

# Utilisation des détecteurs polymériques de traces nucléaires (LR 115 et CR 39) pour la mesure de l'émanation en radon des phosphates\*

A. KHALIL\*\*, F. MEMBREY\*\*, M. FROMM\*\*, A. CHAMBAUDET\*\*

(Manuscrit reçu le 10 mai 1993)

**RÉSUMÉ** L'étude présentée ici vise à démontrer la possibilité d'utiliser les détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) pour évaluer le radon émanant des phosphates. A plus long terme, ce gaz radioactif pourrait être employé comme indicateur des radioéléments naturels présents dans ces minerais et dans certains produits dérivés commercialisés. On s'est attaché à définir un dosimètre simple permettant son emploi en grande quantité afin d'étudier les paramètres intervenant dans cette émanation. La fiabilité de la méthode est démontrée par une étude initiale portant sur l'effet de la granulométrie sur cette émanation. Pour cela, deux types de DSTN (LR 115 et CR 39) ont été mis en œuvre, leurs performances étant comparées.

**ABSTRACT** This study aims at demonstrating the possibility of using solid state nuclear track detectors (SSNTD) in order to determine radon emanation out of phosphates. In the future, this radioactive gas could be used as an indicator of the presence of natural radionuclides in these minerals or in commercialized phosphate derivatives. The object of this work was to define a simple dosimeter that could be used for a great number of measurements in order to study the parameters related to the emanation process. The reliability of the method was demonstrated by the study of the particle size effect on emanation. The experiments were carried out using two SSNTD types (LR 115 and CR 39) and their performances were compared.

## Introduction

De par leur mode de formation [14], les phosphates sédimentaires peuvent contenir les éléments des trois familles radioactives naturelles de  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et de  $^{232}\text{Th}$  à l'état de traces (de l'ordre de la centaine de ppm).

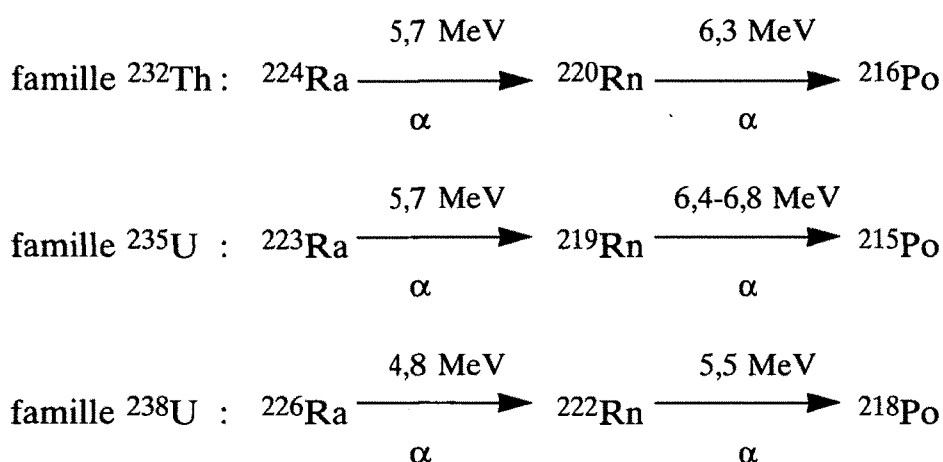
D'après certains auteurs [1, 2], l'uranium se trouve associé sous deux formes à l'apatite sédimentaire, composé essentiel des phosphates : d'une part

\* Cet article développe le contenu d'un "poster" présenté au Congrès IRPA'8, Montréal, 17-22 mai 1992.

\*\* Laboratoire de microanalyses nucléaires, UFR Sciences et techniques, 16, route de Gray, 25030 Besançon Cedex, France.

$U^{4+}$  remplaçant partiellement les cations  $Ca^{2+}$  dans le réseau cristallin grâce notamment à des rayons ioniques voisins (0,97 et 0,99 Å) et d'autre part  $U^{6+}$  qui, ne pouvant entrer dans le réseau, se trouve adsorbé à la surface des cristaux. La forme tétravalente de l'uranium paraît dominer à l'origine au moment de la cristallisation des apatites, alors que la forme hexavalente se développe plutôt ultérieurement.

