

ESTIMATION DU POUVOIR D'ÉCHAPPEMENT DE L'EM-222 DES ROCHES URANIFÈRES DE MADAGASCAR A L'AIDE D'UN DÉTECTEUR GE(LI)

par

RAOELINA ANDRIAMBOLOLONA *

PAIC Guy**

RAKOTOSON Georgette***

Laboratoire de Physique Nucléaire et Appliquée

(juillet 1979)

Résumé :

Nous donnons le pouvoir d'échappement de l'Em-222 des roches uranifères de Madagascar (bétafite, monazite, euxenite, ampingabéite, l'uranorcicite, carnotite, autunite, zircon, microsyrénite, bastanesite) et celui de l'oxyde d'uranium U_3O_8 , déterminé à l'aide d'un détecteur Ge (Li). La plupart de ces roches laissent échapper de l'Em-222. La bétafite (54 ± 2)%, l'uranorcicite (51 ± 5)%, la carnotite (44 ± 4)%, sont les plus grands émanateurs. La microsyrénite (20 ± 6)%, l'oxyde d'uranium U_3O_8 (26 ± 4)% sont des émanateurs moyens tandis que l'euxénite (13 ± 1)%, l'autunite (12 ± 2)%, le zircon (11 ± 5)% sont de faibles émanateurs. L'ampingabéite et la bastanesite donnent des valeurs très dispersées pour qu'aucune conclusion valable puisse être donnée. Pour la monazite, il n'y a presque pas d'échappement, nous avons l'équilibre.

Abstract :

The Em-222 escape powers from uranifere malagasy ores have been determined by the means of a Ge(Li) detector. Em-222 escapes from almost of these ores (betafite (54 ± 2)%, uranorcicite (51 ± 5)%, carnotite (44 ± 4)%, microsyrénite (20 ± 6)%, U_3O_8 (26 ± 4)%, euxenite (13 ± 1)%, autunite (12 ± 2)%, zircon (11 ± 5)%). For ampingabeite and bastnaesite, experimental results are too scattered and no valid conclusion may be get out. For monazite, there is no Em-222 escape, there is radioactive equilibrium.

* Professeur titulaire.

** M. PAIC Guy est professeur à l'Institut Ruder Boskovic, Université de Zagreb, Yougoslavie. Il était en mission d'expert de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique, Autriche, Vienne, auprès du Laboratoire de Physique Nucléaire et Appliquée de l'Université de Madagascar, Antananarivo, Madagascar (période allant du mois d'octobre 1977 au mois de mars 1978)

*** Collaborateur technique

1. INTRODUCTION

Il existe plusieurs méthodes pour la prospection de l'uranium. La plupart sont des méthodes radiométriques qui reposent sur la détection du radon-222 contenu dans l'atmosphère, dans le sol, dans l'eau. Cependant, la concentration du radon dans ces endroits dépend d'un certain nombre de paramètres, entre autres du pouvoir d'échappement du radon à travers les roches.

La connaissance des divers paramètres permet également le choix des méthodes à utiliser pour l'ouverture d'une mine uranifère. En effet, le radon qui est un gaz nocif radioactif exige une protection. Cette dernière est si importante que son coût peut être décisif dans le choix du mode d'extraction.

Des chercheurs ont mesuré le pouvoir d'échappement du Rn-222 de divers roches et minerais radioactifs. Entre autres, BARRETO [1] a étudié l'activité et le pouvoir d'échappement du Rn-222 pour une variété de roches et de minerais en mesurant le rayonnement alpha avec un spectromètre à scintillation. AUSTIN [2] a utilisé un détecteur Na I(Tl) pour mesurer l'émanation du Rn-222 des échantillons fournis par l'Agence Internationale de l'Energie Atomique.

A notre connaissance, il n'existe pas de mesures correspondantes en ce qui concerne les roches et minerais de Madagascar. Le présent travail consiste à mesurer le pouvoir d'échappement de quelques roches et minerais uranifères de Madagascar (bétafite, uranorcicite, euxénite, carnotite, autunite, microsényite, zircon), monazite, ampingabéite, bastanésite), et de l'oxyde d'uranium U_3O_8 à l'aide d'un détecteur Ge(Li).

La plupart de ces roches ou minerais laissent échapper l'Emanation-222. La betafite, l'uranorcicite, la carnotite sont les plus grands émanateurs. Leur pouvoir d'échappement varie de 43 p. 100 à 54 p. 100.

L'euxénite, l'autunite sont de faibles émanateurs. L'ordre de grandeur de leur pouvoir d'échappement (12%) est le même que celui du zircon. Celui du microsényite est voisin de 20 p. 100.

Pour la monazite, nous avons pratiquement l'équilibre. Il n'y a guère d'échappement.

L'oxyde d'uranium U_3O_8 , échantillon fourni par l'AIEA, donne un pouvoir d'échappement voisin de 26 p. 100.

L'ampingabéite et la bastanésite donnent des valeurs trop dispersées pour pouvoir permettre de donner une conclusion valable.

Avec un spectromètre à scintillation, BARRETO [1] a trouvé un pouvoir d'échappement de 0,2 à 12,1 p. 100 pour le zircon de Finlande, et de 0,2 p. 100 pour la monazite. Ces valeurs sont en accord avec les résultats pour les roches de Madagascar que nous avons étudiées.

Les valeurs trouvées par AUSTIN varient entre 1 p. 100 à 91 p. 100 [2].

2. CONDITIONS EXPERIMENTALES

Le détecteur est un système à semi-conducteur Ge(Li) du type coaxial vrai, marqué CANBERRA, modèle 7229, de surface utile 22,5 cm² et de hauteur 4,3 cm.

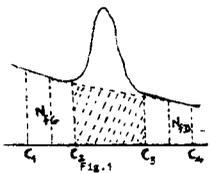
La chaîne est une chaîne complète CÄNBERRA (préamplificateur 2001 amplificateur 2010, analyseur multicanal MC 8100/E, avec sortie télétpe ASR 233).

L'analyseur multicanal MCA 8100/E permet de compter sur 4096 canaux par tranche de 1024. Il n'a ni l'option calibration, ni l'option analyse des pics.

La calibration est faite manuellement par droite de régression linéaire. De même, l'analyse des pics est faite à la main car nous n'avons pas le dépouillement automatique.

Toutefois, le lissage des courbes pour la détermination des coefficients A et B a été fait à l'ordinateur IBM 1130 à l'aide d'un programme par la méthode des moindres carrés.

Le calcul du nombre de coups sous le pic est obtenu par la procédure suivante (voir Fig. 1).



$$N_{pic} = N_{tot} - N_{fond}$$

$$N_{tot} = \sum_{C=C_1}^{C=C_n} N(C)$$

où $N(C)$ est le nombre de coups contenu dans le canal numéro C . Si N_{fG} et N_{fD} sont les nombres moyens de coups dans un canal se trouvant à gauche et à droite du pic, nous avons :

$$N_{fond} = \frac{N_{fG} + N_{fD}}{2} (C - C_1 + 1)$$

où

$$N_{fG} = \frac{1}{C - C_1 + 1} \sum_{C=C_1}^C N(C)$$

$$N_{fD} = \frac{1}{C - C_1 + 1} \sum_{C=C_1}^{C_2} N(C)$$

Les calculs d'erreur sont faits avec la méthode habituelle. Nous soustrayons ainsi le fond continu dû au bruit de fond et à l'effet Compton des gamma d'énergie supérieure.

