

Uranium et radon en Pays de Salm



Par H.W. Vanderschueren*, E. Goemaere** et P.-Y. Declercq**

* Prof. émérite, Institut d'électricité Montefiore, Université de Liège, Sart Tilman, Liège.
E-Mail : hw.vanderschueren@skynet.be

** Service géologique de Belgique, 13, Rue Jenner à 1000 Bruxelles ;
E-Mail : eric.goemaere@naturalsciences.be; pierre-yves.declercq@naturalsciences.be

L'uranium à l'origine du radon

Le radon est un gaz radioactif, inodore, incolore et d'origine naturelle. Il est présent dans tous les sols et toutes les roches, ainsi que dans la plupart des matériaux de construction, en des concentrations très variables. Le rayonnement émis par le radon permet sa détection en faibles traces. L'état gazeux du radon lui permet de diffuser dans les roches, les sols, mais aussi dans l'air et dans l'eau. C'est ce qui pose problème quand, provenant du sous-sol, il migre dans les habitations où il se concentre par confinement, augmentant la dose de radiation et donc le risque pour la santé des habitants. Lors de la respiration, les descendants solides et radioactifs du radon se déposent et se fixent dans les bronches ou les poumons où ils vont se désintégrer et irradier. Cet aspect du radon a particulièrement intéressé les médias ainsi que les habitants concernés (Charlet, 1992). Le propos de cet article est d'éclairer le lecteur sur le radon lié à la géologie du sous-sol de la région salmienne ainsi que sur les relations entre le radon et les exploitations souterraines.

Les atomes de certains éléments naturels tels que l'uranium, le thorium, le radium et le radon se désintègrent naturellement au cours du temps en donnant naissance à d'autres atomes, eux-mêmes radioactifs. Il y a 3 familles radioactives au départ de 3 ascendants : les deux isotopes de l'uranium (U238

et U235) et le thorium (Th232). Chacun produit par désintégration (transformation du noyau d'un atome) en cascade et à un moment donné au cours d'une filiation complexe, un isotope spécifique du radon. Le père direct (ascendant) du radon (Rn222) est le radium (Ra226), lui-même issu de U238. Les isotopes du radon se désintègrent à leur tour en d'autres éléments chimiques appelés descendants (ou produits de filiation). Le descendant final (donc stable) de l'uranium 238 est le plomb 206, dit radiogénique. Entre les deux, la désintégration passe par 13 autres éléments radioactifs, chacun caractérisé par sa propre demi-vie. L'intensité de la radioactivité est inversement proportionnelle au temps de demi-vie. Le radon a une demi-vie relativement courte (3,8j), il émet un rayonnement nucléaire intense, cause principale de l'intérêt qu'on lui porte.

Un isotope spécifique du radon (Rn220) est produit au cours des désintégrations successives du thorium (Th232) et est appelé « thoron ». Sa demi-vie est très courte, soit 55,6 secondes. Au bout de 7 minutes, la presque totalité du thoron s'est désintégrée en d'autres éléments. Le « thoron » constitue donc un danger bien moindre que le radon issu de la désintégration de l'uranium (Rn222).

L'unité de mesure de l'activité radioactive du radon se mesure en becquerels (Bq). Un becquerel est égal à une désintégration par seconde. La désintégration s'accompagne de radioactivité (émission de particules et de rayonnement) qui constitue un danger pour l'homme, -au moins à dose appréciable- car il peut provoquer de graves perturbations. Cette propriété est exploitée -sous contrôle stricte - dans certains traitements contre le cancer.

La durée nécessaire, pour que la moitié des atomes d'un élément radioactif disparaisse par désintégration, s'appelle la **demi-vie** ou **période** de l'élément considéré. Les temps de demi-vie sont très différents en fonction de l'élément. Si l'isotope 238 (le plus abondant) de l'uranium a une demi-vie de 4,5 milliards d'années, l'isotope 222 (le plus abondant) du radon qui en est issu a une demi-vie de 3,8 jours. Cette propriété est répétitive et au bout de 7 x la durée de demi-vie, plus de 99 % des atomes de départ se sont désintégrés. Si on place une source de radium (environ 1600 ans de demi-vie) dans un espace clos comme une cavité souterraine, le radium va produire du radon à un rythme constant. La cavité va s'enrichir progressivement en radon. Mais cet enrichissement ne se poursuit pas sans fin, car le radon se désintègre à son tour, au fur et à mesure de sa production, selon son propre rythme. La situation tendra donc vers un équilibre appelé « équilibre séculaire », que l'on approchera (à moins de 1 % près) au bout de 7 x la demi-vie du radon, soit un mois environ. C'est sur ce comportement que reposeront toutes les mesures d'exhalation du radon par des échantillons solides.

A l'heure actuelle, il n'existe aucune norme obligatoire en matière de radon, ni en Belgique ni au niveau de l'Union Européenne. Cette dernière recommande toutefois d'agir pour des concentrations dépassant dans l'air 400 Bq/m³ pour les maisons existantes, et 200 Bq/m³ pour les nouvelles habitations. Cette recommandation a d'ailleurs été adoptée par la Belgique. En revanche aux USA et au Luxembourg, la norme à ne pas dépasser est fixée à 150 Bq/m³. Le Royaume-Uni applique une norme de 200 Bq/m³ pour toutes les maisons.

La production et la mobilité du radon

La quantité de radon s'échappant d'une roche par rapport à la quantité totale de radon produit par cette roche est le taux d'émanation de la roche. Ce taux d'émanation dépend de la structure intime de la roche. Plus la roche est compacte, moins le radon s'en échappe. Le coefficient de diffusion du radon est très faible dans les matériaux cristallins. Seuls les atomes de radon libérés dans les pores, intergrains ou fractures de la roche sont susceptibles de migrer. 10 à 50 % du radon produit parviennent à circuler dans les interstices de la roche. Le transfert du radon est optimal dans les roches grossières, fissurées et humides (Collignan et al., 2007).

Le radon a une plus grande mobilité que l'uranium ou le radium, ces derniers étant fixés dans la matière solide de la roche. Par sa courte durée de vie, la quantité de radon s'échappant dans l'atmosphère dépend de la profondeur de formation et de l'efficacité du transport à travers le milieu rocheux. Les schistes et les phyllades compacts n'ayant pas de pores interconnectés, ils ont une mauvaise aptitude à transporter le radon, tant dans l'eau que dans l'air. Les fractures naturelles ou engendrées par décompaction des roches lors d'une exploitation souterraine permettent la circulation du radon. Lors de travaux miniers, la circulation d'air dans les galeries souterraines permet de collecter et de transporter rapidement le radon.

Lorsque le radon rejoint les pores et les fractures de la roche, deux situations se présentent : la **zone aérée** et la **zone noyée**. La zone aérée se trouve au-dessus du niveau de la nappe d'eau souterraine. Le radon s'y déplace avec l'air souterrain ou se dissout dans l'eau d'infiltration. Dans le premier cas, le radon rejoint la surface, s'infiltre entre des roches imperméables au gaz ou s'accumule dans des espaces vides comme les cavités souterraines ou les caves des habitations. Le radon à l'air libre se dilue immédiatement dans l'atmosphère ne présentant pas de danger particulier pour l'homme. Dans le second cas, le radon se

dissout dans les eaux de la nappe aquifère. Si l'eau souterraine se déplace lentement, le radon reste confiné dans la nappe d'eau. Si l'eau se déplace rapidement, le radon est apporté par le courant et est émis dans l'air à l'émergence (Charlet, 1991).

La migration du radon se réalise aussi par le dégazage naturel de la terre (volcanisme, sources thermales,

failles et zones fortement sismiques) où la circulation des gaz entraîne le radon (Collignan et al., 2007). Les fissures, les fractures et les joints ouverts, sans remplissage argileux facilitent le déplacement du radon.

