

Activité du gaz radon dans l'air du sol et sismicité locale : exemple du bassin de l'Arax (Arménie)

Karen Kharatian^{a,b,*}, Yves Travi^a, Valery Igoumnov^c

^a Laboratoire d'hydrogéologie, université d'Avignon, 33, rue Louis-Pasteur, 84000 Avignon, France

^b Faculté de géologie, université d'Erevan, 1, rue Alex-Manoukian, 375049 Erevan, Arménie

^c Service national de la protection sismique, Davidachen Massive-4, 375054 Erevan, Arménie

Reçu le 21 février 2001 ; accepté le 5 novembre 2001

Présenté par Georges Pédro

Abstract – Radon soil-gas concentrations and local seismicity: case of the Arax basin (Armenia). A survey of soil gas radon concentrations has been carried out at three sites, in the seismic area of Armenia, from 1996 to 1999. The seismicity generates opposed behaviours at the different sites. This heterogeneity is related to the sites locations in the tectonic frame. An increase of radon concentration occurs inside the tectonic micro-blocks during local seismic activity. On the contrary, an abrupt co-seismic decrease is recorded close to the fault area. These variations can be due to 'pore-collapse' phenomena which expulse the pore-gas and increases Rn concentration in soil at intra-blocs sites, but also to pore-elastic deformations and microfracturing modifications in the fault area. *To cite this article: K. Kharatian et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 179–185.* © 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

soil gas radon / precursor gas / earthquake / Caucasus / Armenia

Résumé – L'activité du gaz radon du sol a été examinée sur trois sites du bassin de l'Arax, zone sismique d'Arménie, pour la période 1996–1999. La crise sismique de fin 1998–début 1999 engendre des comportements opposés sur ces différents sites. Cette hétérogénéité semble être conditionnée par leurs positions par rapport au cadre tectonique et par les caractéristiques propres des séismes. Une augmentation du radon a été enregistrée dans des micro-blocs tectoniques. Dans la zone de faille, on observe au contraire une baisse pré et co-sismique saccadée de l'activité du radon. Ces variations pourraient s'expliquer par un mécanisme de type *pore-collapse* qui, en expulsant les gaz des pores, augmente leur concentration dans le sol sur les sites intra-blocs, mais aussi par des déformations poro-élastiques et des modifications de la microfracturation dans la zone de faille. *Pour citer cet article: K. Kharatian et al., C. R. Geoscience 334 (2002) 179–185.* © 2002 Académie des sciences / Éditions scientifiques et médicales Elsevier SAS

radon du sol / gaz précurseur / séisme / Caucase / Arménie

Abridged version

1. Introduction

Radon (Rn) generated in rocks remains partly in the solid matrix, but some moves to pore fluids, in which it can migrate away through interconnected pores, fissures, and aquifers, and then reaches subsurface by diffusion and fluid flow. The earth's outgasing process is controlled by the distribution and the stress conditions of numerous fractures in the crust [13, 14, 20].

The association between earthquakes and anomalies in soil-gas Rn concentrations has been intensively investigated for more than 40 years. The most frequent precursory anomalies are increases in Rn activities during seismic events. The apparent duration and amplitude of such anomalies are very variable [9, 14, 20].

This article presents observations of Rn activity at three sites (Dvin, Metsamor, Aruch) in the Arax basin from October 1998 to February 1999, where simultaneous large variations are observed during a period of local seismic ac-

* Correspondance et tirés à part.
Adresses e-mail : karen.kharatian@univ-avignon.fr
(K. Kharatian), valery@nssp.r.am (V. Igoumnov).

tivity. The data has been acquired by the National Survey of Seismic Protection of Armenia.

2. Geological setting

The main specific tectonic characteristics of the Armenian Upland are conditioned by its location in the centre of the collision zone of the Arabian and Eurasian lithosphere plates. The Arabian plate displacement to the north is realised by southern compression and shortening of the Armenian Upland [10]. This tectonic produces a permanent micro-seismic activity in the region.

The Arax sedimentary basin in southwestern Armenia is limited by large faults, most of them being seismically active (Fig. 1). The main faults are either strike-slip (Garni), reverse (Arax–Vedi) or normal faults [10].

Metsamor and Aruch observations sites are located in the north of the basin, on each side of the Arax fault and inside a tectonic microblock. The Dvin site, in centre of the basin, is located near the Arax–Vedi fault.

