

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEINGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA REPUBLIQUE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE FRERES MENTOURI CONSTANTINE1

FACULTE DES SCIENCES EXACTES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre 132/DS/2018

Série..10/Phy/2018

THÈSE

PRESENTÉE POUR L'OBTENTION DU DIPLOME DE DOCTORAT

EN SCIENCES EN PHYSIQUE

SPECIALITÉ

PHYSIQUE DES RAYONNEMENTS ET APPLICATIONS

**Étude de la radioactivité naturelle et artificielle dans les
fertilisants et le sol de l'Est algérien par spectrométrie
gamma.**

Par

Amina BRAMKI

SOUTENUE LE :16/07/2018

Devant le jury :

Président :	Z. OUILI	Prof.	Univ. Frères Mentouri – Constantine 1
Rapporteur :	M. RAMDHANE	Prof.	Univ. Grenoble Alpes – Grenoble
Co- Rapporteur :	F. BENRACHI	Prof.	Univ. Frères Mentouri – Constantine 1
Examineurs :	H. AMMI	DR.	Centre de Recherche Nucléaire – Alger
	A. BOUCENNA	Prof.	Univ. Ferhat Abbas – Sétif 1
	A. BELAFRITES	Prof.	Univ. M ^{ed} Seddik Ben yahia – Jijel

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier Dieu le tout puissant et miséricordieux, qui m' a donné la force et la patience d'accomplir ce Modeste travail.

Je tiens à remercier en second lieu mon directeur de thèse monsieur Mourad RAMD-HANE pour m'avoir accueilli au sein du groupe de laboratoire des basses activités LBA/LPSC de Grenoble. Je lui suis très reconnaissante pour tout le temps qu'il m'a accordé malgré un agenda de travail longue, ses qualités pédagogiques et scientifiques, sa sympathie et sa franchise. J'ai beaucoup appris à ses ctes et je lui adresse ma gratitude,vraiment il m'a données une opportunité en or dans le domaine de la recherche scientifique.

Je ne saurai trop exprimer mes remerciements a Madame Fatima Benrachi professeur a l'Université des Frères Mentouri - Constantine 1, qui m'a accepté de superviser cette thèse, et qui m'a fait confiance pour mener a bien ce travail.

Je tiens a exprimer mes remerciements aux membres du jury qui ont accepté d'évaluer et examiner mon travail de thèse. Merci a Monsieur Z. Ouili professeur a l'Université des Frères Mentouri - Constantine 1, vice doyen Post Graduation de la faculté des sciences exacte, de m'avoir fait l'honneur d'accepter la présidence du jury de cette thèse. Merci a Monsieur H. Ammi directeur de recherche aux centre de recherche nucléaire d'Alger, a Monsieur A. Boucenna professeur a l'Université Ferhat Abbas de Sétif 1, et a Monsieur A. Belafrites professeur a l'Université Mohamed Seddik Ben yahia de Jijel, d'êtres mes examinateurs.

J'adresse ma gratitude aux directeurs des deux fermes pilote et privée de la région d'El Athmania et Ferdjioua respectivement, Mila, Algérie Monsieur Boucenna Hocine et Monsieur Bouguerza Mebrouk pour m'avoir accueilli dans ses fermes.

Un grand merci à tous les collègues de laboratoire de Physique Mathématique et Subatomique de l'Université des Frères Mentouri - Constantine 1, qui ont contribué de façon directe ou indirecte à mener à terme ce travail. Je tiens également à remercier

tous les membres de laboratoire de physique subatomique et de cosmologie de Grenoble (LPSC) pour m'avoir bien intégré parmi eux. Un merci particulier pour Monsieur Ivan GRACHEV, doctorant au laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie pour ses remarques sur la compréhension de la physique et la rédaction du manuscrit en particulier. J'aimerais aussi adresser mes remerciements à tous mes amis qui m'ont accompagné pendant cette thèse.

La thèse a parfois été un moment difficile pour mes proches. J'avoue ne pas leur avoir consacré le temps qu'ils méritent. Mon mari, Mes enfants, je vous remercie énormément pour ta présence, ton soutien et tes encouragements incessants. Un remerciement particulier et spécial pour mes parents, sans eux, je n'aurais pas cette occasion d'effectuer une thèse de doctorat. J'ai envie d'adresser mes chaleureux remerciements pour mon frère Adem ,mes deux sœurs, mes beaux frères, mes belles sœurs, mon beau père, ma belle mère pour leur présence et soutiens infailibles. Un grand merci pour mon frère Zakaria pour m'avoir aidé à récolter les échantillons de cette étude.

À mon père, ma mère, mes frères, mes soeurs,
À Mon mari, mes deux enfants Mohamed Amdjed et Yasmine.

Table des matières

Liste des tableaux	iv
Table des figures	vi
Introduction	1
1 Radioactivité-Radionucléide et Techniques de mesures actuelles	3
1.1 La radioactivité naturelle	4
1.2 Les sources de radioactivité naturelle	5
1.3 Les types de la radioactivité	6
1.4 La radioactivité d'une chaîne	7
1.5 Équilibres radioactifs	9
1.5.1 Équilibre idéal	9
1.5.2 quilibre de régime	10
1.5.3 Équilibre séculaire É.	10
1.6 Généralité sur l'uranium et Thorium	11
1.6.1 l'Uranium	11
1.6.2 Thorium	21
1.7 Technique de mesure nucléaire	26
1.7.1 Les méthodes de mesures destructives	26
1.7.2 Les Méthodes de mesures non destructives	27
2 Spectrométrie Gamma et la détection des radiations	32
2.1 Quelques notions sur les rayonnements Gamma	33
2.2 Les interactions gamma/matière	34
2.2.1 L'absorption photoélectrique	34
2.2.2 La diffusion Compton	35
2.2.3 La production de paires	37
2.2.4 Section efficace et coefficient d'atténuation	38
2.3 La spectrométrie Gamma	40
2.4 La détection des radiations	41
2.4.1 Les semi-conducteurs	42

2.5	La chaine de mesure pour la spectrométrie gamma : du détecteur germanium au signal numérique	46
2.5.1	Le détecteur germanium hyper-pur	46
2.5.2	Détecteur planaire	47
2.5.3	Détecteur coaxiale	48
2.5.4	l'électronique de mise en forme	52
3	La partie expérimentale	56
3.1	Préparation des échantillons	57
3.1.1	Echantillonnage	57
3.1.2	Situation géographique des zones étudiées	58
3.1.3	Conditionnement	58
3.2	La chaine de spectrométrie gamma au LBA	60
3.2.1	Les détecteurs	61
3.2.2	Préamplificateur	65
3.2.3	Amplificateur	65
3.2.4	CAN	66
3.2.5	Analyse par le logiciel InterWinner	66
3.2.6	Résolution	67
3.3	Calibration de la chaine de mesure Gamma	67
3.3.1	Étalonnage en énergie	67
3.3.2	Étalonnage en efficacité	70
3.4	Procédure et mesures	74
3.4.1	Bruit de fond	74
3.4.2	Identification et quantification des radionucléides	76
3.5	Présentation des résultats	79
3.5.1	Identification de codage des échantillons	79
3.5.2	Concentrations des activités	81
3.5.3	Facteurs radiologiques	83
4	Interprétation et Discussion	91
4.1	Description générale des résultats	92
4.1.1	Les échantillons de sol	92
4.1.2	les fertilisants	100
4.1.3	Facteurs radiologique	107
4.1.4	Comparaison entre la radioactivité des deux fermes pilote et privé	112
4.2	Analyses statistiques des données	119
4.2.1	Statistiques descriptives	119
4.2.2	Corrélations entre les concentrations des radionucléides naturels ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons de sol	121

4.2.3	Histogramme des distributions des fréquences des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K	124
4.2.4	Le coefficient de corrélation de Pearson (PCC)	125
4.2.5	Classification ascendante hiérarchique (CAH)	126
	Conclusion	129
	Bibliographie	131
	Annexes	142

Liste des tableaux

1.1	<i>Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes.</i>	5
2.1	<i>Résumé des différents processus d'interaction rayonnement gamma- matière.</i>	33
2.2	<i>Les principales propriétés des semi-conducteurs les plus couramment utilisés.</i>	44
3.1	<i>Masses des échantillons.</i>	59
3.2	<i>Propriétés du détecteurs Gamma et BeGe.</i>	64
3.3	<i>Valeurs calculées de l'activité minimale détectable (MDA) pour le détecteur gamma et BeGe.</i>	65
3.4	<i>Les raies gamma les plus intenses de la source de ^{152}Eu.</i>	68
3.5	<i>Les différents radionucléides détectés lors de la mesure, Les énergies et les probabilités d'émission Gamma.</i>	78
3.6	<i>Quelques informations sur les échantillons de sol collectés.</i>	80
3.7	<i>Quelques informations sur les échantillons d'engrais collectés.</i>	81
3.8	<i>Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les fertilisant NPK de provenance du Constantine.</i>	82
3.9	<i>Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les échantillons de sol prélevés d'une ferme pilote de provenance du Mila.</i>	82
3.10	<i>Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les fertilisants et les échantillons de sol non fertilisées prélevés d'une ferme pilote de provenance du Mila.</i>	82
3.11	<i>Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les échantillons de sol prélevés d'une ferme privée de provenance du Mila.</i>	83
3.12	<i>Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les fertilisants et les échantillons de sol non fertilisées prélevés d'une ferme privée de provenance du Mila.</i>	83
3.13	<i>Les indices de risque pour les échantillons étudiés.</i>	85
3.14	<i>Valeurs de Ra_{eq} pour tous les échantillons étudiés.</i>	87
3.15	<i>Valeurs de débit de dose absorbée, dose efficace annuelle, indice de niveau gamma et le risque excessif de cancer à vie pour tous les échantillons étudiées.</i>	90
4.1	<i>Les valeurs moyennes de ^{226}Ra, ^{232}Th et ^{40}K pour les échantillons de sol étudiés comparés à d'autres pays.</i>	96

4.2	<i>Comparaison de l'activité moyenne de ^{137}Cs des échantillons de sol étudiés avec les résultats trouvés dans les pays du monde.</i>	99
4.3	<i>Moyenne de la concentration de la radioactivité dans le superphosphate triple (TSP) provenant de différentes parties du monde, à comparer avec la présente étude.</i>	103
4.4	<i>Moyenne de la concentration de la radioactivité dans le Phosphate mono ammonium (MAP) provenant de différentes parties du monde, à comparer avec la présente étude.</i>	104
4.5	<i>Comparaison de la concentration moyenne de la radioactivité dans l'engrais Urée étudiés avec ceux d'autres pays.</i>	105
4.6	<i>Comparaison de la concentration moyenne de la radioactivité dans l'engrais NPK étudiés avec ceux d'autres pays.</i>	106
4.7	<i>Comparaison des facteurs radiologiques des échantillons de sol étudiés avec les résultats trouvés dans les pays du monde.</i>	113
4.8	<i>Identification de codage des échantillons pour comparer les deux fermes étudiées.</i>	113
4.9	<i>Statistiques descriptives des échantillons de sol des deux fermes de Mila, Algérie.</i>	121
4.10	<i>Matrice des coefficients de corrélation entre les radionucléides primordiaux et les paramètres radiologiques pour les échantillons de sol étudiés.</i>	127

Table des figures

1.1	<i>Evolution du nombre de noyaux X et Y au cours du temps.</i>	8
1.2	<i>Chaîne de décroissance du ^{222}Rn.</i>	10
1.3	<i>Établissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{232}Th.</i>	11
1.4	<i>Établissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{238}U.</i>	12
1.5	<i>Chaîne de désintégration de l'uranium</i>	14
1.6	<i>potentiels d'oxydoréduction de l'uranium dans un solvant neutre et à température ambiante</i>	18
1.7	<i>Chaîne de désintégration de thorium-232.</i>	22
1.8	<i>Distribution des espèces de thorium hydrolytiques en fonction du pH. La répartition des espèces est basé e sur une concentration de $1\ \mu\text{g.l}^{-1}$ de thorium total dissous dans de l'eau pure (par exemple, absence de ligands complexants autres que OH^-) et sur les données thermodynamiques de Langmuir et Herman (1980).</i>	24
1.9	<i>Schéma comparatif des sensibilités de mesure des différentes techniques pour l'uranium</i>	31
2.1	<i>Classification des radiations électromagnétiques selon leur énergie, fréquence et longueur d'onde</i>	33
2.2	<i>Types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z du milieu</i>	34
2.3	<i>Schéma représentant l'effet photoélectrique.</i>	35
2.4	<i>Schéma représentant la diffusion Compton.</i>	36
2.5	<i>Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle solide</i>	37
2.6	<i>Schéma représentant la création de paire</i>	38
2.7	<i>Spectre d'acquisition sur lequel sont mentionnés le pic d'absorption à 662 keV caractéristique du ^{137}Cs et le fond Compton associé à ce pic. Dans ce spectre, le fond Compton généré par les autres pics d'absorption entre 60 et 662 keV est négligeable par rapport au fond Compton du pic du ^{137}Cs.</i>	39

2.8	<i>Coefficients massiques d'atténuation totale et partielle pour le germanium .</i>	40
2.9	<i>Position des bandes d'énergie pour un conducteur, un semi-conducteur et un isolant</i>	43
2.10	<i>Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement . . .</i>	44
2.11	<i>Représentation schématique des liaisons électroniques pour le semi-conducteur silicium (Si) dopé P par du Bohr (B). a) Cas du semi-conducteur intrinsèque b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (B) accepte un électron de conduction en baissant la densité d'électrons n b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (B) accepte un électron de valence en augmentant la densité de trous p.</i>	45
2.12	<i>Représentation schématique des liaisons électroniques pour le semi-conducteur silicium (Si) dopé P par de l'arsenic (As). a) Cas du semi-conducteur intrinsèque b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (As) donne un électron de conduction en augmentant la densité d'électrons n b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (As) donne un électron de conduction en baissant la densité de trous p.</i>	46
2.13	<i>schéma de la chaîne de détection spectrométrie gamma.</i>	46
2.14	<i>Détecteur planaire</i>	48
2.15	<i>détecteurs coaxial de longueur 50 mm et de 50 mm de diamètre.</i>	48
2.16	<i>Géométrie longitudinale du détecteur de puits.</i>	49
2.17	<i>Performances de résolution du trois types de détecteur, Chacune des courbes est un ajustement à la moyenne des données mesurées avec trois détecteurs du même modèle.</i>	49
2.18	<i>Distribution gaussienne du pic.</i>	50
2.19	<i>représentation schématique d'un détecteur et source ponctuelle.</i>	51
2.20	<i>représentation schématique d'un détecteur et source circulaire.</i>	52
2.21	<i>Principe dun amplificateur à mise en forme par cellules CR–RC.</i>	54
3.1	<i>Carte de la Wilaya de Mila montrant la position des deux fermes étudiées.</i>	59
3.2	<i>Tarière à main utilisée pour collecter des échantillons de sol et quelques endroits d'échantillonnage</i>	60
3.3	<i>LBA/LPSC Laboratoire de mesure par spectrométrie gamma et des échantillons de sol préparé scellé avec du ruban en plastique pour pour empêcher la contamination des détecteurs.</i>	61
3.4	<i>Séchage et pesage des échantillons.</i>	61
3.5	<i>Étiquetage et conservation des échantillons.</i>	62
3.6	<i>Représentation de la chaîne de mesure au LBA</i>	62
3.7	<i>(a) cryostat d'azote liquide (b) cylindres de plomb d'épaisseur 10 cm. . . .</i>	62
3.8	<i>Les deux détecteurs de LBA et leurs composants.</i>	63

3.9	<i>Domaine de confiance avec la probabilité spécifiée pour calculer la limite de détection.</i>	64
3.10	<i>L'instrumentation électronique utilisée dans l'étude actuelle, montrant l'amplificateur de mise en forme et l'alimentation haute tension.</i>	66
3.11	<i>Les deux PC pour l'acquisition de données et l'analyse des résultats au LBA.</i>	67
3.12	<i>Spectre de calibration en énergie du détecteur Gamma réalisé au Septembre 2015.</i>	68
3.13	<i>Droite d'étalonnage en énergie du détecteur gamma $E = f(\text{nombre de canaux})$.</i>	69
3.14	<i>Droite d'étalonnage en énergie du détecteur BeGe $E = f(\text{nombre de canaux})$.</i>	69
3.15	<i>Échantillons de référence de Thorium et d'Uranium RGU-1 et RGTh-1, fournis par IAIEA.</i>	71
3.16	<i>Spectre d'étalonnage en efficacité de RGU-1 pour le détecteur gamma.</i>	72
3.17	<i>Spectre d'étalonnage en efficacité de RGTh-1 pour le détecteur gamma.</i>	72
3.18	<i>Courbe d'Efficacité de détecteur Gamma en fonction de l'énergie tracée à partir des spectres RGU-1 et RGTh-1 à l'aide de logiciel Root CERN utilisé dans le travail actuel.</i>	73
3.19	<i>Courbe d'Efficacité de détecteur BeGe en fonction de l'énergie tracée à partir des spectres RGU-1 et RGTh-1 à l'aide de logiciel Root CERN utilisé dans le travail actuel.</i>	73
3.20	<i>L'ensemble de blindage pour le détecteur de germanium hyper-pur coaxial (HPGe) (a) détecteur situé à proximité du centre du volume de protection (b) plomb cylindrique d'épaisseur 10 cm.</i>	75
3.21	<i>Spectre de bruit de fond sur le détecteur Gamma pendant 21 jours.</i>	75
4.1	<i>Les activités de différents radionucléides dans les échantillons de sol étudié</i>	92
4.2	<i>Les concentrations d'activité de ^{40}K, ^{226}Ra et ^{232}Th mesurée dans le travail en cours, ainsi que les valeurs moyennes mondiales rapportées dans le rapport 2000 de l'UNSCEAR, sont également présentées à titre de comparaison.</i>	95
4.3	<i>Les activités du ^{137}Cs dans les échantillons de sol étudié.</i>	96
4.4	<i>Distribution de la profondeur de la concentration d'activité de ^{137}Cs dans les échantillons de sols étudiés (a) Région El Athmania (b) Région Ferdjioua.</i>	98
4.5	<i>Les concentrations en Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra, ^{232}Th et ^{40}K dans les fertilisants étudiés.</i>	101
4.6	<i>Les concentrations d'activités en Bq.kg^{-1} de différents radionucléides dans les fertilisants des deux fermes étudiées.</i>	101
4.7	<i>Les activités de Ra_{eq} dans les échantillons de sol étudié.</i>	107
4.8	<i>Les activités de $Raeq$ dans les Fertilisants étudiés.</i>	108
4.9	<i>Les activités des indices H_{in} et H_{ex} dans les échantillons de sol étudié.</i>	108

4.10	<i>Indice gamma dans les échantillons de sol étudiés.</i>	109
4.11	<i>Les indices H_{in}, H_{ex} et I_{γ} dans les fertilisants étudiés.</i>	109
4.12	<i>Evolution de la dose absorbée et la dose efficace annuelle dans les échantillons de sol étudié.</i>	111
4.13	<i>Evolution de la dose absorbée et la dose efficace annuelle dans tous les échantillons étudiés.</i>	111
4.14	<i>Le risque excessif de cancer à vie dans les échantillons de sol étudié.</i>	112
4.15	<i>Graphique de la comparaison entre la radioactivité naturelle des deux fermes étudiés (a) ^{226}Ra (b) ^{232}Th (c) ^{40}K.</i>	114
4.16	<i>Graphique de la comparaison entre la radioactivité artificielle (^{137}Cs) des deux fermes étudiées.</i>	115
4.17	<i>Graphique de la comparaison entre les indices de risques dans les deux fermes étudiés (a) Équivalent radium (b) Indices de risque externe et interne (c) Indice gamma.</i>	117
4.18	<i>Graphique de la comparaison entre le débit de dose gamma absorbée et la dose annuelle efficace dans les deux fermes étudiés.</i>	118
4.19	<i>Graphique de la comparaison entre le facteur d'excès de risque de cancer à vie dans les deux fermes étudiés.</i>	118
4.20	<i>Tracé de corrélation d'activité pour (^{232}Th, ^{226}Ra), (^{40}K, ^{232}Th) et (^{40}K, ^{226}Ra) dans les deux fermes étudiées (a) Ferme pilote (b) Ferme privé à l'aide du logiciel SPSS (version 17).</i>	123
4.21	<i>Tracé de corrélation d'activité (^{232}Th, ^{226}Ra).</i>	124
4.22	<i>Tracé de corrélation d'activité pour (^{238}U, ^{232}Th) et (^{238}U, ^{40}K).</i>	124
4.23	<i>Distribution de la fréquence en Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).</i>	125
4.24	<i>Distribution de la fréquence en Bq.kg^{-1} de ^{232}Th dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).</i>	125
4.25	<i>Distribution de la fréquence en Bq.kg^{-1} de ^{40}K dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).</i>	126
4.26	<i>Dendrogramme montre la similarité entre la radioactivité mesurée et les paramètres de risque radiologique calculés dans les échantillons de sol.</i>	128

Introduction

L'ajout d'engrais inorganiques pour traiter les sols agricoles et augmenter leur production est devenue une nécessité et un outil utilisé dans le monde entier. Ces engrais contiennent différentes quantités d'uranium et de thorium. Par conséquent, des tonnes de radionucléides provenant des séries radioactives naturelles ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th sont dispersées dans l'environnement en raison d'une forte utilisation d'engrais en agriculture.

Les gens sont exposés aux rayonnements ionisants provenant des radionucléides présents dans différents types de sources naturelles, dont le sol est l'un des plus importants. Cette exposition peut être externe ou interne. Le sol n'est pas seulement une source d'exposition continue aux rayonnements pour les humains, mais aussi un moyen de migration des radionucléides vers les systèmes biologiques, qui peut causer des effets biologiques néfastes comme les dommages à l'ADN.