La concentration en radon varie fortement d'une région à l'autre en fonction de la nature géologique

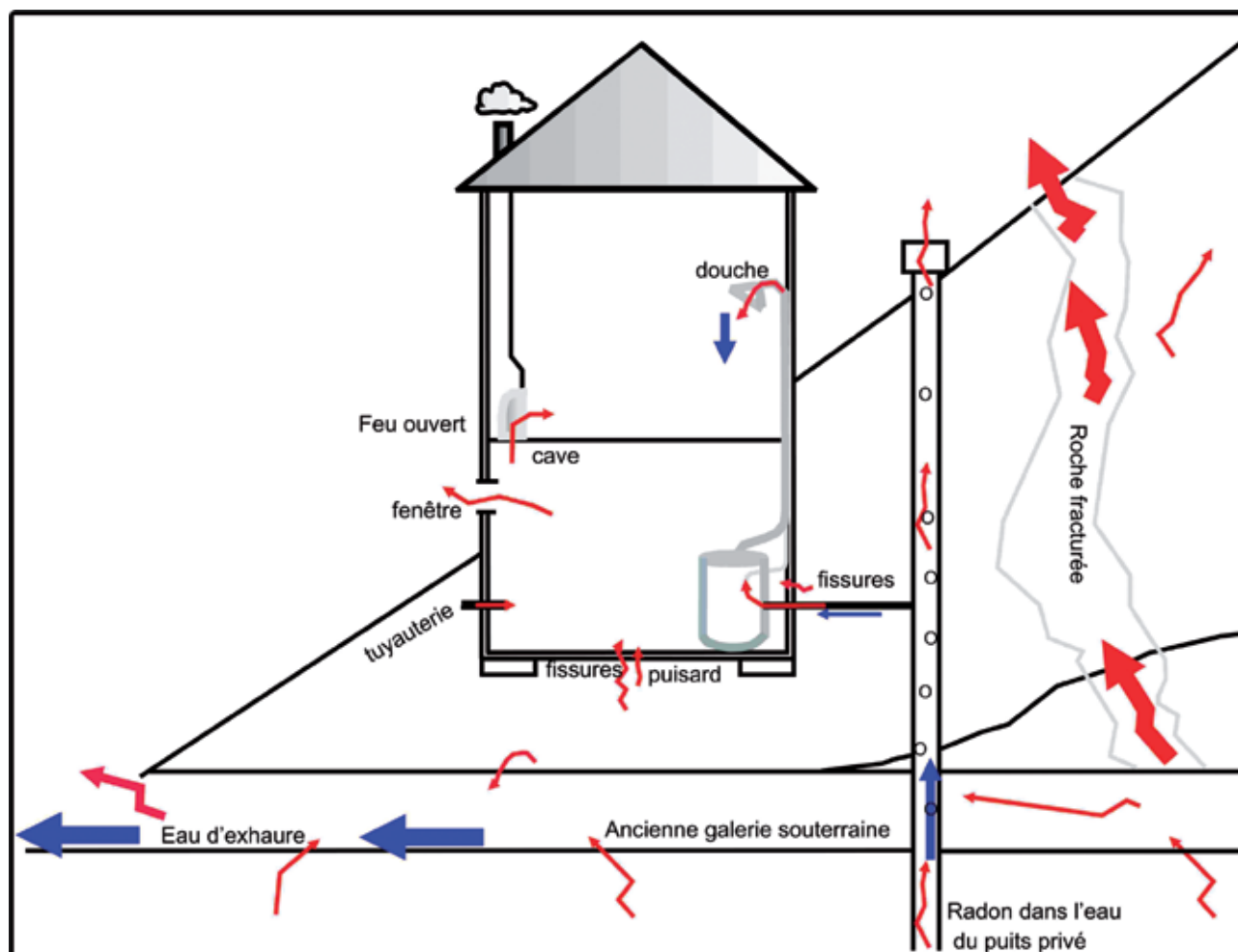


Figure 1 : Circulation du radon vers les galeries souterraines et les habitations (figure inspirée du site Web de Ressources Naturelles Canada – « Le radon : Gare aux sous-sols mal aérés »)

du sous-sol, mais aussi du type de construction et d'isolation des maisons, des habitudes d'aération, etc. En général plus élevée le matin et en hiver, elle varie en fonction des conditions météorologiques et hygrométriques. Elle sera plus élevée lors des basses pressions (dépression atmosphérique) ou d'un phénomène d'inversion de température.

Un sol gelé empêche les émissions de radon par le sol. Il peut alors se déplacer latéralement vers les caves et les galeries souterraines ou s'accumuler sur place. Lors du dégel du sol, les émanations du radon sont alors plus élevées que la normale. L'ensemble de ces remarques influe sur les méthodes de mesure du radon à mettre en œuvre. La cartographie à l'échelle nationale ou régionale passe obligatoirement par des mesures « intégrales » ou « moyennes » portant sur plusieurs mois. La métrologie du radon (type d'appareillage, limites des mesures, conditionnement des échantillons, etc) est décrite par Vanderschueren (2008 ; trois paragraphes sont consacrés aux mesures du radon dans les roches, dans l'air et dans l'eau.

Géologie et radon

Les grandes zones naturelles de la Belgique sont liées à la nature du sous-sol et à son histoire géologique complexe. La quantité de radon potentiellement présente varie selon les régions naturelles de Belgique. Une roche plus fracturée et plus riche en uranium en un lieu précis implique une émission plus importante de radon qu'à un endroit où les roches sont imperméables et pauvres en uranium. L'uranium est présent dans les roches, en faibles proportions ne dépassant pas quelques ppm. Un ppm (= 1 part par million) équivaut à un gramme par tonne. Les concentrations les plus élevées se retrouvent dans les sédiments riches en argiles et dans les roches composées de matières organiques associées à des conditions anoxiques, c'est à dire sans oxygène. Les valeurs les plus basses sont mesurées dans les roches inorganiques les plus grossières.

De nombreuses zones uranifères émettant du radon ont été étudiées en Wallonie. Elles ont été repérées tant dans des horizons géologiques à grande extension géographique que dans des zones très limitées dans l'espace. Ces sites sont connus et font l'objet, pour la majorité, d'études spécifiques.

Les grès, les quartzites, les quartzophyllades et les phyllades composent la majorité des terrains ardennais. Ces roches contiennent de l'uranium et plus particulièrement les phyllades noirs dont la couleur indique la présence de matière organique finement dispersée.

Dans le Massif de Stavelot, les terrains du Revinien supérieur (phyllades et quartzophyllades noirs du Rv5, Formation de la Gleize, Groupe de Revin, Cambrien supérieur), du Salmien (Groupe de la Salm, Ordovicien inférieur et moyen, Paléozoïque inférieur) sont dominés par les roches fines, phyllades et quartzophyllades formant une « ceinture » au massif (cf. carte géologique du Massif de Stavelot reproduite dans un chapitre antérieur). Ils représentent les terrains à aléa radon.

Les flux du radon peuvent varier fortement d'une zone à l'autre, qu'elles soient distantes de quelques mètres ou de plusieurs kilomètres. Les variations locales sont de plus grande amplitude que les valeurs régionales.

Mélangé à l'air, le radon se déplace à l'état gazeux, à travers les réseaux de fractures, comme par exemple dans les zones déconsolidées et peut soit s'accumuler dans les chambres et galeries ou s'évacuer vers l'extérieur par des courants d'air dans le réseau souterrain. Les anciennes ardoisières et exploitations souterraines de coticule sont des endroits privilégiés tant pour la production, la circulation que pour l'accumulation de radon. Les concentrations les plus élevées sont observées lorsque les puits sont obturés et que toute circulation de l'air est réduite ou nulle comme les fonds des galeries ou les chambres les plus profondes. On peut donc s'attendre à enregistrer des fortes teneurs en radon au débouché d'une

fracture, à l'aplomb d'un puits ouvert, au fond d'une galerie ou à la sortie des eaux d'exhaure. Les plus fortes concentrations en radon sont donc le résultat de configurations particulières (figure 1).

De 1955 à 1962, une prospection radiométrique préliminaire avec un scintillomètre portable a été réalisée par le Service géologique de Belgique. En 1958, en collaboration avec le Centre d'Etude Nucléaire de Mol, une prospection inédite plus détaillée du triangle Vielsalm-Salmchâteau-Ottre a permis de déceler une anomalie radioactive, valant 4 à 5 fois la moyenne régionale, dans les phyllades noirs de la Formation de La Gleize (ancien Revinien 5, Cambrien terminal) bordant le Massif de Stavelot. Ce niveau a été étudié par Charlet et al. (1977) au cours d'une reconnaissance le long de la route Vielsalm-Grand Halleux. Les analyses effectuées sur un phyllade noir revinien par spectrométrie gamma indiquent des valeurs relativement élevées en uranium de l'ordre de 20 ppm (= 20 grammes par tonne) et un rapport Th/U faible (environ 0,4). Un quartzite revinien donnait une teneur en uranium nettement plus faible de 3 ppm.

De 1979 à 1981, la Faculté Polytechnique de Mons (Prof. Charlet), sur l'initiative du Service géologique de Belgique, a organisé une prospection autoportée (détecteur de radioactivité installé sur un véhicule tout-terrain) en Moyenne et Haute-Belgique pour reconnaître les ressources uranifères de notre territoire. Les valeurs moyennes en U, Th et K pour l'ensemble du Paléozoïque inférieur donnent les valeurs suivantes : 5,10 ppm, 10,47 ppm et 2,80 %. Les déviations standards respectives sont 3,61, 3,04 et 0,86. Le rapport Th/U est généralement supérieur à 1 à l'exception de roches anormalement riches en U. Si le Salmien est, en moyenne, plus riche en U et en Th que le Revinien, il faut prendre en compte les anomalies locales. Des cartes donnant la répartition de l'uranium et de la radioactivité totale ont ainsi été dressées et confirment les anomalies le long de la limite Revinien-Salmien.