Les échantillons sont soumis à des conditions expérimentales semblables. L'échantillon est réduit en poudre fine et scelle dans un récipient de verre cylindrique (de 2.5 cm de diamètre) sur une épaisseur de 15 millimètres. Le premier comptage commence après trois heures de scellement, temps au bout duquel le radon 222 est en équilibre avec ses descendants. (Les périodes du Bi-214 et du Pb-214 sont respectivement de 20 minutes et de 27 minutes) La mesure des activités du Bi-214 et du Pb-214 permet de déduire le nombre de noyaux Em-222.

Les mesures se font à intervalles réguliers de 24 heures pendant trente jours.

Chaque échantillon conserve toujours la même géométrie de comptage.

Le temps de comptage dépend de l'activité de chaque échantillon. Nous portons les points expérimentaux sur une graphique pour différentes énergies (186 keV, 242 keV, 295,5 keV, 352 keV, 609,5 keV). Le lissage des courbes donne la forme :

$$N = A + B(1 - e^{-\lambda t})$$

où λ est égal à la constante radioactive du radon ($\lambda = 0,182 \text{ j}^{-1}$, soit $T = 3,81 \text{ j}$) avec les valeurs de A et de B. La forme de la courbe est conforme à la théorie (voir courbe).

Un raisonnement simple permet de définir le pouvoir d'échappement p par la relation :

$$p = \frac{B}{A + B} \quad \text{exprimé en pourcent.}$$

Nous résumons les résultats expérimentaux sur le tableau I et le tableau II.

TABLEAU I

LES NOMBRES DE COUPS A, B DE LA COURBE $A + B(1 - e^{-\lambda t})$

| Roches | Temps de comptage | 186 keV | | 242 keV | | 295,5 keV | | 352 keV | | 609,5 keV | |
|-------------------------------------|-------------------|---------|-------|---------|--------|-----------|--------|---------|-------|-----------|---|
| | | A | B | A | B | A | B | A | B | A | B |
| Becafite n° 1 | 200s | 6 270 | 7 130 | 2 600 | 3 600 | 10 540 | 11 460 | | | | |
| Becafite n° 2 | 500s | 7 986 | 8 082 | 16 325 | 17 757 | 28 640 | 30 345 | | | | |
| Uranoroclite | 500s | 543 | 572 | 1 091 | 1 130 | 1 719 | 1 823 | | | | |
| Euxénite | 500s | 30 400 | | 68 830 | 9 720 | 119 240 | 18 117 | 81 170 | 1 167 | | |
| Carnosite | 200s | 2 250 | 832 | 2 254 | 1 767 | 3 548 | 2 950 | | | | |
| Autunite | 200s | 10 500 | 1 000 | 5 200 | 790 | 19 500 | 2 200 | | | | |
| Microsényite | 2 000s | | | 610 | 144 | 1 000 | 192 | 543 | 168 | | |
| Zircon | 2 000s | 430 | | 697 | 93 | 1 161 | 110 | 668 | 96 | | |
| U ₃ O ₈ | 200s | 380 | 140 | 800 | 270 | 1 330 | 450 | | | | |

TABLEAU II

DETERMINATION DU POUVOIR D'ÉCHAPPEMENT p DE QUELQUES ROCHES MALGACHES EN POUR CENT A PARTIR DES ÉNERGIES 242 keV, 295,5 keV, 352 keV, 609,5 keV

| Roches | 242 keV | 295,5 keV | 352 keV | 609,5 keV | Valeur moyenne de p |
|-------------------------------------|---------|-----------|---------|-----------|-----------------------|
| Betafite n° 1 | 53 ± 2 | 58 ± 3 | 52 ± 2 | | 54 ± 2 |
| Betafite n° 2 | 50 ± 2 | 52 ± 1 | 51 ± 1 | 55 ± 1 | 52 ± 1 |
| Uranorcicite | 51 ± 7 | 51 ± 4 | 51 ± 3 | 52 ± 4 | 51 ± 5 |
| Euxénite | | 12 ± 1 | 13 ± 1 | 13 ± 1 | 13 ± 1 |
| Carnotite | 42 ± 6 | 44 ± 4 | 45 ± 3 | | 44 ± 4 |
| Autunite | 13 ± 2 | 12 ± 2 | 10 ± 1 | | 12 ± 2 |
| Microsénite | | 19 ± 7 | 16 ± 5 | 24 ± 6 | 20 ± 6 |
| Zircon | | 12 ± 5 | 9 ± 4 | 13 ± 5 | 11 ± 5 |
| U ₃ O ₈ | 27 ± 7 | 25 ± 2 | 25 ± 1 | | 26 ± 4 |

3. CONCLUSION ET REMARQUES

Commençons d'abord par des remarques concernant les pics étudiés. Le pic de 186 keV est un pic double de l'U-235 et du Ra-226 dont les énergies sont respectivement 185,7 keV et 186,4 keV. La résolution de la chaîne à cette énergie est de 2 keV ; les pics ne sont pas séparés. L'intensité du pic pendant l'intervalle de temps considéré est pratiquement constante. En effet, l'U-235 et le Ra-226 ont des périodes longues (respectivement $7,18 \times 10^8$ a et de 1 622 ans) par rapport à 30 jours ; leurs activités sont donc presque constantes.

Le pic de 242 keV du Pb-214 est un pic très intense. Mais il est masqué partiellement ou entièrement par le pic 239 keV du Pb-212 selon que la concentration du Th-232 dans la roche est faible ou forte. Dans le premier cas, on peut soustraire la contribution du Pb-212 en prolongeant la courbe à gauche par la symétrique à droite par rapport au pic 242 keV. Dans le second cas, il n'est pas possible de mesurer l'intensité du pic. Le pic de 295,5 keV du Pb-214 est proche du pic de 300,5 keV du Pb-212. Mais généralement, ce pic est faible et la résolution de la chaîne permet de les séparer.

Les pics de 352 keV et de 609,5 keV qui sont respectivement dus au Pb-214 et au Bi-214 sont des pics très intenses. Ils sont isolés, donc facilement exploitables.

Les valeurs trouvées pour le pouvoir d'échappement p pour les différentes énergies (242 keV ; 295,5 keV ; 352 keV ; 609,5 keV) concordent dans l'approximation de 10 p. 100. De toutes ces énergies, la meilleure valeur de p correspond à l'énergie 352 keV qui est un pic isolé intense ; l'erreur, qui vient de la statistique en grande partie, est faible. Par contre, les valeurs obtenues pour les pics 242 keV et 295,5 keV qui sont plus faibles et qui peuvent se superposer avec d'autres pics sont moins bonnes.