À l'heure actuelle, les études sur les effets Des rayonnements ionisants sur la santé ont fourni des preuves substantielles que l'exposition à un niveau élevé de radiations peut provoquer des maladies ou même la mort.

Malgré un effet bien connu du cancer, les scientifiques savent depuis longtemps que les radiations ionisantes à fortes doses peuvent également provoquer des retards mentaux chez les enfants de mères exposées à des radiations pendant la période de grossesse.

Tous les types d'aliments, y compris le blé et les pommes, contiennent une quantité détectable de radioactivité qui se déplace successivement dans le corps humain via la voie d'ingestion. Nous savons aussi que l'activité de la nourriture est strictement liée à l'activité du sol où la nourriture a été cultivée. Parmi les différents échantillons de terre, les sols de blé et de pommes ont été choisis pour des études de radioactivité car ces cultures sont très répandues. Les radionucléides naturels présents dans le sol et les engrais consistent principalement en isotopes ^{238}U , ^{232}Th , ainsi que leurs produits dérivés, et en ^{40}K .

La connaissance de la concentration et de la distribution des radionucléides dans ces

matériaux est très importante car ils fournissent des informations utiles pour la surveillance de la contamination de l'environnement par la radioactivité naturelle. Actuellement, il n'y a pas beaucoup d'informations sur les niveaux de radioactivité dans l'environnement agricole en Algérie, il n'y a qu'un nombre limité d'études qui évaluent la radioactivité du sol, y compris la région de Mila. Les études de base de la radioactivité en milieu agricole sont : une mesure des concentrations naturelles de radionucléides dans deux minerais phosphatés de l'Est algérien [1] et l'évaluation du taux de radioactivité des sols vierges et fertilisés collectés dans la région limitrophe de Sétif (Algérie) et d'engrais phosphatés utilisés dans ces zones [2].

Pour ces raisons, nous avons décidé de mesurer la concentration de radionucléides naturels dans le sol cultivé par le blé et les fruits récoltés dans la région de Mila (Algérie) et les engrais utilisés pour traiter ce dernier et le but principale de cette thèse est :

✓ d'estimer la concentration des radionucléides naturelle dans des échantillons de sol cultivé par le blé et les fruits récoltés dans deux fermes algériennes a la région de Mila et dans des engrais utiliser pour fertiliser ces derniers.

✓ de développer la méthode d'analyse par spectrométrie gamma, dans le cadre de mesure de la radioactivité dans deux régions agricoles El Athmania et Ferdjioua en Algérie.

✓ d'estimer le danger d'irradiation des radionucléides primordiaux dans tous les échantillons des régions étudiées et le risque de cancer à vie lié à l'exposition de ces derniers pendant une durée maximale de 75 ans.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Le premier chapitre rappelle brièvement les notions de la radioactivité, radionucléide et les différentes techniques de mesures nucléaires actuelles.

Le deuxième chapitre est consacré à la description de la spectrométrie gamma et la détection des radiations.

Le troisième chapitre est dédié à l'étude et l'évaluation expérimentale avec la représentation des résultats trouvées au niveau du laboratoire des basses activités (LBA /LPSC) à Grenoble. En utilisant un logiciel de traitement Inter winner.

Enfin, Le dernier chapitre de cette thèse traite les résultats obtenues au chapitre précédent avec une étude statistique de ces derniers , et à l'aide de cette interprétation on va estimer le risque lié à l'utilisation des différents engrais.

Chapitre 1

Radioactivité-Radionucléide et Techniques de mesures actuelles

1.1 La radioactivité naturelle

La radioactivité fait partie de l'univers. Elle est omniprésente et a toujours existé sur la Terre. Elle a permis lors des éruptions volcaniques la formation de l'atmosphère primitive (protection contre les météorites, effet de serre pour diminuer les écarts thermiques entre le jour et la nuit). C'est aussi la radioactivité qui entretient la combustion au sein du soleil, par le biais des réactions thermonucléaires où l'hydrogène est transformé en hélium.

On distingue deux catégories de radionucléides naturels :

► Les radionucléides primordiaux

Les radionucléides primordiaux (produits chimiques radioactifs qui étaient présents lorsque la Terre formée il y a environ 4,5 milliards d'années) se trouvent dans le monde entier dans la roche ignée et sédimentaire. À partir de roches, ces radionucléides migrent dans le sol, l'eau, et même l'air. Les activités humaines telles que l'exploitation minière de l'uranium ont également redistribué ces radionucléides. Les radionucléides primordiaux comprennent la série de radionucléides produite lorsque l'uranium et le thorium se désintègrent, ainsi que le ^{40}K et le ^{87}Rb .

On recense une trentaine de radionucléides primordiaux qu'on peut classer selon leurs périodes. Le premier groupe est constitué de radionucléides dont la période est inférieure à 10^{12} ans (table 1.1). Il regroupe les trois chaînes radioactives naturelles à savoir ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th . Dans ce groupe figurent aussi le ^{40}K et le ^{87}Rb . Ce dernier subit uniquement la désintégration β^- ($283,3 \text{ keV}$, il n'est pas détecté par la spectrométrie γ .) Le deuxième groupe englobe les radio-isotopes avec une période au-delà de 10^{12} ans. Il présente une singularité par la présence de l'isomère métastable ^{180m}Tm d'une période record de 10^{15} ans. À cause de leurs longues périodes, la probabilité de désintégration est faible. Le troisième groupe est caractérisé par des périodes encore plus longues, on y trouve des modes de double désintégration β .

► Les radionucléides d'origine cosmique

Les rayons cosmiques sont des noyaux atomiques et des particules élémentaires qui voyagent dans l'espace à des vitesses voisines de celle de la lumière. Certains d'entre eux s'approchent suffisamment de la terre pour être détectés par des instruments placés dans des satellites en orbite terrestre ou dans des sondes spatiales. D'autres pénètrent dans l'atmosphère terrestre, entrent en collision avec des noyaux d'oxygène ou d'azote, et produisent des générations successives de particules secondaires qui peuvent atteindre

Nucléides	Abondance	Période	Mode de désintégration	
			principal	secondaire
^{235}U	0,72 %	$7,038 \times 10^8$ a	α	
^{40}K	0,0117 %	$1,277 \times 10^9$ a	β^- (89,3%)	CE, β^+ (10,7%)
^{238}U	99,2745 %	$4,468 \times 10^9$ a	α	
^{232}Th	100 %	$1,405 \times 10^{10}$ a	α	
^{176}Lu	2,59 %	$3,78 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{187}Re	62,60 %	$4,35 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{87}Rb	27,84 %	$4,75 \times 10^{10}$ a	β^-	
^{138}La	0,09%	$1,05 \times 10^{11}$ a	CE, β^+ (66,4%)	β^- (33,6%)
^{147}Sm	15 %	$1,06 \times 10^{11}$ a	α	
^{190}Pt	0,01%	$6,50 \times 10^{11}$ a	α	
^{123}Te	0,908%	1×10^{13} a	CE	
^{184}Os	0,02%	$5,60 \times 10^{13}$ a	α (?)	
^{152}Gd	0,02%	$1,08 \times 10^{14}$ a	α	
^{115}In	95,7%	$4,41 \times 10^{14}$ a	β^- s	
^{180m}Ta	0,012%	$1,2 \times 10^{15}$ a	CE (86%)	β^- (14%)
^{149}Sm	13,8 %	2×10^{15} a	α	
^{174}Hf	0,162 %	2×10^{15} a	α	
^{186}Os	1,58%	2×10^{15} a	α	
^{144}Nd	23,8%	$2,3 \times 10^{15}$ a	CE, β^+	
^{148}Sm	11,3 %	7×10^{15} a	α	
^{113}Cd	12,22 %	$7,7 \times 10^{15}$ a	β^-	
^{142}Ce	11,08%	$5,6 \times 10^{16}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{183}W	14,3%	$1,1 \times 10^{17}$ a	α	
^{50}V	0,25%	$1,4 \times 10^{17}$ a	CE, β^+ (83%)	β^- (17%)
^{204}Pb	1,4%	$1,4 \times 10^{17}$ a	α	
^{50}Cr	4,345%	$1,8 \times 10^{17}$ a	CE-CE	
^{184}W	30,67%	$3,10 \times 10^{17}$ a	α	
^{82}Se	8,73%	$1,08 \times 10^{20}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{130}Te	33,8%	$7,9 \times 10^{20}$ a	$\beta^- \beta^-$	
^{128}Te	31,69%	$2,2 \times 10^{24}$ a	$\beta^- \beta^-$	

TABLE 1.1 – Les radionucléides primordiaux, classés par périodes croissantes.

le niveau de la mer et parfois s'enfoncer profondément dans le sol. Ces proliférations des rayons cosmiques dans l'atmosphère sont appelées « grandes gerbes ».

1.2 Les sources de radioactivité naturelle

Les rayons cosmiques ont 2 composantes. La première est due aux ions très énergétiques en provenance des galaxies. L'autre composante vient du soleil : le « vent solaire » est surtout constitué de protons. L'interaction des rayons cosmiques avec le champ magnétique terrestre forme la magnétosphère qui, avec l'atmosphère, sont de bons protecteurs puisque seulement 0,05% du rayonnement cosmique arrive au niveau de la mer. On comprend ainsi que l'importance du rayonnement cosmique augmente avec l'altitude

(il double tous les 1500 m).

La radioactivité du sol(ou rayonnement tellurique) émis par de nombreux éléments radioactifs présents dans l'écorce terrestre, comme l'uranium et le thorium. Il varie selon la nature du sol. Il est ainsi 5 à 20 fois plus élevé dans les massifs granitiques que sur des terrains sédimentaires.

La radioactivité des eaux, dépend plus du caractère chimique que de la géologie des terrains qu'elles drainent. Les eaux minérales sont plus radioactives que les eaux de surface, alors que certaines eaux souterraines sont riches en gaz radon dissous.

La radioactivité du corps humain, de l'ordre de 120 Bq.kg^{-1} (8400 Bq pour une personne de 70 kg) est due à l'ingestion d'aliments contenant des éléments radioactifs. Après ingestion, ces radionucléides viennent se fixer dans les tissus et les os. Ainsi, l'organisme humain compte en moyenne 4500 Bq en potassium 40 et 3700 Bq en carbone 14.

La radioactivité de l'air est essentiellement due au ^{238}Rn , lui-même issu de l' ^{238}U . Cette composante-là plus importante de l'exposition naturelle est très variable. Elle dépend de la richesse du sol en uranium 238, de la porosité du sol, des matériaux de construction et de la ventilation de l'habitat qui concentre par confinement la diffusion du gaz radon. Ce gaz, ainsi que les produits qui en dérivent, se fixe dans les voies respiratoires.

1.3 Les types de la radioactivité

Il existe 3 types de radioactivité :

► **La radioactivité α** : le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule α (noyau d'hélium). (Voir Eq. 1.1)



noyau père \longrightarrow noyau fils + particule alpha
Équation de désintégration α

► **Radioactivité β^+** : le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule β^+ (positon c'est-à-dire antiparticule de l'électron) et un neutrino (particule

élémentaire de charge nulle et de masse nulle). (Voir Eq. 1.2)



noyau père \longrightarrow noyau fils + positron + neutrino
Équation de désintégration β

► **Radioactivité β^-** : Le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule β^- (électron) et un antineutrino (antiparticule du neutrino). (Voir Eq. 1.3)



noyau père \longrightarrow noyau fils + électron + anti neutrino
Équation de désintégration β^-

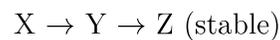
En général, suite à ces radioactivités, le noyau fils est produit dans un état excité et se désexcite en émettant des rayons γ (photons). (Voir Eq. 1.4)



Équation de désexcitation du noyau fils

1.4 La radioactivité d'une chaîne

On considère 2 noyaux radioactifs, X et Y liés par la chaîne :



Le noyau X a pour période T_1 et le noyau Y a pour période T_2

On suppose qu'à $t = 0$ on a N_0 noyaux X, 0 noyaux de Y et 0 noyaux de Z

Les équations régissant les évolutions de X et Y en fonction du temps sont :

$$\blacklozenge \frac{dN_x}{dt} = -\lambda_1 N_x \text{ avec } \lambda_1 = \frac{\ln 2}{T_1}$$

La constante radioactive en s^{-1} et N_x le nombre de noyaux X au cours du temps.

Le signe (-) reflète le fait que le nombre de noyaux diminue au cours du temps par désintégration.

On a donc une équation différentielle du premier ordre dont la solution s'écrit :

$$N_x = N_0 e^{-\lambda_1 t} \text{ (Courbe : Voir figure 1.1)} \quad (1.5)$$

$\blacklozenge \frac{dN_y}{dt} = +\lambda_1 N_x - \lambda_2 N_y$. Ici il y a création de noyaux Y par la désintégration des noyaux X ($+\lambda_1 \cdot N_x$) mais aussi désintégration des noyaux Y ($-\lambda_2 \cdot N_y$).

On a donc une équation différentielle du premier ordre avec second membre qui dépend du temps. Par la méthode de variation de la constante on peut résoudre cette équation :

$$N_y = \frac{\lambda_1 \cdot N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} \cdot e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \quad (1.6)$$

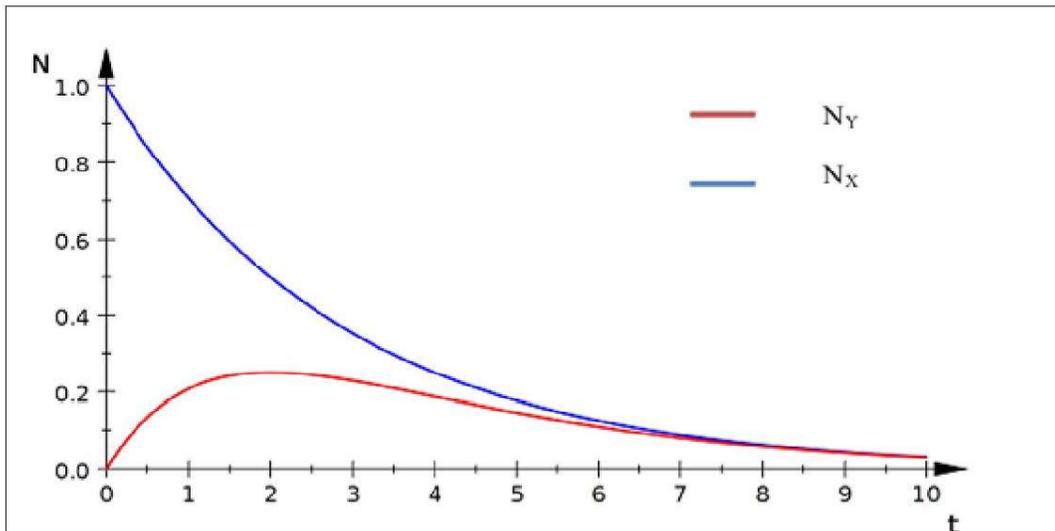


FIGURE 1.1 – Evolution du nombre de noyaux X et Y au cours du temps.

On peut généraliser cette analyse à une chaîne de N noyaux radioactif.

1.5 Équilibres radioactifs

Les radio-isotopes ^{238}U ou ^{232}Th existants dans l'environnement sont intimement mélangés avec leurs descendants respectifs. Selon leurs constantes de désintégration, les descendants peuvent être en équilibre ou pas avec le noyau père. A titre d'exemple, la présence du radon (gaz) dans les trois familles radioactives naturelles affecte l'équilibre de ces dernières. En effet, il peut altérer l'activité et la dose émanant d'un échantillon. Les radio-isotopes ^{219}Rn (actinon émanant du ^{223}Ra) et ^{220}Rn (émanant du ^{224}Ra) ayant des périodes respectives de 3,96 s et 55,8 s, même si le radon s'échappe, l'équilibre est atteint de nouveau dans quelques minutes, contrairement au ^{222}Rn (émanant du ^{226}Ra dont la période est de 3,8 jours. Pour retrouver l'équilibre entre l' ^{238}U et les radionucléides post- ^{222}Rn , 10 périodes de ^{222}Rn sont nécessaires [3].

La figure 1.2 illustre la chaîne de décroissance des descendants de ^{222}Rn provenant de la famille ^{238}U .

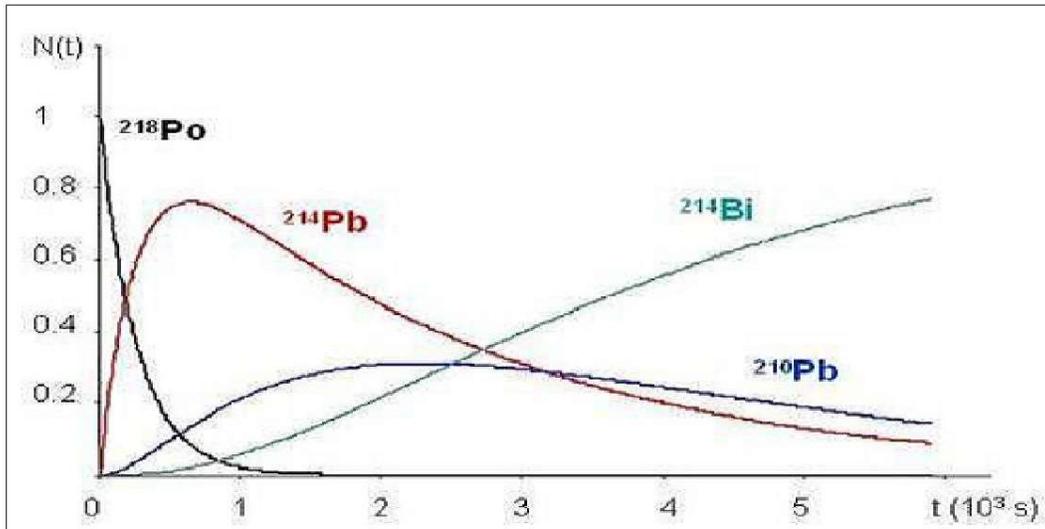


1.5.1 Équilibre idéal

Dans le cas d'une filiation à 3 corps ($X_1 \longrightarrow X_2 \longrightarrow X_3$), ($X_1 \xrightarrow{\lambda_1} X_2 \xrightarrow{\lambda_2} X_3$), l'équilibre idéal est atteint lorsque les activités des noyaux fils et père sont égales. Dans l'hypothèse où $N_2(0) = 0$, le temps maximum nécessaire pour atteindre cet équilibre est donné par :

$$t_m = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \quad (1.7)$$

où λ_1 et λ_2 sont respectivement les constantes de désintégration des noyaux père et fils.

FIGURE 1.2 – Chaîne de décroissance du ^{222}Rn

1.5.2 Équilibre de régime

Cet équilibre est à considérer lorsque la période du noyau père est légèrement supérieure à celle du noyau fils. Les activités des deux nucléides évoluent en restant dans un rapport constant. L'activité du noyau fils est reliée à celle du père par :

$$\frac{A_1}{A_2} \approx \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \quad (1.8)$$

1.5.3 Équilibre séculaire

Lorsqu'un système isotopique n'est pas perturbé, il peut être considéré comme fermé. Dans ce cas, l'activité du radionucléide parent est similaire à celle de son produit de dégradation intermédiaire ou final, ce qui suggère que le taux des radionucléides d'une série particulière de désintégration isotopique est pratiquement la même. Cet état d'une série radioactive est défini comme l'équilibre radioactif permanent (équilibre séculaire radioactifs) [4].

Alors, cet équilibre, dit séculaire, est atteint lorsque la période du noyau père est très longue devant celles des noyaux fils. Il est atteint à environ 10 périodes du noyau fils [3].

$$\frac{A_2}{A_1} \approx 1 \quad (1.9)$$

^{234}U ($T = 2,46.10^5\text{ans}$) pour la chaîne de l' ^{238}U ($T = 4,47.10^9\text{ans}$) et ^{228}Ra ($T = 5,75\text{ans}$) pour la chaîne du ^{232}Th ($T = 1,40.10^{10}\text{ans}$). En considérant que toutes les activités sont alors égales, l'erreur commise est inférieure à 1 .

La figure 1.3 illustre le cas de la chaîne naturelle de filiation du ^{232}Th , pour un matériau contenant une activité massique de 50Bq.g^{-1} de ^{232}Th [5].