En 1989, au sein de l'Observatoire de la Santé de Marloie, un Centre Radon a été créé en Province du Luxembourg. Entre 1990 et 1996, quatre campagnes de mesures de radon dans des habitations, des écoles et des bâtiments publics ont été réalisées. Dans les habitations à fortes teneurs en radon, des mesures de remédiation ont été mises en place (ventilation naturelle ou forcée) afin de ramener ces niveaux dans des limites acceptables (Kuske et al., 2001). Une nouvelle campagne de mesures a été initiée en 2007.

La radiométrie naturelle mesurée par campagne aéroportée

En 1994 et 1995, les services géologiques de Belgique et du Grand-Duché de Luxembourg ont mené une campagne aéroportée de mesures de la radiométrie naturelle émise par les isotopes radioactifs de l'uranium (U), du thorium (Th) et du potassium (K). Les radioéléments les plus fréquents dans les roches terrestres sont l'isotope 238 de l'uranium (U238), l'isotope 232 du thorium (Th232), et surtout l'isotope 40 du potassium (K40). Outre ces isotopes radioactifs naturels encore relativement abondants, il existe dans la nature des isotopes radioactifs en abondances beaucoup plus faibles comme le C14. Il s'agit notamment des éléments instables produits lors de la suite de désintégrations des isotopes mentionnés, par exemple de divers isotopes du radium et du radon.

La concentration de ceux-ci est aisément mesurable grâce à la radioactivité. Les émissions sont de trois types :

- • • 1. L'émission α , constituée d'un noyau d'hélium, et encore appelée particule α , est très énergétique et destructive, mais très peu pénétrante (quelques μm dans les solides, quelque 4 cm dans l'air) ;

- • • 2. L'émission β , dont le constituant est un électron ;
- • • 3. Le rayonnement γ , de nature électromagnétique et très pénétrant (photons de haute énergie).

La technique de télédétection géophysique utilisée permet de recueillir des renseignements sur la distribution des éléments radioactifs naturels interprétables en géologie de surface.

La radioactivité naturelle la plus simple à mesurer est la radioactivité gamma. Lors de cette campagne de mesures, le pays a été parcouru en avion suivant des lignes N-S espacées d'un kilomètre avec une prise de mesure chaque seconde, soit environ tous les 70 m. Les données brutes ont ensuite été traitées en les corrigeant de divers facteurs affectant l'émission radioactive effective du sol. Ces corrections tiennent compte de l'atténuation des rayonnements gamma en fonction de l'altitude ainsi que de la présence de radon atmosphérique qui peut intervenir jusqu'à 50 % dans les grandeurs mesurées. Pour chaque acquisition, la localisation exacte et les valeurs en U, Th et K sont calculées. Les résultats sont ensuite importés dans un système d'information géographique (SIG) afin d'obtenir un rendu spatial visuellement interprétable et surtout superposable à diverses sources d'informations cartographiques. Afin d'obtenir une continuité entre les lignes de vols, les valeurs en U, Th et K ont été interpolées par la méthode statistique dite de krigeage. Le traitement mathématique des données prend en compte la distance entre les mesures et leur variabilité spatiale.

Les données radiométriques concernant le sud du Massif de Stavelot ont été comparées dans le SIG à la carte géologique dressée par Geukens (1999), afin de vérifier s'il existe une relation entre les roches rencontrées et la mesure radiométrique aéroportée.

Le croisement des différentes sources de données a permis de mettre en évidence une relation directe entre certaines couches géologiques (à l'échelle de la formation géologique) et les teneurs extrêmes en U, Th et K. Les figures 2 et 3 permettent de visualiser cette relation.

Cartographie de l'uranium (figure 2)

La partie sud du Massif de Stavelot se singularise par plusieurs zones « riches » en uranium et dessinant des corps allongés que l'on peut aisément superposer à la géologie. Si les Groupes de Revin et de la Salm sont difficiles à séparer du point de vue radiométrique, on observe cependant que les zones les plus riches en uranium se situent au sommet du Revinien et dans la partie inférieure du Salmien, soit le Revinien 5 et le Salmien 1. Cette superposition confirme les études ponctuelles menées sur le terrain concernant le comportement du radon et donc de l'uranium avec la géologie.

De l'observation de la carte, trois zones se distinguent particulièrement pour leurs teneurs élevées en U :

- • • Zone assez large et intense de Vielsalm ville à Petit-Thier ;
- • • De Vauchavanne à Arbrefontaine, en passant par Bra et Odimont ;
- • • Une zone plus faible de Regné à Otré et qui s'estompe vers Salmchâteau.

Par ailleurs, les sites d'exploitations d'ardoise et de coticule se situent dans des valeurs moyennes en U. On remarquera que la source la plus riche en radon coïncide avec la zone d'anomalie maximale. Il s'agit du Thier de Justice qui se situe dans l'axe de drainage par écoulement des eaux des terrains les plus uranifères.

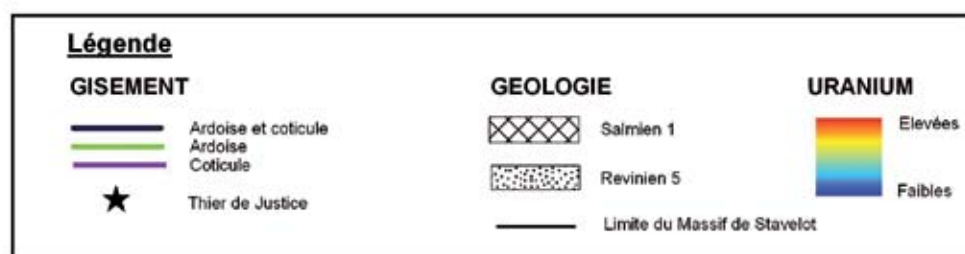
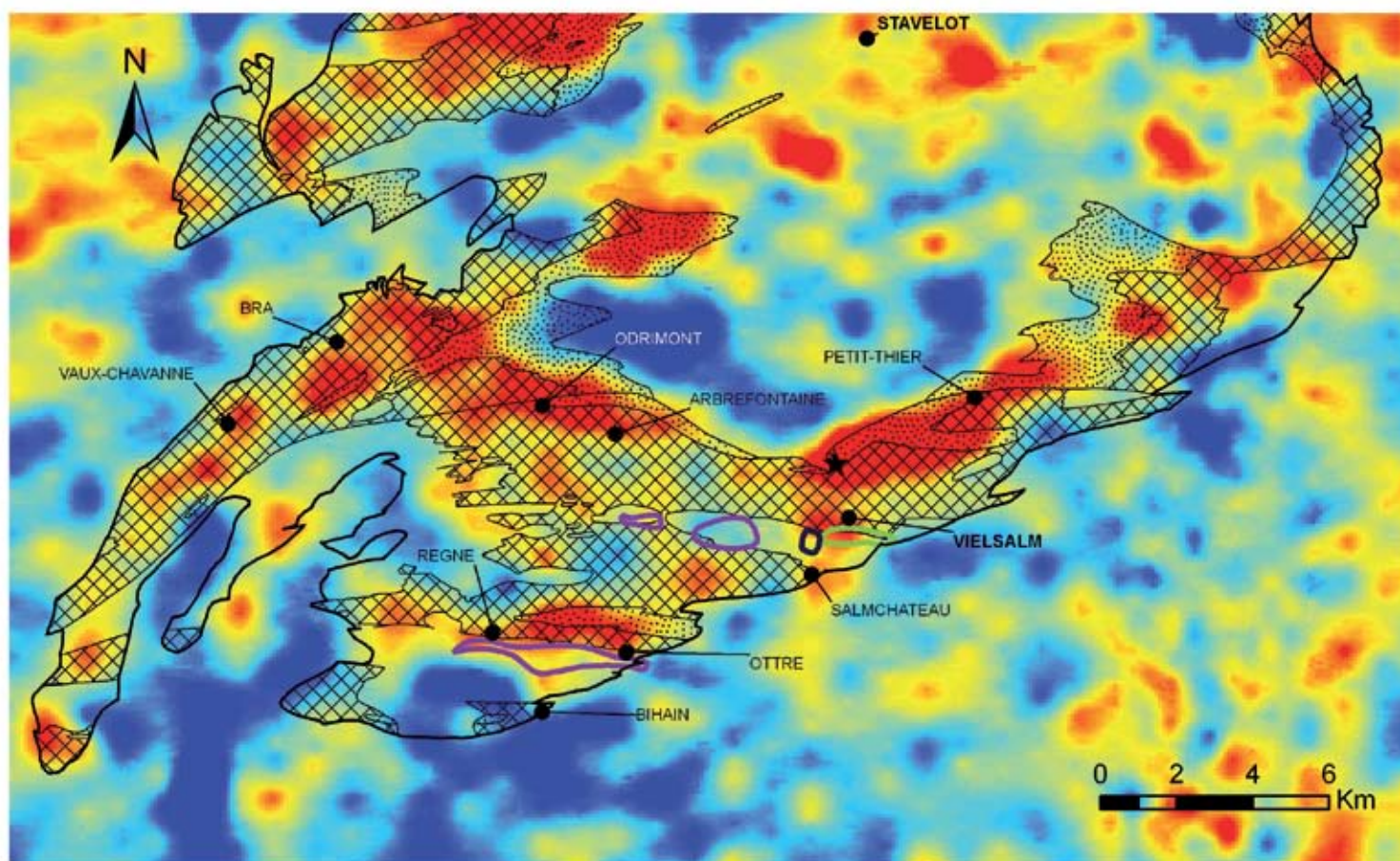