En fait, l'étude actuelle est celle du retour à l'état d'équilibre des roches. De même, les résultats trouvés sont obtenus en supposant que la quantité de l'Em-222 restant dans la roche est constante. Nous pouvons améliorer le calcul du pouvoir d'échappement en prenant deux échantillons identiques, l'un ouvert, l'autre scellé. La différence des taux de comptage correspond alors à l'Em-222 qui s'échappe de la roche.

Une autre méthode est celle qui mesure effectivement le Rn-222. On mesure l'activité du Ra-226 qui permet de déduire la concentration du Rn-222 présent dans l'échantillon. Puis on mesure seulement l'activité du Rn-222 se trouvant dans l'atmosphère de l'ampoule de volume connu.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) BMC BARRETO. — *Radon-222 emanation characteristics of rocks and minerals. Radon in uranium mining*, IAEA (1973), pp. 129-150.
- (2) S.-R. AUSTIN. — *A Laboratory study of radon emanation from domestic uranium ores. Radon in uranium mining*, IAEA (1973), pp. 151-163

Fig. IV, 2

o Spectre de la monoglycine

x Spectre de la bisglycine

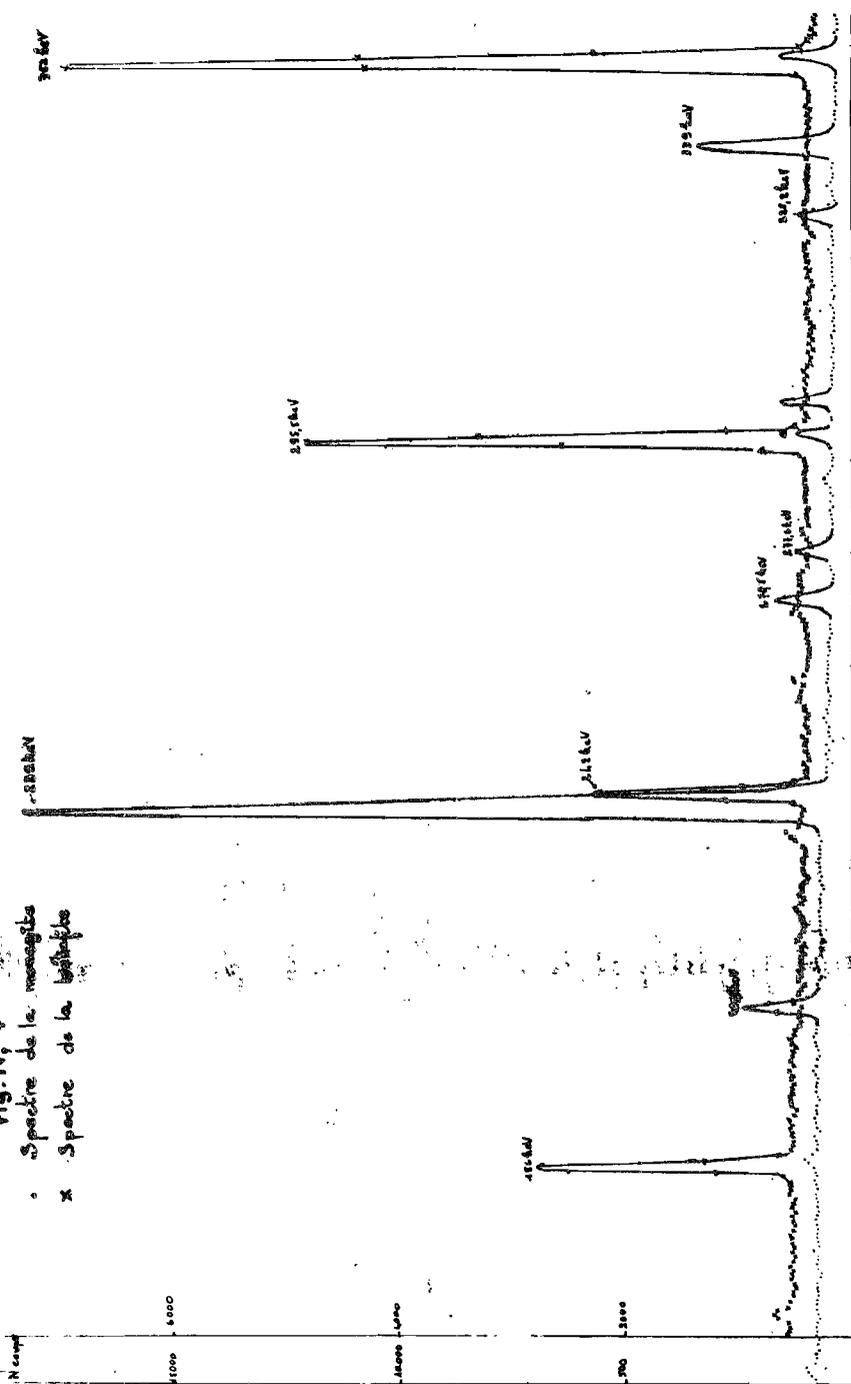


Fig. 14, 2
Les différents pics étudiés

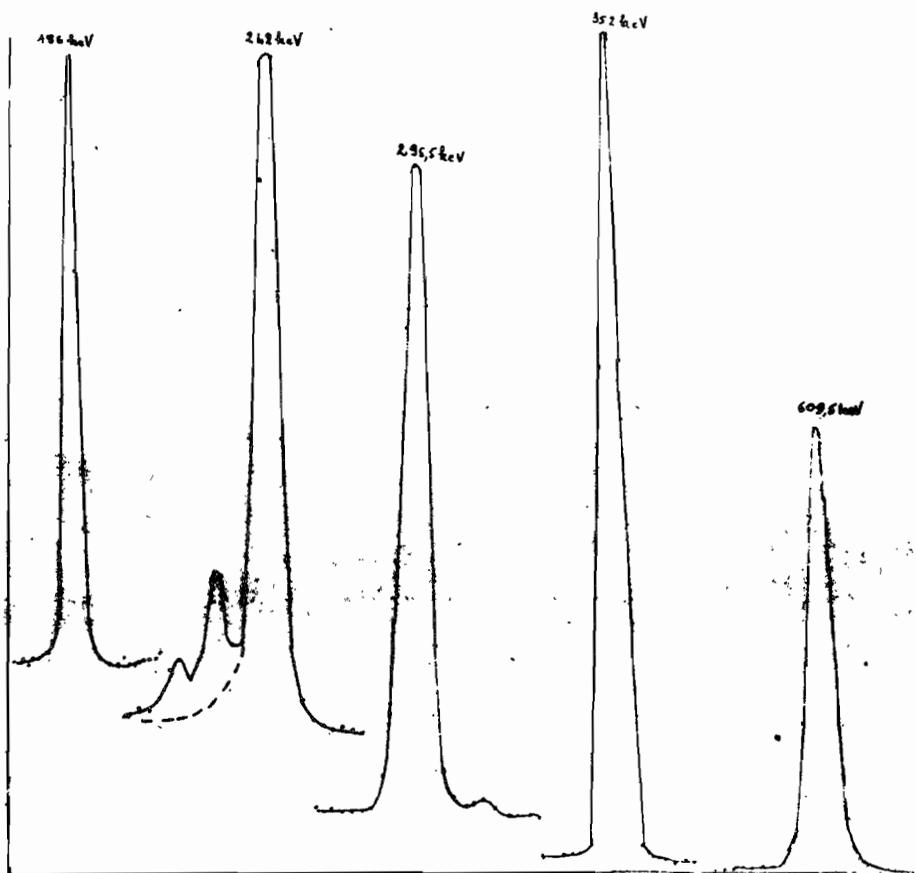


Fig. 14,3
Batafile 4

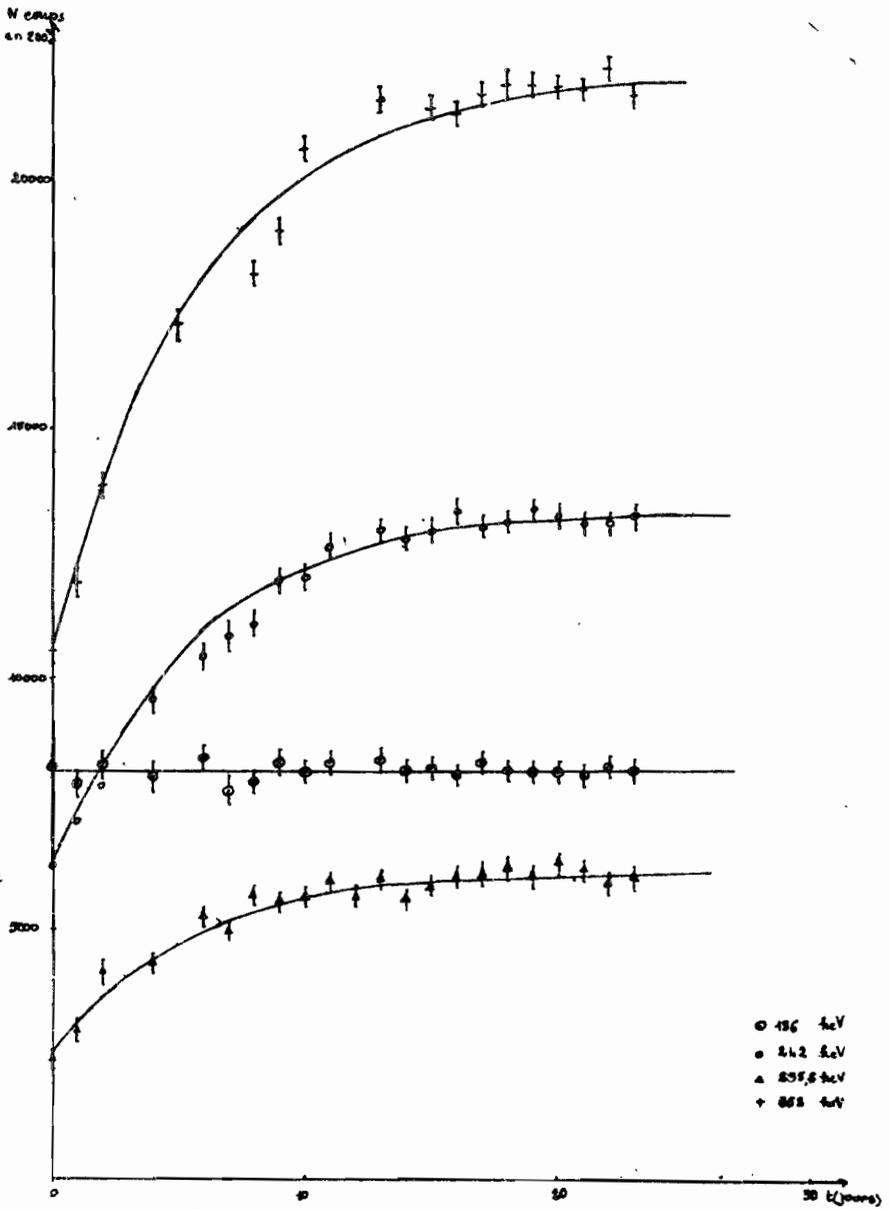


Fig. W, 4
Betafite 2

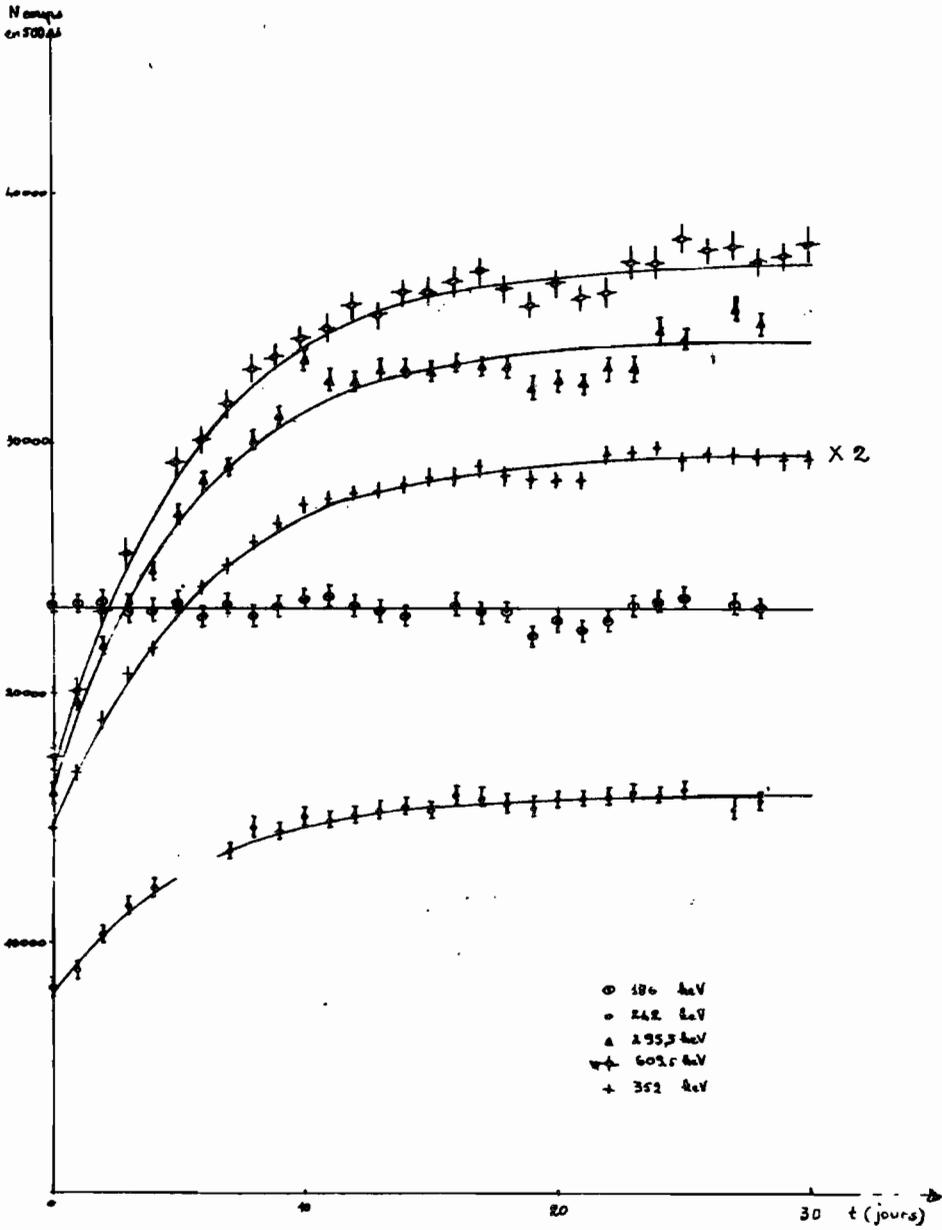


Fig. IV, 5
Uranorocite

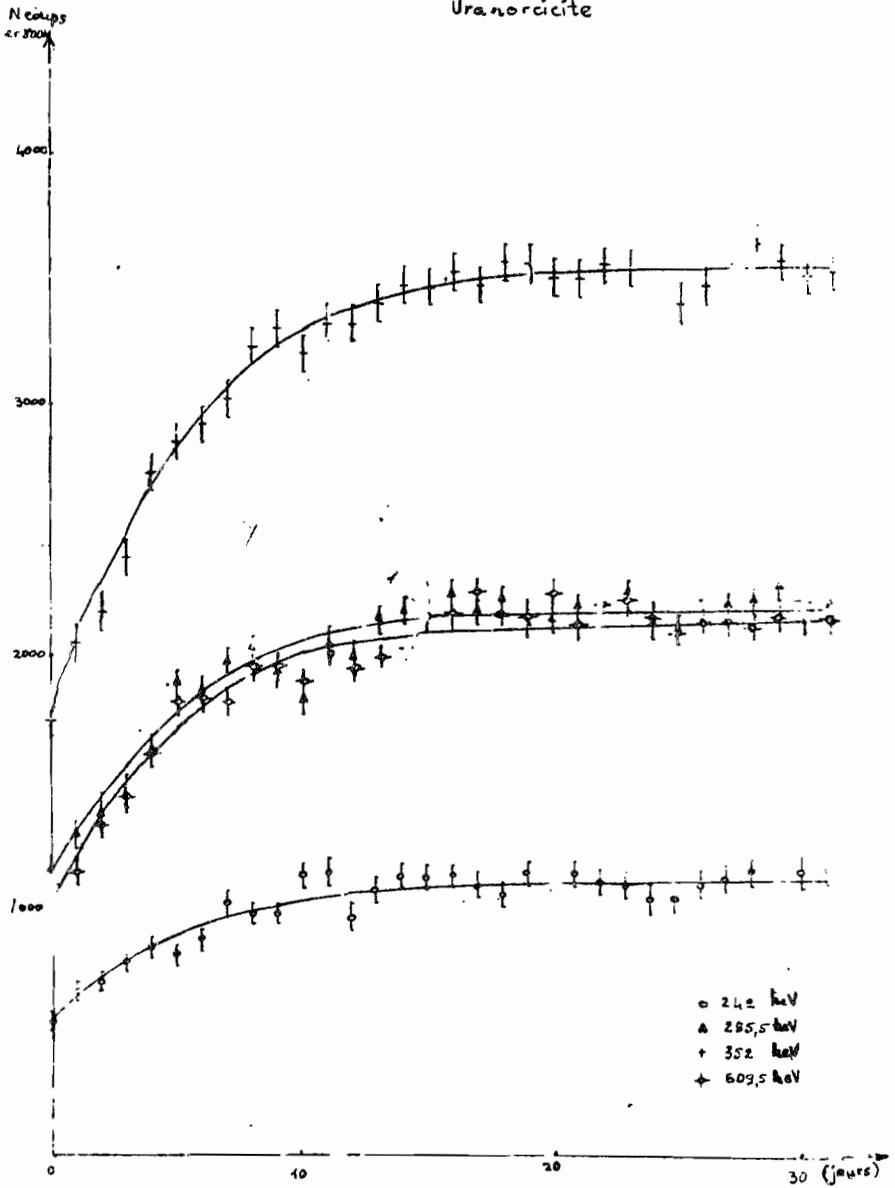
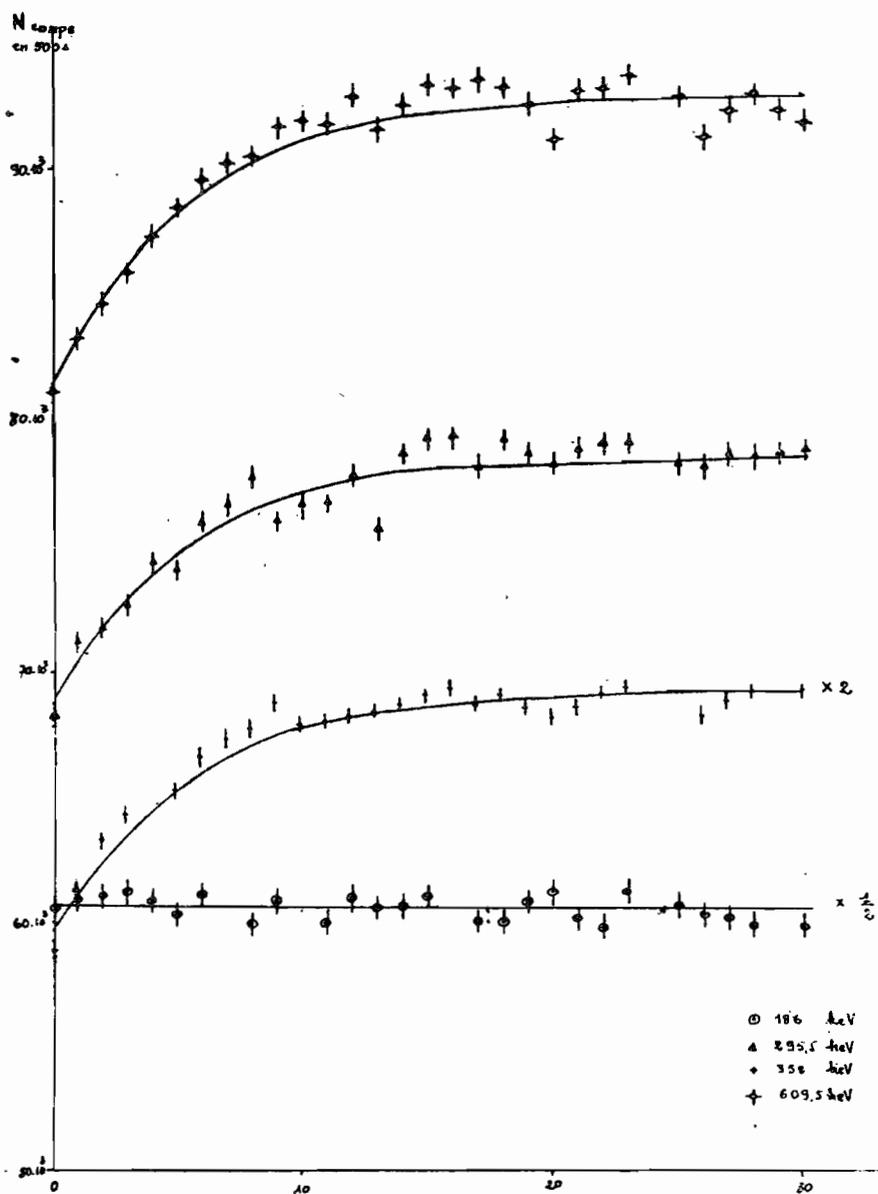


