

Mesure des émissions de radon dans les eaux et les milieux géologiques fagnards, ainsi qu'en divers contextes non-fagnards de comparaison - données analytiques complètes

G. R. I. L. : Groupe Radon Interdisciplinaire Liégeois

COUGNET J., DETHIER G., DIMANCHE F., FRAIPONT A., GARSOU J., GROULARD J.-M., LECLERCQ L., LEGROS Ch., LOHAY E., LOUPPE M.-O., MOUTON R., THEATRE D., VANDERSCHUEREN H.W.

Introduction

Cet article cosigné par toute l'équipe du GRIL constitue la quatrième et dernière contribution d'une série dédiée à la problématique des émissions-radon en contexte fagnard ("Hautes Fagnes" 2002/3, 2002/4 et 2003/1). Les considérations reposent fondamentalement sur le recueil de nombreuses analyses effectuées sur-sites dans les eaux de source et différées en laboratoire pour les précipitats échantillonnés à l'aven de certaines sources dénommées "pouhons", ainsi que pour les roches du contexte géologique. Ces analyses font appel à un système original de mesure illustré par le cliché 1. La procédure et la critique méthodologique ont constitué l'objet de l'article n° 2 de W. VANDERSCHUEREN - F. DIMANCHE (2002). L'intégration des nombreuses données a débouché sur un schéma d'interprétation géochimique proposé par les mêmes auteurs dans l'article n° 3 F. DIMANCHE - W. VANDERSCHUEREN (2003).

La séquence entreprise se clôture à présent par la présentation de l'ensemble des données recueillies, sous la forme d'un répertoire annexé à la suite du texte et d'un tableau de synthèse (fig. 1 A) paramétrisé par l'importance des émissions-radon d'une part et les différents contextes hydrogéologiques d'autre part.

Mode de présentation des résultats sur la figure 1 A

Afin de tenter de sensibiliser le lecteur de la manière la moins aride possible aux résultats numériques des mesures, nous avons choisi de présenter ceux-ci sous la forme d'un tableau compartimenté. En abscisse sont représentées les catégories de matériaux faisant l'objet de l'étude (produits ferrugineux, schistes noirs, eaux), chacune de ces caté-

gories est elle-même subdivisée selon l'origine des produits.

En ordonnée - et selon une échelle logarithmique - sont positionnées (sous forme de chiffres) les

points représentatifs des échantillons repris par ailleurs dans le répertoire annexé.