Figure 2 : Radiométrie naturelle mesurée par campagne aéroportée : cartographie de l'uranium

Cartographie du potassium (K) et du thorium (Th) (figure 3)

Le K et le Th présentent une distribution géographique similaire, indiquant un comportement semblable. Seul le thorium est illustré (figure 3). La figure met en évidence les terrains appartenant au Groupe de la Salm, plus riches en potassium et en thorium. L'extension géographique de la zone la plus riche équivaut approximativement à la partie sud du massif soit de Bra à Petit-Thier, au nord, et de Bihain à Regné, au sud. Plus précisément, ce sont les phyllades du

Salmien 1 et du Salmien 2 qui sont particulièrement bien mis en évidence. Ces deux formations sont principalement composées de quartzophyllades avec quelques intercalaires de schistes noirs, riches en matière organique. K et Th marquent donc les roches composées de minéraux argileux. Les quartzophyllades sont des roches contenant des minéraux argileux (micas muscovite et séricite) dont le K entre dans la composition des micas blancs. Par ailleurs, le Th est quant à lui associé à la matière organique présente en abondance dans les schistes noirs du Salmien 1 et 2.

Le K entre aussi dans la composition des feldspaths potassiques, qui devraient être plus abondants dans les roches les plus grossières (grès et quartzites), souvent accompagnées de paillettes de micas. On n'observe cependant pas ce type de relation permettant d'en déduire que les séries observées dans le Massif de Stavelot ont des faibles teneurs en feldspath potassique. Dans les roches sédimentaires, le Th se trouve habituellement associé à des minéraux très résistants chimiquement et physiquement comme le zircon et la monazite. Après libération, le Th sera adsorbé par les minéraux argileux, constituants principaux des schistes et des phyllades. Les schistes normaux peuvent avoir des valeurs en thorium de l'ordre de 10 à 13 mg/kg. Les valeurs moyennes en uranium pour des schistes « standards » sont de l'ordre de 3,7mg/kg, soit 3 à 4 fois moins que les teneurs équivalentes en thorium (De Vos & Tarvainen, 2006). Les schistes noirs peuvent avoir des valeurs élevées en thorium, mais jamais aussi élevées que le contenu en U, à cause de la plus grande affinité de l'U pour les matières organiques et la plus grande mobilité de l'ion uranyle en solution. Ce sont donc ces schistes noirs qu'il convient de pister pour leur potentiel en uranium.

Les exploitations d'ardoise et de coticule se situent toutes dans la zone à teneur élevée en K et en Th.

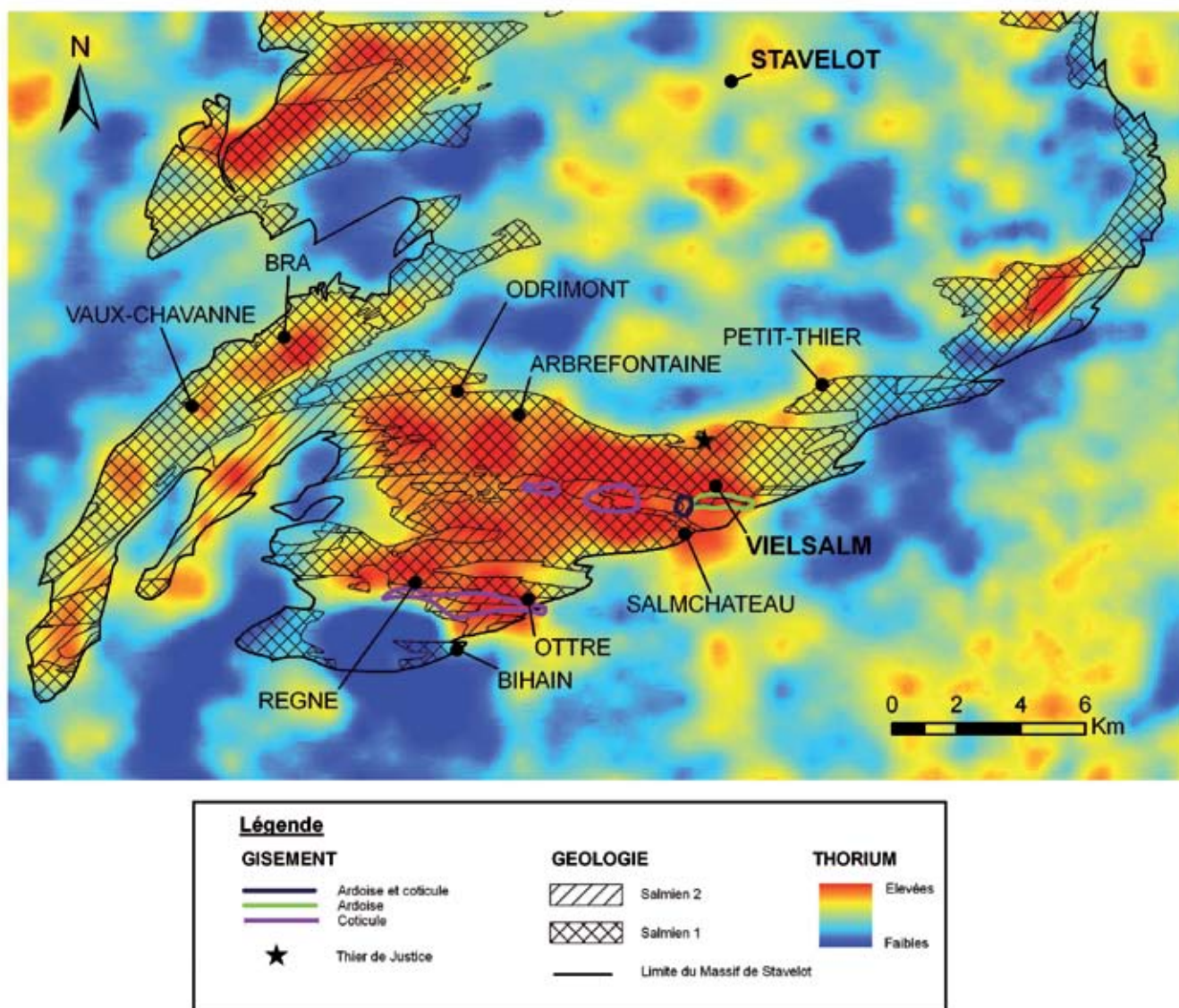


Figure 3 : Radiométrie naturelle mesurée par campagne aéroportée : cartographie du thorium

Le radon émis par les roches

Le radon naturellement produit par une roche, et émis dans l'environnement, provient de la couche superficielle de cette roche. La majorité des roches a une porosité et une certaine perméabilité à l'eau et aux gaz. La porosité est le pourcentage de vides par unité de volume dans un sédiment ou une roche. La perméabilité réfère à la capacité du sédiment ou de la roche à transporter les fluides (eau ou gaz) qui se trouvent dans les pores. Pour qu'une roche soit perméable, il faut que les pores (espaces entre les grains ou au sein des grains) soient connectés entre eux. Selon la taille et l'agencement de leurs particules ou des fractures qui les affectent, les matériaux du sous-sol seront plus ou moins perméables. Le radon produit trouve alors des chemins de **diffusion** privilégiés. Comme le radon est connu pour sa très haute diffusivité, une part appréciable du radon émis peut en pratique venir du cœur des matériaux. Un deuxième phénomène physique, antagoniste du précédent, est lié à la microporosité des matériaux et consiste en l'**adsorption** capillaire des gaz. En conséquence, une partie du radon reste piégé dans les pores. Le radon exhalé par une roche résulte de la compétition entre ces 2 processus.