From 1996 to 1999, anomalous variations of Rn activity at these sites are observed during 14 local earthquakes with magnitude from 3.3 to 4.7. The epicentres are generally located near the active faults.

The integrated average Rn activity is continuously measured in the shallow (2 m depth) soil layer by BARASOL automatic station [1].

3. Observations

In this study, we mainly discuss the Rn activity simultaneous variations occurring at the three observation sites during the period 1998–1999. At the Metsamor and Aruch sites, the Rn activity increases considerably with the values, reaching more than $x + 3\sigma$ (x is the average and σ is the standard deviation for the observation period [3]). At the same time, drastic and abrupt decreases are observed at the Dvin site. The duration of variations is about one month at Metsamor and Aruch sites, and is about three months at the Dvin site (Fig. 4).

No hydrometeorological drastic changes have been recorded during this period [11], but an increasing local seismicity is observed. At the time of these variations, six seismic events, with a magnitude from 3.3 to 4.7, occurred

in the region. Their epicentres are generally located near the faults affecting the southern part of Arax basin. Taking into account its global evolution (Fig. 2), we think that the Rn activity variations are induced by seismic events.

4. Discussion and conclusion

The internal (emanation rate, rock permeability and micro-fracturing) and external (hydrometeorological conditions) factors control the soil-gas Rn activity [7]. No external factors change has been observed during the study period. The Rn activity brutal variations are thus induced by internal factor.

The local seismic events can entail the Rn anomalies according to the ‘pore-collapse’ model [20, 22]. Theoretically and according to this model, tectonic stresses conditions prior to an earthquake entail pre-existing pore collapses and expel chemically distinct pore fluids and gas into the circulating groundwater system. Such phenomenon are able to generate chemical and soil-gas anomaly which are detectable at the surface. So, soil-gas Rn activity increases in the range of 2–3 are possible [22]. This model can explain the anomalous increases at Metsamor and Aruch intrablocks sites during the seismic events Nos 4 and 5. These increases are not simultaneous, probably due to their location relative to epicentres. The epicentres of events Nos 4 and 5 and the Metsamor site are located on the same side along the fault, whereas the Aruch site is on the opposite side.

At the Dvin site, the abrupt decreases are probably conditioned by tectonic stress modifications in the Arax–Vedi fault area before and during the seismic events. The elastic deformations and rocks microfracturing modifications can change the time path between the emission deep zone and the surface. This rare reaction has already been observed [21, 24]. We suggest that seismic events Nos 4–6 can be responsible for these decreases. Therefore, we think that the heterogeneity of Rn activity responses to these local earthquakes can be related to the sites location in the tectonic frame. The opposite reactions to the local seismic activity show that the seismotectonic settings are extremely complex. It points out the difficulty to interpret the behaviour of seismically-induced Rn variations from one observation site to another during the same event.

1. Introduction

Parmi les gaz issus de l'écorce terrestre, le radon (Rn) est actuellement pressenti comme un précurseur sismique potentiel. Produit de la décomposition radioactive du radium dans la chaîne de l'uranium, il est présent dans la croûte terrestre en faible quantité.

Des trois isotopes existants, le ^{222}Rn possède la demi-vie la plus importante (3,8 j) et paraît ainsi le plus intéressant pour ce type d'études. Le radon

est un gaz inerte, soluble dans l'eau. Libéré dans les roches, il demeure partiellement dans la matrice solide, mais, grâce à sa diffusivité importante, il peut se déplacer dans les aquifères, par les pores et les fissures connectés, et atteindre ainsi la surface. À ce niveau, outre les variations liées à l'apport depuis la profondeur, les concentrations peuvent être modifiées par plusieurs phénomènes naturels. Ainsi, les variations des conditions hydrométéorologiques (précipitations, pression barométrique, température

de l'air) influencent la composition des gaz de subsurface [6, 13].

Les concentrations en Rn sont, par ailleurs, gouvernées par la perméabilité des roches, qui contrôle son échange plus ou moins rapide avec l'air de subsurface. La présence de fractures ouvertes, la morphologie et l'humidité du sol peuvent ainsi entraîner des variations temporelles et spatiales des concentrations en gaz dans le sol [7, 19].