Si dans ces trois familles peuvent se trouver générés les trois isotopes du radon, selon les désintégrations suivantes :



seul l'isotope  $^{222}\text{Rn}$  est utilisable pour le suivi de la radioactivité des phosphates dans la mesure où sa période de désintégration alpha est la plus longue (3,8 jours) et où il est largement prédominant par rapport aux deux autres isotopes [6]. D'ailleurs, dans le cas des échantillons de phosphates utilisés, les spectres gamma n'ont démontré que la présence significative de  $^{238}\text{U}$  et de ses descendants.

Emanant en permanence des phosphates [3, 10, 12], le radon peut être utilisé comme indicateur des radioéléments présents dans ces minerais. Il pourrait, en l'absence de précautions sur les sites d'extraction ou de traitement, présenter, suite à son inhalation, un risque imputable à sa radioactivité et à celle de ses descendants.

Pour cela, nous proposons ici une méthodologie simple et peu coûteuse permettant la mesure du radon émanant des phosphates, aussi bien en cours d'extraction qu'au cours des traitements industriels ultérieurs. Il s'agit d'une approche par détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN) polymériques sensibles aux émissions alpha des différents radioéléments : le LR 115 (nitrate de cellulose coloré de 12  $\mu\text{m}$  d'épaisseur) et le CR 39 (polycarbonate d'allyle diglycol). Pour cela, nous avons réalisé un dosimètre simple et utilisé ce dernier pour mettre en évidence l'influence de la granulométrie des phosphates sur l'émanation radon. Simultanément, les réponses de ces deux polymères ont été évaluées.

## Conception du dosimètre

Souhaitant réaliser des dosimètres simples et peu coûteux [8], il a été décidé d'utiliser des flacons cylindriques polymériques de 3 cm de diamètre et fermés par un bouchon en polyéthylène (Fig. 1). Sur la face interne de celui-ci est fixé un échantillon de quelques centimètres carrés de DSTN (LR 115 ou CR 39), 10 g de phosphates étant disposés au fond. Un joint à base de mastic siliconé permet d'étanchéifier parfaitement le dispositif. Désirant mesurer uniquement l'émission alpha du radon et de ses descendants, il est nécessaire d'éloigner suffisamment le DSTN de la surface supérieure du phosphate. La détermination de cette distance a été effectuée de deux manières différentes : l'une expérimentale, et la seconde à partir du logiciel TRIM 86 [4] permettant le calcul du parcours des particules alpha dans l'air en fonction de leur énergie.