Cette présentation non conventionnelle nous semble avoir le

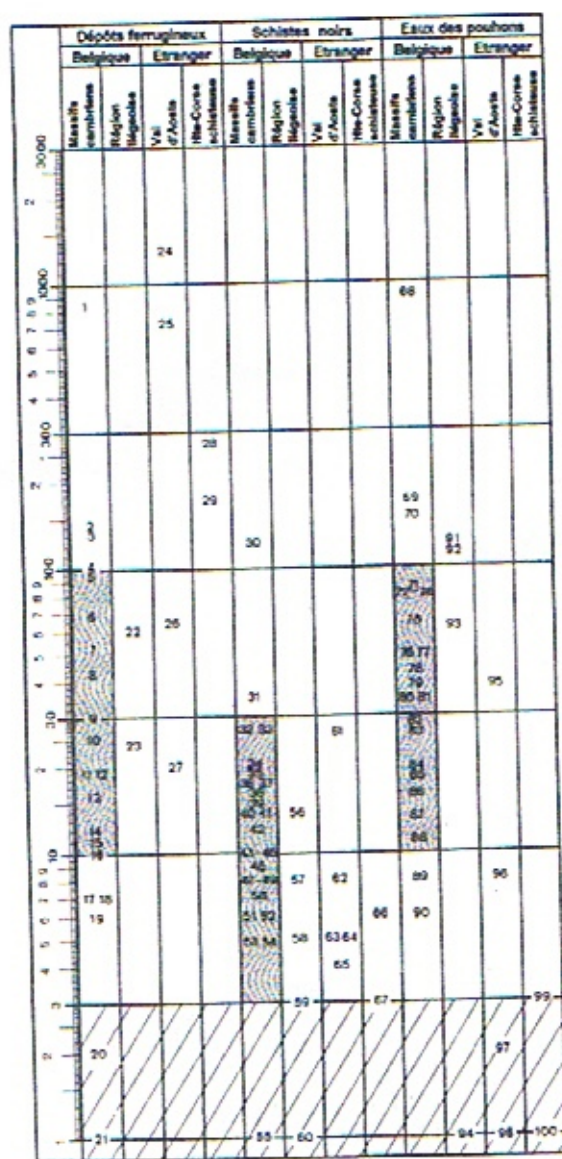


Fig. 1 A - Diagramme de distribution des activités, en fonction des contextes hydrogéologiques. Les valeurs d'activité sont exprimées en Bq/(m³.kg) dans le cas des solides et en Bq/l dans le cas des eaux. Par convention, les valeurs trouvées inférieures à 1 Bq/ (m³.kg) ou 1 Bq/l sont assimilées à 1.

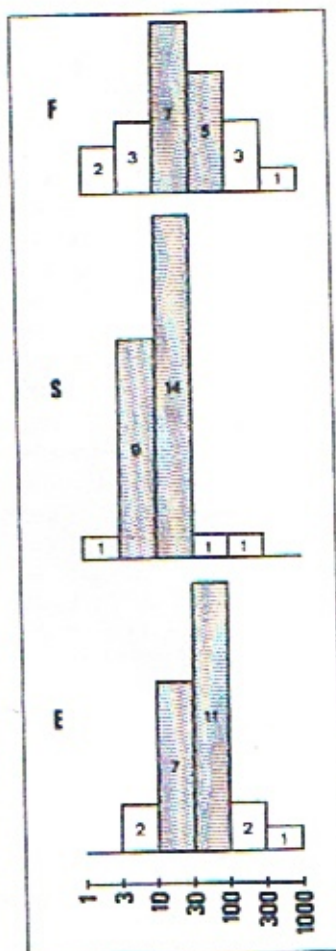


Fig. 1 B - Histogrammes des distributions correspondant aux produits des massifs cambriens :

F dépôts ferrugineux

S schistes noirs

E eaux des "pouhons"

Les limites d'intervalles et conventions sont identiques à celles du tableau de la figure 1 A. Les valeurs dans les cases désignent ici les nombres d'occurrences (la limite inférieure étant incluse dans les occurrences de la case).

mérite d'illustrer clairement la répartition des résultats : les valeurs extrêmes, les valeurs les plus fréquemment trouvées et l'allure générale de la distribution transparaissant au premier regard.

Sur la figure 1 B sont reportés les histogrammes classiques des distributions correspondant aux produits des massifs cambriens. Les intervalles d'occurrences prépondérantes (en grisé) ressortent très nettement et, par contraste, les valeurs correspondant aux "anomalies" sont elles-mêmes en exergue, spécialement dans les deux derniers histogrammes.

Pourquoi une échelle logarithmique ?

On sait que c'est la méthode traditionnellement choisie pour l'illustration en un seul diagramme de valeurs couvrant plusieurs ordres de grandeurs (ici, elles s'échelonnent de 1 à 1300). Mais elle se justifie plus encore dans notre cas par les dispersions importantes qui affectent inévitablement ce type de résultats de mesures. En effet, s'agissant déjà d'échantillons géologiques, donc naturels, il est à priori évident que ces prélèvements effectués en des endroits quelque peu éloignés d'un même dépôt ou massif ou encore, dans le cas des eaux, à des moments différents, peuvent donner des résultats notablement différents. De plus, les conditions environnementales (pression, température, hygrométrie ... notamment) de prélèvement et de mesure interviennent de façon significative (VANDERSCHUEREN W., DIMANCHE F., 2002). Il s'ensuit que le degré de confiance que l'on peut accorder aux valeurs obtenues est essentiellement relatif - les erreurs instrumentales propres intervenant en plus vu la haute qualité de l'appareil utilisé - ce qui est l'apanage de la "réduction" logarithmique des valeurs.

Degré de confiance et limite inférieure de validité

Il est évident que le degré de confiance augmente avec le nombre de mesures effectuées dont on retient la valeur moyenne des résultats.

