in soil [kBq m <sup>-3</sup> ]	K (Permeability) [10 <sup>-11</sup> ]	RAV [Bq m <sup>-1</sup> ]	C <sub>i</sub> in basement [Bq m <sup>-3</sup> ]
117(+/- 37 %)	215.7	0.6	1.2 x 10 <sup>-6</sup>	7 270 2 950 3 850 1 050
106 (+/- 37 %)	15.3	2.7	4.0 x 10 <sup>-7</sup>	190
105 (+/- 48 %)	90.7 108.6 99.2	1.6 1.0 -	1.4 x 10 <sup>-6</sup> 1.0 x 10 <sup>-6</sup> -	- 3 030 -
-	24.4	4.0	9.8 x 10 <sup>-7</sup>	2 090 340
91 (+/- 53 %)	53.5 64.8	8.0 2.0	4.0 x 10 <sup>-6</sup> 1.3 x 10 <sup>-6</sup>	- -
113 (+/- 77 %)	36.6	3.2	1.2 x 10 <sup>-6</sup>	-
81 (+/- 38 %)	23.0 7.7	- -	- -	- -
62 (+/- 80 %)	9.2	5.3	4.8 x 10 <sup>-6</sup>	-

## REFERENCES

- BUKART, W.** (1989) : Die Strahlenbiologie der Lunge. In : "Radon und Strahlenbiologie der Lunche", R. Crameri and W. Burkart (eds.), PSI-Bericht N° 22, p. 17-29, Paul Scherrer Institute CH-5232 Villigen.
- CRAMERI, R., FURRER, D., SCHULER, Ch.** (1989a) : Radonquellen und Mechanismen des Radontransportes. In : "Radon und Strahlenbiologie der Lunche", R. Crameri and W. Burkart (eds.), PSI-Bericht N° 22, p. 49-61, Paul Scherrer Institute CH-5232 Villigen.
- CRAMERI, R., BRUNNER, H.H., BUCHLI, R., WERNLI, C., BURKART, W.** (1989b) : Indoor Rn levels in different geological areas in Switzerland. Health Physics 57, 29-38
- DE OLIVEIRA LOUREIRO, C.** (1987) : Simulation of Steady-state transport of radon from soil into houses with basements under constant negative pressure. LBL - 24378, Lawrence Berkeley Laboratory, Berkeley CA, 278 p.
- GILLIERON, F.** (1988) : Zur Geologie der Uranmineralisation in den Schweizer Alpen. Beitr. Geol. Schweiz, Geotechn. Serie N° 77, 54 p., KÜMMERLY & Frey AG, Bern.
- ICRP** (1977) : Recommendations, International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 26, Pergamon Press, Oxford.
- ICRP** (1987) : International Commission on Radiological Protection : Lung cancer risk from indoor exposures to radon daughters. ICRP Publication 50, Pergamon Press, Oxford.
- LAUFFENBURGER, T. and Auf der Maur, A.** (1984) : The concentration of radon in a town where Radium-activated paints were used. I, : Proceedings of the 6th Int. Congress of IRPA, Berlin (West), May 1984.
- RYBACH, L. und MEDICI, F.** (1989) : Geologische Aspekte der Radon-Strahlenbelastung in der Schweiz. In : "Radon und Strahlenbiologie der Lunge", R? Crameri and W. Burkart (eds.), PSI-Bericht N° 22, p. 63-80, Paul Scherrer Institute CH-5232 Villigen.



Table 2. Rn concentrations in the air of Swiss karst caves.

Karst system	$C_{\max}$ [Bq m <sup>-3</sup> ]	$C_{\text{mean}}$ [Bq m <sup>-3</sup> ]	P.D. [Bq m <sup>-3</sup> ]
Mendiphöle	<100	-	-
Grotte des Blanches-Fontaines	<100	-	-
Grotte de la Raisse	<100	-	-
Gouffre des Bolliardes	<100	-	-
Grotte du Chemin de fer	<100	-	-
Grotte du Téléphone	<100	-	-
Grotte de l'Ubena	200	-	-
Grande grotte aux fées de Vallorbe	300	-	-
Grotte de Prépunel	400	350(2)	-
Gouffre de Pertuis	400	-	-
Collecteur Lapi di Bou	600	500(2)	-
Touki-Trou	600	600(3)	-
Grotte du Chien Vert	600	-	-
F1 innerbergli	-	-	700
Mines de Baulmes	800	-	-
Gouffre du Cernil Ladame	1000	700(6)	1200
Glacière de Druchaux	1200	1000(3)	-
Faustloch	1700	-	-
Galcière de Monlési	1800	-	-
Grotte de La Toffière	2300	-	-
Gouffre des Marmottes	2500	-	-
Grotte du Chapeau de Napoléon	2600	2500(3)	2400
Bärenschacht	-	-	2700
Grotte de la Resurgence de l'Orbe	3100	2900(3)	-
Grotte de Moron Ouest	3500	3200(3)	-
Mines d'asphalte	3700	3650(2)	-
Grotte des Lacs (Covatannaz)	4000	4000(2)	3400
Gouffre du Gros Crêt	4300	-	-
Grotte de Môtiers	7400	-	1000
Grotte de Vers chez Brandt	6200	-	5300
Baume de Longeaigne	7200	-	-
Grotte de la grande-Poule (Covatannaz)	7400	7000(4)	4300
Moulins du Col des Roches	9000	-	-
Baume de Longeaigne	9400	8300(3)	4700
Grotte Grand Fontannet de la mothe	12400	12000(2)	-
Gouffre de ma Renouillère	13800	-	-
Grotte du Lierre	14400	13000(3)	-
Petit Fontannet de la Mothe	15800	15500(2)	-
Grotte du Grand Bochat	17900	-	-
Grotte de la Liberté	-	30000	-
Gouffre de Cheminots (Centre Espérantiste)	-	35000	-

**SURBECK, H.** (1988) : The search for radon sources, a multidisciplinary task. Rad. Prot. Dosim. 24, 431-434.

**SURBECK, H. and PILLER, G.** (1989) : A closer look at the natural radioactivity in soils. In : Proceedings of the 1988 Symposium on Radon and Radon Reduction Technology, Denver CO, October 17-21, 1988, Environmental Protection Agency Report EPA-600/9-89-006, Research Triangle Park

**SURBECK, H. and MEDICI, F.** (1990) : Rn-222 transport from soil to karst caves by

percolating water. In : Proceedings of the 22nd Congress of the IAH, Lausanne, Switzerland, August 27 - September 1, 1990, IAH Mémoires vol. XXII, part 1, p. 348 - 355.

**VOLKLE, H. und STEFFES, F.** (1989) : Radon in Schweizer Wohnhäuser : Bisherige Ergebnisse. In : "Radon und Strahlenbiologie der Lunge", R. Cramer and W. Burkart (eds.), PSI - Bericht N° 22, p. 81-116, Paul Scherrer Institute CH-5232 Villigen.

## RISQUE RADIOLOGIQUE DU AU RADON ET SES DESCENDANTS DANS LES MINES DE CHARBON EN POLOGNE

Jan SKOWRONEK

Institut Central des Mines

Pl. Gwarkow 1, PL - 40 - 951 Katowice, Pologne

### RESUME

*L'article présente les résultats des contrôles des concentrations en radon et en énergie alpha potentielle effectués dans les mines de charbon. Les contrôles ont été effectués dans les différentes conditions d'exploitations et avec les différents systèmes d'aérage. Le risque radiologique dû aux descendants à vie courte du radon ne dépend que des méthodes d'exploitations et des systèmes d'aérage. Dans les certaines conditions de travail (système d'exploitation ou d'aérage) le degré de risque radiologique peut atteindre la valeur de la limite prescrite dans la réglementation polonaise pour les mines non-uranifères. L'estimation du risque ne peut être faite par voie des mesures des concentrations en radon, mais directement par voie des mesures de la concentration en énergie alpha potentielle sur les postes de travail.*

### INTRODUCTION

Le risque radiologique dû aux radionucléides naturellement radioactifs existe aussi en dehors des terrains uranifères. Dans les mines de charbon en Haute Silésie on a trouvé (Skubacz et al, 1990) :

- des eaux souterraines qui contiennent du radium en concentrations allant jusqu'à 400 kBq/m<sup>3</sup>,
- des sédiments ayants des concentrations élevées en radium (jusqu'à 4000 kBq/kg), le débit de dose dû au rayonnement gamma émis par ces sédiments peut donc aller jusqu'à 18 µGy/h,
- dans l'air de mine des concentrations en radon et ses descendants plus élevés qu'au jour (Chalupnik et al, 1986)

Cet article présente les résultats des contrôles des concentrations en radon et en énergie alpha potentielle effectués dans les mines de charbon.

### METHODES DE CONTROLE

Les mesures de radon ont été effectuées avec des fioles scintillantes de 170 cm<sup>3</sup> de volume. Le seuil de la détection est égal à 70 Bq/m<sup>3</sup>.

Les mesures des descendants à vie courte du radon ont été faites avec l'appareil polonais du type RGR-11. Le cycle de mesure dure 15 minutes. Les descendants ont été prélevés sur le filtre pendant 5 minutes avec un débit d'air de 1 l/Min. Les particules alpha ont été mesurées par le détecteur silicium entre la 7<sup>ème</sup> et 10<sup>ème</sup> minute et 13<sup>ème</sup> et 15<sup>ème</sup> minute du cycle (la méthode de Markov)(Marlov et al,

1962). Le seuil de détection pour l'énergie alpha potentielle a été égal 0,15 µJ/M<sup>3</sup>.

Ces mesures ont permis de déterminer les valeurs du facteur d'équilibre entre le radon et ses descendants à vie courte.

Pour déterminer le risque dû aux descendants on a fait des mesures à l'aide du gravimètre polonais du type BARBARA-3a équipé d'un appareil de mesure ALFA-31 (fig. 1) Lebecka et al, 1988).

Les aérosols sont ramassés sur un filtre. Au-dessus du filtre on a installé trois petites têtes de mesure avec les détecteurs thermoluminescents CaSO<sub>4</sub>. : Dy sensibles aux particules alpha. Le seuil de détermination de l'énergie alpha potentielle est de 0,02 µJ/m<sup>3</sup>. La durée de fonctionnement du gravimètre alimenté par les batteries rechargeables est de 8 heures au minimum. L'appareil peut travailler dans l'atmosphère exploisible.

### RESULTATS DES ETUDES

Les contrôles simultanés des concentrations en radon et en énergie alpha potentielle des descendants à vie courte du radon ont été effectués dans les mines et quartiers qui présentaient différentes méthodes d'exploitation ou systèmes d'aérages, avec et sans grisou. Dans tous les cas, les contrôles ont été effectués le long des courants d'air.

Les concentrations en radon et en ses descendants ne dépendent pas de facteurs géologiques du gisement, tels que la structure géologiques, la présence des eaux radioactives etc. On a constaté, qu'elles ne dépendent que

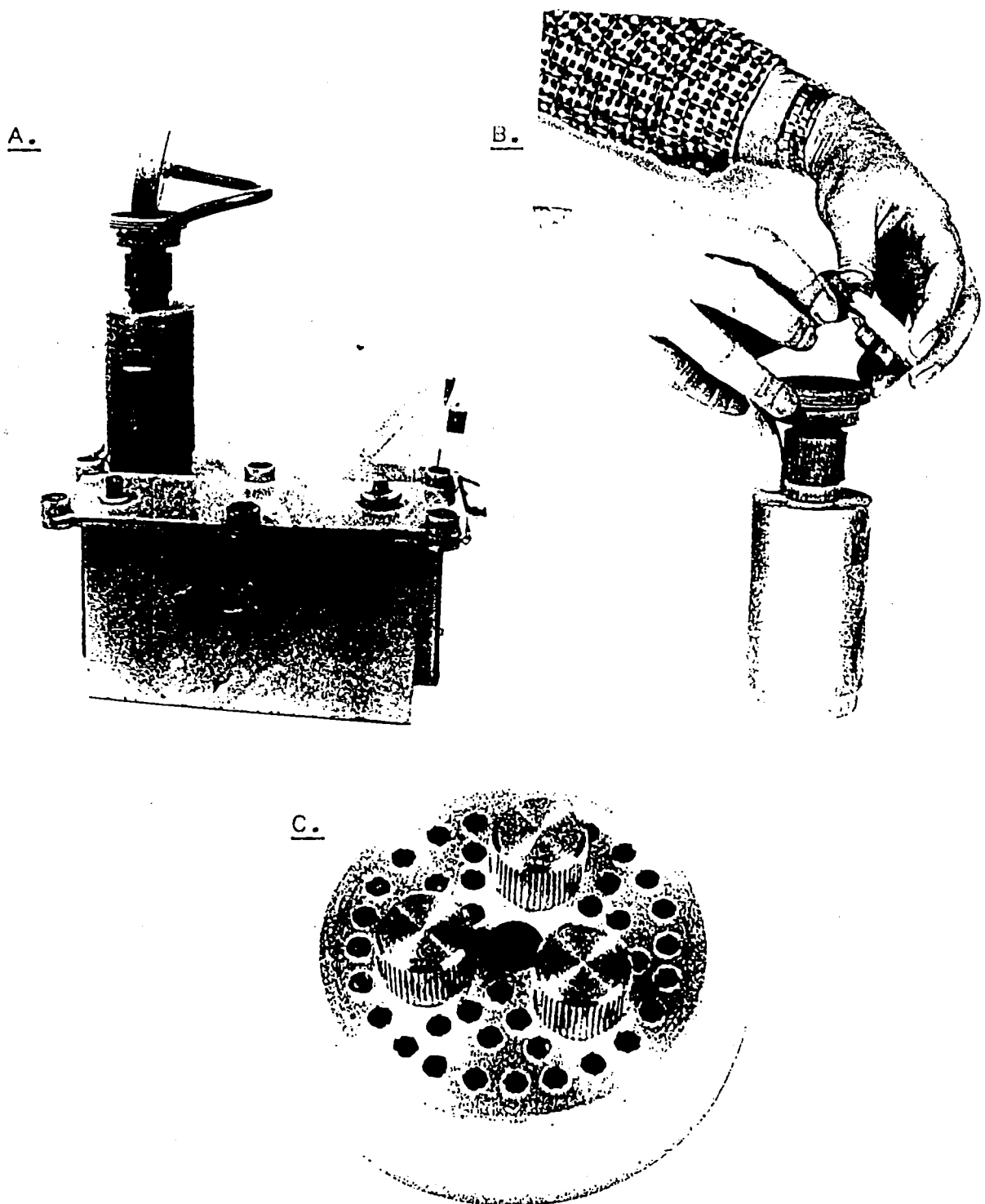


Figure 1. Appareil de mesure de la concentration en énergie alpha potentielle dans les mines de charbon.

A. Gravimètre Barbara-3a avec le microcyclone.

B. Installation de l'appareil ALPHA-31 dans le microcyclone.

C. ALPHA-31 avec trois têtes de mesure.

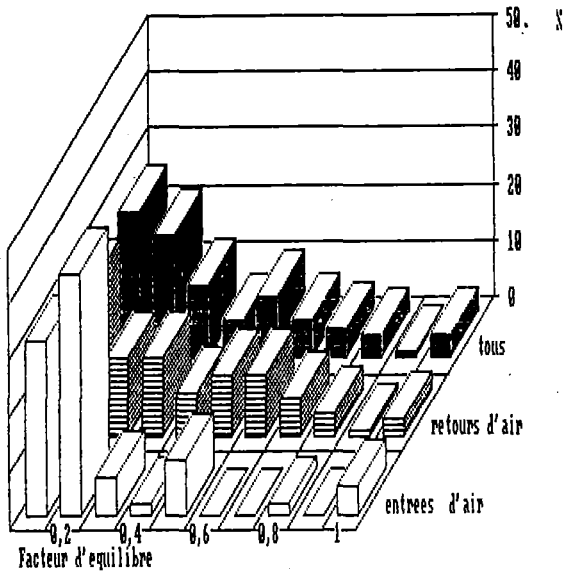


Figure 2. Histogramme des facteurs d'équilibre entre le radon et ses descendants à vie courte dans les mines de charbon.

des conditions techniques d'exploitation et surtout de la méthode d'exploitation et du système d'aéragé (Skowronek, 1991).

On a observé, que l'air entrant du jour directement dans les chantiers ne contient ni radon, ni ses descendants. Les concentrations en radon et en énergie alpha potentielle s'accroissent après passage de l'air par les zones foudroyées. De l'entrée d'air jusqu'à la sortie on observe des changements irréguliers du facteur d'équilibre. Ces changements ont lieu au niveau des carrefours des galeries, dans les noeuds du réseau d'aéragé, mais aussi près des changements de la direction du flux d'air à proximité des zones foudroyées. Les valeurs du facteur d'équilibre varient de 0,05 à 1. On a observé, que les facteurs d'équilibre dans l'air usé (en retour) sont disposés assez régulièrement dans toute l'étendue de ces valeurs, tandis que presque la moitié des valeurs trouvées dans l'air entrant dans les chantiers est inférieure à 0,2 (fig. 2).

Le radon présente un risque radiologique négligeable en le comparant avec le risque dû à ses descendants à vie courte : Po-218, Pb-214, Bi-214 et Po-214. On a démontré que le facteur d'équilibre dans la mine n'est pas constant. Pour examiner le risque il faut donc

contrôler les concentrations en descendants du radon, exprimées en valeurs de la concentration en énergie alpha potentielle.

Le 1 octobre 1989, on a commencé dans les mines de charbon les contrôles réguliers du risque radiologique dû aux radionucléides naturellement radioactifs (In89). Dans le cadre de ces contrôles on effectue les mesures de la concentration en énergie alpha potentielle et en radium dans les eaux et sédiments et des débits de dose gamma.

D'après la réglementation polonaise (No 88), les valeurs de la concentration en énergie alpha potentielle sont divisées en quatre parties :

- 1) au-dessous de la valeur  $0,4 \mu\text{J}/\text{m}^3$  : on considère que le risque est négligeable,
- 2) de  $0,4$  à  $2,5 \mu\text{J}/\text{m}^3$  : des contrôles d'ambiance sont nécessaire,
- 3) de  $2,5$  à  $6,2 \mu\text{J}/\text{m}^3$  : la dosimétrie individuelle peut être nécessaire si le temps de travail sur ce poste rend possible de dépasser la dose efficace annuelle  $15 \text{ mSv}$ ,
- 4) au-dessus de  $6,2 \mu\text{J}/\text{m}^3$  (limite opérationnelle).

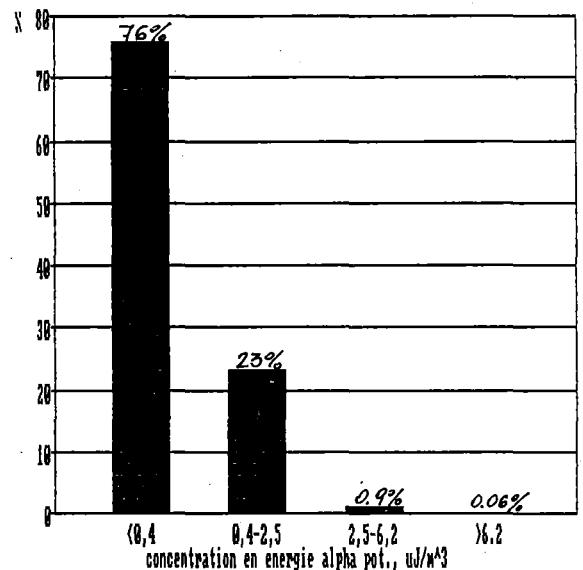


Figure 3. Histogramme des valeurs de la concentration en énergie alpha potentielle dans les mines de charbon.

Table 1. Résultats des contrôles des concentrations en énergie alpha potentielle dans les mines du charbon.

N°	Nombre des contrôles	Valeur maximale	Nombre des contrôles			
			<0,4	de 0,4 à 2,5	de 2,5 à 6,2	>6,2
pJ/m <sup>3</sup>						
1	32	1,52	24	8		
2	34	0,43	33	1		
3	22	0,35	14	8		
4	12	0,09	12			
5	31	1,73	20	11		
6	123	5,50	64	54	5	
7	109	2,99	71	36	2	
8	50	1,05	39	11		
9	277	5,77	195	79	3	
10	57	8,94	53	2	1	1
11	92	1,46	79	13		
12	31	5,22	20	10	1	
13	73	1,00	71	2		
14	107	0,52	105	2		
15	106	4,77	52	50	4	
16	73	1,92	24	49		
17	41	2,66	35	5	1	
18	40	0,37	40			
19	28	0,58	27	1		
20	74	0,42	73	1		
21	51	0,07	51			
22	83	3,13	55	27	1	
23	189	3,03	86	102	1	
24	63	1,49	51	12		
25	76	1,64	47	29		
26	103	0,58	101	2		
27	7	1,71	6	1		
28	124	3,08	50	73	1	
29	23	0,68	22	1		
30	49	0,58	48	1		
31	71	0,85	61	10		
32	34	2,99	27	6	1	
33	38	11,12	31	5	1	1
34	29	0,71	26	3		
35	43	0,83	35	8		

N°	Nombre des contrôles	valeur maximale	Nombre des contrôles			
			<0,4	de 0,4 à 2,5	de 2,5 à 6,2	>6,2
$\mu\text{J}/\text{m}^3$						
36	97	0,93	89	8		
37	29	4,95	8	17	4	
38	60	1,36	47	13		
39	6	0,10	6			
40	32	0,80	30	2		
41	20	0,19	20			
42	40	0,50	39	1		
43	115	1,50	66	49		
44	67	2,36	38	29		
45	57	3,03	33	22	2	
46	29	1,16	27	2		
47	51	0,46	50	1		
48	10	1,12	9			
49	74	1,47	44	33		
50	35	1,13	28	7		
51	31	0,20	31			
52	115	0,57	104	11		
53	28	0,08	28			
54	73	0,23	73			
55	64	0,27	64			
56	24	0,12	24			
57	28	0,23	28			

Dans le tableau 1 on présente les valeurs maximales et la distribution des valeurs de la concentration en énergie alpha potentielle dans les 60 mines de charbon, trouvées pendant des contrôles effectués au premier semestre 1990. Dans 2 mines seulement, on a constaté le dépassement de la valeur de la limite opérationnelle de  $6,2 \mu\text{J}/\text{m}^3$ . La valeur maximale enregistrée est de  $11,12 \mu\text{J}/\text{m}^3$ . Dans 12 mines (20%), le risque dû aux descendants du radon est négligeable, la concentration en énergie alpha potentielle est inférieure à  $0,4 \mu\text{J}/\text{m}^3$ .

Sur la fig. 3 on présente l'histogramme des valeurs de la concentration en énergie alpha potentielle. Pendant le premier semestre 1990 on a constaté, que 76% des contrôles ont donné le résultat inférieur à  $0,4 \mu\text{J}/\text{m}^3$ . Donc, on peut dire que le risque ne se manifeste pas sur 76%

des postes du travail dans les mines de charbon. Seulement 0,06% des résultats est supérieur à la limite opérationnelle  $6,2 \mu\text{J}/\text{m}^3$ .

## CONCLUSION

Le risque radiologique dû aux descendants à vie courte du radon peut se manifester aussi dans les mines de charbon. La situation ne se présente pas si grave comme dans les mines d'uranium, mais le degré du risque peut dépasser parfois la limite prescrite. Cependant il n'y est pas dû à la minéralisation uranifère du gisement, car la concentration moyenne en radium dans le charbon polonais (Skowronek 1986), est inférieure à la valeur moyenne pour la croûte terrestre. La présence du risque dans les chantiers est avant tout l'effet des méthodes d'exploitation et des systèmes d'aéragés utilisés.

Les facteurs d'équilibre dans les différents postes de travail changent et c'est pourquoi il est nécessaire de contrôler les concentrations en énergie alpha potentielle pour pouvoir correctement estimer le degré du risque radiologique dans les mines de charbon.

#### REFERENCES

**CHALUPNIK S., SKOWRONEK J., SKUBACZ K., LEBECKA J. 1986** : Short-living Radioisotopes from Uranium and Thorium Series in Coal Mine Atmosphere. Proc. of 4<sup>th</sup> Working Meeting "Isotopes in Nature", Leipzig, 1986.

**In 89**; Instruction des contrôles du risque radiologique dû aux radionucléides naturellement radioactifs dans les mines de charbon. Katowice, 1989.

**LEBECKA J., SKOWRONEK J., TOMZA I., MICHALIK B., CHALUPNIK S., SKUBACZ K. 1988** : A Thermoluminescent Monitor of Low Radon-daughter concentration in Air. App. Rad. Isot. vol. 39, n° 9, pp. 987-992.

1982. Int. J. Radiat. Appl. Instr. Part A.

**MARLOV K.P., RYABOV N.V., STAES K.N. 1982** : A Rapid Method of Estimation the Radiation Hazard from the presence of the Decay Products of Radon in Air. Atomnaia Energia, vol. 12, 1962. pp. 315-319.

**No 88**; Norme polonaise PN-88/Z-70071 : Radioprotection dans les mines souterraines. Limites des expositions des mineurs à l'action des isotopes radioactifs naturels et méthodes du contrôle.

**SKOWRONEK J., 1986** : Radionuclides from Uranium and Thorium Series in Carboniferous Formations. Proc. of 4<sup>th</sup> Working Meeting "Isotopes in Nature", Leipzig.

**SKOWRONEK J., 1991** : Les descendants à vie courte du radon dans les mines du charbon en Pologne. (prévu à publication dans "Radioprotection N°1, 1991).

**SKUBACZ K.; LEBECKA J., CHALUPNIK S., WYSOCKA M. 1990** : Possible Changes in Radiation Background of the Natural Environment caused by Coal Mine Activity. Colloque International sur les techniques nucléaires dans la prospection et l'exploitation des ressources énergiques et nucléaires. Vienne, 5-8 juin 1990. IAEA-SM-308.



# **III<sup>ème</sup> PARTIE**

Radon, Séismes et Volcanisme

## LA MESURE EN CONTINU DE L'EMANATION RADON INTERET DANS UN CONTEXTE MICROSISMIQUE : LA STATION D'HORNU

J.-M. CHARLET <sup>(1)</sup>, A. BLAVE <sup>(2)</sup> et B. DUCARME <sup>(3)</sup>

<sup>(1)</sup> Service "Géologie, Etudes, Prospection", Faculté Polytechnique de Mons, 9 rue de Houdain, 7000 Mons.

<sup>(2)</sup> Centre d'Instrumentation Electronique, Faculté Polytechnique de Mons.

<sup>(3)</sup> Observatoire royal de Belgique, Section de géodynamique, 3, avenue Circulaire, 1180 Bruxelles.

### ABSTRACT

*The development of our research on radon flows variations in relation with microearthquakes in the Mons basin has led us to set up a continuous radon emission monitoring.*

*This paper includes four principal parts :*

- *a discussion on the selection of a detection system using our activated charcoal and a discussion on the selection of a measurement site .*
- *a description of the geological and radiometric features of the selected site at Hornu, in the Mons Basin.*
- *a technical description of the continuous radon monitoring.*
- *some examples of applications.*

*From the study of the geological environment one can consider that the site is suitable to undertake the radon measurement : sandy formation, homogenous and with a "intergranular permeability", a low concentration of radioelements (so a low superficial radon source) and a mean radon flow at the scale of the Mons Basin.*

*The continuous radon monitoring include two principal parts : a system of detection and a system for acquisition, processing and recording of the data.*

*A gamma detector is in a concrete tank and the whole thing is buried. It is protected from the gamma radiation due to the natural soil radioactivity by a lead plate. On the detector, a mass of 2 kg of activated charcoal picks up the radon of the soil. The gamma radiation emitted by the radon decay products is continuously analysed by a window spectrometer. The windows have been selected as follows : 1,48 Mev for the K40 which indicates the environmental radioactivity; 1,76 Mev for the Bi214 which follows the evolution of the radon effect (Rn222); 2,62 Mev for the TL208, which denotes the thoron effect (Rn220). The total count (TC) is measured from 1 Mev upwards. On the other hand, heat fluctuations are also measured inside and outside the tank. The measures are regularly taken every 10 seconds and the mean is calculated over 30 minutes periods. Some recording of radon emission against time are discussed. First the introduction in the tank of the activated charcoal detector indicates a pseudo equilibrium arriving after about eight hours. A second case concerns a climatological effect during a frozen period. A third case shows a true earth tide effect.*

### INTRODUCTION

La surveillance des émissions radon, en vue de la prévision de risques sismiques ou volcaniques, nécessite des stations de mesures continues. En outre, l'étude de certains phénomènes géophysiques comme les marées terrestres ou des effets climatologiques sur le phénomène de migration du radon exige

également une mesure régulière (Sugisaki, 1981; Thomas, 1985; King, 1986; Zhenyeng, 1986; Charlet, 1990).

Divers chercheurs ont ainsi proposés des stations continues soit pour les mesures dans l'eau, soit pour les mesures dans le sol. On peut citer, par exemple, la mesure en continu par compteur proportionnel du laboratoire de microanalyse nucléaire de

Besançon avec les essais de la grotte de Moulis (Klein et al., 1990) ou les systèmes par scintillation développés au U.S.A. (Teng et Sun, 1986).

Notre philosophie fut, dès le début de nos travaux, d'utiliser une méthode de mesure basée sur la détection des descendants solides du radon, émetteurs du rayonnement gamma. C'est la technique que nous avons développée soit pour les mesures dans le sol avec les détecteurs au charbon actif, soit pour les mesures dans l'eau avec l'extraction par des liquides organiques; la lecture se faisant alors avec un même système de comptage en spectrométrie gamma (Doremus et al., 1988; Charlet et al, 1989). Pour cette raison, nous nous sommes proposés d'utiliser la même méthode de comptage dans le développement d'une station continue de mesures du radon dans le sol.

La réussite d'un tel système de détection dans la surveillance continue des flux radon n'était nullement évidente au départ. En effet, dans l'utilisation des détecteurs au charbon actif pour la prospection de l'uranium, il y a toujours été recommandé d'implanter les détecteurs dans le sol pendant environ deux semaines. Cette période d'implantation avait été fixée au départ en se basant sur la demi-vie du radon (3,8 jours) et sur un mécanisme d'absorption admis par divers chercheurs.

Tel est le cas du système ROAC (Radon On Activated Charcoal) proposé en Afrique du Sud vers les années 1980. Pour ces chercheurs, un détecteur ROAC exposé à un flux constant de radon et de thoron conduit à une absorption de ces deux gaz et à une croissance des produits de filiation suivant les courbes 1 et 2 (fig.1).

Notre première démarche fut donc d'étudier expérimentalement le comportement du radon et de ses descendants solides dans le charbon actif par mesure continue en spectrométrie gamma in situ.

La construction de cette station fut précédée d'essais réalisés régulièrement sur un site où

des mesures radon étaient effectuées depuis deux ans en récupérant des détecteurs au charbon actif tous les quinze jours. C'est le site "Nimy" situé dans les sables du Landénien. Si les flux radon y sont faibles à l'échelle du Bassin de Mons, la reproductivité des valeurs entre les différents points de mesures est bonne étant donné l'homogénéité des sables caractérisés par une perméabilité intergranulaire (tableau 1).

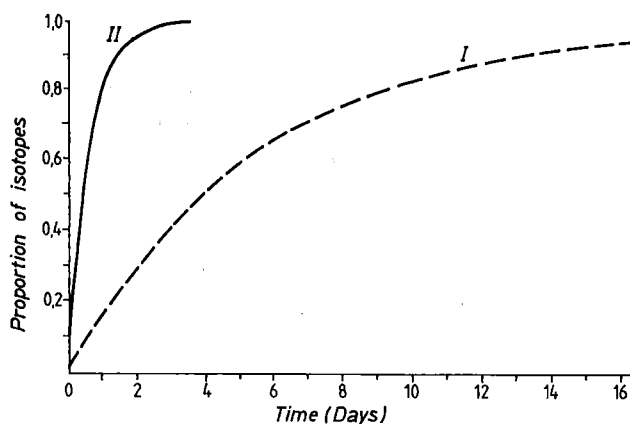


Figure 1. Growth curves of the daughter products of radon and thoron.

Le dispositif provisoire de mesures est schématisé à la figure 2. Différentes géométries ont été utilisées dans une cavité dont les dimensions étaient celles proposées pour la station finale. Plusieurs échantillonnages de charbon actif ont été effectués au cours du temps. L'évolution des taux de comptage est montré à la figure 2. On remarque que les résultats sont analogues pour les différentes positions des détecteurs dans la cavité. En outre, la saturation du charbon actif est atteinte rapidement et souvent pour une période inférieure à trois jours. Les résultats préliminaires conduisirent à sélectionner le site d'implantation de la station définitive, site qui devrait être facilement accessible, bien protégé et présentant de bonnes caractéristiques

Tableau 1. Concentration en radon dans le sol mesurée à l'aide de détecteurs au charbon actif (BK en unité arbitraire) et détecteurs solides de traces (DST en Bq/m<sup>3</sup>).

ST : site de la Fontaine de Stamburges (un des sites avec la plus forte concentration en radon dans le sol pour le Bassin de Mons).

Nimy : site dans les sables landéniens - Hornu : site sélectionné pour la mesure en continu.

M : valeur moyenne -  $\sigma$  : déviation standard en pourcent de la valeur moyenne d'émanation radon.

HIVER 89	ST (Bq/m <sup>3</sup> )	NIMY (Bq/m <sup>3</sup> )	NIMY (BK)	HORNU (BK)
M	14077	1906,7	950	730
$\sigma(\%)$	17,6	11,2	19,9	30,3
<b>ETE 89</b>				
M	13839	1679	356	486
$\sigma(\%)$	15,2	15,8	30,4	39,9

La station d'Hornu, provisoirement sélectionnée en fonction de ces critères, a d'abord fait l'objet d'une étude de l'environnement géologique.

Un puit foré en 1919 à 200 mètres de ce site avait donné la coupe reprise fig. 3.

On peut noter l'absence des Craies uranifères phosphatées. Les sables du

Landéniens, déjà rencontrés sur le site de Nimy, recouvrent directement les Craies blanches. Un petit sondage de reconnaissance effectué sur l'emplacement de la station et l'examen de la coupe au cours de la fouille donne la succession présentée au tableau 2.

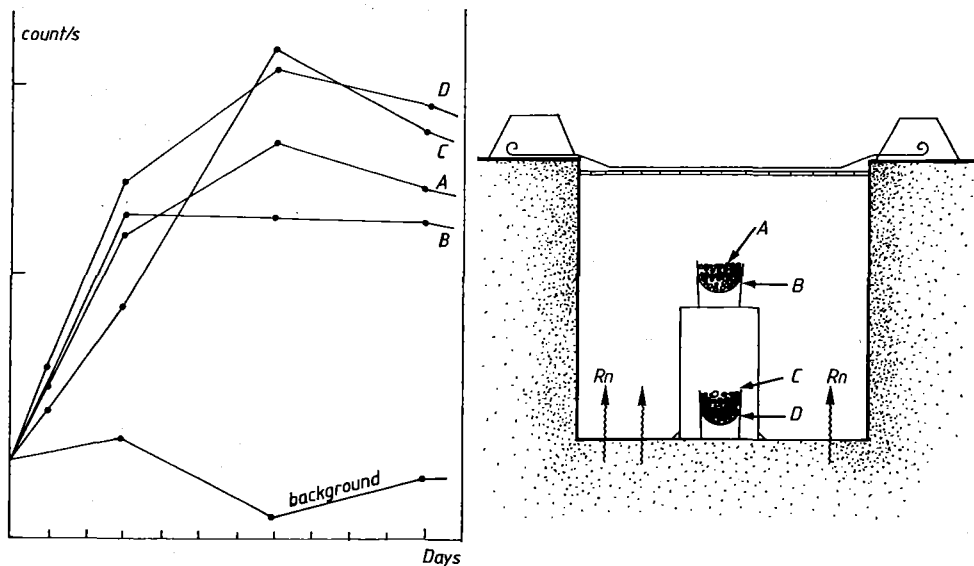


Figure 2. Situation of the charcoals in the first model of the experimental site.

Tableau 2. Résultat du sondage de reconnaissance sur la station d'Hornu.

de 0 à 0,50 m	terre végétale noire limoneuse
de 0,50 à 1,20 m	sable fin gris-vert glauconifère
de 1,20 à 5 m	sable fin vert jaunâtre, plus argileux
à partir de 5 m	craie blanche marneuse altérée

La position du niveau de la nappe aquifère est située sous la base de ce sondage de reconnaissance.

Une analyse granulométrique montre l'existence d'une répartition souvent bimodale

avec une fraction fine plus argileuse vers la base. L'analyse en spectrométrie gamma indique que les teneurs en radioéléments sont faibles, typiques d'un environnement sableux. La base plus argileuse se caractérise par des teneurs un peu plus fortes en thorium et potassium.

De l'examen de l'environnement géologique, on peut donc conclure que l'on se situe dans un milieu sableux, assez homogène, à perméabilité intergranulaire et dont la concentration en radioéléments est faible.

Dès novembre 1986, des détecteurs classiques au charbon actif ont été implantés sur le site. La synthèse des résultats d'une année complète montre que les concentrations faibles, par rapport à certains sites du Bassin de Mons, sont analogues à celles du site de Nimy situé également sur les sables du Landénien (tableau 1). La plus forte dispersion des mesures traduit le fait que le site est moins homogène que celui de Nimy. Par contre, l'écart plus faible entre les valeurs été-hiver traduit une plus faible influence de l'effet climatologique en raison, probablement, d'une situation plus protégée de l'aire de mesures.

### Description de la station.

Techniquement la station est constituée de deux parties principales (fig. 4) : une partie "détection" et une partie analyse et acquisition des données.

La partie "détection" se trouve dans une citerne de 1 m 25 de diamètre et de 1 m 60 de hauteur, enfouie dans le sol étanche à la

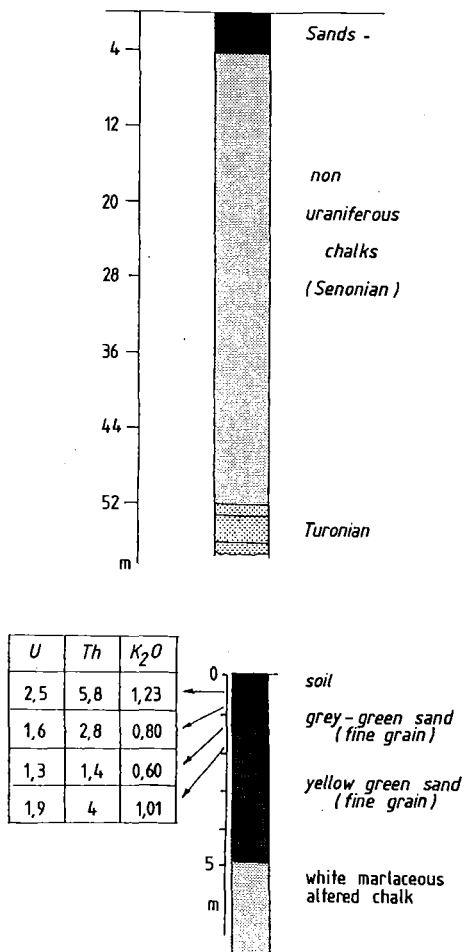


Figure 3. Geological environment of the Hornu site.

partie supérieure et suivant les parois et ouverte à la partie inférieure de manière à permettre à l'émanation radon venant du sol de se concentrer dans la chambre ainsi créée. Un récipient contenant 2 kg de charbon actif constitue le capteur radon. L'émission gamma des produits solides de filiation du radon sont détectés à l'aide d'une sonde à scintillation classique avec un cristal de 4" x 6". La sonde à scintillation est placée dans un caisson étanche pour éviter les problèmes d'humidité. L'ensemble est déposé sur une semelle de plomb pour réduire le rayonnement gamma venant du sol. En outre, des sondes de température ont été installées à l'extérieur et dans l'enceinte de mesures.

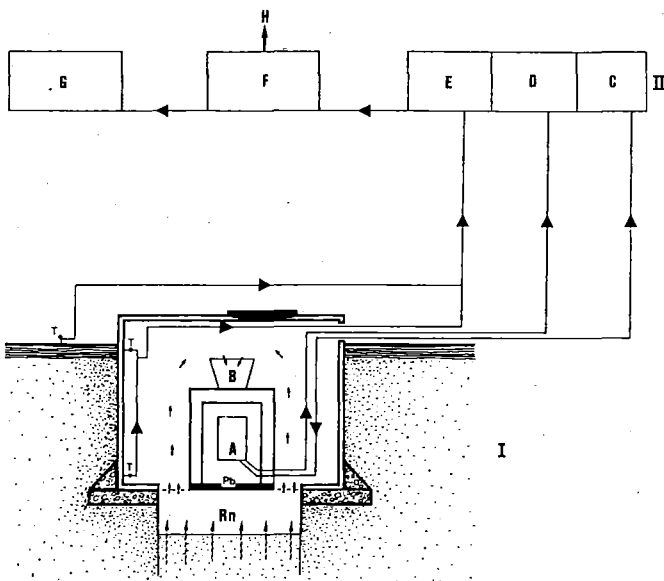


Figure 4. The continuous radon monitoring, technical description.

I. Detection system in a concrete tank

II. Acquisition, processing and recording of the data.

A. NaI scintillator

B. Charcoal detector

C. Power supply

D.  $\gamma$  R a y spectrometer

E. Analogic-digital system

F. Computer

G. Printer

H. Datz base

La partie analyse et acquisition des données comprend un spectromètre à plusieurs voies, un convertisseur analogique-digital, une unité d'acquisition (microordinateur, imprimante, ...). Le spectromètre qui est un appareillage robuste de prospection autoportée travaille dans trois fenêtres énergétiques, centrées sur les raies du potassium 40, du Bismuth 214 (descendant du radium ou du radon) et du thallium 208 (descendant du thorium ou du thoron). En outre, le "total count" dont le seuil énergétique est fixé à 1 MeV, est également enregistré.

Le système d'acquisition est géré par un PC XT couplé à une imprimante. A l'heure actuelle, les taux de comptage des différentes voies ainsi que les températures externe et interne sont imprimés toutes les 1/2 h avec une représentation graphique et quelques valeurs statistiques comme les moyennes et les écarts-types. En outre, la base de données peut être traitée de manière plus complète au laboratoire et en y introduisant d'autres paramètres telle que la sismicité, la climatologie, etc...

### Etude de quelques enregistrements

La figure 5 représente une période de mise en fonctionnement du détecteur avec, au départ, le taux de comptage lié à l'environnement radioactif naturel sur les voies du bismuth 214 (ou des descendants de l'uranium) et du thallium 208 (ou des descendants du thorium). Les conséquences de l'introduction du charbon actif se traduisent sur la voie U avec une augmentation extrêmement rapide du taux de comptage et la mise en pseudo-équilibre quelques huit heures plus tard.

C'est sur ce pseudo-équilibre que des fluctuations apparaissent, liées à une modification des flux radon (voir fig.5, l'augmentation de la dispersion sur la voie U après l'introduction du charbon actif).

Ainsi contrairement à l'opinion développée par ceux qui utilisèrent le charbon

actif en prospection, le détecteur répond assez rapidement à un flux radon déterminé. L'apparition d'un pseudo-équilibre rapide est probablement lié à des mécanismes complexes de cinétique chimique.

Un deuxième exemple (fig. 6) concerne une variation importante des taux radon au cours du

temps froid que nous avons connu en novembre-décembre de 1989 avec gelées au sol. On peut noter également l'existence de pics très localisés dont l'explication n'est pas toujours claire. Les voies potassium et thorium montrent seulement des fluctuations statistiques

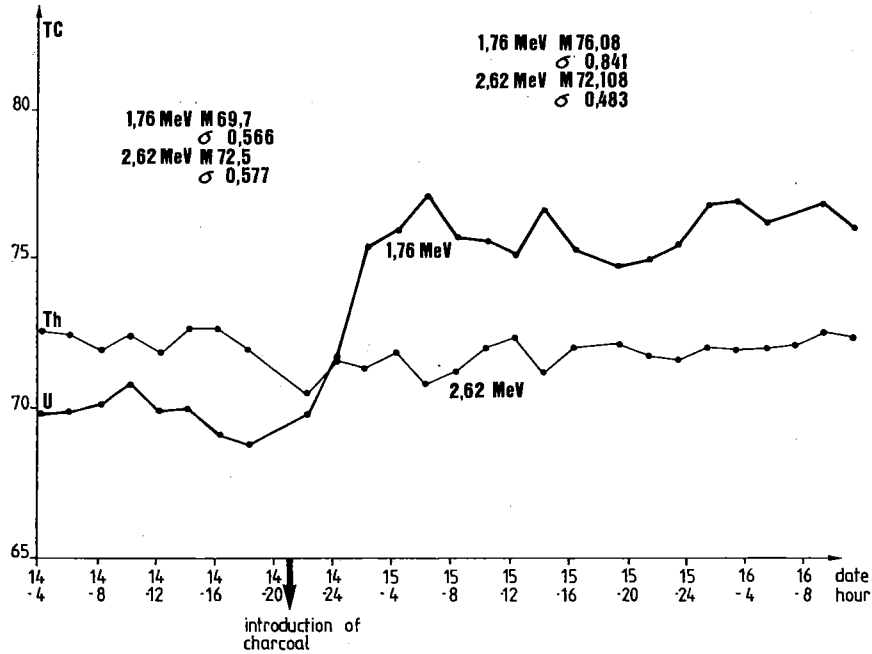


Figure 5. Variation of the counting rate (TC) when the charcoal is introduced.  
*M* : Mean value parameter,  $\sigma$  : dispersion

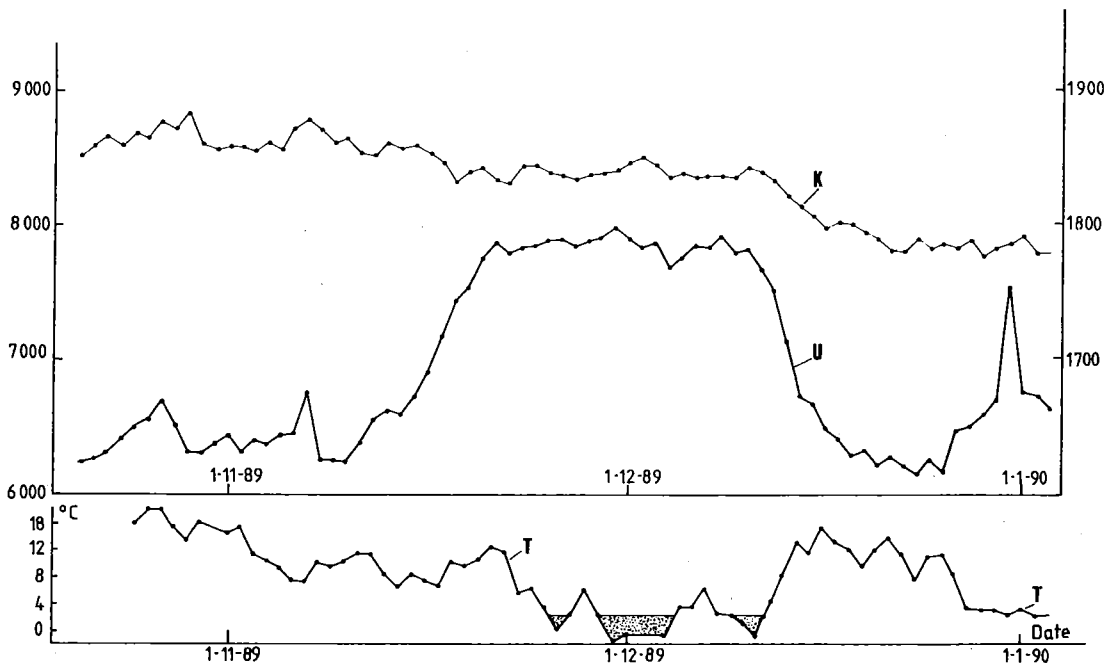
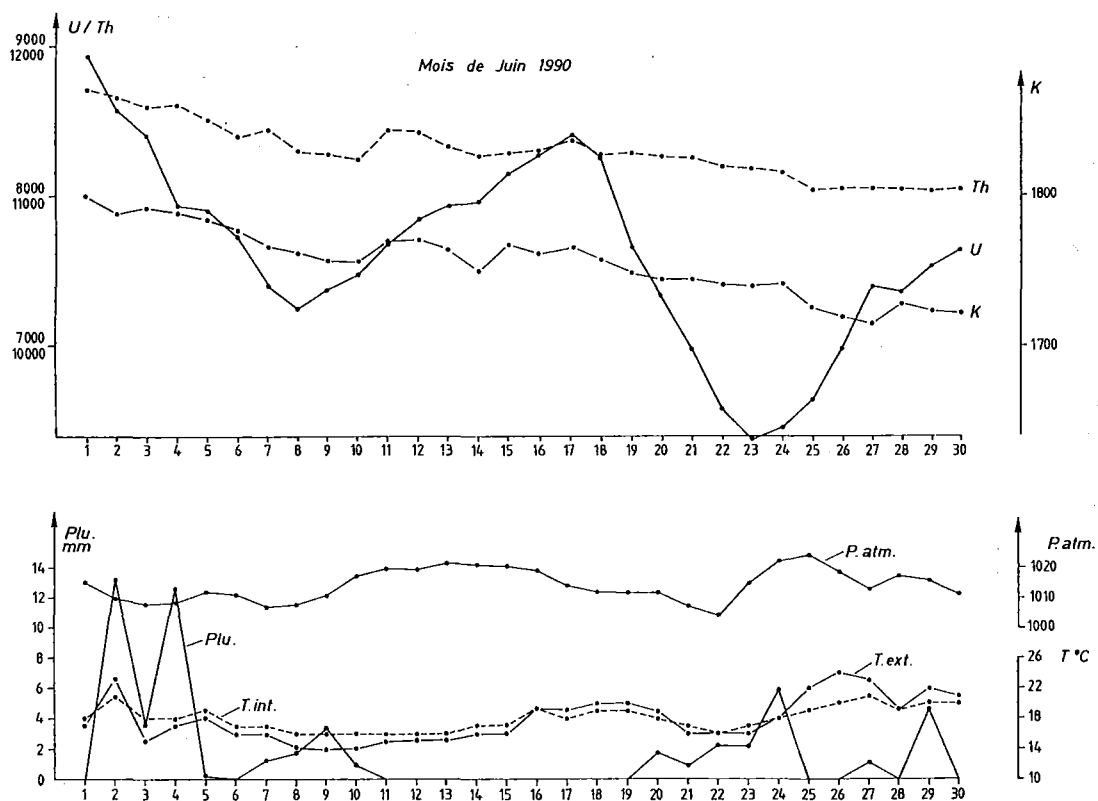


Figure 6. Variation of the counting rate related to the climatological conditions (frozen period).

avec une légère dérive sur les voies potassium et thorium mais surtout une variation très nette et périodique sur la voie uranium que l'on peut attribuer à une variation des flux radon (fig. 7).

flux radon. Au cours du mois de juin 1990 les conditions climatiques (fig. 7) étaient particulièrement stables, avec un temps sec et assez chaud. On peut noter que la variation de



### Interprétation des mesures effectuées en juin 1990

Le fonctionnement correct de l'appareillage a été régulièrement vérifié à l'aide de deux sources externes uranifère et thorifère. Le tableau suivant montre que la correction automatique des effets secondaires Compton de la source thorium sur les voies U et K et de la source uranium sur la voie K fonctionne convenablement. En outre la sensibilité des voies U et Th est restée constante pendant la période des essais, les valeurs des comptage directement liés à la source externe ne varient pas dans le temps (comparer les valeurs du 17-06-90 et du 24-06-90).

On peut conclure que les variations sur la voie uranium sont bien liées à une modification des

Figure 7. Variation of the counting rate related to a "tidal effect", June 1990.

#### Climatological parameters

Patm : atmosphère pressure

Plu : pluviometry

Text : external temperature

Tint : temperature in the concrete tank

la température dans l'enceinte de mesure est plus faible qu'à l'extérieur et pratiquement constante au cours de la première quinzaine du mois de juin. Une analyse statistique multivariable a été effectuée sur les paramètres suivants :

- les taux de comptage sur les voies U-TH-K,
- les températures mesurées en continu à l'extérieur et dans l'enceinte de la station d'Hornu,



- la pression atmosphérique moyenne à la station météorologique de Chièvres (à une dizaine de Km d'Hornu),
- la pluviométrie journalière à la station météorologique de Wasmuel (à quelques km d'Hornu).

La matrice des coefficients de corrélation montre une relation évidente entre les taux de comptage sur les voies K et Th ( $r=0,91$ ) et l'absence de corrélation entre les taux de comptage sur la voie U et les paramètres climatiques. On peut en conclure que les variations du flux radon dans le temps

au cours du mois de juin 1990 ne sont pas liées à des facteurs externes.

L'existence d'une onde de 14 jours apparaît en phase avec les marées de la croûte. En effet les dates du 8 et 22 juin 1990 correspondent respectivement à une pleine lune et à une nouvelle lune. Ce n'est pas la première fois que l'on met en évidence une variation des flux de gaz rares (radon,...) avec les marées terrestres (Sugisaki R., 1981), mais cet exemple montre la capacité de la station au charbon actif de détecter ce phénomène dans des conditions climatiques stables.

Table 3. Calibrages du 17-06-90 et du 24-06-90.

	K	U	Th
1	1765	8397	11425
2	1767	8387	12442
3	1782	10586	11300
4	2	-10	1017
5	17	2189	-125

Calibrage du 17-06-1990.

	K	U	TH
1	1740	6456	11152
2	1743	6519	12261
3	1768	8684	11229
4	3	63	1109
5	28	2228	77

Calibrage du 24-06-1990

1	Taux de comptage en l'absence de sources externes
2	Taux de comptage après introduction de la source thorium
3	Taux de comptage après introduction de la source uranium
4	Taux de comptage résiduel lié à la source thorium
5	Taux de comptage résiduel lié à la source uranium

## CONCLUSION

Ces quelques exemples montrent que la station enregistre bien une série de phénomènes liés à des variations du flux radon dans le sous-sol. Au départ, il n'était nullement évident que le système aurait une réponse assez rapide et l'on pouvait craindre une saturation effaçant ou lissant les fluctuations dans le temps. Les exemples traités montrent, en outre, divers types de phénomènes. Des variations probablement d'origine climatique ou météorologique, et donc superficielles, et des variations d'origine plus profonde liées probablement à des déformations de la croûte. Ce sont évidemment ces variations que nous avons intérêt à mettre en évidence.

Malheureusement, certaines variations liées aux conditions météorologiques peuvent être du même ordre de grandeur. A ce point de vue, le choix du site n'est peut-être pas idéal; les formations géologiques sont meubles et l'influence des conditions superficielles importantes. On peut cependant ajouter que le but de cette station d'essais est surtout d'évaluer la faisabilité de la méthode et sa sensibilité de réponse à des fluctuations des flux de radon.

## BIBLIOGRAPHIE

**CHARLET J.-M., LOSFELD A, QUINIF Y, DOREMUS P, GARCIA F, 1989.**

Réalisation et exploitation d'une campagne de mesures des émanations radon dans le Bassin de Mons, essai d'application à la prévision des

risques sismiques. Ann. Soc. géol. Belg., 112, 2 : 381-392.

**CHARLET J.-M., 1990.** Les techniques géophysiques dans la prévision des séismes et éruptions volcaniques. Bull. acad. roy. belg. (à paraître).

**DOREMUS P., QUINIF Y., CHARLET J.-M., 1988.** Mise au point d'un détecteur passif du radon 222 en milieu saturé. Premiers résultats. Ann. Soc. géol. Nord, 57; 211-219.

**KING, C.Y., 1986.** Gas geochemistry applied to earthquake prediction : an overview. J. Geophys. Res. 91, B 12 : 12269 - 12281.

**KLEIN D., BARILLON R., CHAMBAUDET A., CIEUR M., KHALIL A. 1990.**

Characterization of radon emanation using a proportional counter and solid-state nuclear track detectors. Colloque international sur la géochimie des gaz, Mons. Ce volume.

**SUGISAKI R., 1980.** Deep-seated gas emission induced by the earth tide : a basic observation for geochemical earthquake prediction. Science, 212; 1264-1266.

**TENG TA-LIANG, SUN LIANG-FANG, 1986.** Research on groundwater radon as a fluid phase precursor to earthquakes. J. géophys. res. 91, B12; 12305-12198.

**THOMAS, DONALD, M., CUFF, KEVIN, E., 1986.** The association between ground gas radon variations and geologic activity in Hawaii. J. Geophys. Res., 91, B12; 12186-12198.

**ZHENYMENG, Li 1986.** Imminent anomalies of radon content before large earthquakes in China, J. Phys. Earth, 34 : 91-102.

## RADON CARTOGRAPHY AS TOOL OF RESEARCH EXAMPLES FROM THE SUDETY MTS AREA. (SW POLAND)

W. CIEZKOWSKI(1) - A.T. SOLECKI(2)

(1) Institute of Geotechnics, technical University of Wrocław 50-370 WROCLAW, Wybrzeze Wyspianskiego 27, POLAND

(2) Institute of Geological sciences, Wrocław University 50-205 WROCLAW, ul. Cybulskiego 30, POLAND

### ABSTRACT

*Results of  $^{222}\text{Rn}$  investigations within ground waters and soil gas were presented. In the vicinity of the town of Ladek Zdroj, radon anomalies were found to be determined by faults. In the vicinity of Swieradow Zdroj, radon anomalies within the soil gas are parallel to the main lithologic boundaries. Rn content in groundwaters of this area rapidly decreases with depth.*

### RESUME

*On a présenté les résultats des études du radon dans les eaux souterraines et les gaz des sols. Dans les environs de Ladek Zdroj, les anomalies de radon sont déterminées par les failles. Dans les environs de Swieradow Zdroj, les anomalies de radon dans les gaz des sols sont parallèles à des limites lithologiques. Dans les eaux souterraines de cette ville la quantité du radon diminue dans les aquifères plus profondes.*

### ABREGE

*Dans les Sudètes il y a deux territoires où se trouvent les anomalies de radon.*

- 1. les environs de Ladek Zdroj,*
- 2. les environs de Swieradow Zdroj.*

*1) Près de Ladek Zdroj il y a dans le gneiss et schistes des séries de Stronie 5 ppm d' U. La distribution des concentrations du radon dans les eaux du premier horizon (Fig.1) indique des relations avec failles. Dans les sources d'eaux minérales il y a surplus de radon par rapport au Ra et U, cela prouve que l'émanation du  $^{222}\text{Rn}$  se forme dans les roches. Plus bas, la concentration en  $^{222}\text{Rn}$  dans les eaux profondes (148 Bq/dm<sup>3</sup>) indique que la concentration de radon se forme en milieu fissuré, près de la surface du sol.*

*2) Dans les environs de Swieradow Zdroj, les granites de Karkonosze contiennent 12 ppm d' U, les granites d'Izera, 7-9 ppm d' U. La variabilité spatiale du radon dans les gaz des sols indique les liaisons avec principale direction structurale. La quantité du radon dans les eaux souterraines diminuent rapidement en-dessous de 80 m (Fig.4).*

### INTRODUCTION

The Sudety Mts range forms the NE periphery of the Bohemian Massif. Rn containing waters are common in area. Ladek Zdroj and Swieradow Zdroj are the two centers of Rn waters medical application. After the Second World War Sudety mts. area was detaily mapped during radioactive metals prospecting. These prospecting was made at first under Soviet supervision (early fifties) and next by Polish enterprises. Numerous data have been preserved in archives, some of them were used in this paper. Rn measurements in those years were made by means of the Soviet

alpha radiometer SG-11M. Air samples were stored for 3 hours before measurement so the results can be regarded as connected with  $^{222}\text{Rn}$ . In the case of water gas analysis, the stream of air was pumped through the water sample to collect all dissolved radon and next the sample was treated as an soil gas one.

### LADEK ZDROJ AREA

Ladek area is built of metamorphic rocks of Snieznik, Krowiarki Gory Bialskie and Gory Zlote formation (see Oberc, 1977). In the vicinity of the town of Ladek Zdroj NE trending belt of Stronie Slaskie Schist Series

contacts to the south with Gieraltow gneisses. Narrow strip of Snieznik gneisses, mylonites lamprophyres and basalts follows the NE trending boundary zone. The Ladek Zdroj Fault of the same direction marks detaily the boundary. This fault is an ancient fault zone of inverse character which locally separates two early Paleozoic metamorphic units. Fault plane of this fault dips towards SE at the angle of 40-45°. Lamprophyres accompanying the fault zone are of Late Paleozoic age and basalts are regarded to be 0,690 m.y. old (Birkenmajer et al. 1977).

Numerous NW trending faults are developed perpendicular to the Ladek Zdroj fault. Their fault planes dip NE at the angle of 50-75°. Inversive displacement along these faults is about 200m.

Tectonic disturbances connected with these faults can form zones up to 500 m wide.

Mineral waters of the Ladek Zdroj are of meteoric origin and their age was estimated to be Early Holocen/Late Pleistocen by means of isotopes analysis ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{18}\text{O}$ , D), (see Dowgiallo et al., 1974; Ciezkowski, 1990). the background of the tectonic framework of the area (Fig. 1). These results were obtained within the shallow ground water. Water from the 600 m deep boreholes is of 184 Bq/dm<sup>3</sup>  $^{222}\text{Rn}$  content.

Waters of six mineral springs in Ladek Zdroj contain  $1 \times 10^{-7}\text{g U/dm}^3$  and  $5 \times 10^{-11}\text{g}$

$\text{Ra/dm}^3$ .  $\text{Rn}$  characteristics of these waters based on the 1965-76 interval has been shown on the Table 1 (Ciezkowski, 1980). Mean  $^{222}\text{Rn}$  content and capacity of springs enable to calculate the radium equivalent which corresponds to the amount of necessary radium consumed during  $^{222}\text{Rn}$  generation. Total radium yield of all six springs ( $522 \text{ dm}^3 \times 5 \times 10^{-12} \text{ g Ra/dm}^3 = 3.6 \times 10^{-6} \text{ mg Ra}$ ) is a small fraction of the amount (1.489 mg Ra) of radium consumed during  $^{222}\text{Rn}$  generation. So, the radon must have been generated within bedrock. The low  $^{222}\text{Rn}$  content of the deep borehole water indicate that the generating bedrock is not located at significant depth but rather near the surface.

### Radioactive elements

Uranium content of Gieraltow gneisses and schists of the Stronie Series is about 5 ppm.

Results of water gas  $\text{Rn}$  content mapping (after Glowacki 1960) are shown one

Comparison of water gas  $\text{Rn}$  content mapping, deep boreholes analysis and mineral springs results indicates that  $^{222}\text{Rn}$  in waters of Ladek Zdroj area is mainly connected with shallow groundwater horizons where fracturation of fault zones results in the rapid increase of emanation coefficient.

Table 1.  $^{222}\text{Rn}$  characteristics of the Ladek Zdroj mineral springs in the years 1962-76 (after Ciezkowski 1980).

SPRING	Number of measurements	Mean $^{222}\text{Rn}$ content Bq/dm <sup>3</sup>	Mean spring capacity dm <sup>3</sup> /min	Radium equivalent mg
JERZY	2989	1276.5	292.0	1.342
SKLODOWSK A-CURIE	509	253.1	66.6	0.061
WOJCIECH	499	160.5	87.7	0.053
DABROWKA	517	140.6	20.4	0.010
CHROBRY	509	125.8	38.0	0.017
STARE	34	96.2	17.5	0.006
Total	5057	-	522.2	1.489

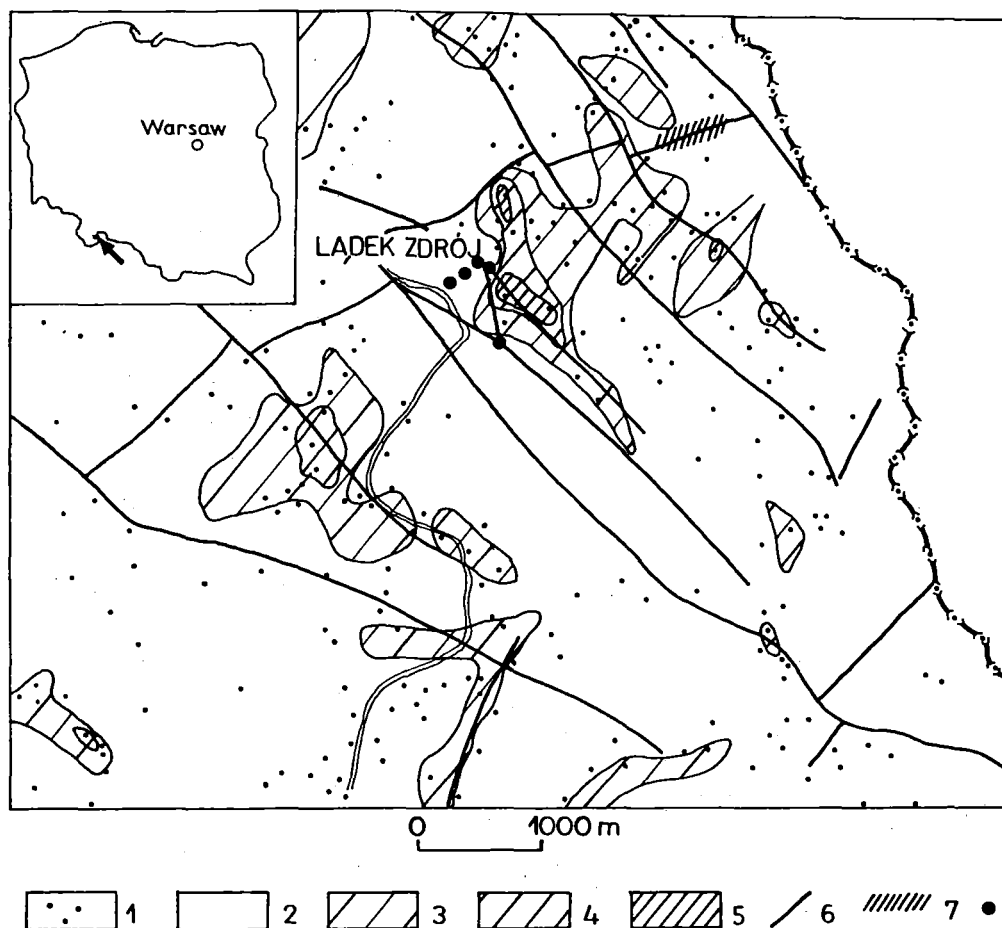


Figure 1. Shallow water  $^{222}\text{Rn}$  gas content and the tectonic background of the Ladek Zdroj area (after Ciezkowski 1980)

1 - sampling sites;  $^{222}\text{Rn}$  content in  $\text{Bq/dm}^3$  : 2 -  $< 74$  , 3 - 74-185, 4 - 185-370, 5 -  $> 370$ ; 6 - faults; 7 - uranium enriched alluvium; 8 - mineral springs.

### SWIERADOW ZDROJ AREA

Area under investigation is located within Karkonosze Gory Izerskie Block. This Block is formed of the Variscan Karkonosze Granite which dips to the north and contacts with the pre-Variscan part of the Block, built of Izera gneisses and granites, along W-E trending discontinuity. Several parallel schists zones are regarded to be primary fine grained sediments metamorphosed in regional amphibolite facies (J. Szalamacha and M. Szalamacha, 1968).

The Stara Kamienica Schist Zone enters the northern part of the investigated area (Fig. 3.). In spite of generally E-W elongation the Stara Kamienica Schist Zone trends in this area in the ENE direction. Mica schists and leptinites of the Stara Kamienica Schists Zone are surrounded by various gneisses and granites. Locally, well defined ENE trending belts of leucogranites and leucogneisses occur.

According to Kotowski (1972) the

Stara Kamienica Schist Zone forms a syncline which separates two gneiss anticlinoria (see Oberc, 1977). Leucogranites are connected with a tectonic zone forming the southern boundary of the schists zone. This tectonic zone is regarded (Smulikowski, 1958) to be a part of the eldest early-paleozoic fault system. The tectonic zone trends in the ENE direction and dips to the north at the angle  $70^\circ$ . It probably acted as the migration channel during albitisation which is responsible for origin of the leucogranites and leucogneisses.

NW-SE trending faults cut the Stara Kamienica Schist Zone and prolongate in the adjacent areas. They are distinctly younger than the fault zone mentioned before. Open fracture zones and quartz breccias are connected with NW-SE trending faults. According to Fistek et al. (1975) one of these faults is the main migration channel for the mineral springs of Swieradow. Locally Tertiary rejuvenation of these faults can be observed. They evidently influence the

morphology and one of distinct lineaments of Landsat image trends in the same direction (Fig.2.).

The youngest fault system trends in the N-S direction and is superimposed on the older structural framework.

Landsat image interpretation (Graniczny and Doktor, 1985) confirms the existence and morphological influence of the above mentioned fault systems. Moreover, NE-SW trending lineaments marked on the Fig. 2. were recognised on the Landsat image. Two NNE and ENE trending sets can be distinguished among NE trending lineaments. The Tertiary basalts occurrences are connected with the NNE and ENE trending lineaments indicating the Tertiary activation of fractures of these both directions (see Solecki, 1985).

Uranium content is 12,7 and 9 ppm for the Karkonosze granite and two kinds of Izera granites respectively (Jelinski 1965). Zones of intensive metasomatism (leucogranites and leucogneisses) are locally enriched in U (Depciuch et al., 1970).

Two types of spa waters occur in the Swieradow area. The first type : 0,2 % acidulous water with Fe, F, and  $^{222}\text{Rn}$ . The other type : 0,005 % water with abundant  $^{222}\text{Rn}$  (up to 2923 Bq/dm<sup>3</sup>).

### 3.1. Soil gas Rn anomaly

Two areas of the  $^{222}\text{Rn}$  soil gas content mapping are shown on the Fig. 3. Samples were collected within 25 x 5 m or 50 x 5 m network at the depth of 0,6 - 0,8 m.  $^{222}\text{Rn}$  soil gas content reaches its maximum value of more than 370 Bq/dm<sup>3</sup> while the mean value of this area is below 70 Bq/dm<sup>3</sup>. Numerous linear anomalies are visible on this figure. The most distinct direction is the ENE one. Eight anomalous zones up to 1,5 km long exist here. Distances between main zones are of 250 m range but when smaller anomalies are taken into account, the spacing will be no greater than 100 m. Within the SE area NW trending set of short (10-100m) maximas occur. They are densely spaced and the spacing is not greater than 30m. In spite of general ENE elongation the shape of the anomalies of the NW area is significantly influenced by the NNE trending fractures.

Generally, ENE, NW, and NNE are the main directions which influenced the shape of  $^{222}\text{Rn}$  anomalies pattern.

Occurrence of Rn anomalies of the Swieradow area is strongly determined by structural factors. Anomalies are located at the intersection of the ENE trending Stara Kamienica Schist Zone with the NW trending Kwisia river lineament. The shape of anomalies evidently repeats structural pattern (Fig. 3.). Field observations confirmed that metamorphic foliation forms open fractures which are migration channels for water and gas. Greatest increase of the emanation coefficient was possible due to superposition of few fractures sets, as in the case of the NE part of the SE mapped area.

Soil gas anomalies pattern indicates that the area of the NW trending lineament is cut by fractures of various directions and age. Dominating ENE trending anomalies are connected with the an ancient old paleozoic fault direction. Highest anomalies are located near ENE trending leucogranite bodies, so the local concentration of uranium can not be excluded. The superposition of lineament zone resulted in increased fractures density and local shifting of fracture zones.

### 3.2. Vertical water gas Rn anomaly

Water gas  $^{222}\text{Rn}$  content of wells and natural springs (after Ciekowski, 1990) shows interesting distribution pattern. Relation between depth of sampling and Rn content was shown on the Fig.4. Water from boreholes of significant depth is of 250 Bq/dm<sup>3</sup>  $^{222}\text{Rn}$  content. This value is relatively constant in the range 100-600 m. Three samples display distinct shifting to the right (towards greater  $^{222}\text{Rn}$  values). On the Fig. 4. these measurements are connected with left shifting arrows.

The rapid increase of  $^{222}\text{Rn}$  content in these three cases seems to be connected with water migration. From the upper horizon due to depression development during the test pumpings.

Distribution pattern shown on the Fig. 4. indicates that the depth of about 80 m is of crucial meaning. More than half of samples collected above this level displays more than 500 Bq/dm<sup>3</sup>  $^{222}\text{Rn}$  content. The critical zone

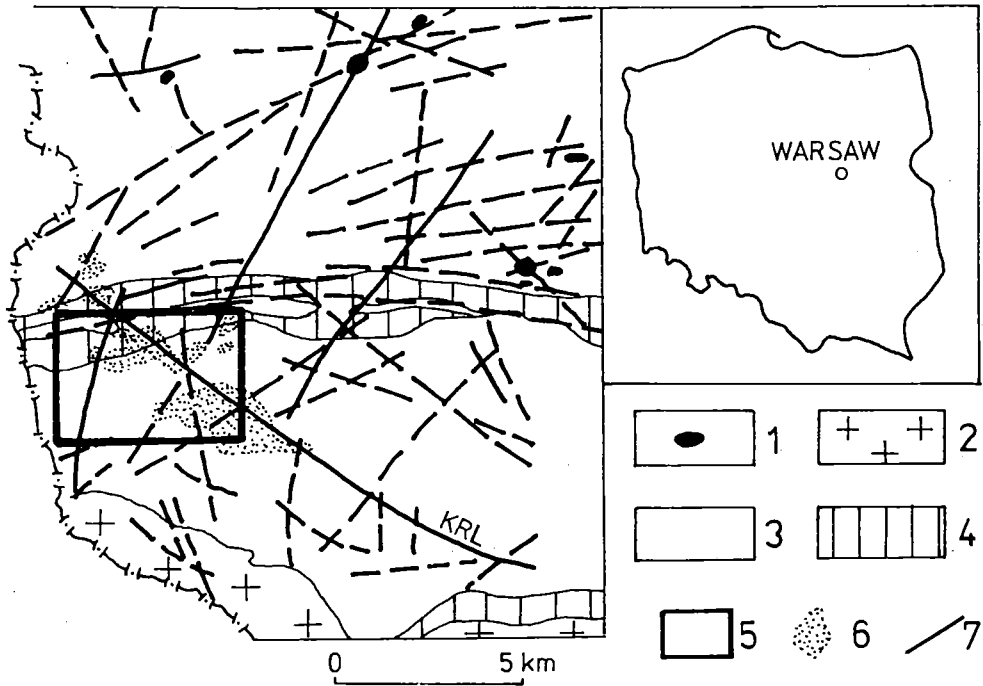


Figure 2. Geological position of the Swieradow area  
 1 - Tertiary basalts ; 2 - The Karkonosze Granite; 3 - Izera gneisses and granites; 4 - schists zones;  
 5 - Swieradow area (Fig.3); 6 -  $^{222}\text{Rn}$  soil gas anomalous areas; 7 - lineaments of Landsat image (after  
 Graniczny & Doktor 1985). KRL Kwisa River Lineament.

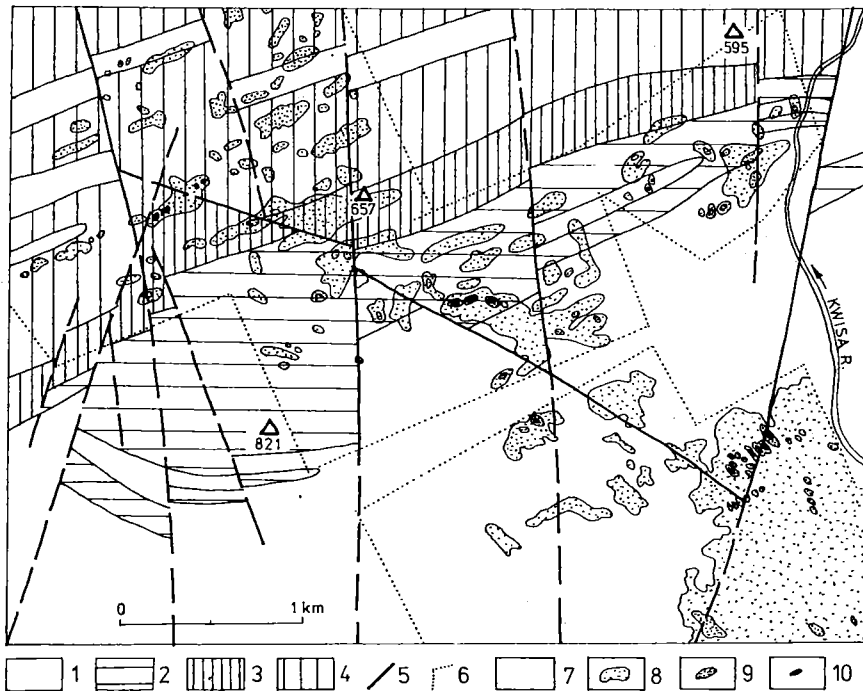


Figure 3.  $^{222}\text{Rn}$  soil gas mapping areas on the background of geological map (geology after J;  
 Szalamacha & M. Szalamacha 1968, Koszela 1972, Zaba 1984).

1 - Izera granites and gneisses; 2 - leucogranites; 3 - leptynites of the Stara Kamienica schists zone;  
 4 - mica-schists of the Stara Kamienica schist zone; 5 - faults; 6 - boundaries of the mapping areas;  
 $^{222}\text{Rn}$  soil gas content in  $\text{Bq/dm}^3$ : 7 - < 74, 8 - 74-185, 9 - 185-370, 10 - > 370.

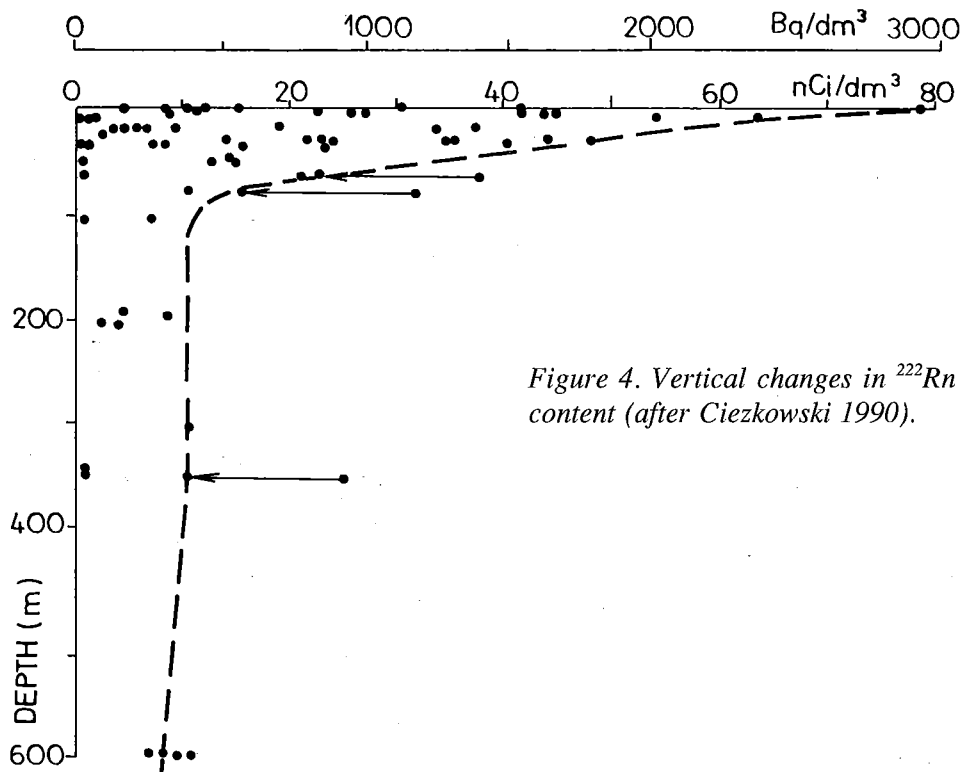


Figure 4. Vertical changes in  $^{222}\text{Rn}$  water gas content (after Ciezkowski 1990).

corresponds well with the known increase of fractures density. According to Price (1959) model majority of open joints is of release character. Depth at which majority of joints is opened is connected with stress distribution at shallow horizons of the Earth crust, and may be regarded as regional feature. In the case of Swieradow area, 80 m depth is reasonable depth of rapid increase of joint density confirmed by observations in outcrops and quarries.

#### CONCLUDING REMARKS

Soil gas anomalies and water gas content of  $^{222}\text{Rn}$  displays interrelation with more densely fractured areas and repeats structural pattern of the areas under investigation. This correlation is valid in horizontal and vertical direction as well. Observed Rn anomalies pattern seems to be useful tool in the fracture zones mapping and in hydrogeological research as well.

#### REFERENCES

- BIRKENMAJER K., JELINSKA M., KADZIALKO-HOFMOKL M., KRUCZYK J., 1977 : Age of Deep Seated Fracture Zones in Lower Silesia (Poland) Based on K-Ar and Paleomagnetic Dating of Tertiary Basalts. Roczn. Pol. Tow. Geol. Vol. XLVII-4, pp 545-552.
- CIEZKOWSKI W., 1980 : Hydrogeology and hydrogeochemistry of Ladek Zdroj thermal waters. Problemy Uzdrowiskowe Z. 4(150), pp 1-193 (in Polish).
- CIEZKOWSKI W., 1990 : Study on hydrogeochemistry of mineral and thermal waters in Polish Sudetes Mts. Pr. Nauk. Inst. Geotech. Politechniki Wrocl., nr 60, pp 1-136 (in Polish).
- DEPCIUCH T., JELINSKI A., JECZMYK M., LIS J., KANASIEWICZ J., PRZENIOSLO S., SYLWESTRZAK H., 1970 : Radioactive elements in Sudetes Mts. (in) Geologia i surowce mineralne Polski, R.



Osika (ed.), pp. 726-731, Wydawnictwa Geologiczne, Warsaw (in Polish).

**DOWGIALLOJ., FLORKOWSKI T., GRABCZAK J.**, 1974 : Tritium and  $^{14}\text{C}$ . Dating of Sudetic Thermal Waters. Bull. Acad. Pol. Science, Ser. Sci. Terr., Vol. XXII, N° 2, pp 101-109.

**FISTEK J., IWANOWSKI S., ICIEK A., JAGODZINSKI A.**, 1975 : Geological, geophysical and geochemical research as an example of complex solution of mineral waters prospecting in sudetic spas. Biuletyn Informacyjny Geofizyka, nr 1, pp 5-30 (in Polish).

**GLOWACKI Z.**, 1960 : Radiohydrogeological Map of Ladek Zdroj. (unpublished report in Uzdrowiskowy Zaklad Gorniczy Ladek Zdroj). (in Polish).

**GRANICZNY M., DOKTOR S.**, 1985 : Application of the remote sensing data to the prospecting of thermal and mineral waters in the Sudety Mts. area (in) : Stan rozpoznania i perspektywy wykorzystania wód termalnych. Proc. Symp. Krakow 24-25.10.1985. pp 39-52 (in Polish)

**JELINSKI A.**, 1965 : Geochemistry of the Uranium in the Karkonosze Granite Massif and other Granitoid Massifs of lower Silesia. Biul. Inst. Géol., 193, pp 5-110.