En profondeur, le processus de dégazage est largement contrôlé par la distribution des fractures et microfractures, qui dépend du stade d'évolution des contraintes tectoniques [13, 14, 17].

Les anomalies de la concentration en Rn du sol, associées aux séismes ont été intensivement étudiées durant les dernières décennies [12, 13, 23]. L'anomalie la plus fréquente correspond à une augmentation de l'activité pendant les événements sismiques [5, 12]. Quand elle est antérieure, la période qui sépare l'anomalie du séisme varie de quelques jours [14, 22] à quelques mois [3, 20]. La durée de ces anomalies varie de quelques heures [14] à quelques mois [9, 16]. Leur amplitude est très variable, allant d'une augmentation de 2 à 5 fois par rapport aux valeurs moyennes enregistrées avant le séisme [20].

Le service de la protection sismique d'Arménie (NSSP) possède un réseau de sites d'observations de l'activité du gaz Rn dans l'air du sol couvrant l'ensemble du territoire, et répartis en tenant compte des grands ensembles structuraux.

Ce travail présente et discute les résultats obtenus sur les trois sites expérimentaux situés dans l'unité tectonique constituée par la plaine de l'Arax (Dvin, Metsamor et Aroutch) de 1996 à 1999.

2. Cadre géologique et mesures

Le bassin sédimentaire de l'Arax, situé sur la bordure sud-ouest de l'Arménie, est limité par des failles pour la plupart actives (Fig. 1). Cette activité, liée au poinçonnement de l'avant-pays sud-caucasien par le bloc arménien, se traduit par plus de 200 séismes chaque année, dont certains présentent une magnitude supérieure à 3 [18]. Ces séismes, fréquents dans les zones de jonction des failles majeures (magnitudes parfois supérieures à 6) se produisent également à l'intérieur des blocs [10]. Dans ces derniers, la micro-sismicité quasi-permanente montre l'irrégularité des mises sous contraintes, responsables de déformations poro-élastiques des roches saturées. Ainsi, la tectonique du bassin de l'Arax, soumis à des états de contrainte variables dans l'espace et dans le temps, se caractérise-t-elle par l'existence simultanée de zones en compression (Arax-Védi) et de zones en décrochements extensifs ou décrochements purs, limitant les zones sédimentaires subsidentes [2].

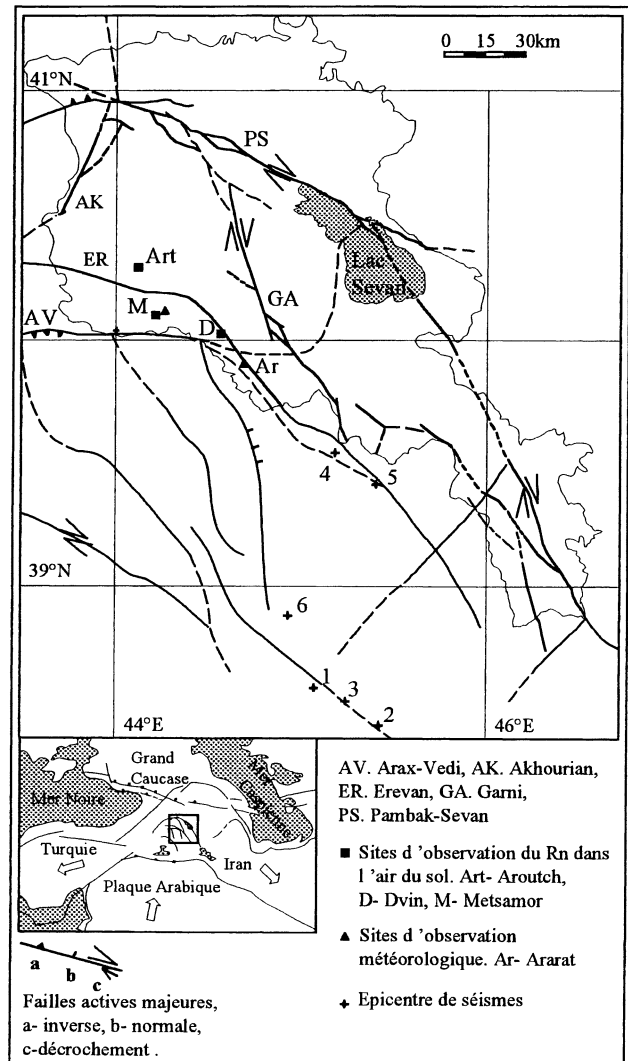


Figure 1. Schéma tectonique de l'Arménie, sites d'observations du radon du sol et épicentres des séismes.