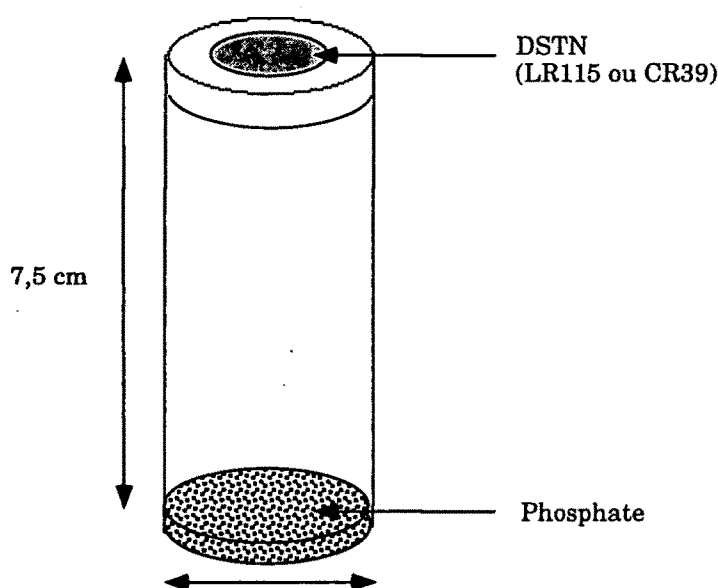
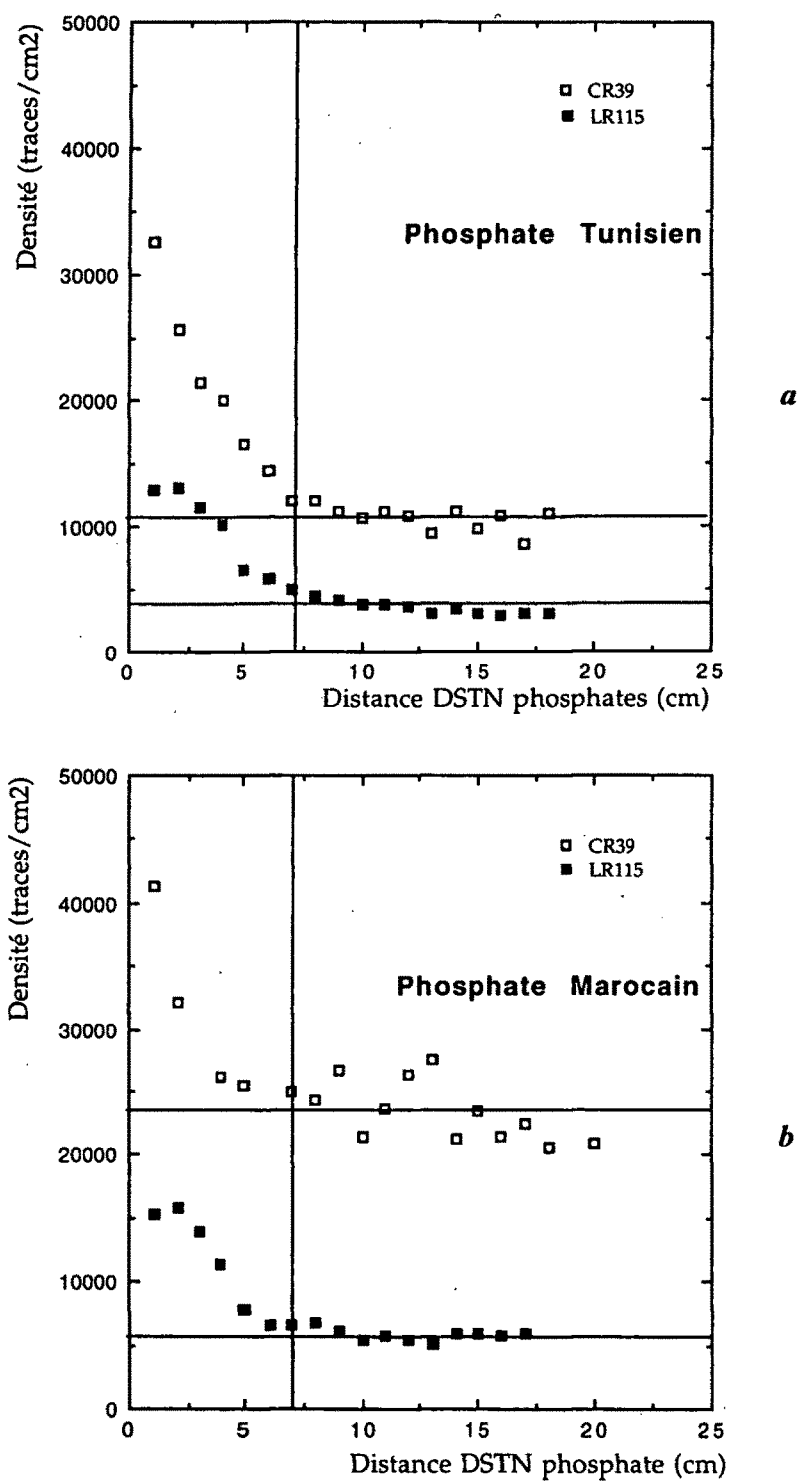