Une longue pratique de ce type de mesures et des études systématiques de dispersion de mesures et d'échantillons nous autorisent à dire

que si l'on effectue au moins trois mesures avec les précautions expérimentales d'usage (entre autres séchage et tamisage corrects des échantillons dans le cas des produits ferrugineux par exemple, prise d'échantillon au plus près du point d'émergence et sans heurt dans le cas de l'eau ...), on peut raisonnablement estimer que la valeur obtenue est significative à 10 voire 20% près. Quant à la valeur limite inférieure (limitative imputable à l'appareil essentiellement), il nous paraît raisonnable de la fixer (pour un faible taux de répétition des mesures) à quelque 3 Bq/(m³.kg) ou 3 Bq/l, selon les cas, pour conserver le taux de confiance annoncé.

Corollaire sur le mode d'échantillonnage

Il est clair que, pour chaque site d'échantillonnage, il serait idéal de disposer d'un trio d'analyses d'activité-radon : la première sur les schistes-réservoir, la seconde sur les précipitats rouges, la troisième sur l'eau de source. Il est tout aussi clair que cet idéal est rarement rencontré. La source est volontiers inaccessible et de toute façon contaminée par les eaux de surface (cf. Citrin ; 1300 Bq/(m³.kg) pour le précipité ferrugineux, 38 Bq/l seulement pour l'eau de la source); les schistes noirs manquent souvent dans l'environnement immédiat des sources et de plus, volumétriquement parlant, les masses schisteuses sont disproportionnées vis-à-vis

des précipitats (Malmedy : précipité rouge 840 Bq/(m³.kg) ; schistes noirs 30 Bq/(m³.kg)); c'est donc le précipité rouge qui constitue le plus souvent le prélèvement le plus fiable (photos 2 et 3).

Comparaison entre les valeurs rapportées dans la fig. 1A et des valeurs de référence

Les maxima d'activités portés à la figure 1 A pour les précipitats (1300 pour Citrin, 840 pour Arimont) sont sans commune mesure avec les valeurs enregistrées à partir de phases uranifères pures ou de minerais exploités :

29.700 Bq/(m³.kg) pour la métatorbernite $Cu^{2+}(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 8 H_2O$

24.600 Bq/(m³.kg) pour la deliensite $Fe^{2+}(UO_2)_2(SO_4)_2(OH)_2 \cdot 3 H_2O$

49.550 Bq/(m³.kg) pour l'uranothorianite $(U-Th)O_2$

427.150 Bq/(m³.kg) pour le "granite" minier de Margnac (France).

Le cycle géochimique du fer et des métaux radioactifs U-Th

Des recherches complémentaires entreprises en spectrométrie gamma sur le dépôt ferrifère du puits d'Arimont et sur les schistes pyriteux voisins du passage-à-niveau de Malmedy, - ces deux échantillonnages ayant exhibé une richesse certaine en radon, - ont apporté des informations précieuses.