La circulation des fluides dans les roches est plus aisée dans les matériaux meubles, grossiers, altérés ou peu compactés. Elle est facilitée par les **fractures**, les joints ou les failles. A ces critères internes s'ajoutent les conditions d'ambiance, de température, de pression et surtout d'humidité relative. L'importance de l'humidité ambiante résulte du fait qu'elle s'adsorbe considérablement et que le radon est très soluble dans l'eau.

Etant donné les variations des conditions d'ambiance existant lors de diverses manipulations, chaque échantillon est mesuré 3 fois selon le même protocole et le résultat adopté pour la **caractérisation finale** est la moyenne de ces 3 mesures (**moyenne statistique**). Un site est caractérisé par l'ensemble ordonné des résultats ainsi obtenus pour chaque échantillon. Ce principe conduit à une loi de répartition

statistique qui caractérise simplement et concrètement le site concerné.

Caractérisation d'un type de roche sur site géologique

Lorsque pour un site déterminé, on reporte sur un diagramme les valeurs logarithmiques de l'activité des échantillons (exprimée en $Bq/(m^3.kg)$) classées par ordre croissant (Vanderschueren, 2008), on s'aperçoit qu'elles se disposent en moyenne remarquablement bien selon une droite (« meilleure droite de régression statistique »). On en déduit tout naturellement 2 manières possibles de caractériser le dit site : soit en donnant les 2 valeurs extrêmes d'activités $A_{th, min}$ et $A_{th, max}$, soit en donnant la valeur moyenne (moyenne géométrique) $A_{th, moy}$ et le facteur d par lequel il suffit de multiplier et diviser cette moyenne pour retrouver les valeurs extrêmes. C'est ce dernier mode de caractérisation qui est retenu pour les sites répertoriés.

En conséquence, caractériser un site rocheux quant à son taux d'exhalation de radon requiert (de part l'hétérogénéité inévitable du matériau à petite et grande échelle) une approche statistique reposant sur un protocole strict sous peine de non reproductibilité des résultats ("**testis unus, testis nullus**" : dicton de jurisprudence). L'ensemble des résultats ici présentés repose sur l'application d'un protocole spécifique (Vanderschueren 2008) sommairement évoqué ci-après.

Le mode de prélèvement est adapté à l'extension du site accessible. Quelque 15 échantillons (parfois beaucoup plus) d'environ 200 grammes, répartis régulièrement le long de l'affleurement, sont conditionnés individuellement (concassage et tamisage) puis stockés (en enceinte close) et mesurés en circuit fermé.

La galerie souterraine de Bêche

La galerie s'ouvre environ à mi-hauteur de la colline de Bêche (région de Salmchâteau, Vielsalm). Elle a une forme de « Y ». La galerie « principale », quasi rectiligne, est longue d'environ 100 m. Elle comporte,

à quelque 15 m de l'entrée, un embranchement vers la droite d'environ 75 m de profondeur, oblique par rapport à la galerie principale. Cet embranchement donne accès, à ± 20 m, à une ancienne chambre d'exploitation.

Trente-huit échantillons, distants de 5 m, ont été prélevés : vingt et un dans la galerie principale et dix-sept dans la galerie secondaire. Le phyllade est de couleur gris sombre. Vers l'entrée de la galerie, il est mauve avec par endroits des veinules de coticule. Quelques minces bancs gréseux ainsi que des veines de quartz dans la galerie sont également visibles. La distribution statistique de l'exhalation du radon des phyllades montre que les deux branches de la carrière souterraine se comportent de manière identique. Le site est homogène comme le montre l'absence d'accident géologique (failles, minéralisations particulières, etc). L'activité du radon des phyllades de cette galerie souterraine est faible et donne les valeurs suivantes : $A_{th.moy.} = 3 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{)}$ et $d = 1,7$.

La galerie souterraine des « Comtes de Salm à Salmchâteau »

Il s'agit d'une ancienne galerie d'extraction de coticule, d'allure quasi rectiligne. Elle s'ouvre légèrement en

retrait du sentier qui prolonge la route d'accès au château des Comtes à Salmchâteau.

Vingt-deux échantillons, distants de 5 m environ, ont été prélevés à partir du fond de la galerie. Les résultats montrent que la distribution statistique des exhalaisons du radon est hétérogène. Les échantillons du fond de la galerie se distinguent par une exhalation nettement supérieure à celle des autres points de prélèvement. De plus, l'activité du radon est plus élevée au passage d'une faille.

La quantification de l'activité du radon des phyllades se décompose en deux parties distinctes. Le fond de la galerie se caractérise par une $A_{th.moy.} = 9,2 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{)}$ et $d = 1,1$; tandis que la première partie de la galerie donne une $A_{th.moy.} = 2,9 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{)}$ et $d = 1,3$. Ces valeurs restent néanmoins faibles comparativement aux schistes noirs ou dépôts ferrifères des pouhons entre autres.

Autres affleurements

La localisation et la caractérisation des affleurements étudiés dans la région de Vielsalm sont répertoriées dans le tableau 1.

Petit-Thier, talus routier, phyllade noir détritique :

$$A_{th.moy.} = 34 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,4$$

Rencheux, falaise du passage à niveau :

$$A_{th.moy.} = 18,3 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,3$$

Vielsalm, falaise, contrebas de l'église, phyllade, phyllade gréseux :

$$A_{th.moy.} = 13,6 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,3$$

Cierreux, falaise gréseuse du chemin de fer :

$$A_{th.moy.} = 12,6 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,1$$

Route de Vielsalm à Salmchâteau, ancienne carrière de phyllade :

$$A_{th.moy.} = 6,1 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,2$$

Hourt, front de taille et flanc droit de la carrière (quartzite) :

$$A_{th.moy.} = 3,3 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,5$$

Thier-del-Preux, front de taille, carrière de phyllade à coticule :

$$A_{th.moy.} = 3,1 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,4$$

Salmchâteau, falaise, phyllade à enduit malachite (contre-haut du cimetière) :

$$A_{th.moy.} = 3,0 \text{ Bq/(m}^3.kg \text{) et } d = 1,5$$

Le radon dans l'eau

Le radon est très soluble dans l'eau. Dans les conditions normales (à la pression atmosphérique et à la température de 20°C), l'eau peut dissoudre 8 fois plus de radon que d'oxygène (3 fois moins que de gaz carbonique). Ce taux varie en fonction de la température, de la pression et de son contact éventuel avec une phase gazeuse. L'agitation d'un échantillon d'eau en présence d'air provoque un important dégazage de l'eau.

Généralement dans nos contrées, la plupart des sources contiennent du radon. Cette eau provient de nappes profondes, de grande extension ou éloignées de l'émergence. Dans tous ces cas, l'eau peut avoir stagné ou cheminé longuement sous terre avant son apparition à l'air libre. Durant ce trajet souterrain, l'eau a circulé dans différents types de roches contenant des composés uranifères en concrétions localisées ou en répartition diffuse sur de grandes étendues. Dans les années 70, la source du Plétrou à Visé ayant un taux de 120 Bq/l assurait en partie l'alimentation de la ville, elle a finalement été fermée.

La teneur en radon d'une nappe aquifère dépend d'abord des particularités de la roche contenant l'eau de la nappe, de son taux en uranium et de ses descendants radioactifs. L'uranium et ses descendants sont emprisonnés dans la roche ou dissous dans l'eau. Dans les deux cas, lors de leur désintégration, ils produisent du radon. La teneur en radon est aussi conditionnée par les conditions locales. La teneur en radon dans les nappes captives sous pression hydrostatique et géostatique est supérieure à celle des nappes libres.

Les taux mesurés, exprimés en becquerels par litre, dépendent des conditions de prélèvement des échantillons. La même eau à l'émergence d'une source a une activité plus élevée qu'une eau prélevée dans un puits. L'eau du puits, en contact permanent avec l'atmosphère, établit un équilibre dans des conditions différentes de la nappe captive. Le radon, en surpression dans le sous-sol, « a le temps » de se

libérer partiellement à l'air libre. Au pouhon d'Arimont, dans la région de Malmédy, on mesure 400 Bq/l à la source et 160 Bq/l dans le puits.

Excepté dans les sources thermales, la température de l'eau à l'émergence est approximativement de 10 à 12°C. A la surface, l'eau va dégazer son radon par l'écoulement de l'eau - effet de l'agitation - et par l'augmentation progressive de sa température. Au fil du temps, l'activité de l'eau entraînera une perte décroissante du radon provoquée par le dégazage naturel progressif de l'eau et par la désintégration du radon restant.