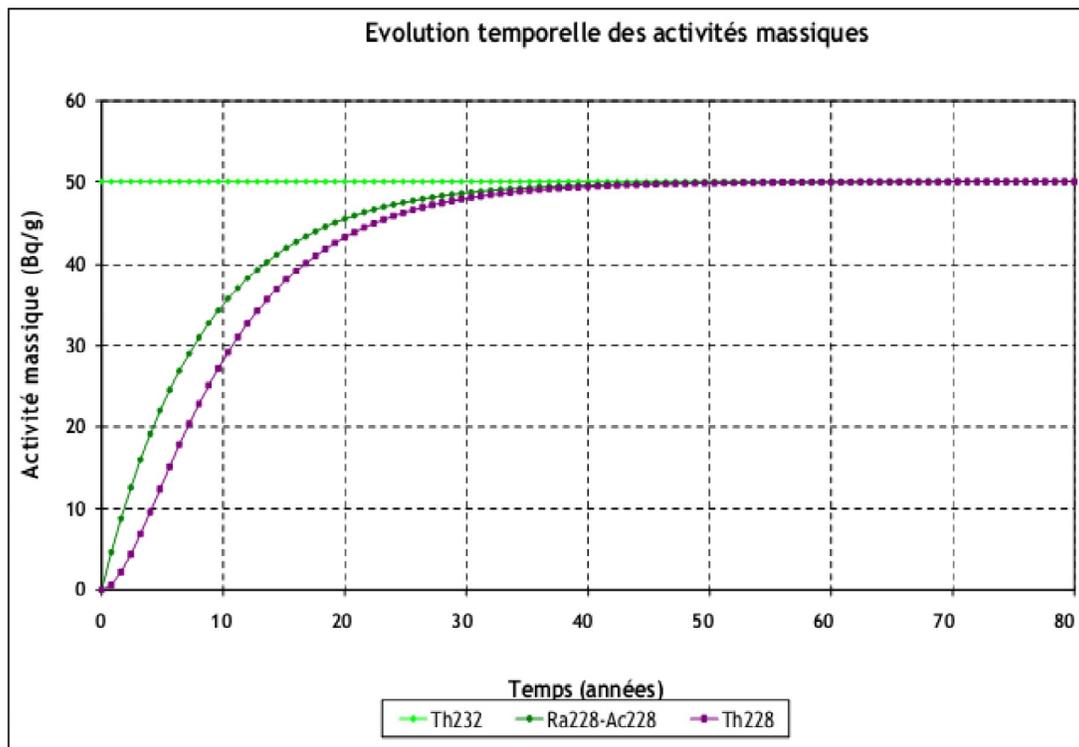


FIGURE 1.3 – Établissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{232}Th

La figure 1.4 illustre le cas de la chaîne naturelle de filiation de l' ^{238}U , pour un matériau contenant une activité massique de 50Bq.g^{-1} d' ^{238}U . [5].

1.6 Généralité sur l'uranium et Thorium

1.6.1 l'Uranium

Appartenant à la famille des actinides, l'uranium est un métal blanc argenté dur et de masse volumique élevée 19g.cm^{-3} . Il est l'élément le plus lourd présent naturellement sur terre.

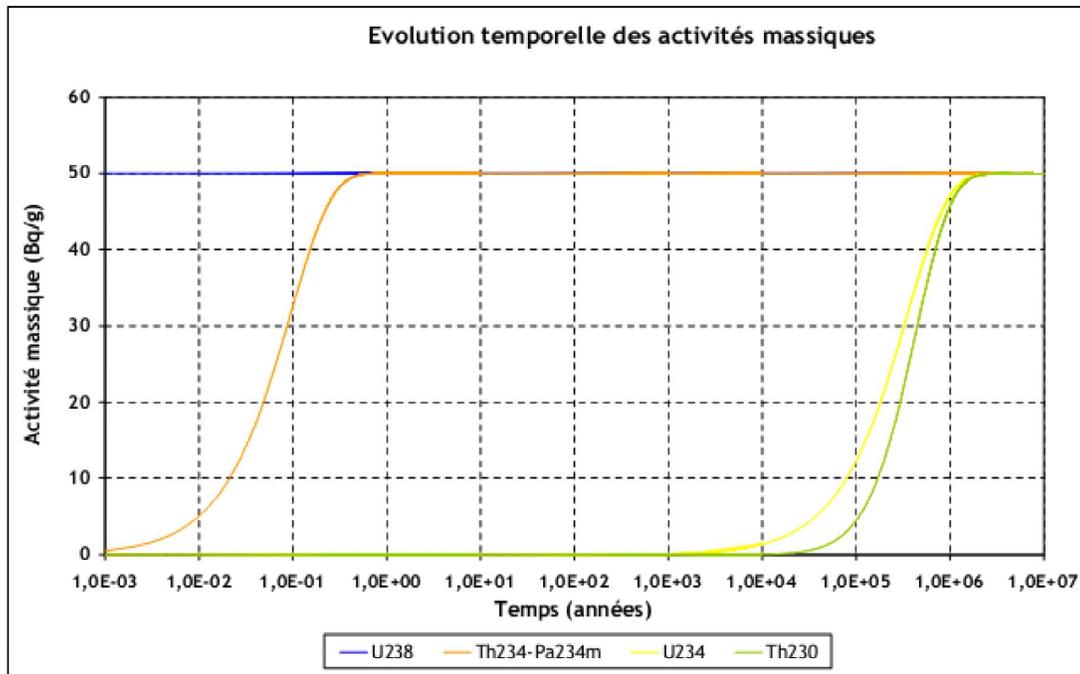


FIGURE 1.4 – Établissement de l'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du ^{238}U

L'uranium de composition isotopique naturelle est composé de 99,275% d'Uranium-238, 0,72% d'Uranium-235 et 0,0055% d'uranium-234 [6].

L'atome de l'Uranium à une configuration électronique ($5f^3 6d^1 7s^2$, numéro atomique 92) met en évidence six électrons capables de participer à des liaisons chimiques. En plus du degré d'oxydation 0 correspondant à l'Uranium métallique, seuls les degrés d'oxydation de +3 à +4 sont connus [7]. L'uranium est facilement oxydé et peut se retrouver sous quatre états de valence associés aux formes ioniques suivantes : U^{3+} (III) , U^{4+} (IV), UO_2^{2+} (V) et UO_2^{+} (VI). Cependant, ce sont les états (IV) et (VI) qui sont suffisamment stables pour être présents dans l'eau, les sols et les sédiments [8].

1.6.1.1 Origine de l'uranium

L'origine de ce radioélément est exclusivement naturelle avec une redistribution liée aux activités anthropiques. L'uranium est présent dans les roches, les sols, et les eaux. Dans la croûte terrestre où sa teneur moyenne varie de 2 à 4 $\mu\text{g/g}$, Quatre sources principales d'activité industrielle enrichissent en uranium certains compartiments de la biosphère :

► Le cycle du combustible nucléaire, depuis l'exploitation de mines uranifères jusqu'au traitement des déchets.

► L'utilisation militaire d'uranium appauvri(uranium naturel dont le contenu en ^{235}U a été réduit de 0,7 à 0,2 %). Le métal est utilisé pour ses propriétés pyrophoriques et les sites bombardés par ce type d'armes sont enrichis en fines particules d' UO_2 déposées à proximité des lieux d'explosion.

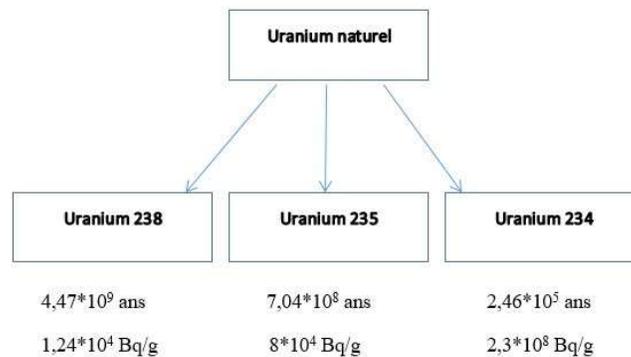
L' ^{238}U est fertile (indirectement fissile au contact d'un neutron ayant une énergie suffisante) tandis que l' ^{235}U est fissile (susceptible de subir une fission quelle que soit l'énergie des neutrons qui le percutent).

► L'utilisation de charbon dont la combustion conduit à l'émission atmosphérique d'uranium,

► L'utilisation agricole d'engrais phosphatés issus de phosphates naturels particulièrement riches en ^{238}U [9].

1.6.1.2 Filiation de l'Uranium

Les trois isotopes qui composent l'uranium naturel sont :



Compte tenu de leur contribution à l'activité (48,3% pour ^{238}U ; 2,3% pour ^{235}U ; 49,5% pour ^{234}U), 1 g d'uranium naturel contient $2,6 \times 10^4 \text{ Bq}$. Une fois à l'équilibre radioactif avec ces premiers descendants, ce même gramme d'uranium naturel contient au total $5,1 \times 10^4 \text{ Bq}$.

L'uranium possède 17 isotopes radioactifs, dont seulement trois d'entre eux sont naturels.

Ces derniers sont ^{238}U , ^{235}U et ^{234}U dans la nature. Les autres isotopes de l'uranium sont créés à la suite d'activités anthropiques comme l'industrie nucléaire. Les 17 isotopes

ont tous 92 protons, mais leur nombre de neutrons est différent. Ainsi, chaque isotope possède une demi-vie distincte qui détermine leur abondance dans l'environnement. Par exemple, l' ^{238}U est le plus abondant puisqu'il possède une demi-vie de 4.468 milliards d'années. La demi-vie des radionucléides est la période radioactive des éléments, soit le temps d'émission des rayonnements. C'est aussi la période durant laquelle la moitié des noyaux radioactifs présents initialement se désintègrent. En raison de leur noyau très instable, chaque isotope cherche à se désintégrer afin d'atteindre un élément stable. La radioactivité a lieu lorsque le noyau d'un atome instable comme l'uranium perd de l'énergie sous forme d'un type de rayonnement ionisant, soit alpha, bêta ou gamma. La figure 1.5 montre que l' ^{238}U possède une chaîne de désintégration de 14 éléments dont le dernier, le ^{206}Pb , est le plus stable [8].

Parmi les éléments de cette chaîne, l' ^{238}U possède la plus puissante toxicité chimique due à sa très longue demi-vie et à son activité spécifique faible [10].

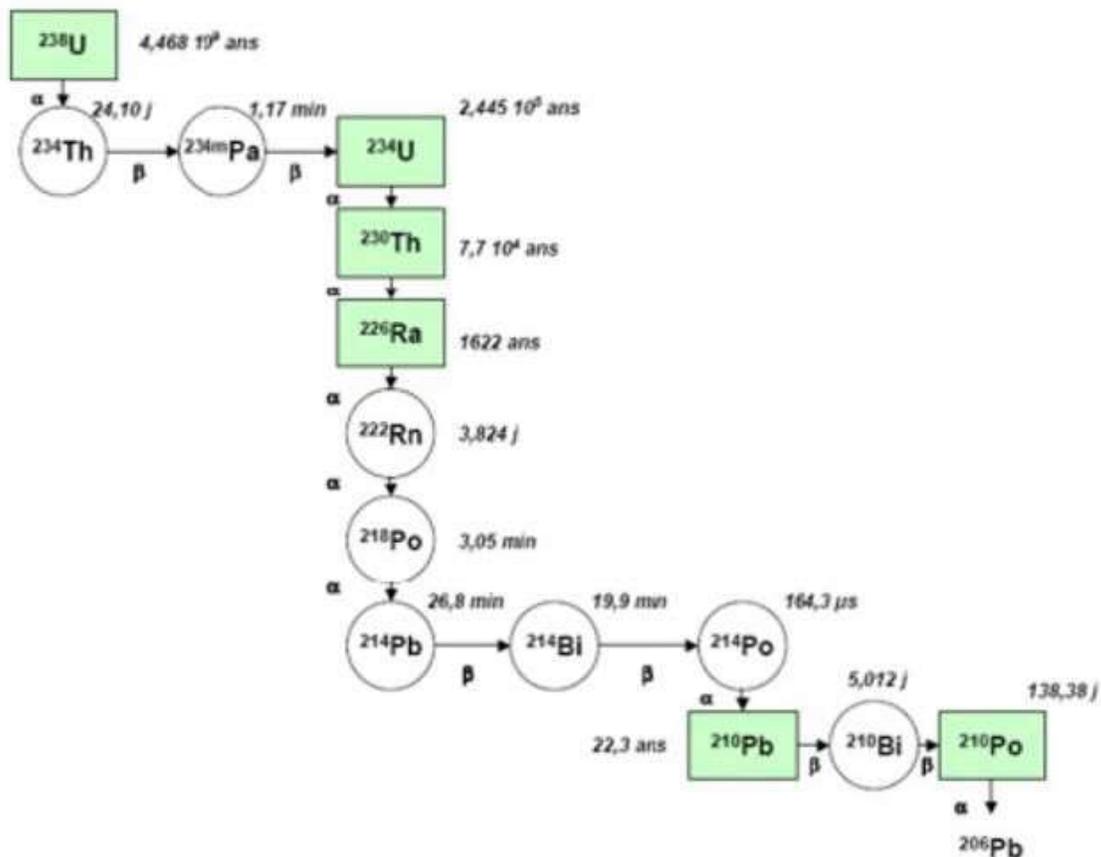


FIGURE 1.5 – Chaîne de désintégration de l'uranium [8]

1.6.1.3 Descendants de l' ^{238}U dans l'environnement

En plus de l'uranium en tant que tel, ses descendants dans la chaîne de désintégration peuvent se retrouver dans l'environnement au pourtour des installations minières. Peu d'études sur l'écotoxicologie de ses descendants ont été réalisées jusqu'à présent, d'où l'importance de les inclure dans les études d'impacts environnementaux. Le ^{226}Ra , le ^{222}Rn , le ^{210}Po et le ^{230}Th sont les radionucléides les plus reconnus dans la littérature scientifique pour leurs effets sur la faune et la flore.

Le ^{226}Ra

Le radium à l'état pur n'existe pas ; il est toujours à l'équilibre avec ses descendants. Les concentrations du ^{226}Ra sont très faibles dans l'environnement, mais son pouvoir radioactif est élevé. Le comportement du radium est similaire au calcium, ce qui explique sa capacité à s'introduire dans les os des mammifères, pour s'y accumuler et générer l'apparition de cancers. La bioamplification du ^{226}Ra chez les organismes aquatiques peut être aussi élevée que 1×10^4 chez les plantes et les invertébrés aquatiques, ainsi que chez les poissons, ce qui est considérable. Dans le contexte minier, le radium se dissout dans un environnement acide. C'est pourquoi il peut contaminer les cours d'eau. En effet, l'augmentation du pH de l'eau favorise la solubilité et la mobilité des sels de radium. Les mécanismes d'adsorption-désorption aux sédiments et les possibilités de former des complexes solubles avec les éléments environnants sont également des facteurs qui influencent la concentration du radium dans le sol et l'eau. Cependant, le radium est peu mobile dans un sol argileux [11].

Le ^{222}Rn

Le radon est un oligo-élément gazeux, chimiquement inerte et omniprésente dans le sol et les eaux souterraines. Le radon est produit par la chaîne de désintégration des radionucléides primordiaux ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U . L'isotope le plus abondant est ^{222}Rn (à partir de la chaîne de désintégration de ^{238}U), qui a une demi-vie de 3,82 jours et se désintègre en plomb stable ^{206}Pb à travers une chaîne de désintégration intermédiaire. Le gaz radon est incolore, insipide, inodore et donc ne sont pas détectés par les sens humains, même à des concentrations élevées. Étant un gaz noble, le radon est peu réactif et il est généralement éliminé du corps. Cependant, les risques réels pour la santé sont ses réactifs, solides, fils (à savoir, ^{218}Po , ^{214}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi) qui sont également radioactifs ; une partie de l'air inhalé va contenir du gaz radon, ainsi que leurs noyaux fils solides, qui se lient

aux particules de poussière et irradient les poumons et les tissus bronchiques lors de leur désintégration [12]. L'équivalent de dose annuelle moyenne à partir de sources naturelles d'ionisation pour un habitant adulte de la Terre est de $2,4 \text{ mSv.an}^{-1}$. La plus grande contribution à cette dose, jusqu'à 50%, vient de ^{222}Rn et ses produits de désintégration, ce qui dépasse considérablement les rayonnement gamma 19% et les rayonnement cosmique 16% [13].

Le ^{210}Po

Ce radionucléide est issu de la chaîne de désintégration du ^{222}Rn , sa demi-vie est de 138 jours. Il est considéré comme très toxique, notamment en raison de son importante activité radioactive. Par contre, l'exploitation d'uranium n'en produit qu'une faible quantité, soit 70 à 100 μg par tonne de minerai d'uranium. L'exposition à une très petite quantité de cette matière peut être dommageable pour la santé humaine.

La contamination à ce produit se fait par inhalation ou par ingestion. Une fois à l'intérieur, 50 jours sont nécessaires à l'organisme pour éliminer 50% du ^{210}Po , le reste se fixe au niveau du foie, des reins et de la moelle osseuse. Les organes sont alors exposés à son rayonnement alpha et peuvent ainsi développer des cancers, particulièrement aux poumons [14].

Le ^{230}Th

La présence du ^{230}Th dans l'environnement est très faible, mais sa demi-vie de 7.7×10^4 ans est suffisamment longue pour créer des impacts environnementaux sur la faune et la flore. Le niveau de toxicité du ^{230}Th est semblable à l'uranium, mais il possède une radiotoxicité supérieure en raison de ses descendants qui émettent des radiations alpha et bêta, dont les durées de vie sont relativement courtes [11].

1.6.1.4 Présence de l'uranium dans l'environnement

L'uranium est dispersé dans la croûte terrestre à une concentration moyenne de 0,0003% et il est considéré comme un constituant trace. Selon le United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR), la concentration dans le monde varie de 0,3 à 11,7 ppm [15].

La concentration naturelle d'uranium dans les roches dépend de la géochimie du milieu

et varie amplement d'un milieu naturel à l'autre. Les roches phosphatées en contiennent le plus, soit de 60 à 200 ppm pour la plupart. L'eau de mer contient pour sa part de l'uranium à des concentrations moyennes de 0.0033 ppm tandis que l'eau douce en contient entre 0.00001 et 0.01 ppm et l'eau souterraine en renferme moins de 0.001 ppm. La provenance de l'uranium dans les eaux souterraines et de surface dérive de la dissolution des roches et des sols [11].

Les sources de l'uranium dans l'eau de mer sont ruissellement d'eau douce ainsi que la dissolution du fond marin. L'eau de mer contient environ 4.5 milliards de tonnes d'uranium, un approvisionnement d'environ 1000 fois plus grande que la ressource terrestre connue d'uranium conventionnel. Uranium eau de mer pourrait alimenter la flotte mondiale de l'énergie nucléaire à des taux actuels de consommation de l'uranium à environ 13.000 ans. Récupération de l'uranium à partir de l'eau de mer a de nombreux défis. Le premier est la faible concentration de l'uranium dans l'eau de mer. Compte tenu de la faible concentration, la stratégie d'extraction doit physiquement placer un matériau de ligand ou adsorbant en contact avec des volumes d'eau ou de déplacer de grands volumes d'eau de mer en contact avec un adsorbant. Le deuxième défi est que l'uranium existe sous forme d'ions uranyle dans l'eau de mer dans les complexes carbonate, $UO_2(CO_3)_3^{4-}$, qui sont relativement plus forte que de nombreux ligands. D'autres défis de conception chimiques sont que le ligand doit être efficace à l'extraction de l'uranium au pH de l'eau de mer et le ligand (et tout adsorbant) doit être insoluble. Un autre défi est que la concentration d'uranium dans l'eau de mer est relativement faible par rapport à d'autres ions dans l'eau de mer. Un ligand adsorbant uranium est susceptible adsorbe beaucoup d'autres ions qui sont beaucoup moins précieux. A l'inverse, le ligand peut adsorber certains coproduits de valeur. Bien que, la recherche a été incapable d'adsorber les autres ions de valeur dans des concentrations suffisantes pour être inclus dans les analyses coûts [16].

1.6.1.5 Comportement de l'uranium dans solutions

L'uranium en solution est un élément capable de faire la genèse de divers oxydes U_xO_y en raison de forte électropositivité. Il a même la capacité de réagir avec l'oxygène et tous les autres atomes électronégatifs. Pour cela, l'étude du système dans des solvants neutres comme $HClO_4$ peut être pris comme un modèle pour déterminer le comportement d'uranium avec le potentiel. Divers niveaux de oxydoréduction sont révélés et peuvent être schématisés dans la figure ci-dessous comme mentionné par Hidouri et résumés dans la figure 1.6 [7].

En solution aqueuse, les états d'oxydation principaux sont U(VI), sous la forme de

l'ion uranyle ($\text{O}=\text{U}=\text{O}$) $^{2+}$, et U(IV). Les autres formes de l'uranium sont instables du point de vue électrochimique, comme le suggère le diagramme de de l'uranium.

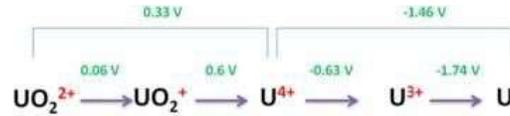


FIGURE 1.6 – potentiels d'oxydoréduction de l'uranium dans un solvant neutre et à température ambiante [7]

L'uranium peut exister en solution aqueuse sous quatre états d'oxydation différents : de U(III) à U(VI).

L'uranium III existe en solution en milieu acide sous forme de cation U^{3+} à un potentiel de -630 mV. L'ion U^{3+} est un puissant agent réducteur. Il réduit l'eau H_2O en dihydrogène H_2 . Il est obtenu par réduction de l'uranyle UO_2^{2+} . Les solutions d' U^{3+} sont instables car elles sont rapidement oxydées par l'eau au degré d'oxydation +IV. En milieu alcalin, U^{3+} est hydrolysé en UOH^{2+} et on observe une précipitation de $\text{U}(\text{OH})_3$.

L'uranium IV existe en milieu très acide sous forme de cation U^{4+} . Ces solutions sont stables en condition anaérobie. En présence de dioxygène, U^{4+} est oxydé au degré d'oxydation + VI. L'hydrolyse de U^{4+} a lieu dès à pH inférieur ou égal à 1. Le produit d'hydrolyse le plus simple est UOH^{3+} . Des espèces polynucléaires se forment aux pH plus élevés. A cette dernière valence (+4) uranium devient facilement associé à l'oxygène pour réduire la valence instable et minimise la possibilité de réduction en rendant le premier noyau UO_2^+ et UO_2^{2+} [7].

L'uranium V n'existe pas sous forme U^{5+} car cet ion est facilement hydrolysable quel que soit le pH. La forme principale de l'uranium à cet état d'oxydation est UO_2^+ qui est extrêmement sensible à la dismutation en U(IV) + U(VI). Le temps de demi-vie d' UO_2^+ est d'environ trente minutes dans du DMSO qui pourtant le stabilise. L'impossibilité d'obtenir des solutions stables d'U(V) rend la connaissance de la chimie de cet état d'oxydation difficile.