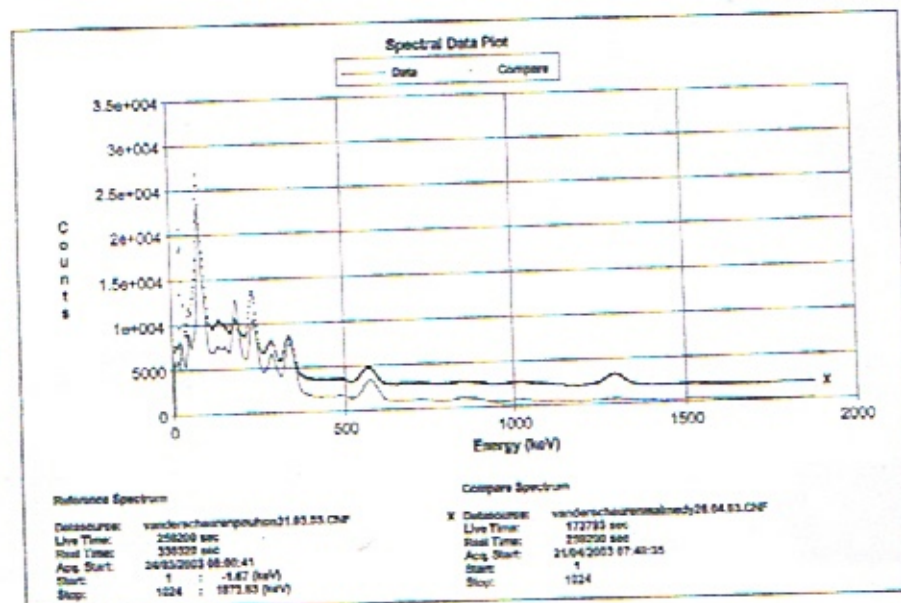
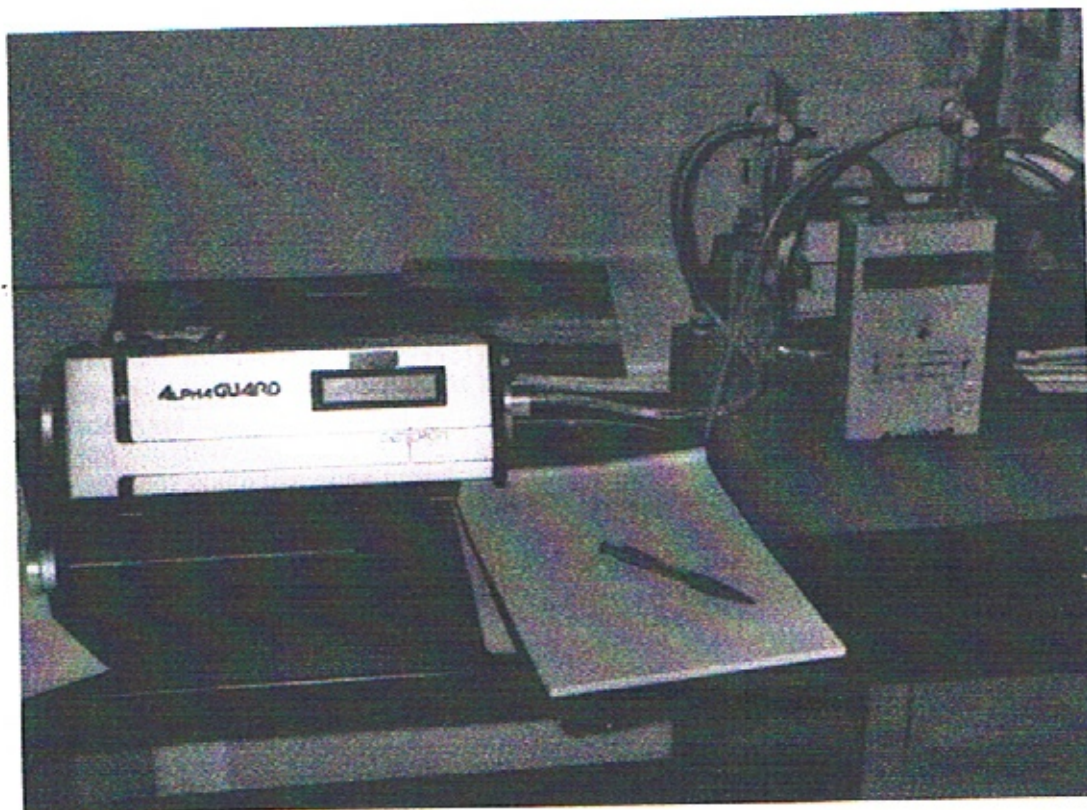


Fig. 2 - spectrométrie-gamma dans l'aire Malmedy-Arimont : comparaison significative entre le spectre du dépôt rouge au puits d'Arimont et le spectre des schistes noirs pyriteux constituant la falaise du passage-à-niveau de Malmedy à l'angle de la route de Préalix.



←

Photo 1 - appareillage de mesure : à gauche, prise de mesure et traitement informatique des données
à droite, avant-plan : la pompe : à droite, arrière-plan : flacons d'échantillonnage.

Photo 3 - le pouhon val-dotain de Citrin : en amont du pouhon (fonte ferruginosa), une tourbière de pente à sphaigne-linaigrette-narthécie s'est installée au-dessus de 2.300 mètres d'altitude.

↓



↑

Photo 2 - les schistes noirs pyritisés au passage à niveau de Malmedy, carrefour de la route de Préalpes.