Figure 1. Tectonic map of Armenia, location of the soil-gas Rn observation sites and epicenters of earthquakes.

Les trois stations d'observation du Rn du sol ont été installées fin 1996 au nord (Metsamor, Aroutch) et au centre (Dvin) du bassin de l'Arax. Ce dernier site se situe sur le système de faille Arax-Védi, jalonné par plusieurs sources minérales ; les deux autres, de part et d'autre de la faille d'Arax, se trouvent à l'intérieur des blocs tectoniques. Les sondes Rn sont placées à une profondeur de 2 m. L'unité de mesure est l'impulse min^{-1} (nombre d'impulsions de particules alpha par minute). Les mesures sont réalisées par un appareil Barasol, composé d'une balise statique et autonome mesurant en continue l'activité volumique du radon dans les sols [1]. La balise utilise un détecteur en silicium, protégé par une jupe. Il permet la mesure simultanée des émissions alpha des isotopes 222 et 220 du radon. Un micro-ordinateur associé au

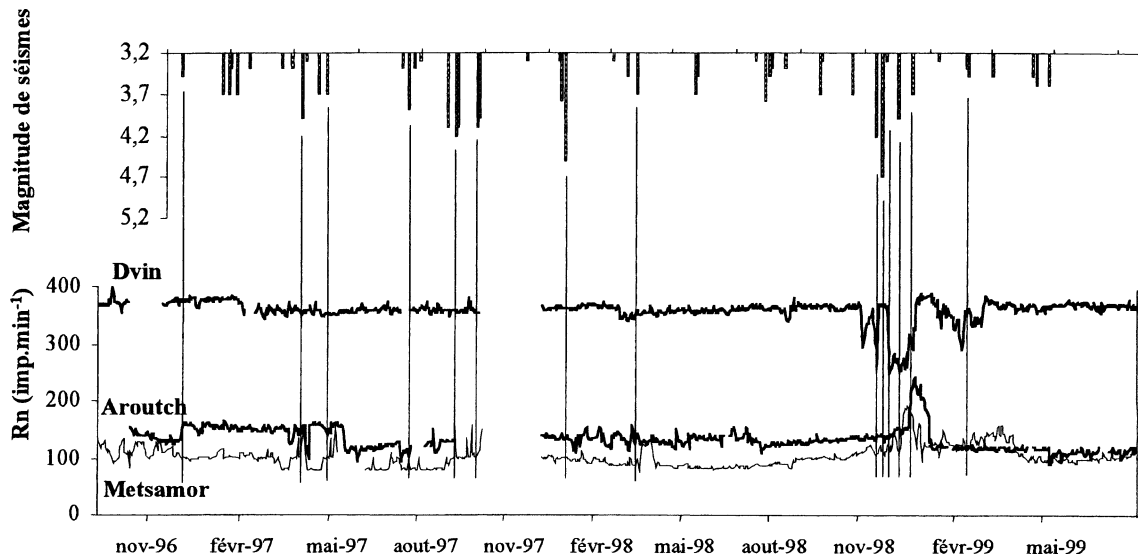


Figure 2. Évolution de l'activité du radon dans le sol sur trois sites d'observations et les séismes enregistrés dans un rayon de 200 km du site Dvin.

Figure 2. Evolution of soil gas Rn activity at three observation sites and seismic events recorded in perimeter of 200 km around the Dvin site.

détecteur initialise l'appareil lors de son implantation et calcule une moyenne journalière, ce qui permet de s'affranchir des variations diurnes, peu significatives dans ce secteur.

3. Observations

L'évolution générale des teneurs en Rn au cours de la période étudiée (Fig. 2) ne paraît pas significativement influencée par les facteurs hydrométéorologiques à l'échelle journalière [11]. Ceci est particulièrement visible sur le site de Dvin, où les teneurs sont relativement stables. Seul le dégel du sol au printemps marque une évolution parfois plus significative. En effet, le gel forme généralement une couche imperméable à la surface du sol pendant l'hiver ; lors du dégel au mois de mars (Fig. 3), les eaux qui s'infiltrent remplissent les pores de la zone non saturée et diminuent ainsi l'activité du gaz en sub-surface. Ce phénomène, bien connu par ailleurs [8, 15], a été souvent observé en Arménie sur l'ensemble des stations [11]. La variation apparaît assez régulièrement, en période non influencée, sur nos trois sites de l'Arax ; elle ne dépasse pas 30 à 40 imp min⁻¹.