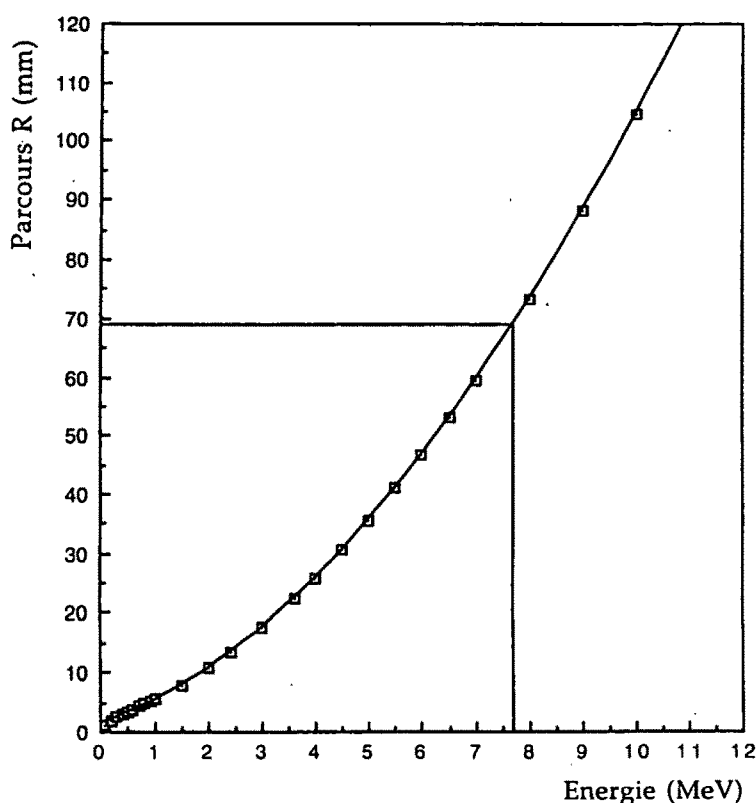
Fig. 1. - Schéma de principe du dosimètre. Dosemeter schematic.

Expérimentalement, il a été utilisé une éprouvette cylindrique contenant 60 g de phosphate. Une bande de DSTN (LR 115 ou CR 39) est disposée le long d'une génératrice du cylindre. Après fermeture et étanchéification, les DSTN ont été ainsi exposés durant 4 semaines. Après développement chimique des traces, on a mesuré les densités de traces en fonction de la distance avec la surface du phosphate. Pour deux types de phosphates, il a été obtenu des résultats présentés à la figure 2. Ils font apparaître dans tous les cas que les densités de traces décroissent entre 0 et 7 cm tandis qu'elles restent constantes, aux incertitudes expérimentales près, pour une distance supérieure à 7 cm. Ceci nous garantit que pour une distance phosphate-DSTN supérieure à 7 cm on ne détectera que les particules alpha émises par le radon et ses descendants présents dans le cylindre d'air mais, en aucun cas, celles émises par les radioéléments présents dans les grains de phosphates.



**Fig. 2. - Evolution, pour le LR 115 et le CR 39, de la densité de traces alpha développées en fonction de la distance avec la surface du phosphate tunisien ou marocain. LR 115 and CR 39 densities of alpha tracks as a function of distance to the surface of Tunisia or Morocco phosphates.**

Ceci a été confirmé par le calcul du parcours des particules alpha dans l'air en fonction de leur énergie à l'aide du programme TRIM 86 (Fig. 3). Toutes les particules alpha émises par les descendants du  $^{222}\text{Rn}$  possèdent une énergie égale ou inférieure à 7,7 MeV.