Fig. IV, 6
Euxénite



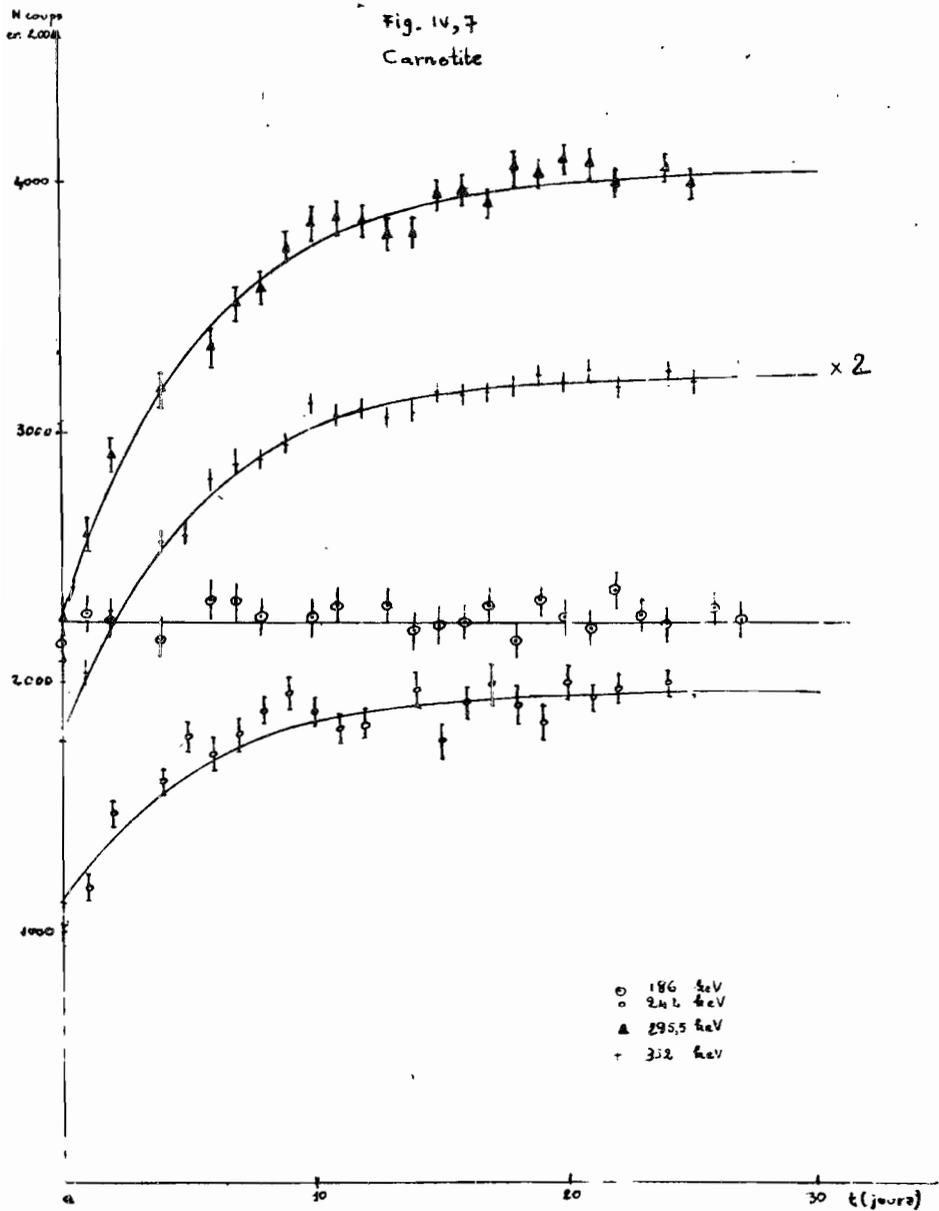


Fig IV, 8
Autunite

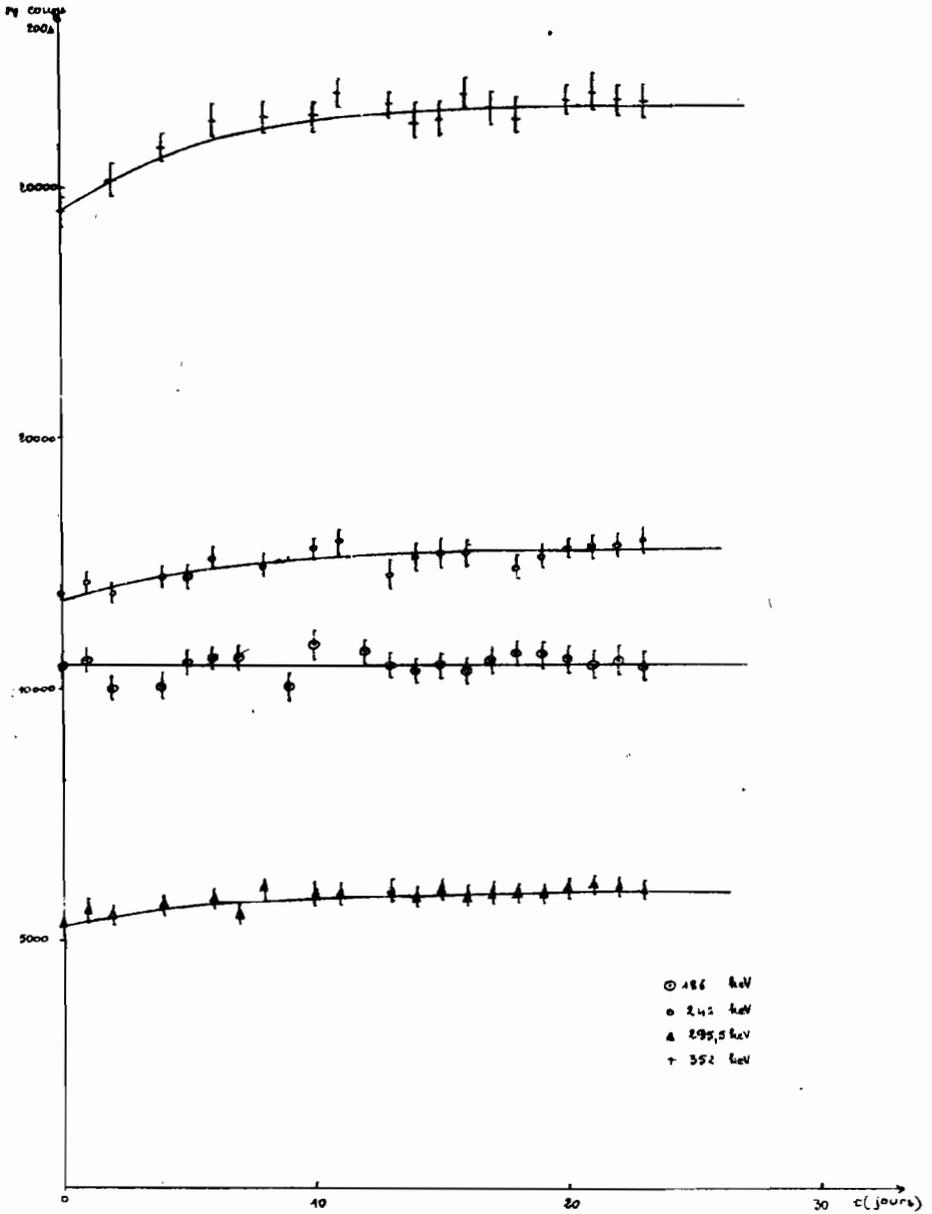


Fig. IV, 9
Microsyenite