Durant la période 1996–1999, le Rn semble avoir réagi (valeurs supérieures à $x + 3\sigma$, où x est la moyenne et σ l'écart type) [3] à l'occasion de 14 séismes locaux, de magnitudes 3 à 4,7, qui présentent des épacentres entre 18 et 156 km [11]. La réponse supposée à ces séismes est irrégulière et différente d'une station à l'autre, ce qui est probablement en relation avec la localisation des épacentres, les magnitudes et l'effet cumulatif des contraintes [23]. On notera une anomalie d'une durée pluri-mensuelle

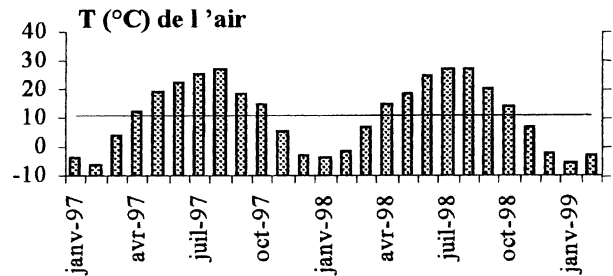


Figure 3. Température moyenne mensuelle à Ararat pendant la période 1997–1999.

Figure 3. Monthly average temperature at Ararat during the 1997–1999 period.

sur le site d'Aroutch en 1997. Les deux premiers séismes en relation avec cette anomalie sont de magnitude relativement faible, mais montrent des épacentres situés au nord de la faille Arax–Vedi et très proches du site d'Aroutch.

Sur l'ensemble de l'unité tectonique du bassin de l'Arax, 51 séismes de magnitude supérieure à 3 ont été relevés pour la même période [18]. Ils sont généralement très dispersés à l'exception des deux séismes précédemment cités, et ceux de la période fin 1998–début 1999. L'apparition du signal Rn, assez peu systématique, correspond généralement aux séismes de plus forte magnitude, situés à proximité des failles de la zone sud.

L'époque fin 1998–début 99 est particulièrement intéressante, car on observe six séismes concentrés à la fois dans le temps et dans l'espace, provoquant des variations importantes et simultanées sur les trois sites. Ces anomalies correspondent globalement à une augmentation de l'activité en Rn sur les sites