L'uranium VI n'existe pas en solution sous la forme U^{6+} mais sous forme d'oxydation uranyle UO_2^{2+} quel que soit le pH. Le degré d'oxydation VI est le plus étudié et le mieux connu car il est le plus stable. L'hydrolyse de U(VI) donne des espèces mononucléaires comme UO_2OH^+ ou polynucléaires comme $(\text{UO}_2)_2(\text{OH})_2^{2+}$. Le taux d'hydrolyse dépend du pH mais également de la concentration en uranium [17].

1.6.1.6 Comportement de l'uranium dans les sols

La mobilité de l'uranium dans le sol dépend de la composition du sol et le pH de la solution du sol [18]. Plusieurs études ont montré que la sorption de l'uranium par certains sols a été fortement touchée si par la température, les ions de coexistantes et des force ionique. D'après l'étude de Bednar et al. Il a constaté que la sorption de l'uranium dans les sols a été fortement influencée par teneur naturelle de la matière organique, ainsi que Fe, Al et Mn oxydes contenu dans le sol [19]. Il est évident que l'interaction entre l'uranium et le sol est compliqué et également sensible de type de sol et les propriétés physico-chimique. Donc, le comportement géochimique de l'uranium dans le sol nécessite un examen attentif lors de la sélection des sites appropriés pour l'élimination des déchets nucléaires.

► Complexation par les anions inorganiques :

Dans des conditions oxydantes, l'uranium peut migrer des distances relativement longues de sa source, et dans l'eau, il est le plus souvent dans la forme d'ion uranyle $(UO_2)^{2+}$. D'une manière générale, dans un environnement acide, oxydant et dépourvu de tout complexant, l'uranium à de faibles concentrations ($< 0,1 \mu M$) se trouve de manière prépondérante sous forme d'ion uranyle UO_2^{2+} et d'hydroxyde d'uranium UO_2OH^+ . A pH neutre, les complexes hydroxylés $(UO_2)(OH)_2(aq)$ et $(UO_2)(OH)^{3-}$ dominent la spéciation du milieu. En revanche, à de fortes concentrations d'uranium ($> 10 \mu M$), des espèces polynucléaires, telles que $(UO_2)_3(OH)^{5+}$, $(UO_2)_2(OH)_2^{2+}$ ou $(UO_2)_3(OH)^{7-}$, prédominent.

En présence de carbonates, les espèces d'uranium formées à des pH supérieurs à 5 sont neutres ou chargées négativement $(UO_2)CO_3(aq)$, $(UO_2)_2CO_3(OH)^{3-}$, $UO_2(CO_3)_2^{2-}$, $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ entraînant ainsi une baisse de la sorption de l'uranium dans le sol. En présence de calcium et de carbonate (cas des milieux calcaires), le complexe $Ca_2UO_2(CO_3)_3(aq)$ particulièrement stable devient majoritaire et renforce la solubilité de l'uranium. Alors en présence d'anions inorganiques en uranium de l'eau forme des complexes solubles qui améliorent sa mobilité dans l'environnement [20].

► Complexation avec la matière organique :

La Matière organique est composée de macromolécules organiques et des groupes fonctionnels redox réactifs, et ne peut donc affecter profondément la spéciation des métaux traces, y compris les radionucléides et leur sort et le transport dans l'environnement aquatique.

La matière organique joue un rôle majeur dans la distribution de l'uranium dans les

sols. Issue de la décomposition de tissus d'animaux et de plantes, la matière organique du sol constitue un réservoir important de ligands pour complexer l'uranium. Elle se compose essentiellement d'acides humiques et fulviques qui sont des amalgames de molécules organiques de poids moléculaires différents présentant de nombreux groupes fonctionnels chargés négativement (énolate, amine, carboxylate, hydroxyle). L'uranium forme des complexes urano-humiques chargés négativement entre pH 3 et 7. Les acides fulviques contiennent plus de fonctions carboxyliques que les acides humiques, expliquant ainsi que la complexation de l'uranium soit plus importante avec les acides humiques. La matière organique particulière entraîne un piégeage de l'uranium permettant en général de l'immobiliser. Au contraire, les complexes U-fulviques, U-humiques ou les molécules de petites tailles comme les composés azotés (acides aminés, sucres aminés), les sucres ou les lipides présents dans l'eau interstitielle du sol vont quant à eux favoriser la mobilité de l'élément [21].

► Complexation avec la phase minérale du sol :

La quantité de matière organique du sol et la concentration de l'oxyde de Fe sont peut-être les facteurs clés pour contrôler l'accumulation de U dans le sol [22].

Les oxydes de fer et oxyhydroxydes retrouvés sous la forme dhématite (Fe_2O_2), de goethite (α -FeO(OH)), de ferrihydrite et d'oxyhydroxydes ferriques amorphes adsorbent de manière importante l'uranium. Les oxydes de manganèse sont fréquents dans les sols et sont également connus pour leurs fortes capacités d'adsorption et de piégeage des éléments . D'autres phases minéralogiques sont également connues pour leurs propriétés de sorption. Ainsi, l'uranium peut être adsorbé sur les silicates, les minéraux argileux, tels que la montmorillonite ou la kaolinite et la pyrite [21].

1.6.1.7 Toxicité de l'uranium

L'uranium est un élément neurotoxique et hémotoxique avec un plus grand risque de toxicité chimique que toxicité radiologique. La toxicité radiologique limitée est principalement due à sa grande demi-vie physique de 4.5×10^{-9} ans résultant dans une très faible activité spécifique de 12.4 Bq.kg^{-1} [10].

Les risques pour la santé associés à ce radionucléide proviennent de leur capacité à accumuler dans les tissus humains [23]. L'uranium est un Alpha émetteur est bien incapables de pénétrer la couche externe de la peau, des particules alpha peut provoquer des dommages cellulaires irréversibles après contamination interne.

La toxicité chimique est d'une importance particulière lorsque l'on étudie les effets de l'uranium induite et dépend de la forme dans laquelle l'uranium est présent. L'ion uranyle aqueux (UO_2^{2+}) est la principale cause de la toxicité chimique. Il peut avoir une interaction avec des macromolécules différentes causant des dommages de l'ADN, une enzyme d'inactivation et d'altération de la membrane [24].

1.6.2 Thorium

Le thorium est un métal gris découvert en 1828 par le chimiste suédois Berzelius. Pratiquement 100% du thorium naturel est constitué de l'isotope ^{232}Th .

Le thorium est le deuxième élément de la série des actinides. Certaines de ses propriétés le rapprochent, soit du titane, soit du cérium, soit du plutonium [25]. Il est réputé avoir la même toxicité chimique que l'uranium, mais une radiotoxicité supérieure à cause de ses descendants, émetteurs alpha et bêta [26].

En solution, le thorium n'existe qu'au degré d'oxydation IV et présente une chimie qualitativement proche de celle des actinides tétravalents comme Pu^{4+} [27]. Les espèces formées sont fonction du pH, de la nature des anions présents dans la solution et de la concentration. Par contre, le potentiel d'oxydo-réduction n'a pas d'effet sur la spéciation du thorium en solution [28].

1.6.2.1 Origines du thorium

L'origine de ce radioélément est exclusivement naturelle avec une redistribution liée aux activités anthropogéniques. Trois sources principales d'activité industrielle enrichissent en thorium certains compartiments de la biosphère comme les sols, les sédiments ou les eaux continentales :

► le cycle du combustible nucléaire depuis l'exploitation de mines uranifères jusqu'au traitement des déchets et les autres activités minières. L'uranium est le plus souvent associé au thorium dans le minerai exploité avec un rapport de 3,5 atomes de thorium par atome d'uranium. De plus, le ^{232}Th est un matériau fertile équivalent à ^{238}U car un de ses descendants, l' ^{233}U , est fissile [26]. Les principaux gisements de monazite, $(\text{La,Ce,Th})\text{PO}_4$, principal minerai de thorium se trouvent en Inde et au Brésil, ainsi qu'en Australie, en Indonésie, en Malaisie, à Madagascar et en Afrique du Sud, 1^{er} producteur mondial depuis 1966. On estime à 1 à 2 millions de tonnes les réserves mondiales de thorium.

► Les retombées atmosphériques dues aux accidents. Elles enrichissent les sols en thorium, mais dans la limite des valeurs observées au niveau des sols naturellement riches en thorium. Ainsi, dans les sols présents dans une zone située à 140 km sous les vents dominants de la centrale de Tchernobyl, on mesure une dizaine de $Bq.kg^{-1}$ sol sec dans les zones 0-5, 5-10 et 10-15 cm [29].

► L'utilisation agricole d'engrais phosphatés issus de phosphates naturels contenant typiquement entre $5,9 \times 10^{-6}$ et $6,6 \times 10^{-5} Bq.kg^{-1}$ [30].

1.6.2.2 Filiation du thorium

Le thorium est présent, en particulier, dans les chaînes de décroissance radioactive de l'uranium naturel. Il présente 13 radio-isotopes (de masses atomiques allant de 212 à 236) dont le principal est le ^{232}Th , radioélément primordial, émetteur de rayonnements alpha. Il donne naissance à de nombreux produits de filiation dont ^{228}Ac , émetteur de rayonnements γ et β et se termine par la formation de ^{208}Pb [31].

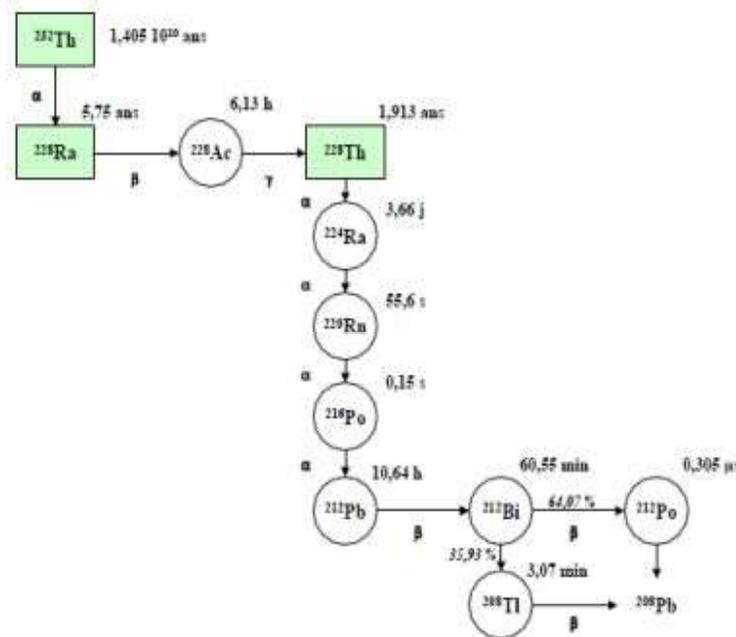


FIGURE 1.7 – Chaîne de désintégration de thorium-232. [31]

1.6.2.3 Présence de thorium dans l'environnement

Le thorium est 3 à 4 fois plus abondant que l'uranium dans la croûte terrestre. Sa teneur moyenne est de 9 à 12 $g.t^{-1}$ sol, soit une activité de 25 à 28 $Bq.kg^{-1}$ de sol en moyenne, les valeurs extrêmes allant de 5 à 190 $Bq.kg^{-1}$ sol. Le thorium 232 est présent dans les granites (48 $Bq.kg^{-1}$), dans les basaltes (37 $Bq.kg^{-1}$), dans les schistes (6 $Bq.kg^{-1}$), dans les roches sédimentaires (5 à 26 $Bq.kg^{-1}$), et plus particulièrement dans les carbonates, les phosphates, les silicates et les oxydes [27]. Dans les eaux continentales, les teneurs en ^{232}Th sont comprises entre $1,5 \times 10^{-3}$ à 5×10^{-2} $Bq.l^{-1}$ et celles des eaux océaniques sont comprises entre $2,9 \times 10^{-5}$ à $4,4 \times 10^{-3}$ $Bq.l^{-1}$ [30].

1.6.2.4 Comportement du thorium dans les solutions

Le thorium possède trois états d'oxydation positive, III et IV, mais il est essentiellement présent dans la nature dans l'état d'oxydation IV ou Th^{4+} , ce qui fait que les processus de réduction sont peu importants dans sa géochimie [32]. En solution, dans l'eau, le thorium est très peu soluble et le pH ainsi que le potentiel d'oxydo-réduction semblent très peu influencer sa solubilité [30]. À pH inférieurs à 3,5, il peut être présent dans la colonne d'eau sous forme d'ion non complexé Th^{4+} ([31]; figure 1.8). Pour des pH supérieurs, le thorium est progressivement hydrolysé. Le thorium étant un cation fortement chargé, il peut également interagir avec les anions et les cations présents pour former des complexes. Les sels solubles du thorium sont les chlorures (par exemple, $ThCl_4$), les nitrates (par exemple, $Th(NO_3)_4.H_2O$) et les sulfates (par exemple, $Th(SO_4)_2.8H_2O$). Il est insoluble lorsqu'il est complexé à des oxydes, des hydroxydes, des oxalates, des fluorures, des carbonates et des phosphates. Finalement, il peut être présent dans la colonne d'eau adsorbé aux particules et aux matières en suspension. L'étude de Tonetto et Bonotto a mis en évidence des niveaux variant entre 183 et 3445 $\mu g/g$ dans les matières en suspension. Néanmoins, en milieu aquatique, les concentrations de thorium dans la colonne d'eau sont généralement très faibles et le thorium sera plutôt retrouvé dans les sédiments adsorbés aux phases minérales et complexés avec les oxy-hydroxydes de fer et de manganèse.

1.6.2.5 Comportement du thorium dans le sol

Les comportements de métaux lourds et les radionucléides dans le sol sont significativement liés à des propriétés du sol. Facteurs de sol tels que le pH, les oxydes de ferromanganèse et la matière organique sont susceptibles d'être des indicateurs plus ap-

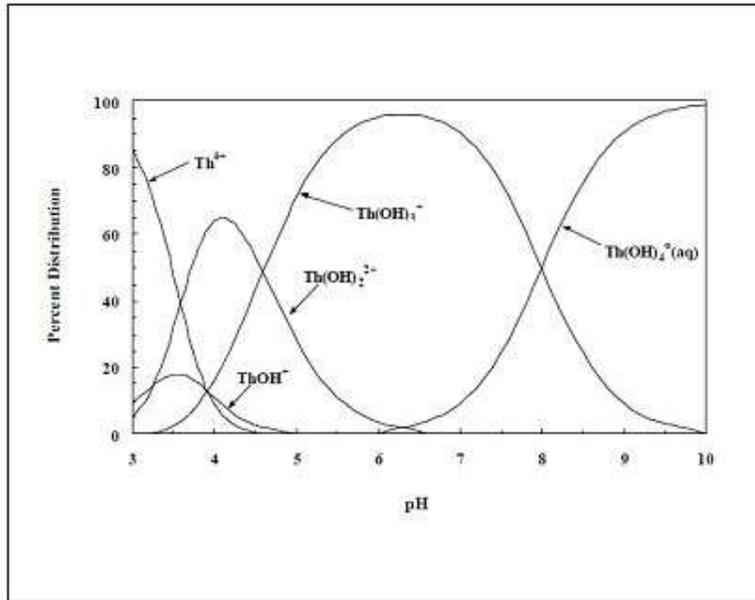


FIGURE 1.8 – Distribution des espèces de thorium hydrolytiques en fonction du pH. La répartition des espèces est basé e sur une concentration de $1 \mu\text{g.l}^{-1}$ de thorium total dissous dans de l'eau pure (par exemple, absence de ligands complexants autres que OH^-) et sur les données thermodynamiques de Langmuir et Herman (1980). [31]

propriés pour la mobilité des métaux. Le phytodisponibilité des métaux lourds et les radionucléides qui est couramment utilisée pour estimer la phytotoxicité des éléments est affectée par les caractéristiques du sol. L'adsorption des radionucléides sur le sol est affectée par les propriétés du sol, en particulier par le pH du sol et de matière organique du sol. Le transfert des métaux entre les phases facilement disponibles et moins disponibles est fortement influencé par la concurrence d'autres cations (en particulier H^+) sur la surface de la matière organique. La biodisponibilité des métaux lourds est supérieure à la valeur de pH plus bas dans l'interface racine-sol. À basse température, la formation de complexes de thorium est affectée par le pH dans un système naturel, et ces complexes solides d'améliorer le transport potentiel de thorium. De nombreux rapports ont indiqué que la matière organique exogène conduit à la diminution de la disponibilité des métaux lourds et des radionucléides. Cependant, la matière non organique dissous pourrait retarder le transport radionucléide, et la matière organique dissoute conduit à l'augmentation de la mobilité des métaux lourds que dans les sols à pH élevé. En tant que fraction majeure de la matière organique du sol, les acides humiques à forte surface adsorbante ont des effets inévitables sur l'adsorption du thorium sur différents minéraux. La sorption et la rétention du thorium sur l'hématite ont été évidemment affectées. Cependant moins évidemment sur la bentonite [33].

Notons que, dans les sols, le thorium peut être présent sous l'état d'oxydation III

mais uniquement à l'état solide. Le thorium est présent sous la forme d'un cation de caractère acide fort, dont la liaison dans des complexes est très bien décrite par un modèle électrostatique. Il est concentré dans les fractions les plus fines du sol, inférieures à 150 μm [34].

Le thorium se lie préférentiellement aux atomes donneurs d'oxygène et aux bases fortes. La sorption du thorium sur les oxydes de fer est rapide à bas pH, ce qui suggère la formation de complexes forts avec les sites de surface. Le thorium se lie aussi avec les oxy-hydroxydes comme la goethite. L'équilibre d'adsorption est corrélé à la somme des concentrations en cations majeurs Ca^{2+} et Mg^{2+} . Par contre, la présence de sulfates diminue l'adsorption par le biais d'un phénomène de compétition. Th(IV) forme des complexes forts avec les acides humiques et fulviques. L'adsorption à la matière organique, aux argiles et aux oxydes, qui limite la mobilité et la biodisponibilité du thorium, augmente avec le pH et est quasi totale dès $pH = 6,5$. La désorption n'est pas totale et 50 à 85% du thorium adsorbé est présent sous forme d'une fraction résiduelle, liée de façon inerte.

Les différents isotopes du thorium n'ont pas le même comportement apparent. Ce comportement apparent est dû à leur mode de genèse (radioélément primordial ou descendant), ainsi qu'aux différences de solubilité chimique des minéraux qui les renferment et à leurs périodes radioactives. La mobilité des isotopes va dans le sens : $228 > 230 > 232$.

De manière générale, la très faible solubilité des espèces thorium limite fortement sa migration, à moins que le thorium ne se lie à des colloïdes et des complexants chimiques qui sont mobiles. Par exemple, les oxydes secondaires de fer et manganèse sont susceptibles d'augmenter la mobilité. L'horizon supérieur des sols est en général plus pauvre en thorium car il y a eu lessivage sous forme liée à des complexes organo-minéraux [30].

1.6.2.6 Toxicité du thorium

Il présente une double toxicité : chimique et radiologique. Du point de vue chimique, il s'agit d'un métal lourd et sa toxicité est comparable à celle de l'uranium. C'est l'ingestion de composés hydrosolubles qui est à l'origine de sa néphrotoxicité. Du point de vue radiologique, sa toxicité est supérieure à celle de l'uranium. Le ^{232}Th est classé dans le groupe 2 (forte radio toxicité) de la classification radio toxicologique des radio nucléides ; le ^{228}Th est classé dans le groupe 1 (très forte radio toxicité). On estime que 12 gr / tonne de ^{232}Th correspond à une activité de 49 Bq.kg^{-1} . Par ailleurs, comme cela fût démontré à partir des électrodes au tungstène thorié, on ne doit pas perdre de vue que ce thorium est accompagné non seulement par plusieurs descendants émetteurs alpha, mais aussi par

des émetteurs bêta et gamma.

1.7 Technique de mesure nucléaire

1.7.1 Les méthodes de mesures destructives

Comme leur nom l'indique, ces méthodes violentes nécessitent le prélèvement d'échantillons. Ces échantillons sont généralement dissous, si ce n'est déjà un prélèvement d'une solution. Ensuite, une analyse physique ou chimique est réalisée. Les grandeurs recherchées sont l'activité (ou la concentration) et la composition isotopique. Des méthodes couramment utilisées sont la spectrométrie de masse à plasma induit (ICP-MS), la spectrométrie d'émission atomique à plasma induit (ICP-AES) et la spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS).

1.7.1.1 ICP-MS et ICP-AES

La spectrométrie de masse à plasma induit (ICP-MS) et la spectrométrie d'émission atomique à plasma induit (ICP-AES) sont des techniques fréquemment utilisées et les plus pratiques pour l'analyse élémentaire et isotopique, car ils combinent les caractéristiques remarquables de l'ICP pour l'atomisation et l'ionisation avec une sensibilité et une sélectivité de la spectrométrie de masse. Leur principe est d'exciter et d'ioniser les atomes de l'échantillon par induction d'un plasma et la détection des photons issus de la désexcitation des atomes (pour l'ICP-AES) et le dénombrement des atomes ionisés suivant leur nombre de masse A (pour ICP-MS), permet de caractériser l'échantillon. La méthode d'introduction d'échantillon la plus courante pour ICP-MS est la nébulisation pneumatique de solution. Bien qu'il soit simple et offre une bonne stabilité, l'introduction de l'échantillon est inefficace car l'échantillon introduit dans le plasma est seulement 1-3% [35].