**KOSZELA J.**, 1972 : Mesoscopic parakinematic structures in mica schists within the Czerniawa Zdroj area. Kwart. Géol. t. 16,

N° 1, pp 37-52 (in Polish).

**KOTOWSKI J.**, 1972 : Tectonic position and origin of quartz rocks from the southern part of the Izerian Upland. Pr. Nauk. Inst. Geotech. Politechniki wrocl. nr 8, pp 1-115 (in Polish).

**OBBERG J.**, 1977 : The Pre-Assyntian and Assyntian (Baikalian) Elements in South-Western Poland in Geology of Poland. W. Pozaryski (ed.) pp. 99-174. Wydawnictwa Geologiczne, Warsaw.

**PRICE N.J.**, 1959 : Mechanics of jointing in rocks. Geol. Mag. Vol. 96, N° 2.

**SMULIKOWSKI K.**, 1958 : Mica-schists and granite-gneisses on the northern slopes of the Kamienica Mountain Chain in Western Sudetes. Biul. Inst. Geol. 127, pp 5-31.

**SOLECKI A.**, 1985 : On the possible interrelation between NE-SW rhegmatic system of lineaments and Tertiary volcanism in the Sudety Mts. area in the light of the Landsat image analysis. Fotointerpretacja w geografii T; VII (18), Katowice, pp 96-103. (in Polish).

**SZALAMACHA J., SZALAMACHA M.**, 1968 : The metamorphic series of the Karkonosze-Gory Izerskie Mountains block. Biul. Inst. Geol. 222, pp 33-74 (in Polish).

**ZABA J.**, 1984 : Genesis and metamorphic evolution of gneisses and granitoids of the Izerski Stog massif (Western Sudetes). Geologia Sudetica Vol. XIX, N° 2, Ossolineum Wroclaw, pp 89-192 (in Polish).

## THE EFFECTS OF EARTH TIDAL AND SEISMIC FORCES UPON GROUNDWATER LEVELS. A CONTRIBUTION TO THE RADON PROBLEM.

Dr Micheline DELCOURT - HONOREZ  
OBSERVATOIRE ROYAL DE BELGIQUE  
Centre de Géophysique interne  
Avenue Circulaire 3  
B - 1180 BRUSSELS

### RESUME

*Les niveaux d'eau dans les puits peuvent répondre aux marées terrestres, aux séismes et aux variations de la pression atmosphérique. L'étude de l'observation de telles réponses, nous permet d'estimer les valeurs des paramètres hydrogéologiques. Ceci est une première contribution à l'étude du problème du Radon puisque l'émanation Radon dépend de ces paramètres (cf. ce CIGG.) Les réponses des niveaux d'eau aux marées et aux séismes sont en fait des réponses des pressions fluides internes : l'étude des modèles de réponses gazeuses aux marées (e.g. oscillations de marées observées dans un flux Radon à Mons, cf Charlet et al., ce CIGG.) et aux séismes permet de mieux cerner le problème du Radon.*

### ABSTRACT

*Water levels in wells can reponse to Earth tidal, seismic waves and atmospheric pressure variations. By applying models of these responses, hydrogeological parameters can be deduced in situ. It is a first contribution to the Radon problem as Radon emanometry partly depends on those parameters (cf. this CIGG). Earth tidal, seismic and barometric responses are also observed in the flow of oil wells, in gas production and especially recorded in Radon flow (cf. Charlet et al. this CIGG). The study of the effects of Earth tidal and seismic forces on fluid pressures contributes of the Radon problem study.*

### ABREGE

*Les niveaux d'eau dans les puits captifs peuvent répondre aux phénomènes de marées terrestres, aux séismes et aux variations de la pression atmosphérique. Le phénomène de marées terrestres (Melchior, 1983) est un phénomène périodique qui consiste en une déformation élastico-visqueuse du globe terrestre, qui est causée par l'attraction gravitationnelle de la lune, du soleil et, dans une moindre mesure, des autres planètes. A partir des réponses des puits aux forces de marées, aux séismes et à la pression atmosphérique, il est possible d'estimer les paramètres hydrogéologiques in situ, par des moyens différents des tests aquifères classique, notamment l'emmagasinement spécifique, le coefficient d'emmagasinement, la porosité, la perméabilité... Les résultats que nous avons obtenus en appliquant divers modèles au sondage de l'Observatoire Royal de Belgique, sondage opéré en collaboration avec le Service Géologique de Belgique, nous permettent de confirmer l'application des modèles. Nous étudions aussi les réponses de cinq puits du bassin de Mons. Cette méthode d'estimation des paramètres in situ est une contribution à l'étude du problème du Radon puisque l'émanation Rn dépend des paramètres hydrologiques des couches (cf. ce CIGG.).*

*D'autre part, les réponses des niveaux d'eau aux marées et aux séismes sont en fait des réponses des pressions fluides internes : c'est pourquoi on ne doit pas s'étonner que des phénomènes de marées et des réponses aux séismes soient aussi détectés dans des gisements de pétrole, dans des puits de production de gaz, dans des dégagements gazeux et particulièrement dans les flux de Radon (cf. Charlet et al., ce CIGG). l'étude des effets des forces de marées et des séismes sur les niveaux de l'eau souterraine et sur les pressions fluides internes permet de mieux cerner le problème du Radon.*

## 1. PRELIMINARY REMARKS

### 1.1. Earth tidal phenomena.

Melchior (1983) defines Earth Tides as

phenomena which result from an elasto-viscous deformation of the terrestrial globe, mainly caused by the gravitational action of the Moon and the Sun (and in a lesser extent the other planets). Every point on the surface of

**OSCILLATIONS DU NIVEAU  
APRÈS ÉLIMINATION DES EFFETS DE LA PRESSION ATMOSPHÉRIQUE  
JANVIER 1956**

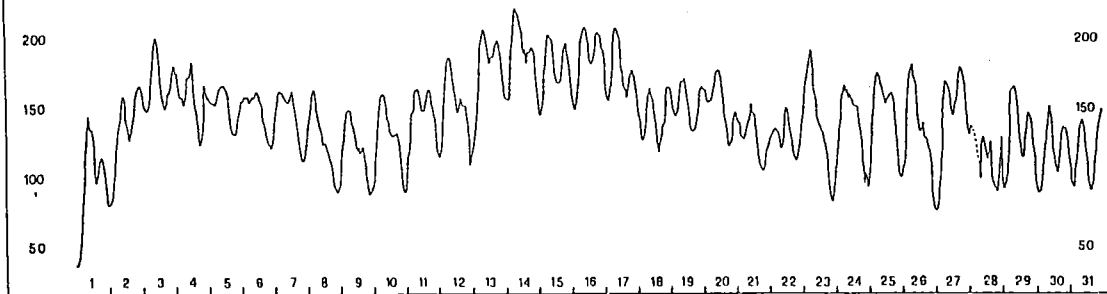


Figure 1. Tidal records in the Turnhout well (Melchior and Gulinck, 1956).

the Earth is subjected to two forces : the force of gravity due to the newtonian attraction of the whole mass of the Earth, and the centripetal force due to the rotation of the Earth. The resultant of these two forces is a vector, directed towards the interior of the Earth, whose length represents the intensity of the gravity at that point, and whose direction defines the direction of the vertical at the point. These elements cannot be considered as constants because both Sun and Moon attract the point under consideration; this attraction varies with time and with the paths of these two bodies. If the Earth was perfectly rigid, it would be possible to observe, by means of very sensitive instruments, small periodic deviations of the vertical (with an amplitude of approximately  $0''05$ ) and variation of the intensity of gravity (with an amplitude of approximately  $2,4 \cdot 10^{-7}$  or approximately  $0,24$  mGal). However the Earth change its shape and is consequently not an ideal body. Indeed the Earth has physically properties that obey very complex laws whose study is covered by the subject of rheology and which combine parameters of elasticity, viscosity and plasticity. These deformations of the entire Earth, which are governed by the same law of variation as the lunar-solar forces that cause them, modify measurably the amplitude and the phase of the phenomena that is to be measured; moreover they produce periodic internal strains and cubic dilatations.

The components of the tidal forces at a given place are :

- the **vertical component** which is measured by a gravimeter (Melchior and Ducarme, 1989).
- the **two horizontal components** each measured by a horizontal pendulum.

The cubic deformation is measured by extensometers.

In this paper a study of the effects of the Earth tides in water and other fluid wells is presented.

## 1.2. Earth tidal observations in wells

### 1.2.1. Historical note

The Earth tidal observation in wells dates back to antiquity : Pliny the Younger in his letter to Licinius Sura observed tides in wells in Spain and in Italy. One example he gave was that of a closed spring, similar to a well at Cadix, which rises and falls. He described periodic high and low water level variations in wells of the bank of the Baetis and at Hispalis. In his letter to Licinius he noted on the changing fountain at Como, described as the "fonte intermittende della Pliniana" by Leonardo da Vinci.

### 1.2.2. Some more recent observations

The figure 1 shows periodic oscillations recorded in the well at Turnhout (Melchior and Gulinck, 1956). Oscillations in pressure head have also been observed at Basècles (Melchior and Sterling, 1964). Other records are referred too in the bibliographies accompanying Melchior (1983) and Delcourt-Honorez (DH, 1988).

## 2. TIDES IN THE WELL AT THE ROYAL OBSERVATORY OF BELGIUM.

During January 1984 a borehole was drilled at

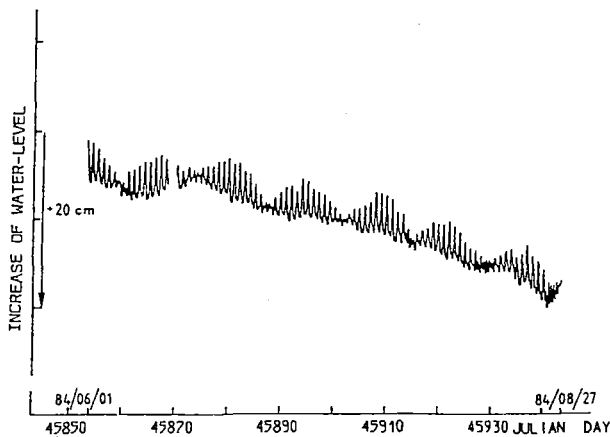


Figure 2. Observed tidal oscillations in the deepest well at ROB after having removed the barometric effect.

the Royal Observatory of Belgium in Brussels. The drilling was supervised by the Belgian Geological Survey who recognised the presence of eight layers in the multiple aquifer/aquitard sequence. The profile contained three aquifers:

1) a near surface aquifer in the Brussels Sand Formation which the phreatic surface at approximately 35,60 m depth;

2) an intermediate aquifer in the Lincent Tuff formation with a piezometric level at -62 m;

3) a deep aquifer in fissured rock in which the piezometric level is at -67 m. The water levels were monitored in three wells penetrating each aquifer. Various kind of variations are recorded : long term (Delcourt-Honorez, 1990b), short term variations and, in the intermediate and deep wells, periodic oscillations that are due to Earth tidal phenomena (Delcourt-Honorez, 1986a, b, 1989, 1990 a,c). The water table and the pressure heads also respond to the atmospheric pressure variations. In this paper reference is made to the hourly water level data set, for the five and half years from June 1984 to December 1989. Figure 2 shows pressure head variations in the deep well; where periodic oscillations of about 5 cm amplitude were recorded. In the intermediate well the amplitude of the water level fluctuations is only of about 1 cm. These oscillations are represented on the same scale on figure 3.

The hourly observations data, converted into the standard format (Ducarme, 1975, 1978)

used by ICET (International Center for the Earth Tides, Brussels), are smoothed to eliminate the effect of pumping. The classical Venedikov filter method (Venedikov, 1966 a,b) separates the diurnal, semi-diurnal waves before determining the amplitude and the phases of the main waves by the least squares method. The barometric effect is removed by using the Multiple Input Single Output method (De Meyer, 1982) and by determining the transfer function (Delcourt-Honorez, 1990a). From the analyses performed on various data sets (Delcourt-Honorez, 1986a, b, 1988, 1989, 1990a,c) it is deduced that the observed oscillations are due to Earth Tides according to the two criteria proposed by Melchior (1956) : the phases are  $180^\circ$  and the amplitude ratios agree with the theoretical ones.

### 3. SEISMIC RESPONSES IN WELLS.

A well can also act as a seismograph. Several water levels have shown amplification in response to earthquakes, e.g. to the earthquake in the South of Alaska, on March 28, 1964 recorded in the borehole at Heibaart as an oscillation of the water level in the confined well, having a double amplitude of 35,3 cm (Sterling and Smets, 1971); the same earthquake was recorded in an unconfined well located near Ottawa (Scott and Render, 1964). In Florida an artesian well fluctuated over a double amplitude of as much as 4,6 m in response to the same Alaskan earthquake (Cooper et al., 1965).

### 4. CONTRIBUTION TO THE RADON PROBLEM.

#### 4.1. In situ parameters estimate.

Various models (e.g. Cooper et al., 1965, Bredehoeft, 1967, Narasimhan et al., 1984, Gieske, 1986, Hsieh et al., 1987) describe the elastic and inelastic response of wells to tidal forces and the inelastic response to seismic waves. By using those seismic and tidal water level responses combined with the water level barometric response, the in situ parameters of aquifer layers and complex aquifer system, for example the specific storage, storativity, porosity, permeability and vertical compressibility can be estimated. The study of

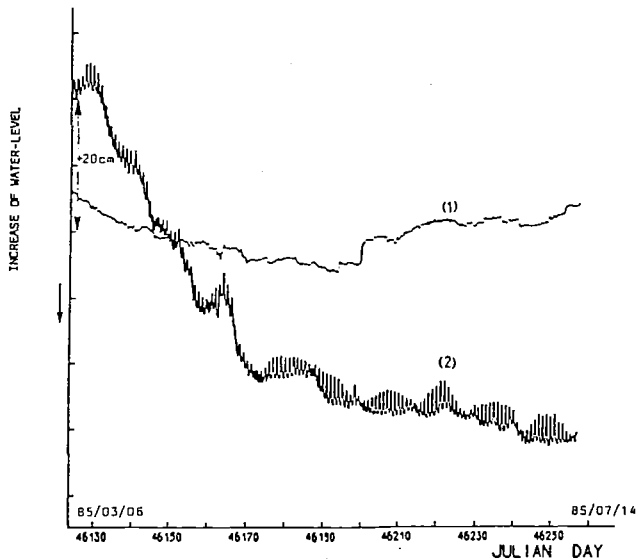


Figure 3. Observed tidal phenomena in the intermediate well (curve 1) and in the deep well (curve 2) at the same scale at ROB after having removed the barometric effect.

barometric and tidal responses in wells leads to reliable estimation of the aquifer system parameters by using the records in the borehole at ROB (e.g. Delcourt-Honorez, 1990a). The research developed validates a **process of estimating in situ aquifer parameters which differs from classical tests usually performed in hydrogeology**. Of the five wells studied for expected tidal and seismic responses in the Mons basin, one well could show a tidal response (DH, in preparation).

The monitoring of a network of tidal water levels records can be used to define the hydrogeological conditions at specific site e.g. during and after underground working but also for toxic and nuclear waste disposal sites. The interpretation of the well-tidal variations in terms of physically significant parameters can be applied to waste repositories because in situ hydrological conditions can be deduced by continuous monitoring in several widespread boreholes over a long period.

Such a study is a **contribution to the Radon problem** because it is well known that the Rn emanometry depends on hydrological environmental parameters (effect of porosity, permeability,...)

#### 4.2. Tides and earthquakes in fluid pressures and in Radon flow.

**Earth tidal phenomena** are also observed in the flow of oil wells, in gas production and especially in **Radon flow**. An anomalous change in CH<sub>4</sub>/Ar ratio of the gas bubbles correlating with the seismic activity has been observed by Kawabe et al. (1987) and contributes to their seismo-geochemical study in the Matsuyama area in Japan. Periodic oscillations observed in the Rn emanation in a **Rn station in the Mons basin** can be attributed to **Earth tides** (see Charlet et al., this CIGG). The study of the effects of Earth tidal and seismic forces upon groundwater and fluid pressures contributes to the Radon problem.

#### ACKNOWLEDGEMENTS

The author thanks the Belgian Geological Survey the Royal Observatory of Belgium and the Polytechnical Faculty at Mons (FPMs) for having given her the possibility to perform this study.

#### REFERENCES

- BREDEHOEFT, J.D.**, 1967 : Response of well-aquifer systems to Earth tides. *Journal of Geophysical Research*, vol, 72, 3075-3087.
- CHARLET, J.M., BLAVE, A., DUCARME, B.**, this CIGG : La mesure de l'émanation Radon dans un contexte microsismique : la station d'Hornu.
- COOPER, H.H., Jr., BREDEHOEFT, J.D., PAPAPOULOS, I.S., BENNET, R.R.**, 1965 / The response of well-aquifer systems to seismic waves. *Journal of Geophysical Research*, vol. 70, n°16, 3915-3926.
- DEL COURT-HONOREZ, M.**, 1986 (a) : Earth tides responses and barometric effect in three well(aquifer) systems. The effect on gravity of the three water-level variations. *Proceedings of the 10th Int. Symp. on Earth Tides, Madrid* (Ed. R. Vieira), 843-854.
- DEL COURT-HONOREZ, M.**, 1986 (b) : Twenty months water-levels registrations in three well-aquifer systems, on the site of the Royal Observatory of Belgium. *Bull. Inf. Marées Terr.*, n°97, 6639-6648.
- DEL COURT-HONOREZ, M.**, 1988 : Sur la contribution des variations des nappes aquifères aux variations de la pesanteur. *Dissertation doctorale, Faculté des Sciences,*

Université Catholique de Louvain.

**DELCOURT-HONOREZ, M.**, 1989 : Détermination of the in situ parameters from the observed tidal oscillations in the well-aquifer systems at the Royal Observatory of Belgium. Bull. Inf. Marées Terr., n°103, 7228-7255.

**DELCOURT-HONOREZ, M.**, 1990 (a) : In situ parameters from the Earth-tidal and barometric responses in the borehole at the Royal Observatory of Belgium. The effect on gravity of the water-levels variations.

Service Géologiques de Belgique, Ministère des Affaires Economiques, Professional Paper 1990/3-Nr 244.

**DELCOURT-HONOREZ, M.**, 1990 (b) : Land surface displacement induced by water-level variations. Proceedings of the Int. WORKSHOP ON GPS for Geodesy and Geodynamics, Walferdange, Luxembourg.

Cahiers du Centre Européen de Géodynamique et Séismologie, Vol.2,263-272.

**DELCOURT-HONOREZ, M.**, 1990 (c, in press) : Water-levels fluctuations in a borehole at the Royal Observatory of Belgium : effect on local gravity, Earth Tides, Helsinki,

**DE MEYER, F.**, 1982 : A Multi Input Single Output model for Earth tide data. Bull. Inf. Marées Terr., n°88, 5628-5674.

**DUCARME, B.**, 1975 : The computational procedures at the International Center for Earth Tides (ICET). Bull. Inf. Marées Terr., n°72, 4156-4181.

**DUCARME, B.**, 1978 : Data standardization in tidal research. Bull. Inf. Marées Terr., n°78, 4712-4719.

**GIESKE, A.**, 1986 : Phase shifts in the response of boreholes to tidal gravity variations. Proceedings of the 10 th Int. Symp. on Earth Tides, Madrid (ED. R. vieira), 827-834.

**HSIEH, P.A., BREDEHOEFT, J.D., FARH, J.M.**, 1987 : Determination of Aquifer Transmissivity from Earth Tide Analysis. Water Resources Research, vol, 23, n°10, 1824-1832.

**KAWABE, I., OHNO, I., UTSUNOMIYA, T.**, 1987 : Tidal fluctuation of groundwater flow and seismogeochemical importance of the Earth Tides. Mem. Ehime Univ., Sci., Ser. D. (Earth Sci.), Vol. X, n°4, 1987.

**LAGA, P. DELCOURT-HONOREZ, M.**, (1991, in press) : Water-level variations in the three wells of the borehole at the Royal Observatory of Belgium. Service Géologique de Belgique. Ministère des Affaires Economiques. Professional Paper.

**MELCHIOR, P.J. GULINCK, M.**, 1956 : Sur l'effet des marées terrestres dans les variations de niveau observées dans les puits, en particulier au sondage de Turnhout.

Comm. de l'ORB, Série Géophys., n°37.

**MELCHIOR, P.J., STERLING, A.**, 1964 : Effets de dilatations cubiques dues aux marées terrestres observés sous forme de variations de niveau dans un puits à Basècles (Hainaut).

Comm. de l'ORB, Série Géoph., n°66.

**MELCHIOR, P.J.**, 1983 : The Tides of the planet Earth, 2nd Ed. Pergamon Press, Oxford.

**MELCHIOR, P.J., DUCARME, B.**, 1989 : L'étude des phénomènes de marée gravimétrique. Géodynamique 4 (1), 3-14.

**NARASIMMAN, T.N., KANEHIRO, B.Y., WITHERSPOON, P.A.**, 1984 : Interpretation of Earth tides response of three deep, confined aquifers. Journal of Geophysical Research, vol. 89, n°B 83, 1913-1924.

**VENEDIKOV, A.P.**, 1966 (b) : Sur la constitution de filtres numériques pour le traitement des enregistrements des marées terrestres. Acad. R. Belg., Bull. Cl. & Sc. 5,(b), 827-845.

## RADON AS AN INDICATOR OF HAZARD OF INSTANTANEOUS OUTBURSTS OF ROCK AND GAS IN COAL MINES

J. LEBECKA (1), K. MNICH (2) K. LEBECKI (1), Z. KOBIELA (1)

(1) Central Mining institute, Katowice, Poland

(2) Victoria Colliery, Walbrzych, Poland

### ABSTRACT

*Instantaneous outbursts of coal and gas caused serious catastrophes in mines. Prediction of outbursts is based mainly on empirical and intuitive indices, since the theory of instantaneous outbursts is not developed. Therefore prediction of outbursts is very difficult and often fails. So any aid in prediction of outbursts is valuable.*

*In the present paper, results of observations of changes of radon concentration in gas samples taken from coal seams and sandstones prone to outbursts are shown. Significant drops of  $^{222}\text{Rn}$  concentration before outbursts were observed. However decrease of  $^{222}\text{Rn}$  was observed also sometimes in cases when no outbursts occurred. Obligatory outburst hazard indices like gas pressure and description intensity also often fail. The obtained results are very promising and show that  $^{222}\text{Rn}$  concentration can be used as an additional indication of outburst hazard.*

### INTRODUCTION

Instantaneous outbursts of rock and gas belong to the most serious hazards in underground coal and salt mines. Instantaneous outbursts caused serious catastrophes with many fatalities. According to A. Hargraves (1983) "an instantaneous outburst is defined as the violent projection of coal and gas away from freshly exposed coal in mining either in breaking into or in development in the seam. The individual projections are usually small size and often even like fine powder". Violent noises may accompany the burst, ranging from a crescendo of knocking to the sound of falling timbers to the roar of wind. Sometimes premonitory tapping (failures) are heard. The gas may be methane or carbon dioxide or mixtures. The cavities produced are filled with burst coal except for a characteristic gas escape channel at the top. Roof may fall into this cavity so that the volume of stone involved may exceed that of the coal. The pressure of the enormous "instantaneous" release of gas perhaps 20 or more times the volume of coal ejected, is sometimes sufficient to push it far into the intake and to destroy ventilations structures. Victims may be injured by flying coal and moved equipment and supports. They may be knocked down, blinded, suffocated or asphyxiated.

However many research efforts have been given for prediction of outbursts in order to apply proper prevention measures in time,

the results are still rather poor. Moreover, the theory of instantaneous outbursts is still far from being complete. Therefore, anything, what could help in prediction of outburst is highly appreciated.

It is commonly known, that a phenomenon of increased radon emission from underground waters in seismic areas is considered a good precursor of forthcoming earthquake (Kissing, 1982). Because of the success in earthquake prediction it has been proposed that changes in radon emission prior to an outburst could prove very valuable in predicting such phenomena as outbursts. The consideration is based upon the fact that radon as a noble gas migrates easily throughout strata and its radioactive properties enable simple detection in very low concentrations.

In order to prove this hypothesis, observation of changes in radon concentration in seams prone to outbursts were performed. Since outbursts do not occur very often, these observations already took several years and still are far from being completed.

### INVESTIGATION SITE

Observations were carried out underground mine workings in two coal mines in the LSCB located within the Middle Sudety mountains. The tectonic structure of the basin is complex featuring multi-directional faults, folds and over thrusts. Moreover, carbon

formations are cut by numerous intrusions of igneous rock resulting from the Upper Carbon volcanic activity. The characteristic distribution of outburst phenomena in mines of the Lower Silesian Coal Basin assigns them to the course of the tectonic dislocations. There are four active coal mines in the LSCB.

General data on the outburst hazard Lower Silesian coal mines are given by Kozłowski et al.(1985). All four mines of the basin are characterized by a high outburst hazard. In 1956 "Nowa Ruda" colliery experienced one of the strongest outbursts in the history of the mining industry releasing 750 000 m<sup>3</sup> CO<sub>2</sub> and 5 000 t of coal. Mines of LSCB experience outbursts of both CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>.

## RESULTS OF OBSERVATIONS

Investigations were performed in coal seams, shales with coal intrusions and sandstones prone to outbursts. Gas samples were collected from testing bore holes (length 3-6 m) freshly drilled in mine headings. Gas was taken by means of a small hand pump directly to Lucas scintillation chambers of 160 cm<sup>3</sup> volume. After sampling, Lucas chamber filled with gas to be tested were taken to the laboratory, where concentration of <sup>222</sup>Rn in gas sample was measured. For this purpose a typical set was applied. A detection limit of <sup>222</sup>Rn was of 5 Bq/m<sup>3</sup> by 100 minutes counting time.

The first investigated mine working was a transportation dip 6 W in a coal seam 672 from -250 m level to -350 m level in "Thorez" colliery (Lebecka et al, 1987). The observation period was from March 1985 to January 1987. During this time three outbursts occurred in this working. Changes in radon concentration in gas samples taken from this working as a function of face advance are shown on Fig.1. Also results of routine measurement of gas pressure and desorption intensity are shown. Radon concentration changes considerable with the face advance. Vertical arrows of length proportional to the amount of coal released, indicate coal CO<sub>2</sub> outbursts which occurred in the heading. Considerable decrease of radon concentration was observed prior to three occurrence to be followed by the concentration increase after the

outburst. For organization reasons radon monitoring was temporarily canceled when driving the dip between the 520th and 550th meter. The probable radon concentration values during that period is represented by the dotted line, drawn by analogy to previous test results. Significant falls of <sup>222</sup>Rn concentration and subsequent growth at 561 m and 571 m are clearly indicated. At the time dynamic gas disturbances resulting from distressing blasting at face were observed. After driving 582 m of the heading operations were canceled for the period of nearly 5 months due to a strong outburst in heading 50 m distant from the tested one. Following the break, variations in radon concentration were much smaller in range with generally lower concentration values. During this period no outbursts were experienced although gas pressure and desorption indices were very high. With very high gas pressures and desorption intensity only typical symptoms of the outburst hazard were observed, i.e. very strong blow-outs of gas and drilling from a bore hole. Out of three measured parameters, i.e. gas pressure, desorption rate and <sup>222</sup>Rn concentration, only the last one subject to strong variations only when outbursts were experienced.

The second, systematically monitored, heading was in the 671 coal seam, on -250 m level in Thorez colliery. Seam 671 in this part is also very prone to outbursts. The results are presented on Fig.2. Variations of <sup>222</sup>Rn concentration are of same order of magnitude as variations in final stage of driving transportation dip 6W in seam 672 (Fig.1.) During the last days of monitoring the radon concentration dropped below detection limit. Four days later and about 3.2 m of face advance another outburst occurred in which 70 tonnes of coal and 15 000 m<sup>3</sup> of CO<sub>2</sub> were released. Gas pressure and desorption intensity were very high and significantly exceeded the Polish critical indices values.

Somewhat different picture was obtained from observations of changes of <sup>222</sup>Rn concentrations in shales with coal interlayers. The investigated seam 4 of shale in Nowa Ruda colliery is very outburst prone, although outbursts occur only in coal interlayers. In this case (Fig.3.) <sup>222</sup>Rn concentration was very low during the whole period of observations, except of two days, when seismic phenomena were



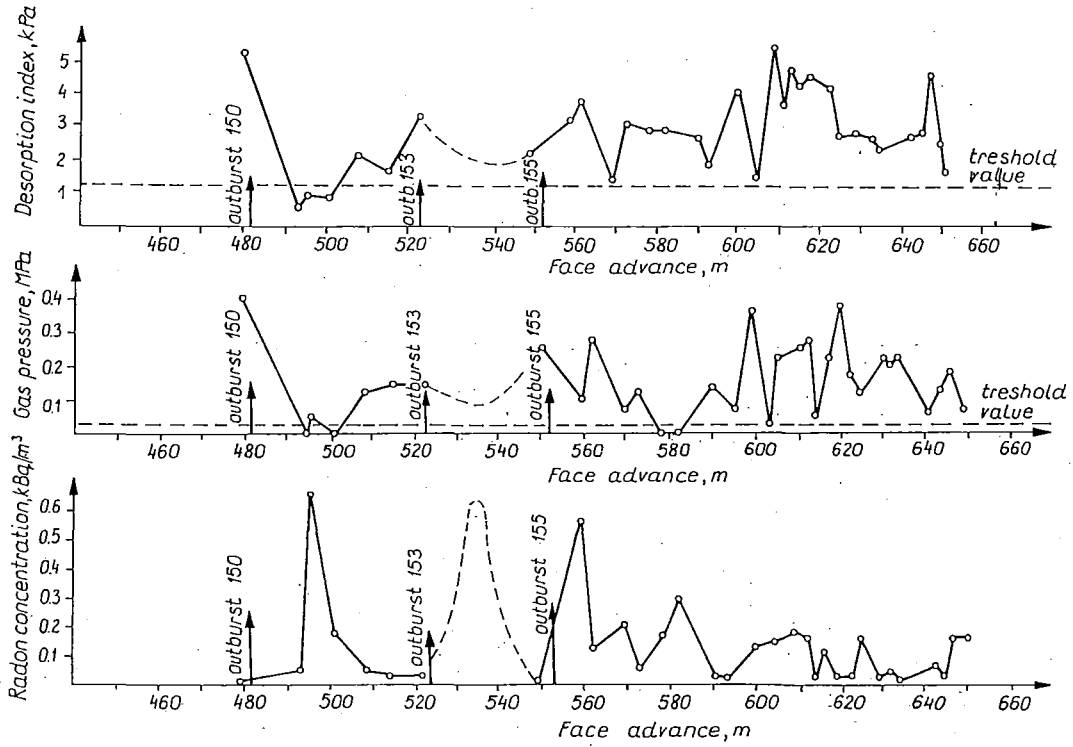


Figure 1. Variations in Radon concentrations in seam gas of 6W transportation dip (Thorez Colliery).

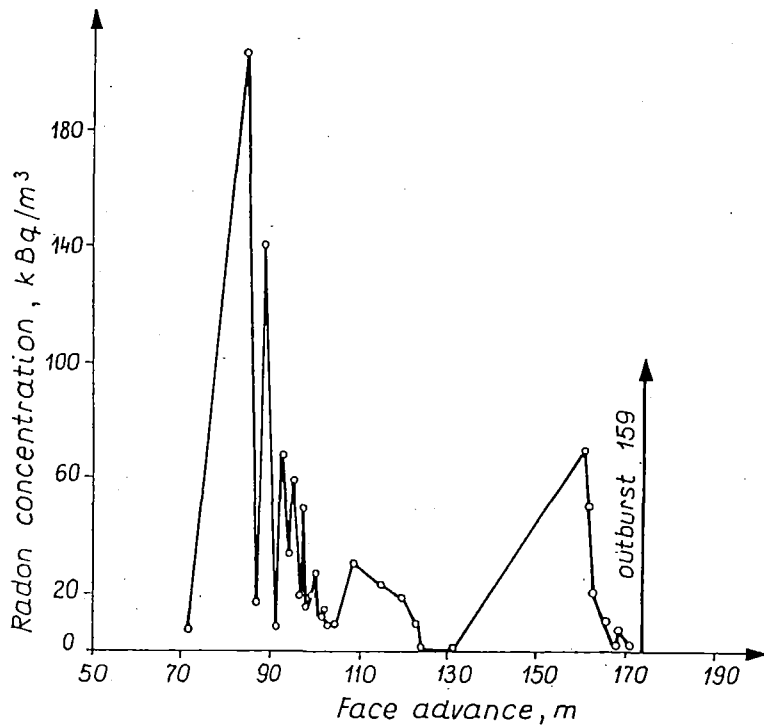


Figure 2. Variations in Radon concentrations in seam gas in 671 coal seam (Thorez Colliery).

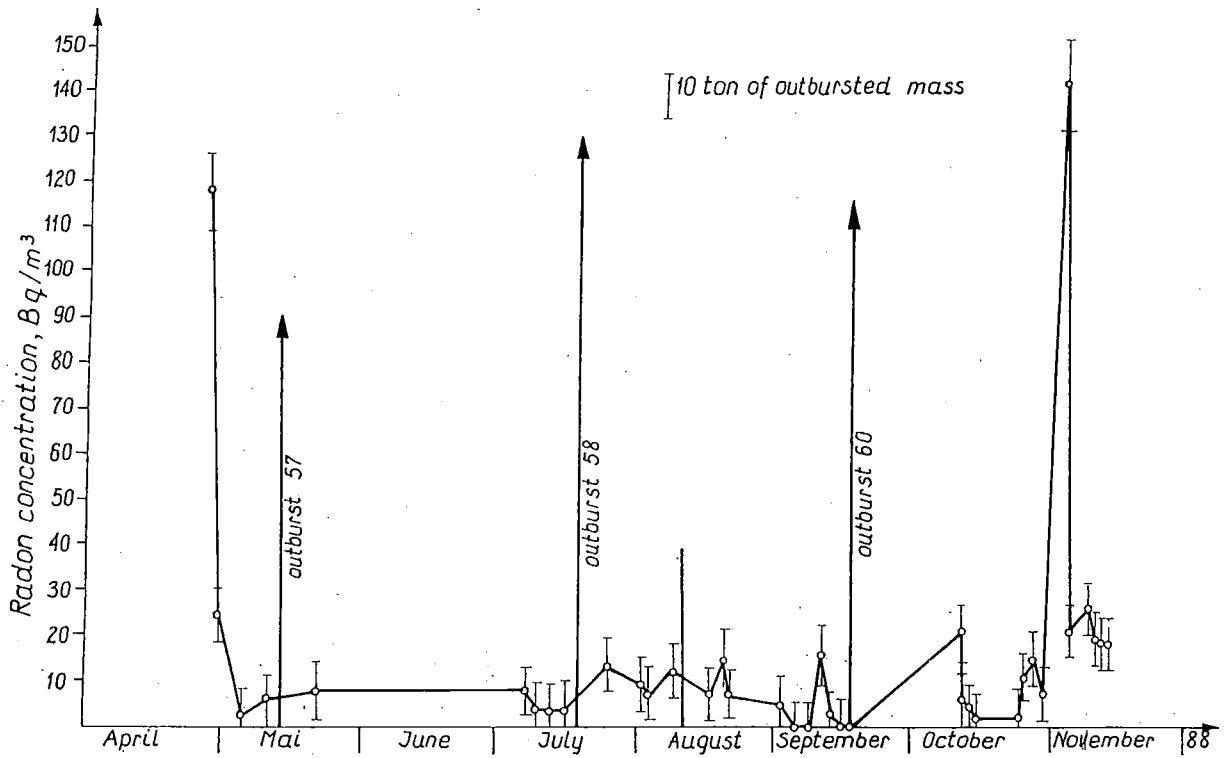


Figure 3. variations in Radon concentrations in shales in Nowa Ruda Colliery.

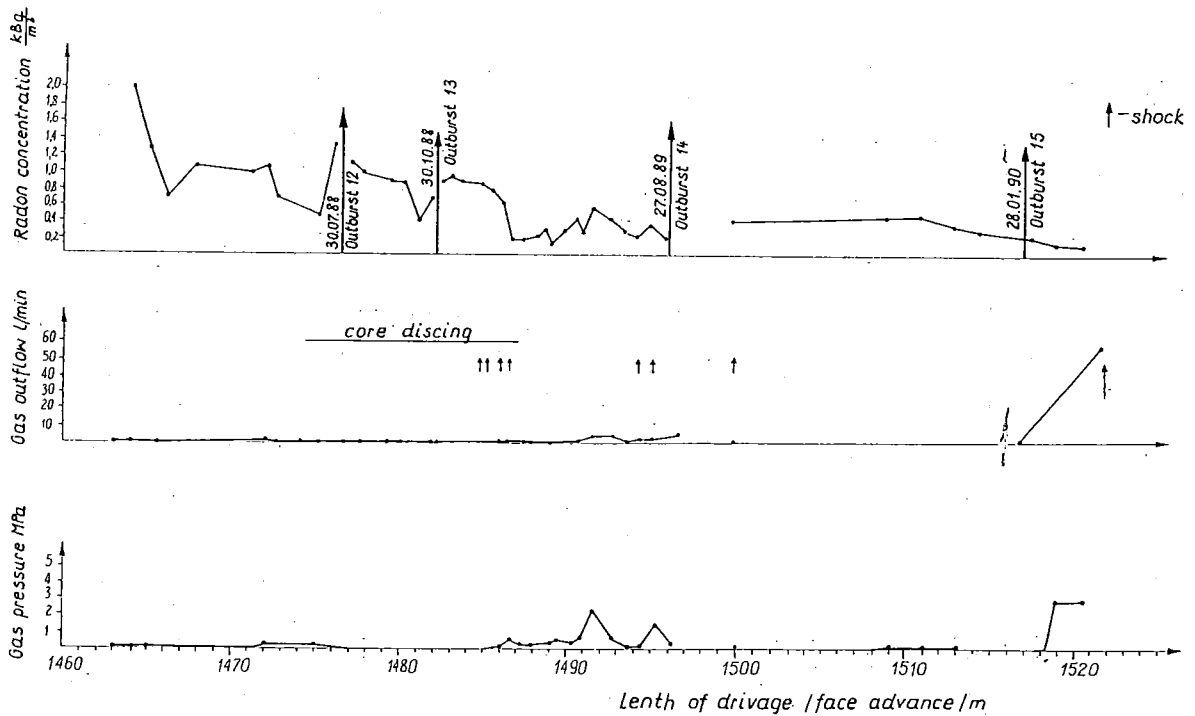


Figure 4. Variations in Radon concentrations in sandstones in Nowa Ruda Colliery. Changes of radon concentration in driveage "C" to ludmila shalt in "Nowa Ruda" Colliery.

registered. Very low  $^{222}\text{Rn}$  concentrations resulted in a high error of measurement. Therefore, in this case, in spite of low concentrations of  $^{222}\text{Rn}$  prior to all outburst occurrences, no conclusions, concerning changes of  $^{222}\text{Rn}$  concentration with changing outburst hazard could be drawn.

Another mine working, submitted to detail observation was a so called C-Drivage in sandstone in -110 m in Nowa Ruda colliery (Lebecka et al, 1989). This gallery is driven in the direction of the coal seam, which has been closed in 1939. The drivage was started again in 1971. Observations of  $^{222}\text{Rn}$  concentration have been started in 1988. During the observation period the drivage was worked exclusively in sandstone. Because of an extremely high outburst hazard the face advance was very slow. During 1988 the drivage was worked only from 1962.1 m to 1981.1 m. In December 1989 the face of the drivage reached 1520.5 m. All the time prevention measures were applied i.e. drilling of long distressing bore holes and relaxing shot firing.

Outbursts in sandstones are rather rare. Sandstones prone to outburst have very different physical properties; much higher porosity and permeability and much smaller mechanical strength. Although the gas content in sandstones is 10 to 20 times lower than the gas content in coal, the outbursts are often more dynamic than in coal seams. Prediction of outbursts is very difficult in coal seams, but in sandstones the problem of prediction is much more complicated and serious. In sandstones one cannot use for this purpose desorption intensity, because no gas is adsorbed. Also application of gas pressure observations is very limited. Some indication of outburst hazard in sandstones is given by observations of discing of drill cores, but this method also often fails. Therefore any additional information which could help in outburst prediction would be very valuable.

Results of observations of variation in  $^{222}\text{Rn}$  concentration in sandstones as a function of progress of drilling drivage C is shown on Fig.4. During the period of observations three outbursts took place. Concentration of  $^{222}\text{Rn}$  in gas samples taken from sandstones were higher than in coal. This is caused by higher radium concentration in sandstones than in coal.

During the first period of measurements variations of  $^{222}\text{Rn}$  concentration were very high in the range from 0.4 to 2.0 kBq/m<sup>3</sup>. After a drop followed by a rise of  $^{222}\text{Rn}$  concentration an outburst of 1 400 t of rock and 12 000 m<sup>3</sup> of CO<sub>2</sub> occurred. After drilling only 5,5 m of drivage, another, very strong (4 000 t of rock and 40 000 m<sup>3</sup> of CO<sub>2</sub>) took place. The course of  $^{222}\text{Rn}$  during this period was like before the first outburst. After the second outburst  $^{222}\text{Rn}$  concentration was almost stable. At 1 486 m of face advance there was a sudden drop of  $^{222}\text{Rn}$  concentration followed by oscillations at rather low values. At 1 496,2 m a third outburst (3 500 t of rock and 35 000 m<sup>3</sup> of CO<sub>2</sub>) occurred. Afterwards there was a rather long period of stable  $^{222}\text{Rn}$  concentration followed by a slow decrease. After  $^{222}\text{Rn}$  concentration fall below 0.14 kBq/m<sup>3</sup>, authorities of the colliery have been warned of the possibility of forthcoming outburst. At 1 517 m of face advance a fourth outburst (2 000 t of rock and 10 000 m<sup>3</sup> of CO<sub>2</sub>) happened.

## DISCUSSION

Data of all outburst events by which radon observations were performed are given in table I. It can be seen that radon concentration is different for different rocks. The highest  $^{222}\text{Rn}$  concentrations were observed in sandstones, the lowest in shales with coal interlayers. In coal medium  $^{222}\text{Rn}$  concentrations are observed.

Prior to all outburst events in coal or shale seams with coal interlayers concentration of  $^{222}\text{Rn}$  was below 20 +/- 10 Bq/m<sup>3</sup>. Although, so low  $^{222}\text{Rn}$  concentrations occurred also in cases when no outbursts occurred, but in seams prone to outbursts much higher variations of radon concentrations were observed than in seams, which were not outburst prone. The symptom of dropping of radon concentration is characteristic for the forthcoming outburst as well as the raise of desorption intensity and gas pressure, which are obligatory outburst indexes in Poland. Nevertheless, no correlation between mentioned obligatory indexes and radon concentration was found (the correlation coefficients are below 0.2).

In shales radon concentrations are generally low, therefore changes of radon

Table 1. The results of measurements of changes in Radon concentrations in different places with outburst hazard.

Ckr - value of radon concentration below which the outburst is very probable.

	WORKING					
	1	2	3	4	5	6
Type of rock	coal	coal	shale with coal interlayer	coal	coal	sandstone
Rn concentrations C [Bq/m <sup>3</sup> ]						
maximum	690	205	143	193	175	2105
minimum	11	2	2	13	101	474
average	168	30.5	16.4	108.1	130.3	781
Number of outbursts	3	1	4	0	0	2
Number of cases C Ckr	5	6	26	0	0	0
Outbursts parameters						
Mass released-tons	160,100	70	90,120			1400
Gas volume -10 <sup>3</sup> m <sup>3</sup>	160		40,100			4000
	15,12.5	15.0	17.6,13.0			12,40.0
	18.8		3.44,7.02			
Rn concentration prior to outburst [Bq/m <sup>3</sup> ]	20 +/- 10 14 +/- 10 11 +/- 10	2 +/- 6	6 +/- 6 14 +/- 6 12 +/- 6 0 +/- 5			474 - 1290  691 - 873
Obligatory hazard indexes						
Description mm			462,360			
H <sub>2</sub> O pressure KPa			418 2.0   0.3 1.0   0.5			0.1 0.0
Ckr [Bq/m <sup>3</sup> ]	20,19,11	5	15			two times drop
Advances (m)	1,5,6	4	1,2,1,1			11,11

concentrations are difficult to observe. For this reason radon-method of outburst forecasting cannot be applied for shales.

In sandstones the <sup>222</sup>Rn concentrations are generally high and do not drop to values near zero. But also in sandstones changes of <sup>222</sup>Rn concentration before outbursts can be noticed. Usually the radon concentration before outburst drops. This is sometimes followed by a rise of <sup>222</sup>Rn concentration. So a drop of <sup>222</sup>Rn concentration can be considered of a serious symptom of a forthcoming outburst.

The observed phenomenon could be explained as follows. <sup>222</sup>Rn radon isotope of 3.8 day half-life originates from <sup>226</sup>Ra isotope of

1 620 years half-life. <sup>226</sup>Ra is the product of decay of <sup>238</sup>U. The amount of <sup>222</sup>Rn appearing in strata depends solely on the amount of <sup>226</sup>Ra contained in rocks, but only a small part of radon produced from radium decay is emitted from rocks along with gases. The amount of released radon depends on rock porosity and fissure occurrence as well as the acting strata pressures. The decrease of radon concentration prior to outburst may result from closure of pores and fissures in coal body in the proximity of face caused by strong strata strains preceding outbursts. In coal seams additional decrease is undoubtedly caused by intensive gas sorption at high pressures.

## CONCLUSIONS

In spite of small number of observations of changes of radon concentration in strata with high outburst hazard the obtained results seem to be very promising. A sharp decrease of radon concentration can be considered as a symptom of forthcoming outburst. Although decreases of radon concentration are observed also in cases when no outbursts occur, but other methods of outbursts forecasting also often fail. Therefore the results of radon observations may be used at least like auxiliary information in outbursts forecasting and warning.

## REFERENCES

**HARGRAVES A.J.**, Instantaneous outbursts of coal and gas, a review, Proceedings of Australian Institute of Mining and Metallurgy N°285,1-37,1983  
**KISSIN J.G.** : Ziemiastronija i podziemnyje

wody, Izdatestwo "Nauka", Moskwa 1982, p.161-171.

**KOZLOWSKI B., KOBIELA Z., TRZCIONKA J.**, Forecasting methane and outburst hazard and preventive and active suppression measures applied in galleries driven by heading machines in parts with very high methane content, Proceedings of the 21<sup>st</sup> International Conference of Safety in Mines Research Institutes, Sydney, editor A.A. Balkema, Rotterdam, Boston, 105-10g, 1985

**LEBECKA J., LEBECKIK., KOBIELA Z., MNICH K.**, : Observations of Seams Prone to Outbursts, Proceedings of the 22<sup>nd</sup> International Conference of Safety in Mines Research Institutes, Beijing PRC (1987) p.285-294.

**LEBECKA J., LEBECKI K., KOBIELA Z., MNICHK.**, : Possibility of Employing of Radon Emission and Migrations to Forecast of Sudden Outburst, Proceedings of the 23<sup>rd</sup> International Conference of Safety in Mines Research Institutes, Washington DC, September 11-15, 1989.

## EARTHQUAKE PREDICTION EXPERIMENTS IN NORTHERN ITALY : RECENT DEVELOPMENTS IN AUTOMATIC GEOCHEMICAL MONITORING

G. MARTINELLI (1) and P.B. FINAZZI (2)

(1) Servizio Informativo e Statistica, Regione Emilia-Romagna, Bologna (Italy)

(2) A.G.I.P. - Istituto Autorizzato di Radioprotezione, Milano (Italy)

### ABSTRACT

*This article describes the monitoring of some mud volcanoes located in the Northern Apennines of Italy. This monitoring had a geochemical character and was carried out in order to ascertain the seismic precursory nature of the mud volcano fluids. The first operational step was the determination of the regional character of the main physical and chemical precursors; to achieve this result the historical research was successfully approached from a multidisciplinary point of view.*

*Experiments were carried out to identify the physical model, the main geochemical characteristics and the origin of the seismic precursory phenomena, with particular reference to Radon 222.*

*These experiments represented also an opportunity to extensively test the technological apparatus which is necessary for a reliable automatic continuous monitoring of mud volcanoes geochemical parameters.*

*The first results of this monitoring system date back to Dec. 1988 - Jan. 1989. In this period some seismic events occurred which were preceded by certain phenomena we can term precursory.*

*All the information gathered was used to create an interpretative model which allows a better comprehension, from a physical and chemical point of view, of similar events.*

### INTRODUCTION

In the past the occurrence of earthquakes was correlated in a general way to unusual natural phenomena, such as groundwaters anomalies, well-level changes, turbidity of groundwaters, bubbling of gases in groundwaters, chemical changes in springs or well waters, unusual gas exhalations. (Roeloffs, 1988). The above mentioned phenomena and other physical events have influenced people's behaviour and sensorial perception as well as the biosphere where the effects of the earthquakes can be observed. Ferrari and Martinelli (1988) recently examined these aspects more closely and suggested creating a data-basa of historical information on premonitory phenomena. (Table 1). The regionalization of these phenomena, mainly studied in Northern Italy, and the result concerning a selected area were experimentally checked and previously reported in Martinelli et al. (1989) (Table 1). This regional character of precursors or, more precisely, the greater

evidence in a determined area of certain specific precursors, underline the need for more precise monitoring strategies and require fewer economic and human resources (i.e. Mei Shirong, 1987). This is all the more important in a country like Italy which has a particularly complex tectonic situation.

A sample area of the Northern Apennines was therefore chosen according to a historically-based regional characterization. Within this scope, observations and experiments were carried out at the Pujanello mud volcano in order to design and realize an automatic, continuous geochemical monitoring station.

### EXAMINATION OF NATURAL EVIDENCES : MUD VOCANOES IN NORTHERN ITALY

In the Northern Apennines there are anomalous fluids : chemically and/or thermally anomalous waters, gas emissions, and mixed emissions of chemically anomalous waters



Figure 1. Example of a wet gaseous emission : Regnano's mud volcano.

Table 1.

Principal classes of phenomena with earthquake precursory characteristics most frequently found in historical sources (from Martinelli et al ., 1989)

CLASSES OF PHENOMENA

	Alpine Arc	N. Apennines	Po Valley
Anomalous behaviour of animals	*	*	*
Groundwaters	*	*	*
Variations in the well-water level	*	*	*
Appearance and disappearance of springs or variation of discharge	*	*	*
Variations in the physical and chemical characteristics :	*	*	*
Temperature variations	*	*	*
Turbidity (mudding gas bubbling)	*	*	*
Variations in smell and flavour	*	*	*
Oil flow or springs		*	*
Gas escape from soil fractures		*	*
Burning flames		*	
Luminous phenomena		*	
Gas escape in waters	*	*	*
Eruption in mud volcanoes		*	*
Bubbling in groundwaters	*	*	*
Electric and electromagnetic phenomena	*	*	
Luminous phenomena	*	*	

*Main premonitory phenomena historically observed in different areas of Northern Italy. It is reasonable to extend this pattern of occurrences to the whole of Italy according to the geological, fluid-geochemical and dynamic local conditions. In Central Italy, spring gas bubbling intensifies according to the main Radon gas carrier ( $CO_2$ ) and in Southern Italy according to the main Radon gas carrier ( $CO_2$ ,  $H_2S$ ,  $N_2$ ). All these phenomena have also generated throughout Italian popular local traditions linked to salutiferous religious cults associated to the unusual properties of water springs.*

linked to hydrocarbons the most frequent of which is methane (Pellegrini et al., 1982).

These occurrences are particularly frequent along the main tectonic disturbances which cross the Apennines (Figs. 1, 2, 3) (Castellarin et al., 1985; Boccaletti et al., 1985; Scicli, 1972). They have aroused the curiosity of many authors both in recent and historical works because of the peculiar anomalies occurring in correspondence with seismic events (i.e. Spallanzani, 1795; Pantanelli and Santi, 1895; De Buoi, 1937; Di Pietro, 1985). Mud volcanoes (Fig. 1) belong to these evidences and have more or less frequent eruptions in form of explosions of mud, brackish waters, petroleum and gases.

As various authors have recorded (Ferrari and Vianello 1985; Martinelli et al., 1989), the emissions do not show any thermic anomaly

and reflect the constant thermic reequilibration of the rising fluids with the surface rocks. The exceptions are a few rare and powerful eruptions which occurred in the past; on these occasions positive anomalies were recorded, that is the temperature of the fluids was higher than the external temperature by a few degrees centigrade (Pellegrini et al., 1982; Pantanelli and Santi, 1895). This kind of mud volcano can be found in several parts of the world and has been taken into consideration by various authors such as Higgins and Saunders (1974) and Snjukov et al. (1986).

According to Snjukov et al. (1986), mud volcanoes are conventionally divided into three basic categories : Lakbatanski, Bulganakshi, Suginki. In particular, the Lakbatanski mud volcanoes are characterized by the predominance of the gaseous phase with

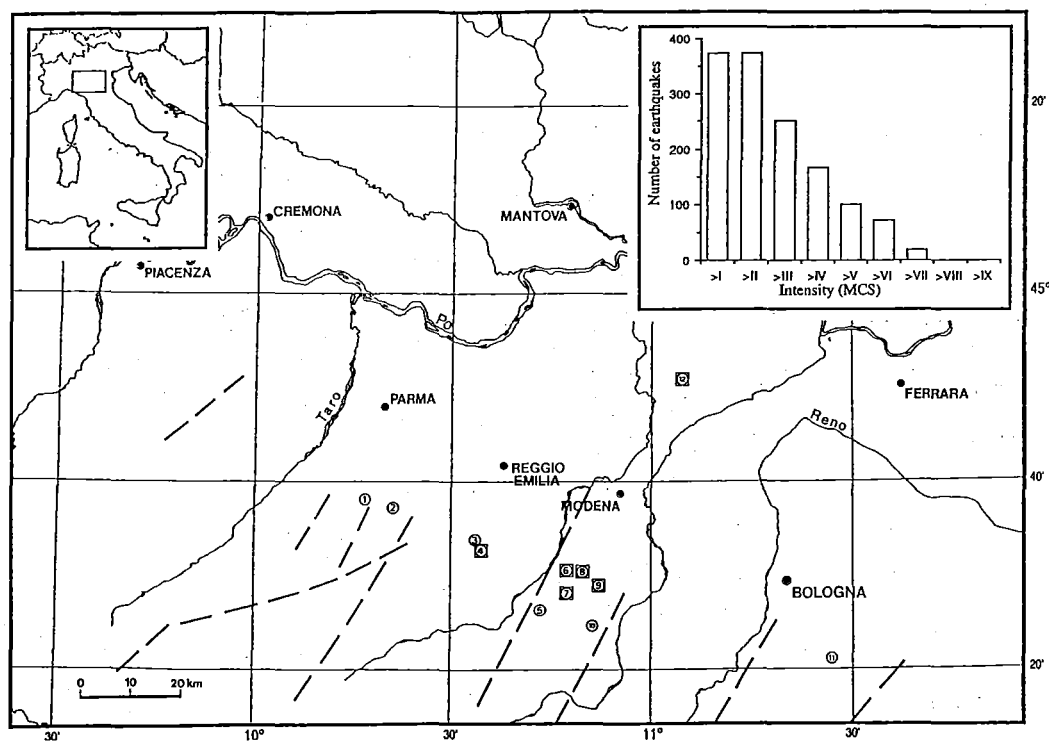


Figure 2. Location of the main mud volcanoes considered in the research of the main geological structures (transcurrent faults) shown by dotted lines. 1 Rivalta, 2 Torre, 3 Querciola, 4 Regnano, 5 Moncerato, 6 Montegibbio 7 Centora, 8 Nirano, 9 Pujanello, 10 Ospitaletto, 11 Sassuno, 12 Medolla. Numbers in circles on square backgrounds refer to mud volcanoes about which we have historical information regarding anomalous mud and gas eruptions. The small window in the top at right is the plot of frequencies of earthquakes in the Apennines near the Pujanello mud volcano in the period 1000-1987.



Table 2

Earthquakes after anomalies in the behaviour of mud volcano gas or water emissions<sup>1</sup>

Ref	N	Year	Mo	Da	Ho	Mi	Se	Lat.	Lon.	M
1	1	1957	06	14	14	37	-	44 18	10 48	3.1
1	2	1957	08	27	11	54	40	44 18	10 57	4.1
1	3	1957	08	23	05	05	30	44 16	10 18	3.6
2	4	1986	05	31	23	08	34	44 30	10 46	4.1
3	5	1987	04	24	02	31	-	44 49	10 42	4.6
4	6	1987	05	02	20	43	56	44 50	10 44	4.8
4	7	1987	05	06	09	28	16	44 49	10 44	3.3
4	8	1987	05	08	11	10	27	44 50	11 08	4.0
4	9	1987	05	08	16	33	42	44 52	10 52	3.1
4	10	1987	05	14	17	47	21	44 50	11 08	3.4
5	11	1988	10	15	15	38	06	44 35	11 01	3.6
5	12	1988	12	08	05	00	12	44 30	10 03	
5	13	1988	12	30	09	59	52	44 49	10 40	3.4
6	14	1989	1	07	12	10	15	44 11	10 56	3.2

1) Postischl, 1985; 2) ING, 1987; 3) Gaparini et al., 1987; 4) EMSC, 1987; 5) EMSC, 1988; 6) EMSC, 1989.

respect to the other phases and by a particular sensitivity to events of tectonic origin which are linked to spectacular eruptions; the main feature of Bulganakshi mud volcanoes is a constant activity in time which is mainly represented by mud emissions; the Suginski mud volcanoes features belong simultaneously to the two categories already described. In general, the mud volcanoes taken into consideration in this study seem to belong to the Bulganakshi category even though, as it can be deduced from the result of the historical research (Table 2), their characteristics are sometimes those which identify the Lakbatanski category.

The volumetric consistency of the various physical phases varies considerably both in space and time, even if the gaseous phases are generally predominating (Ferrari and Vianello, 1985). Different authors in the past have observed and described some of these anomalous eruptions that can reach significant

proportions, especially if compared with the normal dimensions of their activity. On the 13.th June 1790 for example, Lazzaro Spallanzani (Di Pietro, 1985, pp. 180-181) records an eruption at Nirano (n.8 in Fig.2) during which a 400 kg stone was ejected.

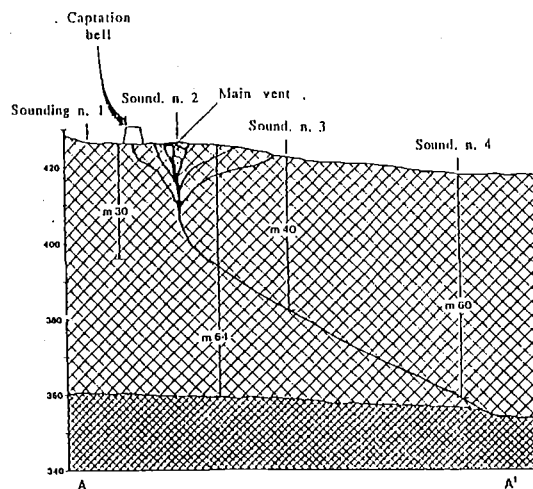


Figure 3. Vertical section of the Regnano mud volcano from geoelectrical prospecting (Caneva, 1958).

Analogous occurrences in other countries have also been reported, for instance, Stoppani (1908, p. 494) describes a spectacular mud volcano eruption in 1857 at Baku (Caspian sea).

It was also attempted to correlate anomalies in mud volcano eruptions and the earthquakes that occurred within a distance of 100 km (Martinelli et al., 1989). The catalogue used for the comparison between earthquakes and the mud volcano activities was a synthesis of the Italian earthquake catalogue (Postpischl, 1985) and the information available from the SGA historical researches (Guidoboni and Ferrari, 1989).

### **MUD VOLCANO ERUPTIONS. HISTORICAL SEISMICITY AND RELATED SEISMICITY.**

Recent international works (Vogt, 1979; Ambraseys and Melville, 1982; Guidoboni and Ferrari, 1989) created the basis for a new critical and methodological multidisciplinary approach aiming to re-create scenarios of past earthquakes effects. This approach permitted a considerable improvement in the scientific use of qualitative historical data, also as regards the study of seismic precursors.

Since a catalogue of mud volcano eruption anomalies did not exist yet, it was made out by means of reliable historical sources in order to manage the geochemical and geophysical monitoring of mud volcanoes (Martinelli et al., 1989).

The mud volcano eruptive anomalies have been chronologically compared with a catalogue of the earthquakes that occurred within a distance of 100 km from the mud volcano. The results of this comparison are positive in 70 % of cases; 25 out of 35 anomalous eruptions occurred before earthquakes which took place in the above-mentioned area. These events affected local geological structures in the Northern Apennines.

As the observation of mud volcanoes behaviour was not exclusively methodic and scientific and therefore did not bring out all anomalies but only the more spectacular phenomena, the catalogue of eruptions has certainly to be considered incomplete. For this reason it can not be estimated how many earthquakes - among those occurring within 100 km from the mud volcanoes under examination - were really preceded by an anomalous mud volcano eruption. In spite of the intrinsic limitations of a historically - based research, an analysis of the information gathered in past works (Pliny, *Naturalis Historia*, 2.199; De Buoi, 1937; Martinelli et al., 1989; Guidoboni, 1989) makes it worth considering the existence of a connection between mud volcano eruptions and seismic events.

From the point of view of seismic activity, the Northern Apennine area is not characterized by frequent destructive events (Boccaletti et al., 1985) but by a constant series of events with  $I_0 < V$  MCS. In particular, fig. 2 synthesizes the frequency and intensity features of the events which occurred in the area considered for the experimentation of the continuous automatic monitoring system.

The depth of hypocentres is usually 15-20 km but it sometimes reaches 30 km or even more. Estimations of focal volume calculated according to the Bath and Duda formula (1964) from the magnitudes (Postpischl, 1985) usually do not exceed 50 km<sup>3</sup>.

The success of the attempted correlation between the two catalogues (Martinelli et al., 1989) has strengthened the conviction that there is a link between buried seismogenic structures and the mud volcano system, as already proved by other authors (Higgins and Saunders, 1974; Treves, 1985; Snjukov et al., 1986; Ginsburg et al., 1988; Krendelev et al., 1988). Past hydrocarbon prospecting researches enabled an hourly, daily and monthly quantification of the total gas emission in the Regano (near Reggio Emilia) mud volcano area

(Caneva, 1958). During the prospecting, carried out between 1957 and 1958, total gas emissions and meteorological parameters were recorded (fig. 4). While no correlation was found between the temporal behaviour of total gas emissions and local meteorological conditions, three local earthquakes that occurred on June 14, August 23 and 27 (Table 2), may have played a significant role in the determination of strong spike-like disturbances in the graph relative to total gas emissions (Martinelli, 1989). As a consequence we carried out further, clearer experimental tests.

### PHYSICAL MODEL OF THE ANOMALOUS MUD VOLCANO ERUPTIONS.

It was noticed that a few days before the occurrence of certain earthquakes in Northern Italy, there was an anomalous Radon increase in the brackish connate waters which fill the mud volcanoes (Martinelli, 1987, 1989) (Figs. 5 and 6), (Tab. 3).

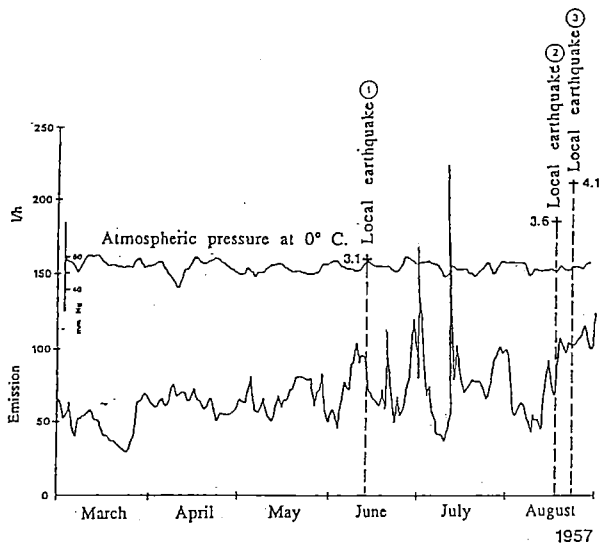


Figure 4. Total gas emission and meteorological records at the Regnano mud volcano (Caneva, 1958) compared with local earthquakes. The magnitude of local earthquakes collected in Table 2 are shown by the dotted lines.

Radon measurements were carried out in Nirano and Regnano mud volcanoes as reported in figs. 5 and 6. It should be remembered that analyses in the bubbling gases of the mud volcanoes revealed a Radon concentration 5-15 times higher than that observed in the liquid phase.

As in other well reported situations (i.e. deep ground salty waters with gases) the monitored natural system showed a satisfactory sensitevely to the imminence of earthquakes (Osika, 1979; Kissin, 1979). The substantial stability in temperature and in the chemical composition of the waters of mud volcanoes (Martinelli, 1989; Gorgoni et al., 1988) did not allow the sharp increase in Radon concentration registered some days before the seismic events to be explained completely (Table 3).

A reasonable hypothesis to explain such changes involved a Radon input due to the macroscopic bubbling of Radon rich gases in the liquid phase. In order to check the hypothesis, an experimental artificial system capable of simulating the physical and experimental conditions of a mud volcano was set up (fig. 7a).

The artificial system is composed of a 500 cc. bubbler bottle in which natural gases such as methane enter through an inlet pipe and escape through an outlet pipe after having bubbled in water or in another liquid by means of a porous septum. A well for methane extraction was chosen for the experiments, being known its depth (500 m) and the chemical composition of gases ( $\text{CH}_4$  56.6 %,  $\text{N}_2$  and rare gases 38.1 %, upper hydrocarbons 5.0 % - from Levi et al., 1938 - Radon 1280 pCi/litre). The flow rate of gases at the inlet pipe was 600 cc/sec. Fig. 7 shows the experimental apparatus (a) and the relation between the bubbling time (b) and the concentration of Radon detected in the liquids - distilled water and toluene - used.

The experimental values obtained confirm that each bubbling time could be compared to the natural exposure time of a fluid, which is

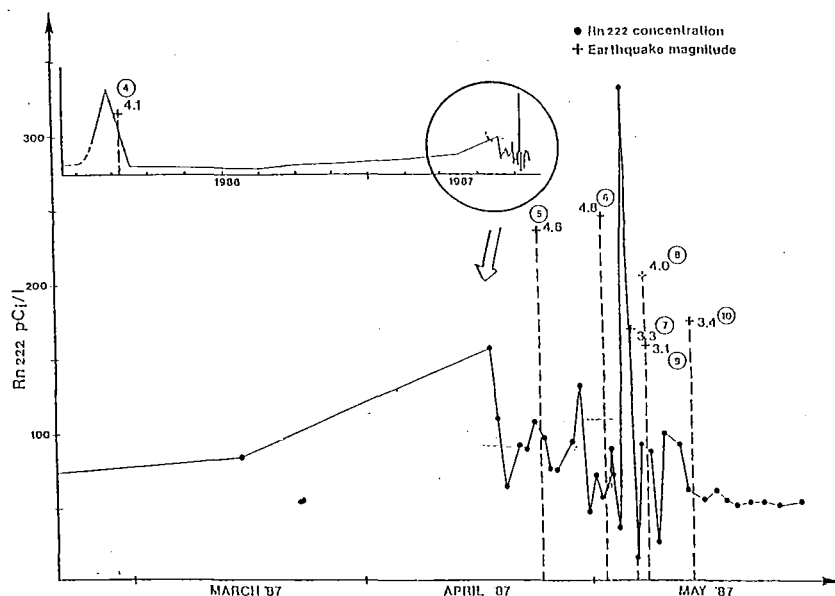


Figure 5. Radon-222 monitoring in water at Nirano mud volcano compared with local earthquakes (see Table 2) plus relevant magnitude.

generally water contained in a confined aquifer, to the effect of a sudden brief gas escape from the depth of the earth crust.

Therefore the high values correspond to artificially induced peaks relative to imminent earthquakes as observed in the waters which fill the cones of mud volcanoes.

So some earthquakes were preceded by anomalous mud volcano eruptions (fig. 5 and 6) because deep methane works as a carrier of Radon and the knowledge of the methane and related phenomena distribution has been demonstrated as important in the definition of a monitoring strategy.

The chemical and physical characteristics of Radon justify its utilization in monitoring tectonically active areas (Wakita et al., 1988). In particular Radon is continuously produced by Uranium series decay. The alpha particles produced by the natural radioactive decay of Radon become Helium nuclei so the gases naturally linked are often analyzed together (Bertrami et al., in press) in order to detect dynamic changes in subterrestrial fluids. Analysis of Helium in local methane gas wells has shown a Helium concentration ranging from 20 to 1500 ppm; the same values have

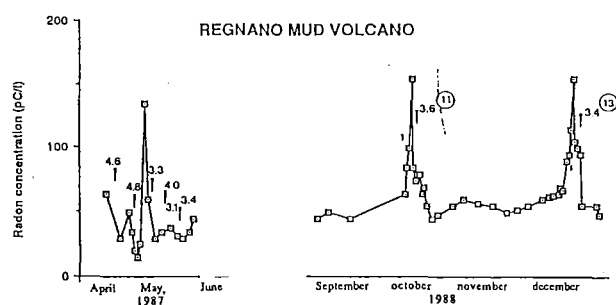


Figure 6. Radon -222 monitoring at Regano mud volcano compared with local earthquakes (see Table 2) plus relevant magnitude. The earthquakes from April to June 1987 are the same as in Fig. 5. The earthquake n. 13 preceded by a positive anomalous spike in water is the same one for which a negative spike-like anomaly was observed in Pujanello mud volcano gaseous emissions (see Fig. 9).

been observed in the bubbles of mud volcano gases.

Local geology, rock types, joints, fractures, hydrology, porosity, permeability and the presence of other long distance gas carriers influence the diffusion and transport of Radon 222. The rate of emanation not only depends on material type and crystalline structure but also varies in response to changes in physical forces such as fluid pore-pressure and stress. From this point of view the mud volcano, which is a deep confined fluid reservoir, behaves like a natural strain-meter

Table 3. Chemical composition of waters

Emergences	Cl	SO4	HCO <sub>3</sub>	Na	K	Ca	Mg	Total	SiO <sub>2</sub>	I	Br	Cl/Na	Ca/Mg
Ospitaletto (1)	7 350	0	970	4 800	11	105	101	13 300	11	24.7	37.7	0.99	0.63
Ospitaletto (2)	8 090	0	490	4 950	18	190	131	13 900	11	-	-	1.06	0.88
Regnano	8 020	53	1 880	5 500	21.5	220	84	15 800	30.5	40.5	58.8	0.95	1.51
Nirano	7 300	200	405	4 350	42	95	265	12 700	8	40.3	62.6	1.09	0.22
Cavone 2	13 100	1 006	1 255	10 100	145	310	96	26 000	18	-	-	0.85	1.94
Sea	18 980	2 649	140	10 560	380	400	1 272	-	-	-	-	1.17	0.19
Casaglia 2	38 720	1 105	305	23 080	1 254	1 794	255	69 600	70	traces	156	1.04	4.28

The first four localities are the sites of mud volcanoes, while the other two are the sites of petroleum performances. The composition of the sea water is also reported.

1970) capable of transmitting signals of physical and chemical nature to the surface. Some Radon transport models have been developed in hydrology or in geothermal engineering for different purposes. Related formulas have been set up (Andrews and Wood, 1972; Stoker and Krüger, 1975; D'Amore et al., 1978-79) and discussed by many authors

(Gorgoni et al., 1982; Kristiansson and Malmqvist, 1982; Henou, 1986). Among the proposed models the Stoker and Krüger (1975) formula is particularly suitable :

$$\frac{C}{E} = \frac{1}{\varphi} (1 - \exp[-\frac{\lambda \varphi \pi h}{Q} \cdot (re^2 - r_w^2)])$$

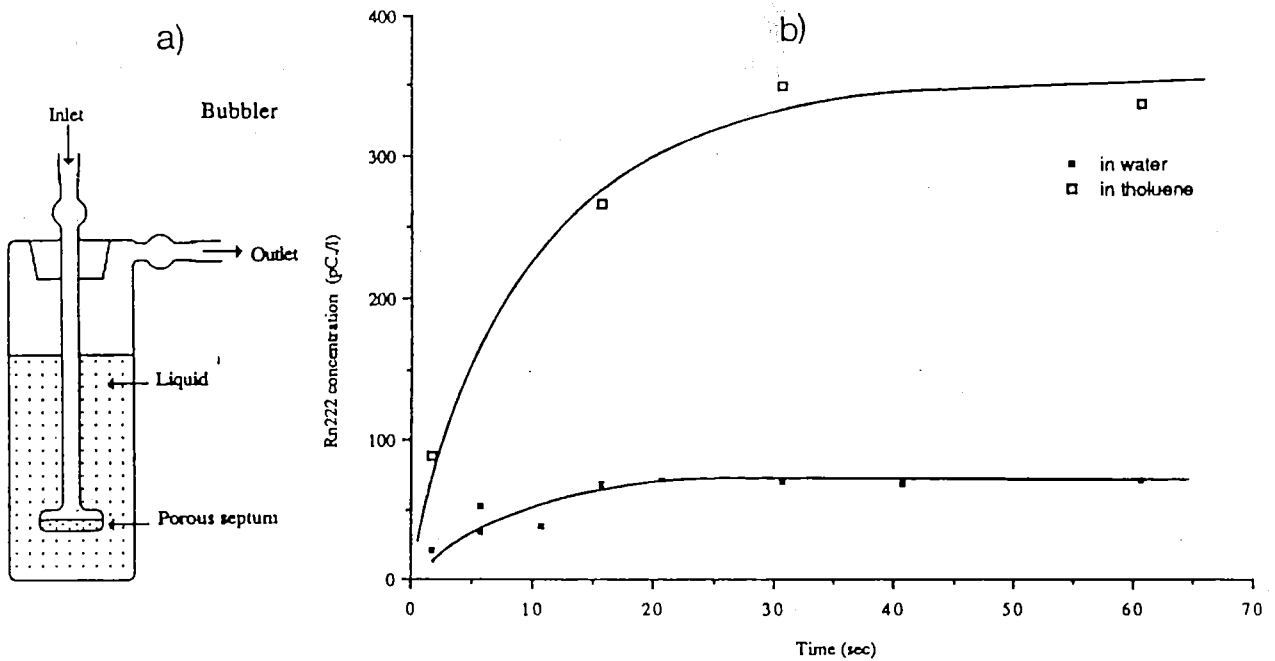


Figure 7 a) experimental apparatus and b) the relation between the bubbling time and the concentration of Radon detected in distilled water and toluene.

where  $C$  ( $\text{pCi}/\text{cm}^3$ ) is the activity ratio of Radon per cubic centimeter of fluid,  $E$  ( $\text{pCi}/\text{cm}^3$ ) is the Radon emanating from the rock, is the decay constant of Radon 222,  $r_w$  (cm) is the radius of the cylindrical fracture of height  $h$  (cm) within a rock of given porosity; finally  $r_c$  (cm) is the radius of the circular ring of rock from which Radon diffuses into fracture and  $Q$  ( $\text{cm}^3/\text{sec}$ ) is the flow rate.

That relation is also useful to systematize a large amount of analyses carried out in the studies connected to earthquake prediction. In particular, according to the work of Gasparini and Mantovani (1978) in which the application of the Stoker-Krüger equation to a duct of volcanic type is discussed, it results that the essential condition to detect Radon at large distances is a high gas carrier flow rate. In the mud volcanoes this condition is widely satisfied where the gas flow rate is 15-30 l/h corresponding to a velocity of about 150-300 m/day.

The flow is measured at the mud volcano's mouth in which the diameter of the duct can be estimated to be about 3 cm. This means that it can be calculated that 360-720 liters of gas per day go through the duct at a velocity of between 150 and 300 m/day. This velocity can, however, change along the duct and even differ considerably from the

calculated values as it also depends on the various duct sections that the gas passes through.

At that time the experimental station situated at Pujanello mud volcano had not these measurements which are provided by a continuous, automatic monitoring system of the flow, therefore this parameter was measured during a limited number of observations (Fig. 9). The result of these measurements was that, in general, the concentration plot is inversely proportional to that of the flow.

The best-fit of concentration with respect to the flow, applying the Stoker and Krüger relation to this data, was obtained for the following values;  $E = 0.1 \text{ pCi}/1$ ;  $h = 2500 \text{ cm}$ ;  $r_c = 1.75 \text{ cm}$ ;  $r_w = 1.5 \text{ cm}$ ;  $f = 0.1$ . The correlation coefficient found (0.8) is to be considered satisfactory for a preliminary description of the phenomena observed.

These considerations seem particularly reasonable in the light of the large amount of evidence concerning the physical and chemical variations observed in the fluids of hydrocarbon deposits or together with them connected in concomitance with dynamic artificial pressures (exploitation) or natural ones (earthquakes) (Wu, 1975; Arieh and Merzer, 1974).

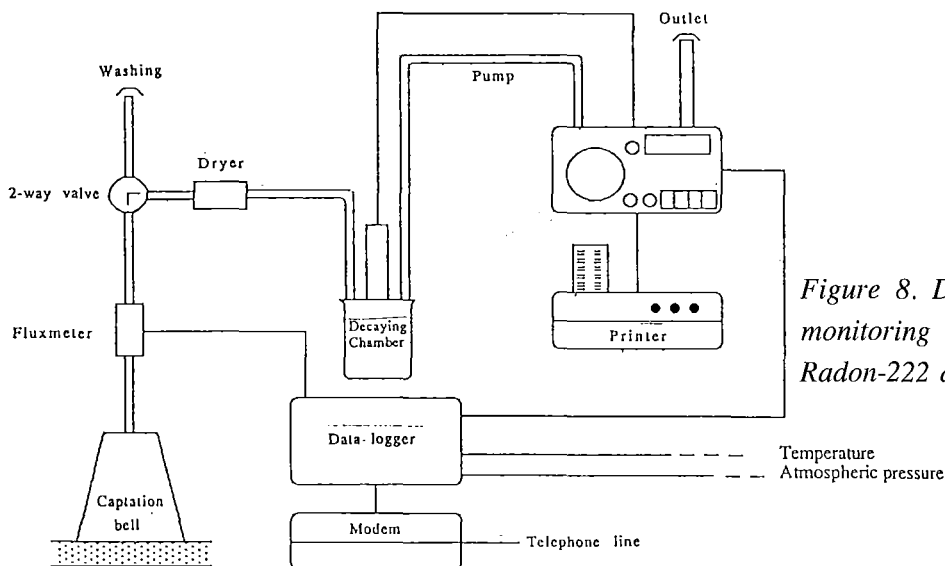


Figure 8. Diagram of the automatic monitoring station for continuous Radon-222 detection.

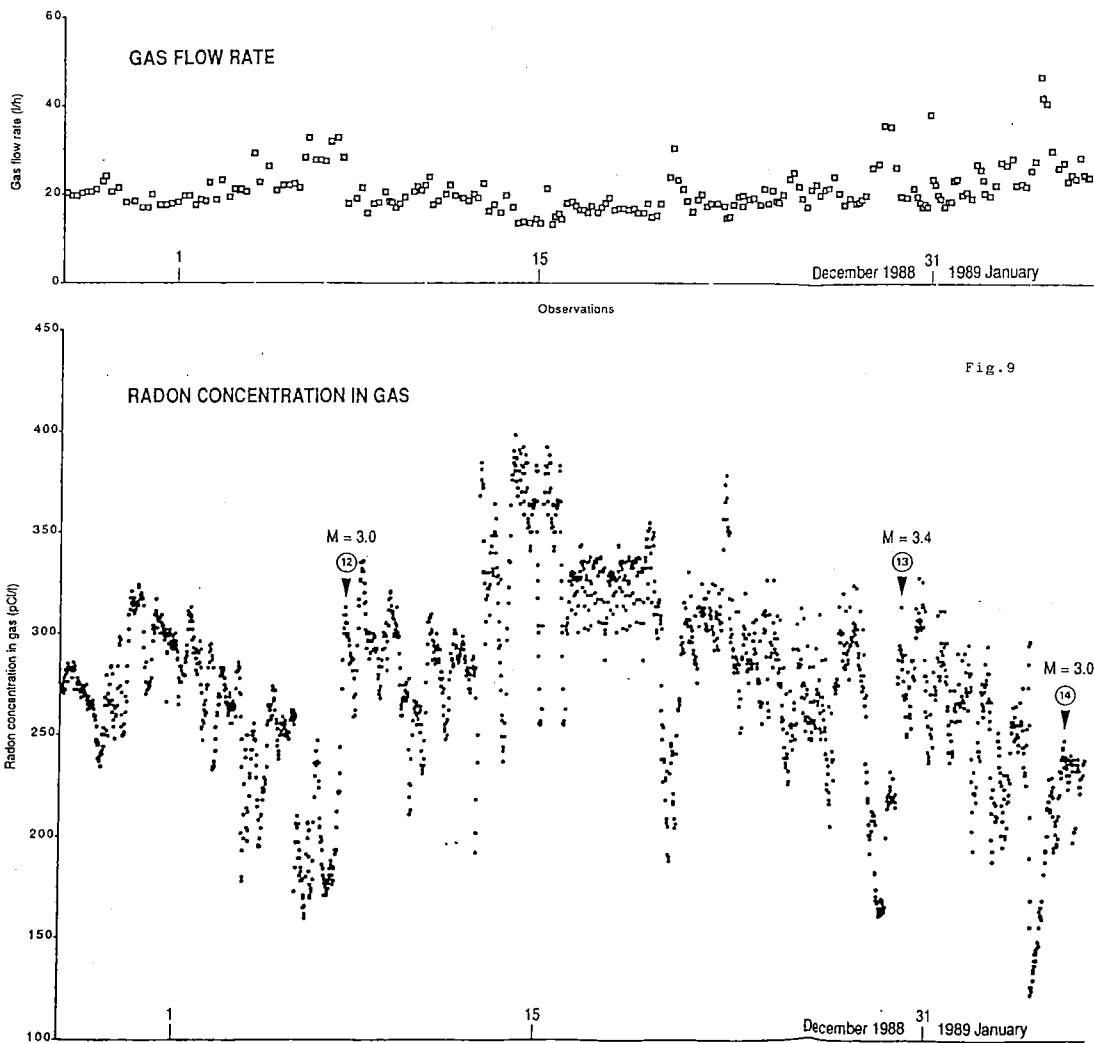


Figure 9.

The dots represent a typical record of the automatic monitoring system of Radon -222 in gases at Pujanello (n. 9 in Fig. 2) showing the behaviour of fluids before and after local earthquakes. Earthquake n. 13 is the same one for which a positive spike-like anomaly in Radon concentration in water at Regnano mud volcano was observed (Fig. 6). The squares represent non-automatic flow rate measurements. Even if the two measurement frequencies are different, it can be observed that the plot of the gas flow rate is in general inversely proportional to that of Radon 222 concentration.