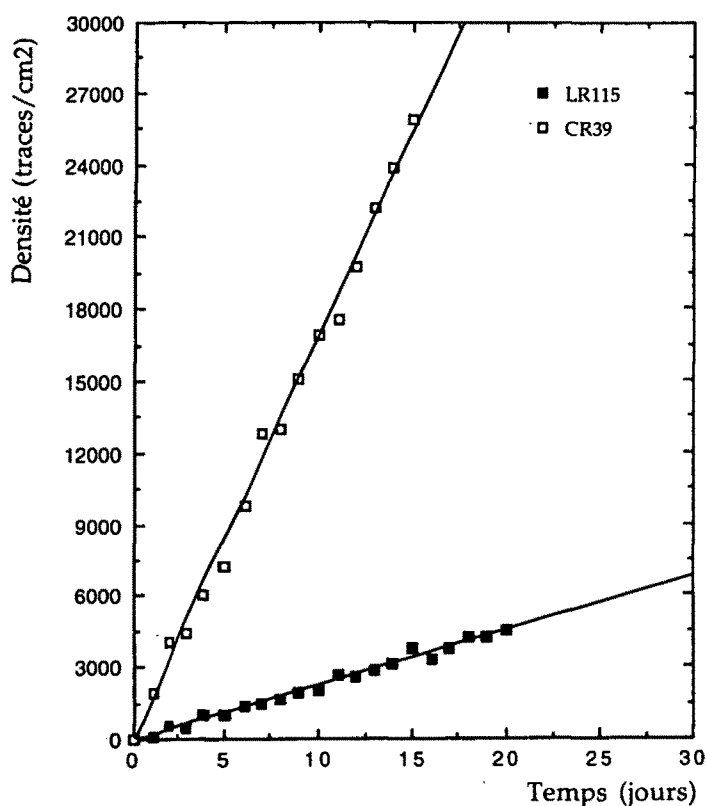
*Fig. 3. – Parcours calculé des particules alpha dans l'air en fonction de leur énergie.  
Calculated alpha particle ranges in air as a function of energy.*

Pour 7,7 MeV, le parcours calculé est de 7 cm, valeur comparable à celle obtenue expérimentalement. Aussi, avons-nous retenu cette dernière valeur pour la distance phosphate-DSTN dans le dosimètre.

### Comparaison des performances de ces deux DSTN

La sensibilité relative de ces deux détecteurs polymériques a été évaluée à l'aide de 35 dosimètres identiques à ceux présentés à la figure 1. Une première série de 20 contenant des échantillons de LR 115, une seconde de 15 contenant des échantillons de CR 39. Chaque dosimètre contenant 10 g de phosphates de même origine. Les DSTN sont enlevés après des temps d'exposition allant de 1 à 20 jours. La figure 4 visualise les résultats obtenus : proportionnalité entre les densités de traces et le temps d'exposition pour chaque type de DSTN et plus grande sensibilité du CR 39 (6,5 fois) par rapport au LR 115. Cette plus grande sensibilité du polycarbonate peut s'expliquer par différentes raisons :

- plage de détection en énergie pour le CR 39 entre 0,1 et 20 MeV plus étendue que celle du LR 115, comprise entre 1,5 et 4,5 MeV ;
- différence du type de traces développées (traces "perforées" pour le LR 115 seules observables et traces en cavité à la surface pour le CR 39) ;



**Fig. 4.** – Variations de la densité de traces alpha développées pour le LR 115 et le CR 39 en fonction du temps d'exposition dans le dosimètre.

*LR 115 and CR 39 density variations of alpha tracks as a function of exposure length in the dosimeter.*

– plage de détection angulaire de l'ordre de 60° pour le CR 39, nettement supérieure à celle du LR 115 [7, 11].

Ce rapport de sensibilité de 6,5 n'a pas, cependant, une valeur universelle dans la mesure où elle dépend des conditions de développement chimique (température et concentration de la solution, temps de développement) et de la géométrie des enceintes utilisées.

Si le CR 39 est dans tous les cas nettement plus sensible que le LR 115, il ne faut pas, cependant, écarter ce dernier, surtout si l'on désire effectuer de très nombreuses mesures lors de travaux de recherche ou de surveillance en radioprotection liés aux phosphates, ce nitrate de cellulose coloré pouvant être exploité à partir de simples mesures photométriques [13] sans comptage précis effectué manuellement ou à l'aide d'un traitement d'image.