1.7.1.2 La spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS)

La spectrométrie de masse à thermo-ionisation (TIMS) est une technique de spectrométrie de masse utilisée pour analyser les isotopes métalliques. L'ionisation thermique est la spectrométrie de masse. Alors que TIMS est une technique d'analyse utile pour la mesure de la composition isotopique des décennies et les instruments TIMS sont largement distri-

bués, il y a des difficultés importantes liées à l'utilisation TIMS pour analyser les isotopes des éléments plus légers alcalino-terreux et les métaux de transition. Pour surmonter ces difficultés pour produire des faisceaux d'ions relativement à long terme et stables à partir d'échantillons de microgrammes de taille est une tâche non triviale [36].

Elle permet de mesurer la composition isotopique des petites particules (moins de 1 Mm de diamètre) avec excitation et ionisation les atomes de l'échantillon par l'application d'un courant électrique [37].

1.7.2 Les Méthodes de mesures non destructives

Les mesures non destructives sont basées sur la mesure de radiations, émises spontanément ou induites, au moyen d'une source extérieure aux échantillons à caractériser. Ce sont des mesures non intrusives puisque l'intégrité de l'objet à étudier n'est pas violée. Leur inconvénient majeur, par rapport aux méthodes destructives, est le fait qu'elles sont généralement moins sensibles. On parle de méthodes actives lorsque les mesures sont réalisées à l'aide d'une source de rayonnement externe aux échantillons à caractériser, passives lorsque les mesures utilisent uniquement les radiations émises par l'échantillon.

1.7.2.1 Les mesures actives

Les méthodes de mesure active nécessitent l'emploi d'une source externe de particules, destinée à stimuler la matière recherchée dans un échantillon de déchets radioactifs, qui permet :

✓ soit d'activer les radionucléides des échantillons dans le but de détecter les rayonnements de désexcitation (X, γ , neutrons),

✓ soit de mesurer l'absorption des rayonnements de la source externe à travers les échantillons.

La mesure active est généralement utilisée dans les cas suivants :

✓ il n'y a pas d'émission spontanée de la part de l'objet radioactif, ou pas suffisamment pour une mesure passive précise, ou l'émission spontanée ne peut pas être distinguée du bruit de fond ;

✓ l'émission spontanée n'est pas assez intense pour permettre une mesure dans un

temps raisonnable ;

✓ l'atténuation de l'émission spontanée est trop forte pour permettre sa mesure ;

✓ la mesure active offre généralement de meilleures performances que la mesure passive [38], [39], [40].

► L'interrogation neutronique active :

Repose sur la stimulation de la réaction de fission et la mesure des neutrons qui en découlent. Cela suppose une source de particules interrogatrices (source isotopique, générateur de neutrons, accélérateur d'électrons), une enceinte de thermalisation destinée à ralentir et à maintenir les neutrons interrogateurs à des énergies où les sections efficaces de fission associées aux isotopes recherchés sont optimales et, enfin, un dispositif de détection pour la mesure des neutrons. Le signal neutronique de fission est directement lié à la masse de matière qui a fissionné. Sa connaissance permet, étalonnage à l'appui, de quantifier cette masse.

La source de neutrons est souvent un générateur qui produit majoritairement (à 95%) des neutrons d'énergie 14 MeV issus de la réaction $3\text{H}(2\text{H},\text{n})4\text{He}$. Des neutrons de 2,5 MeV peuvent aussi être créés par la réaction $2\text{H}(2\text{H},\text{n})3\text{He}$. L'interrogation neutronique est plus efficace sur des échantillons pauvres en éléments légers (typiquement hydrogène ou carbone) car plus l'élément est léger, plus les neutrons perdent d'énergie par diffusion et finissent par être absorbés par l'objet [38].

► L'interrogation photonique active :

Les réactions photonucléaires utilisées peuvent être de différents types :

✓ les réactions de photofission (γ, f) sont associées à la détection de neutrons. Cette technique est particulièrement intéressante car tous les noyaux lourds sont photofissiles ;

✓ les différentes réactions photonucléaires (γ, n), (γ, p), ($\gamma, 2n$), ($\gamma, 2p$), permettent d'activer des radioéléments et de mesurer ensuite les gamma de désactivation émis ;

✓ les réactions de diffusions inélastiques (γ, γ') peuvent permettre de créer des isomères de période suffisamment longue pour détecter leur rayonnement gamma de désactivation.

► La double interrogation :

La double interrogation neutrons photons combine les deux interrogations décrites précédemment. Elle consiste à induire des fissions à l'aide d'un mélange de photons et de neutrons de haute énergie. Puisque l'interrogation neutronique permet de quantifier de préférence la matière fissile, et que l'interrogation par photofissions induites permet de quantifier la totalité des noyaux lourds, la double interrogation simultanée neutrons et photons devrait donc permettre de séparer les contributions des éléments impairs (fissiles) et des éléments pairs (fertiles) [38], [39].

1.7.2.2 Les mesures passives

L'identification et la quantification non destructive des matériaux fissiles est un domaine important de recherche et de développement dans le but de sauvegarder et de comptabilité appropriée à la production, la manutention et les installations d'élimination. Les principaux composants de ces actinides sont les différents isotopes du plutonium et de l'uranium, ainsi que leurs produits de filiation. Parmi ceux-ci, le plutonium peut être dosé relativement facilement à travers l'utilisation de techniques passives, à savoir ; Surveiller les émissions de neutrons et de rayons gamma provenant de l'activité de fission et d'alpha spontanée pendant qu'il est moins approprié pour les isotopes d'uranium en raison de leur faible fission spontanée (SF) et des activités spécifiques. Les rayons gamma spontanée être de faible consommation d'énergie jusqu'à 500 keV (par exemple 186 keV pour ^{235}U et 413 keV pour ^{239}Pu entre autres) peut être protégé par une couche épaisse de quelque cm de matériaux de Z élevé. Ainsi interrogation active, dans laquelle une source de neutrons ou des photons est utilisée pour induire la fission dans le matériau et les émissions consécutives de neutrons prompts et retardés ou de rayons gamma sont surveillées, est généralement utilisé comme une méthode fiable en particulier pour l'uranium [41].

► Le comptage neutronique passif

Le comptage neutronique passif repose sur le comptage des neutrons arrivant d'un échantillon contenant une matière fissile spontanée à un ensemble de (typiquement ^3He) détecteurs [42]. Ces neutrons peuvent avoir différentes origines. La fission spontanée d'un noyau lourd libère plusieurs neutrons prompts (de 2 à 3 en moyenne) et elle est suivie de l'émission de neutrons retardés par certains produits de fission appelés précurseurs. Tous les neutrons produits lors d'une fission peuvent à leur tour créer d'autres fissions : on parle alors de fissions induites. D'autres réactions induites peuvent également produire des neutrons : réactions (α, n) , (γ, n) , multiplication $(n, 2n)$ par exemple.

Le comptage neutronique passif peut être mis en œuvre de deux façons. La première est le comptage total, pour lequel tous les neutrons détectés sont comptés. La seconde est

le comptage des coïncidences, pour lequel seuls les neutrons détectés en corrélation temporelle (donc émis simultanément lors de la fission d'un noyau) sont comptabilisés. Cette seconde méthode, moins sensible au bruit de fond, permet de discriminer les neutrons selon leur origine (discrimination entre les réactions (α, n) produisant un seul neutron et réactions de fission (n, f) produisant plusieurs neutrons notamment) [40].

► La spectrométrie Gamma

La spectrométrie gamma est une technique de mesure consistant à détecter les rayonnements gamma émis en convertissant l'énergie qu'ils déposent dans un matériau détecteur adapté en un signal électrique. Le traitement de ces signaux permet d'obtenir un histogramme appelé spectre. Les rayonnements gamma sont émis par les radionucléides par désexcitation du noyau atomique. Ils possèdent une énergie précise (raie), caractéristique du noyau émetteur et constituent donc un moyen d'identification des radioéléments. De plus, l'aire d'une raie gamma est représentative de la quantité du radioélément émetteur, dans la mesure où sont connus les temps actifs d'acquisition, la période radioactive des isotopes mesurés, et l'intensité d'émission de la raie observée. L'analyse des spectres mesurés permet donc en théorie l'identification et la quantification des radioéléments. Ce moyen de mesure faisant l'objet du travail de thèse, nous l'abordons plus en détails dans la suite.

Sensibilité de la spectrométrie Gamma

De nos jours, la spectrométrie gamma est parmi les techniques d'analyse multi-élémentaires les plus utilisées pour les mesures environnementales. Cependant, elle est concurrencée par d'autres techniques en terme de sensibilité, telle que les mesures par spectrométrie de masse ICP-MS (Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry), AMS (Accelerator Mass Spectrometry), par la méthode optique ICP-OES (Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry) et méthodes nucléaires (spectrométrie alpha, scintillation liquide, . .).

Pour les mesures des faibles radioactivités, le choix d'une technique dépend essentiellement de la période du radioélément et de l'intensité d'émission pour les méthodes radiométriques. La figure 1.9 montre une comparaison des sensibilités de mesures des différentes techniques pour l'uranium. Pour les radionucléides de longues périodes, la spectrométrie gamma est certainement la moins performante, néanmoins elle présente d'autres avantages du fait de sa nature non destructive et sa simplicité d'utilisation.

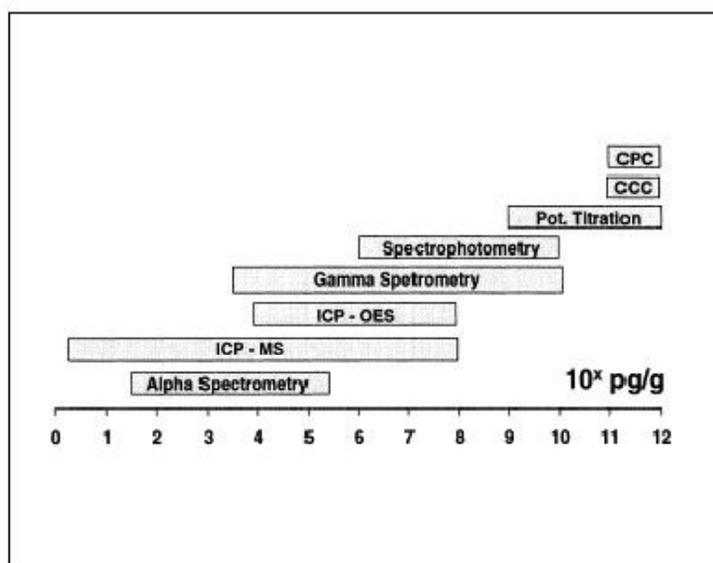


FIGURE 1.9 – Schéma comparatif des sensibilités de mesure des différentes techniques pour l'uranium [43].

Chapitre 2

Spectrométrie Gamma et la détection des radiations

2.1 Quelques notions sur les rayonnements Gamma

Les rayons gamma sont des rayonnements électromagnétiques produits par des interactions nucléaires. Il est généralement caractérisé comme un rayonnement à haute énergie et de courtes longueurs d'onde dans le spectre électromagnétique (figure 2.1). Cette énergie élevée peut causer de sérieux dommages lorsqu'ils sont absorbés par les cellules vivantes. En raison de sa propriété de pénétration profonde, le blindage des rayons gamma nécessite de grandes quantités de masse. Habituellement, les matériaux avec un nombre atomique élevé et une densité élevée sont utilisés pour une meilleure absorption.

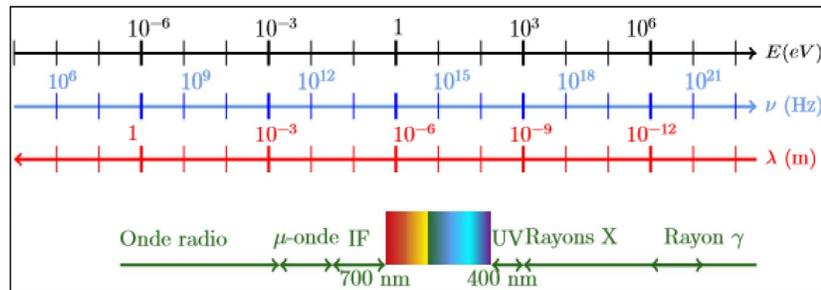


FIGURE 2.1 – Classification des radiations électromagnétiques selon leur énergie, fréquence et longueur d'onde [3].

Grace à son pouvoir ionisant et sa capacité à pénétrer profondément dans la matière, le rayonnement gamma est utilisé dans de nombreuses applications : en radiothérapie (traitement des tissus cancéreux), en stérilisation (domaine pharmaceutique), en ionisation (conservation des aliments), pour l'étude du vieillissement et la tenue aux radiations des matériaux pour les différentes activités nucléaires, etc.

Le tableau 2.1 résume les différents processus d'interaction rayonnement gamma/matière et leurs conséquences :

photons γ, X	Effet photoélectrique (faible énergie)	Absorption totale du photon incident et émission d'un photoélectron Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger.
	Effet Compton (énergies intermédiaires)	Diffusion du photon incident et éjection d'un électron Compton Réorganisation du cortège électronique: émission de rayons X et/ou e^- Auger
	Effet de production de paires ($E > 1,022$ MeV)	Absorption totale du photon incident et mise en mouvement d'une paire e^-/e^+ Emission de 2 photons de 511 keV en sens opposé après annihilation

TABLE 2.1 – Résumé des différents processus d'interaction rayonnement gamma-matière [3].

2.2 Les interactions gamma/matière

Les photons interagissent avec le détecteur en cédant une partie ou la totalité de leur énergie. Ce dépôt d'énergie génère une quantité de charges électriques proportionnelles à l'énergie déposée. Ils peuvent interagir avec la matière par le biais de quatre processus : l'effet photoélectrique prédominant à basse énergie et dans les matériaux de numéro atomique élevé, la diffusion Compton qui domine aux énergies intermédiaires, la création de paires qui est importante à haute énergie (Figure 2.2) ainsi que la diffusion Rayleigh (qui est un processus négligeable devant les trois autres).

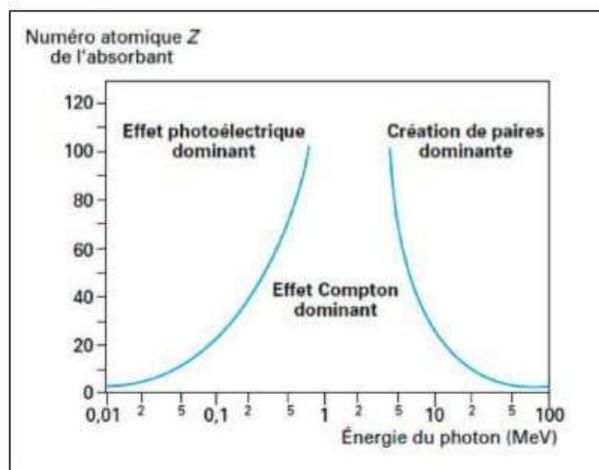


FIGURE 2.2 – Types d'interaction prépondérants suivant l'énergie du photon et le numéro atomique Z du milieu [3].

2.2.1 L'absorption photoélectrique

Dans le processus d'absorption photoélectrique, un photon interagit avec un électron lié dans un matériau absorbant dans lequel le photon est complètement absorbé. Ensuite, le surplus d'énergie communiqué à l'atome est évacué via l'éjection d'un électron d'une des couches électroniques. L'énergie du photo-électron est donnée par :

$$E_{e^-} = E_\gamma - E_b \quad (2.1)$$

Où E_{e^-} l'énergie cinétique de l'électron arraché, E_γ représente l'énergie du photon incident et E_b l'énergie de liaison de l'électron dans les couches les plus profondes de l'atome ($E_b = 11,1$ keV pour la couche K du germanium). Cette dernière varie de quelques keV pour les

matériaux à faible Z à des dizaines de keV pour les matériaux avec un numéro atomique supérieur [44]. Le photo-électron laisse ainsi un trou dans la couche électronique d'où il est éjecté. Ce trou est comblé par le réarrangement des électrons des autres couches. Ce réarrangement donne lieu à l'émission de photons X caractéristiques de l'atome, ou des électrons Auger, qui sont généralement instantanément réabsorbés par la matière. Le processus d'absorption photoélectrique est représenté schématiquement dans la figure 2.3 ci-dessous.

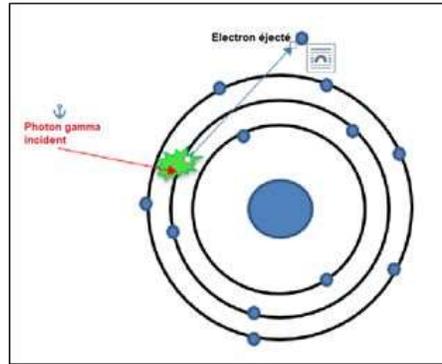


FIGURE 2.3 – Schéma représentant l'effet photoélectrique.

La section efficace de l'effet photoélectrique qui traduit la probabilité qu'une réaction ait lieu, dépend de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z du matériau. Elle est donnée par :

$$\sigma_{pe} \cong cste. \frac{Z^n}{E_\gamma^{3.5}} \quad (2.2)$$

où l'exposant n varie entre 4 et 5.

La forte dépendance à l'énergie des photons est la raison pour laquelle le processus photoélectrique est significatif à basse énergie des photons, mais devient moins dominant aux énergies plus élevées.

2.2.2 La diffusion Compton

Ce phénomène se manifeste par une absorption partielle de l'énergie du photon incident. Il décrit une collision entre ce dernier et l'électron faiblement lié ou libre dans le matériau absorbant. Le résultat de cette interaction est que le photon gamma entrant est

dégradé en énergie et dévié de sa direction d'origine et qu'un électron connu sous le nom d'électron de recul est créé. A partir des lois de conservation de la masse-énergie totale et du moment linéaire, les énergies du photon diffusé et de l'électron de recul sont liées aux angles auxquels elles sont émises. La figure 2.4 montre un schéma du processus de diffusion Compton.

E'_γ l'énergie du photon diffusé est défini par l'équation suivante :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{E_0}(1 + \cos\theta)} \quad (2.3)$$

Avec θ l'angle de diffusion du photon et $E_0 = m(e^-) \times c^2$. L'électron a donc une énergie qui varie de 0 (cas où $\theta = 0$) à un maximum correspondant au cas où $\theta = \pi$.

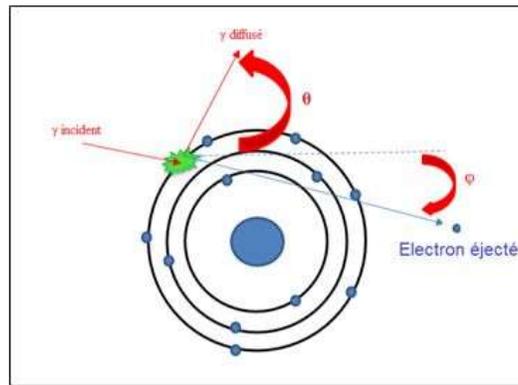


FIGURE 2.4 – Schéma représentant la diffusion Compton.

La probabilité de la diffusion Compton dépend directement du nombre d'électrons du matériau et varie linéairement en fonction du numéro atomique Z . Elle est donnée par :

$$\sigma \cong Z \cdot f(E_\gamma) \quad (2.4)$$

La formule de Klein Nishina décrit la distribution angulaire des photons. La section efficace différentielle par angle solide et par électron en fonction de l'énergie de photon incident et de l'angle de diffusion θ est donnée par l'équation :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\varepsilon, \Theta) = \frac{1}{2} r_0^2 \left(\frac{1}{(1 + \varepsilon(1 - \cos\Theta))^2} \left((1 + \cos\Theta)^2 + \frac{(\frac{E_\gamma}{E_0})^2 (1 - \cos\Theta)^2}{1 + \frac{E_\gamma}{E_0}(1 - \cos\Theta)^2} \right) \right) \quad (2.5)$$

La figure 2.5 représente la distribution angulaire des photons diffusés pour plusieurs énergies allant de 50 keV à 3 MeV. Les photons incidents viennent de la gauche. La diffusion des photons se fait vers l'avant pour les hautes énergies.

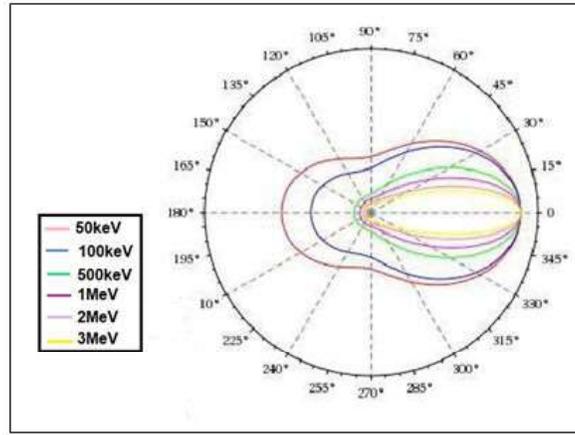


FIGURE 2.5 – Section efficace différentielle de l'effet Compton en fonction de l'énergie du photon incident et de l'angle solide [45].

La diffusion Compton est le processus d'interaction dominant pour les énergies gamma allant de 0,1 à 10 MeV. À plus haute énergie, un autre mécanisme d'interaction, connu sous le nom de "production de paire" devient plus important.

2.2.3 La production de paires

Quand l'énergie du photon incident dépasse le double de l'énergie de l'électron au repos (1,022 MeV), le phénomène de production de paires est possible. En pratique, cependant, ce type d'interaction n'est observé qu'à des énergies de l'ordre de plusieurs MeV. Majoritairement, les photons émis par les actinides recherchés dans les colis ont des énergies comprises entre 100 et 1300 keV. Les spectres d'acquisition ne comportent donc quasiment aucune trace de productions de paires. Il est néanmoins judicieux d'expliquer ce phénomène pour avoir une vision d'ensemble des interactions gamma/matière.