## THE CONTINUOUS AUTOMATIC GEOCHEMICAL MONITORING SYSTEM

Since spring 1988 the Regione Emilia Romagna, A.G.I.P., S.G.A. and the Seismic Station of Parma University have been promoting a geochemical and geophysical survey (Northern Apennine Radon Prospection). The rapidity of the phenomena of Radon transfer from the gas phase to the liquid phase has suggested that only an automatic continuous monitoring system could be suitable

for research in earthquakes prediction experiments. The main aim was to test a complete apparatus for continuous automatic Radon 222 monitoring for seismic prediction purposes. Consequently over a year has been spent on checking technologies and methodologies in all the environmental conditions (i.e. temperature from -20 up to + 50) in order to have a totally reliable monitored system (Fig. 8). The artificial and natural noises such as local seismicity, which were monitored utilizing a local seismic station

(Geotech Teledyne Instruments), were detected in order to check the correlation between Radon 22 anomalies and seismic occurrences. Tests on the above results were performed to verify the state of equilibrium among radiogenerating elements present in liquid phases, gas phases and minerals in order to identify the true generator of anomalies before the earthquakes. In particular, the concentration of Uranium and the Ra-226 in muds and waters was measured by gamma-spectrometry.

The U concentration is low, being present between 1-2 ppm in muds, while in waters it is considered negligible (below instrumental sensitivity), and Ra-226 content ranges from 260 pCi/kg to 470 pCi/kg in muds and less than 20 pCi/kg in waters bubbling in the mud volcanoes. (Bassignani A., Finazzi P., Sartorio C., 1990).

Other local freshwaters show a Ra-226 concentration equal to or below 10pCi/kg, and therefore muds confirm their role of Radon 222 fixers, as seen in other similar natural conditions such as curative muds connected to "brines" or oil bearing salt-waters (Messini, 1950-51, pp. 1229, 1233, 1244, 1373).

It is useful to remember that a relatively high concentration of Ra-226 is present in the scales of the waters in oil wells (E&P Forum 1988; Bassignari et al., 1988). The measurements performed confirm that the gases that bubble in the water continuously acquire Radon yielded by the Radium enriched clay sediments. Similar mechanisms of Radon 222 enrichment have already been observed in previous researches on the natural behaviour of Radon (Zagin and Saskina, 1966; D'Amore et al., 1978-79). Taking into account the fact that the flow rate of liquid phase in mud volcanoes is 1-5 l/day, while that of the gases has been measured as 15-30 l/hour, it is possible to deduce that the anomalous values in waters and gases found in pre-earthquake phases are determined by the dynamics of the fluids present, which particular reference to the gas carrier; in this case

methane in a proportion of over 90 % (Mattavelli and Novelli, 1988). In the case studied it is therefore possible to advance the hypothesis that there are many Radon sources along the entire course of the duct but that of these, the most important one is logically the "local" one close to the surface as Radon of deep origin is much more subject to decay (Tidjani et al., 1990). On the other hand, it is confirmed on the basis of present knowledge (Mattavelli and Novelli, 1988) that carrier gases are of deep origin. The water present in the mud volcano ducts enables Radon (Fleischer, 1983, 1987) to be released from sediments rich in Radon 226, whereas the gas carrier is constantly enriched through bubbling with water or through direct contact with the sediments. Other slight geochemical anomalies can take place together with these processes in accordance with the mechanisms hypothesized by Gorgoni et al. (1988). The bubbling gases then easily yield Radon to the water until a virtually steady state is reached (Martinelli, 1989; Martinelli et al. 1989). This stationary state in concentration levels can practically only be disrupted by an increase in temperature (Rogers, 1958), by variations of pH (Bergamo et al., 1985) or by variations in the gaseous dynamics (having taken into account that the aqueous phase is little more than negligible). As already mentioned, significant temperature variations in the waters were not recorded that could modify the partition coefficient of Radon between the gaseous and aqueous phase as the emissions studied were of a cold nature and because the waters of deep origin constantly re-equilibrate their temperature during their slow ascent to the surface.

Similarly, variations in pH were not noted (Ferrari and Vianello, 1985). Therefore, the particular dynamics of gas, being more subject to sudden accelerations and decelerations, is more likely to be responsible for the variations that were observed. In general, the physical behaviour of gas with respect to that of liquids,



is responsible for the greater velocity with which they are ejected from the subsoil if compared with the aqueous phase. If the difference of the gas ejection velocity, with respect to the waters and mud, remains constant in time, a steady state is reached in which there is only a transfer of Radon between the gas carrier and the liquids involved. In this case, no anomalies are noted in the liquid phase or in the gaseous phase. On the other hand, if the relative difference of ejection velocity suddenly increases or decreases, it is possible to verify considerable anomalies in the concentration of Radon 222 both in the liquid phase (Martinelli, 1987; Gorgoni et al., 1988) and in the gaseous phase (Martinelli et al., 1989) in concomitance with seismic events (Martinelli G. and Ferrari G., 1990).

Other similar conditions have recently been verified in Bohemia during prospecting for geothermic research, (D'Amore, personal communication, 1989), in CO<sub>2</sub> type dominant carrier systems (D'Amore et al., 1989) and in some Austria thermal springs where N<sub>2</sub>CO<sub>2</sub> bubbling increased and Radon 222 anomalies take place before earthquakes (Friedmann, 1988-89; Friedmann, personal communication, 1990).

A technological approach based on a Pylon<sup>R</sup> (decaying chamber detector, fig. 8), which takes into account the real gas contribution has highlighted some particular features of precursor. In Fig. 9 the first experimental data collected at a rate of 48 measurements per day are shown; the relative graph concerns the period December 1988-January 1989 in which measurements were carried out continuously. In the same period some local seismic events (see Table 2 and Fig. 9) occurred and were preceded by big (1-2 days) variations in the concentration of Radon in gas, corresponding to a total gas flow rate variation between 15 and 30 l/h.

The independence of the series of Radon

concentration measurements from other external environmental factors such as atmospheric pressure, temperature, crustal tides ect. has been checked.

In spite of the lack of a real complete prevision model the data seem to confirm the dynamic role of the gas carrier, fitting in well with the described equation on fluid motion. We underline that the three local seismic events were preceded by a big drop in Radon concentration with respect to the mean observed value (270 pCi/l). After each observed anomalous lowering a sudden increase occurred before the earthquake according to the variations in the total gas emission.

In spite of the preliminary character of the instrumental installations and measurements, and considering the results above mentioned and those carried out by other authors (Martinelli, 1987; Gorgoni et al., 1988; Martinelli, 1989), the mud volcano Radon emission forerunner's role seems to be confirmed.

In the light of these experiences, we conclude that setting-up a network of automated stations within the framework of the Regional Environmental Informative System could be the best way of achieving the possibility of using deterministic earthquake prediction as an instrument in environmental political decision making.

## CONCLUSIONS

As stated above, the information about phenomena considered to be precursors of historical earthquakes was collected and analyzed using a multidisciplinary approach and, as a consequence, the regional character of some of these seismic precursors could be determined. In particular it was confirmed that gas carriers such as methane, CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> etc. have a definite role in the origin of anomalous concentrations of Radon gas in water springs and in natural gaseous emanations.

The sensitivity of mud volcanoes to impending seismic events seems to have been confirmed and this can be attributed to their functions as natural strain-meters (see also Bodvarsson G., 1970). These features suggest that further physical and chemical research should be carried out during other natural emergencies in order to verify whether sensitivity to seismic events is essentially due to the characteristics of deep natural confined fluids (see also Albarello et al., 1990). The experimental work confirms that it is necessary to realise automatic and continuous systems to monitor the fluids present in tectonically active zones and reservoirs (with particular reference to the hydrocarbon and geothermic systems) which are the main examples of natural deep accumulations of confined fluids. The multidisciplinary approach has thus made it possible to observe anomalies in the concentration of Radon in the fluids emitted by the mud volcanoes under study, prior to the occurrence of local seismic events. The results obtained encourage a cautious optimism as far as future developments are concerned, bearing in mind that these should involve monitoring and the study of other physical and chemical parameters in order to be able to guarantee a sufficient standard of deterministic reliability.

#### ACKNOWLEDGMENTS

Acknowledgments are due to AGIP SpA, with special reference to the RADI, GEDA and GEOPH services for their great help during the phase of the engineering, for their analytical support and for their suggestions during the interpreting phase. Acknowledgements are due to the University of Parma with special reference to Prof. G. Zanella, Director of the Seismic Station. We would also like to thank Prof. Salvatore Lombardi, University of Rome, for Helium analysis facilities.

#### REFERENCES

- ALBARELLO, D., FERRARI, G., MARTINELLI, G. and MUCCIARELLI, M.**, 1990. Reliability of well-water variation as a seismic precursor : an assessment from Italian historical data. *Tectonophysics*.
- AMBRASEYS, N.N. and MELVILLE, C.P.**, 1982. A history of Persian earthquakes. Cambridge University Press, Cambridge, 219 pp.
- ANDREWS, J.N. and WOOD, D.F.**, 1972. Mechanism of radon release in rock matrices and entry in ground waters. *Trans. Int. Min. Metall.*, 81 : B197-B209.
- ARIEH, E. and MERZER, A.M.**, 1974. Fluctuations in oil before and after earthquakes. *Nature*, 247 : 534-535.
- BATH, M. and DUDA, S.J.**, 1964. Earthquake volume, fault plane area, seismic energy, strain, deformation and related quantities. *Ann. Geof.*, 17 : 353-368.
- BASSIGNANI, A., FINAZZI, P.B., FRACCHETTA, V. and SARTORIO, C.**, 1988. Misure di radioattività sugli "scale" nel settore SESI. Istituto Radioprotezione AGIP RADI, Milano, pp. 1-14.
- BASSIGNARI, A., FINAZZI, P., SARTORIO, C.**, 1990. Indagine sui contenuti di Radon 222 nei gas emessi dalle "salse" appenniniche nella località di Regnano (R.E.). Istituto Radioprotezione AGIP RADI, Milano, internal report.
- BERGAMO, R., GASPARINI, P. and VELTRI, C.**, 1985. Studies on Radon anomalies related to earthquakes. In : *Proceedings of the International Conference on Geochemical Earthquake Prediction*. Palermo.
- BERTRAMI, R., BUONASORTE, G., CECCARELLI A., PIERI, S., SCANDIFFIO G. and LOMBAEDI S.**, in press. Soil gases in geothermal prospecting : two case histories (Sabatini Volcanoes and Alban Hills, Latium,

Central Italy). *J. Geophys. Res.*

**BOCCALETTI, M., COLI, M., EVA, C., FERRARI, G., GIGLIA, G., LAZZAROTTO, A., MERLANTI, F., NICOLICH, R., PAPANI, G. and POSTIPISCHL, D.**, 1985. Considerations on the seismotectonics of the northern Apennines. *Tectonophysics*, 117 : 7-38.

**BODVARSSON, G.**, 1970. Confined fluid as strain-meters. *J. Geophys. Res.*, 75 : 2711-2718.

**CANEVA, A.**, 1958. Ricerche geofisiche sulla Salsa di Regnano (Prov. di Regione Emilia). *Geof. e meteor.*, 6 : 71-84.

**CASTELLARIN, A., EVA, C., GIGLIA, G., VAI, G.B., RABBI, E., PINI, G.A. and CRESTANA G.**, 1985. Analisi strutturale del fronte appenninico padano. *Giornale di Geologia*, 47 : 47-76.

**D'AMORE, F., SABROUX, J.C. and ZETTWOOG, P.**, 1978-79. Determination of characteristic of steam reservoirs by Radon - 222 measurements in geothermal fluids. *Pure Appl. Geophys.*, 117 : 253-261.

**D'AMORE, F., FANCELLI, R., NUTI, S., MICHARD, G. and PACES, T.**, 1989. Origin of gases in Variscan massifs of Europe, water-rock interaction. Sixth Int. Symp., Malvern (U.K.) : 177-180.

**DE BUOI, I.**, 1937. Su di alcuni fenomeni eruttivi osservati nelle Salse di Narano Modenese e considerazioni ed ipotesi sul meccanismo eruttivo delle salse emiliane. Reggio Emilia.

**DI PIETRO, P.** (Editor), 1985. Lazzaro Spallanzani : Viaggi nell'Appennino modenese e reggiano. Boni, Bologna, 266 pp. E&P Forum, 1988. Low specific activity radio-active scale origin, treatment and disposal. The oil industry international exploration and production forum. Report n.6.6, 43 pp.

**EMSC**, 1987. European Mediterranean Seismological Centre. Monthly seismic Bulletin. April-May-June 1987.

**EMSC**, 1988. European Mediterranean Seismological Centre. Monthly seismic Bulletin. November and December 1988.

**EMSC**, 1989. European Mediterranean Seismological Centre. Monthly seismic Bulletin. January 1989.

**FERRARI, G. and MARTINELLI, G.**, 1988. Historical earthquakes and premonitory related phenomena : data base as a strategy to geophysical and geochemical monitoring of a seismic area, EGS XIII General Assembly, Bologna 21-25 march 1988. Abstract in *Annales Geophysicae* (1988) special issue : 33-34.

**FERRARI, C. and VIANELLO, G.**, 1985. Le salse dell'Emilia Romagna. Regione Emilia-Romagna, Bologna, 151 pp.

**FLEISCHER, R.L.**, 1983. Theory of alpha recoil effects on Radon release and isotopic disequilibrium. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 47 : 779-784.

**FLEISCHER, R.L.**, 1987. Moisture and 222 Rn emanation. *Health Physics*, 52 : 797-799.

**FRIEDMANN, H.**, 1988-89. Untersuchung über die Ursachen von Radonkonzentrationschwankungen in Quellwassern unter besonderer Berücksichtigung in Quellwassern unter besonderer Berücksichtigung der Seismizität. *Sitzungsber. Ost. Akad. Wiss. Math.-natur. Kl. Abt. I. I.*, 197. Bd. 5 bis 10 Heft.

**GASPARINI, C., MARGOTTINI, C., MELONI, F. and SERAFINI, S.**, 1987. I terremoti padani del 24 aprile 1987 e del 2 maggio 1987. Communication presented at the 6 th annual meeting of GNGTS, Rome, December 14-16, 1987 (abstract).

**GASPARINI, P. and MANTOVANI, M.S.**, 1978. Radon anomalies and volcanic eruptions. *J. Volcanol. Geothermal Res.*, 3 : 325-341.

**GINSBURG, G.D., GRAMBERG, I.S., GULIYEV, I.S., GUSEYNOV, R.A., DADASHEV, A.A., IVANOV, V.L., KROTOV, A.G., MURDOV, Ch.S.,**

- SOLOV'YEG, V.A. and TELEPNEV, Ye. V.** 1988. Gas-hydrate accumulations of submarine mud-volcano type. Transactions of USSR Academy of Sciences, 300, May-June.
- GORGONI, C., MARTINELLI, G. and SIGHINOLFI, G.P.**, 1982. Radon distribution in groundwater of the Po sedimentary Basin (Italy). Chemical Geology, 35 : 297-309.
- GORGONI, C., BONORI, O., LOMBARDI, S., MARTINELLI, G. and SIGHINOLFI, G.P.**, 1988. Radon and helium anomalies in mud volcanoes from Northern Apennines - a tool for earthquake prediction. Geoch. J., 22 : 265-273.
- GUIDOBONI, E.** (Editor), 1989. I terremoti prima del Mille in Italia e nell'area mediterranea. Storia, archeologia, sismologia. SGA-Istituto Nazionale di Geofisica, Bologna, 768 pp.
- GUIDOBONI, E. and FERRARI, G.**, 1989. The inexact catalogue : the study of more than 1700 earthquakes from the XI to the XX century in Italy. Terra Nova, 1 : 151-162.
- HENOU, B.**, 1986. Dosage du radon dans les gaz du sol. Application à la recherche d'eau en milieu fissuré, étude bibliographique. BRGM; Orléans, 54 pp.
- HIGGINS, G.E. and SAUNDERS, J.B.**, 1974. Mud volcanoes - Their nature and origin. In : Contributions to the geology and paleobiology of the Caribbean and adjacent areas. Vehr. Naturf. Ges. Basel, 84 : 101-152.
- ING, 1987.** Istituto Nazionale di Geofisica, Bollettino macrosismico (1986), Roma.
- Kissin, I.G.**, 1979. Current hydrogeological and geochemical research problems in earthquake prediction. Geoch. Int., 16 : 14-18.
- KREDELEV, F.P., FLESHLER, V.I. CHEREDNICHENKO, V.P. and SHAMSUTDINOV, V.Kh.**, 1988. Heavy hydrocarbons in salses (mud volcanoes) of the tory basin, eastern Transbaikal. Transactions of the USSR Academy of Sciences, Earth Sciences Section, 300 : 910-913.
- KRISTIANSSON, K. and MALMQVIST, L.**, 1982. Evidence for nondiffusive transport of Rn 222 in the ground and a new physical model for the transport. Geophysics, 47 : 1444-1450.
- LEVI, M.G., PADOVANI, C. and BUSI, M.**, 1938. Studi e ricerche sui gas naturali italiani. Annali di chimica applicata, 21.
- MARTINELLI, G.**, 1987. Geochemica dei precursori sismici con particolare riferimento al Radon : esperienze della Regione Emilia-Romagna. In : Atti del 6° Convegno. Rome, December 14-16, 1987. CNR, GNGTS, Rome, vol. I, pp. 63-71.
- MARTINELLI, G.**, 1989. Geochemistry and fluid dynamics of subterrestrial precursory gases. In : Earthquake prediction. International School of Solid Earth Geophysics. "Ettore Majorana Centre for Scientific Culture", Erice Italy, July 16-23, 1989, in press.
- MARTINELLI, G., BASSIGNARI, A., FERRARI, G. and FINAZZI, P.B.**, 1989. Predicting earthquakes in Northern Apennines : recent developments in monitoring of Radon 222. In : Proceedings of the 4 th International Symposium on The Analysis of Seismicity and Seismic Risk, Bechyne Castle, Czechoslovakia, September 4-9, 1989, in press.
- MARTINELLI, G., FERRARI, G.**, 1990. Earthquake forerunners in a selected area of Northern Italy : recent developments in automatic geochemical monitoring. Pubblicato su "Tectonophysics", 1990.
- MATTAVELLI, L. and NOVELLI, L.**, 1988. Geochemistry and habitat of natural gases in Italy. In : L. Mattavelli and L. Novelli (Editors), Advances in Organic Geochemistry (1987), part I.A.G.I.P., Pergamon Press, Oxford, pp. 1-13.
- MEI SHIRONG**, 1987. Regionalism of earthquake precursors. Earthquake research in China, 1 : 171-179.
- MESSINI, M.** (Editor), 1950-51. Trattato di idroclimatologia clinica. CNR, Bologna, 2192

- pp.
- OSIKA, D.G.**, 1979. Geochemical and hydrogeological methods of forecasting location, magnitude and time of shallow earthquakes. *Geoch. Int.*, 16 : 27-36.
- PANTANELLI, D. and SANTI, V.**, 1895. *L'Appennino modenese*.
- ROCCA S. CASCIANO**, 1167 pp.
- PELLEGRINI, M., BRAZZOROTTO, C., FORTI, P., FRANCAVILLA, F. and RABBI, E.**, 1982. Idrogeologia del margine pedeappenninico emiliano romagnolo. In : G. Cremonini and F. Ricci Lucchi (Editors), *Guida alla geologia del margine appenninico-padano*. Bologna, pp. 183-189.
- PLINY**. *Naturalis Historia*. Edited by G.B. Conte, Vol. 1. Einaudi, Torino, 1982, 847 pp.
- POSTPISCHL, D** (Editor), 1985. *Catalogo dei terremoti italiani dall'anno 1000 al 1980*, CNR-PFG, Rome, 239 pp.
- ROELOFFS, E.A.**, 1988. Hydrologic precursors to earthquakes : a review. *Pure Appl. Geophys.*, 126 : 177-209.
- ROGERS, A., S.**, 1958. Physical behaviour and geological control of radon in mountain streams. *U.S. Geol. Surv. Bull.*, 1952E : 187-211.
- SCICLI, A.**, 1972. *L'attività estrattiva e le risorse minerarie della Regione Emilia-Romagna*. Artioli, Modena, 626 pp.
- SNJUKOV, E.F., SOBOLEVSKIJ, J.V., GRATEKO, G.I., NAUMENKO, G.I. and KUTNIJI, A.**, 1986. *Grazeviie vulcanii*. Kerkensko tananskoi oblasti. Atlas. Kiev, 152 pp. (in russian).
- SPALLANZANI, L.**, 1795. *Viaggi alle Due Sicilie e in alcune parti dell'Appennino*. Pavia.
- STOKER, A. and KRR, P.**, 1975. *Radon measurements in geothermal systems*. Stanford University Press, Stanford California, Res. SGPTA.
- STOPPANI, A.**, 1908. *Il Bel Paese*. Reprint of the 1874 edition, edited by A. Malladra. Cogliati, Milano, 1102 pp.
- TIDJANI, A., MONNIN, M. and SEIDEL, J-L.**, 1990. Enhancement of Radon signals in geophysical studies with the track technique. *Pure Appl. Geophys.*, 132 : 495-504.
- TREVES, B.**, 1985. Mud volcanoes and shale diapires. Their implications in accretionary processes. A review. *Arch. Nat. Ateneo Parmense*, 21 : 31-37.
- VOGT, J.**, 1979. *Les tremblements de terre en France*, BRGM, Paris.
- WAKITA, H., NAKAMURA, Y. and SANO, Y.**, 1988. Short-term and intermediate-term geochemical precursors. *Pure Appl. Geophys.*, 126 : 267-278.
- WU, F.T.**, 1975. Gas well pressure fluctuation and earthquakes. *Nature*, 257 : 661-663.
- ZAGIN, B.P. and SASKINA, N.N.**, 1966. Transfert du radon dans la chambre d'émanation à l'aide du gaz carbonique. *Radiochimie*, 8, unabridged translation of *Radiokhimiya* : 125-127.

## RADON IN GROUNDWATER : A CONTRIBUTION TO THE JOINT GERMAN - TURKISH EARTHQUAKE PREDICTION RESEARCH PROJET

PEKDEGER A (2) and WOITH H (1)

(1) Institut für Geophysik

Christian-Albrechts-Universität, D-2300 Kiel, Germany

(2) Institut für Geologie, Geophysik und Geoinformatik

Freie Universität Berlin, D - 1000 Berlin 33, Germany

### ABSTRACT

*The temporal and spatial variations of Radon emission in groundwater in a selected area at the western part of the North Anatolian Fault Zone are investigated. This study is carried out in the framework of the German-Turkish Projet on Earthquake Prediction Research, aimed at demonstrating the ability for detecting precursors to earthquakes. Since 1987 intensive mapping of Radon emanation in groundwater was carried out and supplemented by hydrochemical studies. Discrete water samples were taken from more than 570 springs and wells. Repeated measurements were carried out semiannually at about 100 sites.*

*Temporal variations of Radon emanation in groundwater are correlated with groundwater discharge with maximum values in spring. The spatial distribution of Radon in groundwater is roughly related to the radioelement content of the geological formations, but nevertheless shows significant variations within a formation. The highest Radon concentrations are found in spring waters from granitic aquifers and low concentrations are related to limestone, marble, amphibolithe and greenstone. Springs with the highest Rn-222 contents (standardized with respect to the aquifer geology) follow the East-West striking fault system. Contrary to the majority of springs showing annual variations, 18 springs out of 99 are characterized by a continuous Rn-222 increase from autumn 1987 until autumn 1989. These springs are located in the western part of the investigation area marking the main fault for about 20 km but then striking to South-West following a formerly active branch of the North Anatolian Fault Zone possibly indicating its re-activation.*

### RESUME

*Cette recherche étudie les variations spatiales et temporelles des émanations de Radon dans les eaux souterraines d'une zone particulière de la région occidentale de la faille Nord anatolienne. Cette étude est intégrée dans le programme germano-turc pour la prévision des tremblements de terre dont le but est d'en rechercher des phénomènes de précurseurs. Depuis 1987, un carthographie détaillée d'émanation de Radon dans les eaux souterraines a été effectuée et est associée à des recherches en hydrochimie.*

*Des mesures ont été effectuées dans 570 sources et puits; elles ont été répétées tous les 6 mois dans environ 100 sites. La corrélation des variations des émissions de Radon avec la décharge des eaux souterraines présente un maximum au printemps.*

*La distribution spatiale des émissions de Radon dans les eaux souterraines est approximativement liée à la teneur des éléments radioactifs des formations géologiques; néanmoins elle présente des variations significatives dans une même formation. Les plus hautes concentrations de Radon sont observées au printemps dans les aquifères granitiques tandis que les plus faibles concentrations sont associées aux eaux transitant par des couches formées de calcaires, de marbre, d'amphibolite et de basalte.*

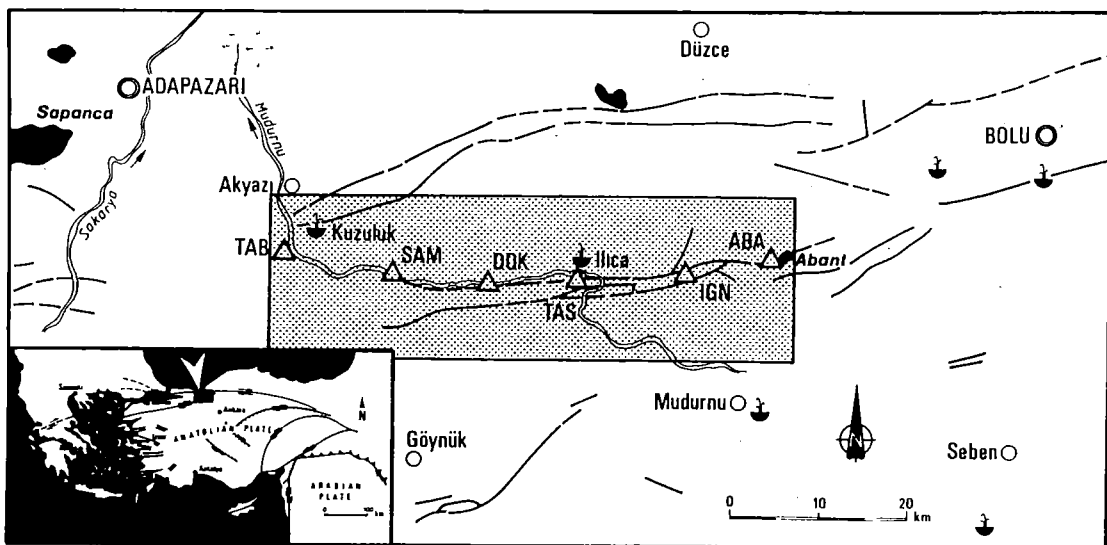
*Les sources dont la teneur en Rn -222 est la plus importante (après application de la correction de nature géologique) suivent les plissements selon la direction E-W. Contrairement à la majorité des sources présentant des variations annuelles, 18 des 99 sources sont caractérisées par un*

*accroissement continu du Rn -222, de l'automne 1987 à l'automne 1989. Ces sources sont localisées dans la partie occidentale de la zone étudiée, dans la région centrale des plissements. Après 20 km la direction des sources riches s'oriente vers celle d'une ancienne branche active de la faille Nord anatolienne; ceci pourrait indiquer une réactivation de cette branche.*

## INTRODUCTION

A central problem in earthquake prediction research is the identification of significant anomalies in a time series as a precursory phenomenon. Abnormal behavior of one single parameter is almost meaningless. For this reason many physical and chemical parameters related to earthquake mechanisms should be recorded simultaneously in the same area of investigation. This philosophy is being implemented in the German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research at the western part of the North Anatolian Fault Zone (ERGÜNAY & ZSCHAU, 1989). Geophysical, seismological data are gathered more or less continuously and an attempt is made to

interpret them in a sinoptical approach (ZSCHAU, 1989). Among these parameters the emissions of radon in soil gas and in groundwater are measured. It is frequently considered to exhibit significant anomalies prior to earthquakes (see an evaluation of worldwide data by HAUKSSON, 1981). However, meteorological as well as hydrological influences seem to be extremely strong and may mask the tectonic signal completely. Neither the tectonic mechanisms nor the meteorological and/or hydrological mechanisms which influence the natural Radon emission are well understood. In this paper we present the outlines and first results of a detailed study on temporal and spatial variations of Radon concentrations in



*Figure 1. The investigation area of the joint German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research is a 60 km long segment of the North Anatolian Fault Zone about 150 km east of Istanbul/Turkey. Triangles show the position of 6 multiparameter observatories. More than 570 spring waters were investigated within the shaded area.*

groundwater along a selected branch of the North Anatolian Fault Zone. Radon in soil gas is discussed in a separated paper in this volume (WOITH & PEKDEGER, 1991). The study aims at a qualitatively and quantitatively better understanding of the relevant mechanisms with the final goal of evaluating the potential of the Radon method for earthquake prediction within the above mentioned synoptical approach.

The investigation area of the German-Turkish Earthquake Research Project is a 60 km long segment of the North Anatolian Fault Zone located about 150 km East of Istanbul. Tectonically it is characterized by a set of complicated fault systems differing in age and strike directions. Recently, right-lateral strike-slip movements are active which is documented by two destructive earthquakes in 1957 (M 7.1 with its epicenter near station ABA in fig. 1) and 1967 (M 7.2., near DOK). The geological setting is complex, but in general a sedimentary block (limestones, flysch) in the South can be separated by a so-called main

fault from metamorphic rocks (shists, phyllite, gneiss) in the North. Granitic intrusions accompany the East-West striking main fault, whereas volcanic material (andesitic) is restricted to the North-Western end of the investigated area.

## EXPERIMENTAL PROCEDURE

In an area of approximately 20 X 60 km (shaded area in fig. 1), water samples were collected from more than 570 springs and shallow wells, out of which 99 (233) are investigated semiannually since autumn 1987 (1988). Radon measurements at discrete water samples taken from these springs are performed directly in the field. The time interval between sampling and the beginning of the measurement is normally less than 1 minute. A bubbler is used to extract the Radon dissolved in 1 liter of water sample. The measuring procedure can be outlined as follows : After the background counts of the scintillation

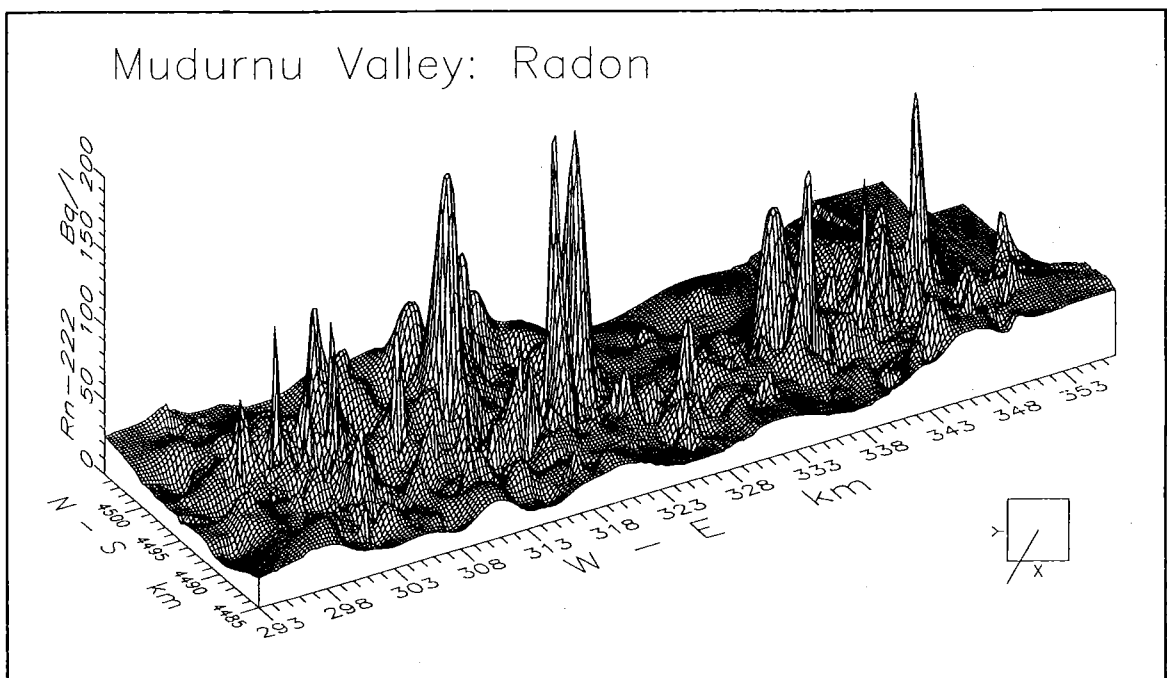


Figure 2. Spatial distribution of Rn-222 contents in groundwater within an area of about 20 x 60 km based on discrete measurements at 572 springs and shallow wells.



chamber have been determined, atmospheric air is pumped in a closed system through the water sample passing a fine fritted glass filter. The radon content of the circulating gas-air mixture is detected by a scintillation counter ( $ZnS(Ag)$ ) in 1 minute intervals. The pumping is stopped after 10 minutes, but the counting is continued for the following 3 minutes. Thus Radon concentrations in cpm (counts per minute) are obtained by subtracting the background counts from the mean value of the last 3 minutes. Directly after the measurement, the scintillation chamber is replaced in order to minimize errors due to pollution by alpha-producing gaugther isotopes in the following measurements. About 75 % of the Radon dissolved in the water sample is extracted by this procedure. The accuracy of the detector system is about 10 %. For the absolute calibration of the system a Ra-226 standard solution is used.

## RESULTS AND DISCUSSION

The spatial distribution of the Rn-222 content in groundwater within the investigation area is shown in fig. 2. This map is based on discrete measurements at 572 springs and shallow wells. For repeated measurement sites the mean values were calculated. Fig. 3 shows the corresponding frequency distribution. It indicates that Rn-222 is nearly log-normally distributed with a median of 18 Bq/l, a mean value of 24 Bq/l and a standard deviation ( $1 \sigma$ ) of 27 Bq/l. The maximum concentration is 259 Bq/l. Only 20 springs occur with Rn-222 concentrations higher than 79 Bq/l ( $> 2 \sigma$ ). They are lined up along the East-West striking fault system.

The spatial Radon distribution is expected to reflect the uranium/radium content of rocks encompassing the groundwater system to some extent. For discussions about the often observed disequilibrium between Ra-226 and Rn-222 see BARRETTO (1975), who gives

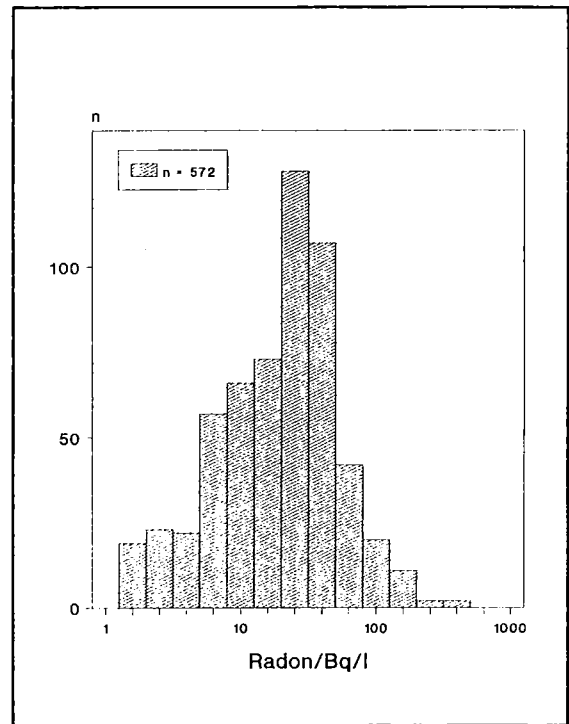


Figure 3. Absolute frequency distribution of Rn-222 content in groundwater including 572 sites.

examples of emanating power coefficients for different rocks and minerals. The data set (here  $n = 554$ ) was analyzed accordingly and a relation between Radon content and rock type was found (fig. 4). Plotted are the mean Rn-222 concentrations ( $\pm 1 \sigma$ ) calculated for different geological formations as well as the number of springs located within each formation. The highest concentrations are associated with granitic rocks. Limestones, marble, amphibolite and greenstones are characterized by low Rn-222 contents. In the next step the data set was standardized by subtracting the mean value of a geological formation from the observed values at springs located within this formation. This yields a Gaussian distribution around the mean of 0 with a minimum of -68 Bq/l, a maximum of 228 Bq/l and a standard deviation of 25 Bq/l.

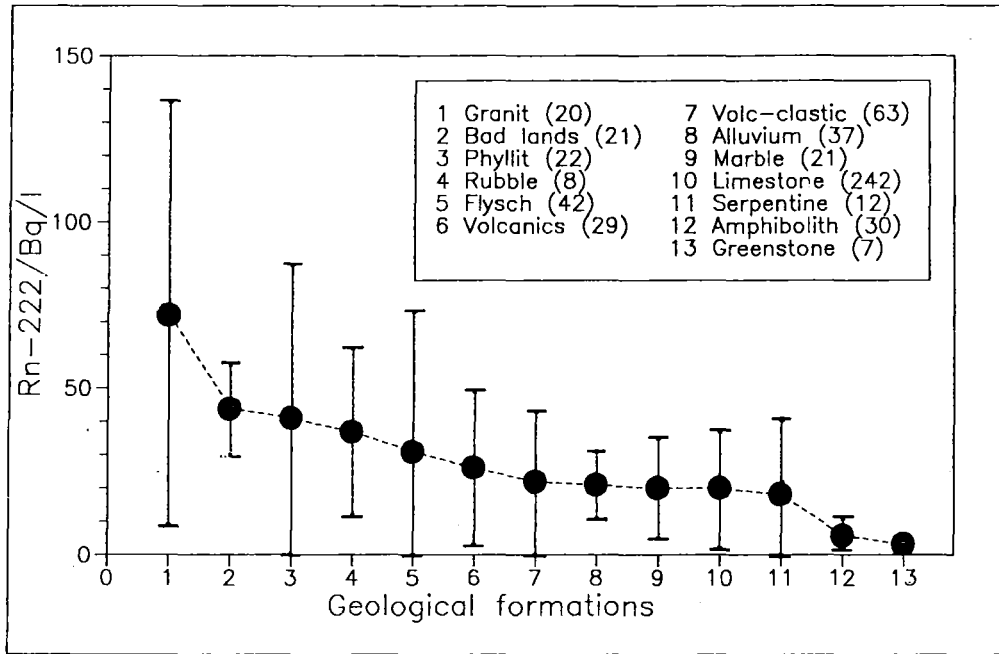


Figure 4. Relationship between mean Rn-222 content and geology. Shown are mean values and standard deviations (+/- 1  $\sigma$ ) for different geological formations as well as the number of observations within each formation.

Only 2 springs have Radon contents below -50 Bq/l (<2  $\sigma$ ), but 19 springs show a relative Rn-222 concentration higher than 50 Bq/l (>2  $\sigma$ ). All of them belong to the group of 20 springs with the highest absolute concentrations

mentioned above. They are again closely related to the east-west striking fault system (fig. 5).

In spite of the overall correlation between

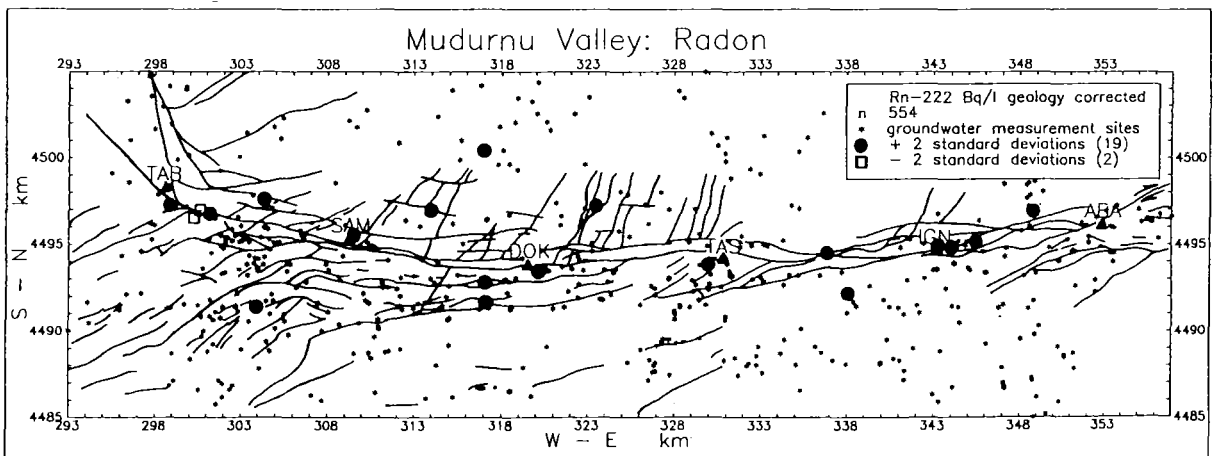


Figure 5. Spatial distribution of springs with exceptionally high (> 2  $\sigma$ ) and low (< 2  $\sigma$ ) Radon activities after a standardization with respect to the geology of the aquifer.

Table 1.

Seasonal changes of Radon content, discharge, conductivity, and groundwater temperature at 44 springs.

		Rn-222 [Bq/l]	discharge Q[l/min]	conductivity [ $\mu$ S/cm]	temperature [ $^{\circ}$ C]
1987 autumn	min	3	0,26	38	6.5
	max	213	300.00	945	21.8
	mean	44	18.41	510	13.4
	$\sigma$	50	45.59	157	2.9
1988 spring	min	2	0.80	35	6.0
	max	347	600.00	922	18.3
	mean	57	27.91	515	12.0
	$\sigma$	68	88.43	160	2.4
1988 autumn	min	4	0.30	38	6.7
	max	296	240.00	933	15.9
	mean	50	16.64	509	12.3
	$\sigma$	59	37.07	162	2.0
1989 spring	min	2	0.80	36	6.2
	max	304	600.00	972	16.7
	mean	56	27.22	527	11.5
	$\sigma$	69	88.73	164	2.1
1989 autumn	min	2	0.20	37	7.3
	max	265	120.00	976	18.1
	mean	45	10.46	528	13.6
	$\sigma$	53	19.16	163	2.4

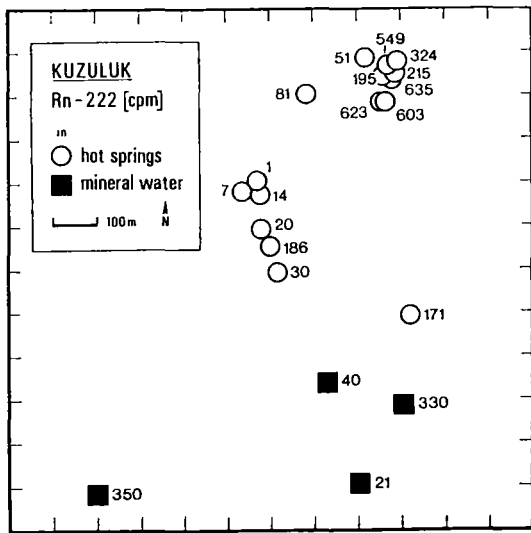


Figure 6. Radon concentrations in mineral and hot water springs in the area of Kuzuluk.

Radon emission and geology, the situation becomes very complex for local lateral variations in Radon content. Fig. 6. shows the distribution of mineral and hot springs and their Radon concentrations in the Kuzuluk area. Here, high spatial variations occur within a few meters. Similar observations were also made at cold springs. The differences can be up to a factor of 5 within 30 m lateral distance. The analysis of water samples taken from such closely neighboured springs showed no significant differences in the chemical composition of both groundwaters. Also Ra-226 contents are very similar within each cluster of springs.

At 99 springs repeated measurements were carried out a least twice a year since autumn 1987, since autumn 1988 the number of repeated measurement sites is 233. Seasonal changes were observed with high Rn-222 concentrations in spring and low values in autumn (table 1) suggesting a positive correlation with the discharge of spring water (fig. 7). Assuming a relation between discharge of a spring and groundwater flow velocity

within the aquifer, the Radon content measured at the ground surface is influenced by convective transport with groundwater as the gas carrier.

Although the majority of springs show seasonal changes in Radon content, there are a few exceptions : 5 springs are characterized by decreasing Rn-222 concentrations and - wat might be more interesting - 18 springs show a Rn-222 increase from autumn 1987 until autumn 1989. Note, that none of them belongs to the group of springs with extremely high Radon concentrations. The location of these springs is shown in Fig. 8. All of them are located in the western part of the investigated area, marking the so-called main fault from TAS to SAM. West of SAM they follow an old fault system striking south-west. Assuming a relationship between fault (re)activation and Radon increase in groundwater, the shown pattern possibly indicates a re-activation of the southern branch in the complicated fault system.

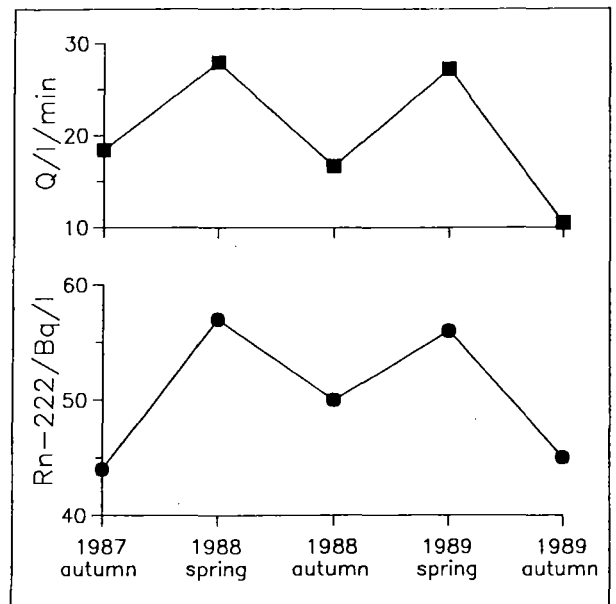


Figure 7. Seasonal variations of Rn-222 content and spring discharge. Plotted are then mean values of 44 repeated measurements sites.

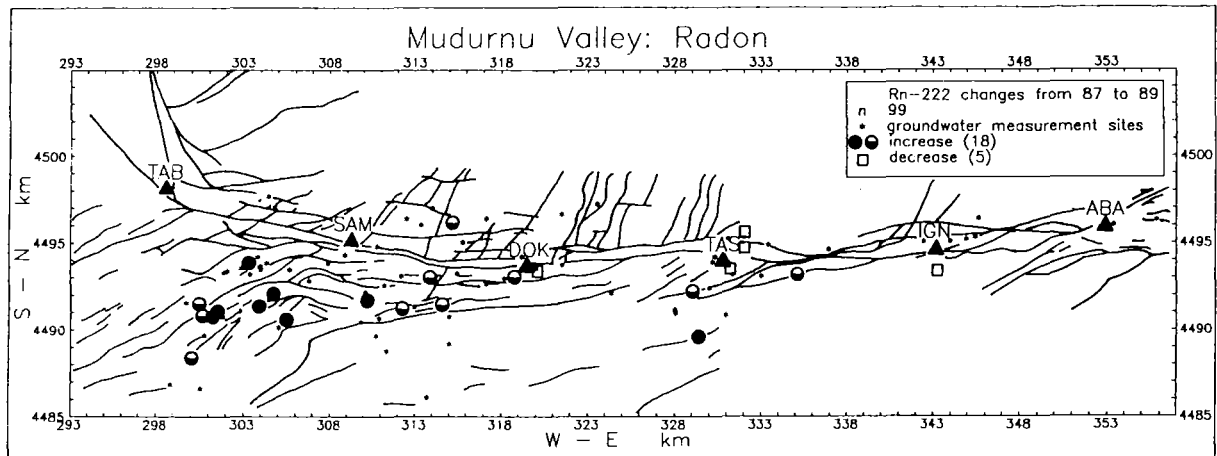


Figure 8. Location of springs characterized by a Rn-222 increase from autumn 1987 until autumn 1989. Filled circles represent springs with a continuous Radon increase, half circles belong to springs with an annual cycle but increasing autumn values.

## CONCLUSIONS

Radon contents in groundwater show seasonal variations, caused by changing groundwater flow velocities. A relation between the Rn-222 content in groundwater and the geological formation is observed with the highest values in groundwaters of granitic aquifers. Low concentrations are related to limestone, marble, amphibolite and greenstone. The highest Rn-222 contents, standardized with respect to the aquifer geology, are found at springs that follow the East-West striking fault system. Contrary to the majority of springs showing annual variations, 18 springs out of 99 are characterized by a continuous Rn-222 increase from autumn 1987 until autumn 1989. These springs are located in the western part of the investigation area marking the main fault for about 20 km but then striking to South-West following a formerly active branch of the North Anatolian Fault Zone. This may indicate a re-activation of this branch.

The preliminary results presented in this paper clearly indicate that strong meteorological and hydrological effects have to be considered when measuring Radon in groundwater. But,

even without any corrections applied to the data set, a non-seasonal Rn-222 increase in some spring waters indicate a possible relation to tectonic activities. Nevertheless, only a synoptical examination with Radon as one important parameter can probe the assumption successfully.

## ACKNOWLEDGEMENT

We thank the "Deutsche Forschungsgemeinschaft" for the financial support of the project on the German side (Az. : Zs 4/4). Financial support on the Turkish side as well as logistical support for the field work was kindly provided by the Earthquake Research Institute of the Ministry of Public Work and Settlement in Ankara. For field work and laboratory analysis we thank Mrs. U. Maiwald. For the translation of the abstract we thank Mrs. S. Wenghöfer.

## REFERENCES

BARRETTO P.M.C. (1975) : Radon-222 emanation characteristics of rocks and minerals.-in : Radium in uranium mining, IAEA-PL-565/1, pp. 129-150.

**ERGÜNAY O. & ZSCHAU J.** (1989) : Introduction to the Turkish-German Earthquake Research Project.- In : Turkish-German Earthquake Research Project (ed. by J. ZSCHAU & O. ERGÜNAY), pp. 1-17, Kiel/Ankara.

**HAUKSSON E.** (1981) : Radon content of groundwater as an earthquake precursor : evaluation of worldwide data and physical basis.- J.Géophys. Res., Vol. 86, N°. B10, pp. 9397-9410

**WOITH H. & PEKDEGER A.** (1991) : Radon in soil gas : a contribution to the joint German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research.- this volume.

**ZSCHAU J.** (1989) : Summary of the results within the Turkish-German Earthquake Research Project.- In : In : Turkish-German Earthquake Research Project (ed. by J. ZSCHAU & O. ERGÜNAY), pp. 197-211, Kiel/Ankara.

## RADON IN SOIL GAS : A CONTRIBUTION TO THE JOINT GERMAN-TURKISH EARTHQUAKE PREDICTION RESEARCH PROJECT

H.WOITH (1) and PEKDEGER (2)

(1) Institut für geophysik

Christian-Albrechts-Universität, D-2300 Kiel, Germany

(2) Institut für Geologie, Geophysik und Geoinformatik

Freie Universität Berlin, D-1000 Berlin 33, Germany

### ABSTRACT

*Temporal and spatial variations of Radon emission in soil gas are described in a selected area at the western part of the North Anatolian Fault Zone. This study is carried out in the framework of the German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research, aimed at demonstrating the ability for predicting earthquakes. The radon emission in soil gas has been recorded quasi-continuously by plastic nuclear track detectors since 1986/87 at 5 multiparameter observatories a long a 60 km segment of the North Anatolian Fault. Furthermore, a Radon concentration depth profile is measured continuously by borehole scintillation counters at one station.*

*Annual changes in Radon emanation in soil are predominantly caused by changing soil moisture. During summer months it is also affected by air pressure variations. A decreasing pressure in the order of 1 % causes an increase in Radon emission of about 30-50 %. The preliminary results presented in this paper clearly indicate that strong meteorological effects have to be considered when measuring Radon emission in soil gas.*

### RESUME

*Cette recherche examine la variation temporelle et spatiale de l'émission de Radon dans les gaz du sol à l'Ouest de la "North Anatolian Fault Zone". Cette étude se développe dans le cadre d'un projet germano-turc sur la prévision des séismes. L'objet de cette étude est d'observer les phénomènes précédant un séisme. L'émanation du radon dans les sols est mesurée régulièrement à l'aide de détecteurs solides de traces depuis 1986-1987. Ces mesures sont faites dans 5 observatoires multiparamétriques situés au long d'un segment de 60 km de la zone de failles Nord Anatolienne. De plus en un site le radon est mesuré en continu à l'aide de détecteurs à scintillation.*

*Des variations annuelles d'émanation de Radon dans la terre sont dues à la variabilité de l'humidité du sol. Pendant l'été il y a aussi des influences de la pression atmosphérique. Quand la pression diminue de 1 % l'émission de Radon augmente de 30-50 %. Les résultats préliminaires présentent une influence très grande des effets météorologiques qui doivent être pris en compte lors de la mesure de l'émanation Radon du sol.*

### INTRODUCTION

A central problem in earthquake prediction research is the identification of significant anomalies in a time series as a precursory phenomenon. Abnormal behavior of one single parameter is almost meaningless. For this reason many physical and geochemical parameters related to earthquake mechanisms should be recorded simultaneously in the same area of investigation. This philosophy is being implemented in the German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research at the western part of the North Anatolian Fault Zone (ERGÜNAY & ZSCHAU, 1989). Geophysical, seismological, geodetical, geological, hydrological as well as meteorological data are

gathered more or less continuously and an attempt is made to interpret them in a synoptical approach (ZSCHAU, 1989). In this paper we present the outlines and first results of a detailed study on temporal and spatial variations of Radon emission in soil gas along a carefully selected branch of the North Anatolian Fault Zone. A separate paper in this volume describes the geological situation and deals with Radon in groundwater (PEKDEGER & WOITH, 1991). The study aims at a qualitatively and quantitatively better understanding of the relevant mechanisms with the final goal of evaluating the potential of the Radon method for earthquake prediction within the above mentioned synoptical approach.

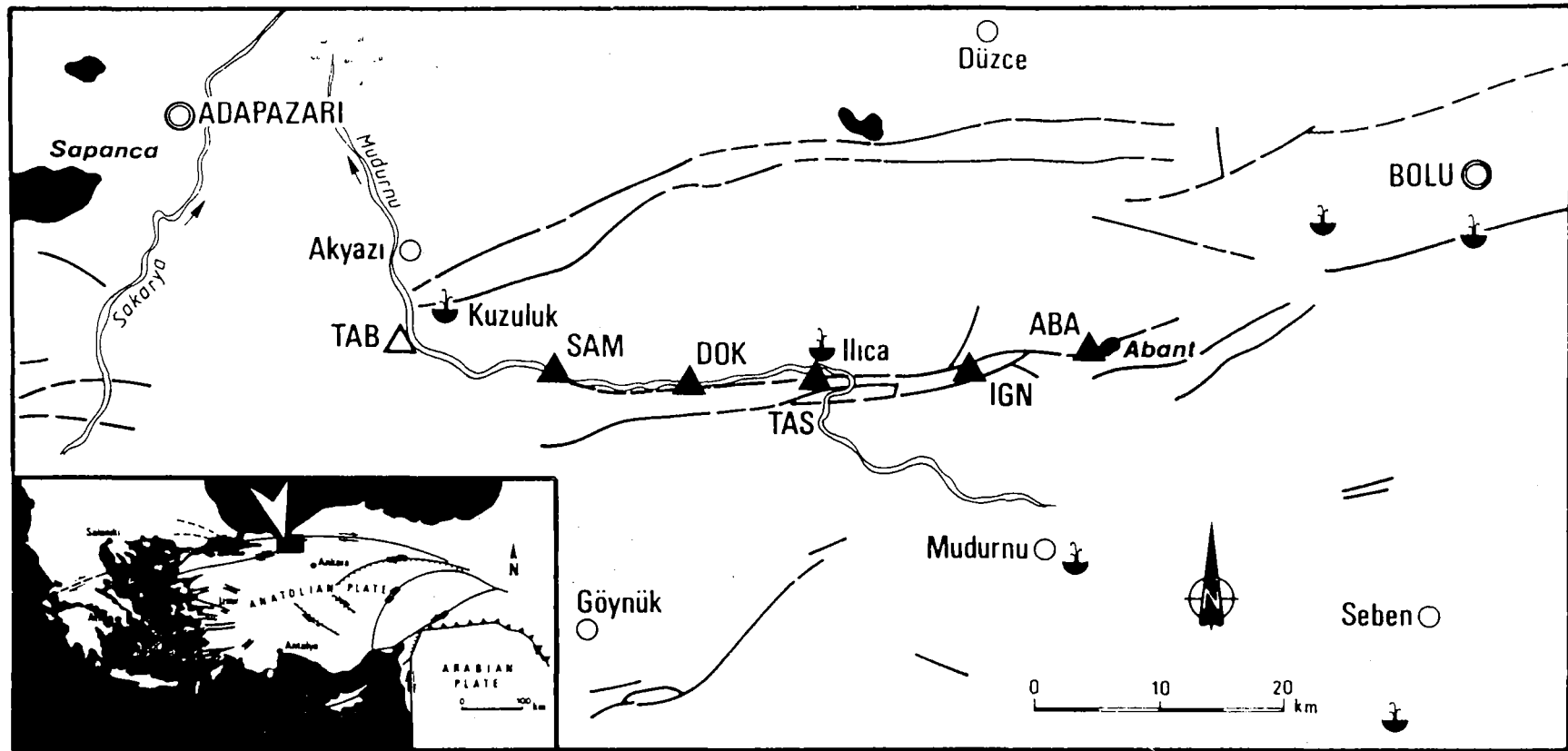


Figure 1. The investigation area of the joint German-Turkish Project on Earthquake Prediction Research is a 60 km long segment of the North Anatolian Fault Zone about 150 km east of Istanbul/Turkey. Triangles shown the position of 6 multiparameter observatoires. At 5 of them Radon in soil gas is monitored.



## EXPERIMENTAL PROCEDURE

Soil gas Radon is monitored at five multiparameter observatories (SAM, DOK, TAS, IGN and ABA in Fig. 1) separated about 10 km from each other along the main fault. Plastic nuclear track detectors (KODAK LR 115) are used to record alpha-particles emitted from Radon and its daughter isotopes. The track etch cups are installed at different depths (0.5 to 3 m) at each station. Normally, the detectors are replaced and analyzed every 3 weeks. Thus a quasi-continuous time sequence of Radon soil gas emission is being recorded. For details about the installation of the detector cups as well as the etching and counting

procedure see WOITH et al. (1988).

Radon soil gas emission is monitored continuously at one of the multiparameter stations (SAM), where alpha-meters are installed at 1, 1.5 and 2 m depth. The borehole scintillation counters used were especially designed for this purpose. Every 15 minutes the counts are stored in the station data-logger system.

## RESULTS AND DISCUSSION

The mean, minimum and maximum Radon concentrations measured at different depths for one year (from August 1987 until August 1988) are given in table 1 for five

Table 1. Radon in soil gas [tracks/(cm<sup>2</sup> d)] at 5 different sites. Annual min, max and mean values averaged over n holes per depth for a period of one year starting in August 1987 are listed.

	depth [m]	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0
ABA	n	2	4	3	2		
	min	8	289	284	329		
	max	157	913	1197	1898		
	mean	56	680	721	1082		
IGN	n	2	4	1	2		
	min	7	8	8	5		
	max	183	341	257	99		
	mean	72	127	102	47		
TAS	n	2	2	2	2		
	min	169	372	43	17		
	max	1259	1529	1880	1569		
	mean	712	987	1169	813		
DOK	n	2	6	6	6	2	2
	min	201	339	521	581	769	933
	max	1031	1382	1486	1859	1344	2338
	mean	519	792	951	1063	1139	1618
SAM	n	2	2	2	2	2	2
	min	130	87	27	22	11	11
	max	1070	2586	2314	3038	2837	2080
	mean	604	1409	1508	1900	1472	908

multiparameter stations. The values for each depth are averaged over several 2 to 6) adjacent bore holes. In general, Radon emission is high during summer and low during winter. The ratio between maximum and minimum Radon concentrations is high at the stations IGN, TAS and SAM and low at ABA and DOK. This pattern is in accordance with the observations of BÜYÜKKÖSE et al.(1989), who estimated aquifer permeabilities of the order of  $10^{-7}$  at ABA and  $10^{-8}$   $\text{cm}^2$  at DOK contrasted with  $10^{-11}$  to  $10^{-15}$   $\text{cm}^2$  (1 Darcy =  $1 \cdot 10^{-8}$   $\text{cm}^2$ ) for the other stations. Furthermore, it is only at ABA and DOK that continuous exponential increase in Radon emission with depth can be observed. This kind of depth profile is expected for a soil with homogeneous Radon production. The other stations IGN, TAS and SAM, show maximum values at 1, 1.5 and 2 m depth respectively. A simple explanation can be given for the IGN site, where the groundwater level is only 2 m below the ground surface. The deepest boreholes are filled with water during most of the year. In winter even the 1.5 m borehole is close to the water table, where the pores are almost completely filled with water thus drastically reducing Radon diffusion activities. Possibly similar mechanisms may explain the situations at TAS (groundwater level 3.5 to 5 m). A special situation occurs at SAM where an aquiclude forms a little trough only a few meters below the ground surface (see Fig. 3 in BÜYÜKKÖSE et al., 1989).

Seasonal variations of Radon emission at the ABA test measured at 1, 1.5 and 2 m depth from October 1986 until November 1987 are shown in Fig. 2a. In October 1986 an almost "normal" Radon depth profile was observed, which can be modelled by the following diffusion equation, when assuming a homogeneous, depth independent Radon production within the soil (JUNGE, 1963) :

$$c(z) = c(0) \cdot [1 - \exp. (-\sqrt{\frac{\lambda}{d}} \cdot z)]$$

Where Z : depth [cm]

$C_0$ : Rn concentration in deeper layers

$\lambda$  : Radon decay constant (Rn-222 :  $2.1 \cdot 10^{-6}$ ) [1/s]

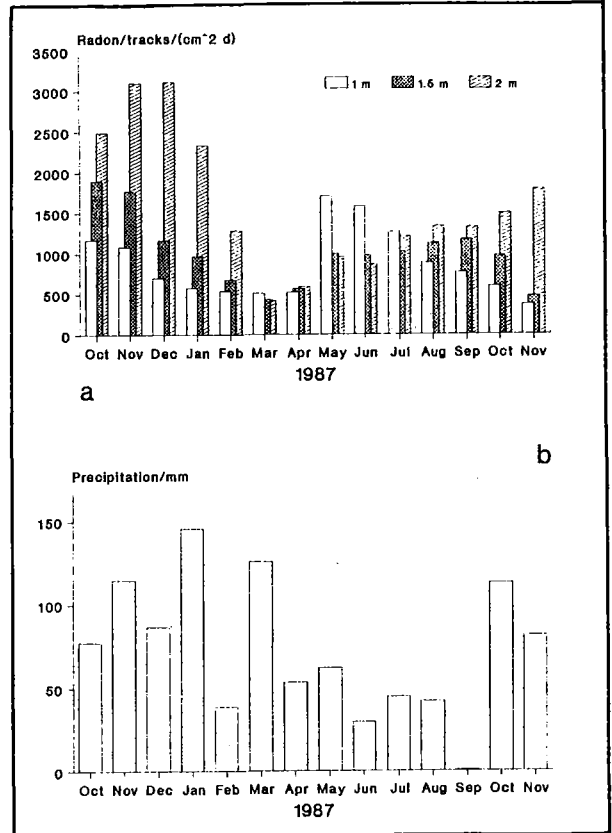


Figure 2a. Radon emanation from october 1986 until November 1987 at the multiparameter station Abant (ABA). The data were obtained by using the track etch technique with cups in 1, 1.5 and 2 m deep bore holes. Figure 2b. Mean of monthly precipitation measured at seven weather stations within and around the investigation area.

d : conditional diffusion constant [ $\text{cm}^2/\text{s}$ ]

A conditional diffusion coefficient of  $d = 0.05$   $\text{cm}^2/\text{s}$  provides the best fit with the measured depth distribution in October 1986. This is a reasonable value for Rn-222 diffusion in sandy soil and eluvial deposits with low moisture content (see TANNER, 1964). Similar conditions occurred again in September 1987. The changes in soil moisture content with depth and time can explain the observed Radon distribution. Fig. 2b shows the mean monthly precipitation, calculated for seven weather stations located within and around our investigation area.

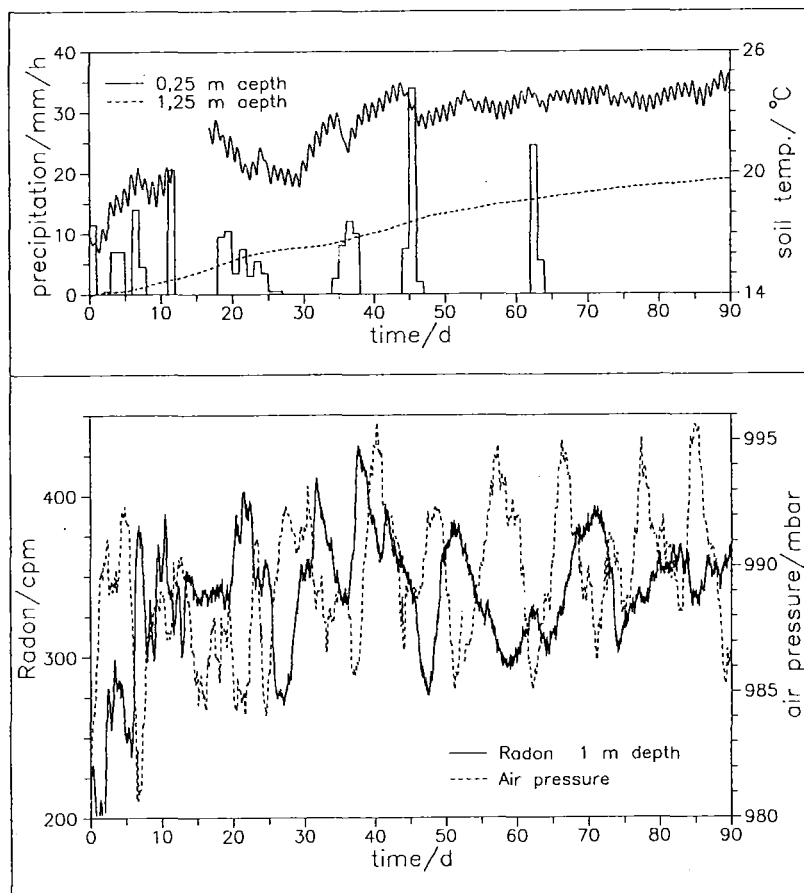


Figure 3. Radon emission in soil gas at 1 m depth, soil temperature at 0,25 and 1.25 m depth, precipitation as well as barometric pressure recorded continuously at Samanparazi test site (SAM) from 27.5.88 until 24.8.88.

From April until September evapotranspiration is greater than precipitation, drying the soil from the surface towards deeper layers. In September/October optimal conditions for free diffusion are given. Heavy rainfall starting in October/November fills the pore volume in the upper soil layers with water and thus entraps Radon since the Radon diffusion is decreased ( $D$  in water is only  $1.13E-5 \text{ cm}^2/\text{s}$ !). Radon in deeper - still dry - layers consequently cannot escape into the atmosphere and will accumulate under the sealing layer. This mechanism could explain the Radon increase at 2 m during November and December 1986 as well as November 1987.

Short term variations in Radon concentrations continuously recorded by scintillation counters at the multiparameter observatory SAM are shown in Fig. 3. In addition to Radon concentrations at 1 m depth, soil temperature at 0,25 m and 1,25 m depth, precipitation and the barometric pressure are plotted as a function of time. The corresponding correlation coefficients are given in table 2. In the upper half

coefficients were calculated for the time interval from November 1987 until May 1989 : a positive correlation of Radon emanation with soil temperature is evident. In our opinion, the direct influence of temperature changes on Radon diffusion is only small compared to the indirect effect of temperature on the soil moisture content. In the lower part of the correlation matrix coefficients computed for a 3 months period from 27.5.1988 until 25.8.1988 are listed. These data were high-pass filtered in order to eliminate long-periodic trends (using a 50 % cut off period at 270 h). After high-pass filtering a weak negative correlation between air pressure and radon concentration in 1 m and 1.5 m depth is obvious with a correlation coefficient of -0.59 and -0.60 respectively. Note also, that there is no significant correlation between Radon and soil temperature after the drift has been eliminated.

CLEMENTS & WILKENING (1974) observed fluctuations of Radon emanation of 20-60 %

Table 2. Correlation coefficients between Radon, soil temperature and air pressure continuous monitored at the multi-parameter observatory Samanpazari (SAM). upper half : for the time interval from November 1987 until May 1989. Lower half : from 27.5.1988 until 24.8.1988 (drift eliminated).

		a	b	c	d	e
Radon 1 m	a		0.75	0.82	0.80	-0.13
Radon 1.5	b	0.80		0.62	0.80	-0.01
Soil temperature 0.25 m	c	0.07	-0.02		0.86	-0.15
Soil temperature 1.25 m	d	0.10	0.14	-0.29		0.08
Barometric pressure	e	-0.59	-0.60	-0.12	-0.06	

related to air pressure changes of 1-2 %. During summer time similar observations were made at SAM with the strongest effect at the beginning of June 1988 (see Fig. 4) : here, an air pressure decrease of 12 mbar caused an increase in the Radon emission of 140 cpm at 1 m depth (or 1 % air pressure decrease caused a 50 % increase in Radon concentration).

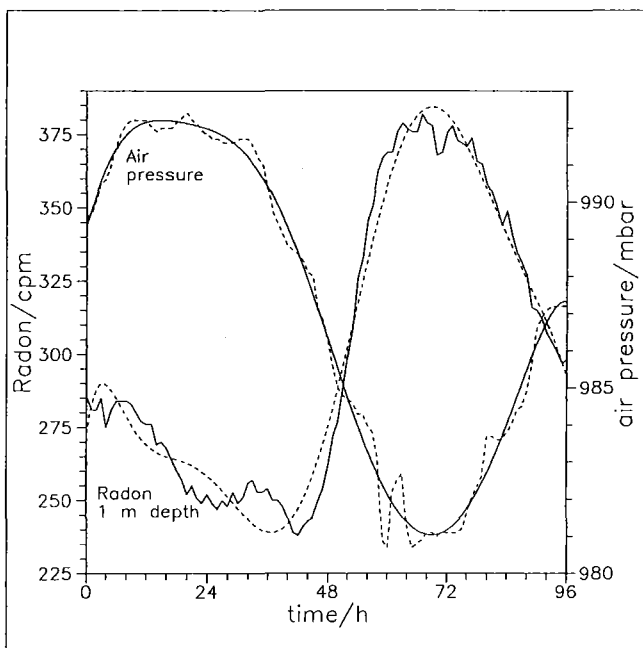


Figure 4. Hourly changes in Radon emission and air pressure monitored at SAM from 31.5.88 00 : 00 until 4.6.88 00 : 00.

KRANER et al. (1964) gave a qualitative explanation for the effect : during rising air pressure, Radon-free atmospheric air flows into the pore spaces of the surface soil displacing the Radon-rich soil gas to greater depths. The opposite effect is expected during falling pressure. CLEMENTS & WILKENING (1974) use a simple analytical model of molecular diffusion combined with pressure induced transport in the soil to explain their observations.

To investigate daily variations in Radon emanation and their possible causes, amplitude spectra were calculated (see Fig. 5) for Radon at 1 and 1.5 m depth, soil temperature at 0.25 m and barometric pressure :

- Daily as well as half-daily fluctuations (S1 and S2) in Radon emanation occur at 1 m with amplitudes of 80 and 32 cph (counts per hour) and 57 and 33 cph at 1.5 m depth;
- Soil temperature at 0.25 m show the S1, S2 and S3 harmonic fluctuations with amplitudes of 0.34, 0.004 and 0.006 °C respectively. In 125 cm depth S1 occurs with an amplitude of only 0.001 °C (not shown here);
- Air pressure is characterized by S2 (half-daily) changes of about 0.24 mbar.

Daily as well as half-daily variations in Radon emission can be clearly identified in the frequency domain. It seems unlikely, that daily temperature fluctuations of less than 0.001 °C in 1.25 m depth can cause the observed harmonic changes in Radon emanation. Daily air pressure variations, although small (only 0.024 %) may cause the observed daily Radon

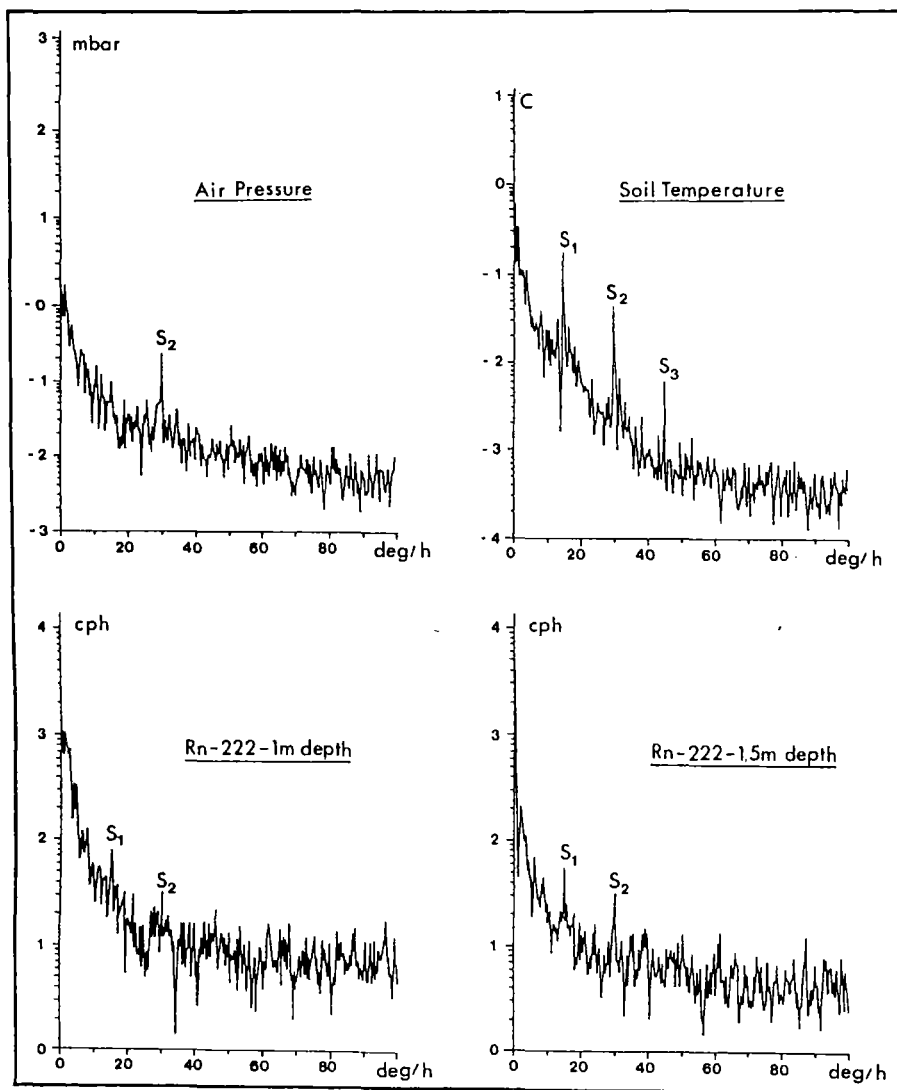


Figure 5. Amplitude spectra of Radon (at 1 and 1.5 m depth), soil temperature (0.25 m depth) and air pressure recorded at SAM calculated for the time interval 27.5.88 until 24.8.88.

fluctuations (only 0.27 %). This assumption is supported by the fact that daily variations in Radon emission are drastically reduced during the winter seasons. In winter the migration process in the pore volume of the soil is severely restricted by the high moisture content.

## CONCLUSIONS

Soil gas Radon contents show clear seasonal variations. This is predominantly caused by changing soil moisture. During summer months the Radon emanation is also affected by changing air pressure. A decreasing pressure in the order of 1 % causes an increase in Radon emission of about 30 to 50 %. The preliminary results presented in this paper clearly indicate that strong meteorological effects have to be considered when measuring Radon emission in soil air, in this area.

## Acknowledgement

We thank the "Deutsche Forschungsgemeinschaft" for the financial support of the project on the German side (AZ. : Zs 4/4). Financial support on the Turkish side as well as logistical support for the field work was kindly provided by the Earthquake Research Institute of the Ministry of Public Work and Settlement in Ankara. For scanning and counting work we thank Mr. N. Enge and T. Kleis. For the translation of the abstract we thank Mrs. S. Wenghöfer.

## REFERENCES

BÜYÜKKÖSE N., KÜMPEL H.-J., WESTERHAUS M. and ZSCHAU J., (1989) : Well level data at six multiparameter stations in the Mudurnu-Abant Valley.- In : Turkish

German Earthquake Research Project (ed. by **J. ZSCHAU and O. ERGÜNAY**), pp. 74-81, Kiel/Ankara.

**CLEMENTS W.E. and WILKENING M.H.** (1974) : Atmospheric pressure effects on Rn-222 transport across the earth-air interface.- *J. GEOPHYS.Res.*, Vol. 79, N° 33, pp. 5025-5029.

**ERGÜNAY O. & ZSCHAU J.** (1989) : Introduction to the Turkish-German Earthquake Research Project.- In : Turkish-German Earthquake Research Project (ed. by **J. ZSCHAU and O. ERGÜNAY**), pp 1-17, Kiel/Ankara.

**HAUKSSON E.** (1981) : Radon content of groundwater as an earthquake precursor : evaluation of worldwide data and physical basis.- *J. Geophys. Res.*, Vol. 86, N° B10, pp. 9397-9410.

**JUNGE C.E.** (1963) : Air chemistry and radioactivity.- Academic Press, New York and London.

**KRANER H.W., SCHROEDER G.L. and EVANS R.D.** (1964) : Measurements of the effects atmospheric variables on Radon -222

flux and soil-gas concentrations.- in : Proc. The Natural Radiation Environment, ADAMS, J.A.S. AND LOWDER, W.M. (ed.), pp. 191-215, Univ. Chicaco Press.

**PEKDEGER A. & WOITH H.** (1991) : Radon in groundwater : a contribution to the joint German-Turkish project on earthquake prediction research.-this volume.

**TANNER A.B.**(1964) : Radon migration in the ground : a review.- in : Proc. The Natural Radiation Environment, ADAMS, J.A.S. and LOWDER, W.M. (ed.), pp. 161-190, Univ. Chicaco Press.

**WOITH H., ENGE W., BEAUJEAN R. and OSCHLIES K.** (1988) : Earthquake prediction research with plastic nuclear track detectors.- *Nucl. Tracks Radiat. Meas.*, Vol. 15, Nos. 1-4, pp.681-684.

**ZSCHAU J.** (1989) : Summary of the results within the Turkish-German Earthquake Research Project.- In : Turkish-German Earthquake Research Project (ed. by **J. ZSCHAU and O. ERGÜNAY**), pp. 197-211, Kiel/Ankara.

# **IV<sup>ème</sup> PARTIE**

Radon, Hydrogéologie  
et Géochimie

## GAS GEOCHEMISTRY IN EXPLORATION FOR GEOTHERMAL ENERGY SOURCES

**T.K.BALL and M.C.G.CLARKE**

British geological survey

Keyworth, Nottingham, UK

### ABSTRACT

*The field determinations of carbon dioxide, oxygen, radon and thoron in soil and fumarolic gases and the application of these measurements to the exploration for volcanic hosted geothermal energy sources are described. Examples are chosen from the Kenya Rift and from Costa Rica. The value of soil gas methods in outlining the more tenuous expressions of geothermal activity is stressed and the possibility of estimating the relative potential production capacity of a geothermal system is indicated.*

### RESUME

*La détermination du dioxyde de carbone, l'oxygène, du radon et du thoron sur le terrain pour les gaz du sol et fumaroles, et les applications de ces mesures à l'exploration pour l'énergie géothermique dans des volcans, sont décrits. Les exemples sont choisis dans la vallée du "Rift" au Kenya, et au Costa Rica. La valeur de la méthode de mesure du gaz des sols dans l'identification des activités géothermiques les plus faibles est soulignée et la possibilité d'estimation de l'importance de la capacité économique d'un système géothermique est indiquée.*

### ABREGE

*Le présent travail concerne l'application de la géochimie des gaz du sol (dioxyde de carbone, oxygène, radon et thoron) dans l'exploration de ressources minérales et les recherches géothermiques. Il s'applique aux manifestations géothermiques faibles.*

*Des études d'orientation sont décrites dans des contextes différents de tectonique des plaques : dans la Vallée du Rift du Kenya et dans un arc volcanique au Costa Rica. Ces études effectuées ont été réalisées dans des régions à potentiel géothermique, près de volcans récents et dans des zones fumaroliques. Ces régions sont : le champ géothermique de Olkaria, dans la vallée du "Rift" central au Kenya et le champ géothermique de Miravalles au Costa Rica. Des anomalies en dioxyde de carbone et en radon ont été trouvées dans les deux régions qui montrent des comportements locaux semblables. Les émanations de gaz sont cependant plus importantes dans le cas des fumaroles étant donné la perméabilité plus grande des terrains de couverture et des sols.*

*Le faille de caldera de Longonot (Kenya) présente une activité géothermique avec émission de dioxyde de carbone et thoron. Il est possible de la suivre même dans le cas où elle est recouverte par une couche épaisse de cendres pyroclastiques.*

*A l'échelle régionale, dans des zones recouvertes de terrains de couverture, il y a été démontré que des émanations de gaz sont localisées à l'aplomb d'alignement volcaniques (par exemple, la zone de Mount Margaret, au sud-est de Longonot) et à l'aplomb de zones failleuses.*

*Les activités géothermiques les plus élevées sont situées dans des régions à volcanisme récent. C'est pourquoi l'étude à l'échelle régionale de la distribution du radon doit prendre en considération l'âge relatif des roches de même que leurs concentrations en radioéléments. Des fonds géochimiques et des anomalies ne possèdent une réelle signification que dans le cas de roches encaissantes de même âge et de même nature.*

*Les méthodes d'analyse des gaz du sol utilisées dans cette étude se révèlent être des techniques de terrain rapides et précises et des compléments très utiles aux autres méthodes d'exploration des champs géothermiques. Les méthodes de prospection peuvent être continuellement mises à preuve si*



*nécessaire. Les résultats préliminaires indiquent que les méthodes de détermination du dioxyde de carbone et du radon sur le terrain peuvent conduire à une évaluation rapide de la fertilité d'un système géothermique. Les concentrations de radon les plus élevées coïncident avec des zones à haute perméabilité.*

## SOIL GAS GECHEMISTRY IN GEOHERMAL EXPLORATION INTRODUCTION

Soil-gas geochemical methods traditionally have been used in the search for mineral deposits. Radon surveys for uranium were followed by investigations, often using field methods, of carbon dioxide, oxygen and sulphide species etc. in the search for buried sulphides. The present investigation is based on

the fact that the non-condensable gas component of fumaroles may contain up to 95 % carbon dioxide so that techniques developed for minerals can be used for geothermal exploration. In particular the techniques should have potential for locating weak or buried geothermal manifestations and extensions of known geothermal fields. Furthermore the use of field analytical procedures would enable the geometry of potential fields to be delineated at an early stage of exploration.