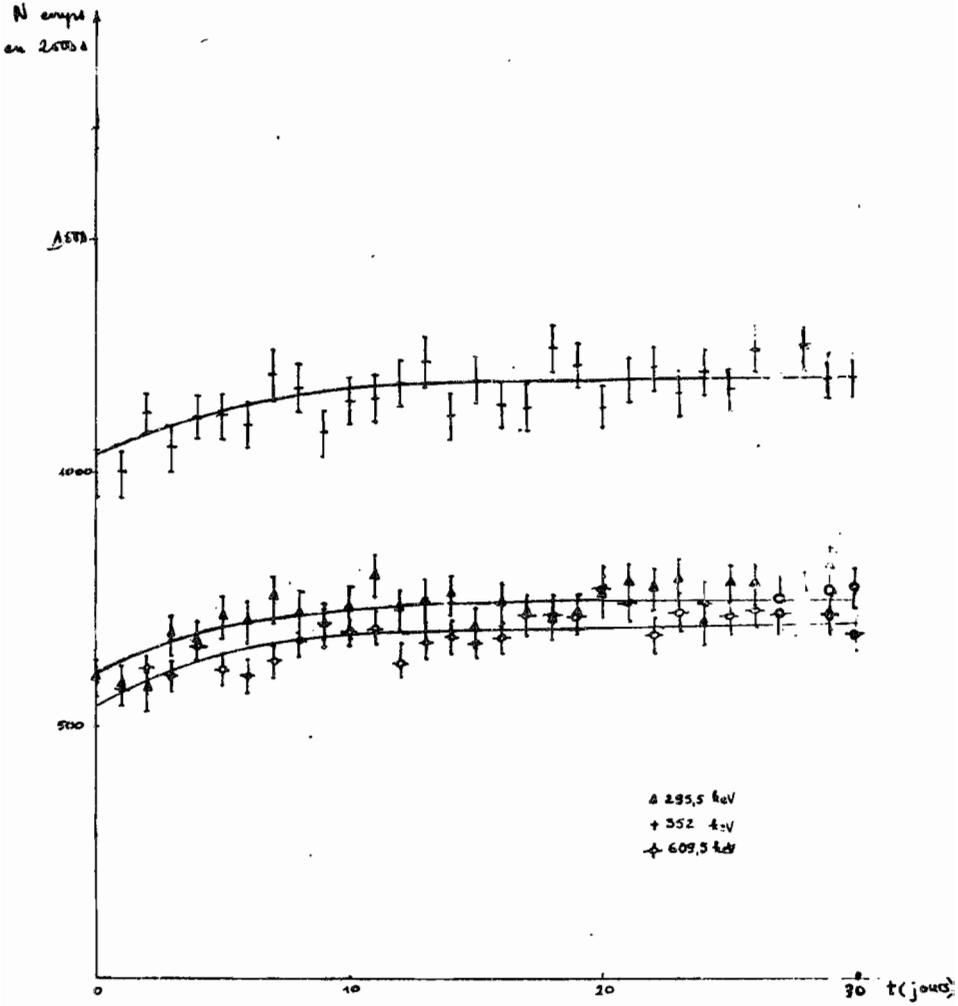


Fig. 14, 10
Zincon

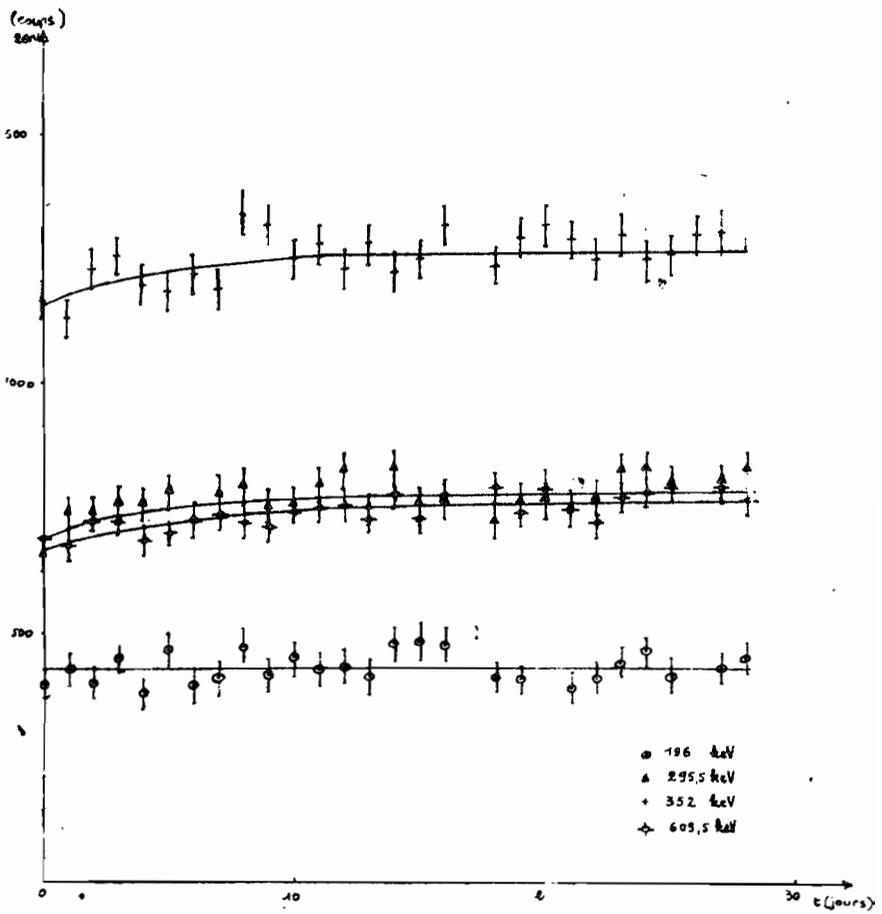


Fig. IV, 11
Oxyde d'uranium (U_3O_8)