La proportionnalité observée pour les deux types de DSTN (Fig. 4) semble en désaccord avec la relation proposée [9] pour la concentration en radon  $A(t)$  dans l'air d'un conteneur renfermant un matériau radifère :

$$A(t) = A_s(1 - e^{-\lambda t})$$

où  $A_s$  est une constante prenant en compte la porosité du matériau, son taux d'émanation en radon, les volumes d'air et du matériau radifère et  $\lambda$  la constante de désintégration du  $^{222}\text{Rn}$ . Le nombre d'émission de particules alpha due au radon pendant un temps  $dt$  et par unité de volume d'air dans le conteneur (ici le dosimètre) peut s'écrire :

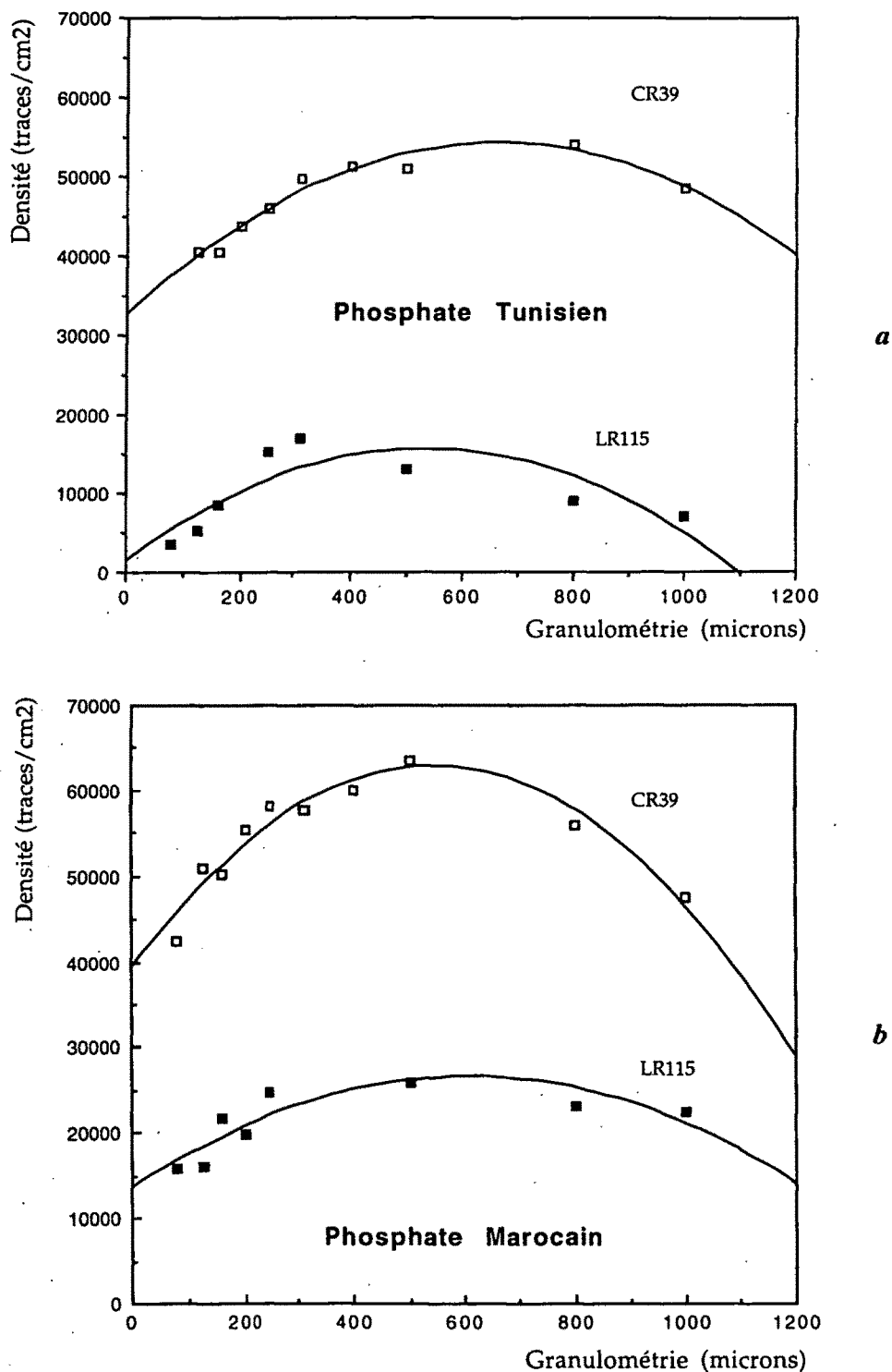
$$dn_\alpha = A_s \lambda (1 - e^{-\lambda t}) dt$$