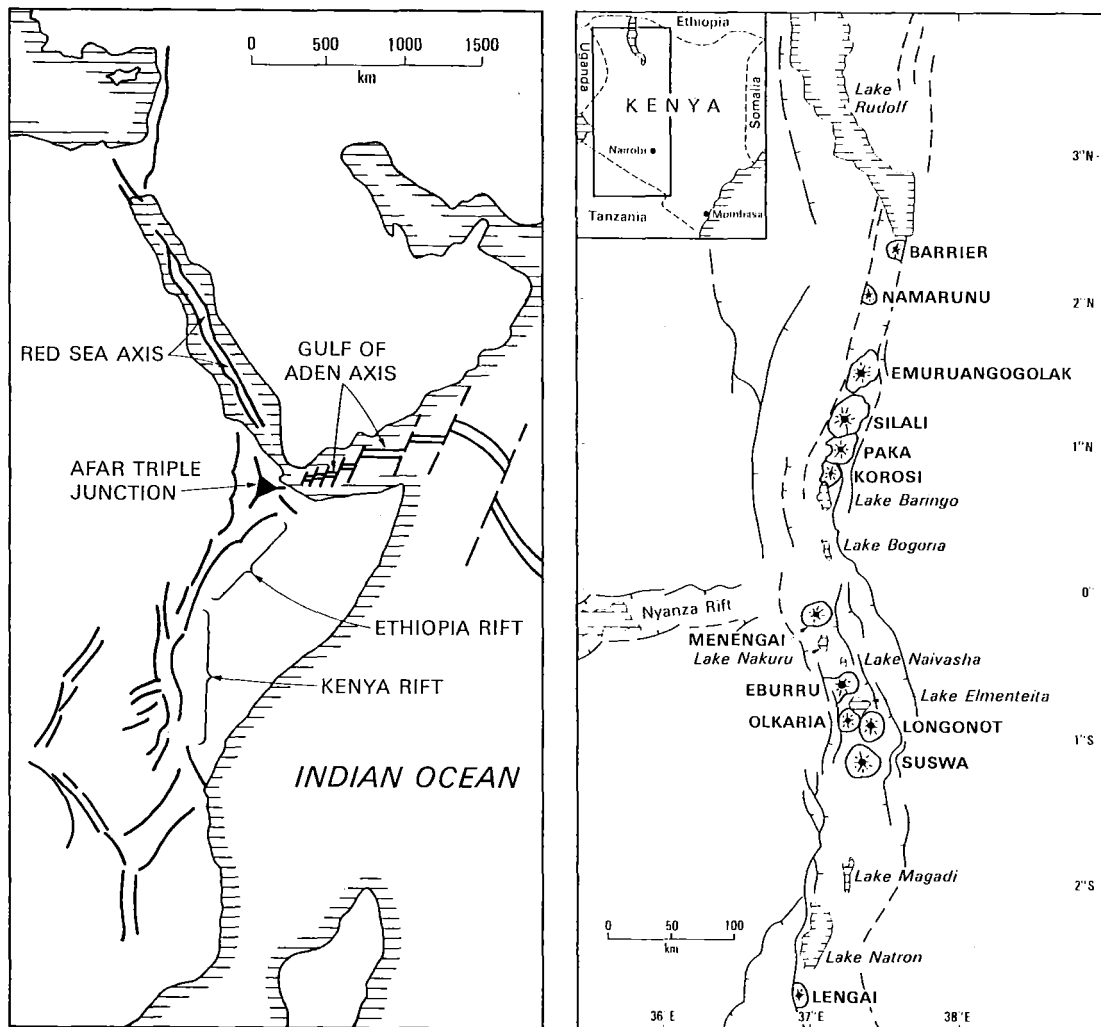


Figure 1. a) Relationship of the Kenya/Ethiopia Rift to the Red Sea and Gulf of Aden spreading axes.  
b) Lakes major faults and young volcanoes of the Kenyan Rift.

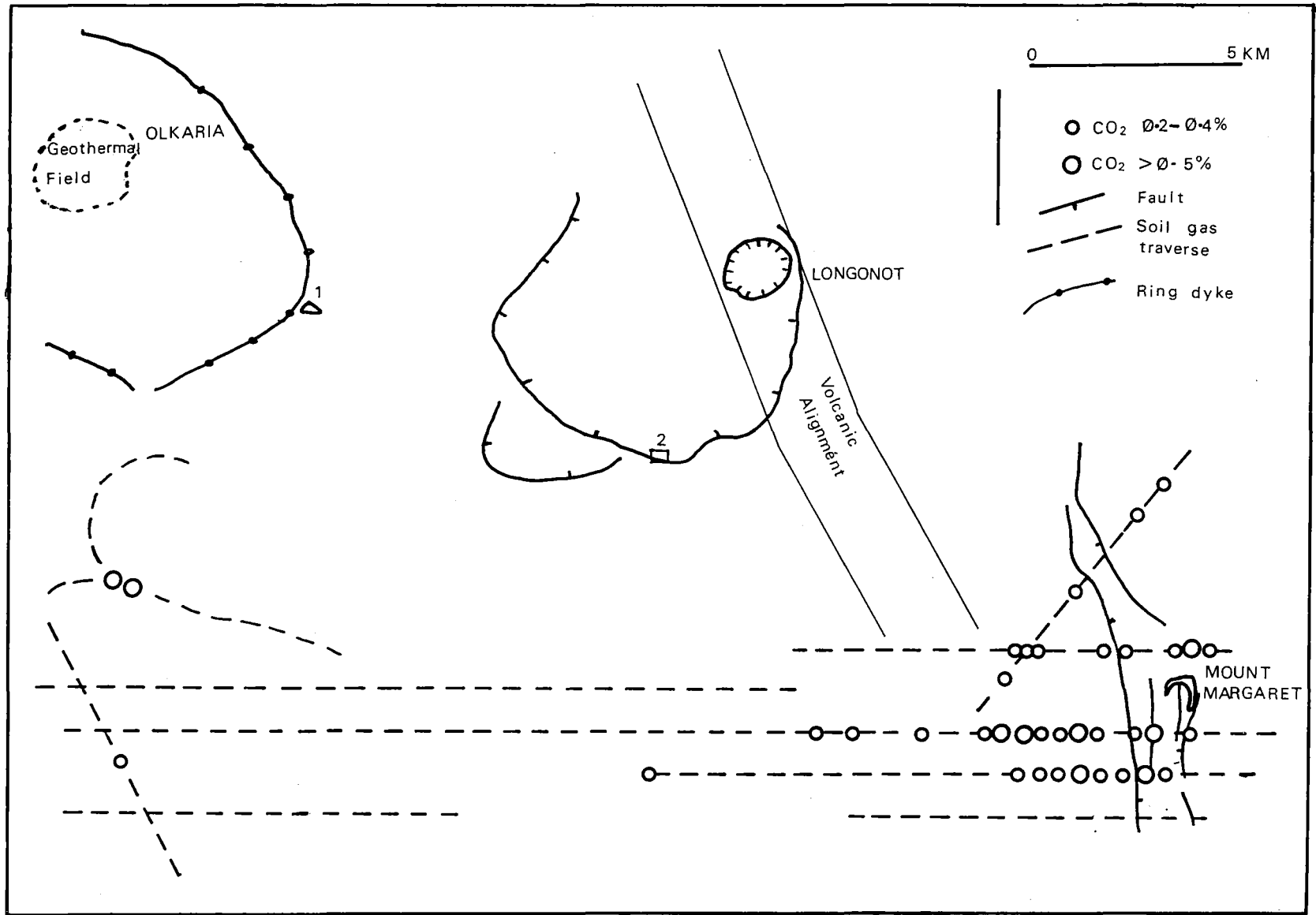


Figure 2. Area south of Lake Naivasha, showing major geological features and positions of soil gas traverses.

The orientation studies described here, from the Rift Valley of Kenya and a volcanic arc in Costa Rica, are part of wider investigations of geothermal potential. The two study areas have widely different plate tectonic settings, but both involve geothermal fields associated with recent volcanoes. Soil gas patterns were investigated in areas surrounding fumaroles, fault structures, volcanic axes, caldera faults etc.; in areas of both proven and limited potential.

## GEOLOGY OF THE AREAS STUDIED

### 2.1. KENYA.

The Kenya Rift Valley (Figure 1) is a prominent, generally north-south, graben incised into a broad dome (Figure 1). A detailed description of the central Rift Valley around Lake Naivasha, the locus of maximum mantle activity, is given by Clarke et al. (1990).

Geothermal activity is associated with three major highly evolved peralkaline volcanoes. The Olkario volcanic complex (Figure 2) hosts a geothermal field explored and developed by the Government of Kenya and the UNDP from 1970. It currently provides about 17 % of Kenya's electricity requirements. Comenditic domes, plugs and lavas are associated with thick pyroclastic deposits. There are a number of north-south volcanic alignments and also a ring structure surmounted by comendite domes. The sequence of events at Olkaria are : 1). Construction of a dominantly trachytic lava and pumice pile. 2) Caldera fracture (pantelleritic welded tuff). 3). Early post caldera activity (comendite lavas and pyroclastics). 4). Ring dome formation. 5). General resurgence (short thick comendite flows). 6). North-south fissure activity (Comendite flows within the depression formed by the ring domes. An age of 0,45Ma has been obtained from a depth of 1000 m (in Bliss, 1979). C-14 dates show (3) is older than

9150 +/- 110 BP, (4) is younger than 3280 +/- 120 BP whilst the latest flow gave an age of 180 +/- 50 BP.

The nearby Longonot volcano (Figure 2) is mostly trachytic. Stages of activity are : 1) the building of an early shield, 2) caldera formation, 3) building of a central lava and pyroclastic cone, 4) formation of the summit crater and 5) flank and crater floor lava eruptions. Scott (1977 and 1980) considered that the earliest activity may have commenced no more than about 0,4Ma BP. The post-caldera volcanism is younger than 9159 +/- 110 BP and the summit crater is younger than 3500 +/- 120 years BP. The last eruptions may only be a century or two old.

Borehole data indicates that underground water movement occurs axially, from Lake Naivasha, and laterally from the Rift walls.

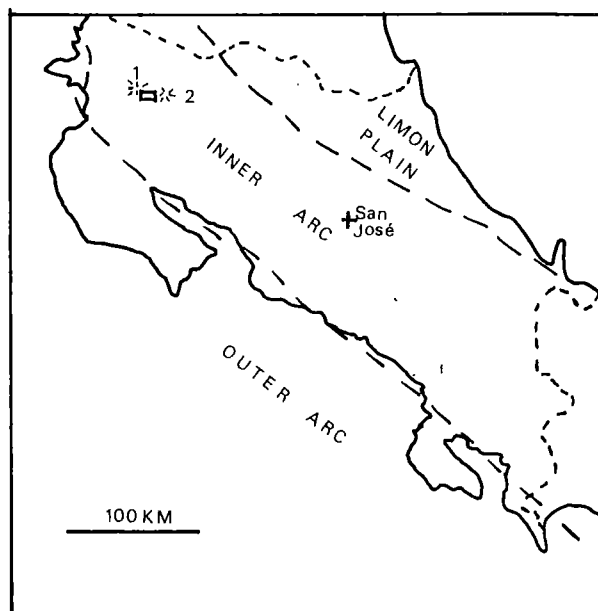


Figure 3. Generalised plate tectonic setting of Costa Rica showing positions of the Rincon de la Vieja (1) and Miravalles (2) volcanoes.

## 2.2. COSTA RICA

Costa Rica, in the Isthmus of Panama, comprises three parallel NW-SE zones (Figure 3). The "Outer Arc" contains ophiolites and shelf sediments. The "Inner Arc" forms the central range of some 68, mostly andesitic, volcanic edifices, of which about eight are active. The Limon Plain is underlain by relatively recent sedimentary rocks.

The project area is 160 km NW of San Jose. This account of the geology is based upon reports to the Instituto Costarricense Electricidad (ICE) by consultants which included Electroconsult Milano (ECL), and personal communications by Mayra Corella of ICE.

Between two volcanic massifs, Miravalles and Rincon de la Vieja (Figure 4), there is the Guayabo Caldera, of about 40 km<sup>2</sup> in area. Volcanism, Late Tertiary to recent, was accompanied by sedimentation in transient lake basins and river channels. Volcanic material is mostly of andesitic composition, typical of the subduction related chain along the Pacific Coast.

The caldera was the site of lakes for much of its existence. It is underlain by ignimbrites at depths of 700 to 1000 m. Following collapse of the central volcano the caldera filled with volcanoclastic sediments, and andesitic lava piles capped by more extensive andesite flows and pumiceous tuffs. The whole was buried by more recent lahars, tuffs and flows. Ages range 0,6 my to the present.

The main hot aquifer is found in the volcanoclastic rocks sandwiched between the basal ignimbrites and the lava flows. Rainwater recharges a cold water aquifer on the flanks of the two volcanoes which moves downslope in part masking underlying thermal anomalies.

### PREVIOUS WORK

Japanese workers (1983) conducted a soil gas survey in the Eburru area, Kenya (Figure 1). N-S trending faults control the alignment of surface cones, fumaroles, and other geothermal manifestations. Carbon dioxide and mercury anomalies showed similar trends and high carbon dioxide correlated with ground temperature measurements.

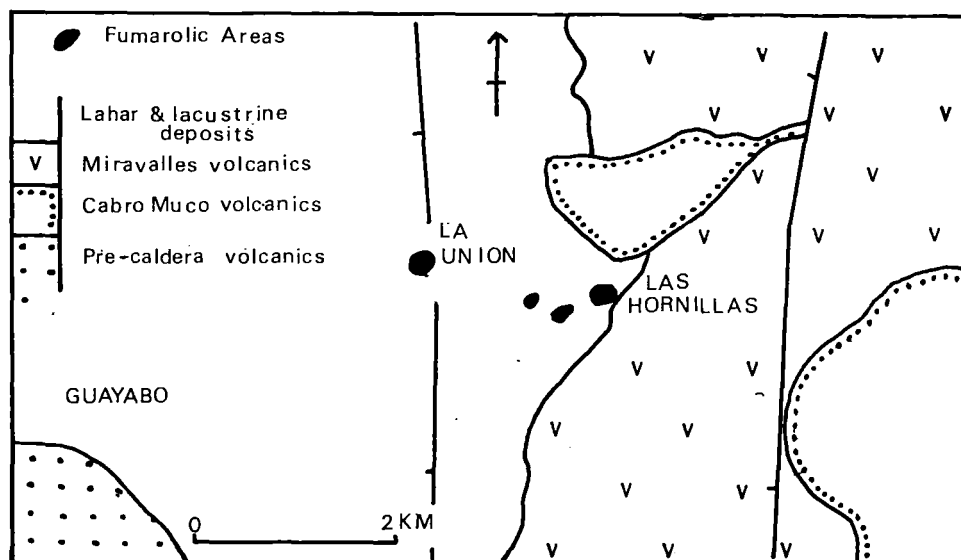


Figure 4. Simplified Geological map of the Guayabo area, Costa Rica, showing positions of the major fumarolic areas.

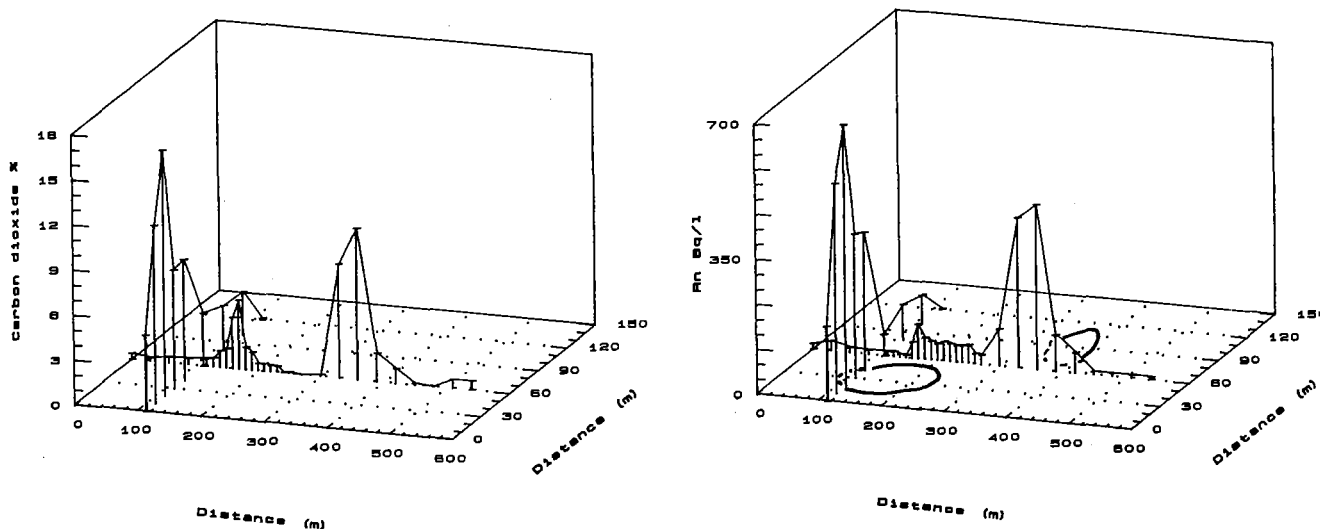


Figure 5. Orthogonal plot of carbon dioxide and radon in soil gases in relation to fumaroles near the Olkaria ring dycke, Kenya. Heavy line denotes fumarolic areas.

A soil gas survey by Geotermica Italiana (1986) was undertaken in the Menengai - Bogoria Area. Carbon dioxide anomalies were detected along recent volcanic axes and at caldera rim faults.

In Costa Rica ECL (1983) used alpha track registration techniques for radon and head space analysis of soils for Hg. The alpha track registration technique overcomes many of the problems of short term variations due to atmospheric changes. There is however no simple means by which the radon and thoron levels may be determined.

## METHODS OF SAMPLE COLLECTION AND ANALYSIS

In the field, sampling of soil gases was undertaken using a hollow spike driven to a depth of about 0,6m. Carbon dioxide and oxygen were determined with an Orsat gas analyser (Ball et al., 1983), and radon (Rn, Rn-222) and thoron (Tn, Rn-220) using an EDA emanometer. Where both radon and thoron occur the relative proportions can be calculated using the method of Morse (1976).

Small fumaroles were capped by an inverted polyethylene funnel, and the vapour cooled by passing through a stainless steel tube, the condensate separated in a large flask and the gas component conducted to the measuring apparatus. Large fumaroles were sampled by lowering several metres of polyethylene tubing into the vent.

## DESCRIPTION OF RESULTS

### 5.1. Detailed orientation studies.

#### THE OLKARIA DOMES AREA, KENYA (Area 1 in Figure 2).

This area is underlain by a comendite dome partly mantled by air fall tuff. Fumaroles are most common within or adjacent to lava exposures. The thoron levels are low, but highest in those areas where radon is highest. Figure 5 illustrates the distribution of soil gas radon and carbon dioxide areas of intense alteration and fumaroles.

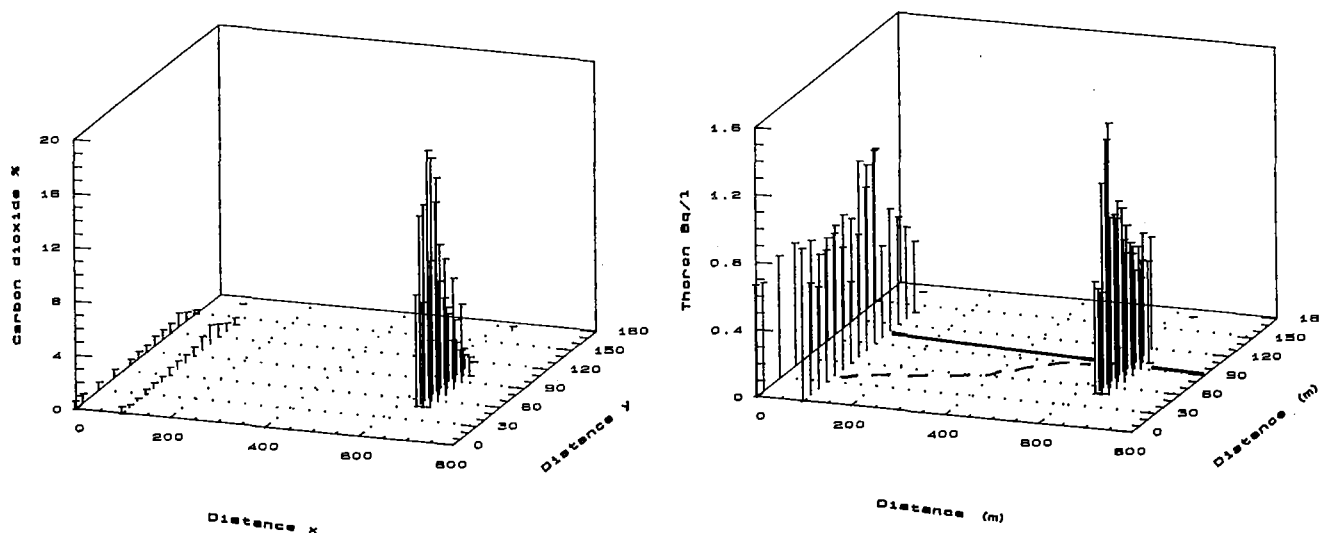


Figure 6. Orthogonal plot showing soil gas carbon dioxide and radon in relation to the Longonot Caldera Fault. Broken line indicates position of interfluvium, full line the Caldera fault traced by soil gas data.

### THE LONGONOT CALDERA FAULT, KENYA (Area 2 in Figure 2)

Weak fumarolic activity occurs along the fault line forming the south caldera wall. To the west is an area of low relief where the fault is likely to be buried by up to 30 m of ash.

Figure 6 summarises data for three closely spaced traverses on the eastern (exposed) section of the caldera fault and a further pair of traverses about 500 m to the west. In the eastern section the traverses show high carbon dioxide and thoron values at approximately the same position relative to the cliff face. The oxygen concentration is similar to that in the atmosphere, allowing for dilution with carbon dioxide. There is virtually no radon. There are subdued matching peaks in the carbon dioxide and thoron profiles for the western sector but they are distant from the arcuate feature originally thought to represent the fault. The full line on Figure 6 shows the

position of the caldera fault based on the soil gas data.

### LA UNION AREA, COSTA RICA.

Figure 7 summarises data from two traverses over a fumarolic area near a borehole in which permeability was particularly high. The main traverse crosses a large fumarolic area and then approaches the outer margin of another. At 0 m is an area of boiling mud pools with moderately high values of carbon dioxide and radon. At 10 m is a dry area with high values of both carbon dioxide and radon. The samples at the end of the traverse are in the outer, dry zone of the neighbouring fumarole and again reveal very high values of carbon dioxide and radon. A cross traverse confirms moderately high values in the central fumarolic zone for both carbon dioxide and radon but much higher values are observed surrounding the central area at 50 and 60 m.

The Rn/Tn ratio also increases towards the central zone.

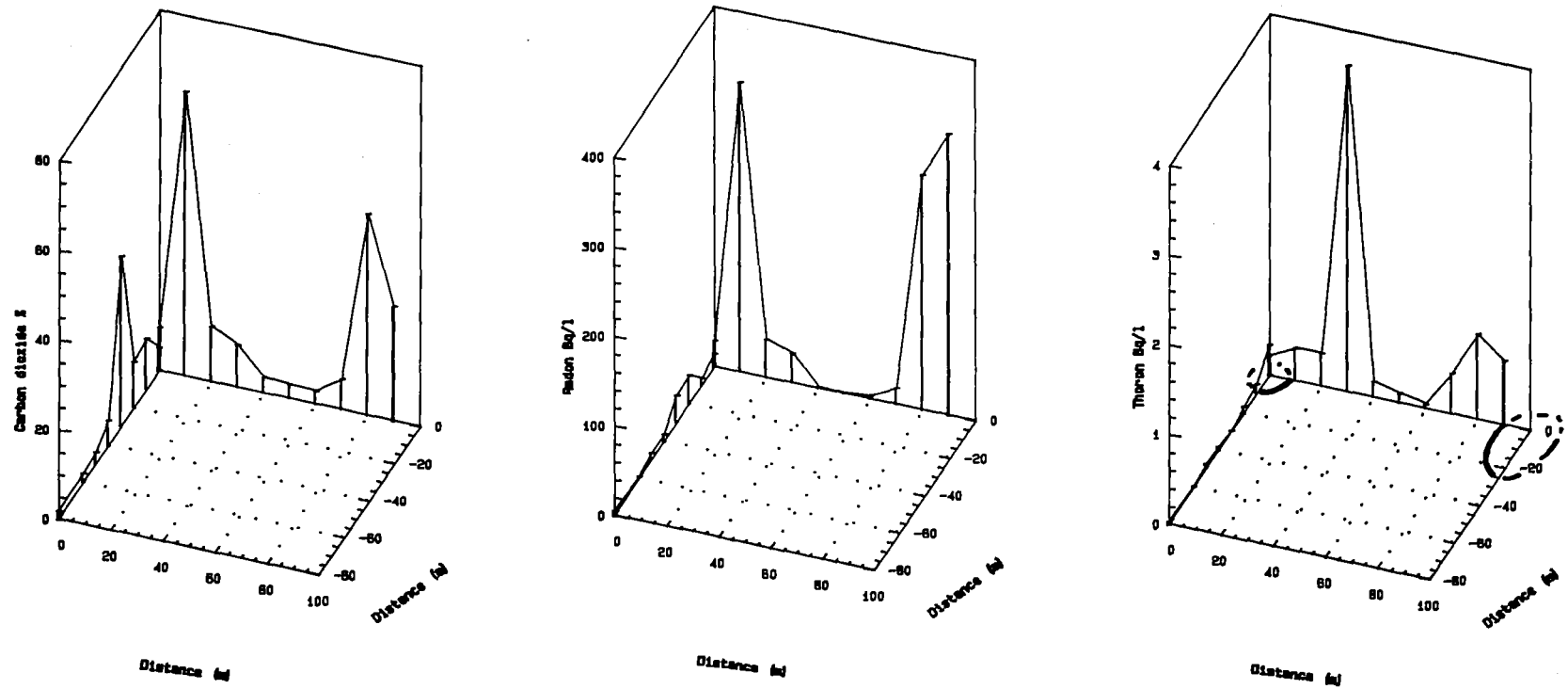


Figure 7. Orthogonal plot showing soil gas carbon dioxide, radon and thoron near fumaroles at La Union, Costa Rica. Heavy line denotes fumarolic areas.

TABLE 1 : THE URANIUM - 238 DECAY SERIES

Isotope	Decay	Half Life
U-238	$\alpha$	$4.468 \times 10^9$ y
Th-234	$\beta$	24.1d
Pa-234(m)	$\beta$	1.18m
Pa-234	$\beta$	6.7h
U-234	$\alpha$	$2.48 \times 10^5$ y
Th-234	$\alpha$	$7.52 \times 10^4$ y
Ra-226	$\alpha$	1602y
Tn-222	$\alpha$	3.825d
Po-218	$\alpha$	3.05m
Pb-214	$\beta$	26.8m
At-218	$\alpha$	2s
Bi-214	$\alpha$	19.7m
Po-214	$\alpha$	$1.64 \times 10^{-4}$ s
Tl-210	$\beta$	1.32m
Pb-210	$\alpha$	22.3y
Bi-210	$\alpha$	5.02d
Po-210	$\alpha$	138.3d
Tl-206	$\beta$	4.19m
Pb-206	stable	

TABLE 2 : THE THORIUM - 232 DECAY SERIES

Isotope	Decay	Half Life
Th-232	$\alpha$	$1.39 \times 10^{10}$ y
Ra-228	$\beta$	5.75y
Ac-228	$\beta$	6.13h
Th-228	$\alpha$	1.913y
Ra-224	$\alpha$	3.64d
Tn-220	$\alpha$	54.7s
Po-216	$\alpha$	0.145s
Pb-212	$\beta$	10.64h
Bi-212	$\alpha$ 37 %	60.5m
Tl-208	$\beta$	3.1m
Bi-212	$\beta$ 63 %	60.5m
Po-212	$\alpha$	$3.04 \times 10^{-7}$ s
Tl-208	$\beta$	3.1m
Pb-207	stable	



## 5.2. Regional scale exploration

Investigations outlined above are examples of exploitation on a tactical scale. Examples of more strategic studies are given below.

### LONGONOT AREA, KENYA

South of Longonot a large low lying area is obscured by recent ash fall and sheet wash deposits. Figure 6 illustrates carbon dioxide values along traverses up to 30 km long at a sampling interval of 500 m.

Two separate zones of high values with associated thoron (not shown), occur near the eastern end of the traverses and can be related, firstly to the extension of a volcanic alignment through Longonot, and secondly to fumarolic activity related to faults in the Mount Margaret area. Previously unknown shallow heat anomalies were found by pitting on the carbon dioxide anomalies.

### KOROSI - PAKA AREA, KENYA

Traverse data for a similar sediment filled trough between Korosi and Paka volcanoes (N. Kenya) are shown in Figure 8. Owing to an exceptionally wet "dry season" there was intense biological activity which gave rise to high carbon dioxide levels. A simple correction for the biological effect was made by attributing the depletion of the oxygen (below the 21 % present in air) to biological conversion to carbon dioxide. Any carbon dioxide unaccounted for by this process was presumed to have entered the soil from geothermal activity related to underlying faults.

Figure 8 gives the "corrected" profile for carbon dioxide. An anomalously high value of 2.7 % carbon dioxide was observed on line with a fault scarp. Other less pronounced anomalies lie in well covered ground and probably indicate other structures which may access a geothermal reservoir.

## DISCUSSION

### 6.1. Possible controls on the origin and distribution of radon.

Tables 1 and 2 summarise the decay of U-238 and Th-232. The decay chain of U-238 may be divided into two sections separated by Ra-226 which has a half-life of 1622y. Earlier isotopes mostly have long half-lives, whilst the half-lives of the later isotopes are relatively short. Uranium completely separated from its daughters takes one million years to achieve 91 % secular equilibrium. In contrast the time taken for secular equilibrium to be achieved in the thorium decay series is very much shorter at about 70 yrs.

Because of its short half life (3.82 days) the mobility of radon is lower than expected from its noble gas properties. Radon is however likely to be carried on other gases and the similar distribution patterns observed for radon and carbon dioxide, indicates that in the geothermal environment the carrier effect is dominant. If generated at depth, radon, in order to retain high activities has to travel long distances quickly. Normally there are obvious high velocities at steam vents. D'Amore (1975) showed that the likely transmission time, from aquifer to wellhead at Lardarello, was about four days.

There is little likelihood of there being significant uranium mineralisation in geothermal systems because of the instability of uranium carbonate complexes at high temperatures. (Langmuir, 1977). However it is probable that Ra-226 is leached from the host rock, complexed by carbonate and chloride, and transported to the root zone of fumaroles, where on boiling, caused by pressure release or increased temperatures, the radium remains but there is a consequent efficient transfer of radon to the gas phase. Further supporting evidence is the observation that radon is often highest in

fumarolic areas where carbon dioxide is highest, and radium has been identified in alkaline hot springs in the Rift Valley. Furthermore for the same areas, wells which penetrate deeper into the aquifer generally have lower radon in the gas phase than do the fumaroles. It is likely that some at least of the radon and probably all the thoron is introduced

into the gas phase during transport from the conduit lining and during permeation through the soils and unconsolidated overburden. Armanson et al. (1986) have shown that the concentrations and isotopic ratios of radon are not controlled by water/rock equilibrium reactions.

Most geothermal systems are in rocks

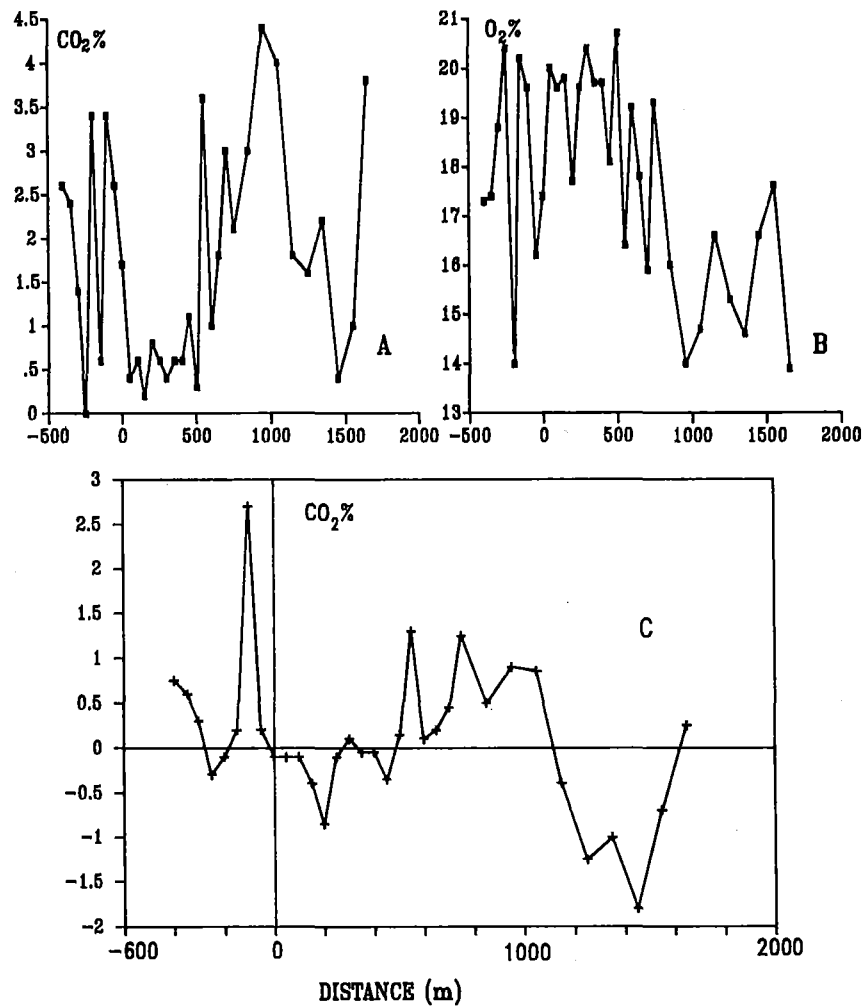


Figure 8. Traverse data for carbon dioxide (A), oxygen (B) and corrected carbon dioxide (C) across a sediments filled trough between the Korosi and Paka volcanoes in Kenya. Cross-hatching indicates trachytes, dotted ornament alluvium.

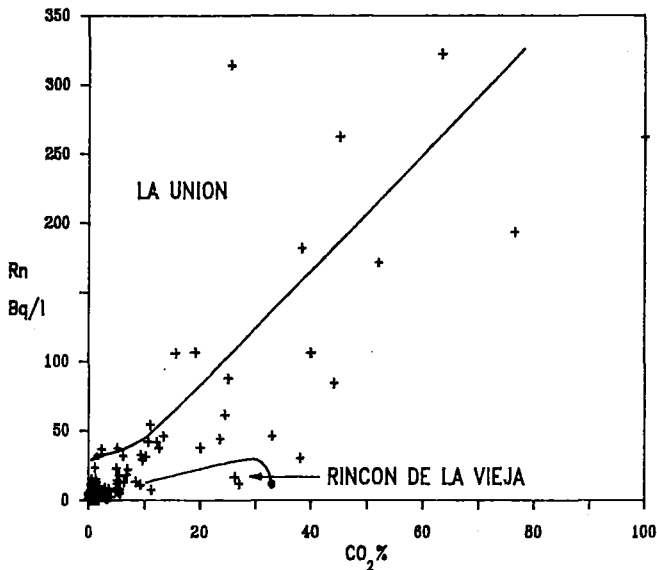


Figure 9. Radon vs carbon dioxide variation diagram for fumaroles and soil gases in the Guayabo area, Costa Rica. The field for La Union and Rincon de la Vieja (Las Paillas) areas are denoted.

which are often considerably less than one million years old. The availability of radon is thus partly dependent on the age of the rock. The actual level of radon depends upon a variety of factors. The rate of transport of fumarolic gases to the surface, the concentration of uranium and thorium in the substrate, the mineralogy, especially the nature and integrity of the radioelements, the age of the substrate and the geochemistry of the ground waters, will all affect the concentration at surface.

## 6.2. Radon - carbon dioxide ratios and permeability.

Figure 9 illustrates data for fumarolic areas in Costa Rica and includes data from the fumaroles spatially associated with boreholes of especially high permeability in the La Union area. Radon and  $Rn/CO_2$  is high in these fumaroles, an indication of rapid transport from the aquifer. The same figure contains the field for the Rincon de la Vieja fumaroles, an area considered to have low potential and where there are low values of radon. It is probable that the permeability of rocks in this area is low, or that the bulk of the fumarolic fluids are derived from relatively shallow depths.

In Kenya high levels of carbon dioxide and radon have been found over geothermally

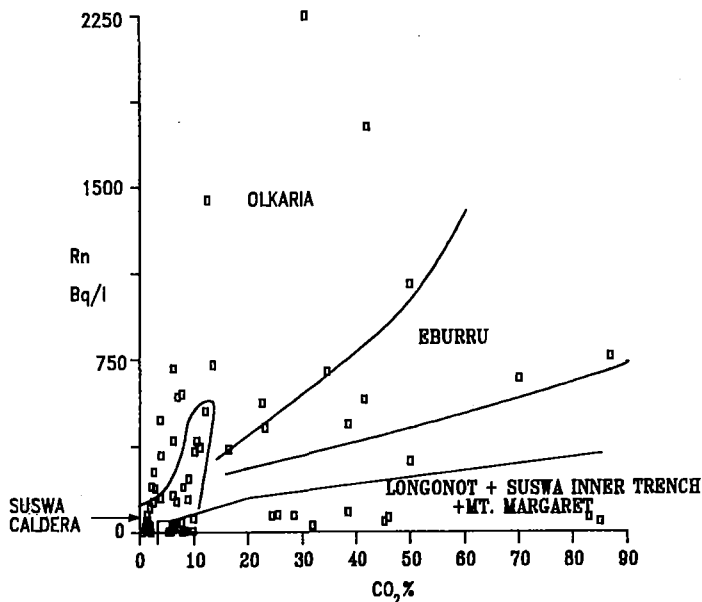


Figure 10. Radon vs carbon dioxide variation diagram for fumaroles and soil gases in the Lake Naivasha area, Kenya.

active zones associated with the Olkaria Field. Figure 10 shows radon vs carbon dioxide data for the southern Rift Valley including the productive Olkaria field, the Eburru field and also less productive areas. On the basis of this diagram Eburru would have less potential than Olkaria, with Longonot having lower potential than either.

The radon concentrations are thus correlated to the overall permeability of the rocks underlying the vents. This confirms findings for the New Zealand geothermal fields (Whitehead, 1980). He concluded that the covariance of radon and carbon dioxide gave useful information concerning permeability, and that negative correlation indicated low permeability. Armannson et al. (1986) also concluded that, on the basis of radon levels, gas ratios and thermometry, there was evidence of good permeability in the Theistareykir geothermal area in Iceland.

## CONCLUSIONS

Gas geochemical orientation surveys in areas of recognised geothermal potential, in the Rift Valley of East Africa, and in a supra-subduction zone in Costa Rica, have included detailed surveys of soil gas compositions in fumarolic areas. Anomalous concentrations of carbon dioxide and radon have been detected over all geothermally active zones and there is a similarity in behaviour in both regions at a local level. The extent of gas emanation is very much greater than appears from the fumaroles alone, there being considerable permeation of carbon dioxide and radon through the surrounding unconsolidated overburden and soils.

The south Longonot Caldera Fault is thermally active with the emission of carbon dioxide and thoron allowing this fault to be traced under a thick covering of ash. However the absence of Rn-222 may indicate low permeability.

Regional scale exploration in areas with few exposures and covered by transported overburden has identified gas emitting structures co-linear with volcanic alignments (e.g. the Mount Margaret area SE of Longonot) and with fault zones. Yamaguchi et al. (1985) used soil gas carbon dioxide and radon surveys to confirm lineament mapping from ground probing radar surveys. In Hawaii Cox (1983) and Thomas, Cuff and Cox (1986) have shown that high radon values are related to near surface hydrothermal activity, the nature of the overburden and the presence of fractures. Temporal variation is affected more by seismic and volcanic activity than by changing atmospheric conditions.

Most geothermal areas are located in areas which contain recent volcanic rocks. Therefore a study on a regional scale for radon distribution must take into account the relative ages of the rocks as well as the radioelement concentration. Meaningful background and peak values can only be determined for each rock type and age.

The soil gas methods employed in this study provide a rapid and accurate field analysis of soil gases and as such are a very useful adjunct to the various methods employed in the exploration for geothermal energy supplies. Using field methods the exploration procedures may be continuously updated with consequent improvement in logistics. Preliminary results indicate that field carbon dioxide and radon determination can provide a rapid assessment of the fertility of a geothermal system.

## REFERENCES

- ANON. 1976, Guanacaste Geothermal Project, Technical Report. Instituto Costarricense de Electricidad.
- ANON. 1983, Proyecto Geotermico Miravalles. Investigaciones Adicionales, Informe Final. Electroconsult Milano Italia.

- ANON.** 1983, Pre-feasibility Study Report for the Rift Valley Geothermal Development Project in the Republic of Kenya, Japan International Cooperation Agency.
- ANON.** 1987, Geothermal reconnaissance survey in the Menangai-Bogoria area of the Kenya Rift Valley. Final Draft Report Part IV-Hydrogeology. Report by Geothermica Italiana srl. TCD CON 7/85 KEN 82/002.
- ARMANNSON H., GISLASON G and TORFASON H.** 1986, Surface exploration of the Theistareykir high-temperature geothermal area, Iceland, with special reference to the application of geochemical methods. *Applied Geochemistry*, 1, 47-64.
- BALL T.K., HEXTALL J., NICHOLSON R.A. and PEACHEY D.** 1983, Application of the Orsat stack gas analyser to geochemical exploration research. *Transactions of the Institute of Mining and Metallurgy*, vol 92B, 49-51.
- BLISS C.M.** 1979, Geology and Petrochemistry of the Naivasha area, Kenya Rift Valley. Unpublished PhD thesis, University of Lancaster.
- CLARKE M.C.G. WOODHALL D.G. ALLEN D. and DARLING G.,** 1990, Geological, volcanological and hydrological controls on the occurrence of geothermal activity around Lake Naivasha, Kenya. *Memoir of the Ministry of Energy, Republic of Kenya.*
- COX M.E.** 1983, Summit outgassing as indicated by radon, mercury and pH mapping, Kilauea volcano, Hawaii. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 16, 131-151.
- D'AMORE F.** 1975, Radon-222 Survey in Lardarello Geothermal Field, Italy (Part 1). Vol. 4, 1-4.
- LANGMUIR, D.** 1978, Uranium solution-mineral- mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochemica et Cosmochimica Acta*, vol 42, 547-
- MORSE R.H.** 1976, Radon counters in Uranium Explorations. In : *Exploration for Uranium Ore Deposits*, IAEA Vienna.
- SCOTT S.C.** 1977, The volcanic geology and petrology of Mt. Longonot, central Kenya. Unpublished PhD Thesis, University of Reading.
- SCOTT S.C.** 1980, The geology of Mt. Longonot Volcano, central Kenya; a question of volumes. *Philosophical Transactions of the Royal Society, London*, Vol., 296, (A1420), 437-465.
- TANNER A.B.** 1964, Radon migration in the ground : a review. In : *The Natural radiation Environment* (Eds. Adams J.A.S. and Lowder W.M.) 161-190, Chicago University Press.
- THOMAS D.H., CUFF K.E. and COX M.E.** 1986, The association between ground gas radon variations and geologic activity in Hawaii. *Journal of Geophysical research*. 91 (B12), 186-198.
- YAMAGUCHI Y., HASE H., YANO Y. and KINUGASA Y.** 1985, Lineament analysis of radar images and associated soil gas surveys in the Hoho geothermal area. *Energy Developments in Japan*. 7 (4), 369-391.

# DISTRIBUTION DE L'EMANATION RADON EN FONCTION DE L'HYDROGEOLOGIE, DE LA LITHOLOGIE, DE LA RADIOGEOCHIMIE (Ra-Th-K<sub>2</sub>O). CAS DU PUIT DE L'ECOLE DES MINES DE MONS (BELGIQUE).

Par Pascal DOREMUS, Véronique KOTZMANN-ROUTIER, Yves QUINIF, Alain RORIVE.  
Faculté Polytechnique de Mons, rue de Houdain 9, 7000 Mons - Belgium

## RESUME

*Une étude pluridisciplinaire appliquée au radon est engagée sur le site du puits de l'Ecole des Mines à Mons (Belgique) qui traverse des terrains cénozoïques et mésozoïques et recoupe trois aquifères.*

*Les résultats présentés tiennent compte des observations lithostratigraphiques, du dosage en spectrométrie gamma des teneurs en Ra, Th, K<sub>2</sub>O et des éléments hydrogéologiques disponibles, ceci, dans le but d'améliorer notre connaissance sur l'émanation radon, notamment en fonction des variations du niveau des nappes aquifères.*

## ABSTRACT

*A radon applied pluridisciplinary study is carried out on the "Puits de l'Ecole des Mines" located at Mons (Belgium). This well goes through cenozoic and mesozoic terranes and crosses three aquifers.*

*Lithostratigraphic observations, Ra, Th and K<sub>2</sub>O ratios by gamma spectrometry and many hydrogeological informations are presented and correlated with the radon emanation. First results and interpretation are presented.*

## INTRODUCTION

L'étude du puits de l'Ecole des Mines s'inscrit dans un programme de surveillance générale du Bassin de Mons (les relations entre l'émanation radon, séismes et marées terrestres y sont étudiées).

Le puits de l'Ecole des Mines de Mons occupe une place particulièrement intéressante puisqu'il se situe dans la partie centrale du Bassin de Mons proprement dit et rencontre des terrains d'âge tertiaire et secondaire sur 170 mètres de profondeur (fig.1).

Les échantillons du forage, exécuté au début du XX<sup>ème</sup> siècle (Cornet, 1906), ont été soigneusement conservés, ce qui nous a permis d'en analyser un certain nombre par spectrométrie gamma et d'en connaître ainsi les teneurs en radioéléments (Ra, Th, K<sub>2</sub>O).

### I. Présentation géologique et géochimique de l'étude.

**a. Lithologie.** Les terrains recoupés dans ce puits sont de diverses natures. On trouve (fig.2) selon J. Cornet (1906) : la lithographie présentée au tableau 1.

#### **b. Données hydrogéologiques.**

Le puits de l'Ecole des Mines traverse trois aquifères séparés par des niveaux argileux

- la nappe phréatique ou yprésienne;
- la nappe du Landénien;
- la nappe des "Craies" du Bassin de Mons.

La nappe yprésienne, en surface, est peu importante (+/- 10 m). Les argiles de l'Yprésien inférieur en forment le mur imperméable et isolent parfaitement la nappe phréatique de la nappe sous-jacente du Landénien.

La nappe du Landénien est faiblement perméable. Sa puissance est de 34,90 m. Sa base (l'Infralandénien) l'isole mal de la nappe des Craies, en dessous.

L'aquifère des "Craies" se situe en son sommet dans le Montien inférieur et trouve un mur imperméable dans les marnes du Turonien à plus de 300 m de profondeur (non traversé par le sondage).

De ces trois nappes, l'aquifère des craies est de loin le plus grand producteur en eau (Godfriaux et Rorive, 1987). Le niveau piézométrique du puits est mesuré mensuellement.

#### **C. Minéralogie des argiles (fig.2)\***

D'après les diffractogrammes, quatre groupes d'échantillons se distinguent :

. **le groupe 1** où les échantillons n'ont pas donné de diffractogrammes exploitables, seuls des minéraux non argileux sont déterminables. Les échantillons 3 et 5 proviennent de

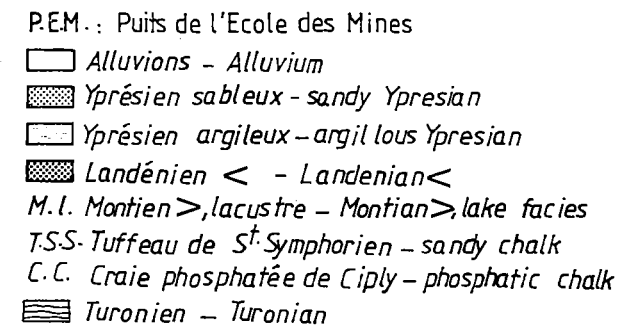
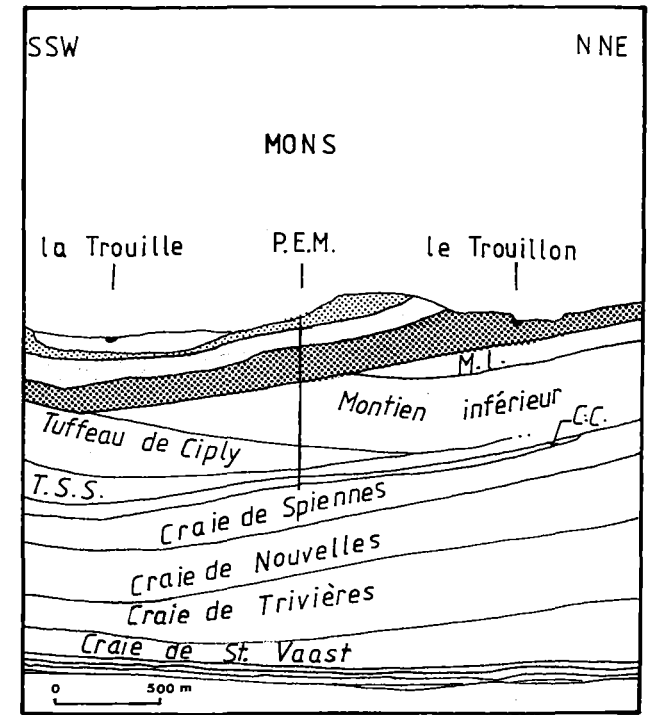
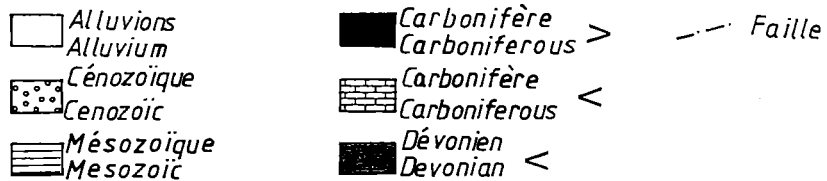
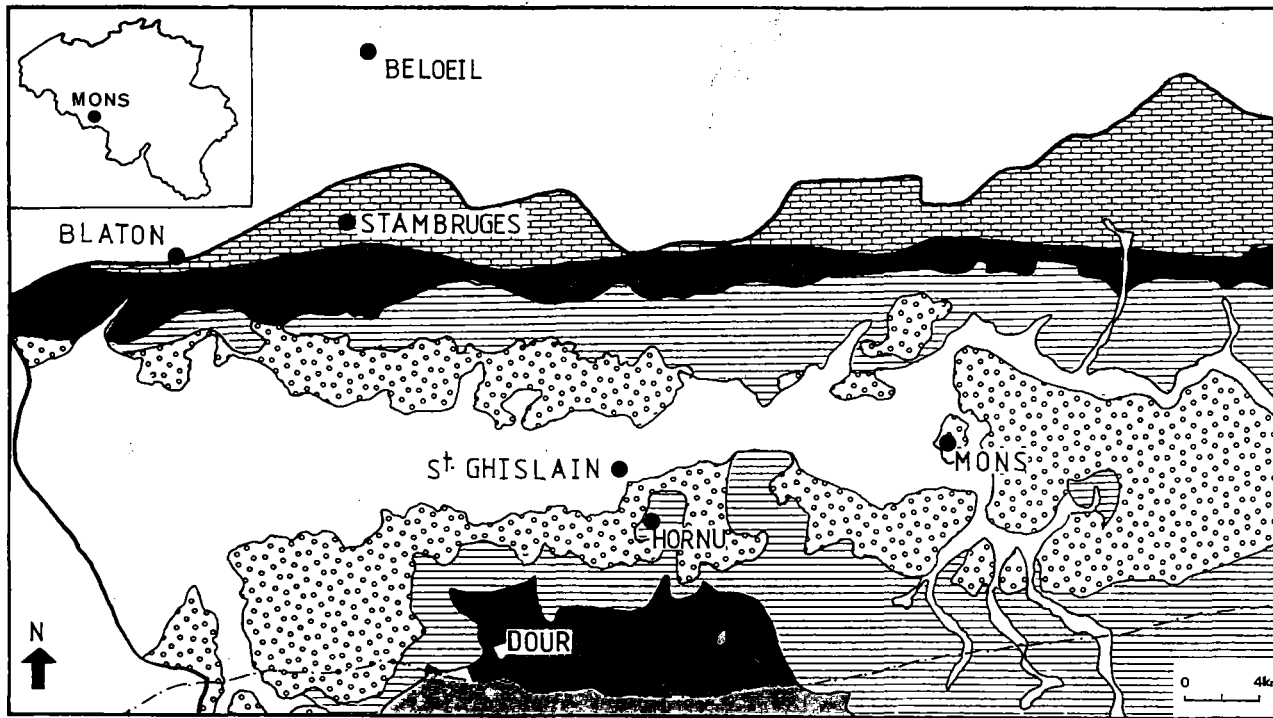


Figure 1. A. Physionomie d'ensemble du Bassin de Mons. B. Coupe géologique dans la partie centrale du Bassin de Mons.

Tableau 1. Lithostratigraphie du puits de l'Ecole des Mines.

TERRAINS RENCONTRES		EPAISSEUR	PROFONDEUR DE LA BASE
- des terrains remaniés		4.00	4.00
<b>C E N O Z O I Q U E</b>			
l'Yprésien	. sable fin	2.50	6.50
	. argile gris bleu +/- sableuse	20.20	26.70
- Landénien sableux		34.90	61.60
- Infralandénien (marnes sableuses glauconifères principalement)		7.40	69.00
- du Montien inférieur		82.35	151.35
<b>M E S O Z O I Q U E</b>			
- Maestrichtien . tuffeau et poudingue de Saint- Symphorien		5.65	157.00
. craie phosphatée de Ciply		3.00	160.00
. craie de Spiennes		10.00	170.00

l'Yprésien et du Landénien sableux, le n°22 du tuffeau de Saint-Symphorien.

. **le groupe 2** où la fraction argileuse n'est représentée que par la smectite (échantillon n°12 situé au sommet du Montien).

. **le groupe 3** où la fraction argileuse est constituée d'un mélange dominé par la smectite qui est associée à l'illite et/ou la chlorite et/ou à la kaolinite. Il regroupe de nombreux échantillons du Landénien (n°6,7,8) et de l'Yprésien.

. **le groupe 4** où la fraction argileuse est constituée d'un mélange de smectite et d'illite avec des interstratifiés illite/smectite. Il regroupe des échantillons de l'Infralandénien (10 et 11), du Montien (16,17,19,21) et du Maestrichtien (23).

#### d. Etude radiogéochimique (fig.2).

A partir du log stratigraphique, 25 points ont été sélectionnés pour l'implantation de détecteurs radon dans les eaux selon une méthode développée à la FPMs (Doremus et

al., 1988). Trois radioéléments naturels (Ra, Th, K<sub>2</sub>O) ont été dosés à partir des échantillons rocheux correspondant aux niveaux sélectionnés pour l'étude de l'émanation radon, par spectrométrie gamma sur une chaîne de mesure automatisée (Quinif et al., 1985).

On observe une variabilité des teneurs en radium déterminant nettement deux zones:

. l'une au niveau de l'échantillon 22 (tuffeau de Saint-Symphorien) où le radium atteint une concentration de 22 ppm : il s'agit d'une formation qui contient de petits nodules phosphatés;

. l'autre s'étale depuis le sommet du Montien inférieur jusqu'à la base du Landénien. Les teneurs n'excèdent pas ici les 7 ppm.

En ce qui concerne les teneurs en thorium et potassium, elles évoluent de façon identique. La pauvreté en éléments détritiques se traduit par des teneurs en Th et K<sub>2</sub>O nulles. De plus, on remarquera que le groupe 3 défini au paragraphe c de ce chapitre donne les teneurs les plus élevées en Th et K<sub>2</sub>O.



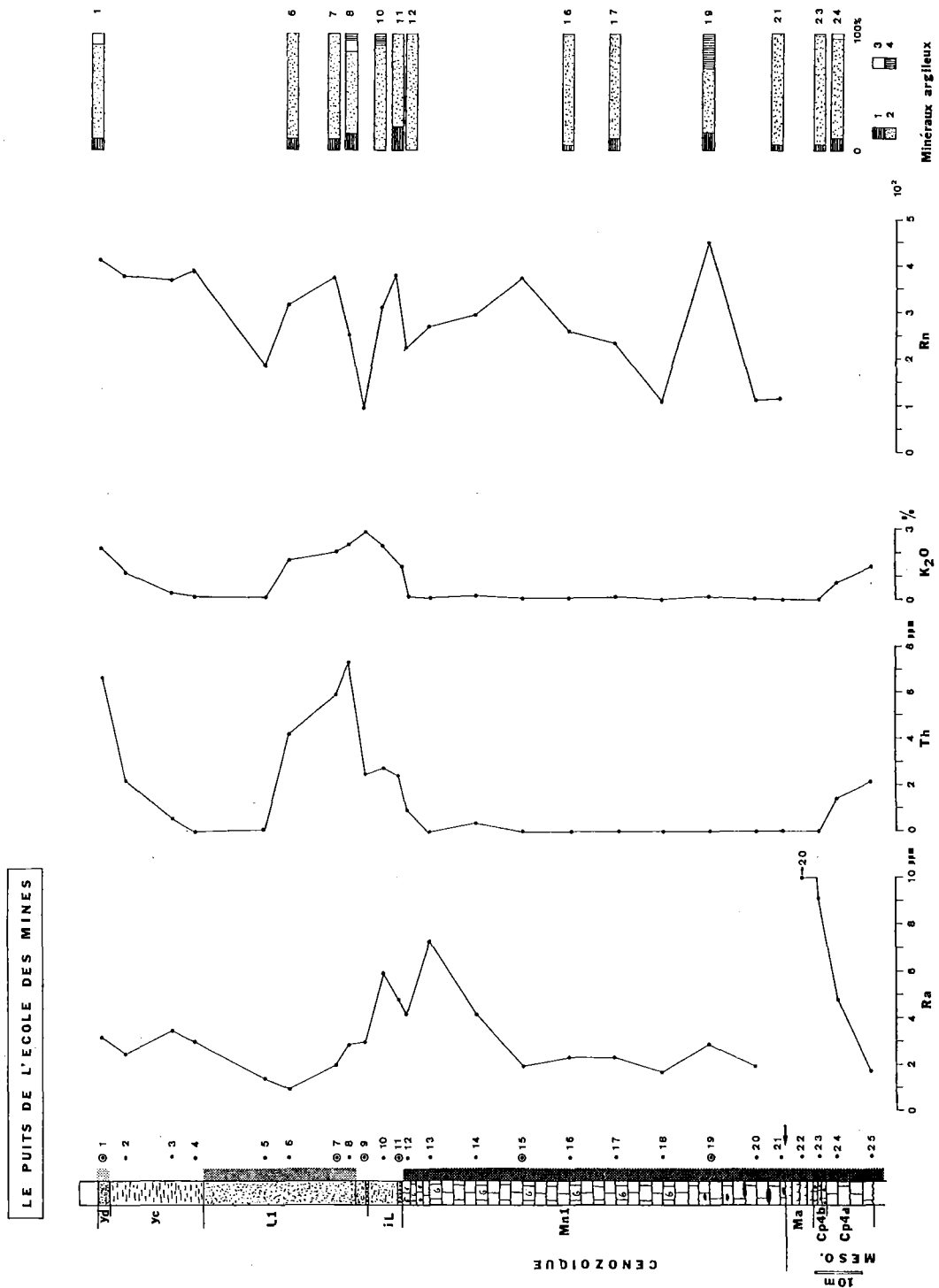


Figure 2. Le puits de l'École des Mines : présentation lithologique, radiogéochimique, log radon et minéralogie des argiles.

I. Nappe Yprésienne, II. Nappe landénienne, III. Nappes des "craies". 1. Illite, 2. Smectite, 3. Kaolinite, 4. Interstratifié.

## II. Les résultats des mesures radon.

Dans un premier temps, il a été choisi de suivre l'évolution des teneurs radon le long du profil du puits dans les trois aquifères et face au maximum de formations.

La deuxième étape a consisté à réduire le nombre de détecteurs selon les premiers résultats obtenus afin d'alléger la manipulation et d'établir une routine de mesures bimensuelle.

### 1. Le log radon.

Vingt-et-un détecteurs ont été disposés le long du puits. La profondeur initiale était de 170 m; 20 m ont, au cours du temps, été colmatés. Nous n'investiguons donc que sur 150 cm les formations décrites plus haut (paragraphe I). Les 21 points ont été choisis en fonction de la description du sondage de J. Cornet (1906) et de l'épaisseur des couches traversées.

La moyenne des trois premières séries de mesures en chaque point est représentée figure 2.

Nous avons, en fonction des étages stratigraphiques, tenté d'établir un classement par famille des points de mesures.

L'Yprésien montre la concentration moyenne la plus élevée, le Landénien et le Montien révèlent eux des moyennes d'autant moins fortes que les couches de terrains sont plus profondes. Plusieurs remarques s'imposent:

- . l'épaisseur de l'Yprésien est faible et tous les détecteurs placés dans cet étage mettent en évidence des teneurs comparables alors que de fortes fluctuations s'observent dans le Landénien et le Montien plus épais;
- . une chute remarquable s'observe au passage de l'Infralandénien-Landénien.

### 2. Choix des points de surveillance.

Nous avons restreint le nombre de détecteurs en fonction des réponses les plus significatives et aussi de manière à garder au moins un détecteur dans chacun des étages stratigraphiques. Nous avons choisi les détecteurs 1,7,9,11,15,19 pour le suivi bimensuel, à cela plusieurs raisons :

- \* les détecteurs situés dans l'Yprésien ont en

moyenne des teneurs voisines; par conséquent, un détecteur dans cet étage devrait être suffisant (1);

\* par contre, le passage Montien-Landénien est plus délicat puisque nous observons figure 2 des ruptures de pentes importantes avec un pic rentrant au niveau du détecteur 9 indiquant des teneurs relativement basses en radon. Nous avons donc gardé le détecteur 9 ainsi que les 7 et 11 qui l'encadrent et ont des teneurs élevées (7 est situé dans le Landénien alors que le 11 est à l'interface Montien-Infralandénien).

Les deux derniers détecteurs 15 et 19 situés dans le Montien ont été choisis pour leurs teneurs élevées. De plus, le Montien étant la formation la plus épaisse, il est nécessaire à l'encontre de l'Yprésien et du Landénien d'y avoir plusieurs points d'observation.

### 3. Les résultats du suivi bimensuel (fig.3).

25 mesures ont été réalisées de novembre 1989 à novembre 1990.

En représentant graphiquement les résultats, nous avons déterminé cinq types de courbes dont les caractéristiques sont les suivantes :

- . type 1 (fig.3a) : le détecteur 9 dessine un pic rentrant comparable à celui de la figure 4;
- . type 2 (fig.3b) : le détecteur 9 dessine un pic rentrant et le détecteur 11 un pic sortant bien marqué;
- . type 3 (fig.3c) : le détecteur 9 dessine un pic sortant;
- . type 4 (fig.3d) : il n'y a pas de pic franc mais une zone sortante dans la partie supérieure du log;
- . type 5 (fig.3e) : il n'y a pas de pic franc mais une zone rentrante dans la partie supérieure du log.

La moyenne des mesures (fig.3f) de chaque détecteur ne laisse entrevoir qu'un pic faible rentrant au niveau du détecteur 9 et une décroissance des concentrations radon depuis le sommet du puits jusqu'à sa base.

On remarquera que les fluctuations se font principalement dans la zone de transition allant du Montien (détecteur 11) au Landénien (7); zone qui sépare les deux aquifères des "craies" et du Landénien.

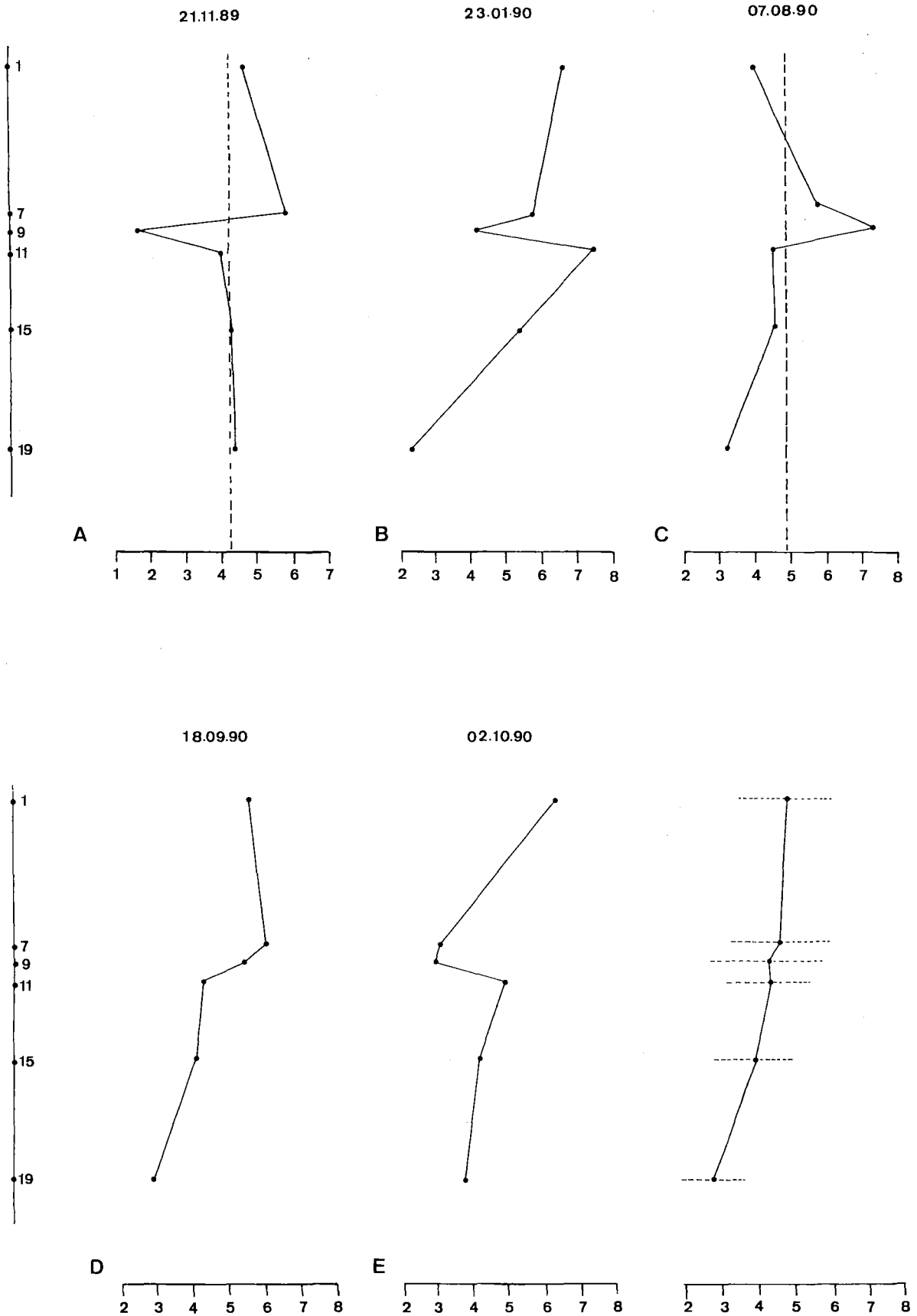


Figure 3. Types de logs radon rencontrés au cours du temps. Les teneurs en Rn sont exprimés en  $10^2$  pCi/détecteur pour 14 jours de mise en stations.

Tableau 2 : Synthèse de l'analyse de la forme des logs radon.

TYPE	Pic rentrant	Pic sortant	Pas de pic franc	Nbre de cas	Courbes à pic
1	détecteur 9			7	52 %
2	détecteur 9	détecteur 11		2	
3		détecteur 9		4	
					Courbes sans pic
4			zone sortante	7	48 %
5			zone rentrante	5	
TOTAL				25	

Actuellement, nous ne sommes pas à même d'interpréter nos observations comme ont pu le faire Magri et Tazioli (1970) qui, expérimentalement, avaient obtenu des modifications du log radon dans un puits en fonction des conditions hydrodynamiques de celui-ci (statique, injection, pompage). Il en est de même de Fukui (1985) qui a noté les effets dûs aux pompages sur la distribution spatiale du radon.

Nous ne pouvons pas affirmer que les fluctuations de l'émanation radon observées au puits de l'Ecole des Mines soient dues à ce type de mouvement d'eau, ou à un phénomène de drainance : il n'y a aucune influence des pompages extérieurs sur la piézométrie.

Il nous faut dans une deuxième phase essayer de trouver les raisons des changements brutaux de la géométrie des courbes.

L'hypothèse de l'influence de la lithologie couplée à des paramètres à déterminer reste la plus probable.

## REFERENCES

**J. CORNET**, 1906. Documents sur l'extension souterraine du Maestrichtien et du Montien dans la vallée de la Haine (troisième note). Bull. Soc. belge de Géol., Paléont., Hydro, T.20, pp. 81-86, 1906.

**P. DOREMUS, Y. QUINIF, J.M. CHARLET**, 1988. Mise au point d'un détecteur passif du radon 222 en milieu saturé. Ann. Soc. géol. du Nord, T.CVII, pp. 211-219.

**M. FUKUI**, 1985. <sup>222</sup>Rn concentrations and

variations in unconfined groundwater.

J. Hydrol. (Amst.) NDL (1985), 79, n°1-2, pp. 83-94, 2 tab.

**I. GODFRIAUX, A. RORIVE**, 1987. L'aquifère des "craies" du Bassin de Mons in Les eaux souterraines en Wallonie, Bilan et perspectives.

ESO'87, Ministère de la Région Wallonne (Belgique).

**G. MAGRI, G.S. TAZIOLI**, 1970. Radon in groundwater of dolomitic and calcareous aquifer in Apula (Southern Italy).

Isot. Hydrol. Symp. Vienne, mars 1970. AIEA, pp. 835-845.

**R. MARLIERE**, 1973. Le Bassin de Mons in Région du Nord, Guides géologiques régionaux, 175 p. Masson & Cie, Editeurs. Paris.

**R. POCHET**, 1982. Dosimétrie de l'hélium et du radon dans l'eau et dans les sols saturés non "consolidés".

Uranium-méthodes. Proc. symp. Paris, OCDE, pp. 505-516.

**Y. QUINIF, Ph. LAIR, J.M. CHARLET**, 1985. Le dosage des radioéléments naturels U-Ra-Th-K<sub>2</sub>O par spectrométrie gamma sur chaîne de mesures automatisée, les applications aux Sciences de la Terre.

Bull. Soc. belge de Géol., T.94, fasc.4, pp. 255-267, Bruxelles 1985.

\* Nous remercions ici J.F. DECONNINCK de l'Université de Lille-Flandre-Artois qui nous a permis de réaliser les analyses minéralogiques en diffraction x et aidé à les interpréter.

# LA VARIABILITE DU RADON DANS LES GAZ DES SOLS : MODELISATION ET APPLICATION A LA PROSPECTION HYDROGEOLOGIQUE EN MILIEU FISSURE.

F. GUERIN et T. POINTET

Bureau de Recherches Géologiques et Minières  
BP. 6009 - 45060 ORLEANS CEDEX 02 (France).

## RESUME

*Le dosage du radon dans les gaz des sols, a fait l'objet de nombreuses études récentes de sites, destinées à mettre en évidence les discontinuités perméables du bedrock, en vue de l'implantation de forages à forts débits.*

*L'interprétation des signaux obtenus, en relation avec la productivité des sites, a conduit à un développement méthodologiques visant à un objectif essentiel : différencier les anomalies liées aux discontinuités réellement perméables de celles associées à l'enrichissement local en radioéléments des formations (dissémination superficielle, filons, fractures colmatées...) La démarche proposée repose sur l'utilisation de plusieurs méthodes complémentaires.*

*Cette communication traite plus particulièrement de l'une d'entre elles : l'étude de la variabilité spatiale des gaz.*

*Le problème est abordé d'un point de vue expérimental et théorique. Les résultats acquis montrent qu'un comportement structuré, au sens géostatistique, des émanations de radon peut témoigner d'un substratum plus perméable, donc favorable à l'implantation d'un forage d'eau.*

*A une autre échelle, la forte fluctuation aléatoire du radon dans l'espace souligne la difficulté d'estimer le "risque radon" à l'échelle de grandes surfaces.*

## ABSTRACT

*The use of radon -222, in soil gases, as a natural tracer of permeable discontinuities, has been studied in several selected sites in France.*

*The aim of this research is the optimal interpretation of radon anomalies for siting of high yield boreholes in fractured media.*

*Experimental and theoretical analysis of the radon signal show that, at a first stage, radon distribution in the fractured medium introduces a certain ambiguity as to the origin of the observed anomalies, whether or not the geological context is favorable to hydrogeological prospection. At a second stage, several methods seem to offer the possibility to differentiate the "productive" anomalies from the other.*

*One of these methods is presented in this paper : the study of the spatial variability of radon. The problem is tested in theoretical and experimentation way. Obtained results show that a more structured variability in radon distribution, revealed by geostatistical analysis, can be related to permeable basement; favorable to boreholes siting.*

*At a global scale the high randomly distribution of radon -222 in space underlines the difficulty to determine radon hazard at the scale of large areas.*

## INTRODUCTION

L'intérêt porté au radon-222, gaz radioactif naturel, n'est pas nouveau. En effet, depuis plusieurs années, de fréquentes études sont réalisées, appliquées aux principaux

domaines des sciences de la terre.

De nombreux exemples d'utilisation du radon peuvent être recherchés dans la synthèse bibliographique très complète publiée par A.B. TANNER (1978).

Si l'on s'intéresse aux émanations de

radon dans les gaz des sols et à une profondeur donnée sous l'interface sol-atmosphère, les activités volumiques mesurées peuvent être associées à la combinaison de deux processus:

- la production, in situ, de radon en fonction des caractéristiques du milieu;
- la migration du radon produit par un ensemble de sources émettrices distribuées dans l'espace.

De l'interaction de ces deux mécanismes va dépendre de la variabilité spatiale du radon dans les gaz des sols. Par ailleurs, dans les milieux cristallins peu perméables, la circulation des fluides est étroitement liée à la présence de discontinuités d'extension plus ou moins grande.

Il y a donc lieu de penser que, dans ce type de milieu, les dégagements de radon seront également influencés par ces discontinuités.

Plusieurs auteurs ont ainsi souligné l'étroite relation pouvant exister entre les émanations de radon et les zones plus fracturées de la roche (voir par exemple Israël et Bjornsson, 1967).

Sur la base de ces observations, l'hypothèse que le dosage du radon dans les sols puisse être utilisé pour rechercher les zones plus perméables du bedrock peut être raisonnablement formulée.

Cependant l'appartenance du radon-222 à la famille radioactive de l'uranium-238 génère une ambiguïté certaine quant à l'origine du signal observé : une anomalie détectée dans les sols sera-t-elle issue d'un enrichissement local en radioéléments ou d'une discontinuité perméable ?

Pour tenter de lever cette ambiguïté et disposer ainsi d'une réelle méthode de prospection des aquifères de socle, une méthodologie d'interprétation des émanations de radon a été proposée (Guérin, 1991). Cette méthodologie a pour objectif de différencier les phases de production et de migration du radon-222 dans les gaz des sols. Elle repose sur

l'utilisation croisée des méthodes suivantes :

- 1) l'analyse statistique des seuils d'activité d'une prospection radon (définition du seuil d'anomalie et du bruit de fond),
- 2) l'analyse de la structure des émanations, au sens géostatistique,
- 3) le dosage complémentaire du CO<sub>2</sub>, ainsi que la mesure de l'activité gamma de surface,
- 4) la reconnaissance détaillée des anomalies par l'étude des concentrations en fonction de la profondeur et les mesures de flux,
- 5) la modélisation bi ou tridimensionnelle de la géométrie des anomalies.

Dans le cadre de cette communication, nous nous intéresserons plus particulièrement à l'analyse de la variabilité spatiale des émanations de radon, à l'échelle plurimétrique, (<500m).

## PRODUCTION ET MIGRATION DU RADON : équations prises en compte.

Le flux total associé à la migration, par diffusion et advection, du radon dans le fluide de l'espace poreux est donné par :

$$\bar{J} = C_{Rn} \cdot \bar{v} - \epsilon De \nabla C_{Rn}$$

où

J = flux [ML<sup>-2</sup>T<sup>-1</sup>]

v = vitesse de Darcy de déplacement du fluide interstitiel [LT<sup>-1</sup>]

ε = porosité efficace (%)

De = coefficient de diffusion effective dans les fluides du milieu poreux [L<sup>2</sup>T<sup>-1</sup>]

C<sub>Rn</sub> = concentration en radon dans l'air de l'espace poreux [ML<sup>-3</sup>]

L'équation générale pour un transport dans l'air de l'espace poreux peut être exprimé sous la forme :

$$\frac{\partial C_{Rn}}{\partial t} = D e \nabla^2 C_{Rn} - \nabla \frac{V}{\epsilon} C_{Rn} - \lambda_{Rn} C_{Rn} + \varnothing \quad (1)$$

où

$\lambda_{Rn}$  = constante de désintégration du radon-222 [T<sup>-1</sup>]

$\varnothing$  = facteur de production in situ par unité de volume de pore [ML<sup>-3</sup>T<sup>-1</sup>]

= E.ps.C<sub>Ra</sub>.λ<sub>Rn</sub> (1-ε)/ε (voir par exemple Nazaroff et Nero, 1988).

avec E = pouvoir d'émanation global (%)

ps = masse volumique du matériau (kg.

C<sub>Ra</sub> = concentration en Radium du matériau (Bq.kg<sup>-1</sup>)

Notons que, dans les équations précédentes, la dispersion est négligée.

En régime permanent, plusieurs solutions de (1) sont disponibles dans la littérature pour des configurations monodimensionnelles et plusieurs types de conditions aux limites (Clements et Wilkening (1974), Collé et al. (1981), Grammakov (1958), Jeter (1980),...). Pour des configurations bidimensionnelles, les solutions peuvent être recherchées dans Landman et Rosenblat (1985) pour  $\varnothing$  et v nuls, dans un milieu discontinu, et

dans Guérin (1991) pour  $\varnothing$  nul, dans un milieu continu.

Si ces solutions peuvent être utilisées pour des configurations simples et idéales, elles ne sont guère adaptées à la complexité des anomalies associées aux milieux granitiques.

Pour cette raison un modèle simple aux différences finies a été développé pour simuler les phases de production et de migration du radon dans un milieu à 2 discontinuités.

La vérification de la résolution numérique a été réalisée, en régime stationnaire, par comparaison avec les solutions analytiques mentionnées précédemment.

La figure 1 présente un exemple de simulation 3D d'une anomalie radon dans un milieu à 2 discontinuités.

## VARIABILITE SPATIALE DES EMANATIONS DE RADON : résultats expérimentaux.

Un dosage du radon dans les sols a été réalisé, sur près de 90 sites, en France en vue de l'implantation de forages d'eau.

Sur ces différents sites, environ 30 étaient prospectés pour la recherche d'eaux thermominérales tandis que plus de 50 étaient situés en domaine granitique usuel, eau froide.

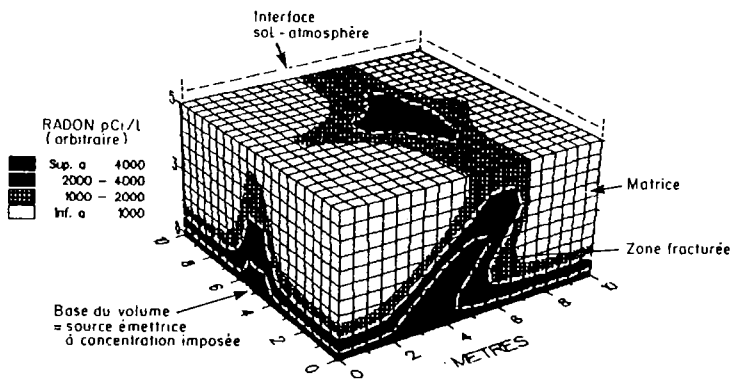


Figure 1. Exemple de simulation 3-D d'une anomalie Radon dans les gaz des sols.

a quasi-totalité des prospections sur les sites eaux thermominérale (ETM) a conduit à l'implantation d'un forage productif (en température et/ou en débit).

A l'inverse 17 prospections réalisées pour la recherche d'eaux froides ont conduit à un forage sec ou peu productif ( $Q < 2,4 \text{ m}^3/\text{H}$ ).

Le nombre d'échantillons sur chaque site varie entre 30 et 500 points, pour une moyenne d'environ 100 prélèvements (dosage par scintillométrie  $\alpha$ ).

Une maille d'échantillonnage régulière a été utilisée préférentiellement et les pas d'échantillonnage sont compris entre 5 et 100 m.

Afin de comparer la variabilité spatiale des émanations de radon sur ces sites, la méthodologie suivante a été utilisée :

- calcul systématique du variogramme expérimental des émanations sur chacun des sites,
- ajustement de celui-ci par un modèle théorique (voir par exemple Marsily 1986),
- sélection des sites présentant un schéma avec palier de type sphérique,
- calcul de l'effet de pépite relatif (rapport de l'effet de pépite au palier du variogramme, en %).

Chaque prospection peut alors être reportée dans un diagramme confrontant cet effet de pépite relatif au pas d'échantillonnage des prélèvements de radon. L'information apportée a trait à la continuité du phénomène pour une échelle d'observations croissante et pour un contexte hydrogéologique donné.

Les résultats (fig. 2 et 3) sont présentés pour un pas d'échantillonnage maximal égal à 100 mètres et un effet de pépite relatif compris entre 0 (modèle sphérique pur) et 100 % (modèle pépitique pur).

La comparaison des figures 2 et 3 illustre plusieurs tendances essentielles. Pour un pas d'échantillonnage inférieur à 50 mètres, la fluctuation aléatoire des émanations de radon sur les sites Eaux Thermominérales

(ETM) représente moins de 50 % de la variabilité spatiale du phénomène.

En revanche un effet de pépite pur peut être observé sur les sites eaux froides (HMF) pour un pas égal à 10 m.

La majeure partie des sites "Eaux froides" non productifs se caractérise par une importante composante pépitique (souvent 100 %).