La production de paires (qui a lieu dans le champ coulombien du noyau) est la conversion du photon incident en une paire électron/positon (e^-/e^+), d'énergie cinétique $E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 1,022\text{MeV}$. Dans le cas d'une annihilation directe (c'est-à-dire sans passer par le stade de l'état du positronium), le positon va rapidement (en une nanoseconde [44]) s'annihiler avec un électron, son antiparticule, et générer 2 photons de 511 keV. Si les deux photons de 511 keV s'échappent du détecteur, l'énergie déposée par une production de paires est de :

$$E_e = E_\gamma - 1,022MeV \quad (2.6)$$

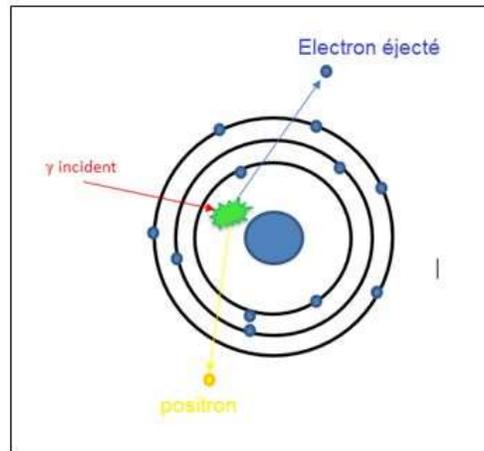


FIGURE 2.6 – Schéma représentant la création de paire

La section efficace de la production de paires en fonction de l'énergie du photon incident et du numéro atomique Z . Elle s'exprime en première approximation [46] par :

$$\sigma \cong Z^2 \cdot \ln\left(\frac{2E_\gamma}{E_0}\right) \quad (2.7)$$

La figure 2.7 illustre les différents types d'interactions présents dans un spectre d'acquisition en prenant le pic à 662 keV émis par le césium 137.

2.2.4 Section efficace et coefficient d'atténuation

La probabilité de déposer partiellement ou totalement une énergie de photon incident dans la matière par un processus donné est reliée à la section efficace atomique mesurée en barns ($= 10^{-24} \text{ cm}^2$). La formule de la section efficace totale σ_{Total} pour un photon d'énergie donnée est donnée par l'équation :

$$\sigma_{Total} = \sigma_{E.P} + \sigma_{D.C} + \sigma_{C.P} \quad (2.8)$$

Elle correspond à la somme des sections efficace $\sigma_{E.P}$, $\sigma_{D.C}$ et $\sigma_{C.P}$.

Le coefficient d'atténuation linéique μ Représente la probabilité d'interaction par unité

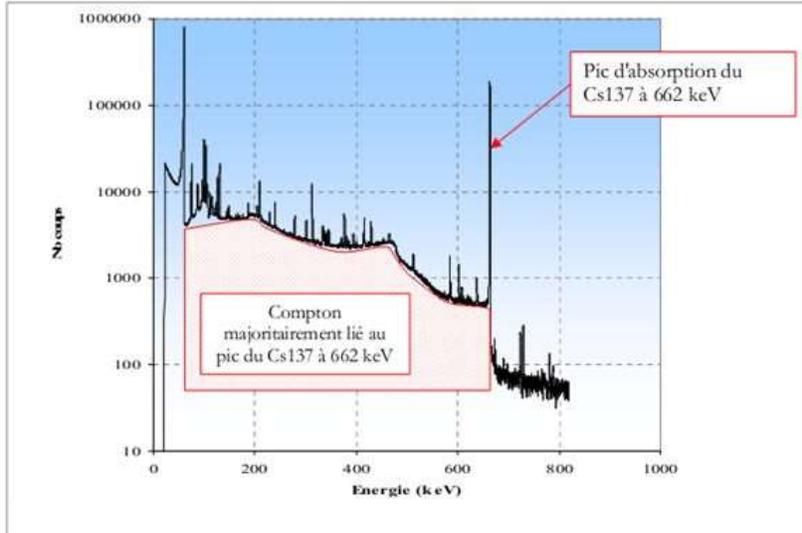


FIGURE 2.7 – Spectre d'acquisition sur lequel sont mentionnés le pic d'absorption à 662 keV caractéristique du ^{137}Cs et le fond Compton associé à ce pic. Dans ce spectre, le fond Compton généré par les autres pics d'absorption entre 60 et 662 keV est négligeable par rapport au fond Compton du pic du ^{137}Cs [45].

de longueur [cm^{-1}], il dépend de la nature du matériau et énergie du photon. Ce coefficient tenant compte aussi de la section efficace totale est donné par la formule suivante :

$$\mu = \sigma_{\text{Total}} \cdot n = \sigma_{\text{total}} \frac{\rho \cdot N_A}{M_A} \quad (2.9)$$

Avec n : nombre atome par unité de volume, ρ : la masse volumique, M_A : la masse molaire du matériau, N_A : le nombre d'Avogadro.

Pour un photon (E) et un milieu (Z) donnés, le coefficient d'atténuation linéique (et massique) est la somme des linéique (et massique) est la somme des coefficients liés à chaque interaction.

Il est aussi possible de définir le coefficient d'atténuation massique noté $\frac{\mu}{\rho}$ en $\frac{\text{cm}^2}{\text{g}}$. La figure 2.8 représente l'atténuation dans un matériau couramment utilisés en spectrométrie γ : le germanium (cristal du détecteur dans notre travail).

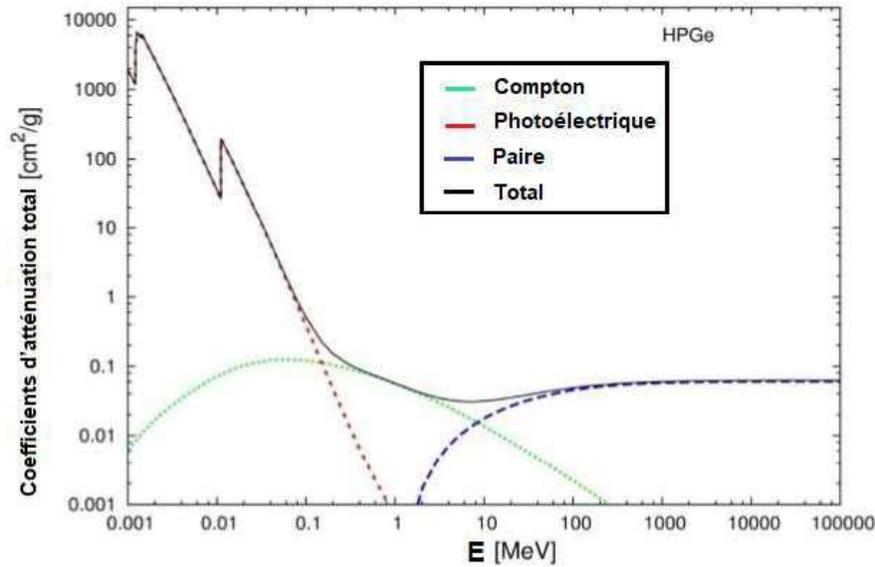


FIGURE 2.8 – Coefficients massiques d'atténuation totale et partielle pour le germanium [47].

2.3 La spectrométrie Gamma

La spectrométrie gamma est une technique non destructive de mesure nucléaire utilisée pour identifier et quantifier des éléments radioactifs par la mesure de l'énergie et du nombre des rayonnements gamma émis par la source. Le flux de photons gamma émis par la source interagit en déposant l'intégralité ou une partie de son énergie dans le cristal de détection. Cette mesure réalisée sur une certaine durée permet de construire un spectre : histogramme donnant le nombre de photons détectés en fonction de leur énergie. L'identification est possible car les noyaux atomiques ont une structure en niveaux d'énergie de sorte qu'ils ne peuvent émettre (ou absorber) que des photons d'énergies particulières. Ces niveaux d'énergie ou raies d'émission sont caractéristiques de chaque radio-émetteur gamma. Les raies se matérialisent sous forme de pics dans le spectre.

Les principales caractéristiques des spectromètres sont :

L'efficacité relative : dépend de nombreux facteurs comme le type et l'énergie du rayonnement incident, la géométrie du cristal (volume), la densité et le numéro atomique du matériau utilisé, les éventuelles zones mortes dues aux propriétés de transport des

porteurs et au mécanisme d'induction de signal. Les cristaux de détection étant principalement de formes cylindriques, l'efficacité de détection varie en fonction de l'angle d'incidence des photons et l'axe de révolution du cylindre.

La résolution en énergie : dans les semi-conducteurs, une paire d'électron-trou est créée par quelques eV, ceci est environ 10 fois moins que l'ionisation d'un gaz, et 100 fois moins qu'avec l'excitation dans un scintillateur. Cela se traduit par une meilleure résolution en énergie, puisque la statistique sur le nombre de charges élémentaires créées est plus favorable.

La linéarité énergétique : correspond au passage entre l'énergie déposée par le rayonnement et l'énergie à laquelle celui-ci est enregistré. Celle des détecteurs à semi-conducteur est bonne, dans la mesure où le seuil de perte d'énergie est très faible.

Le bruit intrinsèque : il correspond aux événements enregistrés en l'absence de rayonnement. Pour les spectromètres semi-conducteurs, il correspond au courant de fuite. Celui-ci existe faiblement ($\sim nA$) et il n'est pas gênant en lui-même mais ses fluctuations le sont. Celles-ci sont causées par la nature discrète des phénomènes élémentaires aléatoires (agitation thermique). Moins il y aura de porteurs « inutiles » (générés par autre chose que le rayonnement) dans un détecteur, mieux cela sera. C'est pour cette raison que les semi-conducteurs sont refroidis.

Le temps de montée : la durée d'un signal correspond au temps de transit des porteurs ou à leur durée de vie. Il peut aller de la nanoseconde à la microseconde selon la géométrie du détecteur et l'intensité du champ électrique. Ce temps de montée peut influencer la résolution du détecteur et le temps mort qui est un paramètre important lors de mesures à des taux de comptage élevés [48].

2.4 La détection des radiations

Il existe différents types de détecteurs de rayonnement tels que les détecteurs à gaz, à scintillation ou à semi-conducteur. Certains d'entre eux peuvent fournir différents types d'informations sur le rayonnement, telles que son énergie, son intensité et /ou le type de rayonnement qui est mesuré. La différence de chaque détecteur dépend de son milieu de détection qui peut être gazeux, liquide ou solide. Cependant, tous les types d'instruments de détection de rayonnement impliquent essentiellement la génération de signaux électriques qui résultent de l'interaction du rayonnement avec le matériau du détecteur. Les méthodes de détection sont, en général, basées sur le processus d'excitation ou d'ionisa-

tion des atomes dans le détecteur par le passage d'une particule chargée. Le rayonnement électromagnétique donne naissance à des électrons énergétiques par l'un des trois types de processus, à savoir l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la production de paires, comme indiqué dans la section précédente. Les détecteurs remplis de gaz ne conviennent vraiment que pour le comptage d'électrons de basse énergie, d'ions et de photons en raison de la faible capacité d'arrêt du gaz comme moyen de détection des rayons gamma. Afin d'améliorer la probabilité d'absorption d'un milieu de détection, un nombre atomique plus élevé et / ou des matériaux liquides ou solides de densité plus élevée sont utilisés pour mesurer les rayonnements hautement pénétrants. Les détecteurs qui sont basés sur le processus de scintillation peuvent être utilisés pour détecter les rayonnements ionisants et c'est l'une des techniques les plus anciennes et les plus utiles pour la détection et la spectroscopie d'une large gamme de radiations. Pour la spectrométrie gamma, le scintillateur à l'iodure de sodium activé au thallium (NaI (Tl)) est le plus fréquemment utilisé car il a une grande efficacité pour détecter le rayonnement gamma et ne nécessite pas de refroidissement. Cependant, les détecteurs à scintillation ne fournissent pas la sélectivité énergétique pour traiter un spectre de rayons gamma complexe, en raison de leur résolution énergétique relativement faible. Pour obtenir une bonne résolution énergétique, des détecteurs à semi-conducteurs sont utilisés. Le travail expérimental présenté dans ce projet de thèse a utilisé des détecteurs à semi-conducteurs de germanium, comme décrit dans la section suivante [49].

2.4.1 Les semi-conducteurs

Le fonctionnement d'un semi-conducteur est basé sur la théorie des bandes selon laquelle les électrons prennent des valeurs d'énergies permises dans la bande de valence et la bande de conduction. Dans un solide cristallin, les électrons ne peuvent occuper que des niveaux d'énergie situés à l'intérieur de bandes permises comme les bandes de valence et de conduction. Par définition, le passage des électrons de la bande de valence à celle de conduction est systématique pour un conducteur et impossible pour un isolant ; dans le cas intermédiaire, dit semi-conducteur, cette transition n'a lieu que suite à une excitation (agitation thermique ou particule ionisante). L'écart entre bandes de valence et de conduction, noté E_g (gap), est typiquement de l'ordre de l'électronvolt pour un semi-conducteur, Dans le cas du germanium, le gap est de l'ordre de 0,67 eV.

► Pour les conducteurs, la bande de valence et la bande de conduction se chevauchent. Les électrons peuvent donc passer directement dans la bande de conduction et circuler dans tout le solide. La conductivité est bonne.

► Pour les isolants, la bande de valence et la bande de conduction sont séparées par un gap (bande interdite) de l'ordre de 6 eV. Cette valeur est trop élevée pour que les électrons passent dans la bande de conduction.

► Pour les semi-conducteurs, la bande de valence et la bande de conduction sont séparées par un gap plus faible, compris entre 0,5 et 4 eV, mais le plus souvent voisin de 1 eV. Si on apporte cette énergie aux électrons, certains pourront passer dans la bande de conduction et circuler dans le matériau. L'apport d'énergie peut se faire par chauffage, par application d'un champ électromagnétique ou par illumination. A température ambiante la conduction est faible, elle augmente rapidement avec la température (figure 2.9).

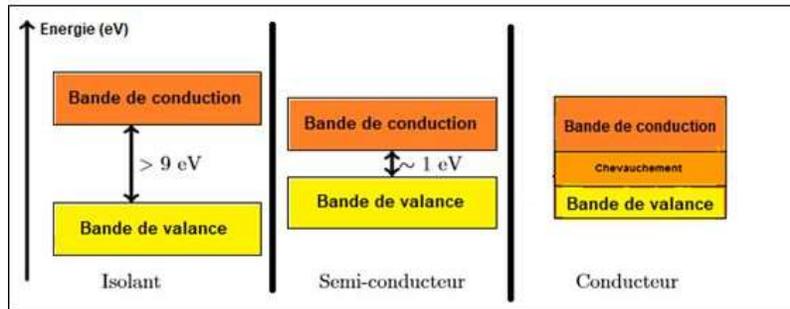


FIGURE 2.9 – Position des bandes d'énergie pour un conducteur, un semi-conducteur et un isolant

Si un champ électrique est appliqué dans le semi-conducteur, les électrons présents dans la bande de conduction (et les trous correspondants dans la bande de valence) deviennent mobiles et créent un courant. Le dépôt d'une quantité d'énergie E_γ par un rayonnement ionisant peut se traduire par la création d'un nombre proportionnel de paires électrons-trous :

$$N_{eh} = \frac{E_\gamma}{w_{eh}} \quad (2.10)$$

Où w_{eh} est l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou. Afin de drainer les porteurs de charge jusqu'aux bornes du semi-conducteur (électrodes de collecte) sans recombinaison, il est nécessaire de former une zone désertée de tout porteur libre. Ce type de zone, dite zone de déplétion, est obtenue avec les semi-conducteurs par une polarisation inverse des jonctions PN ou PIN.

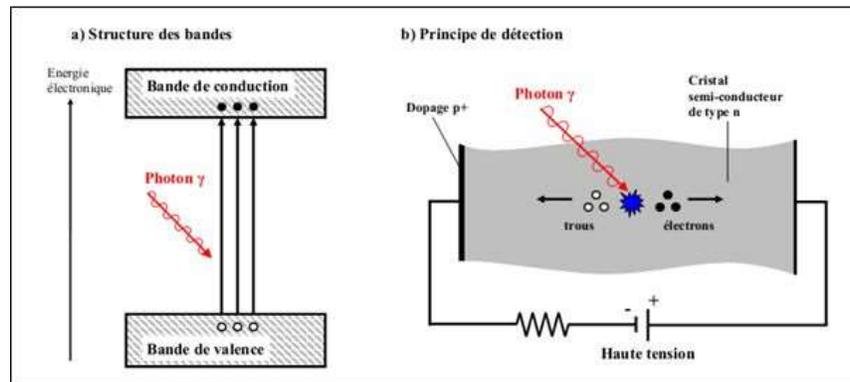


FIGURE 2.10 – Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement

La table 2.2 liste les principales propriétés des semi-conducteurs les plus couramment utilisés. Parmi ceux-ci, le germanium possède la bande interdite la plus étroite et permet de créer le plus grand nombre de porteurs de charge pour un dépôt d'énergie donné, minimisant ainsi la fluctuation statistique dans la mesure. Par ailleurs, seul le germanium peut être utilisé avec des volumes importants (plusieurs dizaines de cm^3). Sa densité et son nombre atomique élevés en font le semi-conducteur le plus approprié pour la détection des rayonnements ionisants dans une plage d'énergie allant de la dizaine de keV à la dizaine de MeV . Notons que les semi-conducteurs composés comme CdTe, CdZnTe ou AsGa sont utilisés plus spécifiquement pour la détection de rayonnement X de haute énergie (ou gamma de basse énergie) [50].

Matériau	Si	Ge	AsGa	CdTe	HgI ₂
Nombre atomique Z	14	32	31.33	48.52	80.53
Masse volumique $\rho[g/cm^3]$	2.33	5.32	5.33	6.06	6.30
Longueur d'atténuation $x_{1/2}[cm]$ à 662 keV	3.83	1.83	1.82	1.50	1.20
Énergie de la bande interdite E_g [eV]	1.12	0.66	1.42	1.56	2.13

Rq : Toutes les valeurs indiquées correspondent à la température ambiante (300° K), à l'exception du germanium pour lequel $T = 80^\circ K$.

TABLE 2.2 – Les principales propriétés des semi-conducteurs les plus couramment utilisés. [3]

Il est possible d'augmenter la conductibilité ou la densité de porteurs des charges d'un semi-conducteur par un procédé chimique, appelé dopage, qui consiste à insérer des impuretés dans le semi-conducteur. On réalise ainsi des semi-conducteurs de type n et des semi-conducteurs de type p, ces dopage sont dits extrinsèques.

Pour obtenir un matériau de type n, on dope le matériau semi-conducteur (généralement du silicium) avec un élément de valence supérieure (possédant plus d'électrons

que le semi-conducteur), comme le phosphore, afin d'ajouter des électrons à la bande de conduction. La conduction est alors assurée par le déplacement de ces électrons. Le dopage de type p, si en augmente la densité des trous.

2.4.1.1 Semi-conducteurs de type N

Si le cristal est dopé avec des atomes possédant un électron de valence supplémentaire, cet électron ne sera pas lié à un atome en particulier et pourra se déplacer librement à travers le réseau : type-n.

Les atomes d'impureté (appelés donneurs) produisent des niveaux remplis au-dessous de la bande de conduction. Les électrons de ces niveaux peuvent donc atteindre aisément ($\sim 0,05$ eV) la bande de conduction. Ce sont les porteurs de charge mobiles. Les électrons sont dans ce cas appelés porteurs majoritaires. Cependant il existe aussi quelques trous créés par l'énergie thermique. Ces trous qui ne proviennent pas des impuretés sont appelés porteurs minoritaires.

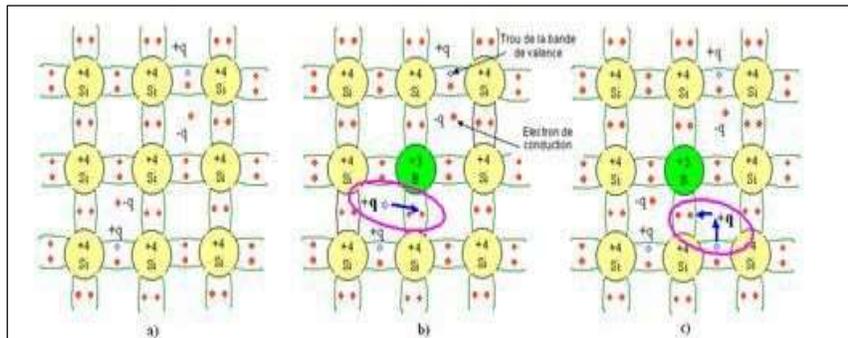


FIGURE 2.11 – Représentation schématique des liaisons électroniques pour le semi-conducteur silicium (Si) dopé P par du Bohr (B). a) Cas du semi-conducteur intrinsèque b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (B) accepte un électron de conduction en baissant la densité d'électrons n b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (B) accepte un électron de valence en augmentant la densité de trous p .

2.4.1.2 Semi-conducteurs de type P

Si le cristal est dopé avec des atomes possédant un électron de valence de moins, il y aura donc un trou parmi les électrons de valence. Ce trou peut être rempli par un électron de valence d'un atome voisin, mais cela créera un autre trou. Ce trou peut être vu comme une charge positive mobile : type-p.

Les atomes d'impureté (appelés accepteurs) produisent des niveaux vides au-dessus de

la bande de valence. Les électrons de la bande de valence peuvent atteindre ces niveaux aisément ($\sim 0,05$ eV). Les trous laissés derrière eux dans la bande de valence sont les porteurs de charge mobiles. Les trous sont dans ce cas appelés porteurs majoritaires. Cependant il existe aussi quelques électrons créés par l'énergie thermique. Ces électrons libres qui ne proviennent pas des impuretés sont appelés porteurs minoritaires.