Les directives de l'OMS et la Commission Européenne recommandent de contrôler la qualité de l'eau de boisson, par dosages répétés, par exemple, de vérifier que la quantité de radon ne dépasse pas les 100 Bq/l dans le système public d'approvisionnement. Aux Etats-Unis, la teneur maximale est fixée à 150 Bq/l dans les eaux privées.

Distribution du radon dans l'eau en contact avec l'atmosphère

Des mesures ont révélé une uniformité presque parfaite de la dissolution du radon en eau calme et confirmé l'active déperdition du radon en eau agitée. Dans le bois d'Hestré à Bihain, dans un puits ayant une profondeur de 3,15 m et des parois de phyllade, des mesures effectuées à différentes profondeurs ont donné sensiblement la même valeur. Elles ont été réalisées le 29 novembre 2000. L'alimentation du puits – affleurant – était suffisante pour qu'il soit « débordant ». Les mesures effectuées donnent à 0,65 m de la surface : 164 Bq/l, à 1,50 m de la surface : 159 Bq/l et à 2,80 m de la surface : 161 Bq/l. Le 7 août 2001, le puits n'est pratiquement plus alimenté et le niveau de l'eau se situe à 1,50 m seulement. L'activité en radon mesurée est de 36 Bq/l. Le dégazage et la désintégration naturelle sont responsables de cette plus faible activité. Le renouvellement, imputable en cette saison au phyllade plutôt qu'à la source, est relativement peu efficace.

Des mesures systématiques ont été effectuées en différents endroits d'une mare située au sud du ruisseau de Rolay dans la région de Bihain. Cette mare remarquable, ayant une profondeur moyenne d'environ 20 cm sur une superficie de plusieurs mètres carrés et d'une eau d'une limpidité exceptionnelle, aboutit dans un ruisseau à courant assez vif de teinte brune, coloration traditionnelle des ruisseaux fagnards. La source d'alimentation est faiblement gazeuse et se situe à environ 20 cm de la rive opposée au Rolay, au pied de la colline en rive droite du ruisseau. La figure 4 schématise cette mare. Les points de prélèvement des échantillons d'eau sont indiqués par les résultats d'analyse.

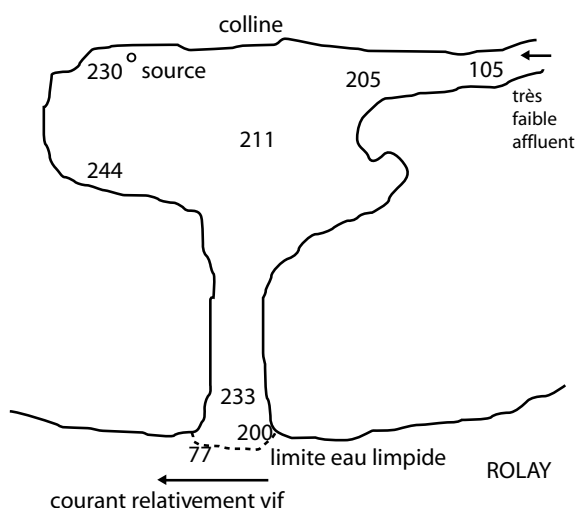


Figure 4 : Illustration de l'uniformité de la concentration de radon en eau calme (Vanderschueren, 2008). Les valeurs d'activité sont indiquées aux endroits de mesure.

Lors de « l'étude du radon » à Vielsalm, un autre exemple illustratif provient d'une propriété privée située à la sortie nord de Vielsalm (Thier de Justice). Les teneurs en radon y sont très élevées. La configuration particulière du terrain liée à une déclivité importante ainsi que l'existence de deux émergences voisines, l'une étant un pouhon, l'autre une eau non ferrifère, permettent d'affiner l'étude du comportement du radon dans l'eau. En mars 2007, la teneur en radon mesurée dans l'eau du puits, captée à 3 m sous la surface, donne un résultat record de 1220 Bq/l. Le puits affleurant, un pouhon, est constitué d'un trop-plein situé à 10 cm sous la surface du sol relié à un tuyau en PVC de 19 m de longueur enfoui dans la couche arable sur la plus grande pente du terrain. Il émerge à la limite entre un pré et une pâture située en contrebas d'une dénivellation d'environ un mètre. Dès sa sortie, l'eau limpide, émergeant en permanence du tuyau, laisse sur le sol un dépôt ferrière rougeâtre. Ensuite, elle s'infiltre dans le sol pour apparaître à nouveau dans une petite mare d'un mètre de diamètre. Les résultats des mesures d'exhalation effectuées le long du parcours de l'eau donnent les résultats suivants :

Puits (collecte à 3 m de profondeur)	1220	Bq/l
Sortie du tuyau de trop-plein	1030	Bq/l
Mare de résurgence	140	Bq/l

L'agitation de l'eau permet un dégazage du radon et une perte notable de l'activité.

Dans une autre propriété située en contre-haut de la précédente, une eau limpide non ferrifère sourd dans une cave possédant également un puits. Elle s'écoule dans le sol pour reparaitre dans la première propriété après quelque 100 m de parcours. Les teneurs mesurées aux divers endroits sont les suivantes :

Emergence dans la cave	187	Bq/l
Puits dans la cave	30	Bq/l
Ré-émergence dans la première propriété	60	Bq/l

A titre comparatif, on peut lister une série de teneurs en eau provenant du Massif de Stavelot et de la région liégeoise (Vanderschueren, 2008).

Eaux de sources belges

a. Massif de Stavelot

1. Vielsalm, Thier de Justice (puits-pouhon)	1220	Bq/l
2. Arimont (Malmedy), émergence effective	390	Bq/l
3. Vielsalm, Thier de Justice, (puits voisin)	187	Bq/l
4. Pouhon Pietkin (Sourbrodt)	170	Bq/l
5. Arimont, (émergence voisine du pouhon)	150	Bq/l
6. Source de Blanchimont (Francorchamps) bas	85	Bq/l
7. Forage Herzogenhügel	80	Bq/l
8. Pouhons de Ménil (4 et 6) (Liernux)	80	Bq/l
9. Pouhon Préaix (puits-citerne - Malmedy)	80	Bq/l
10. Source du Spoorbach (Waimès)	64	Bq/l
11. Pouhon de Barisart (Spa)	48	Bq/l
12. Pouhon du Ruy (Stoumont)	48	Bq/l
13. Pouhon Delcor (Spa)	43	Bq/l
14. Pouhon du Tonnelet (Spa)	38	Bq/l
15. Pouhon de Bernister (captage - Malmedy)	33	Bq/l
16. Source de Groesbeck (Spa)	33	Bq/l
17. Source de la Sauvenière (Spa)	29	Bq/l
18. Pouhon Pia (Spa)	27	Bq/l
19. Pouhon du Bayehon (Waimès)	19	Bq/l
20. Pouhon du gué du Trô Mares (Malmedy)	18	Bq/l
21. Fontaine de Blanchimont (Francorchamps) haut	16	Bq/l

22. Pouhon de Harzé (Ste-Anne)	13	Bq/l
23. Pouhon de Fays (Manhay)	11	Bq/l
24. Pouhon de Harzé (Harzé)	8	Bq/l
25. Pouhon des Cuves (Trô Marets, Malmedy)	6	Bq/l

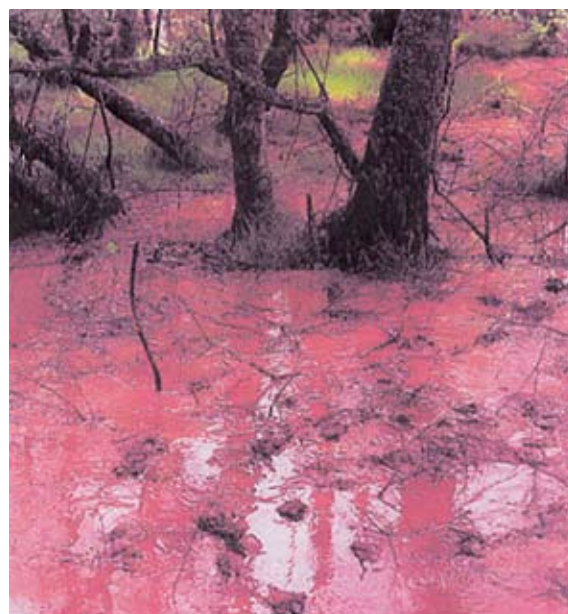
b. Région liégeoise

26. Source de Plérou – (captage condamné - Visé)	120	Bq/l
27. Source de Seraing, route de Plainevaux	110	Bq/l
28. Source de Boncelles (Famelette)	60	Bq/l
29. Source thermale (36°C) Astrid (Chaudfontaine)	10	Bq/l
30. Source de Vaux (Wéristier)	1	Bq/l

Selon la provenance, les conditions de stockage et du traitement avant distribution, l'eau potable renferme des teneurs en radon très diverses. En certains endroits, le taux acceptable de 100 Bq/l est dépassé. Une chute du radon avant la consommation de l'eau est facilement réalisable par un brassage suffisant de l'eau en présence d'air. Le consommateur peut libérer le radon de l'eau de distribution ou de source par l'agitation du récipient, l'utilisation d'un jet énergétique ou une durée d'exposition à l'air. Au point d'ébullition, l'eau perd tout son radon. Suivant ces processus, le radon est transféré dans l'air en déplaçant le problème. Au lieu d'être ingéré, le radon peut être inhalé dans une pièce insuffisamment aérée ou ventilée. Le risque augmente dans des espaces clos tels que les cabines de douche.