Il est ainsi possible de différencier, par ordre de continuité décroissante des émanations, les différents types de sites :

- sites Eaux Thermominérales,
- sites Eaux froides productifs,
- sites Eaux froides peu productif.

Notons que pour réellement généraliser ces résultats, il serait nécessaire de disposer d'une part d'un plus grand nombre de sites et, d'autre part, de conditions d'échantillonnage plus régulières.

Le modèle suivant peut cependant être proposé.

- Si l'on associe la structuration des émanations aux voies potentielles de migration du radon dans un milieu discontinu, il y a lieu de distinguer les caractéristiques structurales théoriques des sites prospectés :

- drains d'extensions et d'ouverture importante d'une part (sites ETM),
- nombreuses fissures d'extension et d'ouverture limitée d'autre part, dont l'interconnexion contrôle la perméabilité locale du matériau (sites HMF).

Le premier contexte entraîne une distribution régulière et de grande amplitude du radon dans les sols.

Le second est marqué par une plus grande fluctuation du gaz. Le phénomène reste cependant structuré lorsque le milieu est réellement perméable.

Sur la base de ce modèle, un critère d'appréciation des résultats d'une prospection radon peut être proposé :

- pour un pas d'échantillonnage régulier et compris entre 10 et 40 mètres, la relation entre la potentialité aquifère et les émanations



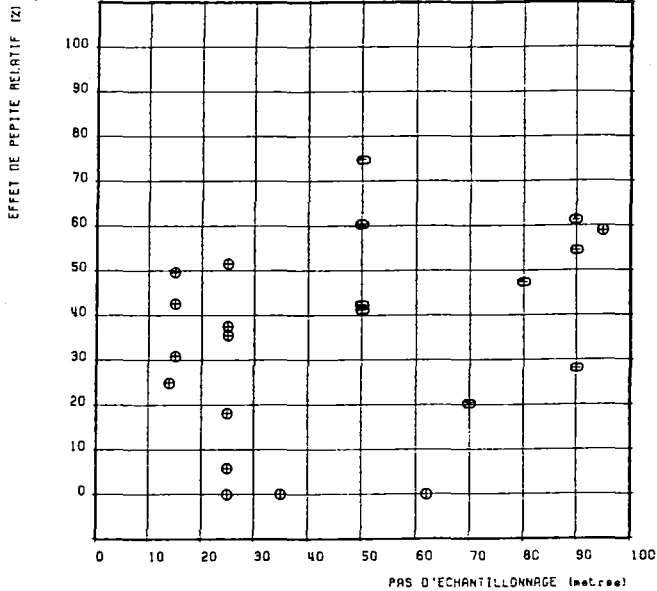


Figure 2. Evolution de l'effet de pépite relatif en fonction du pas de l'échantillonnage des émanations de radon : Sites Eaux Termominérales.

sera d'autant plus faible que la composante aléatoire liée à la distribution du radon sera forte.

### VARIABILITE SPATIALE DES EMANATIONS DE RADON : RESULTATS THEORIQUES.

Afin de vérifier dans quelles mesure les tendances mises en évidence, au plan expérimental, possèdent un équivalent théorique, les simulations ont été réalisées :

Nous considérons la migration du radon dans un parallélépipède rectangle de côtés  $x = 10$  m,  $Y = 10$  m et de hauteur  $z = 5$  m. La base du parallélépipède constitue une source émettrice de radon à concentration imposée. Cette concentration doit être interprétée comme la résultante d'un flux produit à plus grande profondeur. Le toit du parallélépipède représente l'interface sol-atmosphère et une concentration nulle y est imposée, en accord avec la plupart des résultats expérimentaux et théoriques (Cléments et Wilkening, 1974; Kristiansson et Malmqvist, 1984; Guérin, 1991). Une condition à flux nul est imposée sur toutes les limites verticales

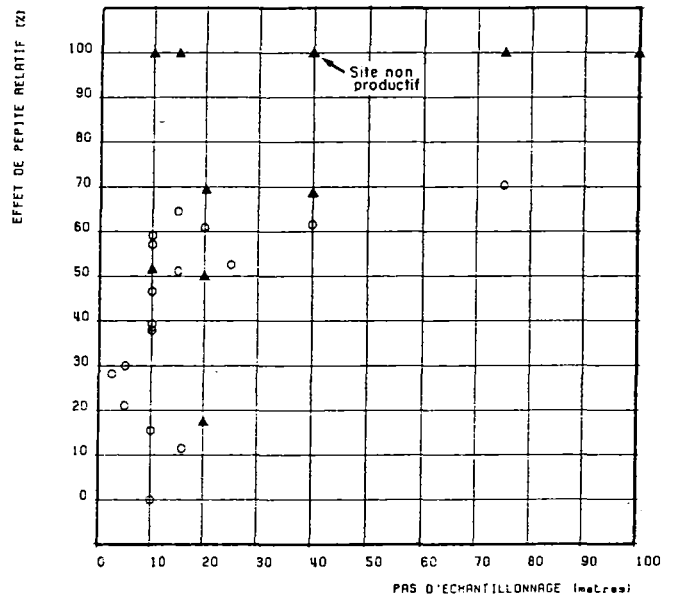


Figure 3. Evolution de l'effet de pépite relatif en fonction du pas d'échantillonnage des émanations de radon. Sites "Eaux froides".

du modèle.

- A l'intérieur de ce volume, 11 discontinuités verticales et orthogonales les unes aux autres sont progressivement introduites. Le réseau final obtenu est représenté sur la figure 4 (vue dans le plan horizontal). Ce schéma représente ainsi une "caricature" du milieu fracturé tant au niveau de la signification des fractures que de leur organisation.

Dans le cadre de cette communication, nous considérons que 2 options de migration correspondant aux cas respectifs où les "fractures" sont perméables et où elles sont colmatées. Les paramètres pris en compte sont fournis dans le tableau 1.

La discrétisation du volume simulé est effectuée à l'aide de mailles cubiques de 25 cm de côté et les résultats présentés concernent un plan d'échantillonnage situé à 75 cm de profondeur sous l'interface sol-atmosphère.

Les figures 5 et 6 illustrent les variogrammes calculés dans le cas où 10 fractures sont prises en compte, pour les options 1 et 2.

Deux comportements bien différenciés sont soulignés.

Tableau 1. Simulation 3D de la variabilité spatiale du radon. Valeurs des paramètres de migration.

Paramètres Options	Dem x 10 <sup>4</sup>	Def x 10 <sup>4</sup>	vf	ef/em	Signification
1	0,015	0,05	1.10 <sup>-6</sup>	10	Fractures perméables
2	0,015	0,0005	0	0,1	Fractures colmatées

Dem = coefficient de diffusion effective dans la matrice : m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>

Def = coefficient de diffusion effective dans les fractures : m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>

vf = vitesse de migration dans les fractures : m.s<sup>-1</sup>

ef/em = rapport des porosités fractures/matrice.

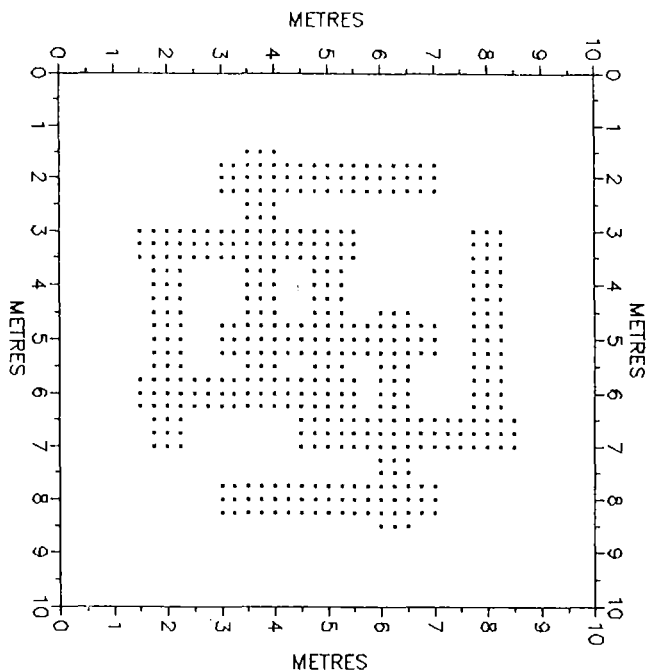


Figure 4. Migration du radon dans un milieu discontinu. Vue en plan (horizontale) des discontinuités prises en compte.

- Dans le cas où les fractures sont perméables, le processus simulé est très bien structuré, régulier et marqué par une grande continuité à l'origine (ajustement d'un modèle cubique sans effet de pépite).

Notons que ces résultats sont

reproductibles à l'échelle d'un grand nombre de simulations et pour plusieurs autres options de migration (Guérin, 1991).

En terme de continuité du phénomène radon, il est possible de transporter ces résultats aux données de terrain.

Ainsi un système à forte perméabilité, donc favorable pour l'implantation d'un forage d'eau, sera caractérisé par une distribution structurée des émanations de radon dans l'espace, la composante du signal associée au processus de migration étant dominante par rapport à la composante de production in situ.

## CONCLUSION

L'interprétation de la variabilité spatiale du radon dans les gaz des sols constitue une méthode potentielle d'identification de l'origine du signal observé.

Pour être tout à fait performante cette méthode doit cependant être couplée à d'autres techniques que nous n'avons pas abordé dans le cadre de cette communication (CO<sub>2</sub>, spectrométrie  $\gamma$ , mesure des flux, modélisation des anomalies observées,...).

Dans ces conditions la prospection radon constitue un apport conséquent aux techniques usuelles de prospection des

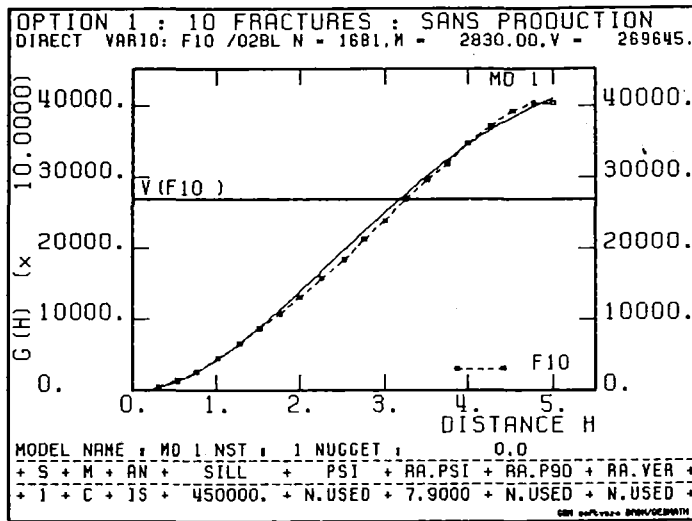


Figure 5. Variogramme moyen des émanations de radon simulées. Cas où les fractures sont perméables. (10 fractures).

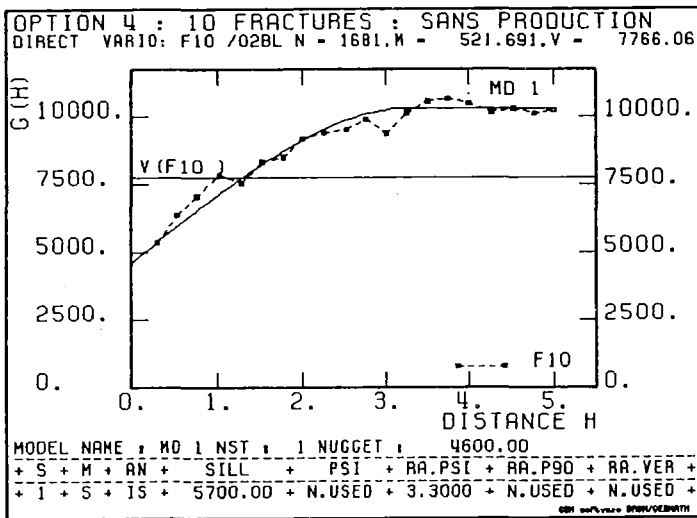


Figure 6. Variogramme moyen des émanations de radon simulées. Cas où les fractures sont colmatées. (10 fractures).

aquifères de socle (géophysique, télédétection...).

A une autre échelle, l'étude de la variabilité spatiale du radon nous montre qu'un échantillonnage ponctuel de ce gaz est peu représentatif du phénomène global.

En d'autre terme, la grande fluctuation aléatoire du radon sur de petites distances constitue un obstacle majeur à une cartographie du "risque radon", lié à de fortes concentrations. Dans la mesure où cette cartographie repose sur un échantillonnage disséminé sur de grandes surfaces, il semble en effet peu réaliste d'effectuer une interpolation "régionale" des concentrations mesurées.

## REFERENCES

- CLEMENTS W.E. and WILKENING M.H.** (1974) - Atmospheric pressure effects on radon-222 transport across the earth-air interface. *J. Geophys. Res.*, 79 (33), 5025-5029.
- COLLE R., RUBIN R.J., KNAB L.I., HUTCHINSON J.M.R.** (1981) - Radon transport through and exhalation from building materials : A Review and Assessment. (US National Bureau of Standards, Washington DC). NBS Technical Note 1139.
- GRAMMAKOV A.G., KVASHNEVSHAYA N.V., NOKONOV A.I. and SOKOLOV**

**M.M.** (1958) - Some theoretical and methodological problems of radiometric prospecting and survey. In Proceedings of 2nd UN Conférence on Peaceful uses of Atomic Energy, Vol. 2., pp. 732-43.

**GUERIN F.** (1991) - production et mécanismes de migration du radon-222 dans les milieux fissurés : Application à la recherche des discontinuités perméables du socle cristallin. Thèse Université paris VI, 282 P.

**ISRAEL H., BJORNSSON S.** (1967) - Radon (Rn-222) and thoron (Rn-220) in soil over faults. *J. Geophys.*, 33 (1), 48-64.

**JETER H.W.** (1980) - A modelling study of gaseous Rn-222, Xe-113 and He-4 for Uranium exploration. US Department of Energy. Grand junction, Colorado Report GJBX-1 40 (80).

**KRISTIANSSON K. and MALMQVIST L.**

(1984) - The depth-dependance of the concentration of 222-86Rn in soil gas near the surface and its implication for exploration. *Geoexploration*, 22, 17-41.

**LANDMAN K.A., ROSENBLATS S.** (1985) - Diffusion of a contaminant in fractured porous media. *Health Physics*, 48 (1) : 19-28.

**MARSILY G.** (1986) - Quantitative Hydrogeology, 440 p., Academic Press.

**NAZAROFF W.W., NERO A.V.** (eds) (1988) - Radon and its decay products in indoor air. J. Wiley & Sons. 548 pp.

**TANNER A.B.** (1978) - Radon migration in the ground : A supplementary review. In the *Natural Radiation environment III*, vol. 1, edited by **T.F. GESSELS and W.M. LOWDER**, Tech. Inform. Center. US Dep. Energy, Washington D.C.

## LA CARTOGRAPHIE DU RADON DANS LES EAUX NATURELLES DU HAINAUT OCCIDENTAL

V. KOTZMANN-ROUTIER

Faculté Polytechnique de Mons

Rue de Houdain 9

7000 MONS - BELGIQUE

### RESUME

*Le Bassin de Mons (Belgique) et ses abords constituent un domaine particulièrement intéressant pour mener une étude hydrogéochimique : présence de plusieurs aquifères dont les plus importants sont la nappe des craies et celle du calcaire carbonifère; présence de niveaux radioactifs dans les craies phosphatées et à la limite du Viséen-Namurien.*

*L'essai de cartographie radon-eau montre que le radon peut être utilisé comme traceur hydrogéologique.*

*Toutefois, cette cartographie est rendue délicate en cas de points de prélèvements peu nombreux pour un aquifère considéré et révèle l'influence que peut avoir une couverture, plus ou moins épaisse, sur le message radon.*

### ABSTRACT

*The "Bassin de Mons" with its borders constitute one particularly interesting domain for the application of an hydrogeochemical study. As a matter of fact, several aquifers can be analysed regularly.*

*The most important aquifers are the chalks aquifer and the carboniferous limestone aquifer.*

*The mapping of the distribution of  $^{222}\text{Rn}$  water shows that  $^{222}\text{Rn}$  can be used as hydrological tracer.*

*However, the mapping becomes delicate if the samplings of an aquifer are inadequate in number and discloses the effects of the fluctuation of the cover thickness on the message radon.*

### INTRODUCTION

a) Le Service Géologie, Etudes et Prospection de la Faculté Polytechnique de Mons entreprend depuis 1979 des études sur le radon en liaison directe avec la géologie.

Les travaux s'inscrivent dans plusieurs domaines :

- prospection des gisements d'uranium;
- prévision des risques sismiques;
- localisation des aquifères fissurés;
- pollution radon dans les habitations.

Afin de répondre aux divers besoins, le laboratoire a mis au point des techniques originales de détection du radon dans les sols et dans les eaux (fig.1) (Quinif et al., 1984;

Doremus, 1985; Doremus et al., 1990).

Dans le cadre de nos travaux, je suis amenée à comparer le comportement géochimique des eaux du bassin de Mons et de ses abords.

Afin de représenter le plus objectivement les résultats, je vais essayer de poser les bases d'une cartographie radon-eau à partir des différentes observations faites de novembre 1989 à septembre 1990.

Pour cela, je considère le secteur d'études comme un système, lequel est subdivisé en sous-systèmes distincts les uns des autres et définis par certains caractères liés aux contextes géographique, géologique, hydrogéologique..., selon la figure 2 présentée.

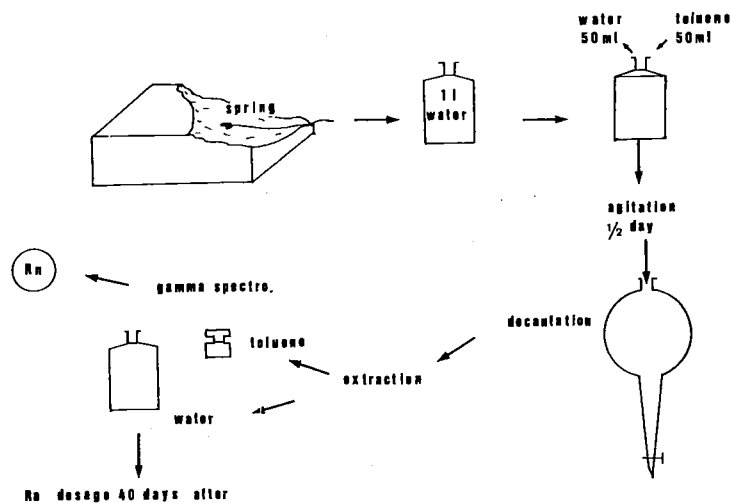


Figure 1. Méthode de détection du radon dans les eaux.  
Method of radon detection from water.

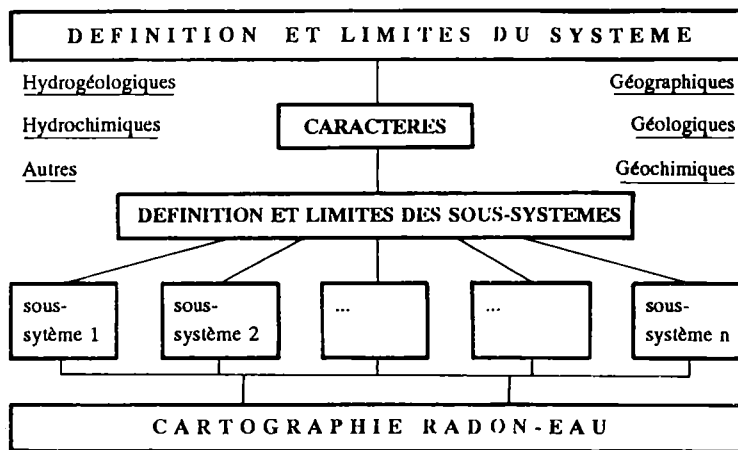


Figure 2. Démarche suivie pour aboutir à une cartographie radon-eau.  
Scheme of procedure allowing a radon-water cartography.

**DEFINITION ET LIMITES DU SYSTEME**  
(cf. figure 3)

Le secteur d'étude ou système couvre une partie du Hainaut occidental, c'est-à-dire le bassin de Mons allongé d'Est en Ouest, parcouru par la Haine, comprenant des formations d'âge éocène-crétacé, et ses bordures septentrionale et méridionale où le socle paléozoïque affleure.

La bordure méridionale du bassin de Mons proprement dit et le Dévonien inférieur du plateau de Blaugies ont été affectés par la faille du Midi et le cisaillement Nord-Artois qui constituent les événements tectoniques majeurs du secteur d'étude.

Plusieurs anomalies uranifères sont connues : au passage du Viséen supérieur au Namurien inférieur, dans les craies phosphatées, d'âge Maastrichtien (Quinif et al., 1983).

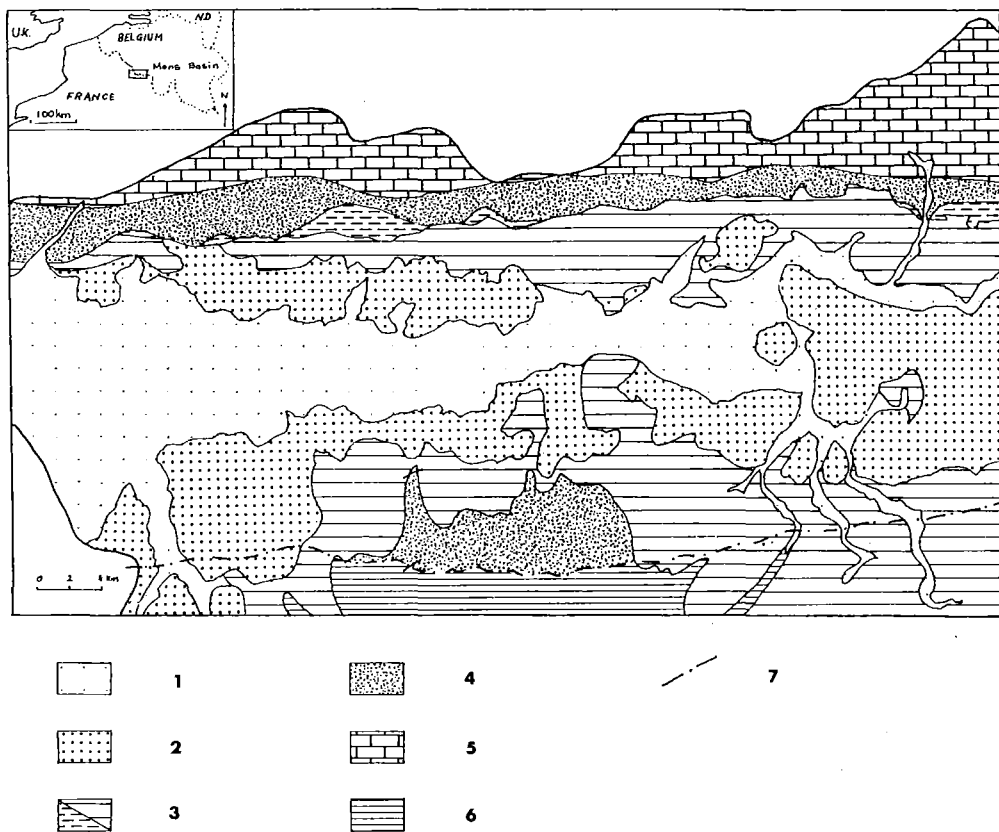


Figure 3. Limites du secteur d'étude ou système. Borders of the studied area or system.

1. alluvions, 2. Cénozoïque, 3. Crétacé a : Wealdien b : craies, 4. Carbonifère : houiller, 5. carbonifère : calcaire, 6. Dévonien, 7. faille du Midi.

1. alluvium, 2. Cenozoic, 3. Cretaceous a : Wealdian, b : chalks, 4. Carboniferous : coal bearing, 5. carboniferous : limestone, 6. Devonian, 7. fault.

Deux nappes aquifères fournissent de gros débits d'eau de bonne qualité et sont exploitées intensivement dans le bassin :

- la nappe des craies, qui regroupe un ensemble de formations perméables superposées;
- la nappe géothermique du calcaire carbonifère, en relation avec le calcaire carbonifère septentrional (zone d'infiltrations probable des eaux).

Ces deux aquifères sont séparés par le houiller dans le bassin de Mons.

Les eaux de sources ont été analysées afin de vérifier leur appartenance à tel ou tel aquifère. Toutes les mesures radon ont été faites par extraction au liquide organique (Quinif et al., 1984). Les mesures sont exprimées en pCi/l ( $1 \text{ pCi/l} = 3,7 \cdot 10^{-2} \text{ Bq/l}$ )

## DEFINITION ET LIMITES DES SOUS-SYSTEMES (cf. Figure 4).

. Le sous-système A.

Ce premier sous-système est celui du bassin de Mons.

D'allure synclinale, il influence la direction de la Haine d'Est en Ouest. Différentes entités géologiques constituent les "craies" du bassin (cf. Tabl. 1.). Elles regroupent les assises du Crétacé et du Paléocène qui forment l'aquifère multicouche des craies.

Les sources prélevées sont peu nombreuses. Toutefois, la présence de puits permet de faire des profils verticaux de radon-eau. A titre indicatif, les teneurs en radon observées sont très faibles.

Tableau 1. Les différentes entités géologiques constituant l'aquifère des "craies" du bassin de Mons.  
 Table 1. The different geological entities of the chalk aquifer (Bassin de Mons).

Formations supérieures	. calcaire grossier de Mons.	MONTIEN
	. tuffeau de Ciplly.	DANIEN
	. tuffeau de St Symphorien.	MAASTRICHTIEN
Les craies proprement dites	. craie phosphatée de Ciplly.	SENONIEN
	. craie de Spiennes.	
	. craie de Nouvelles.	
	. craie d'Obourg. . craie de Trivières. . craie de St Vaast.	
Formations inférieures	. craie de Maisières.	TURONIEN
	. rabots.	

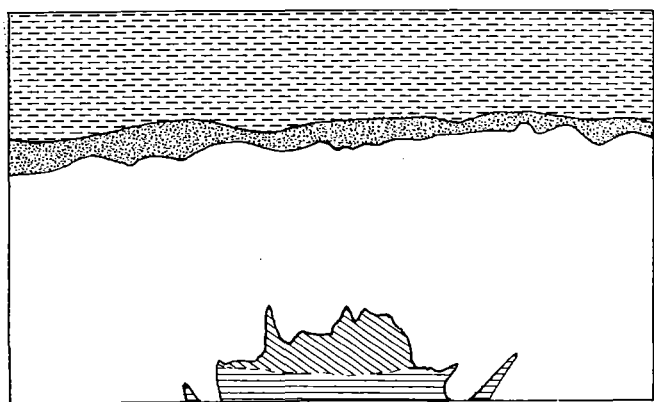


Figure 4. Limites des sous-systèmes. Borders of subsystems.

Les eaux sont ici caractérisées par une balance ionique voisine ou supérieure à 10meq/l (cf. fig. 5.). Elles sont dures à très dures ( de 40 à 54°F), bicarbonatées calciques.

Les teneurs en radon mesurées ne dépassent pas 1000 pCi/l (37 Bq/l) (cf. fig. 6).

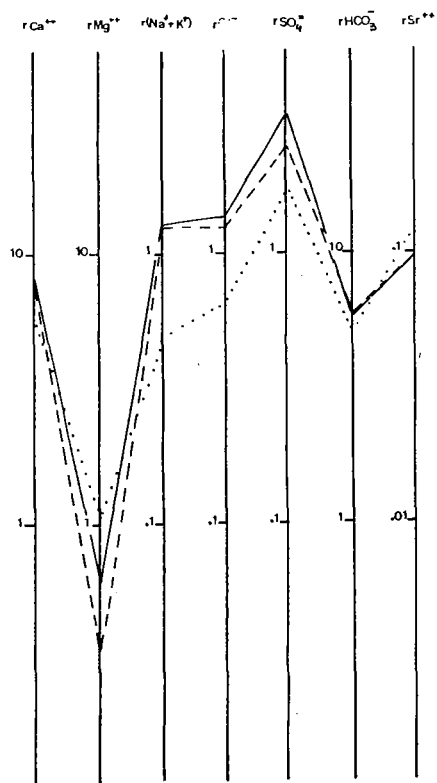


Figure 5. Chimisme de quelques eaux appartenant à l'aquifère des "craies". Some water chemistry of the chalk aquifer.



### . le sous-système B.

Ce deuxième sous-système est la partie la plus septentrionale du système. Cet ensemble forme partiellement la limite occidentale du bord Nord du bassin de Namur en Belgique.

Son substratum est constitué de calcaire carbonifère à fissuration générale et importante. Il est plus ou moins couvert de terrains sablo-argileux tertiaires. Les sources y sont nombreuses et se trouvent principalement dans les vallées.

Les eaux sont caractérisées par une balance ionique voisine de 8 meq/l. Elles ont une dureté comprise entre 30 et 45°F et sont bicarbonatées calciques. Toutefois, chimiquement, deux groupes se distinguent : les eaux caractéristiques du calcaire carbonifère dont les teneurs en ions  $\text{SO}_4^-$  sont voisines de 1 meq/l et des eaux dont les teneurs en ions  $\text{SO}_4^-$  avoisinent les 2.5 meq/l (cf. figure 7).

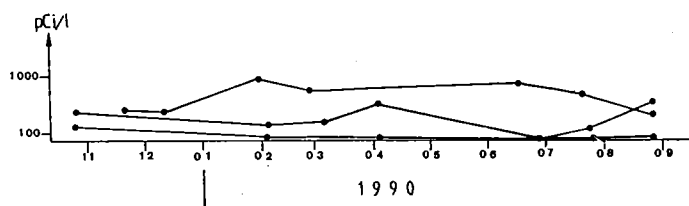


Figure 6. Variation des teneurs en radon de quelques sources appartenant à l'aquifère des "craies".

The radon content variations of some spring water belonging to the chalk aquifer.

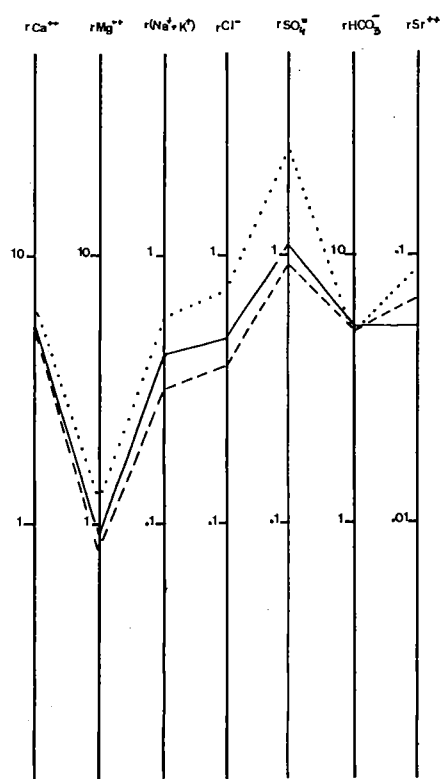


Figure 7. Chimisme de quelques eaux appartenant à l'aquifère du calcaire carbonifère.

Some water chemistry of the carboniferous limestone aquifer.

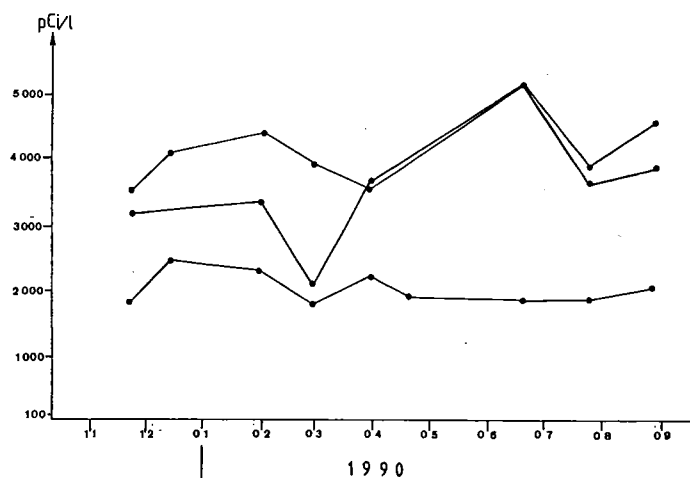


Figure 8. Variations des teneurs en radon de quelques sources appartenant à l'aquifère du calcaire carbonifère.

The radon content variations of some spring water belonging to the carboniferous limestone.

Les teneurs en radon mesurées montrent de fortes fluctuations au cours du temps. Trois familles apparaissent :

a. Teneurs en radon inférieures à 1000 pCi/l (< 37 Bq/l)

b. Teneurs en radon comprises entre 2000 et 4000 pCi/l (74 à 148 Bq/l) (Cf.fig.8)

c. Teneurs en radon supérieures à 4000 pCi (>148 Bq/l)

La famille a est localisée autour de Beloeil : il semblerait que le message radon se perde dans la couverture tertiaire.

La famille b se localise dans les vallées où la couverture tertiaire est quasi absente.

La famille c correspond à la zone anormale de Wadelincourt et serait à relier à un phénomène karstique.

#### . Le sous-système C.

Ce troisième sous-système concerne la petite bande comprise entre les deux sous-systèmes définis précédemment.

Il s'agit de terrains namuriens, constitués essentiellement de roches schisto-gréseuses. Les formations du Namurien ne contiennent pas de nappe aquifère continue mais des niveaux aquifères sans relation directe l'un avec l'autre.

Les eaux se caractérisent par une balance ionique très faible ne dépassant pas 4 meq/l. Elles sont douces (12,75 à 17,50°F), sulfatées calciques et de surcroît exemptes ou presque de bicarbonates (cf. fig.9).

Les teneurs en radon sont très variables d'une source à l'autre : ceci est dû à l'hétérogénéité des niveaux aquifères (cf. fig. 10).

#### . Le sous-système D.

Il s'agit du dernier ensemble situé au Sud du bassin de Mons : le plateau de Blaugies.

Ce sous-système regroupe en fait des terrains bien différents qui doivent être considérés séparément en : D<sub>1</sub> et D<sub>2</sub>.

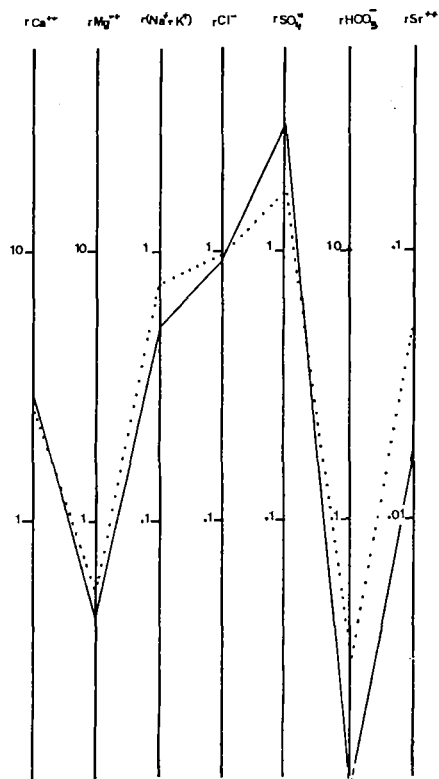


Figure 9. Chimisme de quelques eaux des horizons aquifères du Namurien.

Some water chemistry of the namurian aquiferous horizons.

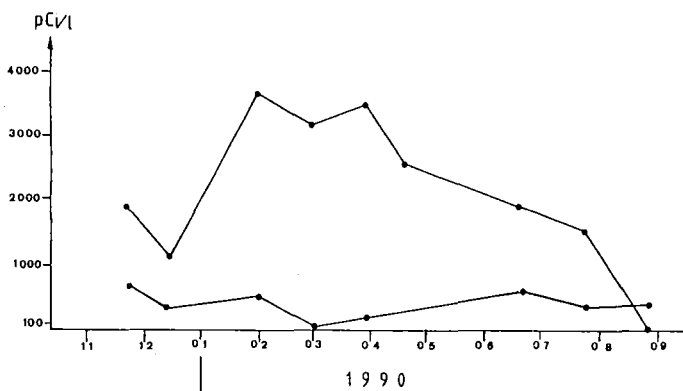


Figure 10. Variations des teneurs radon de quelques sources des horizons aquifères du Namurien.

The radon content of some spring water belonging to the namurian aquiferous horizons.

. D<sub>1</sub> rassemble les terrains du Wesphalien et ne contient pas d'aquifère mais des horizons aquifères. La balance ionique des eaux

rencontrées est comprise entre 7 et 10 meq/l. Les eaux sont sulfatées calciques ou bicarbonatées calciques (influence du Turonien) (cf. fig. 11).

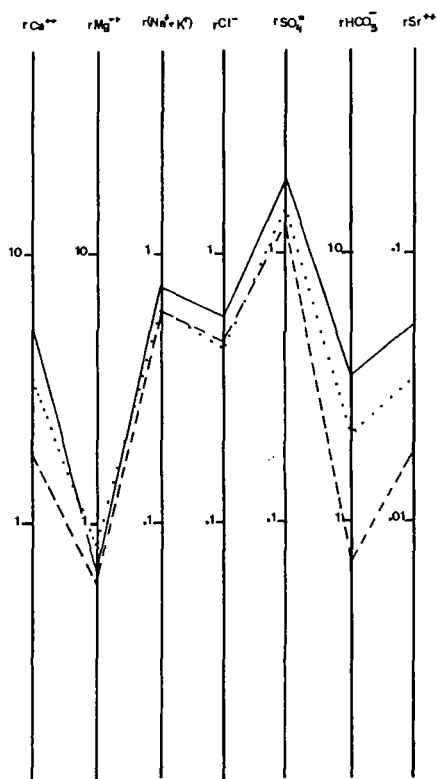


Figure 11. Chimisme de quelques eaux appartenant aux horizons aquifères du Westphalien (Plateau de Blaugies).

Some water chemistry of the Westphalian aquiferous horizons.

Les teneurs en radon sont inférieures à 1000 pCi/l en moyenne (<37 Bq/l) (cf. fig.13 A) . D<sub>2</sub> rassemble les terrains du Dévonien. Aquifère, il ne donne pas de nappe importante. La balance ionique est comprise entre 5,5 et 6,75 meq/l d'une part et entre 7,8 et 10 meq/l pour les eaux en bordure (mélange probable d'eau des terrains turoniens avec l'eau du Dévonien) (cf. fig. 12).

Les teneurs en radon sont comprises entre 1000 et 2000 pCi/l en moyenne (37 à 74Bq/l) (cf. fig. 13 B).

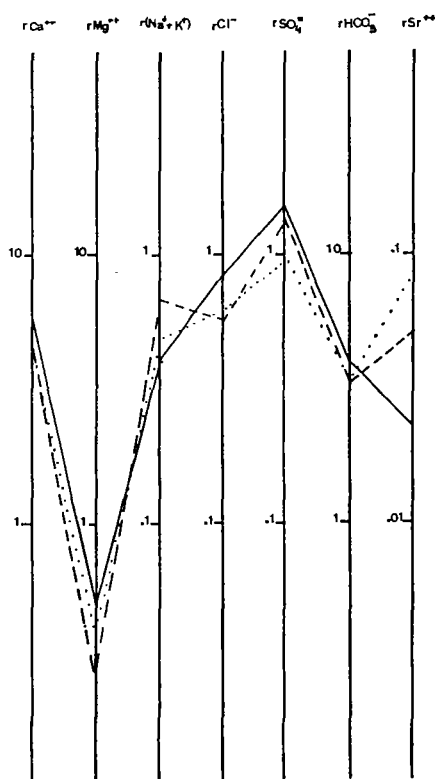


Figure 12. Chimisme de quelques eaux appartenant à l'aquifère dévonien (Plateau de Blaugies).

Some water chemistry of the devonian aquifer.

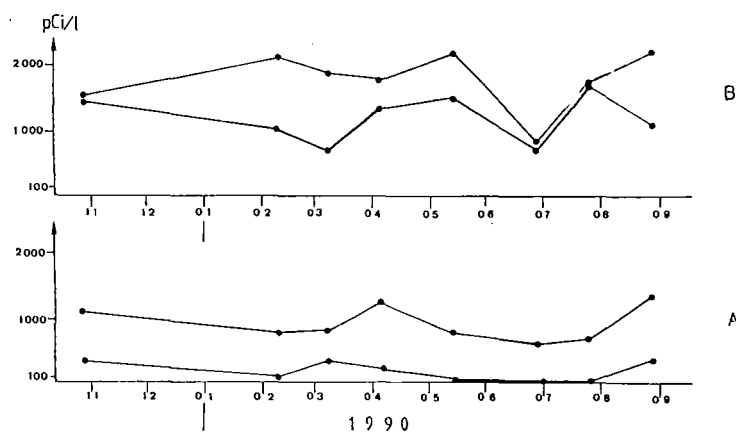


Figure 13. Variations des teneurs en radon de quelques sources :

A : Westphalien, B : Dévonien

The radon content of some spring water.

A : westphalian aquiferous horizons B : devonian aquifer.

## LA CARTOGRAPHIE RADON-EAU

Après la définition des sous-systèmes, il a été choisi de suivre des sources apparemment intarissables dans chaque aquifère. Depuis le début de l'année 1990, quatre sources sont prélevées chaque semaine (cf. fig. 14).

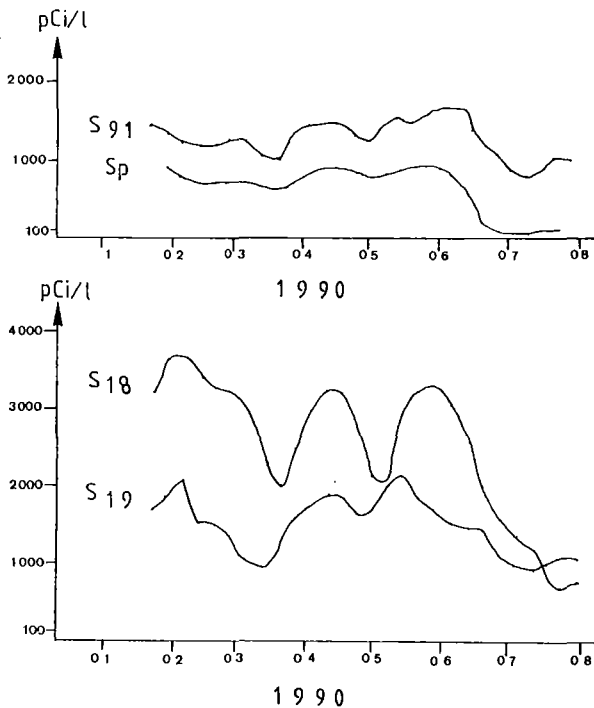


Figure 14. Suivi hebdomadaire de quatre sources témoins.

*Weekly studies for four witness springs water.*

S.91 : source appartenant au sous-système D (Dévonien)

S.19 : source appartenant au sous-système C (calcaire carbonifère) - eau à ~1 meq/l d'ions  $\text{SO}_4^{=}$ .

S.18 : source appartenant au sous-système B (calcaire carbonifère) - eau à ~1,8 meq/l d'ions  $\text{SO}_4^{=}$ .

Sp : source appartenant au sous-système A (aquifère des craies).

La surveillance hebdomadaire montre des fluctuations plus ou moins importantes pour chacune des sources. Celles-ci varient dans le même sens et en fonction des facteurs climatiques. Le propos n'étant pas ici de les exposer, je propose au lecteur de se référer aux nombreuses publications existantes qui traitent des facteurs climatiques et du radon sol (Bigu, 1984; Duesnas C. et Fernandez D.C., 1987; Klusman et Webster, 1981; Schery S.D. et Gaeddert, 1982,...).

L'observation de ces teneurs en radon au cours du temps amène plusieurs réflexions.

Les fluctuations sont plus ou moins grandes selon l'aquifère considéré (cf. tableau 2) :

- les teneurs moyennes les plus élevées sont observées pour l'aquifère du calcaire carbonifère où la fissuration est générale (S18 et S19).

Tableau 2. Teneurs moyennes en radon des sources témoins.

Table 2. The average radon content of witness springs water.

Référence source	Rn moy pCi/l	n	s	s %
S18	2 430	30	1 290	53,1
S19	1 560	31	559	35,8
S91	1 331	32	420	31,6
Sp	656	21	422	64,3

- la source témoin de l'aquifère du Dévonien (S91) a une teneur moyenne de 1331 pCi/l (~49 Bq/l).
- la source témoin de l'aquifère des craies Sp a une teneur moyenne de 656 pCi/l (~24 Bq/l).

Si maintenant, nous regardons de plus près ces fluctuations du radon par l'intermédiaire de l'écart-type S ramené en pourcentages, nous constaterons que :

- les sources S19 et S91 sont comparables avec un écart-type relatif de 35,8 et 31,6 % respectivement;
- la source S18 a un écart-type relatif plus élevé : 53,1 %;
- la source Sp atteint les 64,3 %.

Nous avons donc une grande variabilité des écarts-types relatifs et cela même au sein d'un aquifère donné (exemple : le calcaire carbonifère avec les sources S18 et S19).

Les prélèvements hebdomadaires ont permis de remarquer le fait suivant, qui n'a malheureusement pas été quantifié : la source Sp réputée intarissable a vu son débit décroître régulièrement jusqu'à tarissement complet après les deux années de sécheresse exceptionnelle, c'est elle qui a l'écart-type relatif le plus élevé.

Les sources S19 et S91 ont gardé des débits plus constants au cours du temps et ont des écarts-types relatifs plus faibles.

Il semblerait donc qu'une partie des variations du radon dans les eaux de source soit dûe aux changements de débit de l'eau.

Le fluide porteur, ce vecteur de transport, mériterait donc une attention toute particulière; ce dernier interférant avec les facteurs météorologiques.

En première conclusion, on peut dire que le radon sert de marqueur hydrogéologique (cf. fig. 15).

Toutefois, certaines précautions sont à prendre puisque la présence d'une couverture sableuse telle que celle située dans la région de

Beloil fait perdre le message radon préexistant dans l'eau (cf. tabl. 3.), le coefficient de partage étant en faveur de l'air.

On peut retenir, exception faite des particularités géologiques, que les eaux appartenant à l'aquifère du calcaire carbonifère sont les plus riches en radon avec des teneurs supérieures à 2000 pCi/l (>74 Bq/l), que les eaux de l'aquifère du Dévonien ont des teneurs en radon moyennes comprises entre 1000 et 2000 pCi/l (37 à 74 Bq/l) alors que l'aquifère des craies ne présente que de faibles teneurs en radon, inférieures à 1000 pCi/l (<37Bq/l).

Pour un sous-système qui n'a pas d'aquifère bien défini comme le Namurien, il est difficile de généraliser dans la mesure où les horizons aquifères ne sont pas en relation l'un avec l'autre.

La méthode de cartographie radon-eau ne peut donc s'appliquer correctement que dans des secteurs privilégiés où il y a un aquifère qui permette la présence de sources ou de puits suffisamment nombreux afin d'aboutir à une bonne interprétation du radon dans les eaux.

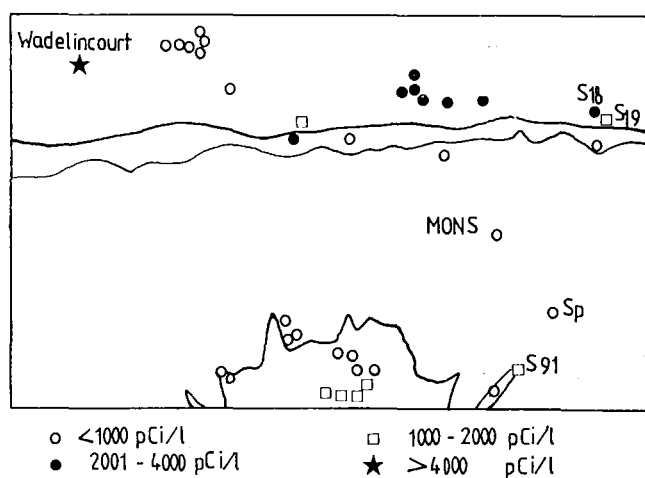


Figure 15. cartographie radon-eau du Bassin de Mons et ses abords.

Radon water cartography of the "bassin de Mons" with its borders.

Tableau 3. Synthèse des résultats.  
Table 3. Synthesis of results.

SOUS-SYSTEME	POSITION GEOGRAPHIQUE	CARACTERES GEOLOGIQUES	CARACTERES HYDROGEOLOGIQUES	CARACTERES HYDROCHIMIQUES	TENEUR EN RADON
A	Partie centrale du système	Bassin synclinal Eocène-Crétaé	Aquifère multicouche des "craies"	Eaux dures à très dures. Bicarbonatées calciques	<1 000 pCi/l (<37 Bq/l)
B	Partie septentrionale du système	Calcaire carbonifère. Couverture +/- épaisse	Aquifère à fracturation importante	Eaux dures. Bicarbonatées calciques	.<1 000 pCi/l (<37 Bq/l) sous couverture de quelques mètres .2 000 <Rn< 4 000 pCi/l (74<Rn<148Bq/l) dans les vallées <4 000 pCi/l zone anormale
C	Compris entre A et B	Namurien terrains schisto-gréseux	Pas d'aquifère mais niveaux aquifères	Eaux douces Sulfatées calciques	Grande variabilité à cause d'hétérogénéité des niveaux
D	Partie méridionale du système : plateau de Blaugies	Westphalien	Pas d'aquifère mais niveaux aquifères	Eaux sulfatées calciques à bicarbonatées calciques (influence du Turonien)	<1 000 pCi/l (<37 Bq/l)
		Dévonien inférieur	Aquifère ne donnant pas de nappe très importante	Eaux assez dures à dures. Bicarbonatées calciques (influence du Turonien).	1 000 < Rn < 2 000 pCi/l (37 < Rn < 74 Bq/l)

## REFERENCES

- BIGU J.** (1984) Use of an automated fluxmeter employing solid-state diffused junction alpha-detectors and a meteorological package to determine surface radon-flux. I.E.E.E. Transactions on Nuclear Science, vol. NS, 31, N°6, 1984 p. 1699-1606.
- CLEMENTS W.E., WILKENING M.H.** (1974) Atmospheric pressure effects on <sup>222</sup>Rn transport across the earth-air interface. Journal of Geophys. Res., vol. 79, N°33, P. 5025-5029.
- DELMER A.** (1979) Hydrodynamique de la nappe aquifère du calcaire carbonifère en Hainaut. Ann. Soc. Géol. Belgique, T. 102, p. 259-264.
- DOREMUS P** (1985) les anomalies uranifères dans le Gédinnien inférieur de l'anticlinal de l'Ardenne (Oizy, Belgique) : prospection, sédimentologie, tectonique et géochimie. Thèse Université de Lille (France), 1985, 352 p.
- DOREMUS P., QUINIF Y., CHARLET J.M.** (1990) La cartographie radon des eaux naturelles appliquée à la détermination de zones à risques domestiques de pollution par le radon (cas de la région de Monceau-en-Ardenne, Belgique). Ann. Soc. Géol. Nord, Lille (France), T. CIX, 157-167, juin 1990.
- DUESNAS C., FERNANDEZ M.C.** (1987) Dependence of Radon 222 flux on concentrations soil gas and air gas and analysis of the effects proceduced by several atmospheric variables. Annales Geophysicae, 1987, SB, 6, P. 533-540
- FOURMARIER P** (publié sous la direction

de) (1954) Prodrome d'une description géologique de la Belgique.

Ann. Soc. Belqique, 1954, 826 p.

**GODFRIAUX I., RORIVE A.** (1987)

L'aquifère des "craies" du Bassin de Mons in "Les eaux souterraines en Wallonie, bilan et perspective". ESO'87, Ministère de la Région Wallonne (Belgique).

**KLUSMAN R.W., WEBSTER J.D.** (1981)

Preliminary analysis of meteorological and seasonal influences on cristal gas-emission relevant to earthquake prediction.

Bulletin of Seismological Society of America, vo. 71, N° 1, p. 211-222, 1981

**MARLIERE R.** (1970) Géologie du Bassin de Mons et du Hainaut. Un siècle d'histoire.

Ann. Soc. Géol. du Nord, Lille (France), T. XC, 4, p. 171-189, 1970.

**QUINIF Y., CHARLET J.M., DUPUIS Ch., ROBASYNSKI F.** (1983). Relation uranium phosphates dans les craies phosphatées des Bassins de Mons et de Picardie.

C.R.A.S. Paris, T. 293, série II, p. 913-916, 1983.

**QUINIF Y., DOREMUS P., BOUKO PH., CHARLET JM.** (1984) Une méthode

d'analyse du radon <sup>222</sup> dans les eaux naturelles. Application à la prospection de l'uranium (région d'Oizy, Belgique).

C.R.A.S. Paris, T. 299, série D, N° 17, p. 1187-1190, 1984.

**SCHERY S.D., GAEDDERT D.H.** (1982)

Measurements of the effect of cyclic atmospheric measure variation on the flux <sup>222</sup>Rn from the soil. Geophysical Research Letters, vol. 9, n° 8, P. 835-838, 1982.

## LE RADON DANS LES EAUX SOUTERRAINES, RELATIONS AVEC L'HYDROGEOLOGIE

Yves QUINIF, Pascal DOREMUS, Véronique KOTZMANN-ROUTIER,

Faculté Polytechnique de Mons,

Rue de Houdain, 9,

7000 - MONS.

### RESUME.

*Le radon, gaz chimiquement inerte et très mobile, se rencontre partout dans le sous-sol en quantités souvent mesurables. Dans les eaux souterraines, sa distribution est fonction de paramètres lithologiques, structuraux et hydrogéologiques. La part de chaque paramètre est caractéristique du type d'aquifère. Les mesures de radon dans les sources du bassin de Mons effectuées par l'un d'entre nous (KOTZMANN-ROUTIER, 1991) ont fait apparaître qu'il n'existe pas nécessairement une corrélation étroite entre les concentrations en radon mesurées dans les eaux de sources ou de puits et les teneurs en uranium dans les roches mères. Cette constatation pose le problème de la dynamique du radon dans les aquifères. A l'aide de plusieurs exemples sélectionnés en Belgique et dans le nord de la France, nous démontrons que les concentrations en radon dans les eaux souterraines dépendent de deux paramètres: la source du radon dans l'aquifère et la circulation des eaux souterraines dans cet aquifère. Cela nous amène à définir, en regard de la géochimie du radon, deux types d'aquifères: les aquifères à circulation lente par rapport à la vitesse de diffusion du radon dans l'eau et les aquifères à circulation rapide. Dans le premier cas, les teneurs en radon aux sources reflètent la distribution de l'uranium (ou, plus exactement, du radium) dans les environs de l'émergence. Dans le deuxième cas, ce sont les conditions hydrodynamiques de l'aquifère qui jouent un rôle primordial.*

### ABSTRACT

*Radon is a chemically inert and very mobile gas. It is often possible to measure it everywhere in the subsoil. In the underground waters, the radon distribution is a function of lithologic, tectonic and hydrogeologic parameters. Each parameter is a characteristic of aquifer. We have established in the Mons basin that there is not necessary a correlation between the radon concentration in the springs and the boreholes and the uranium concentration in the rocks. With some examples in Belgium and north of France, we demonstrate that the radon concentrations in the underground waters depend of two parameters: the source of the radon in the aquifer and the water circulation in the aquifer. On the basis of the radon geochemistry, we define the "slow aquifers" and the "fast aquifers" in comparison with the radon speed. In the case of the slow aquifers, the radon concentrations at the springs reflect the radium concentration (and, thus, the uranium concentration) in the neighbourhood of the spring. In the other case, hydrodynamical conditions are preponderant.*

### INTRODUCTION.

Le radon, gaz chimiquement inerte, est très soluble dans l'eau. Son manque de réactivité chimique lui confère une mobilité très grande dans tous les milieux qui ne peut être entravée que par des adsorptions physiques (dans les charbons actifs par exemple). Il se déplace donc par diffusion atomique dans tous les milieux (y compris en phase solide) et par convection en étant entraîné par un fluide-vecteur (MOGRO-CAMPERO et al., 1977; D'AMORE et al., 1976-77). Ce sont ces propriétés qui conditionnent la distribution des concentrations en radon dans les émergences et les puits. Examinons tout d'abord un cas exemplaire qui nous a servi de point de départ, celui de Monceau-en-Ardenne.

### L'EXEMPLE DE MONCEAU-EN-ARDENNE.

#### A. Cadre morpho-structural.

La région de Monceau-en-Ardenne a été le cadre d'une prospection géochimique de l'uranium (CHARLET et al., 1987; DOREMUS et al., 1989). Cette région est située sur le socle primaire tectonisé par l'orogénèse hercynienne. Les roches sont constituées de quartzophyllades, de grès et de schistes du Dévonien inférieur. Après l'orogénèse hercynienne, la région a été aplanie durant une longue période continentale. Une forte altération due à des pédogénèses successives, notamment de type ferrallitique, affecte ce socle qui évolua sous forme d'un plateau ondulé. Les



alternances climatiques quaternaires décapèrent une grande partie de la couverture superficielle d'altérites les remplaçant partiellement par d'autres dépôts d'origine périglaciaire.

### B. Prospection hydrogéochimique.

Ce contexte se prête bien à l'utilisation des différentes techniques radon pour la recherche de l'uranium. De nombreuses sources permettent un bon quadrillage du secteur prospecté. La figure 1 montre les résultats d'une des zones. On y voit trois sources

normales en radon et deux autres qui en sont dépourvues. Les points indiquent les résultats d'une campagne émanométrique effectuée sur base de la prospection hydrochimique, démontrant la validité de la méthode puisqu'elle aboutit à la découverte de deux importantes occurrences en uranium.

### C. La Fontaine du Passage.

A posteriori, les résultats prouvent ainsi que cette méthode est valable: les sources anormales en radon indiquent la proximité d'une anomalie en uranium.

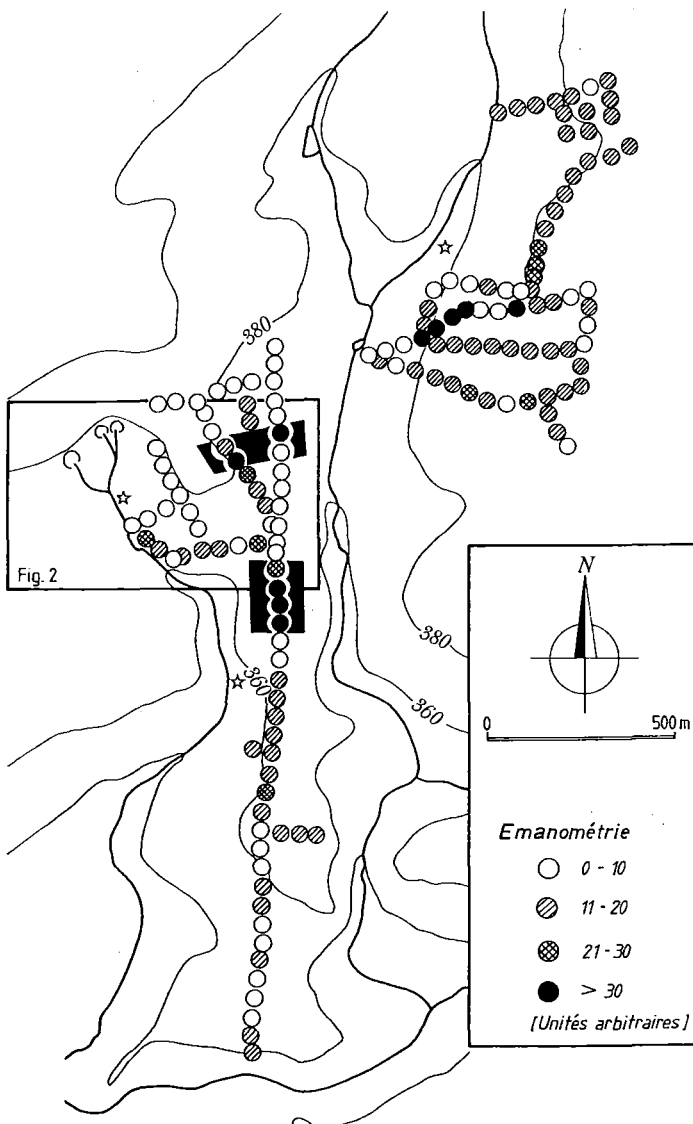


Figure 1. Secteur de Monceau-en-Ardenne. Les cercles représentent les points de mesures du radon dans le sol par émanométrie, les étoiles des sources anormales en radon, les zones noires des anomalies en uranium mesurées in situ.

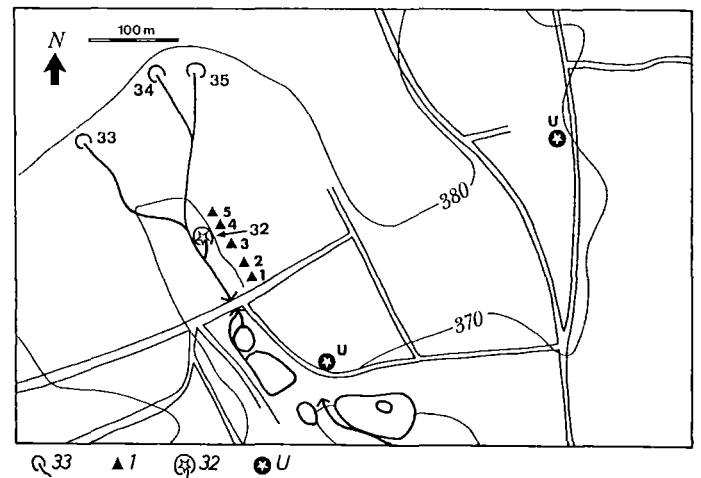


Figure 2. Secteur de la Fontaine du Passage. La Fontaine du Passage (32) contient des teneurs anormales en radon, tandis que les trois sources en amont (33, 34, 35) en sont quasiment dépourvues. Deux concentrations en uranium existent non loin de là (U). Les triangles noirs (1, 2, 3, 4, 5) localisent les sondages de reconnaissance.

Néanmoins un point restait obscur, qui soulève le problème posé. La Fontaine du Passage, fortement anormale en radon, n'est pas directement associée à une anomalie uranifère reconnue. Le contexte hydrogéologique prouve en effet qu'il ne peut y avoir de relation entre l'occurrence en uranium B et la fontaine. De plus, la carte du site (figure 2) situe trois sources en amont totalement dépourvues de radon.

Pour mieux cerner le problème, cinq sondages d'une dizaine de mètres ont été réalisés. Deux remarques sont à mettre en exergue. D'une part, la diagraphie gamma et les analyses d'échantillons de carottes en spectrométrie gamma de laboratoire ne montrent aucune anomalie en uranium (figure 3, tableau 1). D'autre part, lors des forages, plusieurs pertes totales d'eau ont été constatées, attestant une importante perméabilité de fracture.

Toutes ces observations conduisent à proposer le modèle suivant (figure 4). La Fontaine du Passage, située dans le socle très fracturé, est une émergence d'un aquifère profond de fractures. L'anomalie radon ne provient pas de la zone supérieure de cet aquifère mais d'une occurrence uranium probable située profondur

Les trois sources 33, 34 et 35, par contre, sont des émergences d'aquifères de couverture périglaciaire. L'absence d'anomalie uranifère proche des sources dans un aquifère où la lenteur de déplacement de l'eau souterraine ne permet pas au radon d'être transporté sur de longues distances aboutit à son absence.

## LE DEPLACEMENT DU RADON SOUS TERRE.

Quelles sont les modalités de déplacement du radon sous terre? Le radon, gaz monoatomique chimiquement non réactif et très mobile, se déplace suivant deux mécanismes (TANNER, 1980). Le premier est la diffusion qui provoque au sein des roches leur dégazage partiel en radon issu du radium qui y est contenu. Son rayon d'action est limité au "libre parcours moyen" des atomes de radon dans les roches, dépendant de sa diffusivité et de son temps de demi-vie. Le second est la convection. Elle affecte un plus grand nombre d'atomes de radon tout en étant un facteur beaucoup plus directionnel. En effet, vu le faible nombre d'atomes de radon relativement aux autres fluides, ils sont dépendant d'un vecteur, soit l'air, soit l'eau.

Tableau 1. Teneurs en radioéléments dans le sondage R1 de la Fontaine du Passage. Les teneurs en radium sont exprimées en ppm équivalents-uranium, l'équilibre radioactif étant supposé réalisé ce qui est le cas.

Echantillons	Profondeur (m)	Ra (ppm)	Th (ppm)	K <sub>2</sub> O (%)
2895	0,80	4,3	9,4	2,24
2896	1,80	4,5	10,5	2,24
2897	2,8/2,9	4	9,5	1,91
2898	3,55/3,8	4,3	10,3	2,39
2900	5,7/5,8	5,6	8,5	2,21
2901	6,8/6,9	7	9,6	2,79
2902	7,35/7,4	1,5	10,5	2,57
2903	7,8/7,9	2,8	3,6	2,36
2904	8,8/8,9	3,3	8,5	1,45
2905	9/9,15	3,3	6,7	1,18

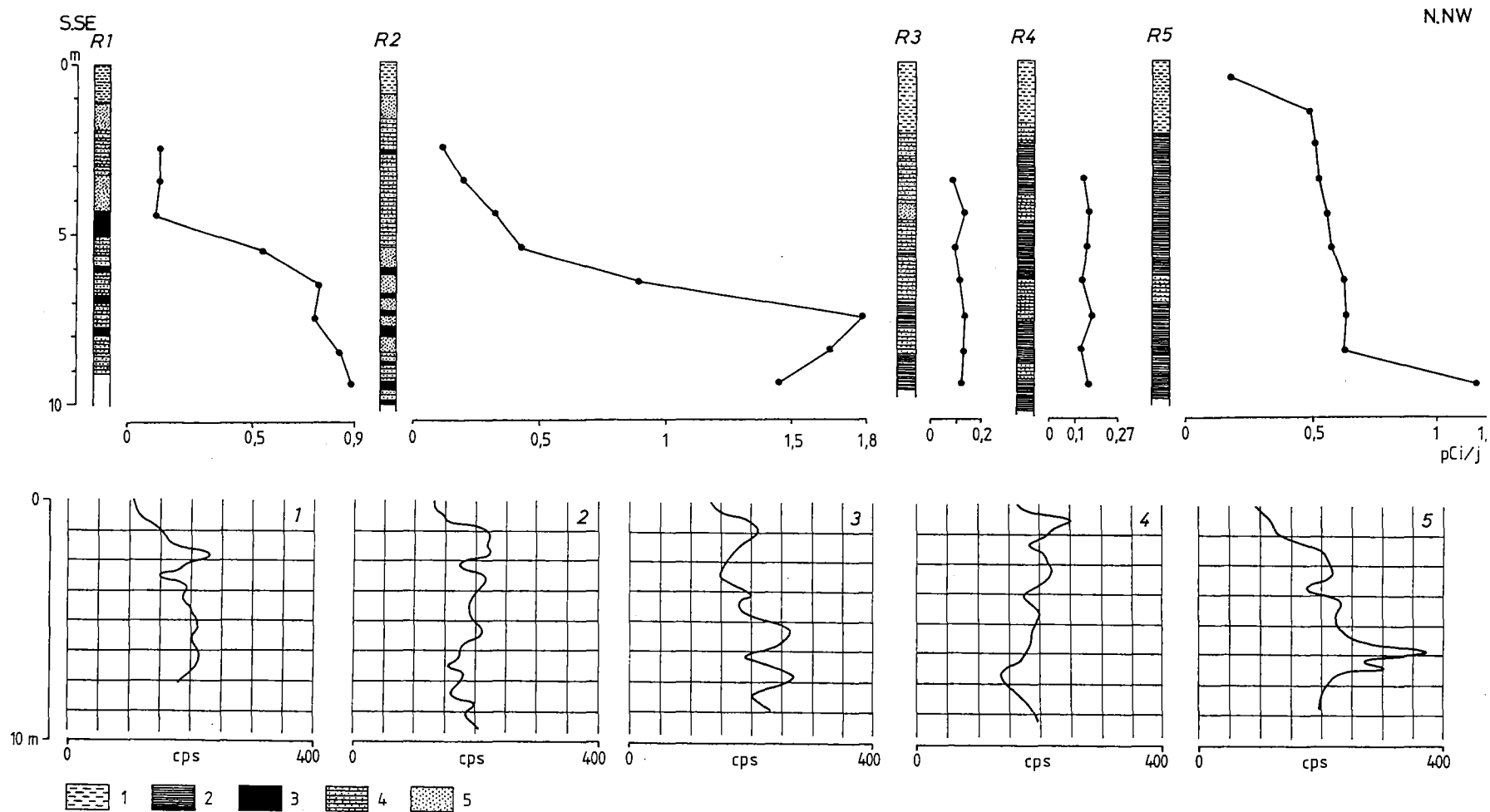


Figure 3. Colonnes lithologiques, diagraphie radon et gamma des sondages de la Fontaine du Passage. Les mesures radon présentent des anomalies significatives dans les sondages R1, R2 et R5 tandis que les diagraphies gamma sont très monotones et tout-à-fait normales (teneurs mesurées en laboratoire au tableau 1). Le radon ne provient pas de l'encaissant immédiat. 1 : argiles de couverture; 2 : phyllades; 3 : zones oxydées; 4 : quartzophyllades; 5 : grès.

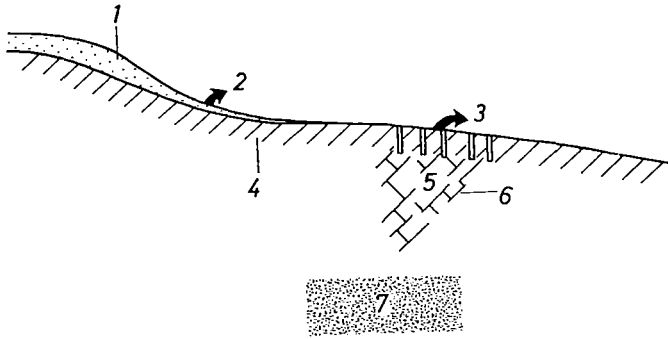


Figure 4. Modèle interprétatif du secteur de la Fontaine du Passage. 1 : couverture quaternaire sablo-argileuse; 2 : source normale en radon; 3 : Fontaine du Passage; 4 : Socle quartzophylladeux; 5 : sondages R1 à R5; 6 : zone fracturée; 7 : anomalie profonde en uranium.

L'air (ou d'autres gaz dans des cas comme, par exemple, le volcanisme) entraîne le radon dans les zones dénoyées. C'est ce mécanisme qui est en cause lors de mesures de radon dans les sols. Les flux de radon sont l'image des mouvements de convection de l'air dans le sol. Par contre, dès qu'on atteint la zone noyée, ce sont les mouvements de l'eau qui doivent être pris en compte.

Sur base des conclusions précédentes, dans les aquifères, deux cas sont à distinguer. Les aquifères poreux montrent de très faibles vitesses de déplacement de l'eau souterraine: de l'ordre de quelques mètres par jour. Les aquifères de fractures, dont les aquifères karstiques constituent un bel exemple, se caractérisent par de très grandes variabilités de vitesses qui, de toute façon, sont élevées par rapport aux vitesses rencontrées dans les autres aquifères: de l'ordre de plusieurs dizaines de mètres par heure, parfois même plusieurs centaines. Bien-sûr, ces valeurs doivent être nuancées suivant chaque cas particulier.

On en déduit que le radon se déplace dans les aquifère poreux par diffusion atomique: sa vitesse de diffusion excède la vitesse de déplacement de l'eau souterraine. Par contre, dans les aquifères karstiques, il est entraîné par le courant d'eau souterraine, ici très rapide.

Alors que dans le premier cas il ne peut provenir que de zones proches des émergences, dans le second, son origine peut se trouver loin de ces zones. Nous en arrivons ainsi à la distinction entre aquifère lent dans le premier cas et d'aquifère rapide dans le second (figure 5).

## ANALYSE DU RADON DANS QUELQUES SOURCES.

Le tableau 2 explicite des moyennes de concentration en radon de quelques sources. Les analyses ont été faites par la méthode d'extraction (Quinif et al 1984). On constate que les valeurs sont très faibles dans le cas d'aquifères lents et bien plus élevées dans le cas d'aquifères rapides. Signalons particulièrement le cas de la source de Wadelincourt très anormale en radon mais située dans un environnement exempt d'anomalies en uranium.

## ANALYSE DU RADON DANS QUELQUES SONDAGES.

### A. Le sondage B1.

Ce sondage traverse une anomalie en uranium dans la région de Monceau-en-Ardenne décrite ci-dessus (DOREMUS et al., 1989). On constate une similitude des courbes de teneurs en uranium et de teneurs en radon (figure 6). On se trouve en puits statique. Le socle dévonien, fortement altéré, se comporte comme un aquifère lent.

### B. Le puits de l'Ecole des Mines.

Ce sondage, situé dans les bâtiments de la Faculté Polytechnique de Mons, traverse les couches tertiaires et secondaires du bassin de Mons (figure 7). Seules les craies phosphatées maestrichtiennes rencontrées sur quelques mètres d'épaisseur ont des teneurs plus élevées en uranium que les quelques ppm des autres

Figure 5. Modèle de circulation du radon. Un socle formé de schistes (1) et de calcaires (2) est recouvert d'une formation sableuse (3). Cette dernière renferme une nappe phréatique de pores (4) limitée vers le haut par sa surface piézométrique (5). Un réseau karstique (6) se développe dans les calcaires et aboutit à une émergence (7). Une anomalie d'uranium est localisée dans le sommet du socle sous la couverture (8). En A, le radon se dégage dans la zone dénoyée de la couverture. En B, l'anomalie uranifère émet de plus grandes quantités de radon qui diffuse dans la nappe phréatique et se retrouve ainsi à la source voisine qui affiche des teneurs anormale en radon. Par contre, la deuxième source de cet aquifère n'en contient pas vu la distance qui la sépare de l'anomalie. Dans un tel aquifère lent, le radon ne se déplace que par diffusion et n'atteint pas les sources éloignées du lieu de sa provenance. Par contre, dans le karst, une galerie fossile est colmatée par un remplissage riche en uranium (9). Le radon qui s'en dégage se retrouve dans le réseau hydrogéologiquement actif dans lequel les grandes vitesses de circulation amène ce radon à l'émergence même si elle est lointaine. C'est ce mécanisme qu'il faut voir dans le cas de la source de Wadelincourt.

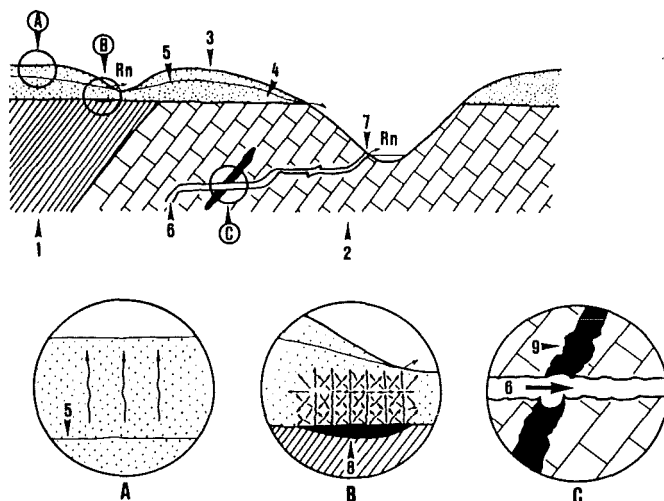


Tableau 2. Concentration moyenne en radon de quelques sources. n est le nombre de mesures et s l'écart-type. Le grisé désigne les aquifères rapides en l'absence de concentration connue en uranium. Ces mesures ont été faites par la méthode d'extraction.

Sources	Nature de l'aquifère	[Rn](pCi/l)	n	s
Casteau S19	Calcaire carbonifère	1 560	31	559
Casteau S18	Calcaire carbonifère	2 430	30	1 290
Wadelincourt A	Calcaire carbonifère	7 357	7	2 594
Asquilies S91	Dévonien	1 331	32	420
Spienne SP	Craie crétacée	656	21	422
Fontaine du Passage	Quartzo-phyllades	4 600	2	---
Monceau 55a	Couverture quaternaire	215	1	---
Monceau 55c	Couverture quaternaire	618	1	---
Fontaine du Pauge	Quartzo-phyllades	4 317	54	1 857

faciès. Notons que le fond du puits est colmaté par écoulement des parois. On voit que les teneurs en radon sont basses et ne présentent pas de variations très significatives (DOREMUS et al., 1991). Il s'agit d'un aquifère lent sans anomalie uranifère.

### C. Les sondages de l'Avesnois et de Trélon.

Ces deux exemples illustrent des aquifères rapides de type karstique. Situés dans le Nord de la France, ils ont été investigués lors d'une étude commune avec le BRGM (Langevin et al., 1990). Les premiers concernent des calcaires carbonifères, les seconds des calcaires dévoniens. Les teneurs en uranium sont un peu plus élevées dans les calcaires carbonifères que dans les calcaires dévoniens (de quelques dixièmes à quelques ppm) mais restent toujours très basses: ces sondages ne traversent aucune anomalie en uranium.

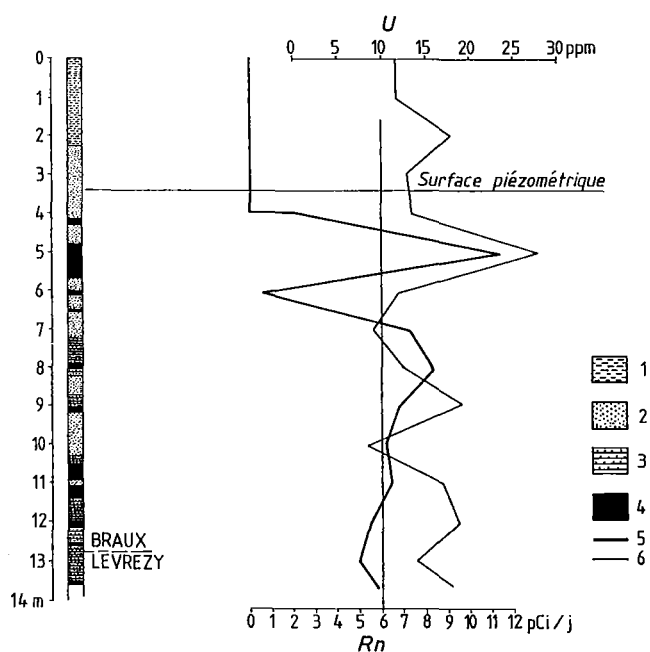


Figure 6. Colonne lithologique, mesures des teneurs en radon et de la radioactivité du sondage B1 de Monceau. 1 : argiles de couvertures; 2 : grès; 3 : quartzophyllades; 4 : zones oxydées; 5 : concentrations en radon mesurées par capteurs passifs; 6 : radioactivité totale de la roche mesurée en comptage par anticoincidence et exprimée en ppm équivalents-uranium.

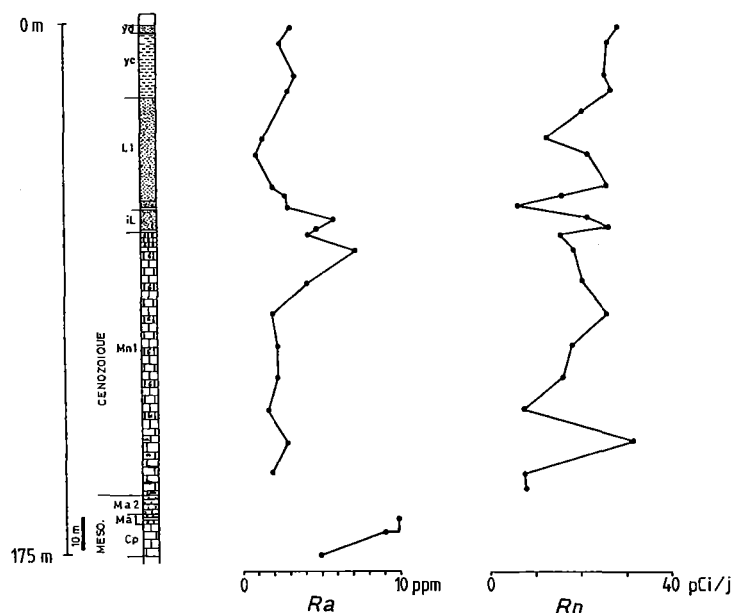


Figure 7. Colonne litho-stratigraphique, teneurs en radon et en radium du puits de la FPMs. Les teneurs en radium sont exprimées en ppm équivalents-uranium. Cp : Campanien (craies blanches); Ma1 et Ma2 : Maestrichtien (craies phosphatées); Mnl : Montien (calcarénites); iL : infralandénien (sables grossiers); L1 : Landénien (sables); Yc : Yprésien (argiles); Yd : Yprésien (sables).

Il est remarquable de constater que les teneurs les plus élevées en radon se localisent au droit des zones fracturées et karstifiées, là où les circulations hydrologiques dans l'aquifère sont les plus importantes (figure 8). Le fait que les puits soient statiques (piézomètres ou absence de pompage) ou en cours de pompage ne modifie que les valeurs absolues des teneurs mais non leur distribution verticale. D'autres travaux aboutissent à des conclusions analogues. Hammond et al. (1988) constatent que, dans le cas du sondage de Cajon Pass, la distribution du radon indique les venues d'eau dans les zones de fractures tandis que Chalov et al. (1976) utilisent les paramètres radiogéniques pour identifier les zones de fractures.