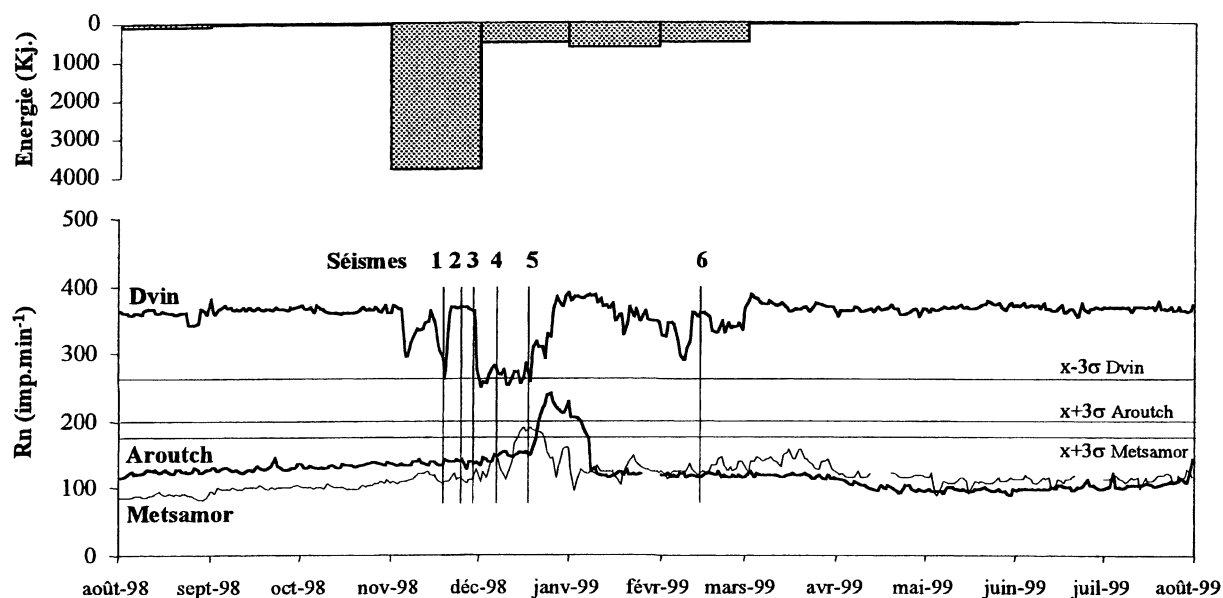


Figure 4. Évolution de l'activité du radon dans le sol sur trois sites d'observations et énergie libérée par la sismicité locale.

Figure 4. Evolution of soil gas Rn activity at three observation sites and local seismic energy.

Tableau 1. Liste des séismes ayant affecté le bassin de l'Arax de novembre 1998 à février 1999.

Table 1. List of earthquakes having affected the Arax basin from November 1998 to February 1999.

Numéro	Date	Latitude	Longitude	Magnitude
1	18/11/98	38°35	45°05	4,2
2	23/11/98	38°21	45°24	4,7
3	27/11/98	38°32	45°10	3,3
4	08/12/98	39°30	45°08	4
5	21/12/98	39°24	45°34	3,7
6	14/02/99	38°55	44°58	3,5

Metsamor et Arouatch et à une diminution importante à Dvin. Sur cette dernière station, des chutes brutales et saccadées perturbent l'allure régulière de la courbe en novembre 1998, avec des valeurs inférieures à $x - 3\sigma$. Un mois après, elles retrouvent leur niveau initial (Fig. 4). Une autre chute saccadée, moins importante, se produit à Dvin en janvier–février 1999.

À cette époque, les deux stations météorologiques du bassin (Fig. 1) n'ont relevé aucune variation brutale des conditions météorologiques (pluviométrie, température et pression atmosphérique), tandis que l'hiver 1999 se situe dans une année normale (Fig. 3). Pour la même période, nous avons calculé l'énergie libérée par l'ensemble des événements sismiques de magnitude supérieure à 2 affectant la région. Cette énergie ($E = 10^k$, avec k la classe énergétique du séisme, $k = 1,8M + 4$ pour $M < 6$) est calculée en faisant la somme des énergies libérées par chaque séisme au cours de la période considérée (Fig. 4). Les variations importantes du Rn correspondent à une

période marquée à son début par une forte activité et comprenant six événements sismiques majeurs, de magnitudes comprises entre 3,3 et 4,7 (Tableau 1), dont les épicentres se situent généralement dans les zones des failles affectant le Sud du bassin de l'Arax. La distance entre les épicentres et le site Dvin varie de 65 à 135 km (les distances entre Metsamor et Dvin, Arouatch et Dvin sont respectivement de 20 et 30 km).

Il semble que les augmentations presque simultanées de l'activité du Rn sur les sites de Metsamor et d'Arouatch soient provoquées par les événements 4 et 5. À Metsamor, six jours après le séisme 4 et sept jours avant le séisme 5, l'activité du Rn double et reste élevée pendant presque un mois. À Arouatch, elle augmente rapidement le jour même du séisme 5.

À Dvin, des chutes saccadées de l'activité se produisent avant les six séismes et se prolongent pendant presque trois mois. La chute la plus importante et durable de l'activité (plus d'un mois) est observée quelques jours avant le séisme 4.

Le caractère exceptionnel de ces variations sur la période 1996–1999 peut laisser subsister un doute quant à leur origine sismique ; cependant, l'amplitude de ces variations et l'absence d'anomalies météorologiques permettent de l'envisager sérieusement.

4. Discussion et conclusion

L'activité du Rn dans l'air du sol près de la surface est contrôlée par des facteurs internes (vitesse d'émanation, micro-fracturation des roches) et externes (conditions hydroclimatologiques) [13, 20].