Le radon dans les produits ferri-fères déposés par l'eau

L'eau de nombreuses sources, du plateau des Hautes-Fagnes notamment, véhicule des complexes ferri-fères dont la solubilité est régie par l'état d'oxydation du fer. Dans un sous-sol fortement réducteur (ph inférieur à 7), le fer est à l'état réduit (état d'oxydation +2) et mobile. Le complexe porteur du fer est soluble dans l'eau, la rendant limpide lorsqu'elle sourd du sol. Au contact de l'air, le fer s'oxyde très rapidement (état d'oxydation +3) rendant le complexe insoluble. Il forme des flocons et commence à se déposer dès l'abord du point d'émergence. A quelques décimètres de ce point, l'eau commence à prendre la couleur rouge orange à rouge brun caractéristique de l'hydroxyde ferrique. Des mesures systématiques de pouhons et venues ferri-fères ont été effectuées en appliquant le même protocole que pour les roches (concassage mis à part évidemment). Les résultats sont présentés au tableau 3.



Pouhon de Bernister, Eau Rouge, Francorchamps. Photo J.-M. GROULARD, reproduite avec l'aimable autorisation de l'auteur et de l'éditeur de la Revue HAUTES-FAGNES.

1. Arimont (Géromont – Malmedy)	640	Bq/(m ³ .kg)
2. Coo (galerie intérieure Centrale hydroélectrique)	140	Bq/(m ³ .kg)
3. Plateau du Brackkopf	135	Bq/(m ³ .kg)
4. Pont de Porfays (Soor)	100	Bq/(m ³ .kg)
5. Captage communal de Golonfa (Vielsalm, Noirchamps)	96	Bq/(m ³ .kg)
6. Coo (même galerie, deuxième émergence)	95	Bq/(m ³ .kg)
7. Blanchimont (Francorchamps) bas (pont)	68	Bq/(m ³ .kg)
8. Captage du Wez-des-Pourceaux (Regné)	52	Bq/(m ³ .kg)
9. Bernister (Malmedy)	42	Bq/(m ³ .kg)
10. Puits-pouhon (Thier de Justice, Vielsalm)	42	Bq/(m ³ .kg)
11. La Hogne (Sart)	30	Bq/(m ³ .kg)
12. Préaix (bas-côté opposé au puits)	25	Bq/(m ³ .kg)
13. Pouhon Pietkin – Sourbrodt (couche superfic. orange)	19	Bq/(m ³ .kg)
14. Ruisseau des Tailles (G'Hâster)	19	Bq/(m ³ .kg)
15. Bosfagne (Waismes)	16	Bq/(m ³ .kg)
16. Pouhon Pietkin – Sourbrodt (sous-couche, jaune-vert)	12	Bq/(m ³ .kg)
17. Gué du Trô Marets (Malmedy)	11	Bq/(m ³ .kg)
18. Habiomont	10	Bq/(m ³ .kg)
19. Préaix (dans le ru, bas-côté du puits)	7	Bq/(m ³ .kg)
20. Bayehon (passerelle bois près du pont du Moulin)	7	Bq/(m ³ .kg)
21. Blanchimont (Francorchamps) haut	6	Bq/(m ³ .kg)
22. Trô Maret (Pouhon des Cuves)	2	Bq/(m ³ .kg)
23. Spoorbach (N de Herzogenhügel)	1	Bq/(m ³ .kg)

Les résultats montrent surtout un large éventail des mesures d'activité.

Le radon dans l'air

Les mesures d'activité du radon dans l'air sont extrêmement variables en fonction des conditions atmosphériques dont la pression, la température et l'humidité relative. Ce fait est a priori normal puisque le radon émane des roches où une bonne part de ce gaz est maintenue par adsorption vu la porosité propre de celles-ci et l'humidité résiduelle elle-même adsorbée et en équilibre avec l'atmosphère ambiante. En hiver, la température ambiante dans les chambres et les galeries des anciennes exploitations souterraines

d'ardoises et de coticule est d'environ 8,5° C. Elle est plus élevée à l'intérieur qu'à l'extérieur. Si la circulation d'air est possible, par une connexion entre les galeries de roulage ou d'exhaure et des puits verticaux, une circulation du radon dans l'air s'effectue (figure 5). On observe une aspiration d'air par l'œil de galerie et une expulsion d'air par le puits. La circulation est identique lors du passage d'une dépression atmosphérique au-dessus du site. La circulation s'inverse en été et lors de conditions anticycloniques.

Situation hivernale et/ou dépressionnaire

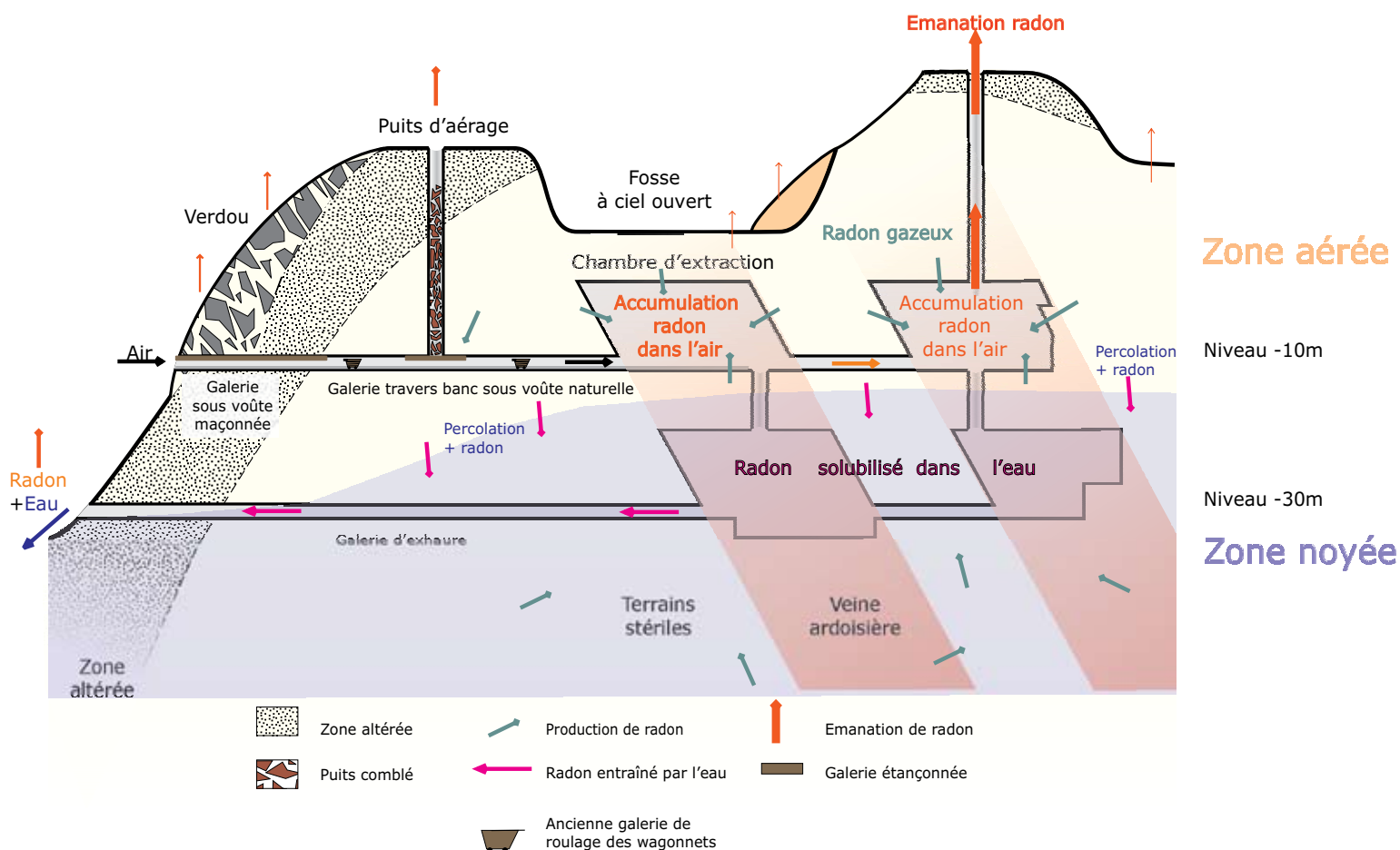


Figure 5 : Circulation du radon dans une ardoisière souterraine modélisée, en conditions hivernales ou dépressionnaires.