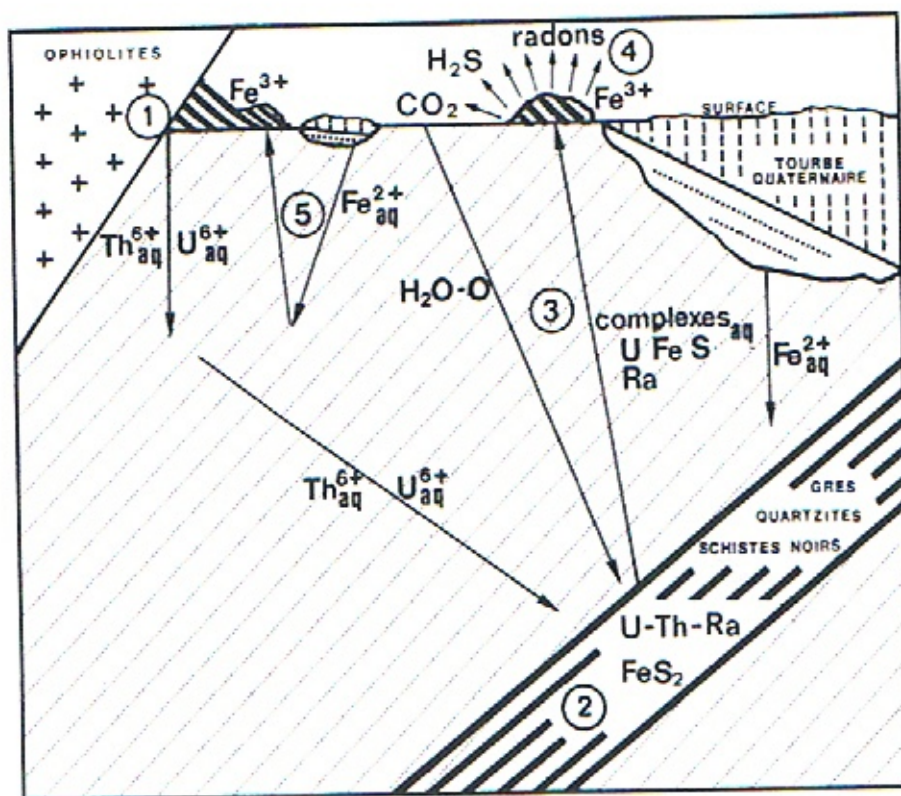


Fig. 3 - illustration graphique du cycle géochimique du fer et des métaux radioactifs en milieu fagnard et soubassement cambrien à schistes noirs (mise-à-jour).

Le précipitat rouge d'Arimont - (840 Bq/(m³.kg) - apparaît relativement pauvre en uranium et en thorium. Par contre, les spectres enregistrés au cyclotron de l'ULg trahissent un enrichissement drastique en composés isotopiques des deux familles : ²²⁶radium, père du gaz rare ²²²radon pour la famille de l'uranium ; ²²⁸radium, père du gaz rare ²²⁰thoron pour la famille du thorium.

Les schistes noirs pyriteux du passage-à-niveau - (ph. 2) 30 Bq/(m³.kg) - présentent un spectre gamma (fig.2) comparable à celui du précipité de surface d'Arimont ; appauvrissement en U-Th et enrichissement en ²²⁶Ra et ²²⁸Ra restant de mise .

Ces nouvelles informations recoupent singulièrement les commentaires prémonitoires de DYCK (1978) lorsqu'il invoquait un glissement des phases radioactives U-Th vers les isotopes du radium et les radon-thoron en conséquence des épisodes de dissolution, transport et redéposition.

Il convient donc de remanier, en les complétant, les informations qui ont servi de base à la représentation graphique du cycle géochimique (DIMANCHE F., VANDERSCHUEREN W., 2003). Il s'impose

de tenir compte de l'épisode diagénétique qui a affecté les schistes noirs marqués spectaculairement par les pyritisations (à ce sujet, voir aussi GERKENS C., 1988) et surtout par les évolutions isotopiques de l'U et du Th, lesquels, produits ramenés en surface, provoqueront les dégagements de radon et de thoron (la figure 3 correspond à l'actualisation de la représentation graphique du cycle).

Conclusions générales

Les résultats des recherches entreprises ont requis la participation de nombreux pourvoyeurs d'échantillons et de données quantitatives effectuées sur sites, (cas de D. THEATRE), ainsi que la mise-en-oeuvre de techniques d'investigation poussées, telles que la spectrométrie gamma (cas d'E. LOHAY) et la métrologie rigoureusement étalonnée des dégagements de radon issus d'objets géologiques aussi divers que l'eau, des précipitats actuels, des tourbes subactuelles (moins de 10.000 ans) et les roches des substrats cambriens (500 millions d'années).