Les interactions entre ces différents effets peuvent produire des variations importantes. Les facteurs externes n'ayant pas montré de variations significatives au moment de notre étude, il est probable que les variations brutales de l'activité en Rn sont conditionnées par les facteurs internes. Ainsi, les événements sismiques peuvent expliquer l'origine des anomalies du Rn du sol, entre autres grâce au mécanisme de *pore-collapse* [20, 22, 23]. Selon ce modèle, la libération des contraintes associées aux séismes modifie brutalement, en les cassant, la pression des pores existants [4]. Elle expulse les fluides et les gaz contenus dans ces interstices vers les eaux souterraines ou vers la surface, déplaçant ainsi l'équilibre du Rn dans le sol et engendrant une augmentation de son activité pendant les séismes. La libération des gaz selon ce modèle peut contribuer à l'augmentation des concentrations du Rn de deux à trois fois par rapport à leur valeur moyenne [22]. Il est possible d'invoquer ce mécanisme pour expliquer les augmentations brutales de l'activité du Rn sur les deux sites intra-blocs de Metsamor et d'Aroutch à l'occasion des séismes 4 et 5. Un décalage de dix jours entre ces réponses est cependant observé. La position des sites par rapport aux épicentres des séismes pourrait justifier cette différence : le site de Metsamor et les épicentres 4 et 5 se trouvent sur le côté sud du système Arax–Vedi, Aroutch est situé sur l'autre côté de la faille.

À Dvin, les diminutions saccadées de l'activité du Rn se prolongent trois mois, tandis qu'à Metsamor et à Aroutch, les variations ont duré seulement un mois et ont démarré plus tardivement. Elles sont très probablement conditionnées par la modification des contraintes dans la zone des failles Arax–Vedi avant l'événement sismique. Les déformations poroélastiques et les modifications de microfracturation des roches peuvent engendrer un temps de parcours plus important entre les zones d'émission du Rn et la surface. À Dvin, du fait de sa courte demi-

vie, le Rn se retrouverait donc dans le sol avec des teneurs faibles, avant même l'événement sismique. Bien que rarement observée, cette réaction du Rn a déjà été notée [21, 24], tandis que certaines études suggèrent même que les diminutions à court terme de l'activité en Rn puissent être considérées comme des précurseurs sismiques [22].

On constate que les séismes 4 et 5 sur les sites Aroutch et Metsamor et 4, 5 et 6 à Dvin semblent engendrer des modifications importantes du comportement du Rn. Les épicentres des événements 4 et 5 sont situés dans la zone des failles Arax–Vedi. Ceci nous conduit à penser que la position de l'épicentre des séismes par rapport aux sites d'observation est donc un facteur très important dans la réponse du Rn.

Les variations opposées, enregistrées sur le site de Dvin par rapport à Aroutch et Metsamor et associées à une même activité sismique, sont à mettre en relation avec la position du site par rapport aux failles majeures. Ainsi, parmi ces trois sites, Dvin, situé sur la faille même est le plus intéressant et paraît pouvoir être utilisé pour la prévision, si on peut confirmer, dans les années à venir, les variations pré-sismiques de l'activité du Rn. Ce site mériterait donc qu'on l'étudie plus en détail et qu'on instrumente davantage la zone de faille. Les observations sur les stations intra-blocs (Aroutch et Metsamor) apportent des informations complémentaires à la compréhension des réponses du Rn à l'activité sismique. Comme on le pense généralement, les critères éventuels de prévision sont liés au contexte local. L'utilisation du Rn comme indicateur pré-sismique nécessite donc, comme dans le cas des précurseurs hydrochimiques, une excellente définition du contexte sismotectonique régional, mais également une bonne connaissance des paramètres géologiques locaux et des caractéristiques physiques des milieux déformés (porosité, perméabilité, élasticité).

Références

[1] Algade, Système Barasol, Notice d'utilisation et de maintenance des balises Barasol – Modèle de série, document n° XT-XFAB540-200, MEAP. 3. Mesure de l'énergie alpha potentielle volumique – Notice d'utilisation et de maintenance, Algade instrumentation, 1996.

[2] F. Arthaud, V. Léonardi, A. Avanesian, A. Avagyan, J.-C. Grilhot, Effets des déformations tectoniques sur le comportement hydraulique d'un aquifère artésien dans une région sismique (Arménie), Bull. Soc. géol. France 169 (4) (1998) 579–588.