Le tableau 3 synthétise les données et met en évidence les catégories suivantes:

a) aquifère lent avec anomalie d'uranium proche (B1);

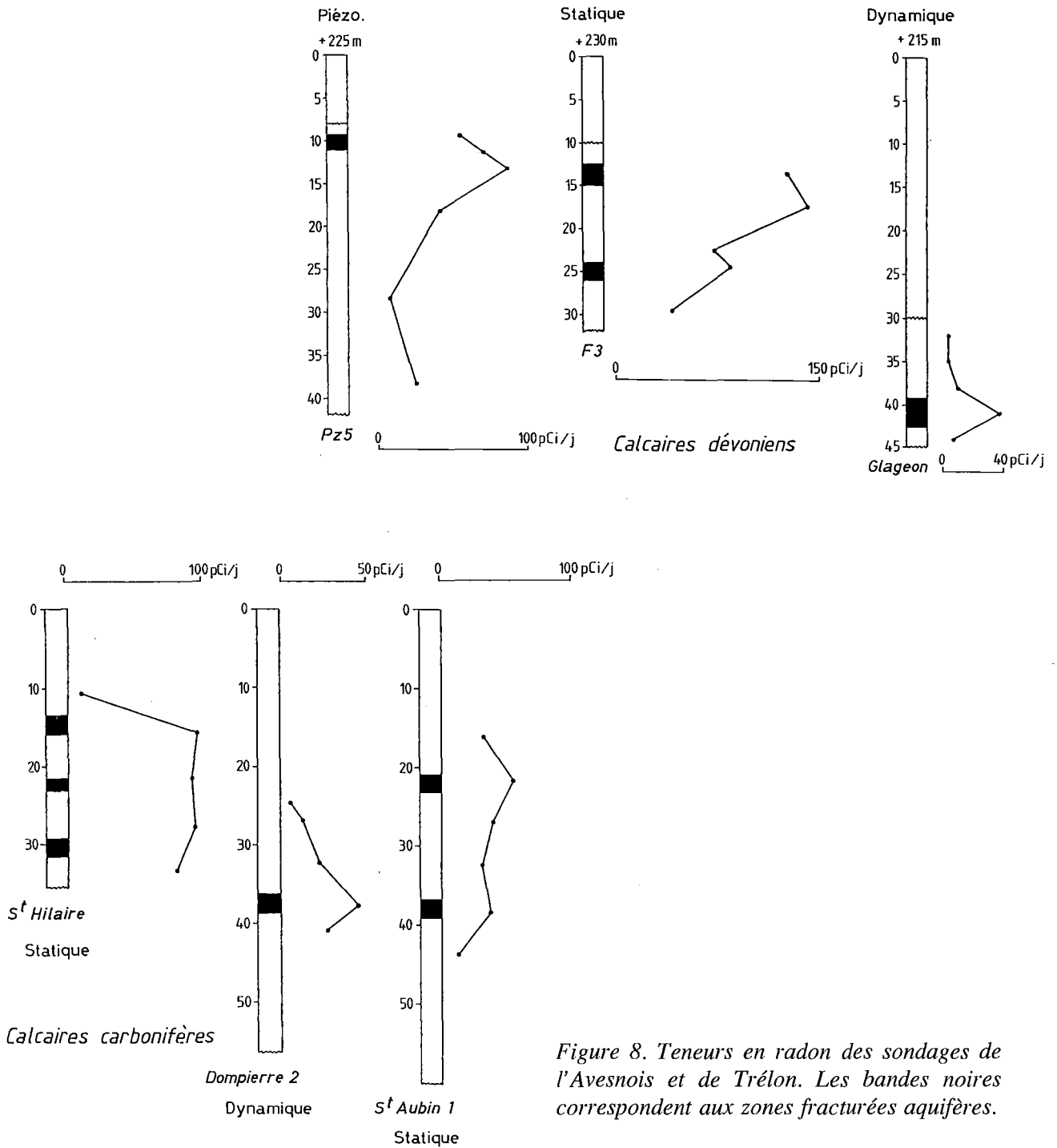


Figure 8. Teneurs en radon des sondages de l'Avesnois et de Trélon. Les bandes noires correspondent aux zones fracturées aquifères.

- b) aquifère lent sans anomalie d'uranium (FPMs, partie non aquifère de PZ5);
  - c) aquifère rapide de type karstique sans anomalie d'uranium proche (Saint Hilaire, F3, PZ5);
  - d) aquifère rapide non karstique avec anomalie d'uranium dans un environnement régional (Passage).
- Nous y avons également ajouté le résultat

mesuré sur la source de Wadelincourt dont l'anomalie en radon pose un véritable problème régional. Il faut peut-être chercher la source d'uranium dans les dépôts paléokarstiques rencontrés au sein des calcaires carbonifères de cette région. Rappelons que, dans un tel aquifère rapide, cette source d'uranium peut se trouver loin de l'émergence.

Tableau 3. Concentrations en radon en sondages. Le grisé concerne les aquifères karstiques.

	[Rn](Pci/jour)	Caractéristiques géologiques
Sondage B1	445	Quartzophyllades gédiniennes
Puits FPMs	20	Sables-argiles-craies
Sondage Saint-Hilaire	75	Calcaire carbonifère
Sondage F3	106	Calcaire dévonien
Sondage Pz5 (actif)	73	Calcaire dévonien
Sondage Pz5 (non actif)	27	Calcaire dévonien
Sondage Passage R1	515	Quartzophyllades gédiniennes
Sondage Passage R2	915	Quartzophyllades gédiniennes
Sondage Passage R3	53	Quartzophyllades gédiniennes
Sondage Passage R4	84	Quartzophyllades gédiniennes
Sondage Passage R5	583	Quartzophyllades gédiniennes
Source Wadelincourt	1 720	Calcaire carbonifère

## CONCLUSIONS.

La distinction entre aquifère lent et aquifère rapide se base sur la différence entre la vitesse de diffusion atomique du radon dans l'eau et la vitesse de déplacement de l'eau sous terre. Les aquifères lents sont le siège de la diffusion du radon. Ils regroupent les aquifères poreux ou fracturés avec fractures colmatées. Ils donnent des "images ponctuelles" des anomalies d'uranium par rapport aux anomalies de radon. Les aquifères rapides sont caractérisés par un transport du radon essentiellement par la convection due au déplacement de l'eau souterraine. Les aquifères karstiques en sont le meilleur exemple.

Ces considérations sont importantes dans plusieurs cas d'étude. En prospection de l'uranium, elles indiquent si une anomalie uranium doit être recherchée dans les environs d'une anomalie radon ou plus loin. En hydrogéologie, l'analyse radon apporte des données précieuses pour interpréter l'hydrodynamisme d'une nappe.

## REFERENCES

CHARLET (J.-M.), DOREMUS (P.),

QUINIF (Y.) - 1987 - Concentration mechanisms of uranium in the mineralized fractures of the Lower Devonian of the Belgian Ardennes - The case of the Oizy area. Uranium, 3 : 387-405.

CHARLOV (P.I.), TUZOVA (T.V.), ALEKHINA - 1976, Study of the possibility of identification of fracture water by its radiogenic parameters. Physics, Solid Earth, 12 (9) pp. 547-601.

D'AMORE (F.), SABROUX (J.-C.) - 1976-77 - Signification de la présence de radon 222 dans les fluides géothermiques. Bull. Volcanol., 40, 2 : 106-115.

DOREMUS (P.), QUINIF (Y.), CHARLET (J.-M.) - 1989 - La cartographie radon des eaux naturelles appliquée à la détermination de zones à risques domestiques de pollution radon (cas de la région de Monceau-en-Ardenne, Belgique). Ann. Soc. Géol. du Nord, CIX : 157-167.

DOREMUS (P.), KOTZMANN ROUTIER (V.), QUINIF (Y.), RORIVE (A.) - 1991 - Distribution de l'émanation radon en fonction de l'hydrogéologie, de la radiogéochimie (Ra-Th-K<sub>2</sub>O). Cas du puits de l'Ecole des Mines de Mons (Belgique). Actes du Colloque Internationale de Géochimie des Gaz, Mons.



**HAMMOND (D.E.), LESLIE (B.W.), KU (T.L.), TORGESEN (T.)** - 1988 - Rn 222 concentrations in deep formations waters and geohydrology of the Cajon Pass Borehole. *Geophys.Res.Lett.*, 15 : 1045-1048.

**KOTZMANN-ROUTIER (V.)** - 1990 - La cartographie du radon dans les eaux naturelles du Hainaut occidental. Actes du Colloque Internationale de Géochimie des Gaz, Mons.

**LANGEVIN (C.), BALLIN (F.), DOREMUS (P.)** - 1990 - Prospection hydrogéologique en milieu carbonaté fissuré par mesure du radon (sols, eaux, roches) - Région de l'Avesnois. Rapport BRGM, R 31164 NPC 4 S 90.

**MOGRO-CAMPERO (A.), FLEISCHER (R.L.)** - 1977 - Subterrestrial fluid convection :

an hypothesis for long-distance migration of radon within the earth. *Earth Plant.Sci.Lett.*, 34 : 321-325.

**QUINIF (Y.), DOREMUS (P.), BOUCO (P.), CHARLET (J.-M.)** - 1984 - Une méthode d'analyse des radon 222 dans les eaux naturelles. Application à la prospection de l'uranium. *C.R. Acad. Sc. Paris*, 1984, t 299 Série II n°17.

**TANNER (A.B.)** - 1980 - Radon migration in the ground : a supplementary review. in "The Natural Radiation Environment III Symposium Proceedings". Edited by T.F. GESELL and W.M. LOWDER, Vol 1 : 5-56.

# V<sup>ème</sup> PARTIE

Méthodes de mesure  
et d'exploitation des résultats

**SPECIFIC CHARACTERISTICS OF RADON "PASSIVE /OPEN" MODEL DETECTORS COMPARED TO "PASSIVE /CLOSE" AND "CHARCOAL" DEVICES. CARACTERISTIQUES SPECIFIQUES DES DETECTEURS "PASSIF/OUVERT" COMPAREES AUX "PASSIF/FERME" ET "CHARBON ACTIF".**

Jean ANDRU.

Groupe Radon - Direction usine - KODAK PATHE - Rond-Point G. Eastman  
93270 SEVRAN-FRANCE

**RESUME.**

*Les détecteurs de Radon de type passif et ouvert, fonctionnent tous avec du film nitrocellulose KODAK LR115, seul matériau sensible aux particules alpha capable de fonctionner en mode "ouvert".*

*Le principe des détecteurs "ouvert" n'est pas nouveau. Ils sont très utilisés dans le monde, souvent par des scientifiques (En France, Italie, Japon, Norvège, Suède etc...). Cependant leur mode original de fonctionnement demande quelques commentaires. Cet exposé rappelle davantage les idées générales qu'il ne donne certains détails théoriques.*

*L'estimation de la concentration d'Energie Alpha Potentielle est 4 fois meilleure avec ces détecteurs qu'avec tout autre détecteur passif, et elle inclut les descendants du thoron. Le film LR115 est même plus sensible aux descendants qu'au radon puisqu'à activité égale, le nombre de traces est plus élevé pour les alpha de plus grande énergie initiale.*

*Ces détecteurs peuvent être mis instantanément sur "marche" ou "arrêt", autant de fois qu'on le souhaite, par simple interposition d'un écran de polyester. Ils peuvent être à la fois des détecteurs court terme, long terme et même fractionné.*

*Ces détecteurs peuvent être extrêmement légers et plats, de qui leur permet d'être expédiés sous enveloppe postale ordinaire, ou de servir de dosimètre individuel.*

*Enfin, il y a quantité de moyens de les utiliser pour des applications particulières, simples et originales. Ce sont les meilleurs indicateurs de risque alpha.*

**ABSTRACT.**

*All passive/open detectors, also called Unfiltered alpha Track Detectors (UTDs), are built around KODAK LR115 film, only material sensitive to all ambient alpha particles and capable to work in "open" mode.*

*The principle of "open" detectors is not new. They are largely used worldwide, often by scientists (in France, Italy, Japan, Norway, Sweden etc.). However, their particular functioning needs some explanation and some reminders. This paper is more aimed to discuss generalities than details of calculation.*

*The estimation of the Potential Alpha Energy (PAE) concentration is about 4 times better than that from other passive detectors and it includes thoron progeny. The film is more sensitive to ambient decay products than it is to Radon as track count is higher for alpha's of greater initial energy.*

*Passive/open radon detectors can be used as part of a short-term or long-term system or as personal monitoring devices. Their exposure can even be fractioned. They can be instantaneously put on "on" or "off". Being extremely light and flat, they can be mailed to the lab in a regular envelope.*

*Passive/open radon detectors can easily fill a variety of needs and seem to be so far, the best risk indicators.*

**1. REMINDERS: MEASUREMENTS AND HEALTH HAZARDS.**

All evaluations of health hazards are based on the Potential Alpha Energy measurings (PAE, joules or J) of inhaled radon progeny. This is the result of P.A.E. concentration (PAEc,  $\mu\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$ ) per volume of air

inhaled. This volume is equal to a respiratory flow rate multiplied by an exposure duration. The radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) and thoron ( $^{220}\text{Rn}$ ) gases, inoffensive in themselves, are not included in this PAE.

For example, the U.S. Environmental Protection Agency (EPA) recommends a PAEc of  $0.42 \mu\text{J}\cdot\text{m}^{-3}$  i.e. 0.02 Working Level (WL)

or, there again,  $75 \text{ Bq.m}^{-3}$  of radon if it was in equilibrium with this same energy of radon progeny (= EERc = Equilibrium Equivalent Radon concentration). These 0.02 WL are obtained

by supposing a 75 % presence-time in such an atmosphere and an average inhaled volume of  $0.8 \text{ m}^3.\text{h}^{-3}$ .

It is only in the case where the equilibrium Factor (F) between radon progeny and the radon gas is worth 0.5 that the recommendation of  $75 \text{ Bq.m}^{-3}$  EERc corresponds to  $150 \text{ Bq.m}^{-3}$  (or  $4\text{pCi/l}$ ) of radon gas, the well-known EPA recommendation for CRn (Talking into account the definition :  $\text{EERc} = \text{F}.\text{CRn}$  where CRn is the radon activity Concentration).

In the absence of a simple, cheap and direct measurement of the radon progeny or health risks, there is **no real choice**, we measure the concentration of the radon gas, then we assume an equilibrium factor (F) to evaluate the of the radon progeny.

For thoron,  $0.02 \text{ WP}$  (still =  $0.42 \mu\text{J.m}^{-3}$  thoron gas if  $\text{F}=0.5$ ). Although ignored by the recommendations of the EPA, thoron can sometimes reach the same PAEc level as radon. (Steinhauser, 1975; Scherly, 1985; Johnson, 1990). In this field nothing is perfect but "open" detectors take thoron into account.

## 2. CHARCOAL DETECTORS.

There exists a reversible, temperature sensitive, adsorption competition between all the gases and ambient vapours, including radon and water vapour. Only a rigorous procedure can enable us to deduce the initial radon concentration by measuring the radioactive emission of the formed radon progeny. Due to the too short life-span of its progeny (<11 hours), the thoron gas is not measurable.

The information stored is "spurious" because the gamma emission halves every 4 days. Any time-interval before analysis heavily penalizes the accuracy level : forgetfulness of the client, length of transportation time, insufficiency in the analysis laboratory's capacity etc. In practise, the success of "blind tests" can sometimes be compromised.

These detectors can only be "short term" (2 to 5 days) and no storage for later re-measuring is possible.

Due to desorption phenomena they are not good integrators and take more into account the concentration of the last days of exposure.

## 3. ALPHA TRACK DETECTORS (ATD).

"Open" or "close" models, all the ATDs work on the same principle. The individually record every alpha particle which reaches the surface of a sensitive plastic with the proper energy and angle.

Their accuracy rate cannot be better than a statistical precision. The sigma of accounting dispersion is  $\sqrt{N}$ , if N be the average number of counted tracks, whatever the surface area explored. Statistically speaking, that means that at equal exposure rate, 5 % of the detectors will be outside the margin range :  $N \pm 2 \sqrt{N}$ . For example, a month's exposure at  $150 \text{ Bq.m}^{-3}$ , with  $\text{F}=0.5$ , can give in the region of  $150 \pm 25$  tracks per  $1 \text{ cm}^2$  explored, within classical conditions of treatment.

All the ATDs have the big advantage of enabling us to count all the incidental alpha particles indelibly : this allows for average measurements over long periods and later re-readings.

### 3.1 "CLOSE" MODEL ATD.

For "close" detectors, ambient radon progeny are excluded from measurement by the admission filter while the half-life of thoron (55 s.) just allows it to partially enter the casing.

Therefore, we can only think of recording the radon gas and a steady stream of thoron gas permitted by filter. As a matter of fact, we also record the radon progeny formed inside the casing, mostly fixed on the interior walls.

The recording becomes stable only after balancing the radon pressure and reaching equilibrium with its radon progeny, i.e. after more than 3 hours. If alpha particles were all in a position of being recorded, for 2 tracks due to radon progeny there would be 1 track due to radon. But that depends on the dimensions, geometry and statism of the casing (Damkjaer et al, 1990).

This largely unknown proportion of records radon progeny is at the source of results dispersion. We can only take this into

Theoretical relative curves  
( Assuming  $F = 0.5$  )

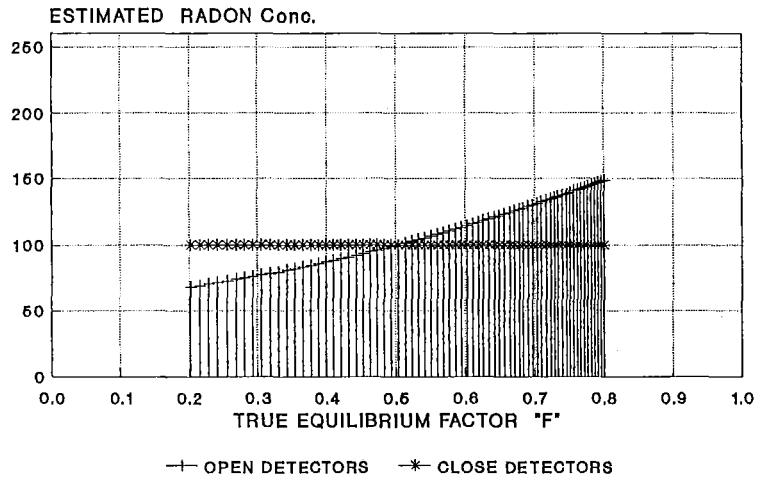


FIG.1 ESTIMATED RADON CONCENTRATION.

Theoretical relative curves  
( Assuming  $F = 0.5$  )

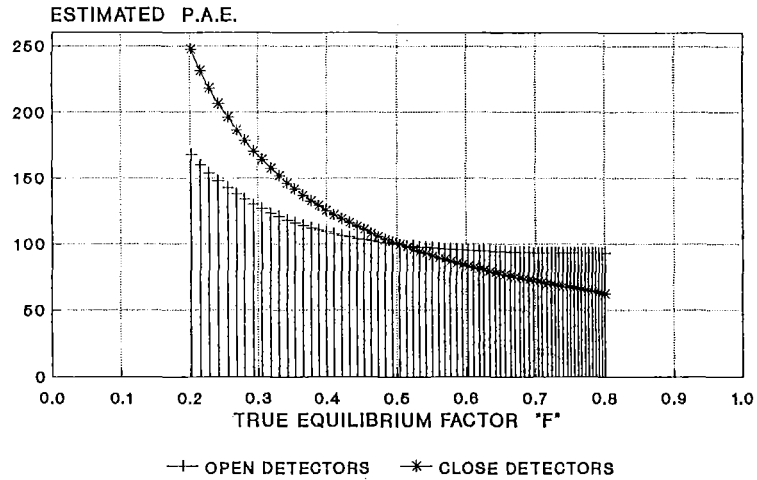


FIG.2 ESTIMATED POTENTIAL ALPHA ENERGY.

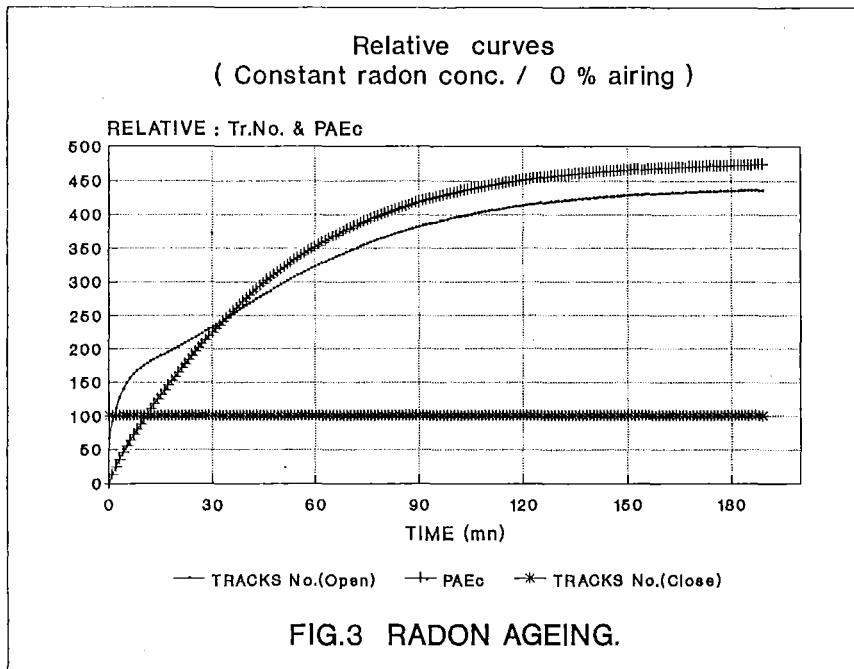


FIG.3 RADON AGEING.

account, generally speaking, when practically calibrating the detector. However, some statism fluctuations are unforeseeable.

Exposure is not stopped when the casing is closed. True time exposure is at least 4 days more than opening time, except if the analysis can be done beforehand. The later analysis is charcoal detectors.

Only "close" detectors, fitted with highling efficient filters, are insensitive to thoron (Pearson, 1990). Like charcoal detectors, they are 100 % insensitive to ambient radon progeny but they can only be exposed as "long term" devices (> 1 month).

### 3.2 "OPEN" MODEL ATD.

The "open" detectors work like the "close" detectors whose casing would be the room space where the measuring is being carried out. The radon progeny recorded are those we really breathe and not those fixed on the inside walls of the casing.

The main difference is that the volume of air involved in the measurement is not limited to the dimensions of the casing. It is in fact limited by the distance covered by the alpha particles in the air and a detection angle-limit in the region of 45 °. Everything happens as if we were carrying out the measurement in a greater volume for the most energetic alphas which have the greatest distance to cover. For example, the **maximum** measuring distance is about 33mm for  $^{222}\text{Rn}$  (5.5 MeV), 40mm for  $^{218}\text{Po}$  (6.0MeV) and 60mm for  $^{214}\text{Po}$  (7.7.MeV).

LR115 film is characterized by a window of sensitivity, say between 1.2 to 4.8 MeV, depending of etching and counting conditions. So it is insensitive to alpha emission at less than a **minimum** distance : <5mm for  $^{222}\text{Rn}$ , <12mm for  $^{218}\text{Po}$ , <32mm for  $^{214}\text{Po}$ , under regular pressure. That is also why it can work in "open" mode : it is insensitive to radon progeny plated out on the film.

These detectors can be instantaneously put on "start" or "stop", how ever often we wish by the interposition of a simple polyester screen. This screen does not even have to be closely placed up against the film. It also prevents perfectly well background noise during storage. The short half-life of thoron is no longer a problem for its recording. The

detectors can be equally short term, long term or even time fractioned.

The absence of casing enables us to desing extermely light and streamlined detectors.

### 3.3. SPECIFIC FEATURES OF "OPEN" DETECTORS

#### 3.3.1. Concentration of radon gas.

Since only a part of the tracks is due to gas, we have to extrapolate on a certain "F" so as to calculate the concentration level of radon. If assumed F is 0.5 and true F is 0.7, the radon concentration level is over-estimated by about 18 % (fig.1). But, at the same time, the energy level of ambient radon progeny has increased by 40 %, i.e. the over-reckoning is aiming at a better calculation of the overall-risk.

For short information on calculation principale, see ATTACHMENT.

It should be noted that the equilibrium factor can be calculated by a simple, simultaneous usage of an "open" ATD and a "close" ATD. The "open" ATD equals the result of the "close" one for only one specific F data set in the calculation.

#### 3.3.2 PAEc (WL) / EERc (Bq.m<sup>-3</sup>).

As there are generally more tracks emerging from radon progeny than radon gas (a 3/1 ratio for F = 1 and 1.7/1 for F = 0.5 and 1/1 for F = 0.14), measurement accuracy is better for the radon progeny than for the gas. If assumed F is 0.5 and true F=0.7, the PAEc (WL) or EERc (Bq.m<sup>-3</sup>) will be under-estimated by about 15 %. In the same situation, a "close" detector would have been under-estimated by 30 %, i.e. roughly **2 times worse (Fig.2&3)**.

#### 3.3.3. Thoron and its progeny.

In the case of thoron presence, the radon gas concentration (Bq.m<sup>-3</sup>) and PAEc of the radon progeny (WL) are over-estimated. The "close" ATDs already show this type of effect. We must admit to only measuring an **"Equivalent Concentration"** of radon or Equivalent PAEc. However, since no passive

method allows us to make the distinction between radon and thoron, over-estimation is preferable to an insensitivity to thoron and high F, in terms of health hazards.

Thoron comes mainly from materials. It remains more concentrated near its sources (walls, floors...) due to its 55s half-life, while some thoron progeny may be more homogeneous thanks to their 10 hours half-life.

### 3.3.4. Sensitivity to air pressure.

Accuracy increases with altitude. Indeed, every 100-meter, if no temperature change, the atmospheric pressure decreases by 1 % and the free circulation of alpha particules in the air increases by 1 %. Therefore, theoretically, the volume of measurable air increases by about 1 %, that is roughly.

Therefore, we should take altitude into account if it is higher than about 400 meters. It should be noted that **the respiratory flow rate** also increases with altitude and that the PAEC recommendations should take this into account.

### 3.3.5. Personal monitoring and public market.

The "open", light and flat detectors enable us to carry out personal monitoring easily, with acceptable aesthetics included. The time-span passed in the various concentrations come up against is then automatically integrated, without any reaction time span, by passing from one room space to another and with no sensitivity to air movement. The average "**exposure**" to PAE, of each person monitored, (J.h.m<sup>-3</sup> or WLM) is the only one true risk parameter we should try to reduce.

For "in situ" detectors, it becomes very easy to carry out **fractioned detection** in time. The latter is often envisaged but unrealizable without "open" detectors.

Its sending under normal postal envelopes renders its use much more simple and easily acceptable for the public at large.

## 4. DISCUSSION : RADON GAS AND HEALTH RISK INDICATOR.

Apart from the fact that passive detectors leave us no choice in the matter, the

main argument in favour of the measurement of radon gas as an indicator of health hazards derives from the assumption that :

- The "unattached fraction" of radon progeny, are believed to be responsible for the greatest portion of the health risk (Van Cleef et al. 1990).

- Equilibrium Factor F and unattached fraction are varying in reverse directions, because of their dependency of the aerosol concentration (Porstendorfer, 1986).

So the health risk would therefore be directly proportional to the sole concentration of the radon gas.

This is inaccurate because very small-sized aerosols are also very dangerous and cannot be neglected. Another reason is that this is only true at general equilibrium, which is rarely reached. Practically airing has a big influence. For example, an airing of 20 % per hour does not allow to obtain more than  $F = 0.84$  even without plating phenomenon, and independently of the unattached fraction.

### Plating and airing are two independant ways of decreasing "F".

For a **scientific** point of view it is better to measure one single parameter at a time, let say radon concentration, thoron concentration, F, WL, progeny size distribution, etc. But it does not exist a single parameter able to give a good health risk indication, simply at low cost.

For a good assessment of the health risk, the **homeowner** needs a cheap method, giving the best single parameter, taking into account the overall risks involted. Thanks to their ambient radon and thoron progeny sensitivty, to their higher sensitivity for higher energies, and to their atmospheric pressure sensitivity, open detectors seem to be one of **the best overall risk indicator**, although nothing in perfect in this field.

For **post-mitigation** control measurements, it is obviously better to measure the radon gas, since we try to reduce gas entries.

## 5. DISPLAY OF "OPEN" DETECTOR

### RESULTS.

After process and batch calibrations within a radon chamber whose equilibrium factor "F" and chamber pressure (at least altitude) are known, the measuring results can be expressed in several ways. For example, by introducing an assumed F at 0.5 in the calculations, we can assert :

#### - Radon gas concentration (Bq.m<sup>-3</sup>).

In most cases, F is understood as being between 0.35 and 0.60, then the error remains lower than +/- 15 %.

#### - "Equivalent radon concentration" (Bq.m<sup>-3</sup>).

If real F is > 0.65 or if there is thoron in the room space, the radon concentration is automatically over-estimated by a factor which reflects about the real increase in alpha energy and from there the increase of risk. Therefore, the figure obtained is an excellent, overall indicator of the health hazard.

#### - Potential Alpha Energy conc.( $\mu$ J.m<sup>-3</sup> or WL) or EERc (Bq.m<sup>-3</sup>).

The result can be expressed in PAEc with an error below 20 % between F = 0.35 and 0.80 ie roughly 4 times less than all passive detectors on which a great error derives from the "F" hypothesis. Moreover, this PAEc includes thoron progeny as well.

#### - Exposure (kBq.h.m<sup>-3</sup> or WLM).

The use of **personal monitoring** automatically brings into play the time spent in the premises. It is submitted to the same comments as previously made for F and thoron. The 0.02 WL limit for "in situ" control, for 75 % of presence time, in fact corresponds to an individual annual exposure limit of 0.77 WLM, or 2.7 mJ.h.m<sup>-3</sup>, or 485 kBq.h.m<sup>-3</sup> EERc.

### ATTACHMENT.

\* The Potential Alpha Energy (PAE) of

any atom in the radon or thoron decay schemes is the total alpha energy emitted during the decay of this atom along the decay chain down to <sup>210</sup>Pb or <sup>208</sup>Pb respectively. So an atom which is not an alpha emitter can have a significant contribution to the total PAE, due to one of its daughters.

Ex. : PAE of one <sup>214</sup>Pb atom = 7.7MeV or  $7.7 \times 6.24 \times 10^{-12}$ J.

\* The total PAE inside of a certain volume is the sum of the PAE of all daughter atoms which are present in this volume :

$$PAE_{tot} = N_1 \times PAE_1 + N_2 \times PAE_2 + N_3 \times PAE_3 + \dots$$

Where Ni = Number of atom (i), and PAEi=PAE of each atom (i).

\* The Number Ni of atoms of the element (i) is related to its period Ti (s) and activity Ai x (Bq) :

$$N_i = (A_i \times T_i) / 0.69$$

Ex. : for <sup>218</sup>Po which period is 183s :  $N = 183 / 0.69 = 265$  atoms for each 1Bq of activity.

\* After calculation, we obtain the general formula (M.C.R.P. Report n° 97).

$$PAE_{tot} = 10^{-9} \times 0.58 \times A_1 + 2.9 \times A_2 + 2.1 \times A_3,$$

The index 1,2,3 are respectively for <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi (or <sup>214</sup>Po).

PAE expressed in joule and Ai in becquerel.

Note that <sup>214</sup>Pb is not an alpha emitter.

\* At equilibrium (eq), that is for F = 1, radon gas activity : ARn = A1 = A2 = A3 and PAE is called PAE

For F=0.5, a lot of Ai combinations can give a sum of PAE(eq)/2, thanks to F definition  $F = PAE(\text{actual}) / PAE(\text{eq})$ .

\* On the other hand, for open detector, the number of tracks (Nt) obtained after film exposure, etching and counting, has the general form :

$$N_t = K \times D \times (A_{Rn} + 1.19 \times A_1 + 1.96 \times A_3).$$

where K = calibration factor, and D = exposure time.

Note that <sup>214</sup>Pq is no more present in the formula, but that <sup>214</sup>Pb is no more present in the formula, but that <sup>222</sup>Rn is.



Numeric coefficients comes from differences of analysed air volume vs initial alpha energy. They have been deduced from various calibrations made by U.S. EPA for several Equilibrium Factors.

#### REFERENCES.

**STEINHAUSER F.**, Long term measurement of  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Pb}$  concentrations in the air of private and public buildings and their dependence on meteorological parameters. Health Phys. 29, 705. (1975)

**SCHERY, S.D.**, Measurements of airborne  $^{212}\text{Pb}$  and  $^{220}\text{Rn}$  concentrations at varied indoor locations within the U.S. Health Phys. 49, 1061 (1985).

**JOHNSON R.H.**, Key Technology E.Geiger, A. Rosario, Radon QC. Cigarette smoking

increases radon Working level exposures to alloccupants of the smoker's home. AARST radon conferences Oct.1990.

**DAMKJAER A. and JORGENSEN J.L.**, Technical University of Denmark. A comprehensible radon assay system using cellulose nitrate films.

**PEARSON M.D.**, UNC Geotech, Colorado U.S.A., for U.S. Dept of Energy. Calibration of alpha-track monitors for measurement of thoron. Symposium 1990 EPA ATLANTA.

**VAN CLEFF. DOUGLAS J. and WINDHAM, SAM T.** Experience with the Wire Screen Unattached Fraction Measurement Technique. U.S.E.P.A. Symposium 1990 EPA ATLANTA.

**PORSTENDORFER J.** Behaviour of radon daughter products in indoor air. Radiat. Prot. Dosim. 7 : 107-113 (1984).

**N.C.R.P. REPORT N°97**

## EMANATION RADON DE PHOSPHATES SEDIMENTAIRES ET PHOSPHOGYPSES CORRESPONDANTS

**M. BERRADA; F.Z. BOUJRHAL; A. CHOUKRI; T. EL KHOUKHI;** Laboratoire de Physique Nucléaire, Faculté des Sciences - BP 1014 - Rabat - MAROC.

**M. R. IRAQI,** Centre d'études et de recherches des phosphates minéraux 73 - 87 Boulevard Moulay Ismail, CASABLANCA - MAROC.

### ABSTRACT

*Sedimentary phosphates contain 50 to 200 ppm of uranium in more or less radioactive equilibrium with radium and therefore are radon emanating sources. A hundred phosphate samples coming from different regions of Morocco, as well as phosphogypsum produced from these phosphates, were analyzed by gamma spectrometry to determine their radium contents and radon emanating rates. These were obtained by differences of radon activities before and after sealing the samples. Radon emanating rates at room temperature (20°C) as well as at different temperatures between 100°C and 900°C were measured.*

*Radon degassing curves versus increasing temperatures were obtained for some phosphates and phosphogypsum. It was noticed that after heating, radon degassing, and reconstitution of radon inside crystals, a lower emanating rate was reached.*

### 1. INTRODUCTION

Les phosphates sédimentaires contiennent de l'Uranium à des teneurs variables entre 50 et 200 ppm le plus souvent plus ou moins en équilibre avec ses descendants radioactifs, notamment  $^{226}\text{Ra}$ . Comme celui-ci génère  $^{222}\text{Rn}$ , les phosphates constituent une source émanatrice de radon. La production d'acide phosphorique  $\text{H}_3\text{PO}_4$  à partir des phosphates se fait principalement par attaque chimique à l'aide de l'acide sulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Le résidu solide de l'attaque, le phosphogypse, ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) contient  $^{226}\text{Ra}$  à des activités spécifiques variables entre 300 et 900  $\text{Bqkg}^{-1}$ . Il est donc aussi une source émanatrice de radon. Une partie du radon reste bloquée à l'intérieur de la structure cristalline, une autre, diffuse vers l'extérieur, donnant naissance aux émanations. La présente étude consiste en la mesure des taux d'émanation radon de divers échantillons de phosphate et phosphogypse, à la température ambiante (20°C) et à différentes températures entre 100°C et 900°C.

### 2. METHODE DE MESURE

Elle a été décrite en détail dans la référence (1). Brièvement, elle utilise la spectrométrie gamma à l'aide d'un scintillateur NaI (TI) de 3" X 3" avec un puits de 1" X 2". L'absence de potassium et de thorium dans le spectre gamma des échantillons de phosphate et de phosphogypse étudiés, rend l'utilisation d'un

détecteur Germanium inutile et peu intéressante en raison de la plus faible efficacité de comptage de ce dernier détecteur. L'analyse des différentes parties du spectre, et la réalisation de différents étalons ayant des rapports d'équilibre U/Ra différents, permet de déterminer indépendamment les teneurs en Uranium, radium ( $^{226}\text{Ra}$ ), et le taux d'émanation radon (fig.1).

Les échantillons à analyser sont introduits dans le puits du scintillateur. Ils ont une masse d'environ 10 g. Les phosphates ont une consistance sablonneuse et un tamisage grossier sélectionne les grains de diamètre inférieur à 1000  $\mu\text{m}$  avant l'analyse. Les phosphogypses produits ont une consistance pâteuse. Séchés à 105°C ils prennent la forme d'une poudre blanchâtre. C'est sous cette forme qu'ils sont analysés. Le temps de comptage typique des échantillons est de 1 000 secondes, et peut augmenter jusqu'à 4 000 secondes pour les échantillons de faible teneur (50 ppm d'Uranium). Pour la mesure du taux d'émanation radon, on sélectionne la partie du spectre au dessus de 240 keV contenant presque exclusivement les raies de  $^{214}\text{Pb}$  (26,8 minutes) et  $^{214}\text{Bi}$  (19,9 minutes) descendants de  $^{222}\text{Rn}$ . Une première mesure, en tube ouvert, donne  $A_1$ , activité du radon bloqué naturellement dans la structure cristalline de l'échantillon. La partie qui émane sort du détecteur et n'est pas comptée. Une deuxième mesure  $A_2$  est effectuée 3 semaines après scellage de l'échantillon. Elle donne la somme

$$T(\theta) = \frac{A_2 - A_1(\theta)}{A_2}$$

$A_1(\theta)$  = activité mesurée du radon encore bloqué dans les grains portés à la température  $\theta$

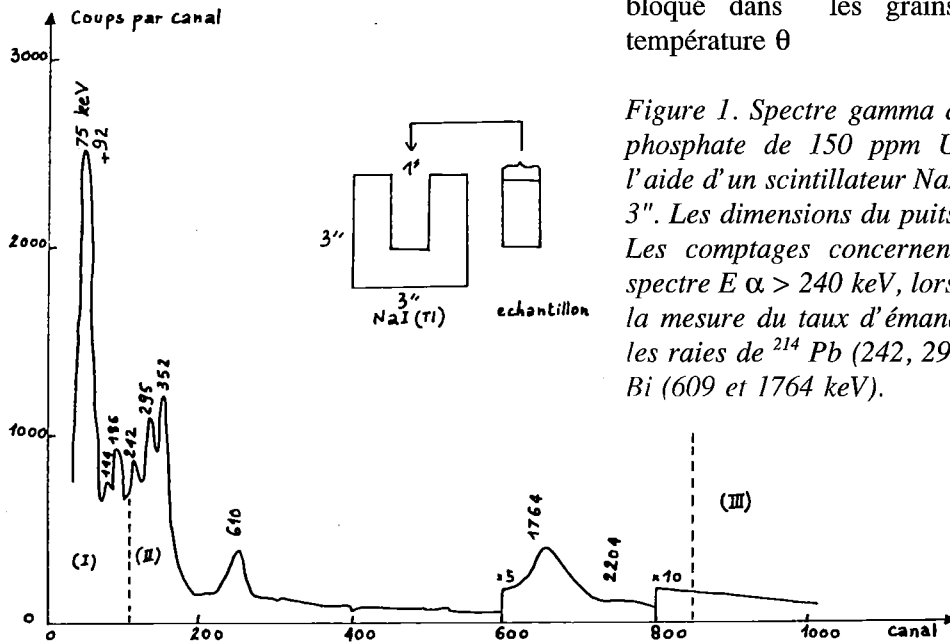


Figure 1. Spectre gamma d'un échantillon de phosphate de 150 ppm Uranium, obtenu à l'aide d'un scintillateur NaI (Tl) puits de 3" X 3". Les dimensions du puits sont 1" X 2".

Les comptages concernent la région II du spectre  $E \alpha > 240$  keV, lorsqu'on s'intéresse à la mesure du taux d'émanation. Elle contient les raies de  $^{214}\text{Pb}$  (242, 295 et 352 keV) et  $^{214}\text{Bi}$  (609 et 1764 keV).

des activités du radon bloqué dans les cristaux et de celui bloqué par le scellage. Cette deuxième composante est celle qui émane des cristaux. Comme la période de  $^{222}\text{Rn}$  est de 3,8 j, trois semaines sont suffisantes pour assurer l'équilibre entre  $^{226}\text{Ra}$  de l'échantillon et l'ensemble de  $^{222}\text{Rn}$  généré.  $A_2$  est donc égale à l'activité de  $^{226}\text{Ra}$  contenu dans l'échantillon. Le taux d'émanation est donné par :

$$T = \frac{A_2 - A_1}{A_2}$$

Les courbes de dégazage ont été obtenues en chauffant les échantillons entre 100°C et 900°C dans un four programmable. Durée de chauffage 2 heures; durée de refroidissement à la température ambiante 2 heures. Les échantillons sont comptés après chauffage et refroidissement, pendant 1 000 secondes. Le temps de refroidissement, très grand devant les périodes de  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ , permet d'obtenir l'équilibre radioactif entre ces derniers radionuclides et  $^{222}\text{Rn}$ , après le dégazage. Les taux d'émanation à différentes températures sont calculés à partir de :

$A_2$  = activité de  $^{226}\text{Ra}$  mesurée une fois pour toutes 3 semaines après scellage de l'échantillon.

Après une première montée de température jusqu'à 900°C, donc un dégazage partiel ou parfois quasi total du radon, on laisse celui-ci se reconstituer à température ordinaire 20°C pendant 3 semaines à l'intérieur des cristaux, et on refait une deuxième montée de température pour obtenir une nouvelle courbe de dégazage de l'échantillon déjà cuit.

### 3. RESULTATS

1. Les taux d'émanation radon à 20°C, mesurés pour 160 échantillons de phosphate de diverses régions, sont assez faibles et restent en majorité inférieurs à 20% (fig. 2).
2. Les taux d'émanation radon à 20°, mesurés pour une vingtaine d'échantillons de phosphogypse, sont plus importants mais restent inférieurs à 50 %.
3. Les mesures effectuées sur un phosphate naturel donné pour lequel les diamètres des grains ont été sélectionnés par tamisage

montrent que les taux d'émanation radon varient peu avec la grosseur des grains entre 200 et 2 400  $\mu\text{m}$ , avec une légère tendance à l'augmentation pour les grains de petite taille. (fig. 3).

4. Les courbes de dégazage radon en fonction de la température montrent une augmentation d'abord lente quand la température augmente jusqu'à 500°C environ, puis brutale à partir de 600°C. Les phosphates atteignent des taux d'émanation de 60 à 80 % à 900°C tandis que les phosphogypses atteignent 90 % à 900°C (fig.4,5,6).

5. Les courbes de dégazage radon étudiées lors d'une deuxième montée de la température, sur des échantillons déjà chauffés à 900°C et qui ont régénéré totalement leur radon, après attente de 3 semaines à la température ambiante (20°C) montrent des taux d'émanation systématiquement plus faibles que ceux de la première. Cela est vrai pour les phosphates aussi bien que pour les phosphogypses (fig.4,6).

6. Les taux d'émanation des échantillons chauffés à une température  $\Theta$ , et qui ont régénéré leur radon à la température ambiante 20°C après 3 semaines d'attente sont plus faibles qu'avant chauffage, et ces derniers taux semblent se maintenir après plus de 4 mois (fig.7 et 8). Des mesures sont en cours pour des intervalles de temps plus longs.

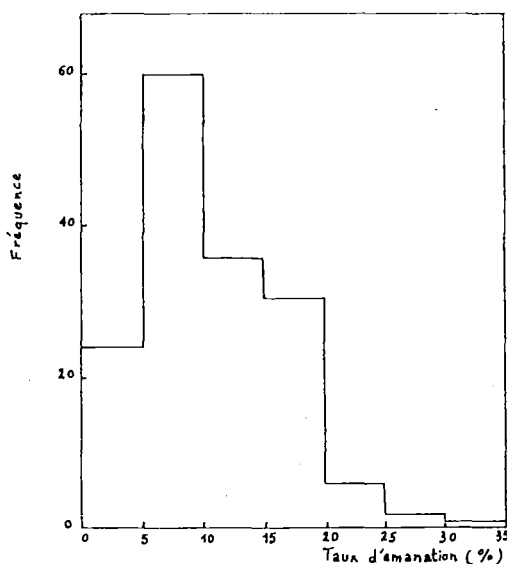


Figure 2. Histogramme des taux d'émanation radon de 160 échantillons de phosphate à la température ambiante de 20°C.

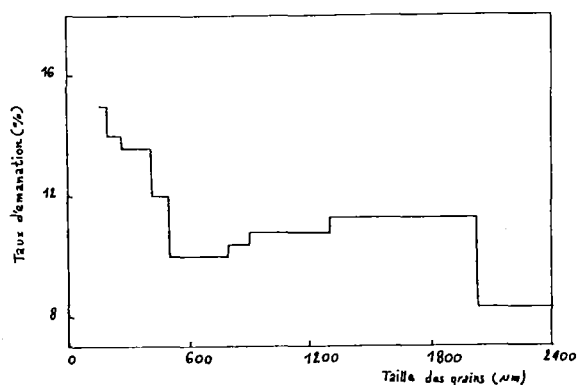


Figure 3. Taux d'émanation radon à 20°C en fonction de la taille des grains d'un phosphate naturel.

## CONCLUSION

La présente étude a permis de définir une méthode expérimentale simple et rapide pour étudier les émanations radon, dans des échantillons de phosphates sédimentaires et de phosphogypses correspondants. Elle a mis en évidence le rôle important joué par la structure cristalline. Celle-ci retient une grande partie du radon produit (80 % ou plus dans les phosphates et 70 % ou plus dans les phosphogypses). Ce radon est libéré lentement, quand on élève la température entre 100 et 600 °C, puis brutalement entre 600 et 800 °C.

Les échantillons ainsi recuits et refroidis, acquièrent un taux d'émanation radon plus faible qu'au départ.

Cela confirme le rôle joué par les défauts de la structure cristalline qui laissent les émanations, et qui sont totalement ou partiellement réparés par traitement thermique.

## BIBLIOGRAPHIE

Uranium, Radium and radon emanating rates of Moroccan phosphate samples, **M. BERRADA, A. CHOUKRI, T. EL KHOUKHI**, Proceedings of the international workshop on radon monitoring in radioprotection, environmental radioactivity and earth sciences, Trieste, 3-14 April 1989, World Scientific, 504-510.

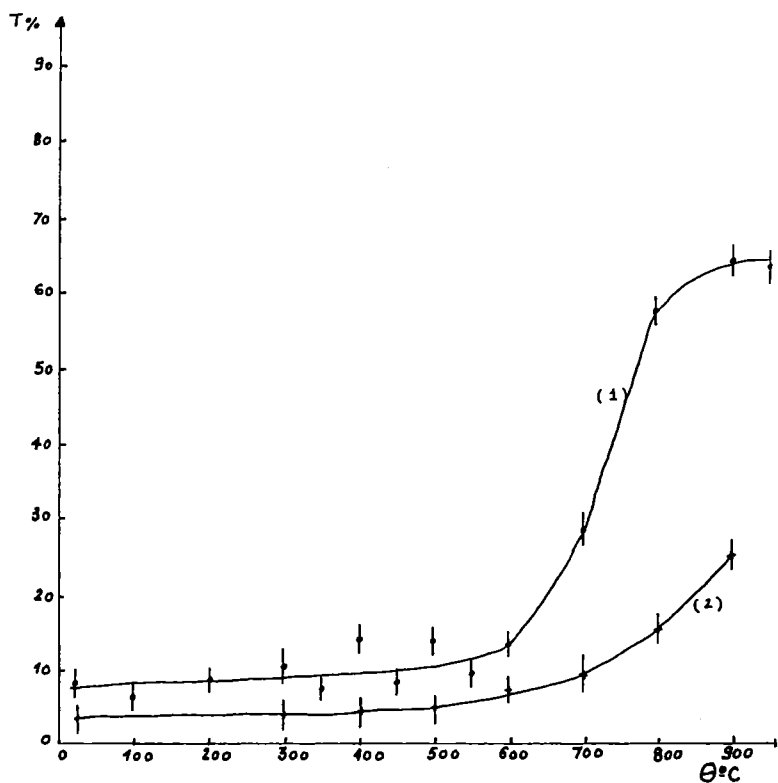


Figure 4. Courbe de dégazage radon d'un phosphate marchand 1. (1) : première montée de température. (2) : deuxième montée de température sur l'échantillon porté à 900°C après attente de 3 semaines à température ordinaire (20°C) pour la régénération du radon. On remarque les taux d'émanation systématiquement plus faibles de l'échantillon cuit.

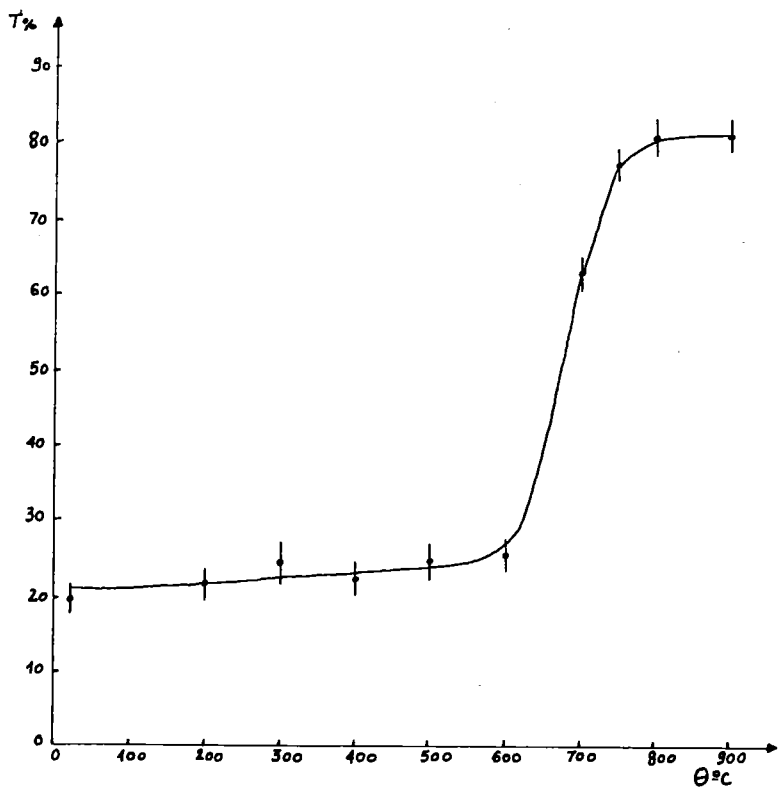


Figure 5. Courbe de dégazage radon d'un phosphate brut 2 présentant un taux d'émanation à 20°C plus élevé que le précédent (20 %). On remarque qu'à 900°C, son taux d'émanation est aussi plus élevé (85 %).

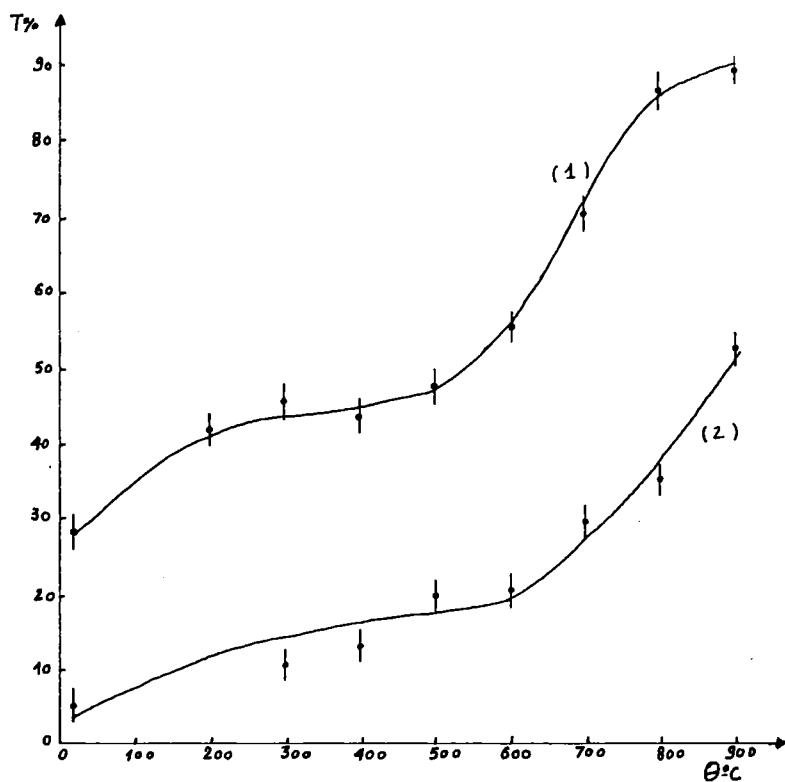


Figure 6. Courbe de dégazage radon d'un phosphogypse produit à partir du phosphate 1. (1) : première montée de température. On remarque des taux d'émanation plus élevées que les phosphates, atteignant 30 % à 20°C et 90 % à 900°C puis laissé à la température de 20°C pendant 3 semaines pour la régénération du radon. On remarque les taux d'émanation systématiquement plus faibles de l'échantillon cuit.

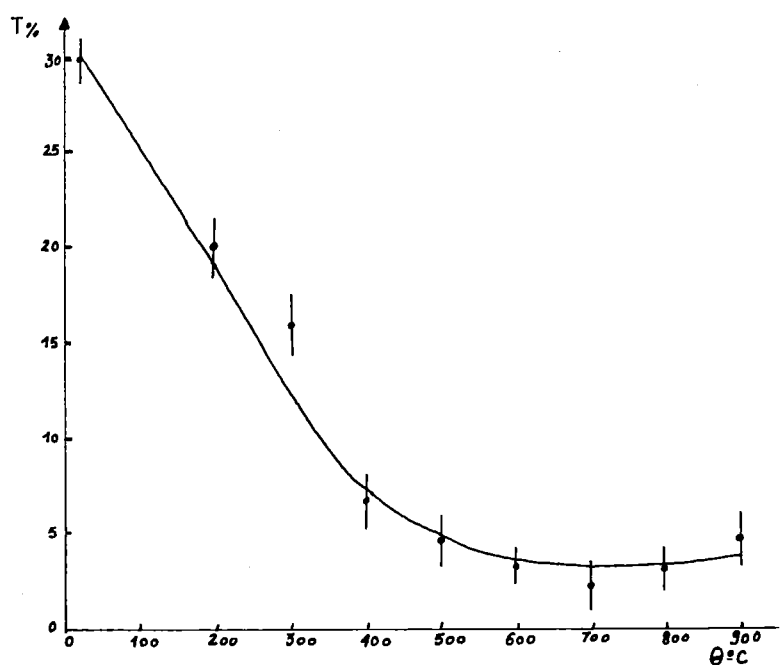


Figure 7. Phosphogypse produit à partir du phosphate 1. Taux d'émanation final à 20°C après cuisson à différentes températures et reconstitution totale du radon dans les cristaux. Le taux d'émanation à 20°C baisse de 30 % à 5 % pour les échantillons cuits à 400°C pendant 2 heures. Ce nouveau taux semble se maintenir encore après 4 mois.

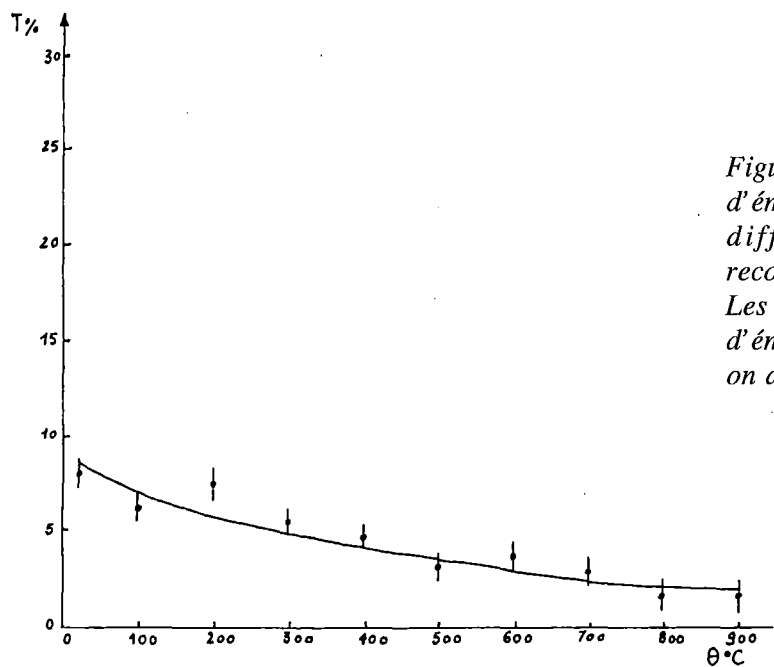


Figure 8. Phosphate marchand 1. Taux d'émission final à 20°C après cuisson à différentes températures et reconstitution totale dans les cristaux. Les échantillons cuits ont des taux d'émission plus faibles, et dès 400°C on atteint le taux de 5 %.

## USE OF VOLATILE ORGANIC COMPOUNDS HELD IN ROCKS FOR MINERAL EXPLORATION (long abstract) (1)

J.R. DISNAR \*, and D. DEFOIX \*\*

\* BRGM, SGN/GRF, BP 6009, 45060 ORLEANS CEDEX

\*\* CNRS, URA 724, Université d'Orléans

### INTRODUCTION

The fortuitous discovery of anomalously high amounts of methane in rocks adjacent to mineralization in the Northern Pennine orefield led to the examination of a new gas lithochemical exploration tool for hidden base metal deposits. The method, based on the chromatographic analysis of the volatile organic compounds released by heating the rocks in sealed tubes (210°C; 2h30), was first tested on the site of the initial findings, and later on deposits in Ireland and in other European Countries. The work frequently led to detect anomalies in methane and/or other organic compounds in the vicinity of mineralization but left questions unsolved. The main problems concern : (1) the reliability of the heat extraction procedure, questioned by the production, together with alkanes, of high amounts of compounds usually not observed in rocks (alkenes, oxygen-containing compounds) (2) the relation between gas contents and ore genesis.

The part of the French team in the project was to obtain information on these two points.

### LABORATORY STUDIES

In addition to methane and other alkanes, which are normal components of sedimentary rocks, the heat extraction procedure produces high proportions of alkenes and oxygenated organic compounds such as methanol, ethanol and acetaldehyde. Thus, it had to be verified if these unusual compounds really occur in rocks or if they are artifacts of the heat extraction technique. Information about this point was searched by a comparison of various methods of extraction (grinding, vacuum extraction, heating at variable temperatures and with various devices). The results of this study and general considerations led us to conclude that only

sorbed moieties are capable of fulfilling the two opposite properties required for the exploration of concealed orebodies : (1) to escape slowly from their formation site at depth and (2) to remain a long time in outcropping rocks where they must be detected. Basically, sorbed species can be extracted by pumping or heating. Laboratory tests have demonstrated that the first method is difficult to apply and gives no meaningful results. Heat extraction, used up to now for exploration tests, has proven its usefulness for the routine analysis of a large number of samples. Experiments of stepwise heating of rock samples in sealed vessels and other experimental conditions, have shown that the release of gases appears to occur in two successive stages. With the samples studied, containing low mature organic matter, the first stage, observed from ambient temperature to about 200°C is supposed to result from the release of sorbed compounds, no thermal cracking of the organic matter contained in the sample being expected at such low temperatures. The thermal cracking could be responsible for the second gas emission stage observed at higher temperature (>200°C). Sorbed gases released by heating up to about 200°C, contain high proportions of alkenes and other unusual organic compounds which are not observed in the free gases, initially contained in the pores of freshly drilled cores, and which are almost uniquely constituted with saturated hydrocarbons. The ability of minerals and mainly organic matter to absorb hydrocarbons has been verified in the laboratory. The higher adsorption efficiency of alkenes relative their saturated homologues, certainly due to the carbon-carbon double bond, may explain why they are released only by heating. These observations support the idea that alkenes and oxygenated volatile compounds observed when heating the rocks at mild temperatures (<200-220°C) are normal components of sedimentary formations, not released by conventional extraction procedures.



## FIELD STUDIES

Two different field studies have been carried out to determine the relation between volatile organic compounds and mineralization. The first one deals with the analysis of 81 samples taken at outcrop on various mineralized and unmineralized areas in Liassic series along the eastern margin of the Causses Basin (France). Previous geochemical studies on the Trèves Zn-Pb-Ba deposit and on various other locations of the region, led to the conclusion that mineral occurrences in liassic terranes of the whole area resulted probably from a unique low temperature hydrothermal event also responsible for the dolomitization of the host carbonate formations. Sulfide formation resulted very likely from biological activity developed at the favor of the mixing of the warm solutions with cold surface waters. The inorganic analyses showed that eight of the ten localities investigated are mineralized (i.e., individual samples containing more than 30 000 ppm Zn and /or 3 500 Ba). All the mineralized samples are dolomitized ( $Mg/Ca > 0,33$ ), and all generally contain high concentrations of Hg (between 50 and 230 ppb for individual samples). The dolomitized samples, mineralized and barren, display a hydrocarbon gas composition (C1 to C4) with a tendency towards pure methane ("dry gas"), whereas calcarenites contain relatively high proportions of alkanes and alkenes, higher homologues than CH<sub>4</sub> ("wet gas"). This maturity assessment is substantiated by Rock-Eval pyrolysis data, which showed parallel increases in the values of the T<sub>max</sub> maturity parameter and the proportions of methane in gas fractions from the corresponding samples (see Figure). The Rock-Eval method also revealed migrated oils or bitumens in many samples exhibiting a mature gas composition. These compounds were very likely brought in by the hydrothermal fluids responsible for the abnormal maturity, dolomitization, and ore deposition of the corresponding samples. These results clearly demonstrate the possibilities offered the analysis of volatile organic compounds to detect, possibly mineralizing, (paleo hydro) thermal events.

The second approach was to try to get a better insight into the origin of gas signatures through a comparison with detailed analytical

results on the other organic compounds contained the corresponding samples, and amenable to classical geochemical studies (Rock-Eval pyrolysis; bitumen extraction and fractionation; analysis of the saturated and aromatic hydrocarbons by gas chromatography (GC) and GC-mass spectrometry (GC-MS)). The work was undertaken on samples from the Les Malines mine (Gard, France) collected and analyzed for gases three years ago, together with core and surface samples from the mine area. Les Malines is an uniformity type Zn-Pb deposit which comprises various types of mineral occurrences (veins, massive bodies, ore minerals as cement of breccia) in the Georgian dolomitic basement, Triassic marls and conglomerates and Bathonian dolomites. The samples originated from three different mine works : Espérance (11 samp.), Vieille Mine (11 samp.) and Montdarlier (8 samp.). All the mineralized and barren facies have been sampled, except oxidized ores in the Bathonian. Notable variations in the absolute and relative proportions in the various volatile organic compounds had been noticed between these different locations. For example, the average methane contents are respectively equal to 87 % for Montdarlier, 69 % for Vieille Mine and 49 % for Espérance. A large part of these variations can be explained by the presence of large amounts (up to 30 %) of acetaldehyde in some of the samples. The presence of this unusual compound seems to be related to migrated bitumens themselves frequently associated to mineralization. However, this observation is not fully demonstrated by clear correlations, very likely because of the ability of the gases to escape from their site of formation. Furthermore, the poorness in organic carbon of most of the samples strongly limited the investigations. A new sampling, recently collected, is presently under study.

## CONCLUDING REMARKS

Laboratory and field observations strongly support the idea that heating is certainly the more appropriate way to release sorbed volatile compounds from rocks, for analysis, and that such compounds can bear valuable information for the search of concealed mineralization.

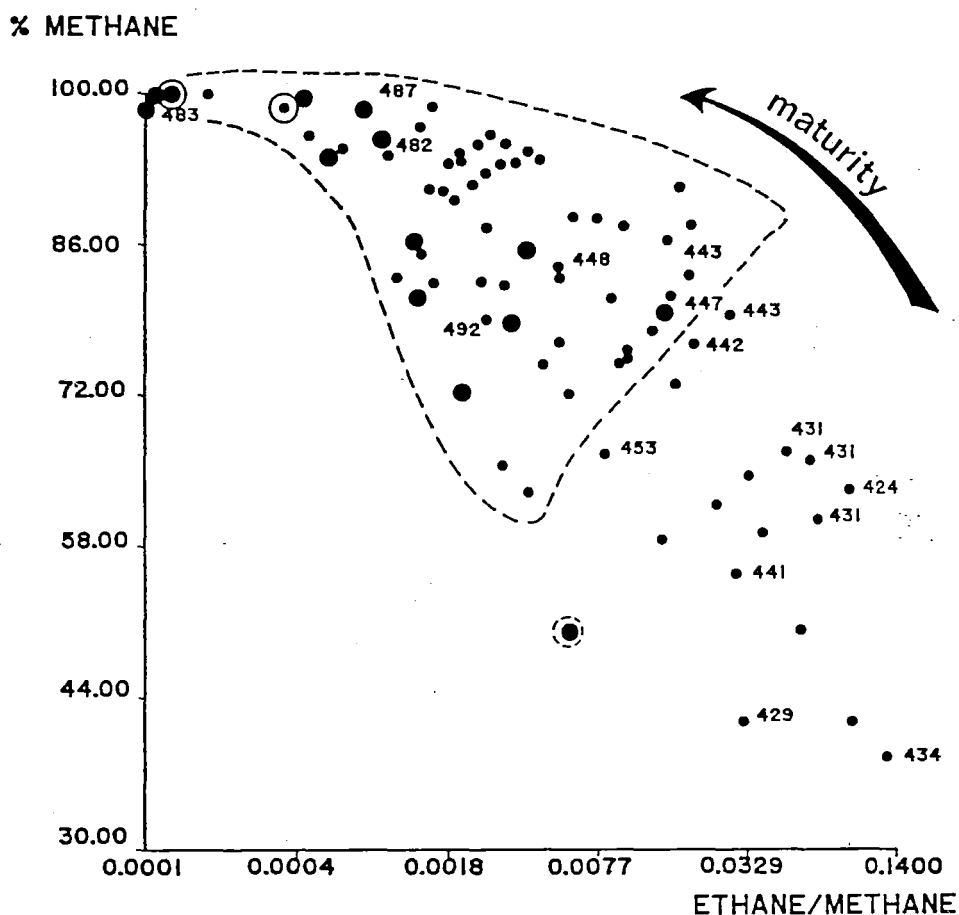


Figure 1. Relationship between thermal alteration of organic matter revealed by hydrocarbon gas signatures and  $T_{max}$  values, and mineralization (expln in text).

. Mineralization : Ba > 0.35 % (solid circles) and Zn > 3 % (open circles) for individual samples.

. Bitumens : samples in the area(s) delineated by a dashed line.

(1) This work was carried out with funds granted under the E.E.C. CREST contract n° MA1M1 - 0003C. Most of the results have been already published in a paper entitled : "Volatile hydrocarbons in Ba-Zn-Pb ore genesis : analysis and use in mineral exploration", J.R. Disnar (1990), J. Geotherm. Explor., 38 : 205 - 224.

## MEASUREMENTS OF THE $^{222}\text{Rn}$ FLUX AND THE $^{222}\text{Rn}$ ACTIVITY CONCENTRATION PROFILES IN SOME SOILS

C. DUEÑAS M.C. FERNANDEZ AND J. CARRETERO

PHYSICS DEPARTEMENT MALAGA UNIVERSITY 29071 MALAGA (SPAIN)

### ABSTRACT

*Measurements were made of radon exhalation from three types of soils using the method described by Pearson et al. (1965). The Radon exhalation depends more on soil type than on the  $^{226}\text{Ra}$  activity of the soil material. Measurements of radon gas concentrations in the soil interstices at different depths were used to calculate the diffusion coefficient in the soil gas in two different soils. Relations were found between exhalation and the difference of the difference of concentration observed in the soils mentioned.*

### INTRODUCTION

The radioactive  $^{222}\text{Rn}$  gas noble (half-life 3,8 d) is produced by  $\alpha$  decay of  $^{226}\text{Ra}$  (half-life 1600d) a trace component of all soils. Only a small fraction of totally produced  $^{222}\text{Rn}$  escapes from soil particles into soil air depending on the specific soil particle surface and, thus on grain size distribution. The  $^{222}\text{Rn}$  flux at the soil surface depends on the  $^{226}\text{Ra}$  content, grain size distribution and on the diffusion resistance of the unsaturated soil zone, Dorr and Munnich (1989). According to Tanner (1980), characteristics of the soil itself are important including : (1) the amount of parent  $^{226}\text{Ra}$  (2) the porosity and permeability of the soil and (3) the degree of water saturation.

In the present paper, we present directly measured  $^{222}\text{Rn}$  fluxes using the method of Pearson et al. (1965) in three types of soils in Malaga (Spain). Quantitative relations between the exhalation of Rn and the difference of Rn concentrations in the soil interstices were found. Measurements of radon gas concentrations in the soil interstices at different depths were used to calculate the diffusion coefficient of the Rn in two sampling points.

### EXPERIMENTAL METHODS

#### 1. Soil properties.

Granulometric soil analyses were carried out by the sieve method, Jimenez Salas (1975). Porosity was determined in the laboratory from real and apparent density measurements of a soil sample obtained by perforation of the soil with a core sampler which is a hollow cylinder whose volume is known. Permeability was determined in situ by assuming Darcy's law and measuring the flow for a fixed pressure drop.

The activity of  $^{226}\text{Ra}$  was inferred from measurements of  $^{214}\text{Bi}$  assuming radioactive equilibrium and using gamma spectroscopy.

#### 2. Radon exhalation rate.

Radon exhalation measurements followed the method of Pearson al. (1965). The experimental arrangement consists of a close circuit system with the following components: a) The collector, which in this case has an area of 310 cm<sup>2</sup>. b) A membrane pump to circulate the air through the system. c) Cartridges of activated carbon refrigerated by dry-ice to -76°C to ensure optimum adsorption of the Rn. d) Water trap. e) Carbon dioxide trap. f) Flow

meter to measure air flow rate (41/min in this work). Sampling times were 15 min for all experiments.

The cartridges of activated carbon were taken to the laboratory where they were heated, for 10 min to temperatures between 400 and 500°C to release the gas which was converged in a flow of Helium towards the detector system, a 0,5 litre glass flask coated with a film of ZnS (Ag), except on the base. The scintillation flask is connected to a conventional photomultiplier which counts the alpha particles emitted by the radon and its daughter products  $^{218}\text{Po}$  and  $^{214}\text{Po}$  when they reach radioactive equilibrium to permit the measurement and subsequent calculation of the exhaled Rn. The average precision of the exhalation measurements was some 7 %

### 3. Interstitial air radon

Measurements of Rn soil concentrations were made by inserting two stainless-steel sampling tubes into the soil.

The 10 mm diameter tubes terminated in a 3.5 cm diameter, 6 cm long, named as "filtration chamber" which was designed to permit the aspiration of interstitial air from the soil. The chamber was filled with glass fibres to prevent the aspiration of soil or clay particles. The superior extremities of the tubes

were sealed except for the time that samples were being taken. A small purging took place before the sampling. Air was aspirated at a rate of 31/min through the activated carbon cartridges refrigerated to -76°C. The cartridges were subsequently heated to release the gas which was then analysed in the same way as for exhalation samples.

## RESULTS

### 1. Radon Exhalation

The radon flux was measured in three types of soils : A, B and C. Tables 1, 2 and 3 show some soil properties pertinent to exhalation.

### 2. $^{222}\text{Rn}$ CONCENTRATION IN SOIL AIR

In soil A, measurements of Rn soil concentrations were made by inserting tubes into the soil, at depths 52, 105, 132 and 220 cm. We wanted to know the model of transport of the Rn between the surface and 220 cm in depth. The mean value of the permeability between the surface and this depth is  $5 \times 10^{-7} \text{ cm s}^{-1}$  which enables us to assert that the macroscopic transport by Knudsen's, Baver (1956) diffusion. Therefore the transport model in this soil will be the molecular diffusion. This

Table 1. Soil Properties of A.

PROPERTY	VALUE
Grain size distribution	(2 % fine sand, 20 % slime, 78 % clay)
Density	(2.70 +/- 0.01)gcm <sup>-3</sup>
Porosity	(0.43 +/- 0.05)
Permeability	$5 \times 10^{-7} \text{ cm s}^{-1}$
Radium $^{226}\text{Ra}$	< 0.40 pCi/g

According to the ASTM rule, (1954) for the classification of soils, this soil is a slimy-clay. The sampling zone was surrounded by trees and is situated 700 m from the sea shore.

Table 2. Soil properties of B

PROPERTY	VALUE
Grain size distribution	(58 % coarse sand, 30 % fine sand, 12 % slime)
Density	(1.550 +/- 0.016)g cm <sup>-3</sup>
Porosity	(0.55 +/- 0.05)
Permeability	1.4 x 10 <sup>-5</sup> cm s <sup>-1</sup>
Radium <sup>226</sup> Ra	(0.40 +/- 0.04) pCi/g

In accordance with the ASTM, (1954) rules for classification of soils, this soil has a coarse sandy texture. The sample point was about 500 m from the sea shore. The sampling zone was without vegetation but was surrounded by grass which covers the majority of zone.

Table 3. Soil properties of C

PROPERTY	VALUE
Grain size distribution	(4 % coarse sand, 96 % slime clay)
Density	(2.71 +/- 0.01) g cm <sup>-3</sup>
Porosity	(0.30 +/- 0,05)
Permeability	5.58 x 10 <sup>-5</sup> cm s <sup>-1</sup>
Radium <sup>226</sup> Ra	< 0.40 pCi/g

Talking into account the ASTM, (1954) rules for the classification of soil this soil is clayey. The sample point wase some 1000 m from the sea shore and had no vegetation

model of transport is well known, Kraner et al. (1964). The equation that relates the concentration C (z) with the depth (z) is :

$$C(z) = C_0 (1 - e^{-z\sqrt{\lambda S/D}}) \quad (1)$$

C<sub>0</sub> is the concentration at z = ∞

λ is the Rn decay constant

D is the bulk diffusion coefficient for Rn through the volume of the porous medium.

S is porosity

z linear dimension of the bulk of the medium under consideration.

The fitness of the concentration of Rn in the soil air to the equation (1) enables us to determine D, fig. 1. T value obtained is 0.119 cm<sup>2</sup>s<sup>-1</sup>. The relatively large diffusion coefficient obtained from the shallow layer concentrations suggest that a convective transport operates in addition to diffusion.

A relation was also found between exhalation rate (E) and the difference of concentrations (C) observed at 52 and 105 cm, fig. 2. The correlation coefficient is 0.87.

Table 4

Average Radon exhalation rate

	Soil A	Soil B	Soil C
Average Rn Exhalation $10^{-18} \text{Ci cm}^{-2} \text{s}^{-1}$	14 +/- 9	16 +/- 7	0.9 +/- 0.6
Number of measurements	21	32	13

The average flux for the three soils is  $10.3 \times 10^{-18} \text{ Ci cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . All the sampling points are situated on the outskirts of the city of Malaga. The average flux is a low value although it is comprised in the global  $^{222}\text{Rn}$  flux distribution, Turekian et al. (1977). According to Sisigina (1974) a correlation between Radium content in the surface soil layer and Rn exhalation exist. Soil B has a large concentration in Radium and its exhalation rate of Rn is the largest. Sisigina (1974) also reports an influence of the porosity over the Rn exhalation, observing a positive relation, an increase of the porosity products an increase in the exhalation rate. This behaviour seems to corroborate in A,B and C soils.

In soil B, measurements of the Rn soil concentrations in depths of 15 and 80 cm was conducted from permanent installations. The diffusion coefficient (D effective) in this soil has been evaluated comparing Rn flux by Pearson's method (J) with the Rn gradient ( $\partial C/\partial z$ ) in the underlying soil for constant pressure conditions, assuming Fick's law :

$$J = - D \partial C / \partial z \tag{3}$$

Results give :  $D = (0.027 \pm 0.007) \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$   
 For this soil, the Rn exhalation rate (E) was also positively correlated with the difference of Rn concentration in the soil air interstices between the depths of 80 and 15 cm ( $\Delta C$ ) giving the expression :

$$E = 16.9 + 1.65 \times 10^{-2} \Delta C \tag{4}$$

The correlation coefficient was 0,85, fig. 3.

In soil C, there are tubes in the soil at depths : 18, 50, 88, 153 and 233 cm but we have not enough measurements to evaluate the diffusion coefficient.

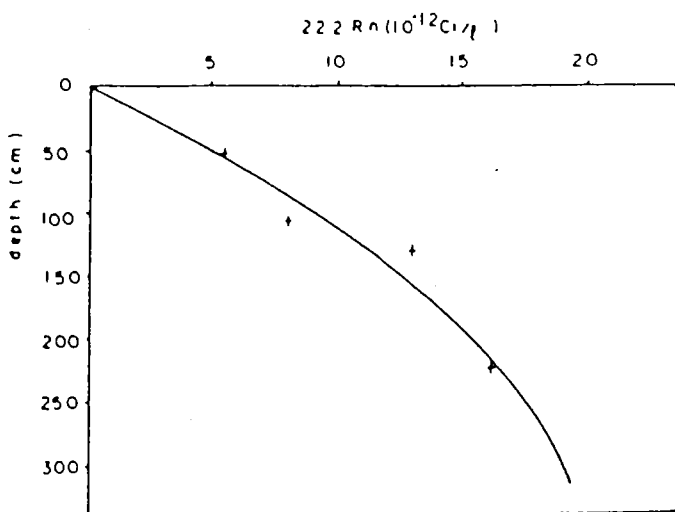


Figure 1.  $^{222}\text{Rn}$  concentration profile. The curve is calculated from theoretical steady state profile (eq.(1))

$$E = 14.9 + 3.89 \times 10^{-2} \Delta C \tag{2}$$

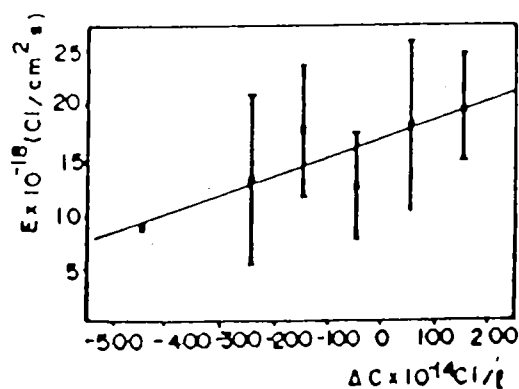
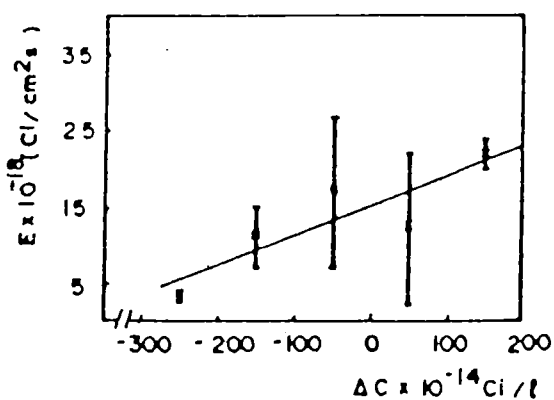


Figure 2 and 3. The exhalation rate as a function of the difference of Rn concentrations in the soil air interstices for soils A and B.

## CONCLUSIONS

1. The average Radon exhalation rate flux for three different soils in Malaga, is a low value.
2. The Radon exhalation rate seems to be influenced by the Radium content in the surface layer and by porosity of soil.
3. A relation lineal was also found between Rn exhalation rate and the difference of Rn concentrations in the soil air interstices.
4. We have also are evaluated the diffusion coefficient for Rn in soils A and B. For soil A the value obtained is  $0.119 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  and  $0.027 \text{ cm}^2 \text{ s}^{-1}$  for soil B.

## REFERENCES

- A.S.T.M. rules. Procedures for testing soils. Filadelfia (1954)
- BAVER L. Soils Physics. Ed John Wiley and Sons. New York (1956)
- DORR. H, and MUNNICK K.O.  $^{222}\text{Rn}$  flux and soil air concentration profiles in West-Germany. Soil  $^{222}\text{Rn}$  as tracer for gas transport in the unsaturated soil zone. Tellus (1989). In press.
- JIMENEZ SALAS J., Propiedades de los suelos y de las rocas. Ed. Rueda (1975)
- KRANER H.W., SCHROEDER G.L. and EVANS D.R. Measurements of the effects of atmospheric variables in radon flux on soil gas concentrations. In The Natural Radiation Environment. University of Chicago Press, Chigaco, 191-215 (1974)
- PEARSON J.E., DONALD H., RIMBEY H. and JONES G.E. A soil gas emanation measurement system used for Radon 222. J. Appl. Meteorol., 4, 349 (1965)
- SISIGINA T.I. Assesment of Radon emanation from the surface of extensive territories. In Nuclear Meteorology. Proceedings of the All-Union Conference on Nuclear Meteorology Held at Obninsk, 239 - 244 (1969)
- TANNER A.B. Radon migration in the ground : A supplementary review , in The Natural Radiation Environment III. National Technical Information Service, Springfield, Va, 5-56 (1980)
- TUREKIAN KK., Y. NOZAKI and LK. BENNINGER. Geochemistry of atmospheric radon and radon products. Annual Review of Earth and Planetary Sciences, 5, 227 - 255 (1977)

## AN INEXPENSIVE AND HIGHLY SENSITIVE METHOD FOR CONTINUOUS RADON MONITORING (\*)

HARRY FRIEDMANN

Institut für Radiumforschung und Kernphysik der Universität Wien, Boltzmanngasse 3  
A - 1090 Vienna, Austria.

### ABSTRACT

*Continuous radon monitoring is a key problem for many geophysical investigations as well as for some questions concerning radiation protection. The measurement of the ionization current in an ionization chamber is an inexpensive and sensitive method for these purposes. The current measured in pA ( $10^{-12}$  A) is approximately half of the radon activity within the chamber measured in nCi ( $10^{-9}$  Ci). Consequently, the sensitivity of the electrometer amplifier must be at least in the range of some hundreds of fA ( $10^{-15}$  A) for standard soil gas or ground water monitoring systems. An electrometer amplifier for this application was developed and mounted on a single Euro-board (10x16cm). The board also includes the HV-supply for the ionization chamber. The system needs only a single 12V/120mA supply and is therefore highly appropriate for battery operation.*

### I. INTRODUCTION

Different branches of scientific research, technical applications as well as safety control, suffer from the lack of a versatile, continuously working, highly sensitive, reliable and inexpensive method for radon measurement. Typical applications are the surveillance of the radon concentration in the air of mines, the measurement of the radon concentration in soil gas for uranium exploration or some other investigations concerning mining activities, geophysical problems or engineering problems (J. Heinicke, 1987), and the observation of the radon concentration in ground water for the treatment of similar problems. One especially interesting problem is the often observed correlation between the radon concentration in ground water or in soil gas with forthcoming earthquakes (C.Y. King, 1986). Some of the mentioned problems can be solved adequately by integrating measurement techniques like track-etch detectors; however, many problems require the continuous observation of the radon concentration in gases or fluids. For this purpose ionization chambers are specially suitable for several reasons :

- a) Nearly every gas can be used within the chamber, even air,
- b) Ionization chambers can be built in a way to work even in very unfavorable environmental conditions,

c) The equipment can be reduced to a minimum in volume, weight and power consumption which allows the construction of portable measuring systems,

d) Ionization chamber systems can be built to be very reliable and can be used without maintenance even for years. This is a very important point for continuous radon measuring stations far away from human settlements.

Several papers were published in which such systems are described (H. Friedmann 1983, 1984). The advantage of the newly developed system compared with these older constructions is the essential reduction in size, power consumption and price with no reduction in sensitivity and reliability. The electronics for an ionization chamber measuring system is now combined on a single Euro-board (10x16cm) powered by 12 V DC.