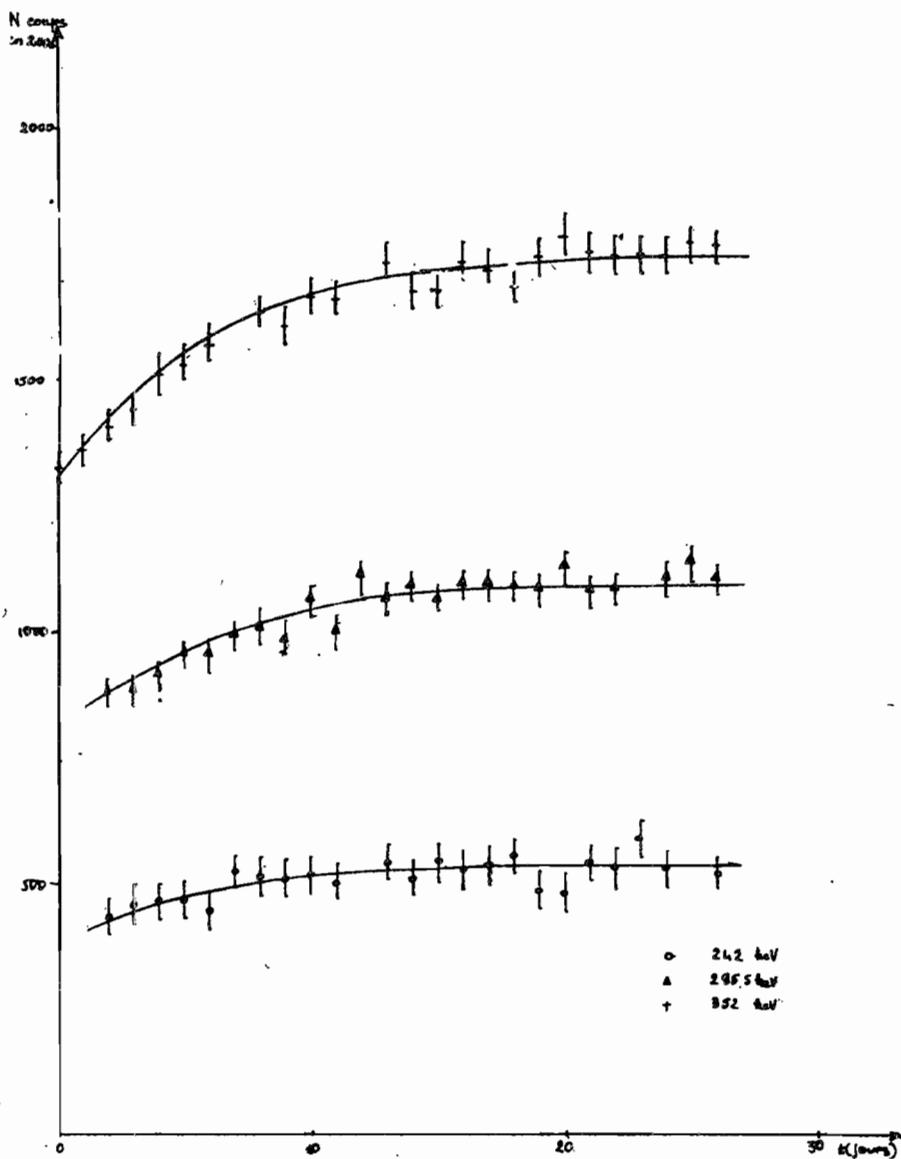


Fig. 11, 12
Monazite

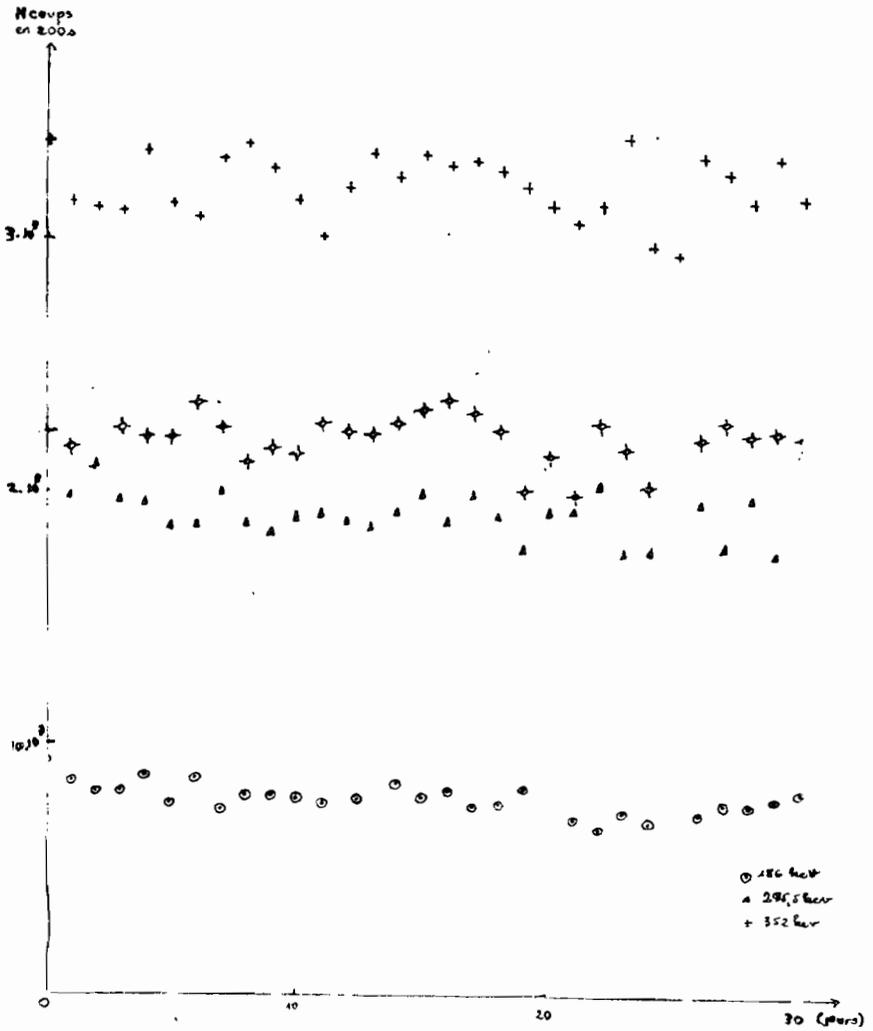


Fig. IV, 13
Cobalt 60