[3] V.L. Barsukov, G.M. Varshal, N.S. Zamokina, Recent results of hydrochemical studies for earthquake prediction in USSR, Pure Appl. Geophys. 122 (1984–1985) 143–156.

[4] P. Bernard, Plausibility of long distance electrotelluric precursors to earthquakes, J. Geophys. Res. 97 (1992) 17531–17546.

[5] G.F. Birchard, W.F. Libby, Soil radon concentration changes preceding and following four magnitude 4.2–4.7 earthquakes on the San Jacinto Fault in southern California, J. Geophys. Res. 85 (B6) (1980) 3100–3106.

[6] C. Chen, D.M. Thomas, R.E. Green, Modeling of radon transport in unsaturated soil, J. Geophys. Res. 100 (1995) 15517–15525.

[7] G. Dongarra, G. Martinelli, Migration processes of radon towards the earth surface: implications for the prediction of seismic and volcanic events, in: Scientific meeting on the seismic protection, Venice, Italy, 12–13 July 1993, pp. 141–147.

[8] L. Eisenlohr, H. Surbeck, Radon as natural tracer to study transport processes in a karst system. An example in the Swiss Jura, C. R. Acad. Sci. Paris, série IIa 321 (1995) 761–767.

[9] G. Igarashi, S. Saeki, N. Takahashi, K. Sumikawa, S. Tasaka, X. Sasaki, M. Takahashi, Y. Sano, Groundwater radon anomaly before the Kobe earthquake in Japan, Science 269 (1995) 60–61.

- [10] A. Karakhanian, Active faults of the Armenian upland, in: Scientific meeting on the seismic protection, Venice, Italy, 12–13 July 1993, pp. 88–92.
- [11] K. Kharatian, Comportement chimique et isotopique des eaux souterraines en zone sismique : bassin de l'Arax et de Sevan (Arménie), thèse, université d'Avignon, 2000, 196 p.
- [12] C.Y. King, B.S. King, W.C. Evans, W. Zhang, Spatial radon anomalies on active faults in California?, *Appl. Geochem.* 11 (1996) 497–510.
- [13] C.Y. King, A. Minissale, Seasonal variability of soil gas radon in central California, *Nucl. Tracks Radiation Meas.* 23 (1994) 683–692.
- [14] C.Y. King, W. Zhang, B.S. King, Radon anomalies on three kinds of faults in California, *Pure Appl. Geophys.* 141 (1993) 111–124.
- [15] R.W. Klusman, J.D. Webster, Preliminary analysis of meteorological and seasonal influences on crustal gas emission relevant to earthquake prediction, *Bull. Seismol. Soc. Am.* 71 (1) (1981) 211–222.
- [16] A. Mogro-Campero, R.L. Fleischer, R.S. Likes, Changes in subsurface radon concentration associated with earthquakes, *J. Geophys. Res.* 85 (B6) (1980) 3053–3057.
- [17] L. Morawska, C.R. Phillips, Dependence of the radon emanation coefficient on radium distribution and internal structure of the material, *Geochim. Cosmochim. Acta* 57 (1993) 1783–1797.
- [18] NSSP, Unpublished catalog of earthquakes of Armenia and neighbouring countries, Thrust at the National Survey of Seismic Protection of Armenia, Yerevan, 1999.
- [19] R. Robinson, N.E. Whitehead, Radon variations in the Wellington region, New Zealand, and their relation to earthquakes, *Earthquake Prediction Res.* 4 (1986) 69–82.
- [20] S.D. Schery, D.H. Gaeddert, M.H. Wilkening, Transport of radon from fractured rock, *J. Geophys. Res.* 87 (B4) (1982) 2969–2976.
- [21] P. Talwani, W.S. Moore, J. Chiang, Radon anomalies and microearthquakes at Lake Jocassee, South Carolina, *J. Geophys. Res.* 85 (1980) 3079–3088.
- [22] D. Thomas, Geochemical precursors to seismic activity, *Pageoph* 126 (1988) 241–266.
- [23] J.-P. Toutain, J.-C. Baubron, Gas geochemistry and seismotectonics: a review, *Tectonophysics* 304 (1999) 1–27.
- [24] N.E. Whitehead, G.L. Lyon, Application of a new method of searching for geochemical changes related to seismic activity, *Appl. Radiat. Isotopes* 51 (1999) 461–474.