Pendant un temps  $t$ , il se forme par unité de volume, à partir du radon,  $n_\alpha$  particules alpha, soit :

$$\begin{aligned} n_\alpha &= \int_0^t A_s \cdot \lambda \cdot (1 - e^{-\lambda t}) dt \\ &= A_s [\lambda t + e^{-\lambda t} - 1] \end{aligned}$$

On peut concevoir intuitivement que le nombre de traces développées dues au radon soit proportionnel à  $n_\alpha$ . Si l'on accepte cette hypothèse, on constate que les variations de  $n_\alpha$  ne sont proportionnelles à  $t$  et qu'elles ne suivent une loi linéaire que pour des temps supérieurs à 12 jours, durée à partir de laquelle le terme  $e^{-\lambda t}$  devient négligeable devant la différence  $(\lambda t - 1)$ . La prise en compte des descendants, émetteurs alpha de la famille de  $^{238}\text{U}$ , ne change rien au type de relation liant l'émission alpha au temps, dans la mesure où leurs périodes sont petites par rapport à celles de  $^{222}\text{Rn}$  (3,05 min pour  $^{218}\text{Po}$  et  $1,64 \times 10^{-4}$  s pour  $^{214}\text{Po}$ ). Il en va de même pour les émetteurs  $\beta^-$  intermédiaires (26,8 min pour  $^{214}\text{Pb}$  et 19,7 min pour  $^{214}\text{Bi}$ ). Ceci implique, en effet, une très bonne proportionnalité entre le nombre d'émissions alpha dû au radon et celui dû à ses descendants. La prise en compte d'une faible fraction d'isotopes  $^{219}\text{Rn}$  et  $^{220}\text{Rn}$  ne permet pas, non plus, d'expliquer cette linéarité dès le début de l'exposition. Cette proportionnalité ne trouve pas d'explication actuellement si l'on utilise le modèle proposé [9].

Ces deux DSTN ont été employés pour étudier le rôle de la granulométrie des phosphates sur l'émanation en radon. Deux types de phosphates ont été utilisés ; un premier, provenant du gisement de Gafsa (Tunisie) et le second, du gisement de Ganntour (Maroc). Les échantillons de phosphates bruts ont été tamisés pour obtenir 10 fractions granulométriques comprises entre 80 et 1 000  $\mu\text{m}$ . Les dosimètres présentés précédemment ont été partiellement remplis avec 10 g de chacune des fractions, un morceau de DSTN (LR 115 ou CR 39) étant disposé à l'intérieur du couvercle. La figure 5 présente les densités de traces développées pour ces deux DSTN après 4 semaines d'exposition dans le dosimètre. On y remarque, pour les deux types de phosphates et pour les deux DSTN, que la densité de traces est maximale pour une granulométrie de l'ordre de 600  $\mu\text{m}$ . Ceci démontre donc une émanation massique maximale en radon pour cette granulométrie. Pour les deux phosphates utilisés, on peut évaluer cette émanation massique maximale par la densité de traces par centimètre carré, par jour et par kilogramme de matériau, soit ici  $2,14 \times 10^6$  traces/cm<sup>2</sup> j kg pour le CR 39.



**Fig. 5. – Evolution de la densité de traces alpha développées pour le LR 115 et le CR 39 en fonction de la granulométrie des phosphates tunisien et marocain, après un temps d'exposition de 4 semaines.**

**LR 115 and CR 39 densities of alpha tracks as a function of particle sizes of Tunisia and Morocco phosphates after a 4-week exposure.**



Cette étude est à rapprocher de celle effectuée [5] pour la mesure par spectrométrie gamma du taux d'émanation de radon des phosphates en fonction de leur granulométrie. Cette dernière a montré que ce taux décroît légèrement pour les grains compris entre 0 et 500  $\mu\text{m}$  et qu'il est relativement constant pour les grains de dimension supérieure à 500  $\mu\text{m}$ . Ces résultats diffèrent de ceux présentés ici : en effet, les DSTN permettent l'évaluation de l'émanation du radon sortant des grains de phosphates, celle-ci étant fonction à la fois de la concentration en  $^{226}\text{Ra}$  dans ceux-ci et du taux d'émanation, ce dernier étant le seul paramètre mesuré dans les résultats publiés dans [5].