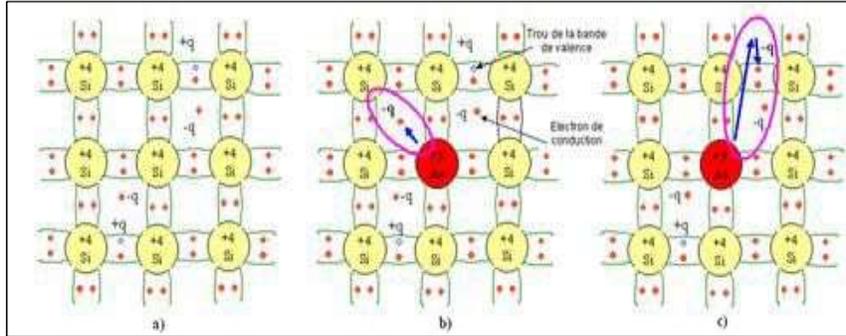


FIGURE 2.12 – Représentation schématique des liaisons électroniques pour le semi-conducteur silicium (Si) dopé P par de l'arsenic (As). a) Cas du semi-conducteur intrinsèque b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (As) donne un électron de conduction en augmentant la densité d'électrons n b) Sur la base de la représentation a), l'impureté (As) donne un électron de conduction en baissant la densité de trous p .

2.5 La chaîne de mesure pour la spectrométrie gamma : du détecteur germanium au signal numérique

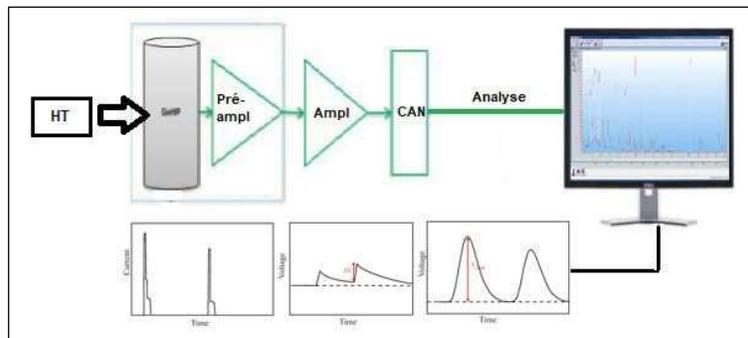


FIGURE 2.13 – schéma de la chaîne de détection spectrométrie gamma.

2.5.1 Le détecteur germanium hyper-pur

Les détecteurs de germanium ont été les meilleurs spectromètres d'énergie gamma pendant cinq décennies, principalement en raison de leur excellente résolution énergétique.

Cette résolution supérieure, même dans de très grands cristaux, est due à la petite bande interdite, à une mobilité uniformément élevée du porteur de charge avec une faible perte de charge et à une bonne récupération de la charge au niveau des électrodes. La segmentation des électrodes a ouvert la voie aux compteurs de germanium dans lesquels les positions de création de charge peuvent être localisées au niveau de 1 mm, ce qui facilite l'imagerie et le suivi. Pour atteindre ce degré de résolution spatiale et maintenir une bonne collecte des charges, les électrodes doivent être fortement segmentées, au niveau du pas de 5 à 10 mm, avec de très petits intervalles inter-bandes <0,5 mm. Ce niveau de segmentation est difficile à atteindre avec les électrodes traditionnelles n^+ diffusées au lithium à haute température. Dans les premiers compteurs plans segmentés, une électrode de lithium continue a été établie, puis segmentée par sciage. Les compteurs ultérieurs utilisaient un mince dépôt de lithium avec segmentation réalisée par masquage. D'une manière ou d'une autre, la mobilité du lithium a empêché la réduction des interstices entre bandes inférieures à 1 mm [51].

La géométrie du détecteur affecte le degré auquel une quantité donnée de piégeage de charge dégrade la résolution de l'énergie. Par exemple, les signaux de charge provenant du contact central d'un détecteur coaxial de type p (électrodes conventionnelles) sont beaucoup plus affectés par le piégeage des trous que le piégeage d'électrons car les trous génèrent la majorité du signal d'énergie pour la plupart des interactions des rayons gamma [52]. Des configurations de détecteur hyper-pure de germanium peuvent être réalisées sous diverses formes à appliquer à des fins particulières de mesure. Les configurations les plus courantes du détecteur sont des types planaire, coaxiale et puits comme illustré à les figures 2.14, 2.15, 2.16.

2.5.2 Détecteur planaire

La configuration plane permet d'avoir une meilleure résolution, avec une réponse du détecteur à basse énergie (de 1KeV à 1MeV), car les contacts électriques sont posés sur les deux surfaces parallèles.

Généralement les détecteurs plans ont des diamètres de quelques centimètres, des épaisseurs qui vont jusqu'à 3 cm (figure 2.14), et d'une efficacité d'environ 30 %.

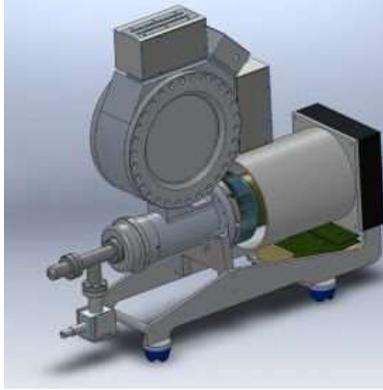


FIGURE 2.14 – Détecteur planaire [53].

2.5.3 Détecteur coaxiale

Les détecteurs coaxiaux (figure 2.15) sont adaptés aux mesures des photons de hautes énergies avec une efficacité de 15%. Ces détecteurs de forme cylindrique avec une partie creuse au centre possèdent une fenêtre en béryllium ou en aluminium.



FIGURE 2.15 – détecteurs coaxial de longueur 50 mm et de 50 mm de diamètre.

Détecteur puits

Les détecteurs de puits sont essentiels pour atteindre des activités minimales détectables ou des incertitudes statistiques pour de petites quantités d'échantillons, par exemple pour le comptage environnemental. Le placement de l'échantillon dans le puits du cristal fait que l'angle solide couvert par le cristal est proche de 4π et l'efficacité de la détection est élevée. Un effet indésirable du rendement élevé est que les effets TCS (coïncidence sommation) sont sévères. Il est crucial de prendre en compte ces effets TCS afin d'obtenir des résultats d'activité précis. Les détecteurs puits sont plus appropriés à la mesure de faibles quantités d'échantillons et aux basses énergies ce dernier est positionné au centre

du cristal, ce qui permet l'augmentation de l'efficacité de détection dans un angle proche les 4 π (figure 2.16). L'inconvénient majeur d'un détecteur puits est sa grande sensibilité aux effets de pic-somme.

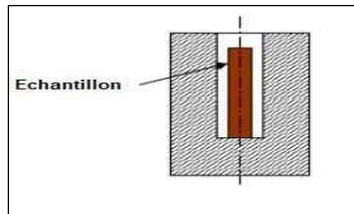


FIGURE 2.16 – Géométrie longitudinale du détecteur de puits.

Le détecteur moderne de puits SAGe (Small Anode Germanium) de faible capacité disponible dans le commerce associée à la technologie des petites anodes confère des performances de résolution similaires à celles des détecteurs semi-planaires et des performances de résolution supérieures à celles des détecteurs coaxiaux et puits traditionnels. Le détecteur de puits convient au comptage environnemental sur une plage d'énergie de 20 keV-10MeV. Il offre également une application à la radiochimie nucléaire pour les échantillons à taux de comptage bas, moyen et élevé, y compris le comptage d'échantillons à très faible activité et une variété d'applications physiques nécessitant une plus grande efficacité [54].

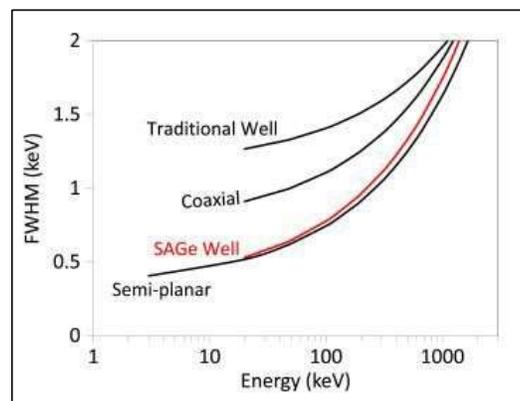


FIGURE 2.17 – Performances de résolution du trois types de détecteur, Chacune des courbes est un ajustement à la moyenne des données mesurées avec trois détecteurs du même modèle.

La figure 2.17 est une superposition des performances de résolution du détecteur de puits avec d'autres types de détecteurs. Les courbes représentées sur cette figure sont adaptées aux données expérimentales de trois détecteurs afin de tenir compte de la variation de la résolution répartie dans les données mesurées. Les résultats démontrent clairement que les détecteurs SAGe (Small Anode Germanium) de puits ont des performances de

résolution similaires à celles des détecteurs semi-planaires, et offrent une amélioration significative par rapport aux détecteurs coaxiaux et aux détecteurs de puits existants.

2.5.3.1 Principales caractéristiques d'un détecteur

Les principales caractéristiques d'un détecteur sont : La résolution en énergie et L'efficacité :

1. **La résolution en énergie** : Elle détermine la capacité d'un détecteur à séparer les raies. Elle tient compte de la largeur à mi-hauteur du pic (FWHM= Full width at half maximum). Dans le cas idéal, la forme du pic est gaussienne et la résolution est liée à l'écart-type σ_E de la distribution (figure 2.18) :

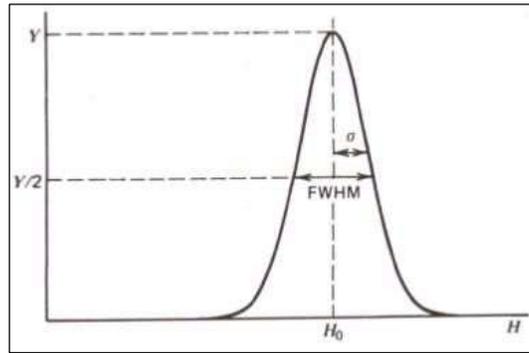


FIGURE 2.18 – *Distribution gaussienne du pic.*

Plus FWHM est petite, plus la résolution du détecteur est bonne. Pour une courbe gaussienne, la largeur à mi-hauteur FWHM est proportionnelle à la fluctuation statistique (déviations standard) σ où :

$$FWHM = \sqrt{8 \ln 2} \sigma_E \approx 2.35 \cdot \sigma \quad (2.11)$$

2. **L'efficacité de détection** :

L'efficacité de détection est déterminante dans l'analyse quantitative d'un échantillon. Elle est définie de différente manière : absolue, intrinsèque.

Efficacité absolue Dépend de la géométrie et de la probabilité d'interaction du photon dans le détecteur. C'est le rapport entre le nombre d'événements enregistrés et le nombre total d'événements sortants de la source (dans toutes les directions).

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre total d'événements sortants de la source dans } 4\Pi} \quad (2.12)$$

Efficacité Intrinsèque C'est le rapport entre le nombre d'événements enregistrés et le nombre d'événements qui arrivent sur le détecteur.

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'événements enregistrés}}{\text{nombre d'événements arrivants au détecteur}} \quad (2.13)$$

La relation qui relie les deux efficacités absolue et intrinsèque est :

$$\varepsilon_{int} = \varepsilon_{abs} \cdot \frac{4\Pi}{\Omega} \quad (2.14)$$

Ω : Angle solide du détecteur. Pour un détecteur ayant une efficacité intrinsèque ε_{int} bien déterminée et qui a détecté un nombre d'impulsion N, le nombre des rayonnements émis N_0 par une source radioactive sera :

$$N_0 = N \cdot \frac{4\Pi}{\varepsilon_{int} \cdot \Omega} \quad (2.15)$$

Ω : est l'angle solide entre la source radioactive (ou l'échantillon) et le détecteur, tel que :

► Si la source radioactive est ponctuelle.

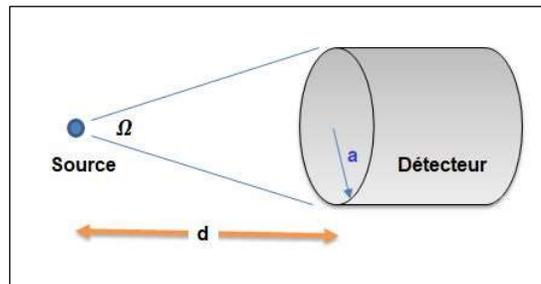


FIGURE 2.19 – représentation schématique d'un détecteur et source ponctuelle.

L'angle solide est donné par la formule suivante :

$$\Omega = 2\Pi \cdot \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}}\right) \quad (2.16)$$

► Ce n'est pas le cas si la source radioactive (ou l'échantillon) possède une forme géométrique circulaire.

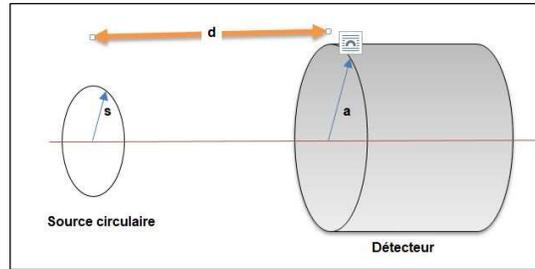


FIGURE 2.20 – représentation schématique d'un détecteur et source circulaire.

Le calcul de l'angle solide dans ce cas est difficile, mais il peut être obtenu par la formule approximative suivante :

$$\Omega_{Abs} \cong 2.\Pi \left[1 - \frac{1}{(1+\beta)^{\frac{1}{2}}} - \frac{3}{8} \cdot \frac{\alpha.\beta}{(1+\beta)^{\frac{5}{2}}} + \alpha^2[F1] - \alpha^3[F2] \right] \quad (2.17)$$

$$F1 = \frac{5}{16} \cdot \frac{\beta}{(1+\beta)^{\frac{7}{2}}} - \frac{35}{16} \cdot \frac{\beta}{2(1+\beta)^{\frac{9}{2}}}$$

$$F2 = \frac{35}{128} \cdot \frac{\beta}{(1+\beta)^{\frac{9}{2}}} - \frac{315}{256} \cdot \frac{\beta^2}{(1+\beta)^{\frac{11}{2}}} + \frac{1155}{1024} \cdot \frac{\beta}{3(1+\beta)^{\frac{13}{2}}}$$

2.5.4 l'électronique de mise en forme

Aux bornes de la résistance de charge R_c placée à la sortie d'un détecteur, on obtient un signal dont l'amplitude maximale est proportionnelle à l'énergie perdue par la particule détectée. L'amplitude de ce signal étant toujours très faible (de l'ordre de quelques mV par MeV seulement), il est nécessaire de l'amplifier en gardant une parfaite linéarité. Dans les chaînes utilisées pour la simple spectroscopie des rayonnements nucléaires les différentes opérations sont réalisées par une suite de modules spécifiques et reliés entre eux par des câbles de liaison. Pour des raisons commerciales évidentes et pour la tranquillité de l'utilisateur la plupart de ces modules suivent les normes NIM (Nuclear Instrument Module) ce qui assure une parfaite compatibilité entre modules de différents fabricants.

Les câbles de liaisons sont des câbles coaxiaux constitués d'un fil central de cuivre entouré d'un diélectrique isolant (polyéthylène) puis d'une tresse métallique qui sert de blindage et permet de raccorder chaque module à une même masse. Le tout est enrobé dans un isolant protecteur. Aux deux extrémités des connecteurs appropriés (type BNC

et SHV pour les hautes tensions) permettent le raccordement aux modules. Typiquement leur impédance est de 50Ω et leur capacité de l'ordre de $100 pF.m^{-1}$. Le temps de transit d'un signal est de l'ordre de $3 ns.m^{-1}$ et doit être pris en compte pour certaines expériences (coïncidences, temps de vol...).

Un module est caractérisé par son impédance d'entrée Z_e et son impédance de sortie Z_s . Pour une bonne transmission du signal tout au long de la chaîne il faut que Z_e soit aussi élevée et Z_s aussi faible que possible. Typiquement $Z_e=100$ ou $1\ 000 \Omega$ et $Z_s = 1 \Omega$. Pour des signaux rapides (ceux pour lequel le temps de montée est court devant le temps de transit) ou pour des câbles très longs (une dizaine de mètres), cette différence d'impédance risque < d'induire des réflexions qui vont détériorer le signal transmis et des précautions particulières sont à prendre.

2.5.4.1 Préamplificateur

L'amplitude du signal de sortie soit indépendante de son gain interne et de la capacité du détecteur. Pour cela, on utilise un préamplificateur de charge c'est-à-dire un montage à grand gain interne G_i en contre-réaction sur une résistance R_f et une capacité C_f en parallèle.

$$SiG_i \gg \frac{C_i + C_f}{C_f} \quad (2.18)$$

où C_i est la capacité d'entrée qui comprend celle du détecteur, on montre que la tension de sortie vaut où Q est la charge libérée dans le détecteur.

Le préamplificateur doit impérativement être placé le plus près possible du détecteur pour réduire la capacité parasite apportée par le câble de liaison. Avec les détecteurs semi-conducteurs, le premier étage du préamplificateur est alors placé à l'intérieur du cryostat et on en profite pour refroidir le transistor d'entrée (FET en général) afin d'en diminuer le bruit.

2.5.4.2 Amplificateur

Le signal en tension est ensuite traité par l'amplificateur principal (ou amplificateur de mise en forme) où il est mis en forme et amplifié de manière à optimiser le rapport signal/bruit (S/B). La mise en forme du signal se fait avec une différenciation et une

intégration qui résulte une impulsion courte par rapport au temps de descente du préamplificateur. L'amplificateur doit répondre aux mêmes exigences que celles requises pour le préamplificateur en ce qui concerne le bruit, la linéarité et la stabilité. Plusieurs systèmes de mise en forme sont utilisés [55] :

2.5.4.3 Mise en forme par cellule CR–RC

La figure 2.21 présente un schéma de principe. Le premier étage est un circuit différentiateur (ou filtre passe-haut) qui individualise chaque signal. Pour un signal d'entrée de forme marche abrupte (ce qui est le cas à la sortie du préamplificateur) l'amplitude maximale est préservée. Ce signal peut être utilisé pour compter le nombre d'événements mais pas pour mesurer l'amplitude car sa forme ne s'y prête pas.

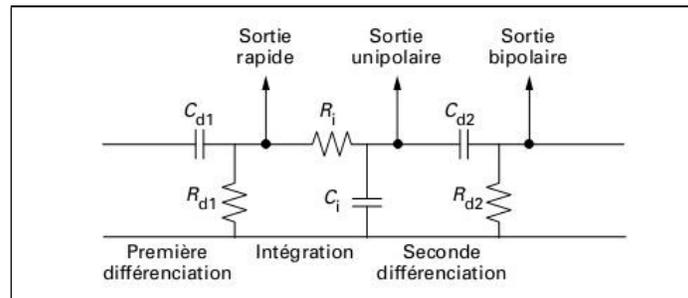


FIGURE 2.21 – Principe d'un amplificateur à mise en forme par cellules CR–RC.

Le deuxième étage est un circuit intégrateur (ou passe-bas) qui intègre le signal précédent. On obtient un signal unipolaire qui est généralement utilisé pour la mesure de l'énergie. Si les constantes de temps des deux circuits sont les mêmes ($R_i C_i = R_d C_d = RC$) on montre que, pour un signal d'entrée de type marche abrupte d'amplitude U_e , la tension de sortie vaut :

$$U_s = U_e \cdot \frac{t}{RC} \cdot \exp\left(-\frac{t}{RC}\right) \quad (2.19)$$

Le signal de sortie passe par un maximum qui vaut $U_s^{max} = 0.368U_e$ puis décroît. L'amplitude du signal d'entrée n'est pas conservée mais ce défaut balistique est le même pour tous les signaux tant que les constantes de temps demeurent grandes devant le temps de montée. Pour un temps $t = 7,5 RC$, son amplitude ne vaut plus que $U_s^{max}/100$.

Enfin, la plupart du temps, un troisième étage constitué d'un second circuit de différenciation est incorporé. On obtient un signal bipolaire, pratiquement égal à la dérivée du

précédent. Cette sortie peut être utile pour de très forts taux de comptage ou pour des mesures très longues car elle limite la dérive du niveau continu. Elle présente cependant un plus mauvais rapport signal/bruit que la sortie unipolaire.

La valeur des constantes de temps fixe la forme du signal de sortie et la bande passante de l'amplificateur. Le rapport signal/bruit dépend alors, dans une certaine mesure, de la forme du signal. Un excellent rapport peut être obtenu avec des impulsions d'allure gaussienne qu'on peut simuler en faisant suivre le circuit de différentiation d'une série de circuits d'intégrations. Un rapport légèrement meilleur est maintenant atteint avec des impulsions de forme approximativement triangulaire.

2.5.4.4 Mise en forme par ligne à retard

Dans ces amplificateurs, la mise en forme est assurée par un circuit inverseur et une ligne à retard qui repousse le signal d'entrée d'une durée sélectionnée. Le signal direct et le signal retardé sont ensuite additionnés pour donner un signal de forme rectangulaire dont la hauteur nous donne une idée sur quantité d'énergie absorbée. Avec ces appareils, le rapport signal/bruit est médiocre car il n'y a pas de filtre de mise en forme. Cependant, pour des détecteurs de mauvaise résolution (scintillateurs, chambre d'ionisation), ils conviennent parfaitement, d'autant plus que l'on peut générer des signaux de faible durée donc compatibles avec les forts taux de comptage.