Ces résultats ont permis, en finale, de proposer un modèle ren-

dant compte des mutations chimiques du fer et des métaux radioactifs au cours de leurs phases d'altération, transport, dépôt et remobilisation géologiques.

On peut, en se résumant, identifier les contrôles géologiques suivants :

- un milieu porteur d'une anomalie U-Th primaire ; il peut s'agir de milieu naturel (ophiolite, pegmatites, diagénites) ou d'origine anthropique (rejets miniers, déchets nucléaires) ;
- un soubassement affecté d'une porosité importante, macroscopique (tectonique responsable des circulations aqueuses en grand) et microscopique (assurant les échanges en petit) ;
- un soubassement rocheux porteur de termes fortement réducteurs (argiles, schistes, shales noirs).

On peut enfin recommander aux autorités responsables de l'environnement une vigilance spéciale quant aux milieux géologiques sensibles identifiés ci-dessus. On relèvera, à ce propos, l'intérêt que montrent les autorités de la Région autonome valdotaine dont les hautes vallées jouxtant le Valais suisse constituent un exemple-type de contexte géologique sensible (DIMANCHE F., 2003).

BIBLIOGRAPHIE

- DIMANCHE F. (2003). Les émanations de radon dans les hautes vallées d'Aoste : origine, manifestations, mesures. *Ambiente e territorio in Valle d'Aosta* (à paraître).
- DIMANCHE F., VANDERSCHUEREN W., (2003). Le cycle géochimique des métaux radioactifs en milieu fagnard ardennais. *"Hautes Fagnes" 2003-1*, p. 21-25.
- DYCK W. (1978). The mobility and concentration of U and its decay products in temperate superficial environments in *KIMBERLEY M M ed. Short course in U deposits*, Toronto, Min. Ass. Canada, p. 57-101.
- GERKENS C. (1988). Les "pouhons" du Haut Plateau. *"Hautes Fagnes" 1988-2*, p. 32-36.
- THEATRE D. (2002). Le radon en fagnes (première partie). *"Hautes Fagnes" 2002-3*, p. 73-76.
- VANDERSCHUEREN W.H., DIMANCHE F. (2002). A propos de la métrologie du radon : généralités et cas concrets. *"Hautes Fagnes" 2002-4*, p. 103-110.

Répertoire des valeurs numériques du tableau-diagramme et leur localisation précise.

Les activités sont exprimées en Bq/(m³.kg) pour les solides et en Bq/l pour l'eau.

Dépôts ferrugineux de sources belges

a. Massifs cambriens

	Bq/(m ³ .kg)
1. Arimont (Géromont)-Malmedy :	840
2. Coo (galerie intérieure Centrale hydroélectrique)	140
3. Plateau du Brackkopf	135
4. Pont de Porfays (Soor)	100
5. Coo (même galerie, deuxième émergence)	95
6. Blanchimont (Francorchamps) bas (pont)	68
7. Regné (captage du Wez-des-Pourceaux)	52
8. Bemister	42
9. Hoëgne (Sart)	30
10. Préaix (bas-côté opposé au puits)	25
11. Pouhon Pietkin - Sourbrodt (couche superfic. du ru, orange)	19
12. Ruisseau des Tailles (G'haster)	19
13. Bofagne	16
14. Pouhon Pietkin - Sourbrodt (sous-couche, jaune-vert)	12
15. Gué du Trô Marets (Malmedy)	11
16. Habiomont :	10
17. Préaix (dans ru, bas-côté du puits)	7
18. Bayehon (passerelle bois près du pont du Moulin)	7
19. Blanchimont (Francorchamps) haut	6
20. Trô Marets (Pouhon des Cuves)	2
21. Spoorbach (N de Herzogenhügel)	1

b. Région liégeoise

22. Source de Vaux (Wérisster)	60
23. Source de Bonnelles (Famelette)	24

Dépôts ferrugineux de sources étrangères

a. Val d'Aoste (Italie-France)

24. Source de Citrin - St-Rhémy-en-Bosses	1300
25. Val d'Ayas	725
26. Grand Chamen - Valpelline	62
27. Archébois - col du Mont - Valgrisanche - Tarentaise (F)	20

b. Haute-Corse (région schisteuse Est)