Sur le territoire de Regné, des mesures d'activité du radon ont été effectuées. A l'emplacement d'une ancienne galerie subhorizontale d'extraction du coticule, les appareils de mesure ont été installés durant une période de deux mois à une profondeur de quelque 4 m. A l'analyse des résultats (figure 6), il apparaît que l'exhalation du radon au cours du temps est très « capricieuse ». Elle évolue entre quelques dizaines et quelques milliers de Bq/m³ se succédant par transitions brutales du jour au lendemain où des jours à bas niveau sont suivis de longues périodes à haut niveau et des zones d'instabilité notoire où les oscillations journalières passent pendant plusieurs jours d'affilée d'un niveau bas à un niveau très élevé. Vu la variabilité des mesures, une valeur représentative de l'activité du radon d'une région doit être une « mesure intégrale »

ou pour être le plus exact, une « mesure moyenne sur plusieurs mois ». Cette dernière procédure est appliquée par les organismes de surveillance patentés (Vanderschueren, 2005).

La moyenne dans l'air extérieur varie entre 5 et 15 Bq/m³, malgré une observation de valeurs plus élevées ou plus basses. D'après une série d'enquêtes, on estime à 39 Bq/m³ la concentration moyenne en radon dans l'air intérieur. Suivant un rapport du Comité scientifique des Nations Unies relatif à l'étude des effets des rayonnements ionisants, il existe des variations marquées d'un pays à l'autre (UNSCEAR) (OMS, 2007).

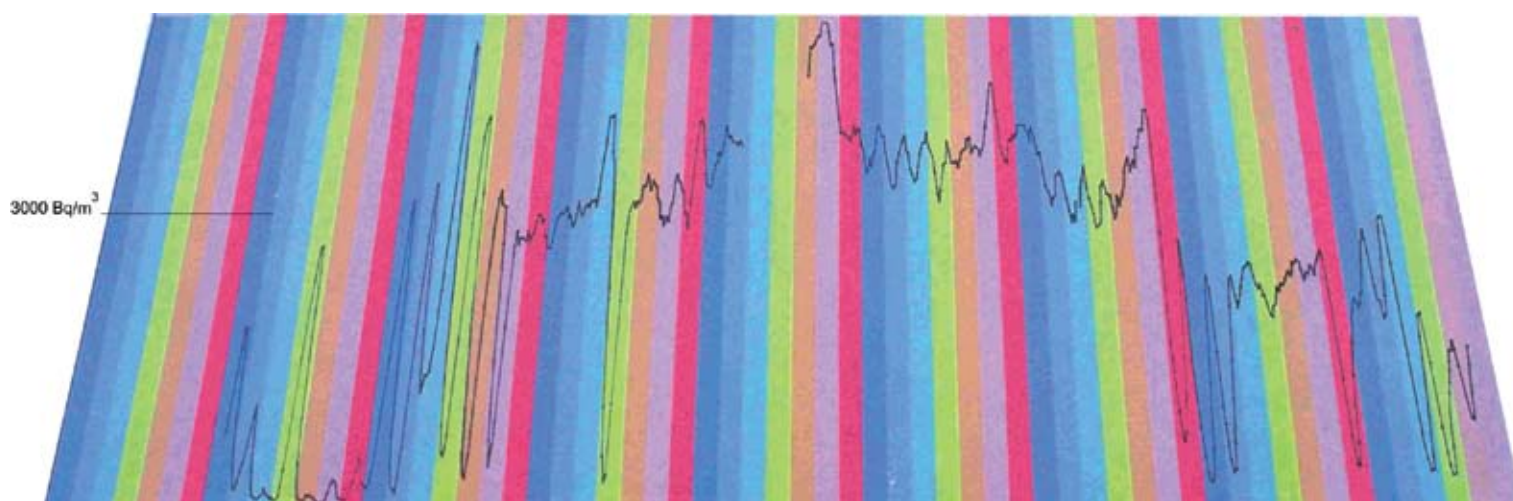


Figure 6 : Activité volumique mesurée pendant 8 semaines (chaque bande colorée correspond à une journée) dans une galerie d'extraction du coticule à Regné, avec l'aimable autorisation de Monsieur M. Célis (propriétaire, géologue et artisan du coticule à Sart) – Vanderschueren, 2007. Appareil Radim modifié – cellule à diode p.i.n.

Conclusions

Il découle de l'ensemble des mesures prises dans les roches, les eaux et l'air, de fortes variations d'un site à l'autre. Elles sont liées directement à la géologie par la nature même du matériau (sa richesse propre en uranium déterminée par la stratigraphie), la présence d'accident ou de propriétés spécifiques (les failles,

les fractures ou la porosité de la roche), par des effets anthropiques (les galeries souterraines, les chambres d'exploitation ou l'aération des galeries), par la nature et l'origine des eaux de sources. Les conditions climatiques jouent un rôle prépondérant dans la fluctuation des mesures.

Remerciements

Nous nous faisons un devoir et un plaisir d'exprimer ici nos plus vifs remerciements aux collègues et amis dont la collaboration nous a été d'une aide précieuse au cours de la présente étude, les Professeurs F. Boulvain, F. Dimanche, J.-Cl. Duchesne, A.-M. Fransolet, J. Garsou, E. Juvigné, E. Poty, J. Vander Auwera de l'ULg, Mmes A. Anceau et O. Cajot (MRW), MM. P. Mignonsin, F. Hatert (ULg), Prof. Charlet (FPMons), Prof. Chambaudet (U. Franche-Comté, Besançon), M. Simoën (CEN Saclay), MM. M. Célis, J. Cougnet, D. Théâtre, J.-M. Groulard, S. Laurent, L. Leclercq, Ch. Legros et J.-P. Offergeld.

Bibliographie

Charlet, J.M., Dupuis, C. et Quinif, Y., 1977. Perspectives de la prospection de l'uranium à l'échelle nationale. Annales des Mines de Belgique, 5^{ème} livraison, 521-531.

Charlet, J.M, Dejonghe, L., De Witte, S.-M., Drumel, B., Henry, J., Herbosch, A., Lefin, J.-P. et Martin, H., 1983. Reconnaissance survey for uranium in the Belgian Paleozoic. Professional Paper, 1983/1, 196, Service géologique de Belgique, 189 p.

Charlet, J.M. (coordonnateur), 1991. Le radon dans les habitations. Aspects géologiques du risque. Plaqueette du Secrétariat d'Etat à l'Energie, 75 p.

Charlet, J.M., 1992. De l'exploration minière à l'environnement, le radon, outil commun d'investigation. In « 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), Dorémus, P., Dejonghe, L. et Charlet, J.M., Editeurs ». Mémoires pour servir à l'Explication des Cartes Géologiques et Minières de la Belgique, Mémoire n°32, 322 p.

Collignan, B., Perrin, J., Tirmarche, M., 2007. Le radon dans les bâtiments. In : Géosciences et Santé, Géosciences, n°5, mars 2007, 20-28.

De Vos, W. & Tarvainen, T. (chief-editors), 2006. Geochemical Atlas of Europe. Part 2 : Interpretation of Geochemical Maps, Additional Tables, Figures, Maps, and related Publications, FOREGS, Geological Survey of Finland, Espoo 2006, 690 p.

Kuske, M., Debbaut, V., Bomboire, A., Drouguet, B., Deckers, P., Guillaume, M. et Nicolas, J., 2001. Ten years of data gathering of radon exhalation in the Belgian Province of Luxembourg. Proceedings of the Third Eurosymposium on Protection against radon, Liège, 10-11 may 2001.

Maréchal, J.-C., Bonino, E., Vanbrabant, Y., Teerlynck, H., Pirard, E. & Jongmans, D., 1999. A preliminary study of cross correlation between lithology and K airborne radiometry in the Belgian Ardennes. Proceedings of GEOVISION 99, University of Liège, 6-7 may 1999, 181-184.

OMS (Organisation Mondiale de la Santé), 2005. Radon et Cancer. Aide-mémoire N°291, Site Internet de l'OMS.

Vanderschueren, H.W., 2008. Le radon dans l'air, l'eau et les roches. Dossier inédit déposé au Service géologique de Belgique et à l'Unité de documentation des Sciences de la Terre à l'Université de Liège.