Aussi, n'est-il pas surprenant que ces deux études portant sur la granulométrie puissent aboutir à des résultats quelque peu différents.

## Conclusion

Nous avons proposé une méthode simple permettant la mesure relative du radon émanant des phosphates. Elle permet une approche économique de ce type de radioactivité. L'étude menée sur la granulométrie met en évidence la fiabilité de cette méthode et laisse entrevoir des potentialités réelles pour l'étude d'autres paramètres intervenant sur cette source de radioactivité ; citons, par exemple : l'origine, la profondeur d'extraction et le traitement industriel appliqué. Il devrait être alors possible d'utiliser cette technique dans un but de radioprotection pour les travailleurs concernés par l'industrie et par les utilisateurs des produits commercialisés. ■

## RÉFÉRENCES

- [1] ALSCHULER Z.S., CLARKE R.S., YOUNG E.J. – The geochemistry of uranium in apatite and phosphorite. U.S. Geol. Surv. Prof. Paper, 1958, 314D, 45-90.
- [2] ALSCHULER Z.S. – The weathering of phosphate deposits, geochemical and environmental aspects. In : Environmental phosphorus handbook. New York : CRC, 1973, 33-96.
- [3] BARILLON R., KLEIN D., CHAMBAUDET A., MEMBREY F., FROMM M. – Additional uses of polymeric nuclear track detectors (CR 39 and LR 115) for measuring radon emanation. Nucl. Tracks Radiat. Meas, 1991, 19, 291-295.
- [4] BIERSAACK J.P., ZIEGLER J.F. – TRIM 86. New York : Pergamon press, 1985.
- [5] CHOUKRI A. – Mise au point d'une méthode d'analyse radiométrique applicable aux phosphates marocains. Etude des teneurs en uranium, des rapports d'équilibre U/Ra et des taux d'émanation du radon 222. Thèse, Université Mohammed V, Rabat, 1987.
- [6] HAFEZ A.F., NAIM M.A. – Plastic nuclear track detection methods for estimation of thorium to uranium ratio in thick natural materials. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., 1992, B69, 373-381.
- [7] JONSSON J., HELLBORG R. – The exposure of plastic films and their response to 1.3-5.5 MeV helium ions. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., 1992, B63, 399-406.
- [8] KHALIL A. – Modèle de dosimétrie des émetteurs alpha présents dans les phosphates marocains par détecteurs polymériques de traces nucléaires. Thèse, Besançon, 1992.

- [9] KORSBECH U. Radon exhalation from samples of danish soils, subsoils and sedimentary rocks. INIS - mf - 9972, 1985.
- [10] LOPEZ A., GUTIERREZ L., RAZO A., BALCAZAR M. - Radon mapping for locating geothermal energy sources. Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res., 1987, A255, 426-429.
- [11] MEMBREY F., FROMM M., EL-RAHMANY A., CHAMBAUDET A. - Critical angle for light ions registered in CR 39 SSNTD : variations with energy, etching conditions and etching time. Nucl. Tracks. Radiat. Meas. (à paraître).
- [12] MORSE R.H. - Radon counters in uranium exploration. *In* : Exploration of uranium ore deposits, Vienna, 29 March-2 April 1976. Vienne : AIEA, 1976, 229-239.
- [13] STREUBEL G., PRETZSCH G., DOERSCHEL B. - Evaluation of solid-state track detectors by measuring light transmission. Kernenergie, 1978, 21 (6), 177-179.
- [14] SLANSKY M. - Géologie des phosphates sédimentaires. Mémoire du BRGM n° 114, 1980.