28. Fontaine d'Orezza (Rapaggio, captage et embouteillage)	275
29. Caldane (Fontaine de la Vierge, Fium' Alto)	170

Schistes noirs de Belgique

a. Massifs cambriens

30. Vielsalm - fond galerie d'extraction Fosse-Roulette (embranch. N-S)	120
31. Spa (colline de Loumont)	35
32. Salmchâteau - fond galerie d'extraction falaise "Comtes de Salm"	27
33. Bertrix - ancienne ardoisière, étage -25, prélèvement fond galerie - face pup.4	27
34. Malmedy (pyriteux) voisin. passage à niveau route de Préaix (3 prél.)	20
35. Coo - route de la Centrale hydroélectrique	19
36. Falaise de Longfaye	18
37. Berge de la Roer près du pouhon Pietkin	18
38. Salmchâteau - entrée galerie d'extraction falaise "Comtes de Salm"	17
39. Rive du Bayehon (1 ^{er} passerelle bois, pont du Moulin)	15
40. Vielsalm - même galerie que 30, prélèvement niveau filonét malachite	14
41. Trô Marets, Malmedy	14
42. Targnon-Stoumont	12
43. Bertrix - ancienne ardoisière, étage -25, prélèvement niveau pupitre 2	10
44. Spa (colline de Loumont, 2 ^e échantillon)	10
45. Fauvillers - Bodange, pont sur la Sûre	10
46. Groesbeek	9
47. Hohemark	8

48. Chute du Bayehon (pyriteux)	8
49. Engreux - Houffalize	8
50. Pont de la Roer (parking camp des Russes)	7
51. Warnach - Martelange	6
52. Elsenborn	6
53. Odeigne	5
54. Remouchamps (Haie des Gades)	5
55. Bertrix - ancienne ardoisière, étage -25, prélèvements divers endroits	1

b. Région liégeoise

56. Vaux (Wérisster), proximité source ferrugineuse	14
57. Wérisster - terriil, échantillon houille	8
58. Wérisster - terriil, échantillon schiste	5
59. Blégny - terriil, échantillons divers schiste	3
60. Blégny - mine, échantillon houille	1

Schistes noirs étrangers

a. Val d'Aoste

61. Archébois - Tarentaise	26
62. Champillon - Valpelline	8
63. Citrin - St-Rhémy-en-Bosses	5
64. Daillan-Pieplan	5
65. Archébois - pointe de l'Archébois, frontière I-F	4

b. Haute-Corse (région schisteuse Est)

66. Folelli, falaise « rafraichie » pour alignement route	6
67. Route d'Orezza	3

Eaux de sources belges

a. Massifs cambriens

	Bq/l
68. Arimont, émergence effective (à côté du pouhon)	390
69. Pouhon Pietkin - Sourbrodt	170
70. Arimont, pouhon	150
71. Source de Blanchimont (Francorchamps) bas	85
72. Forage Herzogenhügel	80
73. Pouhons de Ménil (4 et 6)	80
74. Pouhon Préaix (puits-citerne)	80
75. Source du Spoorbach	64
76. Pouhon de Barisart	48
77. Pouhon du Ruy	48
78. Pouhon Delcor (Spa)	43
79. Pouhon du Tonnelet (Spa)	38
80. Pouhon de Bemister (captage)	33
81. Source de Groesbeek (Spa)	33
82. Source de la Sauvenière (Spa)	29
83. Pouhon Pia (Spa)	27
84. Pouhon du Bayehon (passerelle bois, près pont du Moulin)	19
85. Pouhon du gué du Trô Marets (Malmedy)	18
86. Fontaine de Blanchimont (Francorchamps) haut	16
87. Pouhon de Harzé (Ste-Anne)	13
88. Pouhon de Fays (Manhay)	11
89. Pouhon de Harzé	8
90. Pouhon des Cuves (Trô Marets, Malmedy)	6

b. Région liégeoise

91. Source de Piétrou - Visé (ancien captage condamné)	120
92. Source de Seraing, route de Plainevaux	110
93. Source de Bonnelles (Famelette)	60
94. Source de Vaux (Wérisster)	1

Eaux de sources étrangères

a. Val d'Aoste

95. Source de Citrin	38
96. Val d'Ayas	8
97. Grand Chamen - Bionaz	2
98. Champillon - Allein - Saron	1

b. Haute-Corse (région schisteuse Est)

99. Fontaine d'Orezza (Rapaggio, captage et embouteillage)	3
100. Caldane (Fontaine de la Vierge, Fium' Alto)	1