### II. SYSTEM DESCRIPTION

The measuring system consists of an ionization chamber, an HV-supply and an electrometer amplifier. Depending on the radon concentration to be measured, the volume of the chamber is between 1 and 15 l. The chamber is made out of an insulating material (PVC) covered on both sides by copper foils. The inner foil is connected to HV (+500 V), the outer foil is grounded. In the centre of the chamber is an electrode, approximately 4 mm thick. This electrode is fixed in a teflon isolator. If necessary this isolator can be



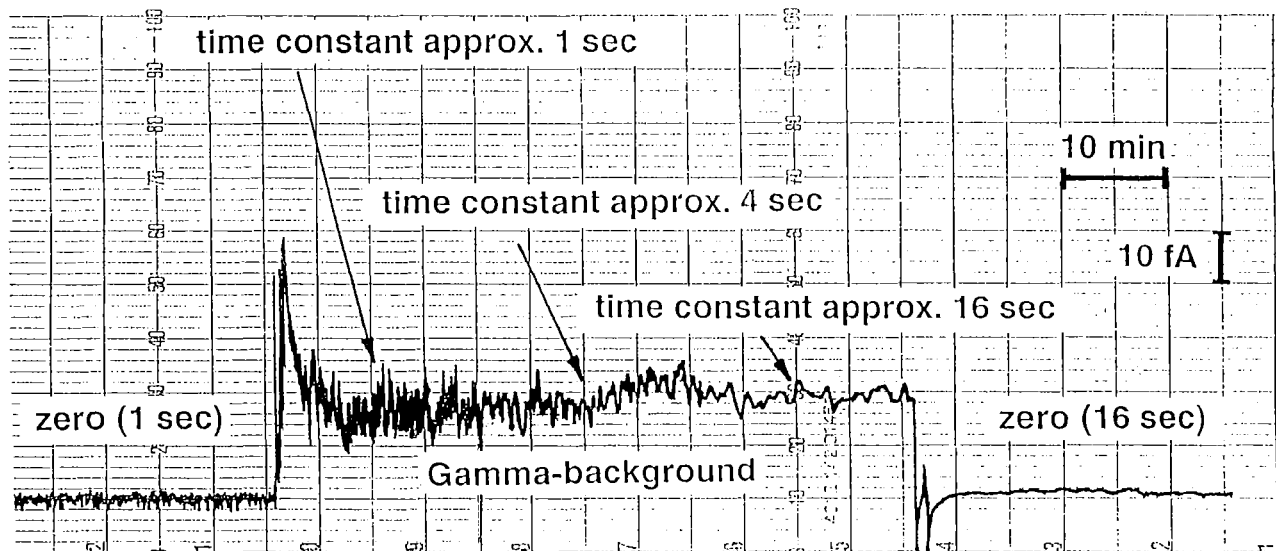


Figure 1. Gamma background measured with 3 different time constants.

slightly warmed. With this construction, an additional grounded electrode between the chamber wall and centre electrode can be avoided. Arising condensation will occur on the chamber walls and not on the surface of the isolator when the temperature of the isolator is kept only a few degrees above the ambient temperature. With these precautions, the leakage current can be suppressed much below 1 fA. In these cases of a "flow-through" system, the chamber has an inflow and outflow pipe for the carrier gas which normally is air. For the continuous observation of the radon concentration in air or soil gas, the bottom of the chamber is open, only covered by two copper (or stainless steel) grids about 5 mm from each other. The inner grid is connected to HV and the outer is grounded. Between these grids an isolating filter is placed to avoid the penetration of dust and daughter products inside the ionization chamber. Radon diffuses through the filter inside the chamber which is fast enough for most applications.

The ionization current is measured by an electrometer amplifier with an FET input stage. The problem with this type of amplifier is the input bias current which doubles approximately every 11 K. This requires a special design to avoid considerable temperature drifts. Another problem concerns charges produced by electrical contacts in the input loop. Therefore no switches are used in

the input loop. To adjust zero, the HV is turned off and the chamber is grounded. In this way, the zero level is found to be very reproducible. The whole electrometer amplifier is mounted on a single Euro-board (10x16cm) and needs only a 12 V DC supply. This design was chosen for the use with a single battery supply. The same board also carries the HV-supply. The power consumption is about 120 mA including the HV. The electrometer amplifier and the HV supply consume only about 10 % of the current while the rest is shared between the relay to switch the HV on and off (30 mA), a control LED (15 mA), the DC/DC converter (50 mA) and the panel-meter (10 mA). So, if power consumption is critical it can be reduced drastically. Another 120 mA is consumed by the heating of the insulator when necessary. The electronics is concentrated on a single board which makes the mechanical construction as well as the maintenance very easy. In addition the simple construction allows the installation of a large number of measuring systems because of low cost which is essential in certain applications.

### III. PERFORMANCE AND APPLICATIONS

The tests were performed with a chamber 10 cm in radius, 30 cm in height (volume approx. 9.4 litres) for a flow-through application. The

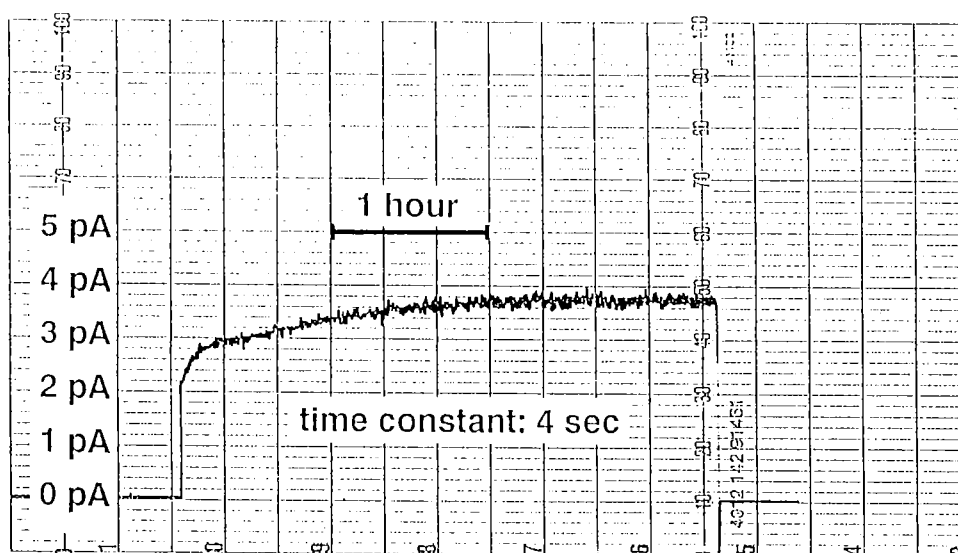


Figure 2. Ionization current as a function of time after filling the ionization chamber with pure  $^{222}\text{Rn}$  (74 Bq). The increase of the ionization current with time is a consequence of the formation of radon daughter products.

background current produced by gamma-rays was  $18 \pm 2$  fA (approx.  $0.15 \mu\text{Gy}$ ) measured for 15 minutes. In Fig. 1 the measured gamma-background can be seen with different time constants (approx. 1 sec, 4 sec and 18 sec). Efficiency calculations (R.D. Evans, 1935) for  $^{222}\text{Rn}$  in equilibrium with its daughter products yield in

$$1 \text{ fA} = 0.019 \text{ Bq.}$$

Referred to the volume of the chamber, 1 fA corresponds to  $0.002 \text{ Bq. l}^{-1}$ . On a 95 % level, the limit of detection (German : Erkennungsgrenze) can be estimated to be  $0.008 \text{ Bq. l}^{-1}$  and the limit of decision (German : Nachweisgrenze) becomes  $0.019 \text{ Bq. l}^{-1}$ . These values hold after a 30 minutes warm up, constant temperature and 10 minutes measuring time. The temperature drift is then approximately  $1.2 \text{ fA/K}$ . This is by far sufficient for most geophysical applications (interesting radon concentrations are typically in the order of hundreds of  $\text{Bq. l}^{-1}$ ).

In Fig. 2, a calibration procedure is shown. First the chamber was evacuated, then the vacuum was used to suck air through a  $^{226}\text{Ra}$ -solution (74 Bq in radioactive equilibrium) into the chamber. So the whole radon activity is transferred from the solution into the detector, however, all daughter

products remain in the solution. In this way, the formation of the radon daughter products within the chamber can be seen by the increase of the ionization current. The calibration for a continuous measurement is done in three steps. First the chamber has to be calibrated in the way described above for radioactive equilibrium, or the ionization current must be computed by a formula like that one given by Evans (R.D. Evans, 1935). Then the radon concentration in the water or the gas at the observation site is determined in a procedure equal to that used for the calibration. Finally the system is used continuously and the observed ionization current can directly be related to the radon concentration measured before.

Main applications are in the field of geophysics which include continuous radon measurements in groundwater and in soil gas for earthquake prediction research, soil gas measurements for prospecting and mapping fault zones as well as some other special geophysical and technical applications. As an example the continuously monitoring radon concentration of a spring can be seen in Fig. 3. The other domain of the system is the continuous observation of the radon concentration in certain indoor areas. Typical examples are rooms in spas where water with elevated radon concentration is used or storage rooms for radium containing

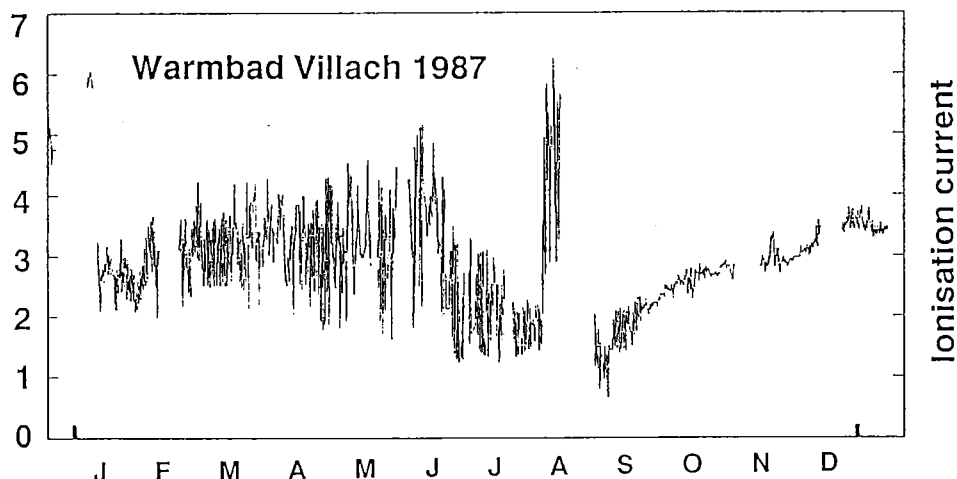


Figure 3.

Example for an continuous radon concentration measurement in a spring (Freibadquelle, Warmbad Villach, Austria). The radon concentration is proportional to the ionization current. Earlier investigations (H. Friedmann, 1988/89) have indicated a seismic sensitivity of this spring. Of special interest is the different fluctuation width in the radon concentration before and after the extreme radon concentration in August 1987. Similar effects could be observed in the spring more often and may be related to changes in the stress field. It is not yet clear if the peak in the radon concentration can be related to an earthquake in northern Slovenia near to the Austrian border.

material. Of course it may also be useful in mines where higher radon concentrations exists. This is in many cases necessary because of the elevated lung cancer risk for people working in an atmosphere with a high radon concentration (ICRP, 1987; BEIR, 1988; WHO/IARC, 1988).

#### IV. CONCLUSION

The use of ionization chambers with electrometer amplifiers is preferred over other methods due to simple and robust construction, high sensitivity and easy handling. These features cause this method to be very suitable for continuous or non continuous measurements especially in the field. The new construction has the performance of much larger and much more expensive devices and, in addition, has the advantage of low power consumption which makes long time battery powered operation possible. Thus the system can easily be powered by solar cells which allows the installation of continuous radon measurement stations even far away from mains supply. This is especially important for radon measurements for earthquake prediction research. Last but not least, this system is a very inexpensive solution for radon measurements (1 000 \$ for the

electronics) even for arrays with the possibility to adapt the ionization chamber in size and form to the special needs of the user.

#### REFERENCES

- BEIR** : National Research Council : Health risks from radon and other internally deposited alpha-emitters. Report of the BEIR IV-Committee. Nat. Academy of Sciences. Washington D.C., 1988.
- EVANS, R.D.** : Ionization currents produced by radon, RaA and RaC' in cylindrical ionization chambers. Phys. Rev. 48, 177-186, 1935.
- FRIEDMANN, H.** : A portable radonmeter. Rad. Prot. Dos. 4, 181-184, 1984.
- FRIEDMANN, H.** : A portable continuously working radon measuring system. Rad. Prot. Dos. 7, nos. 1-4, 181-184, 1984.
- FRIEDMANN, H.** : Untersuchungen über die Ursachen von Radonkonzentrationschwankungen in Quellwässern unter besonderer Berücksichtigung der Seismizität. Sitz. ber. Österr. Akad. Wiss., Math.-naturw. Kl., Abt. I, 197 Bd., 347-387, 1988/89.
- HEINICKE, J.** : Neue Aspekte bei der

Anwendung der Radonmessung im Ingenieur- und Bergbau. Freiburger Forschungshefte C422, 86-143, 1987.

**ICRP** : Lung cancer risk from indoor exposure to radon daughters : ICRP Publ. 50, Annals of the ICRP 17 N°1, Pergamon Press, Oxford, 1987.

**KING, C. Y.** : Gas geochemistry applied to earthquake prediction : an overview. J. Geophys. Res. 91, B12, 12269-12281, 1986.

**WHO/IARC** : Man-made fibres and radon. IARC monographs on the evaluation of carcinogenic risk to humans. 43, IARC, Lyon, 1988.

(\*) Cet article a été soumis après le colloque, il n'a donc pas été présenté oralement.

# RADON MEASUREMENTS FOR THE SOLUTION OF PROBLEMS OF ENGINEERING GEOLOGY AND GEOPHYSICS FOR EARTHQUAKE PREDICTION IN EASTERN GERMANY (\*)

**J. HEINICKE and N. KOCH**

Saxon Academy of Sciences at Leipzig  
 Researchgroup at the mining Academy Freiberg  
 Institut of Physics  
 Bernhard von Cotta Str 4  
 D-0-9200 Freiberg/Sachs

## 1. INTRODUCTION

Radon measurements for the solution of problems of engineering geology and geophysics and for earthquake prediction in eastern Germany. Even if it is one of the oldest methods of geophysical prospecting, interesting new applications in science and technology were found in recent years. However, the use of the technique is still somewhat empiric. Problems of migration and influences on the radon content are given special attention in this article. The sensibility in field measurement was improved by the introduction of new methods of measurement such as the track-etch technique, thus widening the range of possible application. Apart from international activities to investigate the relationship between seismic activity and fluctuations of the radon concentration (Fleischer, Mogro-Campero, 1985, Friedman; 1988, King; 1986), it was particularly at Bergakademie Freiberg Saxony, Germany, that radon measurements were employed in connection with geodynamic processes (landslides, creeping) (Käppler, 1984; Heinicke, 1987). New ways of interpretation had to be created for the new tasks.

The new applications of radon measurement are illustrated by selected objects on the territory of the former GDR.

## 2. METHOD OF MEASUREMENT

Numerous detection methods have been

developed since the discovering of radon.

Recently, mainly scintillation counters or chambers, somewhat more rarely the ionization chamber, and most of all the track-etch method suggested by ALTER (Alter, 1972) are used in geophysics to determine the content of free radon in the soil air (this relates mainly to  $^{222}\text{Rn}$ ). The latter has the advantage of a reduced meteorological influence on the results. In our opinion, it is fluctuations of the air pressure that are dominant in short-time measurement over a profile; however, we are not going to deal with this question in detail here (see Heinicke, Koch, Krbetschek). Particularly in the case of insignificant fluctuations of concentrations over a measurement profile, the track-etch method provides high sensitivity. This would allow the detection of active fault zones in geodynamic processes. Preconditions include a certain minimum content of  $^{226}\text{Ra}$  and sufficient time (each measurement takes between some days and some weeks in dependence on the object). The use of a "radon camera" (Heinicke, 1987): (working principle of a film camera with  $\infty$ -sensitive film and extremely long exposure, with automatic film transport) or the constant replacement of the radon measurement cups allows the observation and interpretation of the formation and dynamics of radon anomalies and their shape, which is a further measurement technique used.

### 3. RADON ANOMALIES - BASIS OF INTERPRETATION

Radon anomalies in the surface-near soil air ( $z < 1$  m) in tectonic fault zones and/or near uranium mineralizations are characterized by the migration of radium near the surface and further migration of radon (max. 10 m). This kind of anomaly has been made use of in prospecting for some decades. The observation of radon concentrations in earthquake areas added another aspect of radon measurement: the genesis of anomalies by pressure or relaxation leading to a change in time of the radon content in soil and water. The fact was confirmed by laboratory results (Holub, 1981; Bergelt, Militzer, Stolz, 1985).

Further aspects of a forming radon anomaly must be taken into account for the understanding of the measurement data presented in this article. Investigations of slope areas in danger of sliding showed no or insignificant anomalous fluctuations of the radon concentration over the measurement

profile vertical to the expected head of the landslide. The continuing mining process at the bottom of the slope caused the first indications of motion in the form of radon anomalies at the earth surface, as a result of the opening of microjoints (improved Rn migration routes) and a changed stress regime in the slope. Thus, the anomalies formed in relatively short time (less than one year), showing a dynamics of their own. It shall be noted that the first signs of anomaly were observed long before the first geodetically measurable processes.

### 4. EXAMPLES OF MEASUREMENT

First the formation of radon anomalies due to geodynamic processes in a slope shall be demonstrated for two objects. The track-etch method was used. Fig. 1 shows the result of the sixth of eight measurement cycles at an unconsolidated rock slope in an opencast in the Lusatia region. Three radon measurement profiles were arranged vertically to the expected head of the slide (distance between

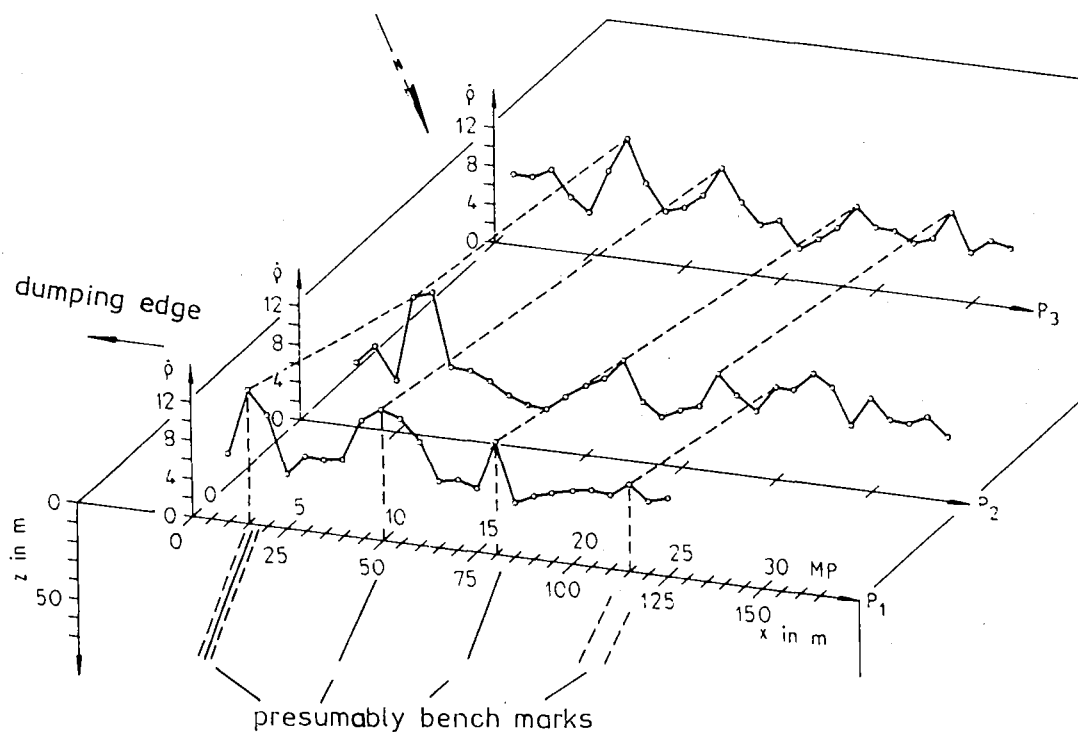


Figure 1. Radon data of the sixth measurement cycle over the profiles  $P_1$ ,  $P_2$ ,  $P_3$ , with schematic indication of the probable head of slide  $\rho$  = radon concentration (tracks/cm<sup>2</sup> x 30 days), MP = measurement point.

measurement points 5 m). The probable dimensions of the slump balls was estimated from the data of geophysical measurements (electrical and magnetic). However, areas of pronounced anomaly were observed in result of the radon measurement; while being moved for some meters in the course of the measurement series (dynamics of the slump balls), these nevertheless clearly described marked zones of weakness. Consequently, the strongest anomaly (at about 15 m) could be looked upon the head of the slide. The result was confirmed by inclinometer measurements. The following anomalies can be interpreted as additional rupture fissures.

A similar situation was found in the second examples in Altenberg, Erzgebirge Mts. Here we observed slow creeping of a rock slope (rhyolite) due to underground sublevel stoping. By 7 measurement cycles at the brink of the slope Fig. 2 illustrates the dynamics of Rn-

content at the individual measurement points. From the second measurement a marked anomaly is formed at about 20 m which is confirmed in the following cycles. Their reproducibility is not even impaired by fluctuations of the concentration level due to the weather (winter measurements involve a somewhat reduced concentration). The future head of the slide could not be recognized by geodetic techniques at the time of the measurements. Parallel geoelectric measurements could be interpreted only with the help of the radon measurements. The reliable prediction of such slide zones is of the utmost importance both for the mining regime and mining safety. The third series of measurements was also carried out in Altenberg, however, with the data being obtained in the underground. The problem that had to be solved was whether it is possible to qualitatively measure the mining-induced change of the load, pressure and stress

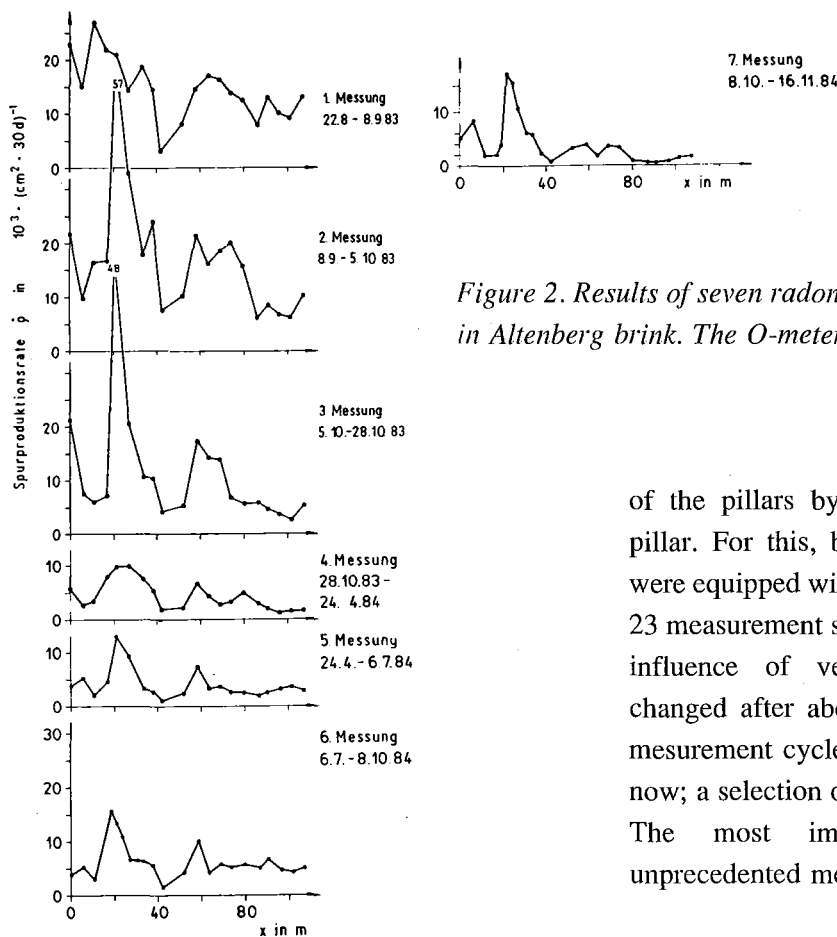


Figure 2. Results of seven radon measurements over a profile in Altenberg brink. The 0-meter-mark lies in the slope.

of the pillars by radon measurement in the pillar. For this, boreholes of 5 - 8 m length were equipped with radon measurement cups at 23 measurement sites and closed to prevent the influence of ventilation. The cups were changed after about 10 days of exposure. 34 measurement cycles have been evaluated up to now; a selection of 8 points is shown in Fig. 3. The most important result of these unprecedented measurements is,

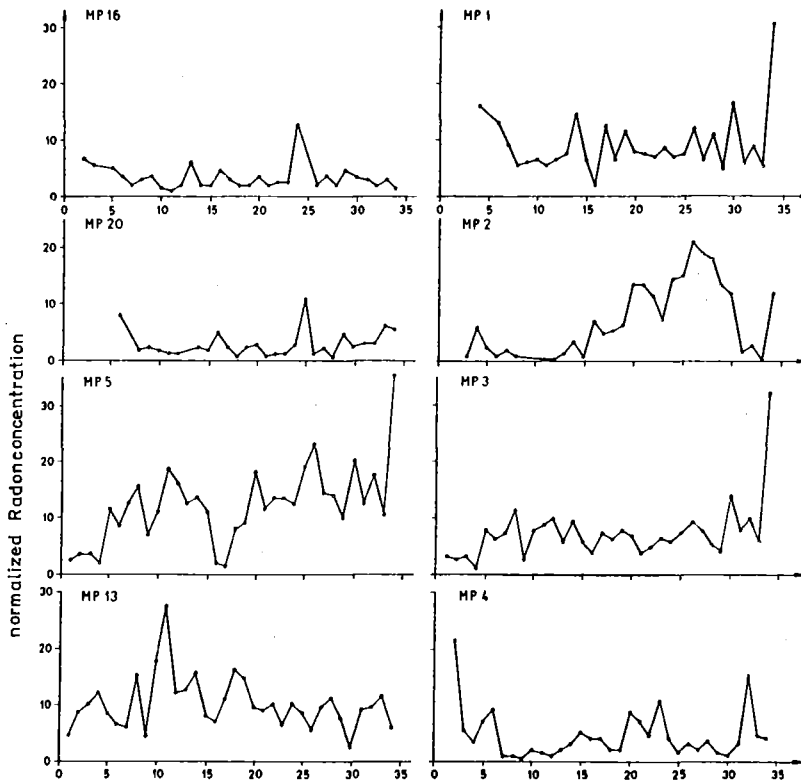


Figure 3. Selected data of the investigation of the temporal change of radon concentration in a pillar. MP are the underground measurement points. The radon concentration  $\rho$  was normed on the basis of measurement point outside the influence of the mining process to eliminate the overall influence of the mining process to eliminate the overall influence of the latter in each measurement point.

that the radon contents in the boreholes, as a function of time, show a marked dependence on the changing rock pressure. Relatively weak dynamics of the pillar load lead to comparatively even curves (e.g. MP16 and MP20). In contrast, measurement points MP5 and MP13 clearly reflect the change of the rock pressure due to the mining process. The investigation of the relationship between radon content and mining technology (rate of delivery, detonations) is left to future studies including more extended measurement series. We only state that the above opens a new possibility for the use of radon measurement in geological technology.

In 1989 we began a study on the question whether earthquake-induced radon anomalies

do occur in the seismically active region of Vogtland (Heinicke, Koch, Krbetschek). The well-known spa Bad Brambach with its strong radon spring ( $c_{Rn} = 24 \text{ kBq/l}$ ) proved to be especially well suited as a measurement site. A gamma-probe for the detection of short-lived radon daughter nuclides is installed in the spring. Calibration measurements with an ionization chamber showed an Rn-activity of  $16.2 \text{ Bq/l}$  in the water for 1 cps (interval 1h, flow rate about  $150 \text{ l/h}$ ). In addition a device was installed in about 1 m depth to register the soil air activity ( $1\text{cps} = 109 \text{ Bq/l}$ , interval 1h). To be sure that the fluctuations of radon concentration measured in some days were not due to anthropogenic or meteorological influences, some additional parameters were registered simultaneously : air temperature, air



pressure, precipitation, air humidity, groundwater level, spring flow rate and working regime of the spa. Data on the seismic activity in the Vogtland were provided by a special array of the Central Institute of Physics of the Earth, Potsdam (Neunhöfer, Güth, 1990) which has installed seven stations in the vicinity of Bad Brambach to register microquakes (local magnitude  $ML < 4$ ). As a temporally limited sequence of individual events the earthquakes in the Vogtland are also called swarm quakes (Neunhöfer, 1988). On the basis of the numerous meteorological data and the registered seismic events a detailed interpretation of the radon values becomes possible. It can be shown that the most significant influence in the case of fluctuations of radon concentration in the soil air is exerted by changes of the atmospheric pressure. In the spring water, changes are due mainly to a changed flow rate or bathing regime. Thus it is possible to recognize stress-induced increases of radon concentration before or during earthquakes. An example of the sensitivity of the measurement site in Bad Brambach is given in Fig. 4. While the radon spring reacts spike-like, a pronounced precursor effect is visible in the soil air. Moreover, the different shape of anomalies indicates different geodynamic processes leading to radon anomalies in the spring water and the soil air, respectively (radon release and migration). However, a unique assignment of radon anomalies to seismic events cannot be made yet.

## CONCLUSION

The results of yearlong research work on radon measurement in engineering geology and geophysics that are briefly presented here do demonstrate that radon anomalies in the soil can be provoked by geodynamic processes leads to the opening and closing of microcracks and microjoints, so that a dynamics of the concentration distribution in the measurement

profile is formed due to the changed radon migration routes. Here, statements concerning the proper dynamics of the ground including probable sloping edges can be made by long-time measurement. The range of stresses dealt with in this article lies between the internationally known investigations in the laboratory (Holub, 1981) and that in typical earthquake regions (for instance, the San Andreas fault).

New applications such as underground measurement in pillars produce a significant reaction of the radon concentration to the mining operations (loading and unloading of pillars) within a few days. Continued investigations in this direction are thought necessary.

First positive results in the correlation of microquakes in the Vogtland and radon anomalies in the spring water and soil of Bad Brambach were achieved on the basis of an extensive meteorologically induced anomalies.

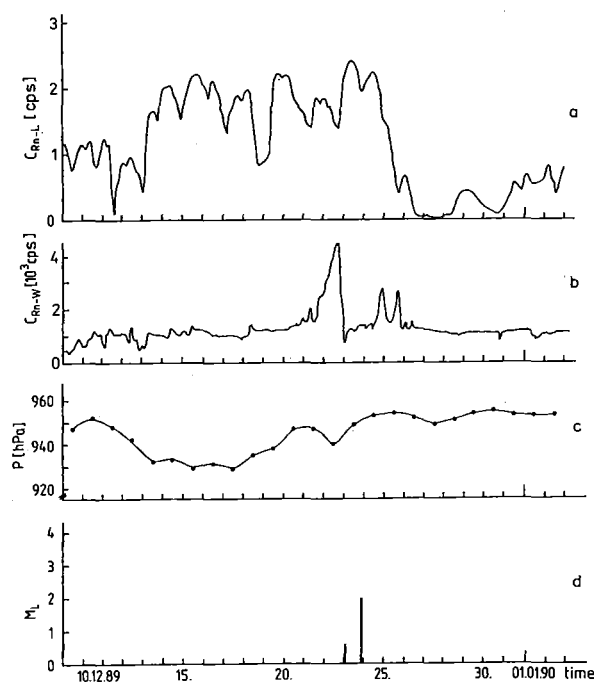


Figure 4

Registration of Rn-content in soil air  $C_{Rn-L}$  (a) and spring water  $C_{Rn-W}$  (b), air pressure (c) and two microquakes (d) in Dezember 89. Different types of radon anomalies in air and water in connection to wit the same event are shown.

## REFERENCES

**ALTER H. W. and P. B. PRICE** : Radon detection using track registration material, US-Patent 3, 665, 194; 1972.

**BERGELT H., H. MILITZER and W. STOLZ** : Die Radonexhalation von Festgesteinsproben unter Druckwirkung, Gerlands Beitr. Geophys. 95, 7-14, 1985.

**FLEISCHER R.L. and A. MOGRO-CAMPERO** : Association of subsurface radon changes in Alaska and the northeastern United States with earthquakes, Geochim. Cosmochim., 49, 1061-1071, 1985.

**FRIEDMANN H.** : Untersuchung über die Ursachen von Radonkonzentrationschwankungen in Quellwässern unter besonderer Berücksichtigung der Seismizität, Sitzungsber. Österr. Akad. Wiss., mathem.-naturw. Kl. Abt. I, 197, 343-387, 1988/89.

**HEINNICKE J.** : Neue Aspekte bei der Anwendung der Radonmessung im Ingenieur- und Bergbau, Freiburger Forschungshefte, C 422, Leipzig : Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 86-143, 1987.

**HEINNICKE J., U. KOCH and M. KRBETSCHKEK** : Radonanomalies in connection with microearthquakes in the Vogtland (Germany), Tectonophysics, in press.

**HOLUB R. F. and B. T. BRADDY** : The effect of stress on radon emanation from rock, J. Geophys. Res., 86, 1776-1786, 1981.

**KAPPER R.** : Integrierende Radonmessungen mittels Festkörperspurdetektoren für die Lösung ausgewählter ingenieurgeologischer Problemstellungen, Freiburger Forschungshefte, C 392, Leipzig : Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, 1984.

**KING C.-Y.** : Gas geochemistry applied to earthquake prediction : a overview, J. Geophys. Res., 91, 12269-12281, 1986.

**NEUNHOFER H. and D. GUTH** : Mikrobeten seit 1962 im Vogtland. Seismologische Aspekte und Beziehungen zur lokalen Geologie, Z. geol. Wiss., 16, 135-146, 1988.

**NEUNHOFER H. and D. GUTH** : Bulletin of the Vogtland network 1987 - 1989, inoff. Bulletin CIPE Jena, 1-5, 1990.

(\*) Cet article a été accepté par le Comité de lecture postérieurement au colloque. Il n'a donc pas été présenté oralement.

## CARACTERISATION DE L'EMANATION RADON PAR UN COMPTEUR PROPORTIONNEL ET PAR DES DETECTEURS SOLIDES DE TRACES NUCLEAIRES

D.KLEIN (1), R.BARILLON (1), A.CHAMBAUDET (1), M.CIEUR (2) ET A.KHALIL (1)

(1) Laboratoire de Microanalyses Nucléaires - UFR Sciences et Techniques, La Bouloie - 16, route de Cray - 25030 Besaçon Cedex - France

(2) Institut de Physique Nucléaire - B.P. 1 - 91406 Orsay Cedex - France

### RESUME

*Parmi les différents traceurs naturels le radon, gaz radioactif, occupe une place privilégiée dans différents domaines des Sciences de la Terre (prospections géologiques, géophysiques et géochimiques).*

*Pour caractériser l'émanation en radon d'un site géologique deux techniques complémentaires sont utilisées. L'une est une mesure en continue réalisée par un compteur proportionnel, qui permet ainsi d'accéder à toute variation instantanée. L'autre donne une valeur intégrée sur un à deux mois par l'utilisation de détecteurs solides de traces nucléaires. Cette dernière technique permet de donner la cartographie complète des émanations du site étudié.*

*Pour compléter l'information des mesures sur le terrain, une méthode utilisant les mêmes D.S.T.N. est développée, en laboratoire, pour évaluer l'émanation potentielle des différents sols, objets de l'étude.*

*L'ensemble de ces techniques d'analyse permet de caractériser parfaitement la répartition de l'émanation en radon et d'envisager son utilisation systématique pour différentes applications en géochimie des gaz du sol.*

### ABSTRACT

*The radioactive gas, radon, is ranked foremost among the different natural tracers in various applications in the field of Earth Sciences (geologic prospecting, geophysical and geochemical studies).*

*Two complementary techniques are used to characterize radon emanation on a geologic site. The first is a proportional counter, taking continuous measurements which enables any instantaneous variation to be observed. The other technique uses solid state nuclear track detectors (SSNTD) to give an integrated value over a one to two - month period. This last technique enables radon emanations on the experimental area to be cartographically mapped.*

*To complete the information provided by measurements taken in fieldwork, a laboratory method using the same SSNTD has been developed to evaluate the potential emanation for each of the various soil studied.*

*All of these analysis techniques are used jointly to perfectly characterize the distribution of radon emanation, making possible its systematic use in geochemistry applications.*

### ABREGE

**"CHARACTERIZATION OF RADON EMANATION USING A PROPORTIONAL COUNTER AND SOLID STATE NUCLEAR TRACK DETECTORS"**

*Radon 222 is ranked foremost among the various natural tracers in the field of earth science. In order to characterize radon emanation on a geological site, we use two complementary techniques :*

- a proportional counter. (This portable instrument has a one month autonomy and the detection sensitivity allows any activity exceeding 41 Bq.m<sup>-3</sup> to be measured. It immediately indicates all variations in the radon emanation level).*
- solid state nuclear track detectors (both LR 115 (kodak pathé) and CR 39 (Tastrack)).*

### Experimentation

*The processing was tested in the Moulis underground laboratory (C.N.R.S. Ariège, France). The rock matrix of the site studied is dolomite. Nevertheless, the dolomite is covered with clay. Field work measurement using LR 115 detector showed the radon emanation was relatively homogeneous. Proportional counter showed that the radon activity ranged between 1000 and 1600 Bq.m<sup>-3</sup>. This high activity comes essentially from the clay. Indeed, the sealed can technique showed that the emanation potential of the clay sample is 18 times that of the dolomite sample.*

**Conclusion**

The technique is well-adapted for characterizing radon emanation on a geological site. The proportional counter, which operates continuously and autonomously, permits observation, of all variations in the radon emanation level. Solid state nuclear track detectors are used in order to draw the radon emanation map of the site, and in order to classify, in the laboratory, each soil sample according to its radon emanation potential.

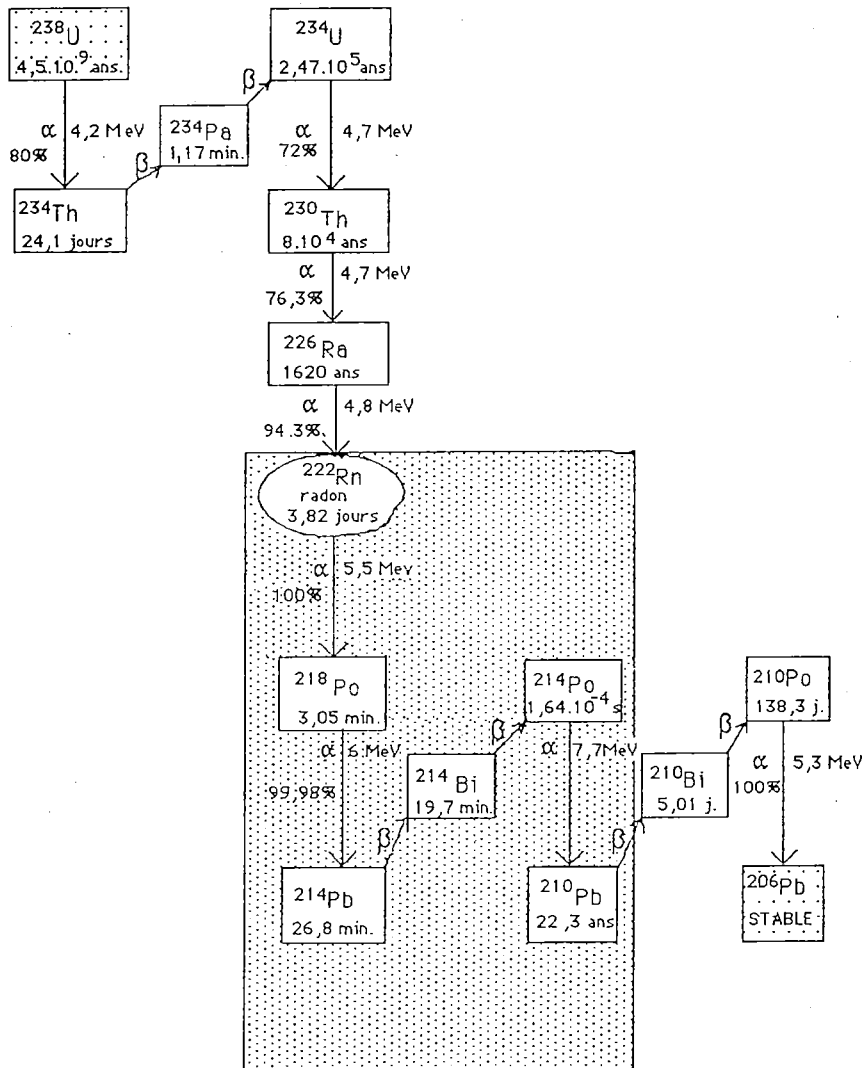


Tableau 1. Famille de l'uranium 238.

**1. LE RADON**

Le radon est un gaz naturel, radioactif, dont il existe trois isotopes : l'actinon (Rn 219), le thoron (Rn 220) et le radon (Rn 222).

Selon les conditions géologiques (concentration en élément père, fractuosité, perméabilité, présence de fluide convecteur, de failles,...), une fraction des atomes de ces gaz,

produit dans la croûte terrestre, peut émaner à la surface. Bien que leurs coefficients de diffusion soient identiques pour un milieu donné, les faibles périodes radioactives des atomes de thoron (55s) et d'actinon (3,9s) font que la migration de ces atomes est beaucoup plus faible que celle du radon 222, dont la période est de 3,8 jours. Ceci explique que le radon 222 est le composant gazeux radioactif le

plus utilisé comme traceur naturel.

Le radon  $^{222}\text{Rn}$  résulte de la désintégration du radium  $^{226}\text{Ra}$  dans la famille de l'uranium  $^{238}\text{U}$  (tableau 1). Il se désintègre par émission de particule alpha, pour donner différents isotopes du polonium ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$  et  $^{210}\text{Po}$ ) du plomb ( $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{206}\text{Pb}$ ) et du bismuth ( $^{214}\text{Bi}$  et  $^{210}\text{Bi}$ ).

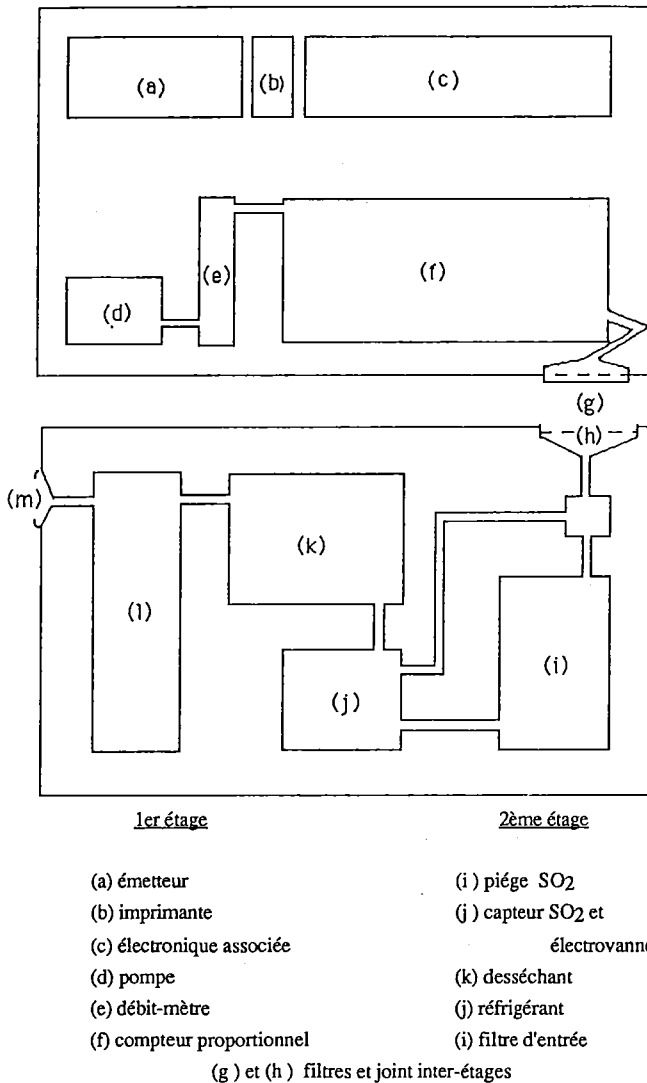


Figure 1. Coupe synoptique du système de mesure.

La mesure de la concentration de ce gaz, à la surface où dans le sol, est un outil d'investigation pour la connaissance et la caractérisation du sous-sol prospection uranifère (Durrantie, 1986) et études géologiques (F. D'Amore et al., 1979). De plus, un tel suivi, en continu, peut apporter des informations pour la prévision d'événements sismiques (C.Y. King, 1986) ou volcaniques (Chirkov, 1975; Monnin et Seidel, 1988).

La mesure de la concentration en radon  $^{222}\text{Rn}$  présente également un grand intérêt en radioprotection, car ce gaz est le principal composant de la radioactivité atmosphérique. Ainsi, l'homme est exposé en tout lieu à ce gaz et à ses produits de désintégration; particulièrement, dans les habitations où les émanations de ce gaz se produisent à la fois dans les matériaux de construction et à partir des sols sur lesquels elles sont bâties. Il est à signaler que dans certains pays le radon représente avec ses produits de filiation plus de la moitié de la dose totale de rayonnement reçu par les habitants. En plus de l'émanation naturelle, le radon pose des problèmes dans le cycle du combustible nucléaire parce qu'il entraîne une irradiation professionnelle dans les mines d'uranium.

## 2. TECHNIQUES DE MESURE UTILISEES

Parmi les différentes émanations gazeuses terrestres, le radon  $^{222}\text{Rn}$  est donc un témoin privilégié pour de nombreuses applications dans le domaine des Sciences de la Terre.

Dans le cas d'étude dans le domaine de la géologie, nous avons développé une procédure de mesure pour caractériser l'émanation radon à partir de deux techniques complémentaires :

- le compteur proportionnel et
- les Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (D.S.T.N.).

### 2.1. LE COMPTEUR PROPORTIONNEL

Dans le but de réaliser la mesure en continu du radon, un compteur proportionnel à circulation a été mis au point au laboratoire de Microanalyses Nucléaires en collaboration avec l'Institut de Physique Nucléaire (Klein, 1990).

Le prototype de terrain présente de multiples avantages : mesure en continu avec une sensibilité inférieure à  $0,040 \text{ Bq.l}^{-1}$ , autonomie supérieure à un mois et possibilité de fonctionnement en atmosphère hostile (volcanique) grâce à un module de traitement chimique spécialement mis au point.

L'ensemble de mesure se compose de trois modules adaptables aux conditions rencontrées (Figure 1).

Le premier étage est composé d'un

compteur proportionnel (Figure 2), de son électronique associé et de l'ensemble de pompage. Le flux gazeux à analyser circule dans le volume actif du compteur sous un débit variable de 30 à 60 litres par heure. La mesure est accessible, en intégrant le comptage pendant des durées ajustables de 2 à 32 minutes. Trois voies de sortie sont disponibles : affichage sur une échelle de comptage, impression sur une micro-imprimante ou encore télétransmission par l'intermédiaire d'une balise Argos.

Le second étage, quant à lui, est adapté aux traitements chimiques qui peuvent perturber la mesure. Du fait même de la nature hostile des milieux volcaniques, le développement de traitements chimiques est rendu nécessaire afin d'obtenir une reproductibilité et une sensibilité suffisante de détection. Les paramètres intervenant sur la mesure sont : l'humidité relative (HR) qui doit être inférieure à 25 % à 22°C et le dioxyde de soufre dont la teneur doit être inférieure à 8 %. Pour ces deux paramètres nous avons développé des pièges efficaces et renouvelables facilement.

Dans des conditions normales il est à signaler que nous n'utilisons qu'un piège pour l'humidité ce qui réduit considérablement le volume de l'ensemble.

Le troisième étage quant à lui contient l'alimentation du système.

L'appareillage, ainsi conçu, est utilisable pour effectuer des mesures sur le terrain pendant plus de 30 jours, le renouvellement des produits chimiques et de l'alimentation étant alors facilité par la conception de l'ensemble en trois modules indépendants.

Caractéristiques et réponse impulsionnelle du compteur :

- EFFICACITE APPARENTE : 43,5 % (pour radon + descendants)
- EFFICACITE EN RADON 222 : 14,5 %
- MOUVEMENT PROPRE : 0,01 imp.s<sup>-1</sup>
- VOLUME SENSIBLE : 1 litre
- SENSIBILITE DE DETECTION: 40,8 Bq.m<sup>-3</sup>
- TEMPS DE REPOSE : 1 heure = 80 %  
: 2 heures = 100 %
- SORTIE DES RESULTATS : 2 à 32 min.
- CONSOMMATION ELECTRIQUE : 55,7 mA sous 12 V

- AUTONOMIE : 1 mois minimum pour électronique

: 3 à 8 semaines pour piège

chimiques.

- ENCOMBREMENT : (120 x 100 x 60)cm<sup>3</sup>.

## 2.2. LES DETECTEURS SOLIDES DE TRACES NUCLEAIRES

Le passage de particules alpha dans un milieu solide minéral ou organique peut entraîner la formation de zones de dommages appelées "traces latentes". Cette zone de dégât est produite d'une part par la perte le long du parcours d'une certaine quantité d'énergie appelé Transfert d'Energie Linéique (T.E.L.) (Fleischer et al. 1980) et d'autre part par des recombinaisons physico-chimiques internes. Une fois la trace latente formée son faible diamètre de l'ordre de 10 nm ne permet pas une exploitation directe. Pour faciliter une lecture optique il a été mis au point des techniques de révélations dont les plus utilisées sont le développement chimique et électrochimique. Cette amplification des dommages latents conduit à "la trace révélée" dont le diamètre varie de 5 à 40 µm.

Pour cette étude les détecteurs utilisés sont : le nitrate de cellulose du type LR 115 (Kodak) et un polycarbonate du type CR 39 (Tastrak). Le tableau 2 indique leurs caractéristiques d'utilisation.

L'analyse des détecteurs polymériques se fait en automatique pour le LR 115 et en semi-automatique pour le CR 39 (Barillon et al., 1990). Ces comptages sont réalisés sur un ensemble de traitement d'images pour lequel différents programmes de traitement ont été développés au laboratoire (Chambaudet et al., 1990). Ils permettent d'accéder à la répartition et à la densité des traces, pour chaque film.

## 3. DESCRIPTION DE LA METHODE

Pour la réalisation de la mesure sur le terrain, le compteur proportionnel et les détecteurs de type LR 115 sont utilisés (figure 3).

La mesure en continu obtenue par le compteur proportionnel permet de mesurer la concentration en activité radon (Bq.m<sup>-3</sup>) en un point du site géologique. Dans certains cas, il est également possible de suivre l'influence des paramètres extérieurs (météorologiques,

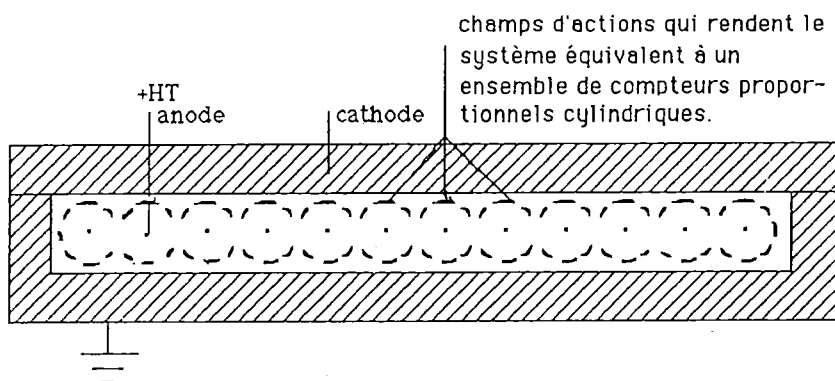


Figure 2. Coupe du compteur proportionnel.

géophysiques ou autre) sur les variations en radon.

Les détecteurs de type LR 115, quant à eux, sont utilisés pour réaliser la cartographie en radon du site afin d'étudier la répartition spatiale et temporelle de l'émanation.

Les détecteurs de type LR 115 sont préférés sur le terrain car d'une part leur développement est simple et rapide et d'autre part leur exploitation est facile en routine par l'analyseur automatique. Ces conditions sont importantes dans le cas de mesure sur le terrain, qui nécessite un très grand nombre de films.

La configuration des détecteurs dans le sol est identique à celle proposées par Fleischer et Mogro-campero en 1979. Dans notre cas, les films (1,5 x 1,5 cm) sont placés dans des cellules et l'autre extrémité, qui est ouverte, est recouverte par une fine membrane de polyéthylène qui préserve le film de la condensation de l'eau et de l'influence du thoron. Les détecteurs sont enfouis dans le sol à une profondeur de 50 cm pendant une période de de 1 à 2 mois. Ce temps d'exposition est fonction des résultats du compteur proportionnel.

### 3.2. MESURE EN LABORATOIRE

Pour éviter des erreurs d'interprétations, le potentiel d'émanation radon de chaque échantillon géologique, rencontré sur le site, est mesuré en laboratoire. En effet, lors d'une étude géologique le pouvoir d'émanation de la couche superficielle de sol peut constituer un important bruit de fond.

Les échantillons sont séchés, tamisés et environ 20 grammes sont placés dans des

cellules d'analyse (figure 4) (Somogy et al., 1986). Dans ce cas, l'utilisation des détecteurs de type CR 39 est justifié par le fait que leur sensibilité est meilleure que celle des détecteurs LR 115. De plus, le nombre plus faible d'analyse à prendre en compte permet leur exploitation par un comptage semi-automatique.

Les échantillons sont placés dans ces cellules pendant la même période que ceux posés sur le site. Le nombre d'échantillon à analyser en laboratoire dépend de la nature et de la composition minérale de l'ensemble du site à étudier.

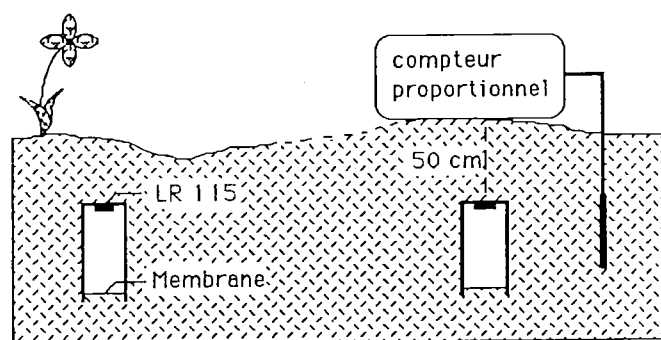


Figure 3. Description des mesures sur le terrain.

### 4. EXPERIMENTATION

La méthode de mesure développée a été appliquée sur différents sites de mesures telle que le Laboratoire souterrain du C.N.R.S. à Moulis (Ariège, France) (Bakalowicz et al, à paraître). Ce site est constitué de dolomie recouverte à sa base d'une couche d'argile sédimentaire. Cette argile a été déposée en cet endroit par une rivière souterraine, aujourd'hui

Nom du détecteur	Nom commercial	Formule chimique	Plage de détection (MeV)	Caractère de révélation par la méthode chimique	Révélation par la méthode électrochimique
Nitrate de cellulose	LR 115 (Kodak)	$C_5H_8O_9N_2$	0,1 - 5	2,5 N(NaOH) 60°C - 1,5 h	
Carbonate d'allyl dioglycol	CR 39 (TASTRAK)	$C_{12}H_{18}O_7$	0,1 - > 20	6N (NaOH) 70°C 7 h	6N (KOH) 40°C 4 h

Tableau 2 : Caractéristiques des détecteurs solides de traces nucléaires.

détournée.

Dans cette grotte naturelle, la mesure en continu du radon réalisée pendant une période d'un mois par le compteur proportionnel a permis de corrélérer les variations de l'émanation radon avec celle de la marée terrestre (mouvement cyclique de la terre, mesuré pendant la même période par des mesures d'inclinométrie dans le Laboratoire) et celle de la pression atmosphérique. Les résultats des mesures de température interne et externe, qui régissent le mouvement des fluides gazeux dans l'édifice, ne montrèrent aucune corrélation avec le signal radon.

L'activité mesurée dans la grotte, par cette méthode, était comprise entre 1000 à 1600 Bq.m<sup>-3</sup>.

Une cartographie fut également réalisée dans la grotte avec des LR 115 placés sur l'ensemble de la cavité. Les résultats obtenus montrent une homogénéité de l'émanation en radon dans la grotte. La densité moyenne mesurée par les détecteurs est de 11 traces par millimètre carré avec pour l'ensemble une fluctuation des résultats de 20 %.

Les mesures de l'émanation en radon des échantillons de sol, réalisées en

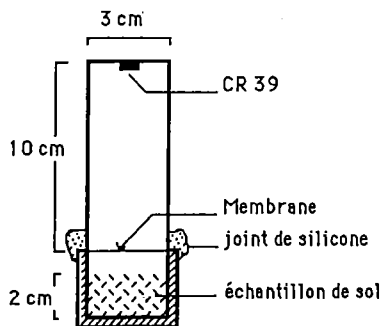
Laboratoire, montrèrent que l'argile avait un pouvoir d'émanation dix huit fois supérieure à celui de la dolomie.

L'ensemble des mesures permet donc de conclure que dans cette grotte la concentration d'activité en radon provient de la couche d'argile déposées sur la dolomie. Cette argile est riche en radon et subit l'influence de la pression atmosphérique et de la marée terrestre. Ces deux paramètres agissant sur elle comme sur une éponge pour augmenter ou réduire selon le cas le dégazage du radon qu'elle contient.

## 5. CONCLUSIONS

La méthode développée a montré son efficacité dans la caractérisation de l'émanation radon sur un site géologique. L'utilisation complémentaire des détecteurs solides de traces nucléaires et du compteur proportionnel permet de disposer d'un ensemble performant à la fois pour qualifier, quantifier et localiser les sources de radon et les facteurs intervenant sur son émanation.

Différentes applications de ces techniques sont en cours en France sur des sites



### Préparations des échantillons:

- séchage
- broyage
- tamisage, le travail est réalisé avec une granulométrie comprise entre 200 et 300 µm.

Figure 4. Cellule de mesure pour l'analyse en laboratoire.



thermaux (en collaboration avec le B.R.G.M. - E.T.M.), des zones sismiques (en collaboration avec le Laboratoire de géologie de l'Université de Franche Comté) et sur des sites de stockage de déchets et à l'étranger (en collaboration avec le CERPHOS, service des exploitants de phosphates, au Maroc) en particulier à des fins de radioprotection pour des professionnels et pour le grand public.

Dans le but d'accroître notre potentiel de mesure du radon, un spectromètre alpha de terrain (diode silicium) est développé.

## BIBLIOGRAPHIE

- BAKALOWICZ et al., : BALAKALOWICZ P., CHAMBAUDET A., CIEUR M., DHULST M.; KLEIN D and MANGIN A.,** en préparation.
- BARILLON et al. 1990 : BARILLON R., D.KLEIN A., CHAMBAUDET, F. MEMBREY et M. FROMM,** Nucl.tracks, (soumis en 1990).
- CHAMBAUDET at al., 1990 : CHAMBAUDET A., F. BERGER, D. KLEIN, D. FELLMANN et R. BARILLON,** Nucl. tracks, (in press).
- CHIRKOV, 1975 : CHIRKOV,** Bull. Volc. XXXVII, pp126 - 131, (1975)
- D'AMORE et al., 1979 : D'AMORE F., J.C. SABROUX, P. ZETTWOOG.,** PAGEOPH vol. 117, (1979)
- DURRANIE, 1986 : DURRANIE E.M.,** Ed J. WILLY-SONS, (1986).
- FLEISCHER et MOGRO-CAMPERO, 1979 : FEISCHER R.L. et A. MOGRO-CAMPERO,** Geophysical research letters. Vol.6, N°5 (1979)
- FLEISCHER et al., 1980 : FLEISCHER R.L., A. MOGRO-CAMPERO et R.S. Likes,** Journal of geophysical Research, Vol. 85, N°B6, pp 3053-3057, (1980)
- KLEIN, 1990 : KLEIN D.,** Thèse de CHIMIE-PHYSIQUE, Université de Besançon, 300 pages, (1990).
- MONNIN et SEIDEL., 1988 : MONNIN M. et SEIDEL J.L.,** C.R. acad. Sci., Paris 307, (II), 1363-1368, (1988).
- SOMOgy et al., 1986 : SOMOGY G., A.F. HAFEZ, I.HUNYADI et M. TOTH,** Nucl. tracks, Vol 12, N°1-6 pp 701-704, (1986).
- ULOMOV et MAVASHEV, 1971 : ULOMOV et MAVASHEV,** Izv. akad. Nauk. Uzb. SSR, pp 188-200, (1971).

## ETUDE DE LA PERMEATION DU RADON 222 DANS DES MEMBRANES PLASTIQUES APPLICATION A UNE BALISE DE MESURE DE RADON DANS LES SOLS

V. LABED (1), A. RANNOU (1), M.C. ROBE (1), G. TYMEN (2)

(1) Commissariat à l'Energie Atomique, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations IPSN/DPEI, Bat. 389, 91191 Gif-sur-Yvette CEDEX, FRANCE.

(2) laboratoire de Physique des Aérosols et de Radioactivité Atmosphérique, Faculté des Sciences de Brest, 6 avenue Victor le Gorgeu, 29287 BREST CEDEX, FRANCE.

### RESUME

*Dans le but d'améliorer la sonde BARASOL<sup>R</sup> (BALISE de mesure du RADON dans les SOLS fabriquée par le CRPM<sup>\*</sup>), en la rendant opérationnelle dans les terrains saturés en eau et sous certaines contraintes de pression, nous avons étudié la perméation du radon 222 à travers les membranes plastiques. Le terme "perméation gazeuse" décrit un phénomène complexe de transfert de gaz à travers certains polymères.*

*Originale par rapport aux études classiques où la perméation s'effectue entre deux phases gazeuses, la présente étude concerne le transfert du radon 222 entre de l'eau et de l'air via la membrane.*

*Un premier dispositif expérimental a permis de tester les membranes, en suivant l'évolution temporelle du phénomène, par mesure de l'activité volumique du radon 222 dans l'eau et dans l'air vis-à-vis de la perméation du radon (coefficient de perméation, coefficient de partage apparent, énergie d'activation), en fonction de la température de l'eau.*

*Un deuxième montage expérimental adapté à la sonde BARASOL a finalement permis de caractériser la réponse de celle-ci en présence des membranes précédemment sélectionnées. Dans ces conditions, nous avons montré qu'il est possible de mesurer le radon dans des eaux naturelles d'une activité volumique de  $10^3 \text{Bq.m}^{-3}$ .*

### ABSTRACT

*In order improve the BARASOL<sup>R</sup> device and to use it in water-saturated soils and in pressure constraint conditions, we have studied the radon 222 permeation through plastic membranes. While the permeation process usually takes place between two media being in the same state, most often gaseous, the present study describes the transfert of radon 222 from the water to the air via membrane. Polypropylene membranes have been tested within an experimental set-up by monitoring the evolution of radon concentrations in the water and in the air. The permeation coefficient and the activation energy were calculated in various conditions.*

*With a second experimental set-up, we have tested the polyethylene membrane which has been adapted on the BARASOL. In these conditions, we have shown that it is possible to measure radon in water at concentration around  $10^3 \text{Bq.m}^{-3}$ .*

### INTRODUCTION

Le phénomène de perméation des gaz au travers de membranes a fait l'objet de beaucoup d'études expérimentales pour différents gaz et différents types de polymères dans des domaines d'application variés (Barrer, 1957; Van Amerongen, 1964; Stern, 1979).

Les membranes permettent le transfert de gaz entre deux environnements se trouvant généralement dans le même état, gazeux le plus souvent.

Parmi ces études, existent notamment celles relatives aux caractéristiques des membranes vis-à-vis de la perméation du radon (Bekman, 1981; Ward et al., 1977).

Il n'existe, par contre, pas ou peu d'études concernant ce phénomène lorsque ces deux milieux séparés par la membrane sont de nature différente.

Le présent travail décrit le transfert du radon 222 à travers une membrane séparant eau et air, le radon étant initialement en solution dans l'eau. L'objectif est de parvenir à corrélérer les concentrations du radon dans l'eau et l'air, de part et d'autre de la membrane.

Une des applications futures de cette étude sera la mesure in situ du radon dans l'eau, analyse actuellement longue et délicate à réaliser par les méthodes conventionnelles, qui consistent le plus souvent en une mesure portant sur un prélèvement ramené au laboratoire.

## ETUDE EXPERIMENTALE

### 1. Description du montage

Le diapositif expérimental permet d'étudier la perméation du radon 222 entre l'eau et l'air à travers des membranes plastiques en fonction de la température.

Il est constitué de deux parties distinctes (figure 1) :

1 - le circuit "eau chargée en radon", fonctionnant en recyclage,

2 - le circuit "air filtré", non recyclé où le transfert du radon est étudié.

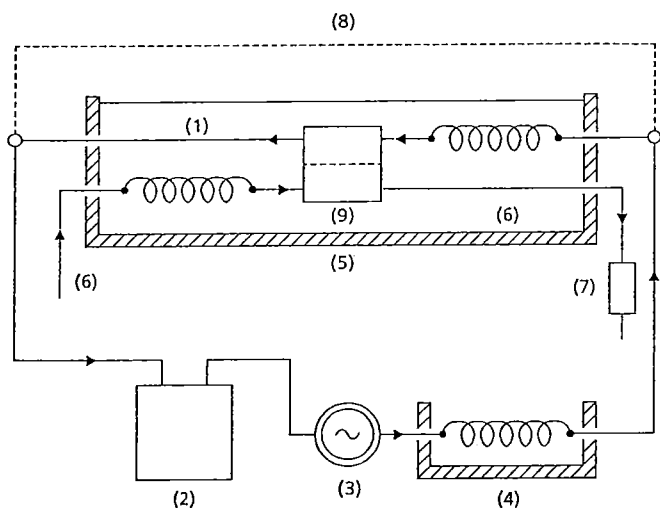


Figure 1 : Schéma du dispositif expérimental.

(1) Circuit d'eau chargée en radon fonctionnant en recyclage.

(2) Source de radon dans l'eau.

(3) Pompe.

(4) et (5) Bains thermostatés.

(6) Circuit d'air filtré.

(7) Chambre d'ionisation.

(8) Circuit de purge.

(9) Pièce supportant la membrane à tester.

Le processus d'échange du radon entre les deux phases s'effectue dans la pièce en acier inoxydable spécialement conçue pour minimiser les zones mortes. La membrane à tester, placée sur une grille support, sépare les

deux milieux.

La source de radon 222 en solution dans l'eau est obtenue à partir d'échantillons de minerai d'uranium, immergés dans l'eau. Comme le circuit fonctionne en recyclage, le liquide se charge régulièrement en radon au contact du minerai, pour atteindre un équilibre de concentration radon, de l'ordre de  $1,5 \times 10^7$  Bq.m<sup>-3</sup> (=0,4 µCi/l).

Le choix de la membrane à étudier s'est porté sur deux polymères hydrophobes; le polypropylène et le polyéthylène, pour éviter tout passage d'eau sous forme liquide ou vapeur dans le circuit d'air.

### 2. Protocole expérimental

Le protocole expérimental consiste à suivre l'évolution du transfert du radon de la phase eau vers la phase air, par la mesure en continu de l'activité volumique du radon dans l'air, à l'aide d'une chambre d'ionisation de petit volume. L'activité volumique en radon dans l'eau est contrôlée lors de chaque expérience par quatre prélèvements ponctuels.

Le phénomène de perméation commence lorsque l'eau chargée en radon entre en contact avec la membrane. Suivant les conditions expérimentales (température, type de membrane, activité du radon dans l'eau), l'activité volumique du radon dans l'air, atteint un état stationnaire 20 à 50 minutes plus tard.

### INTERPRETATION DES RESULTATS

Nos résultats expérimentaux nous permettent de calculer le coefficient de perméation P, qui qualifie le degré de perméabilité au radon d'une membrane, pour différentes températures.

On montre que P (m<sup>2</sup>.s<sup>-1</sup>.Pa<sup>-1</sup>) s'exprime selon l'équation :

$$P = \frac{1}{S} \cdot \frac{V(\lambda + \frac{Q}{V})}{A_v e_{eau}} \cdot \frac{1}{P}$$

avec 1 : épaisseur de la membrane (m)  
 $\lambda$  : constante de décroissance du radon 222 (s<sup>-1</sup>) =  $2,1 \cdot 10^{-6}$  s<sup>-1</sup>  
 Q : débit de balayage de l'air (m<sup>3</sup>.s<sup>-1</sup>)  
 V : volume du compartiment air de la pièce séparatrice (m<sup>3</sup>)

- $p$  : pression de l'air (Pa)  
 $s$  : surface de la membrane ( $m^2$ )  
 $A_v$  : activité volumique du radon dans l'air ( $Bq.m^{-3}$ )  
 $A_v$  : eau activité volumique du radon dans l'eau ( $Bq.m^{-3}$ )

Le tracé de la courbe :

$$\ln P = f\left(\frac{1}{T}\right)$$

permet de vérifier la loi théorique de variation du coefficient de perméation avec l'inverse de la température :

$$P = P_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right)$$

$P_0$  étant une constante ( $m^2.s^{-1}.Pa^{-1}$ ),  $E_a$  l'énergie d'activation du phénomène de perméation ( $J.mole^{-1}$ ),  $R$  la constante des gaz parfaits ( $8,314 J.mole^{-1}.K^{-1}$ ) et  $T$  la température (K).

Nous obtenons ainsi pour chaque membrane testée une droite dont la pente nous fournit la valeur de l'énergie d'activation (figure 2).

Nous remarquons que l'énergie d'activation nécessaire au radon pour traverser le polypropylène est plus importante que dans le cas du polyéthylène. Ce phénomène peut s'expliquer par la présence d'un groupement méthyl supplémentaire dans la structure du polypropylène, qui entraîne un encombrement stérique plus important

Le radon s'y déplace par conséquent plus difficilement. Autrement dit, le polypropylène est moins perméable au radon que le polyéthylène.

A partir de nos résultats expérimentaux nous avons défini également un coefficient  $\alpha_{app}$ , rapport de l'activité volumique du radon dans l'eau à l'activité volumique du radon dans l'air, en présence de la membrane.

La figure 3 présente, pour les deux membranes utilisées, les variations du coefficient  $\alpha_{app}$  en fonction de la température.

Il est possible, en utilisant ces courbes, de déterminer la concentration du radon présent dans une eau à partir d'une mesure directe du radon dans l'air, ceci à une température donnée.

Il faut pourtant noter que, à basse

température où le coefficient  $\alpha_{app}$  varie très rapidement sur une faible gamme de température, les incertitudes liées à cette méthode sont loin d'être négligeables. On doit également en souligner la piètre sensibilité : en utilisant une chambre d'ionisation comme technique de mesure du radon dans l'air, le seuil de détection est ici de l'ordre de  $10^6 Bq.m^{-3}$  de radon 222 dans une eau à  $20^\circ C$ .

En définitive, ces différents résultats nous ont permis de retenir la membrane en polyéthylène comme la plus appropriée pour la suite de nos travaux. L'adaptation de notre membrane à la sonde BARASOL<sup>R</sup> lui permettra d'être opérationnelle en terrains saturés en eau.

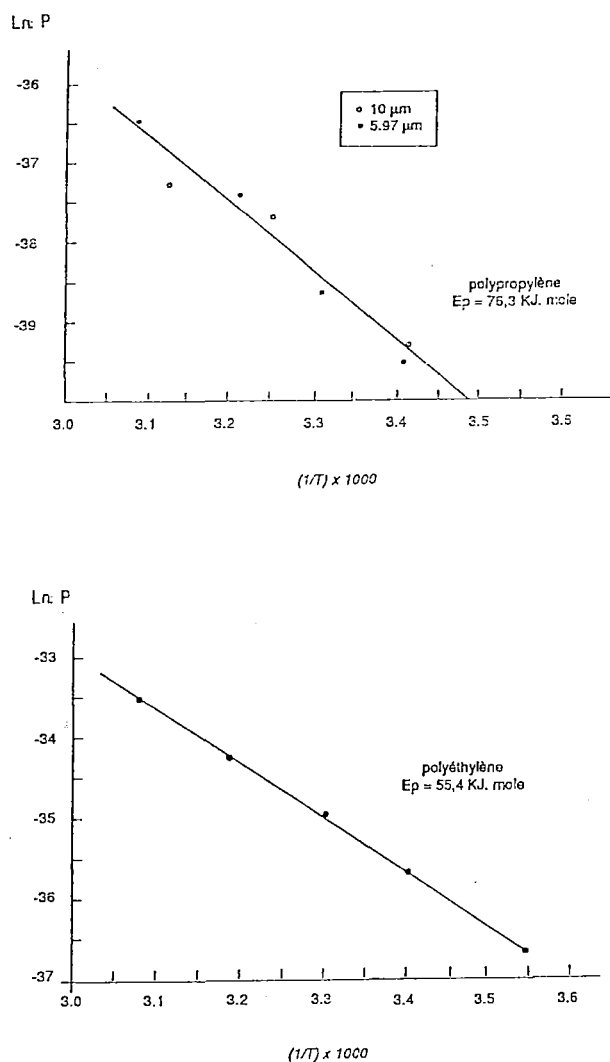


Figure 2. Variation du coefficient de perméation  $P$  en fonction de la température  $T$  (K) pour les membranes polypropylène ( $10 \mu m$  et  $5,97 \mu m$ ) et polyéthylène ( $70 \mu m$ ).

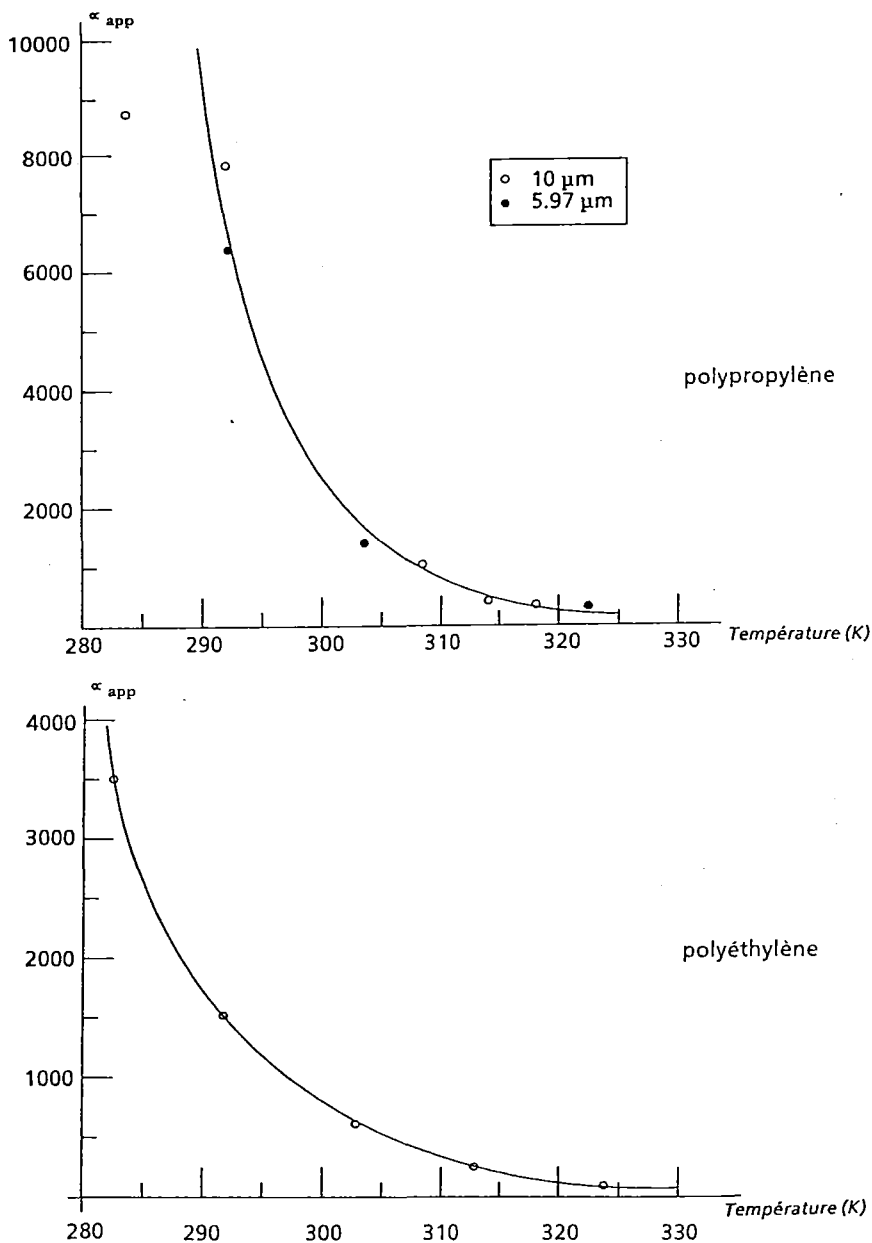


Figure 3. Coefficient  $\alpha_{app}$  en fonction de la température, pour le polypropylène ( $10 \mu\text{m}$  et  $5,97 \mu\text{m}$ ) et le polyéthylène ( $70 \mu\text{m}$ ).

#### ADAPTATION D'UNE MEMBRANE POLYETHYLENE A LA BARASOL<sup>R</sup> : PREMIERS RESULTATS

Un second dispositif expérimental a été mis au point. Ce montage permet de comparer simultanément les réponses de deux BARASOL<sup>R</sup> (l'une étant équipée d'une membrane, l'autre pas) en présence d'eau chargée en radon (figure 4).

BARASOL<sup>R</sup> est un appareil portatif et autonome destiné à la mesure des concentrations de radon dans les sols. L'appareil utilise un détecteur silicium pour la

mesure simultanée des émissions alpha des isotopes 222 et 220 du radon. Ce détecteur, placé dans un volume de détection optimisé, transmet ses informations à un système de comptage et de stockage de l'information.

Au temps  $t_0$  initial, nous introduisons dans le volume où plongent les deux BARASOL<sup>R</sup>, une quantité déterminée d'eau chargée en radon (dont on mesure l'activité volumique). La quantité d'eau introduite ne remplit pas complètement le dispositif (les deux tiers environ). Il reste par conséquent au-dessus de la phase eau, un volume d'air (figure 4). Le radon initialement en solution dans l'eau, va

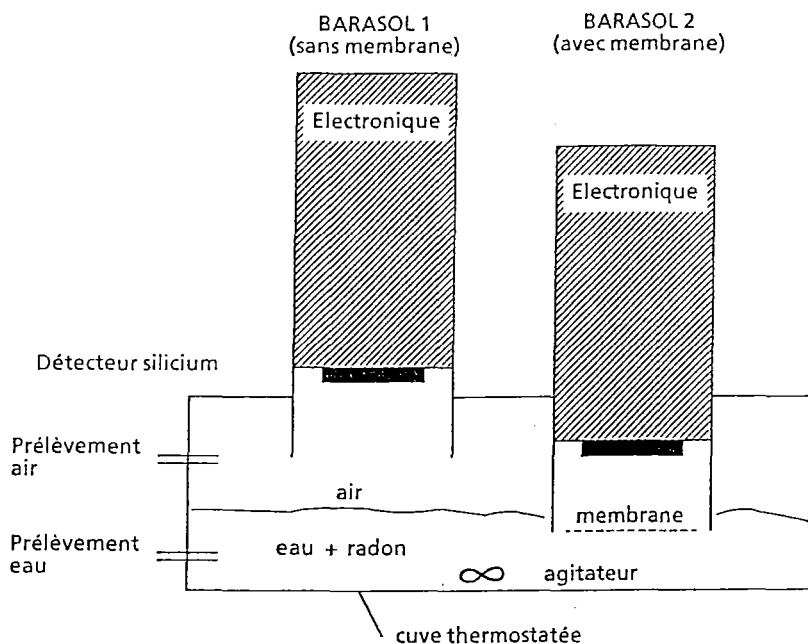


Figure 4. Dispositif expérimental de test de BARASOL équipée d'une membrane polyéthylène.

progressivement se partager entre la phase liquide et la phase gazeuse. Ce nouvel état d'équilibre s'établit selon la loi de Henry : le rapport des concentrations en radon  $A_v \text{ eau}/A_v \text{ air}$  est appelé coefficient de Bunsen (à 20°C la valeur de ce rapport est 0,259).

La BARASOL<sup>R</sup> non équipée de membrane "mesure" cet équilibre de Henry. Par contre, la BARASOL<sup>R</sup> porteuse de la membrane testée "va mesurer" un autre état d'équilibre : le radon ne se répartira pas entre deux phases mais entre trois (l'eau, la membrane et l'air). Nous suivons en continu l'évolution du signal (sous forme d'impulsions) délivré simultanément par les deux BARASOL<sup>R</sup> en fonction du temps grâce à un système d'acquisition de données. Le nombre d'impulsions est directement relié à l'activité volumique du radon à l'intérieur du dispositif (1 impulsion par heure correspond à 35 Bq m<sup>-3</sup>).

Les premiers tests ont été effectués sur la membrane polyéthylène. Les résultats expérimentaux montrent que les deux systèmes évoluent comme prévu vers des états d'équilibre différents (figure 5).

Nous avons déjà obtenu grâce au premier dispositif expérimental, une courbe exprimant un coefficient de partage apparent en fonction de la température (figure 3).

A partir de nos derniers résultats, nous déterminons de même le rapport des activités volumiques du radon  $A_v \text{ eau}/A_v \text{ air}$  (figure 6).

Nous disposons ainsi d'un abaque permettant d'utiliser BARASOL<sup>R</sup> équipée d'une membrane pour mesurer la concentration en radon dans l'eau, en tenant compte de la température.

Etant donné la sensibilité de la BARASOL<sup>R</sup>, il est possible de mesurer *in situ* des eaux naturelles d'activité volumique en radon 222 de 10<sup>3</sup> Bq.m<sup>-3</sup> environ, à 20°C, pour un comptage d'une heure.

## CONCLUSION

Notre étude nous a permis de qualifier deux membranes vis-à-vis de perméation du radon dans les conditions particulières de transfert entre l'eau et l'air (coefficient de perméation et énergie d'activation). Nos résultats sont en bon accord avec les lois théoriques. Le dispositif mis au point pour les besoins de cette étude, peut être utilisé pour tester d'autres membranes.

Nous avons également mis en évidence que notre technique pouvait être appliquée pour mesurer le radon dans l'eau.

L'adaptation d'une membrane polyéthylène à la sonde BARASOL<sup>R</sup> permet déjà, avec un comptage d'une heure, de mesurer le radon dans des eaux naturelles à 20°C d'une activité volumique d'environ 10<sup>3</sup> Bq.m<sup>-3</sup>. Nous espérons gagner en sensibilité en testant d'autres membranes encore plus perméables au radon que le polyéthylène.

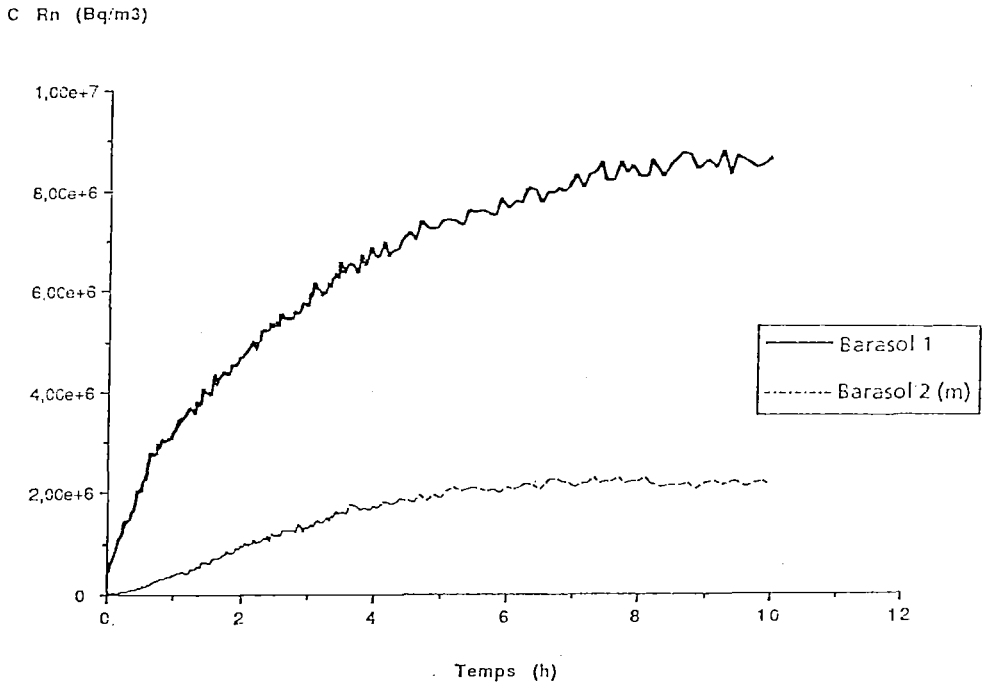


Figure 5. Evolutions en fonction du temps des signaux enregistrés par la BARASOL 1 (sans membrane) et la BARASOL 2 (avec membrane).

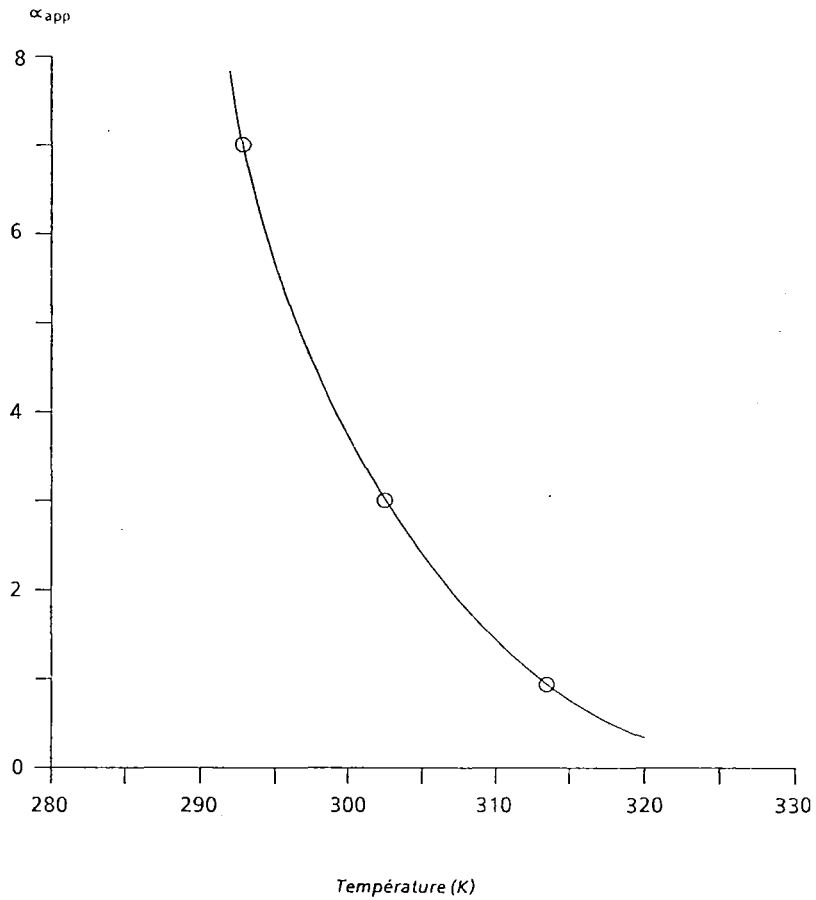


Figure 6. Coefficients  $\alpha_{app}$  obtenu avec BARASOL équipée d'une membrane polyéthylène 70  $\mu\text{m}$ , en fonction de la température.

## REFERENCES

- BARRER, R.M.** Some properties of diffusion coefficients in polymers. *J. Phys. Chem.*, 61 : 178-189 : 1957.
- BEKMAN, I.N. BROVKO, A.P.** Experimental studies of radioactive gas diffusion in solids. I. Apparatus assembly for radiochemical version of the penetrance method. *Soviet. Radiochem.* 23 (2) : 217-221; 1981.
- BEKMAN, I.N.** Experimental studies of radioactive gas diffusion in solids. II. Evaluation of radioactive decay and growth in the penetrance method. *Soviet. Radiochem.* 23 (2) : 221-227 : 1981.
- STERN, S.A.** Gas permeation process in Industrial processing with membranes. R.E. LACEY, S. LOEB Ed., New York, 279-339; 1979.
- VAN AMERONGEN, G.J.** Diffusion in elastomers. *Rubber Chem. Techn.* 37 : 1065-1152; 1964.
- WARD, W.J.; FLEISHER, R.L.; MOGRO-CAMPERO, A.** Barrier technique for separate measurement of radon isotopes. *Rev. Sci. Instrum.* 48 (11) : 1440-1441; 1977.

\* Centre de Radioprotection dans les Mines.  
Fanay - Saint-Sylvestre, 874240 AMBAZAC, France.



## Rn DETECTION ANSWERING PROBLEMS OF ENGINEERING GEOLOGY

Karel MÜLLER - Ales POLACEK

University of Mining and metallurgy, Ostrava, Czechoslovakia

Answering problems of engineering geology, connected with geodynamic processes (tectonic movements, mass movements, landslides) and through study of resulting deformations of surface including deformations coming from mining activity, we utilise the complex of engineering geophysical methods in Czechoslovakia. They are namely geoelectrical methods (resistivity sounding and profiling, spontaneous polarization method etc.) and seismic methods (methods of seismic profiling, seismic measurement between the boreholes, seismologic and above all rock noise emission methods in the special arranged boreholes).

Under definite positive conditions it is possible to make use of even exposure emanative methods, such as alpha track method, alpha card, electron alphascope and others. Successfulness of classical emanative methods in engineering geology depends on the expressiveness of anomalous expression far more than that of exposure emanative methods in engineering geology only sporadically at studying dam profiles in granitoid rocks for assessment of debasement of these areas in combination with geoelectrical methods (Müller, 1987)

Nowadays we put the alpha track method to the complex of engineering geophysical methods. This method is based on integral counting of detects caused by radiation arising during the decomposition of emanation on the surface of the sensitive polymere detector which is placed in a sample container burried in the soil cover for certain space of time.

We use cellulose triacetate (TAC-18) as a detector. Sample containers with detectors are lain into the depth of 0,5 m at least with exposure in the range from 21 to 30 days. Results of measurements are converted to the standard time interval of 1 month (tracks per mm<sup>2</sup>).

In fig. 1 there are the results of geoelectrical measurements of landslide at the railway line leading from Most to Bilina in northern Bohemia, which this line has been

endangered with. The landslide whose activity has been proved with particular inclinometer measurements in boreholes, lies in the quickly changed loamy sands and argillaceous earths creating a cover of neovolcanics (basalts). From the engineering geological documentation it was very difficult to identify planes of sliding from carried boreholes and continually observe the course of sliding zones among boreholes. This project has been solved in combination of methods of resistivity profiling and sounding. From results of the resistivity method it has been able to utilize the basal sliding zone with confidence, but not to limit truthfully the partial part of active landslide. Resistance minima of the footage of about 75 m and in the range from 170 to 210 m indicate the division of a slope deformation into partial parts though, but from the lithologic point of view rock environment is so far variable that it does not allow the delimitation of infiltration zones; this fact is suggested with small contrast in resistances. The measurement through the alpha track method has allowed to state two characteristic zones, where the Rn air pollution overtops from 2 to 3 times the standard background. According to the character of these anomalies it is possible not only to confidently separate there partial parts of the landslide, the first of which up to the footage of 75 m endangers the railway line but even to delimitate tensile zones in places of increased in the Rn air-pollution.

In fig. 2 there are again results of geoelectrical measurements in neovolcanics at Banská Stianica in Central Slovakia. Places of failure in the andesite massif, which can condition the origin of a slope deformation of block type, were observed through geophysical works. On the basis of results of resistivity sounding and profiling, the limitation of the slope deformation has been carried out. The andesite block, having been broken away from the massif and being marked by high resistivity (to 400 ohmmeters), displaced into the sedimentary crust, has been limited for zones of low resistivity (10 to 20 ohmmeters). In the

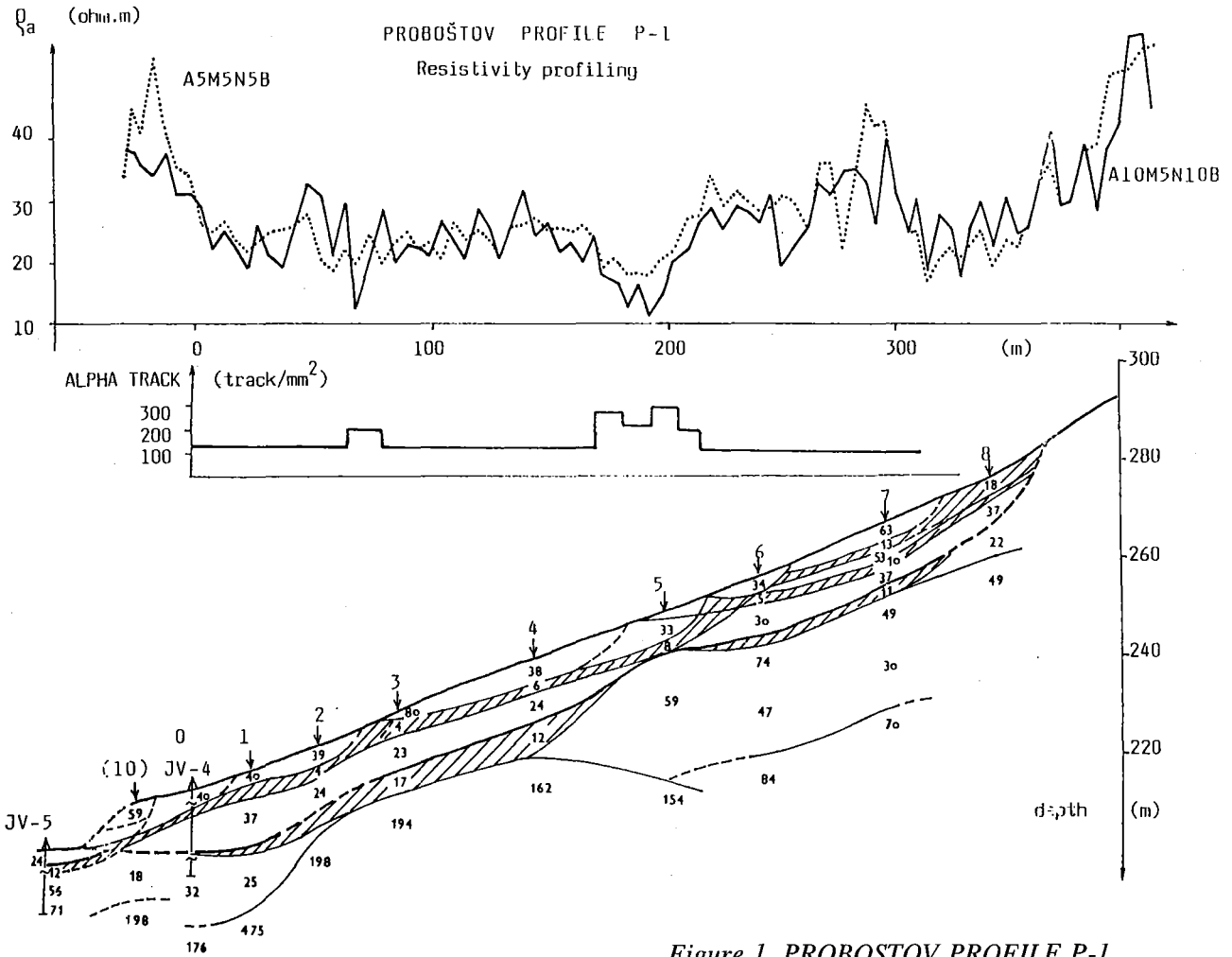
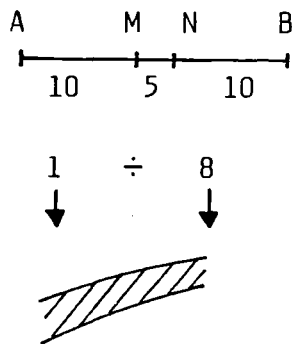


Figure 1. PROBOŠTOV PROFILE P-1.



1. distribution of electrodes for resistivity profiling.

2. resistivity sounding.

3. possible shear zone.

same profile the method of alpha track has been realized, results of that not only support the idea about the failure of andesites owing to faults, but according to the successive increase of  $R_n$  air-pollution values, the idea of tensile zones and conditional of arising block deformation on deeper border faults of rock massif can be done.

Experimental works have only been carried out in close roof of acide (andesites) and basic (basalts) neovolcanics up till now, but they confirm an availability of the alpha track method as a supplementary method of the complex of prospecting methods of slope deformations making more accurate a requirement of reach of maintenance measures.

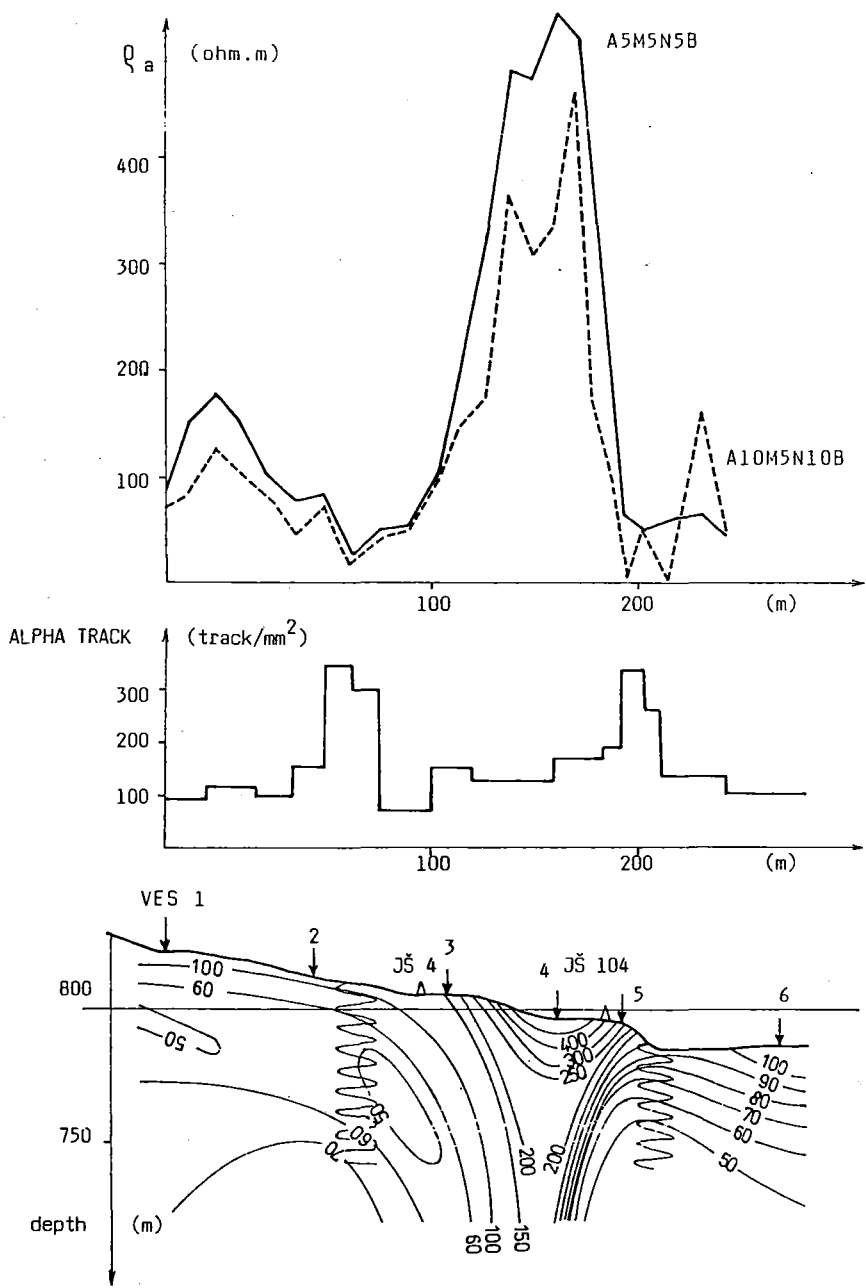
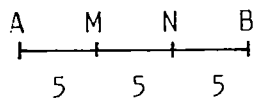
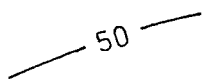


Figure 2. BANSKA STIAVNICA PROFILE P-5



Δ



- 1. distribution of electrodes for resistivity.
- 2. bore hole.
- 3. resistivity center.
- 4. zone of discontinuity.

## REFERENCES

**JIRKOVSKY, R., MÜLLER, K., TOMAS, J.**, (1967) : Využití radioizotopu v hutnictví a hornictví (In Czech). SNTL, Prague.

**MÜLLER, K., MÜLLEROVA, J.** (1965) : Metodika orientačního posouzení geotechnických vlastností Zulového masivu v prehradním místě Josefův důl (In Czech). Sb. Prehradní dny, 64-75, Hradec Králové

**MILITZER, H., SCHÖN, J., STÖTZNER, U.**, (1978) : Geophysik im Ingenieur - und Bergbau. VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie, Leipzig

**MÜLLER, K.**, (1987) : The methodology of the engineering geophysical survey exploration of a rock mass.

**TITOV, V.K. et al.** (1985) : Exposure emanative methods of exploration of mineral deposits. NEDRA, Leningrad (in Russian)

## VERTICAL DISTRIBUTION OF ALPHA-RAY DENSITY, RADON AND THORON NEAR THE GROUND SURFACE

TSUGUO NISHIKAWA (1) MASAYOSHI AOKI (1) and SHIGERU OKABE (2)

(1) Faculty of Engineering, Fukui University, Bunkyo, Fukui 910, Japan

(2) Radon Science Research Laboratory, 3 - 10 - 10 Wakamatsudai, Sakai, Osaka 590 - 01, Japan.

### ABSTRACT

*To get the information on the thoron behavior and relatively high density of alpha-rays near the ground surface, the vertical distributions of alpha-rays, radon daughters and thoron have been measured. The alpha-ray density close to the ground surface has been found to be several times as high as that at the height of 2 m. The atmospheric radon daughters have shown almost uniform vertical distribution. On the contrary, the atmospheric thoron has shown a non uniform vertical distribution; its contents close to the ground surface are about 3.9 times in autumn and 40 times in summer, respectively, of those at the height of 1 m. The contents of thoron at various heights are several to several tens times of the average radon daughter content. The vertical distribution of alpha-ray density near the ground surface is concluded to be caused by the thoron distribution.*

### RESUME

*Les informations sur le comportement du thoron et des rayons alpha de densité relativement élevée à proximité de la surface du sol sont importantes non seulement pour l'étude de l'exhalaison de thoron et du mélange avec l'air, mais aussi pour l'estimation de l'effet des rayons-alpha sur les organismes vivants à proximité de la surface du sol.*

*La distribution verticale des rayons alpha à proximité de la surface du sol jusqu'à une hauteur de 2 m a été mesurée avec un détecteur de trace CR-39. La densité de rayons alpha à proximité de la surface du sol a été trouvée comme étant égale à plusieurs fois celle à 2 m de haut. Une variation saisonnière systématique n'a pas été clairement mise en évidence dans le modèle de la distribution verticale.*

*La mesure de la distribution verticale des descendants radioactifs du radon atmosphérique à proximité de la surface du sol au même observatoire a été également réalisée avec une méthode de filtration. La teneur et le degré de l'équilibre radioactif des descendants du radon à différentes hauteurs ont été trouvés comme étant presque égaux entre eux même au cours de la nuit lorsque des différences sont attendues pour être plus grandes. Ceci signifie que, à proximité de la surface du sol, le radon atmosphérique et ses descendants contribuent difficilement à la distribution verticale des rayons alpha.*

*Pour obtenir plus d'informations, la distribution verticale du thoron atmosphérique à proximité de la surface du sol a été mesurée en utilisant la méthode des deux filtres avec une chambre de désintégration. La teneur en thoron à proximité de la surface du sol a été observée comme étant égale en moyenne à 42.6 Bq/m<sup>3</sup> au cours de l'automne 1989 et 190.7 Bq/m<sup>3</sup> pendant l'été 1990. Ces teneurs sont environ 3.8 fois en automne et 40 fois en été, respectivement, celle à la hauteur de 100 cm. Les différences de teneur et de modèle de distribution verticale du thoron sont considérées être causées par les différences du taux d'exhalaison du thoron et des conditions de mélange à l'air. Les teneurs en thoron observées à diverses hauteurs sont plusieurs à plusieurs dizaines de fois égales à la teneur moyenne des descendants radioactifs du radon atmosphérique. Par conséquent, la distribution verticale de la densité de rayons alpha à proximité de la surface du sol est considérée comme étant principalement causée par la distribution du thoron.*

### INTRODUCTION

Recently, the health risk due to radon is discussed all over the world and the effect of thoron, neglected at first, is growing up as the next problem. The information on the thoron behavior and relatively high density of the alpha-rays due to thoron near the ground surface is important not only for the study of

the thoron exhalation but also for the estimation of the alpha-ray effect on living things near the ground surface. The vertical distribution of the atmospheric radon, thoron and their daughters were investigated experimentally and theoretically by many researchers (Moses et al., 1960; Fontan et al., 1966; Crozier and Biles, 1966; Ikebe and Shimo, 1972; Moore et al., 1973; Beck and

Gololak, 1979; Liu et al., 1984; Kubozoe et al., 1988; Andrea et al., 1988). However, the detailed studies of the vertical distribution of them near the ground surface are few.

The vertical distribution of alpha-ray density near the ground surface has been measured over one year. Measurements of the vertical distributions of the atmospheric radon daughters and the atmospheric thoron near ground surface have been also carried out at the same place.

## MESUREMENTS

The measurement of the vertical distribution of alpha-ray density near the ground surface up to the height of 2 m has been carried out at a lawn area of the campus of Fukui University by using CR-39 solid state track detectors for integrating measurement at every month. The glass cups are hung up like a bell at the height of 1, 3, 5, 10, 20, 30, 60, 100, 150 and 200 cm, respectively. The chips of CR-39 of 1 mm thick and 10 x 15 mm<sup>2</sup> size are set on the ceiling of these glass cups and renewed every month. The etching of CR-39 is carried out using the 30 wt% solution of potassium hydroxide warmed to the temperature of 70°C for 4 hours. The tracks caused by alpha-rays are counted using a

microscope with x 150 magnification. The outside of glass cups is painted with white paint in order to intercept the sunlight because the CR-39 surface gets rough by corrosion when it is exposed to direct sunlight. The number of the glass cups near the ground surface is increased so as not to disturb the neighboring circumstance condition when these are dug out one after another under snow covered condition.

The vertical distribution of atmospheric radon daughters near the ground surface were measured continuously at the same place mentioned above using a dust monitor which has a ZnS(Ag) scintillation counter system. The air sampling is made one after another at the heights of 3, 10, 30, 60, 100 and 200 cm at every ten minutes. In order to study the difference of the radioactive equilibrium of the radon daughters between the various heights, two kinds of measurements are carried out; one is the case in which the counting is made after sampling and the other is made simultaneously at sampling.

The direct measurement of the vertical distribution of atmospheric thoron was made at the same place using the two filter method which has the decay chamber of 30 l volume equipped with inlet and exit filters. The sample air is taken at the heights of 3, 30 and 100 cm

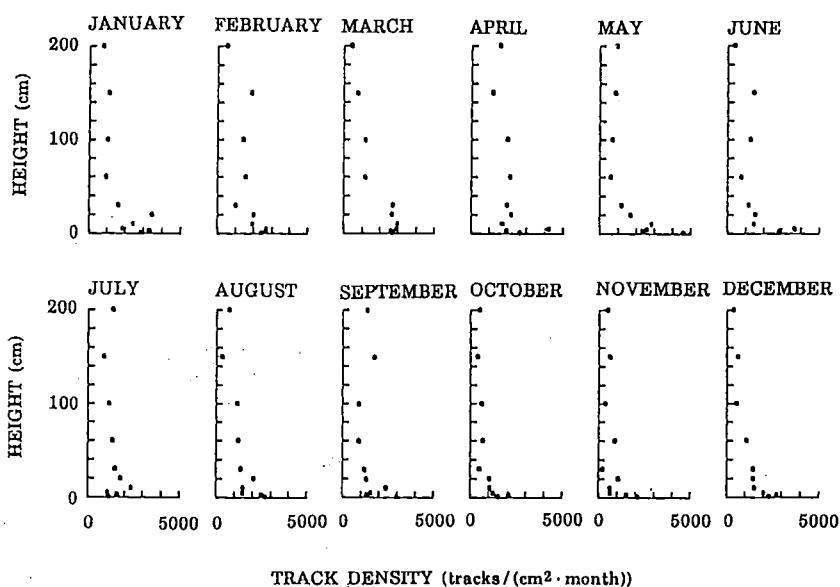


Figure 1. Monthly vertical distribution of alpha-ray track density in 1988

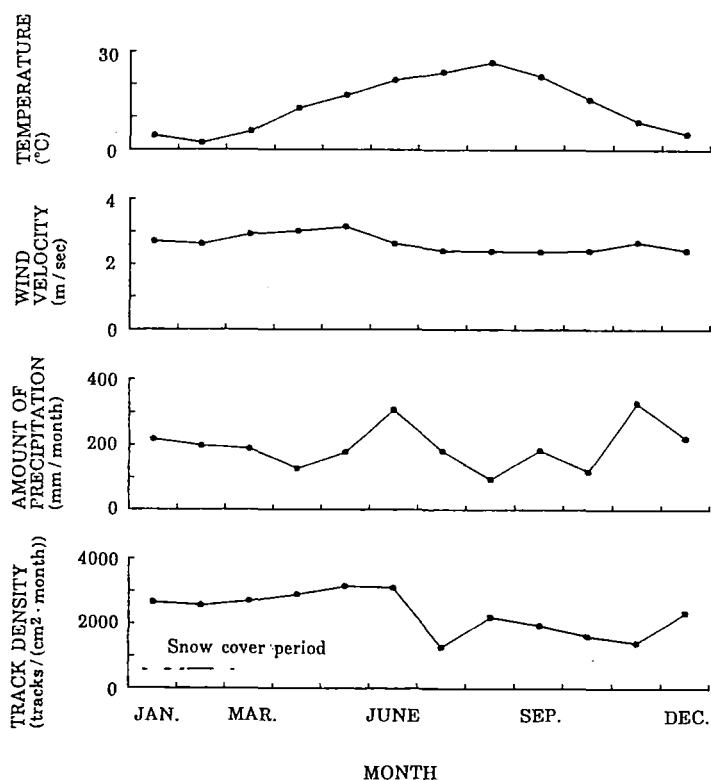


Figure 2. Monthly variation of mean temperature, mean wind velocity, amount of precipitation and alpha-ray track density near ground surface (average of values at 1, 3 and 5 cm height) on 1988. The snow cover periods are also shown.

and flows through the decay chambers at every three hours. Thoron daughters, which are formed while in transit of air in the decay chamber and deposit on the exit filter, are measured with ZnS(Ag) scintillation counter system after it is left more than four hours so as to remove the effect of radon daughters. The wind velocity at the height of 1 m and atmospheric pressure were measured simultaneously.

## RESULTS AND DISCUSSION

Figure 1 shows the monthly variation of the vertical distribution of alpha-ray track density measured by the CR-39 track detectors. The track density is, on the whole, high near the ground surface and low at the upper point. In some cases, the track density near the ground surface are five times higher than the value at the height of 200 cm. The vertical

distributions of track densities at the various months are different to each other, but systematic seasonal variation of those are not found, as shown in Fig. 1. This fact is considered to be due to the difference of the micrometeorological condition near the ground surface, like wind velocity, wind direction, sunshine time and soil moisture, etc...

Figure 2 shows the variation of the track density near the ground surface which is represented by the average of the values at the heights of 1, 3 and 5 cm. This figure also shows the variations of the monthly mean values of temperature and wind velocity, the monthly amount of precipitation measured by the Weather Bureau of Fukui and the snow cover periods at the observatory. The track density does not show a systematic relation with the temperature, wind velocity and precipitation. The track density decreased in July, but any corresponding variation of meteorological condition is not found in this case. As shown in Fig. 2, the effect of the snow cover on the vertical distribution of track density is not yet clear because the depth of snow cover is small as about 30 cm in recent years and it melts down within a few weeks.

Figure 3 shows an example of the time variation of the vertical distribution of atmospheric radon daughters near the ground surface measured at the same observatory with the filtration method. In this case, the counting of the alpha-rays is carried out simultaneously with the air sampling at several different heights. The radon daughter contents at the various heights are almost equal to each other at the same time and shown the diurnal variation, the patterns of which are also similar. The similar result is obtained in the case that the counting of alpha-rays is carried out after the air sampling. Therefore, it is concluded that the degree of the radioactive equilibrium of the radon daughters is almost equal at the various heights. From the results obtained in these radon daughter measurement, at the near ground surface, it has been made clear that the atmospheric radon and its daughters have hardly any contributions to the vertical distribution difference of alpha-ray density observed by CR-39.

Figure 4 (a) and (b) show two examples of the time variation of the atmospheric thoron content at the heights of 3,

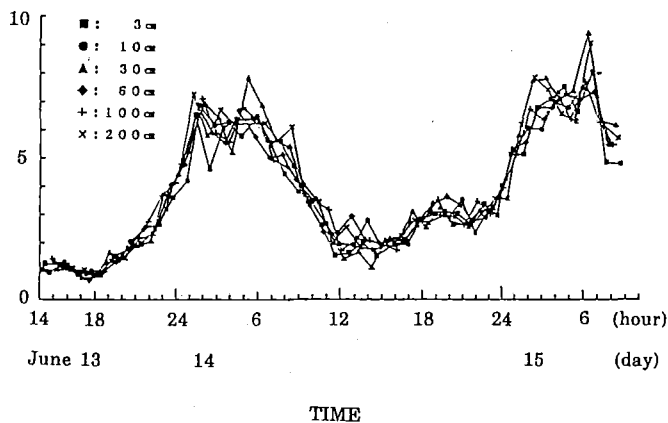


Figure 3. Time variation of atmospheric radon daughter content measured at various heights on June 13-15, 1988.

30 and 100 cm measured with the two filter method. In these figures, the wind velocity at the height of 1 m and the atmospheric pressure which are averaged for every three hours at the sampling place are shown for comparison. Figure 4 (a) is the case of autumn measured in September 26- 27, 1989, and Fig. 4 (b) is the case of summer measured in August 6 - 10, 1990. Both measurements were made at the same place. The atmospheric thoron contents at the height of 3 cm are highest and at the height of 100 cm are lowest. The thoron contents at the height of 3 cm are higher in summer 1990 than in autumn 1989. This difference is considered to be caused by the following fact : In summer 1990, fine days continued for more than 10 days and the soil temperature rose up, then the thoron exhalation rate from the dried soil might have become high. On the other hand, in autumn 1989, there were many rainy days and temperature became low; then the thoron exhalation rate might have been decreased by the increased soil moisture. The difference of variation appeared in the thoron content curves of fig. 4 (a) and (b) is considered to be caused by the time variation of the micro air mixing condition near the ground surface.

Figure 5 show the relations between the wind velocity at the height of 1 m and the atmospheric thoron content at the height of 3 cm. Figure 5 (a) and (b) are the results obtained in autumn 1989 and in summer 1990, respectively. As a whole, the thoron content is inversely correlated with the wind velocity. The correlation coefficients between the thoron content and the wind velocity are -0.46 in

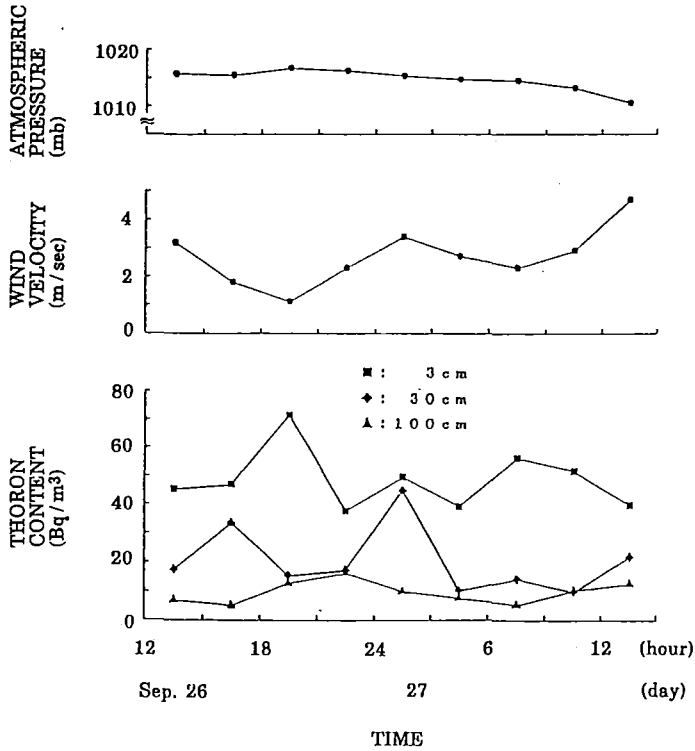
autumn 1989 and -0.90 in summer 1990. Similar relation is found at the height of 30 cm in summer 1990, but a systematic relation is not found in the other cases.

Figures 6 shown the patterns of the vertical distribution of atmospheric thoron using the average values observed in each measurement series with the two filter method. Figure 6 (a) are the results obtained in autumn 1989, and (b), in summer 1990. The average thoron contents obtained in autumn 1989 are 46.2, 21.7 and 11.7  $\text{Bq/m}^3$  at the heights of 3, 30 and 100 cm, respectively. These values are 13.2, 6.2 and 3.3 times of the average content of atmospheric radon daughters observed at Fukui University (Nishikawa, Aoki and Okabe, 1985) at the same time. In summer 1990, the thoron contents at the same heights are 190.7, 17.9 and 4.8  $\text{Bq/m}^3$ , and 54.5, 5.1 and 1.4 times of the radon daughter content, respectively. These data indicate that the vertical distribution of the alpha-ray density near the ground surface is mainly caused by the vertical distribution of thoron which is emitted just at the observatory site. This is the most different point compared to the atmospheric radon.

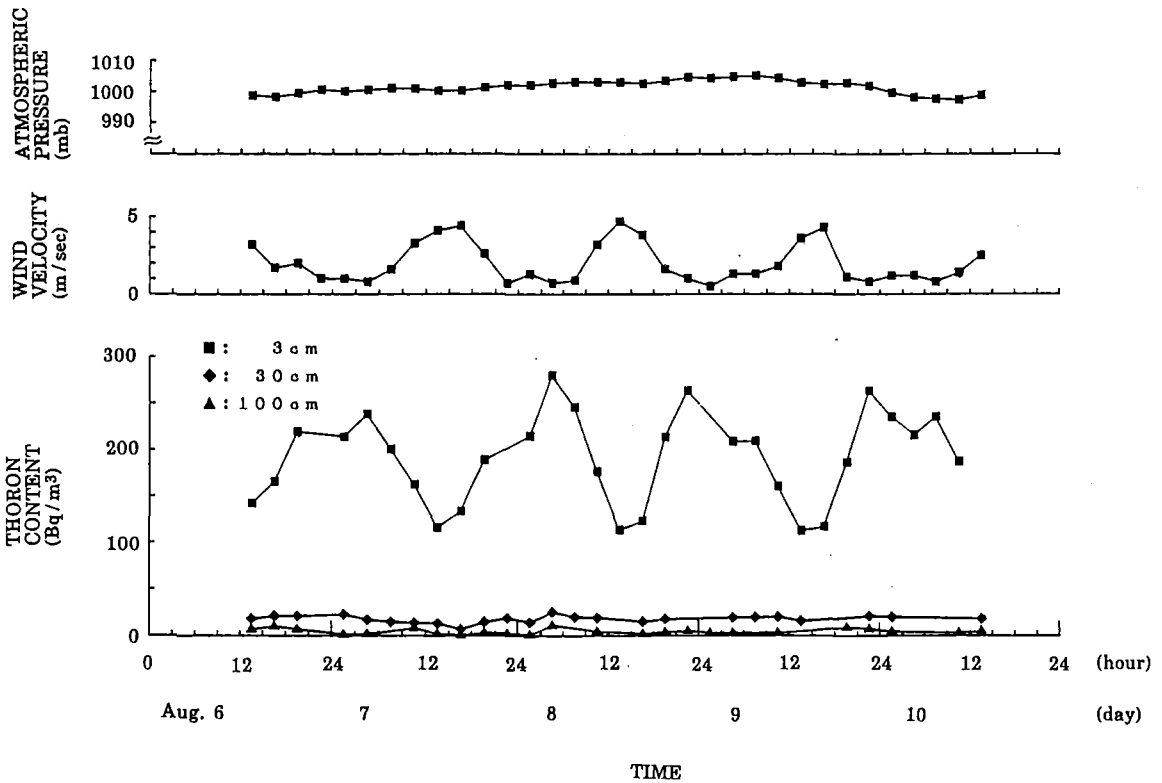
Figure 7 shows the logarithmic patterns of the vertical distribution of atmospheric thoron using the average values obtained in autumn 1989 and in summer 1990. The pattern of autumn is similar to the case of normal turbulence condition calculated by Jacobi and Andre (1963), and the pattern of summer is intermediate between the cases of weak vertical mixing and strong inversion.

The energies of the alpha-rays emitted



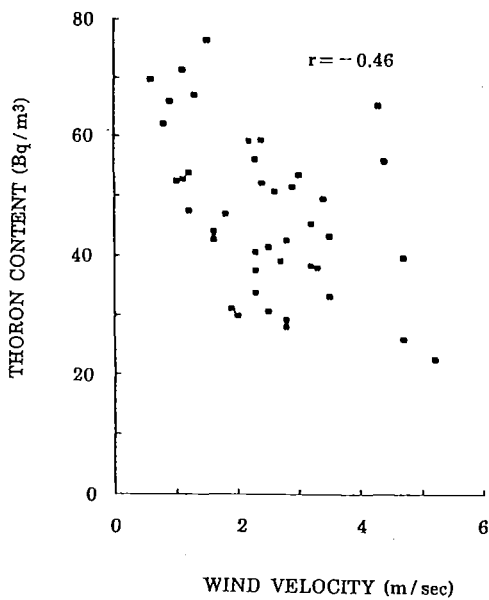


(a)

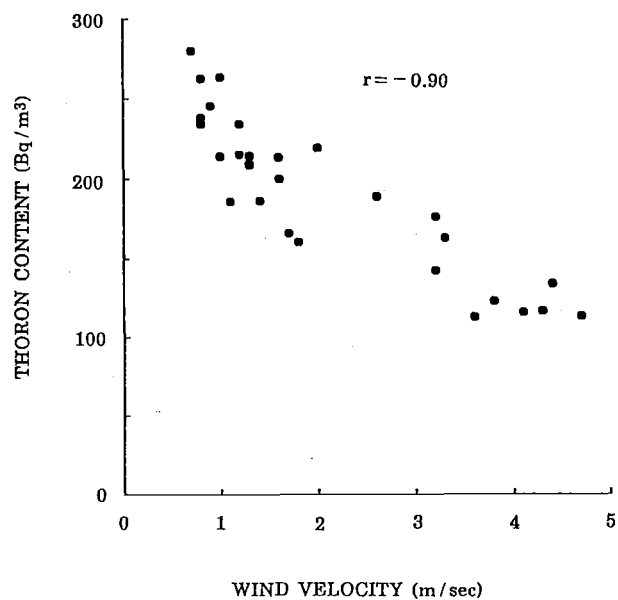


(b)

Figure 4. Time variation of atmospheric pressure, wind velocity at 1 m height and atmospheric thoron content at 3, 30 and 100 cm height. Each point shows the mean value for three hours. Figures (a) and (b) show the data measured on september 26 - 27, 1989 and August 6 - 10, 1990, respectively.

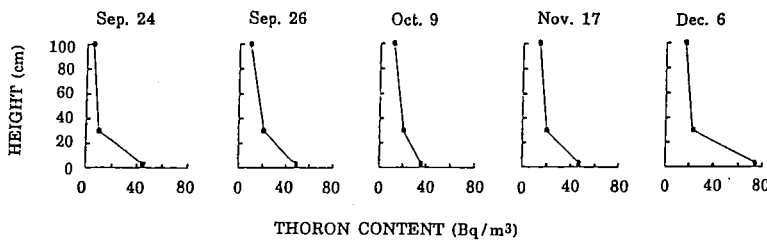


(a)

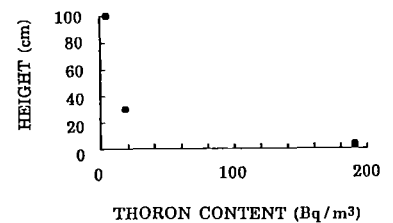


(b)

Figure 5. Relation between wind velocity at 1 m height and atmospheric thoron content at 3 cm height. Figures (a) and (b) show the results obtained in autumn 1989 and summer 1990, respectively.



(a)



(b)

Figure 6. Averaged vertical distribution of atmospheric thoron for each period of measurement. Figures (a) and (b) show the data in autumn 1989 and summer 1990, respectively.

by thoron and its daughters in an air volume of 3 cm height on the ground surface are estimated to be 603.8 MeV/(m<sup>3</sup> sec) in autumn 1989 and 2492.4 MeV/(m<sup>3</sup> sec) in summer 1990. The value of radon and its daughter content assuming radioactive equilibrium. It is clear that, near the ground surface, the health risk due to alpha-rays of thoron and its

daughters is more important than radon and its daughters.

At present, this study is continued so as to make clear the relation between the vertical distribution of thoron near the relation between the vertical distribution of thoron near the ground surface and the various meteorological conditions like thick snow cover.

## CONCLUSION

The vertical distribution of alpha-ray density near the ground surface has been measured by using CR-39 track detectors. The alpha-ray density near the ground surface has been found to be several times as high as that at the height of 2 m. A clear systematic seasonal variation has not been found in the pattern of the vertical distribution.

The vertical distribution of atmospheric radon daughters near the ground surface at the same observatory was also measured with the filtration method and a difference between the contents at various heights was not observed. It means that, near the ground surface, the atmospheric radon and its daughters have hardly any contribution to the vertical distribution of alpha-ray density.

To get more detailed information of vertical distribution of thoron near the ground surface, measurements have been carried out using the two filter method with a decay chamber. The atmospheric thoron contents near the ground surface have been observed to be  $42.6 \text{ Bq/m}^3$  in autumn 1989 and  $190.7 \text{ Bq/m}^3$  in summer 1990 on the average. These contents are about 3.9 times in the autumn and 40 times in the summer, respectively, of those at the height of 100 cm. These differences of the contents and the vertical distributions of thoron are considered to be caused by the differences of the thoron exhalation rate and the air mixing condition.

The summation of the alpha-ray energy emitted by thoron and its daughters is estimated as  $2492.4 \text{ MeV/m}^3 \text{ sec}$  and the value of radon and its daughters is obtained as  $67.1 \text{ MeV/(m}^3 \text{ sec)}$ , respectively.

The observed thoron contents at various heights are several to several tens times of the average content of atmospheric radon daughters. Therefore, it is concluded that the vertical distribution of alpha-ray density near the ground surface is mainly caused by the distribution of thoron.

## REFERENCES

ANDREAE, M.O., BERRESHEIM, H., ANDREAE, T.W., KRITZ, M.A., BATES, T.S. and MERRILL, J.T., 1988, *J. Atmos. Chem.*, 6, 149.

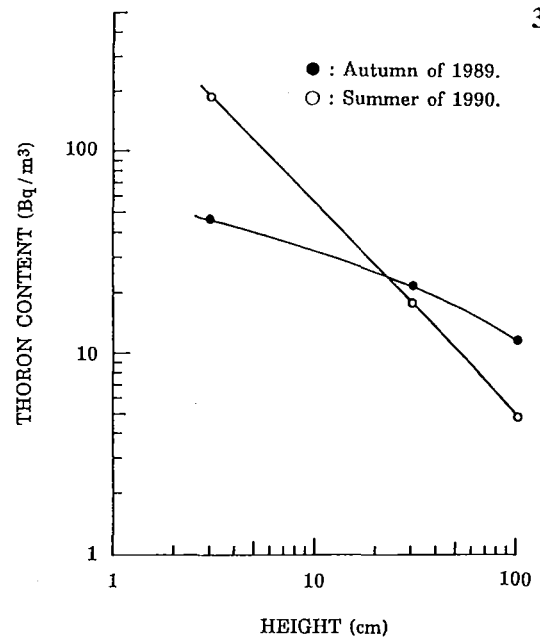


Figure 7. Logarithmic pattern of vertical distribution of atmospheric thoron. The contents shown in this figure are mean values obtained in autumn 1989 and summer 1990, respectively.

BECK, H. and GOGOLAK, C.V., 1979, *J. Geophys. Res.*, 84, 3139.

CROZIER, W.D. and BILES, N., 1966, *J. Geophys. Res.*, 71, 4735.

FONTAN, J., BIROT, A., BLANC, D., BOUVILLE, A. and DRUILHET, A., 1966, *Tellus*, 18, 623.

IKEBE, Y. and SHIMO, M., 1972, *TELLUS*, 24, 29.

JACOBI, W. and ANDRE, K., 1963, *J. Geophys. Res.*, 68, 3799.

KUBOZOE, T., WATANABE, Y., NAKAMURA, K., KABEYAMA, M. and AIHARA, Y., 1988, in "Radiation Protection Practice", Pergamon Press, Vol. 2, p. 881.

LUIC, S.C., Mc AFEE, J. R. and CICERIONE, R. J., 1984, *J. Geophys. Res.*, 89, 7291.

MOORE, H. E., POET, S. E. and MARTELL, E. A., 1973, *J. Geophys. Res.*, 78, 7065.

MOSES, H., STEHNEY, A. F. and LUCAS, H. F. Jr., 1960, *J. Geophys. Res.*, 65, 1223.

NISHIKAWA, T., AOKI, M. and OKABE, S., 1985, in "Atmospheric Radon Families and Environmental Radioactivity" (in Japanese), Atomic Energy Soc. Jpn., p. 107.

PEARSON, J.E. and MOSES, H., 1966, *J. Appl. Meteorol.*, 5, 175.

## RESULTS OF SHORT - AND LONG-TERM RADON MEASUREMENTS IN SOIL AND DWELLINGS BY ALPHA TRACK DETECTORS

**L. TOMMASINO and G. TORRI**

Laboratorio di Misure, ENEA-DISP.

Via V. Brancati 48, 00144, Rome, ITALY

### ABSTRACT

*Passive radon monitoring devices, based on damage track detectors, present attractive characteristics not only for long-term (months to years) measurements but also for short-term (days to weeks) exposures in dwellings.*

*A gas radon permeation-type sampler based on a heat-sealed polyethylene bag has been extensively used in Italy for large scale surveys of both soil radon and long-term measurements in dwellings.*

*For short-term radon measurements, the radon sampling device is obtained by using a bare cellulose nitrate detector. Any desired sensitivity can be achieved simply by scanning a sufficiently large detector area by the spark counter.*

*Several different sets of data have been gathered so far using both the techniques mentioned above, which data are very useful to illustrate the weekly, monthly and yearly variation of the radon concentration respectively in soil and in dwellings.*

### RESUME

*Des détecteurs passifs pour la mesure du radon, basés sur la technique des détecteurs de traces, présentent des caractéristiques intéressantes non seulement pour des mesures de périodes importantes (de l'ordre du mois jusqu'à plusieurs années), mais également pour courtes expositions (de quelques jours à quelques semaines).*

*La cellule de diffusion du radon composée d'une membrane de polyéthylène a été largement utilisée en Italie pour des surveillances à grande échelle du radon dans le sol et dans les habitations.*

*Pour des mesures du radon sur des périodes courtes, le système de détecteurs de nitrate de cellulose est ouvert. La sensibilité est fonction de la surface étudiée par la technique du compteur à étincelles.*

*De nombreuses séries de données ont été rassemblées en utilisant les deux techniques mentionnées ci-dessus. Ces données sont très utiles pour la connaissance des variations hebdomadaires, mensuelles et annuelles de la concentration en radon soit dans les sols, soit dans les habitations.*

### INTRODUCTION

There are a wide variety of well established techniques for the measurement of radon and its daughters (OECD/MEA). In the following we will describe the radon monitoring by alpha track detection with the specific applications in mind of large scale surveys, i.e. those applications where damage track detectors present unique characteristics.

Large scale surveys for the assessment of the radon concentration in dwellings are needed respectively for :

- The assessment of long-term radon exposures (months to years) for determining the population doses.
- The assessment of short-term radon exposures (days to weeks) for screening purpose or for investigating the geographical variation of the radon concentration.

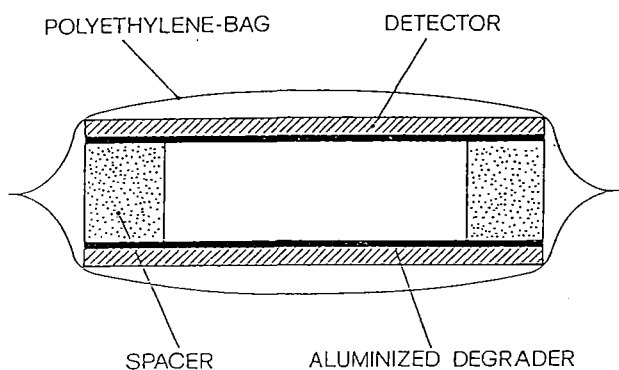


Figure 1. The plastic-bag radon gas sampler.

## ASSESSMENT OF LONG-TERM EXPOSURES

Damage track detectors present unique characteristics for the assessment of long-term radon exposures for their ability to integrate over long periods of time (months to years). Radon monitoring devices based on damage track detectors can be formed respectively by diffusion and permeation samplers (Tommasino L., 1988).

A radon monitor device has been recently developed (Tommasino L. et al., 1986; Torri G., 1989) which is a permeation sampler formed by a heat-sealed plastic bag made of 40 microns-thick polyethylene film. Enclosed in the bag are two LR-115 detectors held one cm apart by a plastic frame, the cross-section of which is shown in figure 1. Aluminized polycarbonate degraders are facing the detectors both to optimize the detector responses and to make their surfaces conductive. Of the two LR-115 foils, only one is used for the assessment of the radon concentration while the other is used as the back-up detector.

The back-up detector can be made of any type of detectors, such as chemically and/or electrochemically etched polycarbonate

or CR-39 detectors. The polyethylene bag is needed to protect the detector from humidity, dust, thoron and radon daughters, allowing the preferential entry of radon gas (Tommasino L., 1988; Tommasino L. et al, 1986). This bag is very important for long exposure periods both in indoor and outdoor environments and presents the following advantages :

- low cost, simple heat-sealing;
- small size and fast sampling time;
- high permeability to radon with small permeability to water vapor;
- no formation of glass-like or brittle like bag in very cold weather.

## SOIL AND INDOOR RADON MEASUREMENTS WITH THE PLASTIC BAG SAMPLERS

The most important contribute to indoor radon is the radon of the soil beneath the house. Extensive investigations of soil radon have been made in Italy in the past few years mainly using the plastic bag sampling device (Azimi-Garakani D., 1988; Torri G. et al, 1988). For soil radon measurements, detectors have been placed at a depth of 0,6 m below the ground surface. Figure 2 shows how important is the protection of the polyethylene bag under large humidity conditions. In this figure two replicas are shown, which have been obtained by spark counting. LR-115 foils (Tommasino L. et al, 1986) irradiated respectively with (right-hand side) and without (left-hand side) protection of the polyethylene bag. The water droplets on the detector surface can be easily seen, which droplets greatly affect the response of the radon sampler.

The survey of soil radon in Italy commenced in November 1982 by establishing hundreds of different monitoring stations mainly in Latium and Campania, which are two regions of Italy with rather large content of uranium in soil. Some of these field stations

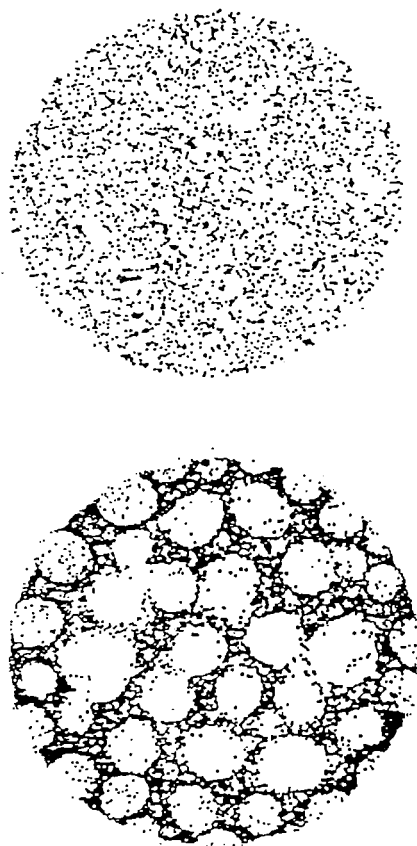


Figure 2. Spark counter replica of LR-115 detectors with and without plastic bag.

are still in use after an interruption of two years (1984-1985). The seasonal variations of soil radon in these stations are shown in figure 3, which reports the mean radon concentration versus the month period for four stations in the year of 1983, 1986, and 1987 (Torri G. et al, 1988). The radon concentrations have been normalized to a month arbitrarily chosen (August 1983). It appears clear from this figure that there is a constant trend for the three different years. The radon concentration results always higher in the summer and in the fall. It can be also noted that the total radon concentration relative to the first 9 months of 1987 is 3 times higher than of 1983. Long term variations of soil radon indicate that indoor radon concentrations may be known with a limited accuracy even when radon measurements are integrated over an entire year (Torri G. et al, 1988).

The plastic bag radon sampler is now being used for the italian national survey of indoor radon, which is carried out with the

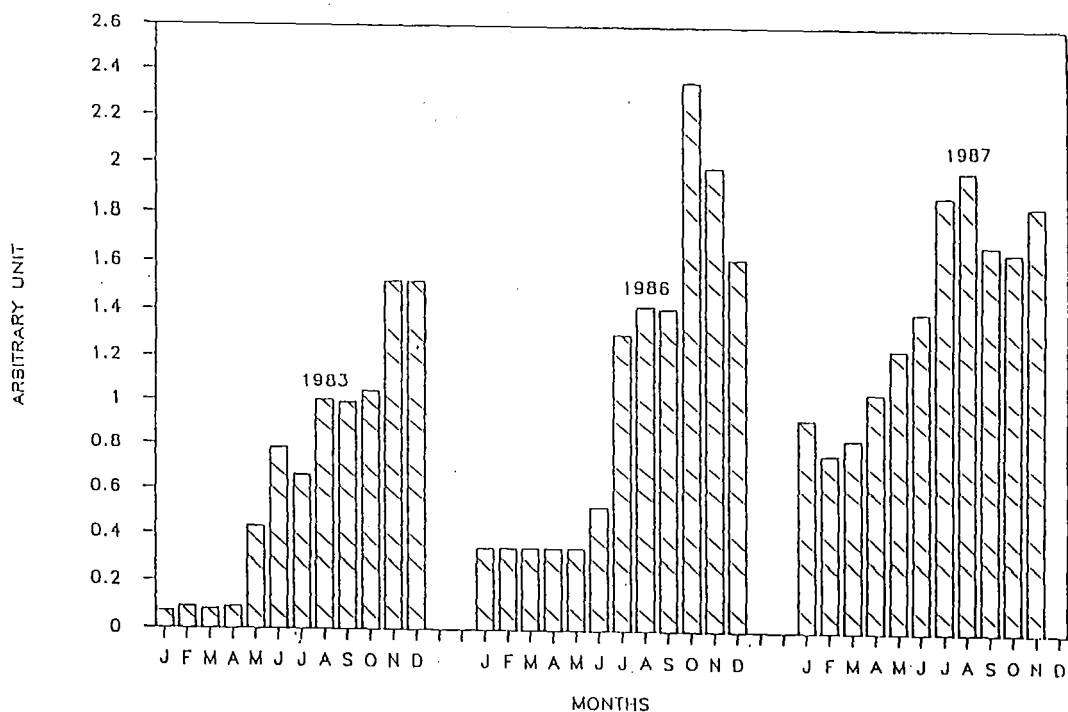


Figure 3. Seasonal variations of soil radon.

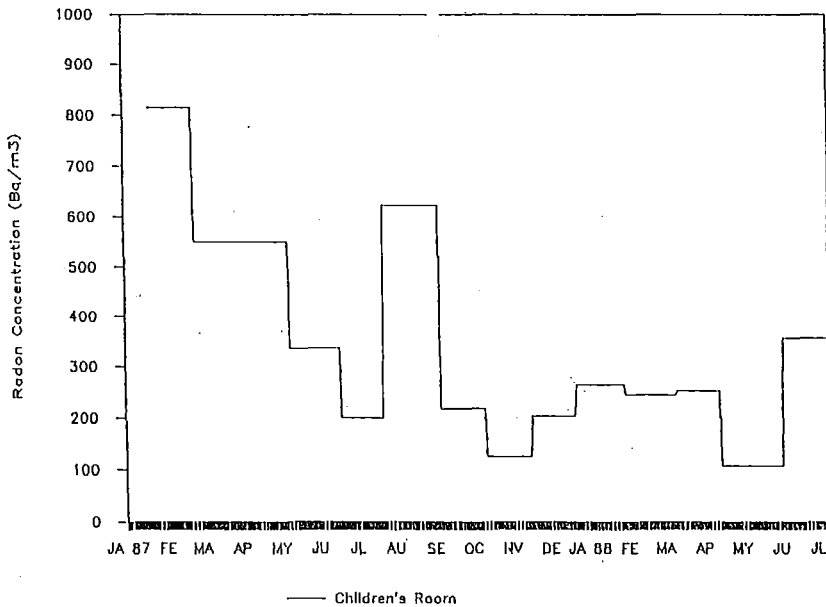


Figure 4. Monthly variation of the radon concentration in the test-house.

contribute of different regional laboratories. The simplicity, the low cost of both the radon sampler and the track counting automation-system have greatly facilitated the use of this technique by different Italian laboratories.

Finally, radon monitoring in a Roman residential home has been made continuously since 1987. Figure 4 shows the monthly variation of indoor radon concentration in the children bedroom of this test house. During the cold weather registered on January 1987 (when Rome was covered by almost one meter of snow) the radon concentration was relatively high. In the holiday period of August 1987, the bedroom was kept closed and the radon concentration increased as a result of a decreased air exchange rate. Since then the radon concentration was never so high because of the exceptional good weather, registered in Rome both in 1988 and 1989.

## SHORT-TERM RADON MEASUREMENTS

### LIMITATIONS OF EXISTING TECHNIQUES FOR SHORT-TERM MEASUREMENTS

Measurements of short-term exposures (from a few days to one week) are particularly useful for screening surveys to identify houses with high radon concentrations and to investigate geographical variations. Unfortunately all the above radon gas samplers are not sufficiently sensitive for short exposure-periods. For these applications the Diffusion Barrier Charcoal Adsorption Collector-DBCA is used. Cohen B.L., (1988) has reported an exercise based on the assumption of the validity of the Poisson statistics in order to compare uncertainties (one standard deviation) between track-detector-type samplers (used for three months exposures with

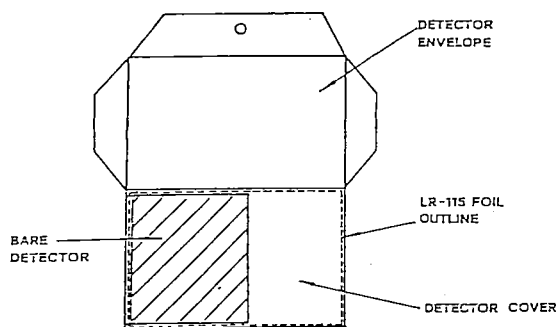
tracks counted under the microscope) and the diffusion barrier charcoal adsorption method - DBCA (one week exposure). This comparison results in the following months)

Bq/m <sup>3</sup>	DBCA (one week)	Microscope (three months)
20	46 %	89 %

These conclusions are misleading since they are based on less than 10 mm<sup>2</sup> of microscope counting area. On the other hand, areas of hundreds of cm<sup>2</sup> can be easily scanned in a fraction of a second using the spark counter (Tommasino L., 1986). Since it was suggested that there was no alternative to the charcoal adsorption technique, this latter technique has been widely used for screening surveys in spite of the following limitations (Ronca-Battista ang Gray D., 1987) :

- Response with undue weight to the final day or two of the exposure;
- Batch to batch variations;
- Response highly dependent on temperature and humidity.

In the following it will be illustrated how simple it is to measure short-term radon exposures in dwellings by using the spark counter for the scanning of large detector-areas of cellulose nitrate foils.



ENVELOPE-TYPE RADON MONITOR

Figure 5. Envelope-type radon gas detector.

## LOWER LEVEL OF DETECTION-LLD

Assuming valid the Poisson statistics, the Lower Level of Detection - LLD can be related to the area of detector counted, S, as in the following (Nelson R.A., 1987) :

$$LLD=4.6\frac{\sqrt{\rho S}}{\Sigma S} \quad (1)$$

Were  $\rho$  is the background track density and  $S$  is the track registration efficiently per unit exposure.

According to equation (1), if the detector area is increased by a factor of one hundred, the LLD decreases by a factor of ten. Since detector areas up to hundreds of cm<sup>2</sup> can be easily counted with the spark replica counter (Tommasino L. et al., 1986), there should be no problem of measuring short-term radon exposures by damage track detectors.

## THE ENVELOPPE-TYPE RADON SAMPLER

To be able to use large detector areas, a radon monitor based on bare cellulose nitrate foils appears the most convenient (Tommasino L., 1988; Oppon et al., 1988). This detector presents a response directly proportional to the radon gas concentration with little dependence on the plate-out and the equilibrium factor (Rannou A. et al., 1986; Miles J.C. et al 1984).

To exploit these attractive characteristics a new radon monitor has been developed using a large cellulose nitrate film (LR-115 Type II with an area of 9 cm x 12 cm) enclosed in an envelope (Tommasino L., 1988; Oppon et al., 1988). When the envelope is closed the LR-115 detector does not register alpha-particle tracks and the radon monitor is in the off-state. To turn it on, the envelope must be opened as shown in Figure 5. Half of the strippable LR-115 foil is protected by a



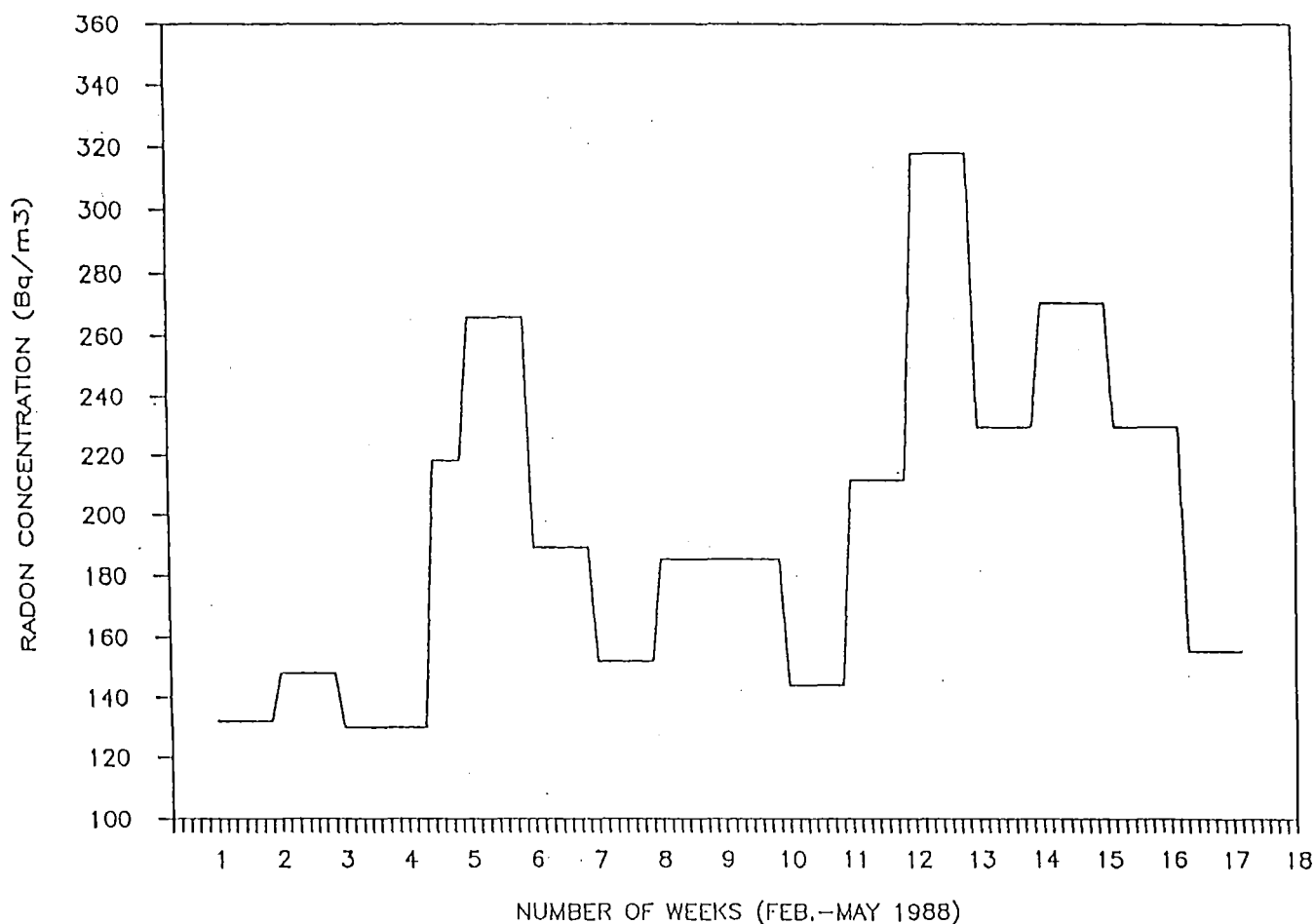


Figure 6. Weekly variation of the radon concentration in the test house.

plastic cover thick enough to stop all alpha particles from radon and its daughters. This part of the LR-115 foil represents the "blank" detector, while the remaining bare part is used for the radon gas measurement. After exposure, the entire detector is etched with 2.5 N NaOH solution at 60° C for 110 minutes. Once etched and washed, the thin cellulose nitrate film is stripped off from the backing and both the "blank" and the bare detector surfaces are counted with a 43 cm<sup>2</sup> electrode at 500 volts after a pre-sparking at 900 volts. This counting procedure takes less than one second and can be repeated up to hundreds of times with a reproductibility better than 2 %.

In spite of the very different etching and counting procedures, the registration efficiency,  $\epsilon$ , has resulted in a value similar to that evaluated by other investigators (Makelainen L., 1984; Segovia H. et al, 1984) and precisely :

$$\epsilon = 2.0 \text{ (Tracks} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{h)} / (\text{Cm}^2 \cdot \text{kBq)}$$

Comparison of the advantages and the disadvantages of the SSNTD and the DBCA methods for indoor radon measurements have been reported (Cohen B.L., 1988) under the assumption of the validity of Poisson statistics.

When similar comparison is made between the DCBA and the spark counted envelope detector, the statistical uncertainties (one standard deviation) of measurements for one week exposure in indoor air result as in the following :

Bq/m <sup>3</sup>	DECA	Spark Counter
18.5	46 %	12 %

Incidentally the small uncertainties predicted on the basis of the Poisson statistics have been confirmed by preliminary empirical data.

To conclude, the envelope-type radon sampler presents the following advantages :

- Possibility of scanning large detector areas in a fraction of second achieving very low detection limits.
- Possibility to turn off and on the detector simply by closing and opening an envelope.
- Simplicity of delivering the detector by mail.
- High sensitivity and accuracy for short term exposures.
- Unique possibility to have a "blank" detector.
- No diffusion time required for the radon to enter the sampler volume.

Figure 6. Shows the weekly variations of the radon concentrations in the bedroom of the roman test house in the spring 1988. Variations greater than a factor of two are measured, which variations can not be monitored with the plastic bag radon sampler.

## CONCLUSION

Passive radon monitoring devices, based on damage track detectors, present attractive characteristics both for long-term and short-term radon measurements.

For long-term exposures, alpha track detectors, enclosed in heat-sealed plastic bags, present unique characteristics of low cost, compactness, response with little dependence on humidity, etc. A large variety of measurements have been gathered to date using these passive radon monitoring devices both for indoor and soil measurements.

For short-term radon measurements, sufficiently high sensitivity can be achieved by large-area bare LR-115 scanned by the spark counter. The unique simplicity and other useful characteristics of this radon monitoring device greatly facilitate the measurements of a few-days radon-exposure in dwellings, which measurements have been so far made using activated charcoal detectors, in spite of their severe shortcoming.

## REFERENCE

- AZIMI-GARAKANI D.**, Flores B., Piermattei S., Susanna A. F., Seidel J.L., Tommasino L., and Torri G. Radon gas sampler for indoor and soil measurements and its applications. *Radiat. Prot. Dos.* 24 : 269, 1988.
- COHEN B.L.** Comparison of nuclear track and diffusion barrier adsorption methods for measurement of Rn-222 Levels in indoor air. *Health Physics* 50 : 828, 1988.
- MAKELAIMEN L.** Calibration of bare LR-115 films for radon. Measurements in dwellings. *Rad. Prot. Dos.* 7 : 195, 1984.
- MILES J.C., STARES E.J., CLIFF K.D., SINNAEVE J.** Results from an international intercomparison of techniques for measuring radon and radon decay products. *Rad. Prot. Dos.* 7 : 169, 1984.
- NELSON R.A.** Measurement uncertainties of long-term Rn-222 averages at environmental levels using alpha track detectors. *Health Physics* 40 : 693, 1987.
- OECD/NEA** Expert report "Metrology and monitoring of radon gas and their daughters

products". OECD/NEA Paris, ISBN 92-64-12767-4, 1985.

**OPPON O.C., AZIMI-GARAKANI D., TOMMASINO L., TORRI G. and AZIZ S.** Radon monitoring for short term exposures in indoor air. Nuclear Tracks and Rad. Meas. 15, 633, 1988.

**RANNOU A. JEANMAIRE L., TYMEN G., MOULEN A., NAOUR E., PARMENTIER N. and RENOUARD H.** Use of cellulose nitrate as radon and radon daughters detectors for indoor measurements. Nuclear Tracks 12 : 747, 1986.

**RONCA-BATTISTA and GRAY D.** The influence of changing exposure conditions on measurements of radon concentrations with the charcoal adsorption technique. Paper presented at the Thirty-second Annual Meeting of the Health Physics Society. Salt Lake City, Utah, USA, July 5-9, 1987.

**SEGOVIA H. and CEJOD J.** Radon measurements in the interior of household dwellings. Nuclear Tracks 8 : 407, 1984.

**TOMMASINO L.** Assessment of natural and man-made alpha emitting radionuclides. Nucl. Tracks and Rad. Meas. 15 : 555, 1988.

**TOMMASINO L. CHEROUATI D. E., Seidel J.L. and Monnin M.** A plastic bag sampler for passive radon monitoring. Nuclear Tracks 12 : 661, 1986.

**TOMMASINO L., CHEROUATI D.E., and RAPONI F.** Improvements in spark replica counter and the breakdown counter. Nuclear Tracks 12 : 275, 1986.

**TORRI G.** The plastic bag radon monitoring and survey results. Paper presented at the International Workshop on Radon Monitoring in Radioprotection, Environmental Monitoring and Earth Sciences, Trieste, Italy, April 4-13, 1989.

**TORRI G., AZIMI-GARAKANI D., OPPON O.C., PIERMATTEI S., SUSANNA A. F., SEIDEL J.L., TOMMASINO L., and ARDANESE L.** Measurements of soil and indoor radon in Italy. Nucl. Tracks and Rad. Meas. 15 : 637, 1988.

# **ANNEXE**

Liste des participants

**ANNEXE : Liste des participants.**

- ALLARD P.** CNRS, Centre des faibles radioactivités CNRS-CEA, 91190 Gif/Yvette, France
- ANDRU J.** Kodak Pathé SA, 93270 Sevran, France
- AUMENTO F.** 3R Pza 5 Gionate 4, 20020 Milan, Italie
- AZZARIA L.** Université de Laval, Département de géologie, Québec Canada G1K, 7P4
- BADDRELINE R.** Service de géologie, Faculté Polytechnique de Mons, rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- BALL T.** British geological survey, Keyworth, Nottingham, No 12 5GG, United Kingdom
- BARILLON R.** Labo de microanalyses nucléaires, Université de Franche-Comte, UFR des Sciences et Techniques, La Bouloie, Route de Cray 16. 25030 Besançon, Cédex, France.
- BEQUET B.** Service des ressources du sous-sol, Place du Parc, 32. 7000 Mons, Belgique
- BERNARD D.** Agence de l'Eau-Artois-Picardie, Boulevard Lamure, 764 BP 818. 59508 Douai, France
- \* **BERRADA M.** Faculté des Sciences Rabat, Laboratoire de physique nucléaire, BP 104, Maroc
- BERTRAND D.** COGEMA/CRPM, BP1, 87640 Razes, France
- BLAVE A.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- BOUKO P.** Cabinet Secrétariat Etat Energie, Rue de l'Industrie, 10. 1040 Bruxelles, Belgique
- BUJOK P.** University of Mining and metallurgy, t. 17, Listopader, 70833 Ostrava Poruba, Tchécoslovaquie.
- CHARLET J.-M.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- CHENNAOUI-AOUDJEHANE H.** UPMC, Labo Magie, T26, 3<sup>ème</sup> étage, 4, Place Jussieu. 75252 Paris, Cédex 05, France
- CIEZKOWSKI W.** Institute of geotechnics, Technical university, Wybrzeze, Wyspianskiego 2750-370 Wroclaw, Pologne
- COHILIS P.** CSTC, Rue d'Arlon 53, BP 10. 1040 Bruxelles, Belgique
- COLMAN T.** British geological survey, Keyworth, Nottingham NG12, 5GR, United Kingdom
- DAVID A.** BRGM/Univ Paris VI, Avenue de Concyr, 45060 Orléans Cédex 2, France
- DEJONGHE L.** Service de géologie de Belgique, Rue Jenner 13. 1040 Bruxelles, Belgique

- DELCOURT-HONOREZ M.** ORB, Avenue Circulaire 3. 1000 Bruxelles, Belgique
- DELMER A.** Avenue Colonel Daumerie, 16. 1160 Bruxelles, Belgique
- DELVILLE A.** Labo CIBE, Chaussée de Waterloo, 764. 1000 Bruxelles, Belgique
- DEZWARTE J.-M.** Rue Louis Guislain, 98. 59310 Nomain, France
- DISNAR J.-R.** CNRS, BRGM SGN/GRF, BP 6009. 45060 Orléans Cédex, France
- DOREMUS P.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- DRUMEL B.** BEIG SPRL, Rue de Beaufay, 17, 7022 Hyon, Belgique
- DUCARME B.** ORB, Avenue Circulaire 3. 1000 Bruxelles, Belgique
- DUENAS M.** Dept of physics, Faculty of Sciences, 29071 Malaga, Espagne
- DUFFY J.** Nuclear energy board, 3, Clonskeagh SQ, Dublin 14, Irlande
- EGGERMONT G.** CEN/SCK, Boëretang, 200. 2400 Mol, Belgique
- FLEMAL J.-M.** IHE, Rue J.Wystman, 14. 1000 Bruxelles, Belgique
- GENICOT J.-L.** CEN/SCK, Boeretang, 200. 2400 Mol, Belgique
- GODFRIAUX I.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- GUERIN F.** BRGM/Univ. Paris VI, Avenue de Concyr, 1. BP 6009 - 45060 Orléans Cédex 2, France
- HALLEZ S.** IHE, Rue J. Wystam 14. 1000 Bruxelles, Belgique
- HEMMERLING H.** Genitron Instruments, Heerstrasse, 149. 6000 Francfort, Allemagne
- HENNEBERT M.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- HORY J.-P.** Kodak Pathé SA, 93270 Sevran, France
- IRAQUI M.-R.** Office chérifien des phosphates, Cerphos, Bld de la Grande Ceinture, Casablanca, Maroc
- JACOTIN R.** Actualité de l'hydrogéologie, Rue F. Mouthon, 168, 91380 Chilly-Mazarin, France
- JAMBON** UPMC, Labo Magie, T26, 3<sup>ème</sup> étage, 4 Place Jussieu. 75252 Paris Cédex 05, France
- KEMSKI J.** Geologisches Institut Bonn, Nussallee, 8. 5300 Bonn, Allemagne
- KLEIN D.** Labo de microanalyses nucléaires, Université de Franche-Comte, UFR des Sciences et Techniques, La Bouloie, Route de Cray 16. 25030 Besançon Cédex, France
- KOTZMANN-**

- KOTZMANN-ROUTIER V.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- KUBOZOE T.** National defense academy, 21, 22 Youkoudai I Chome Isogo-Ku, Yokohama 235, Japon
- LABED V.** Commissariat à l'Energie Atomique, Institut de Protection et de Sûreté Nucléaire, Département de Protection de l'Environnement et des Installations IPSN/DPEI, Bat. 389, 91191 Gif-sur-Yvette, Cédex, France.
- LEBECKA J.** Institut central des mines, Pl Gwarkow, 1, PL - 40 - 951 Katowice, Pologne
- LEBEL A.** Pylon electronic development Company, 147, rue de la Colonne, Ottawa, Ontario KLE7L9, Canada
- LECLERCQ F.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- LIBERT M.** Canberra semi-conductor, Lammerdries, 25, 2430 Olen, Belgique
- MAILLOT H.** EUDIL-USTLFA, 59655 Villeneuve d'Ascq cédex, France
- MAISONNEUVE J.** Université Blaise Pascal, 5, rue Kessler, 63000 Clermont-Ferrand, France
- MARTINELLI G.** Emilia Romagna Region, Viale Sylvania 4/3, 40100 Bologna, Italie
- MEDICI F.** ETH Zurich, Institut für geophysik ETH Höggerberg, 8093 Zurich, Suisse
- MULLER K.** University of mining and metallurgy, tr 17 Listopader, 70833 Ostrava-Pourba, Tchecoslovaquie
- NISHIKAWA T.** Fukui University, Bunkyo, Fukui 910, Japon
- O'CONNOR P.** Geological survey of Ireland, Beggars Bush, Haddington Road, Dublin 4, Irlande
- OKABE S.** Radon Sci. Res. Lab., Wakamatsudaï, 3-10-10 Sakaï, Osaka, Japon
- ORT** ENMOTEC, Biomarckotrabe 80, D - 7400 Tübingem, Allemagne
- PILLER G.** SUER/BAG, Chaussée du Musée, 3. 1700 Fribourg, Switzerland
- POFFIJN A.** Rijksuniversiteit, Fakulteit Geneeskunde, 9000 Gent, Belgique
- POINTET T.** BRGM, Avenue de Concyr, BP 6009, 45060 Orléans Cédex 2, France
- PRIVE A.** Service des ressources du sous-sol, Place du Parc, 7000 Mons, Belgique
- QUESTIAUX D.** Univ. of Oxford, R. Laha 6 Keble road. Oxford OX132J United Kingdom.
- QUINIF Y.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9. 7000 Mons, Belgique
- RANNOU A.** Commissariat à l'Energie atomique, Institut de protection et de sûreté nucléaire Dpt/SPIN/LRPM, BP6, 92265 Fontenay aux roses, France

- REBOUR V.** Centre de géologie de l'ingénieur, Ecole des mines de Paris, 60 Bld St Michel, 75272 Paris Cédex, France
- ROBE M.-C** Commissariat à l'Energie atomique, CEN/Saclay-bâtiment 389 IPSN/DPT/SPIN/LRPM 91191 Gif/Yvette, France
- RORIVE A.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9, 7000 Mons, Belgique
- RYBACH L.** ETH Zurich, ETH-Hoenggeberg, 8093 Zurich, Switzerland
- SAMAIN J.-P.** Ministère Santé Publique et Environnement SPRI, Quartier Vesale, 2/3, 27CAE, 1010 Bruxelles, Belgique
- SCHNEIDERS H.** Geologisches institüt, Universität Bonn, NaBallee, 8 D 5300 Bonn, Allemagne
- SERET M.** Rue Tassenière 55. 6101 Jamioulx, Belgique
- SIEHL A.** Geologisches institüt Bonn, NaBalle, 8 D 5300 Bonn, Allemagne
- SKOWRONEK J.** Inst. Central des Mines, Gwarkow 1, PL - 40 - 951 Katowice, Pologne
- SOLECKI A.** Institute of Geol. Sci, ul. Cybulskiego, 30. 50205 Wroclaw, Pologne
- STAMM R.** Geologisches institüt Bonn, Nussallee, 8. 5300 Bonn, Allemagne
- TOMMASINO L.** ENEA/DISP, Via V. Brancati, 48, 00144 Rome, Italie
- TONDEUR F.** ISIB, Rue Royale 158, 1000 Bruxelles, Belgique
- TOUBEAU G.** Obourg calcaire SA, Carrière du Milieu, 7530 Gaurain-Ramecroix, Belgique
- TOUBEKTSI M.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9, 7000 Mons, Belgique
- TYMEN G.** Faculté des Sciences, Avenue le Gorgeu, 6, 29287 Brest, France
- VANDENBOOM** Institut für geosciences, Allemagne
- VANDYCKE S.** Faculté Polytechnique de Mons, Rue de Houdain 9, 7000 Mons, Belgique
- VANMARCKE H.** SCK CEN Boeretand, 200, 2400 Mol, Belgique
- VAN MIEGROET J.** ONDRAF, Place Madou, 1, Bte 23, 1030 Bruxelles, Belgique
- VARLEY N.** Kingston Polytechnic, Dept of applied physics, Penrhyn road, Kigston - upon - Thomas, Sarrey KT1 2EE, United Kingdom
- WOITH H.** Institut für Geophysik, Olshausenstr. 40, D-2300 Kiel, Allemagne