2.5.4.5 Analyseur d'impulsion multi- canal (MCA)

Les signaux produits par les rayons gamma sont accumulés dans la mémoire d'un analyseur multi-canal (MCA) pour former un spectre (nombre de rayons gamma détectés en fonction de leurs énergie). L'analyseur multi-canal mesure le maximum d'amplitude de l'impulsion électrique reçue avant de l'enregistrer dans la mémoire. Un pic est obtenu à l'énergie correspondante de l'élément présent ainsi que sa quantité.

Le spectre enregistré (sous forme binaire) par l'analyseur est traité par un logiciel spécial (Inter winner). Ce dernier permet de visualiser en temps réel la sortie de l'analyseur multi canaux, à savoir un spectre avec en abscisse le numéro de canal et en ordonnée le nombre de coups dans ce canal. De manière à pouvoir identifier les désintégrations radioactives mises en jeu, le spectre doit être étalonné en énergie. Cela consiste à établir une relation polynomiale entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal. Le spectre obtenu est alors un ensemble de pics distribués en énergie se rajoutant à un fond [55].

Chapitre 3

La partie expérimentale

3.1 Préparation des échantillons

3.1.1 Echantillonnage

Dans ce chapitre on va expliquer le plan d'échantillonnage et la méthode utilisé pour sélectionner les échantillons de sols car le choix du site est un des facteurs importants de la réussite d'une plantation à croissance rapide. Il est donc primordial que l'échantillonnage du sol soit effectué avec rigueur afin que les résultats de l'analyse reflètent bien la réalité du milieu échantillonné.

Il existe quatre étapes générales dans l'échantillonnage des sols. La documentation « Pourquoi » et la conception « Comment » d'un plan d'échantillonnage adéquat du sol pour déterminer le niveau de radioactivité naturelle dans le système du sol sont des étapes essentielles dans l'échantillonnage du sol.

Afin d'atteindre des résultats probants, et afin de réaliser une étude approfondie sur les engrais et le sol, nous avons adopté la thèse sur l'acquisition d'un nombre considérable d'échantillons, jusqu'à environ 14 échantillons de sol et 7 engrais. Et je l'ai prolongé la période d'échantillons de 5 ans de traitement, depuis le 04 Juillet 2012 jusqu'à le 10 Juillet 2017.

Dans la période du 04 Juillet 2012 au 11 Juillet 2012 on a mesuré la radioactivité des trois engrais non organiques : phosphate, l'azote et le potassium utilisées dans le domaine de l'agricole dans la région de Constantine.

La deuxième partie de l'expérience était entre 06 juin 2015 au 25 juin 2015. Où nous avons mesuré la radioactivité de huit échantillons de sol prélevés dans une ferme pilote dans la région agricole El Athmania de Mila en Algérie. Nous les avons prélevé à différentes profondeurs variant de 10 à 50 cm. La distance entre les sites était de 100 mètres : deux échantillons de sols non cultivés (NP10, NP50), six échantillons de sols fertilisés et plantés de blé et des pommes respectivement (B10, B30, B50, P10, P30, P50). Dans la même période on a analysé les deux fertilisants utilisé dans le traitement des échantillons de sol dans la ferme pilote (FM, FU).

La troisième partie de l'expérience était entre 16 juin 2017 et 10 juillet 2017 ou j'ai réalisé au sein de laboratoire de basse activité (LBA /LPSC) La mesure de l'activité de sept échantillons de sol prélevés dans une ferme privé dans la région agricole El Athmania de Mila en Algérie. Les échantillons ont été prélevés à différentes profondeurs allant de la

surface à une profondeur de 50 cm. La distance entre les sites était de 100 mètres : Un échantillon de sol non cultivés (NF), six échantillons de sols plantés de Pomme, Abricot et Prune respectivement (Po0, Po50, Ab0, Ab50, Pr0 et Pr50). J'ai profité aussi lors de mon stage de doctorat, pour faire l'analyse de deux fertilisant TSP et Urée utilisés dans le traitement des sols dans la ferme privée.

3.1.2 Situation géographique des zones étudiées

Afin d'évaluer les niveaux de radioactivité naturelle dans la région de Mila en Algérie, des échantillons de sol et d'engrais ont été prélevés sur deux fermes : pilotes dans la région d'Oued El Athmania et privée dans la région de Ferdjioua.

La province de Mila se trouve dans la longitude de $6^{\circ} 16'$ E et à l'altitude de $36^{\circ} 27'$ N. Elle couvre une superficie de 9375 km^2 et a une population de 768419. Mila est parmi les meilleurs producteurs de céréales sur le territoire national et plusieurs fermes pilotes d'arbres fruitiers. Le climat est généralement du type méditerranéen dans l'étage semi-aride avec une sécheresse prolongée pendant l'été. Il est caractérisé par un déficit hydrique accru. La région incluse dans la présente étude a été montrée sur la figure 3.1.

La ferme pilote est située à Oued El Athmania dans la longitude de $6^{\circ} 17' 10''$ E et à l'altitude de $36^{\circ} 14' 59''$ N.

La ferme privée est située à Ferdjioua dans la longitude de $5^{\circ} 56' 45''$ E et à l'altitude de $36^{\circ} 24' 32''$ N.

3.1.3 Conditionnement

Le matériel utilisé pour l'échantillonnage des sols : pelle, seau en plastique, boîtes, stylo ou marqueur. Le sol a été recueilli dans un seau en plastique propre et bien mélangé. Des échantillons de 0.5 kg ont été broyés, homogénéisés et tamisés pour avoir des grains de 0.2 mm. Ils ont été séchés pendant 48 h pour s'assurer que l'humidité est complètement éliminée. Chaque échantillon a été placé dans une boîte en plastique d'un rayon de 50 mm et d'une profondeur de 14 mm (figure 3.2, 3.3).

La préparation finale de l'échantillon et les mesures par spectrométrie gamma à haute résolution utilisées pour déterminer la radioactivité de tous les échantillons ont été effectuées dans le Laboratoire de basse activité de Grenoble, à l'université Grenoble Alpe

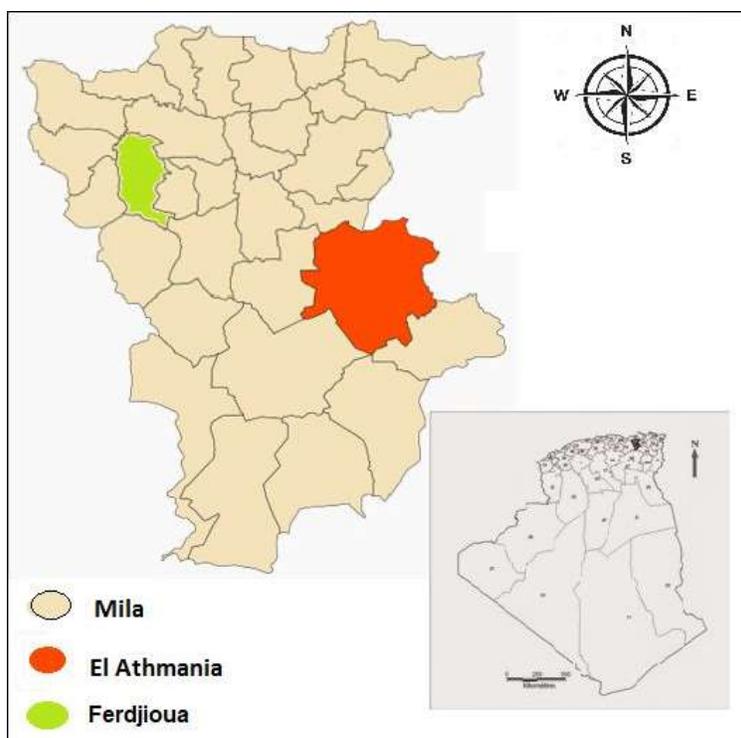


FIGURE 3.1 – Carte de la Wilaya de Mila montrant la position des deux fermes étudiées.

(figure 3.3).

Avant les mesures, les échantillons ont été placés dans un four à sécher. La température de séchage a été réglée à 60° pour s'assurer que toute humidité significative a été retirée des échantillons. Ces derniers ont par la suite étaient pesés (figure 3.4) et stockés (figure 3.5).

Echantillons	FA	FP	FTh	NP10	NP50	B10	B30
Masse (g)	19.12	28.52	25.67	30.89	30.89	25.84	26.34
Echantillons	B50	P10	P30	P50	FM	FU	Po0
Masse (g)	27.67	24.85	27.71	29.01	24.00	16.00	34.00
Echantillons	Po50	Ab0	Ab50	Pr0	Pr50	TSP	Uree
Masse (g)	32.55	30.42	31.15	34.49	34.55	27.23	19.11

TABLE 3.1 – Masses des échantillons.

Par la suite les échantillons sont scellés, étiquetés et conservés pendant environ un mois (Figure 3.5), afin d'établir un équilibre radioactif séculaire entre les radionucléides avec des demi-vies courtes (> 7 demi-vies de ^{222}Rn et ^{220}Rn). Cette étape était nécessaire pour s'assurer que le gaz du radon est confiné dans le volume et que les noyaux fils restent



FIGURE 3.2 – *Tarière à main utilisée pour collecter des échantillons de sol et quelques endroits d'échantillonnage*

également dans l'échantillon [56].

3.2 La chaîne de spectrométrie gamma au LBA

La chaîne de spectrométrie gamma du LBA est composée de plusieurs éléments comme le montre la figure 3.6.



FIGURE 3.3 – LBA/LPSC Laboratoire de mesure par spectrométrie gamma et des échantillons de sol préparé scellé avec du ruban en plastique pour empêcher la contamination des détecteurs.



FIGURE 3.4 – Séchage et pesage des échantillons.

3.2.1 Les détecteurs

Le Laboratoire de Basse Activité (LBA/LPSC) dispose de deux détecteurs Germanium intrinsèques Hyper Pures « BeGe » de type planaire et un détecteur « Gamma » de type coaxiale. Lorsque le Gamma incident dépose toute son énergie dans le cristal, il crée un grand nombre de paires électron-trou. Vu que le cristal est polarisé par une haute tension, les porteurs de charge vont être dirigés vers leurs électrodes et la collection de ces charges aux bornes du détecteur génère des impulsions électriques dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée par les photons gammas.



FIGURE 3.5 – Étiquetage et conservation des échantillons.

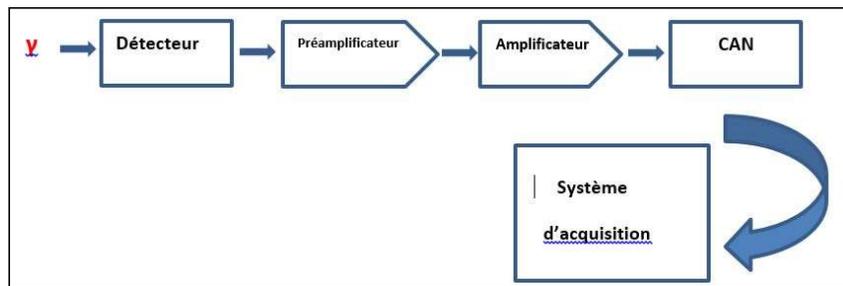


FIGURE 3.6 – Représentation de la chaîne de mesure au LBA



FIGURE 3.7 – (a) cryostat d'azote liquide (b) cylindres de plomb d'épaisseur 10 cm.

Le premier détecteur « Gamma » est un détecteur avec un cristal coaxial (diamètre 51 mm) et une fenêtre d'entrée en aluminium (1mm d'épaisseur, $Z=13$), et le deuxième « BeGe » avec un cristal plan (diamètre 71 mm) et une fenêtre d'entrée en carbone (0.6 mm d'épaisseur, $Z=6$). Ces fenêtres jouent un rôle important dans la précision de détection des rayonnements de basses énergies. En effet, pour le détecteur avec la fenêtre de carbone le spectre d'énergie débute à 5 keV, alors que pour l'autre détecteur avec la fenêtre en aluminium le spectre débute à 30 keV. Ceci est dû à l'interaction photoélectrique qui se fait dans la fenêtre d'entrée à basse énergie. Nous avons vu que l'effet photoélectrique dépend du Z milieu traversé et de l'énergie du photon. Pour la fenêtre d'aluminium, il y

a des photons qui vont interagir avec celle-ci et ne seront pas détectés. Pour la fenêtre de carbone, le Z étant plus petit que celui de l'aluminium, une partie des photons qui faisaient une interaction avec l'aluminium, ne le feront pas avec le carbone et donc ils seront détectés, voilà pourquoi le détecteur avec la fenêtre de carbone peut détecter des gammas de très faible énergie.

Leurs volumes des cristaux sont de 100 cm^3 pour le détecteur « Gamma » et de 122 cm^3 pour le détecteur « BeGe ».

Les deux détecteurs sont entourés de deux cm de plomb "archéologique" exempt de radioactivité naturelle due au ^{210}Pb qui a une demi-vie $T_{1/2} = 22\text{ans}$, puis de 15 cm de plomb ayant subi trois cycles de purifications par fusion suivie d'écémage. L'ensemble de ces deux détecteurs et de leur blindage est placé au centre d'un cube de deux mètres de côté, chaque face du cube étant constituée d'un détecteur à scintillation liquide. Ces détecteurs jouent le rôle de veto, interdisant l'acquisition de données c.à.d le comptage lors du passage d'un muon cosmique et des éventuels neutrons qu'il aura engendré. Cela engendre un temps mort de l'ordre de 6 à 7 % (figure 3.8).

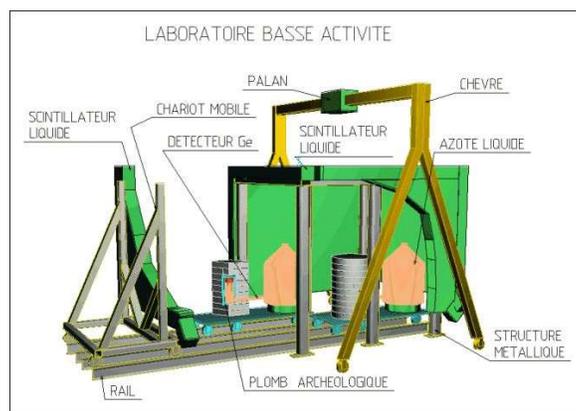


FIGURE 3.8 – Les deux détecteurs de LBA et leurs composants.

Les propriétés de deux détecteurs Gamma et BeGe peuvent être résumé dans le tableau suivant :

- Le SD est un paramètre très important quand on parle des capacités des spectromètres de rayons gamma impliqués dans des mesures des basses activités. Pour être plus précis, nous commençons par définir certaines quantités impliquées ("limites caractéristiques").

- la limite de détection (LD) indique la plus petite valeur réelle du mesurant qui peut encore être détecté avec les procédures de mesure appliquées ; Cela donne une décision

Propriétés	Détecteur Gamma	Détecteur BeGe
Qualité	Ancien	Nouveau
Volume	100cm ³	120cm ³
Efficacité relative	20 %	30 %
FWHM à 1332.5keV (⁶⁰ Co)	190keV	1.88keV
FWHM à 122.06keV (⁵⁷ Co)	1.09keV	0.71keV

TABLE 3.2 – Propriétés du détecteurs Gamma et BeGe.

sur la question de savoir si la procédure de mesure satisfait ou non aux exigences et il est donc adaptée aux fins de mesure prévues ;

La limite de détection d'un radionucléide à une énergie bien précise est calculée par la formule suivante :

$$LD = 2\sqrt{(\text{Nbre de coup (Canal)} \times \text{Résolution (Canal)})} \quad (3.1)$$

- les limites des intervalles de confiance incluent, dans le cas de l'effet physique reconnu comme présent, un intervalle de confiance contenant la vraie valeur du mesurant avec une probabilité spécifiée ".

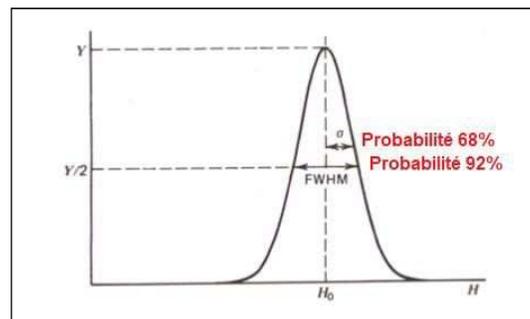


FIGURE 3.9 – Domaine de confiance avec la probabilité spécifiée pour calculer la limite de détection.

La limite de détection, LD, est définie comme le nombre minimal de comptages requis pour être mesurés à partir d'un échantillon afin de s'assurer qu'il y a une probabilité de 92% que les comptes nets atteignent au moins le niveau critique, LC. Pour garantir que 92% de la distribution des comptes nets se situe au-dessus de la limite critique, le nombre de comptes enregistrés à partir des échantillons doit être supérieur aux limites de détection de cette énergie (figure 3.9).

L'activité minimale détectable (SD) est calculée par la formule :

$$SD = \frac{LD}{(\varepsilon \times t_m \times I_\gamma \times m_{ech})} \quad (3.2)$$

Les dernières colonnes de la table 3.3 est l'activité minimale détectable (MDA ou SD) qui convertit la limite de détection (en nombre) en activité spécifique ($Bq.kg^{-1}$). Les valeurs de table 3.3 montrent l'activité minimale pouvant être détectée à partir de l'échantillon vierge. L'activité détectable minimale dépend des énergies gamma d'intérêt et de l'efficacité de comptage du détecteur à cette énergie.

Energie(keV)	Radionucléide	$SD^*(Bq/Kg)$	
		Détecteur Gamma	Détecteur BeGe
238.76	^{232}Th	0.016	0.009
351.93	^{238}U	0.022	0.031
661.66	^{137}Cs	0.008	0.007
1173.23	^{60}Co	0.009	0.006
1460.82	^{40}K	0.257	0.288

TABLE 3.3 – Valeurs calculées de l'activité minimale détectable (MDA) pour le détecteur gamma et BeGe.

Le local de mesure est situé au sous-sol du laboratoire. La protection du site vis à vis d'éventuelles poussières est assurée par un captage en hauteur de l'air de renouvellement suivi d'un filtrage absolu.

3.2.2 Préamplificateur

Il intègre les charges collectées sur les électrodes et effectue une conversion en une impulsion de tension dont l'amplitude est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal.

3.2.3 Amplificateur

Il amplifie le signal, le met en forme et augmente le rapport signal/bruit.

3.2.4 CAN

Le convertisseur Analogique Numérique convertit, comme son nom l'indique, les signaux analogiques en signaux numériques.



FIGURE 3.10 – *L'instrumentation électronique utilisée dans l'étude actuelle, montrant l'amplificateur de mise en forme et l'alimentation haute tension.*

3.2.5 Analyse par le logiciel InterWinner

L'acquisition de données et l'analyse des résultats s'effectuent au LBA sur 2 ordinateurs équipés du logiciel InterWinner (ITECH-Instruments) pour visualiser le spectre en énergie : nombre de gamma en fonction des énergies : la position des pics des isotopes correspondant aux énergies de leurs gammas. C'est ce logiciel aussi qui donne accès à l'activité de chaque radioélément de l'échantillon (figure 3.11).



FIGURE 3.11 – Les deux PC pour l'acquisition de données et l'analyse des résultats au LBA.

3.2.6 Résolution

Comme nous l'avons vu, l'énergie des photons γ émis par un noyau est bien définie et caractéristique du noyau émetteur : elle est égale à la différence d'énergie entre deux niveaux. Le spectre d'énergie théorique des photons gamma est donc un spectre de raies.

Or en réalité, Lorsque le gamma incident dépose toute son énergie dans le cristal, la charge créée n'est pas toujours la même, donc l'énergie calculée ensuite est une moyenne, représentée sous forme d'une gaussienne.

3.3 Calibration de la chaîne de mesure Gamma

Pour qu'une chaîne de mesure soit apte à identifier et quantifier les radio-isotopes d'un échantillon, il faut l'étalonner en énergie et en efficacité.

3.3.1 Étalonnage en énergie

Pour étalonner un détecteur en énergie, le mieux est d'utiliser une source avec des énergies gammas qui couvre tout l'intervalle de mesure. Pour cela, les détecteurs du LBA sont calibrés en énergie en utilisant une source ponctuelle d' ^{152}Eu qui dispose des raies gammas allant de 122 keV à 1408 keV (figure 3.12).

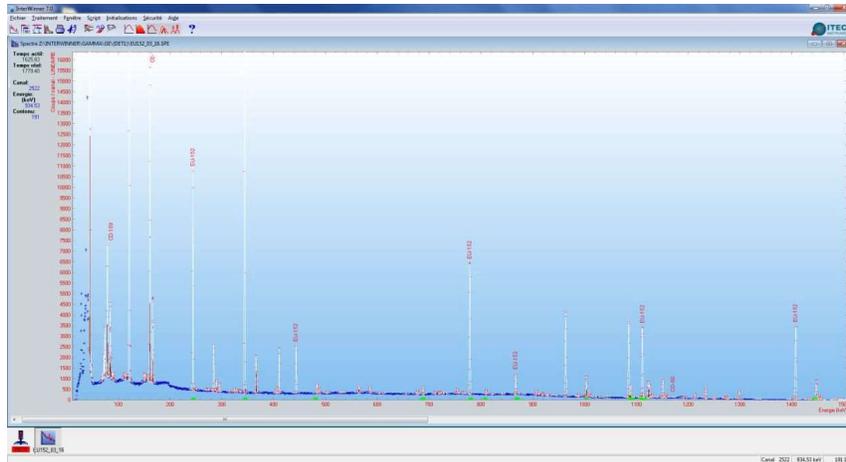


FIGURE 3.12 – Spectre de calibration en énergie du détecteur Gamma réalisé au Septembre 2015.

Les énergies des raies gamma utilisées pour l'étalonnage en énergie sont données par la table 3.4.

$E_{\gamma}(keV)$	I(%)	Canal Gamma
121.78	28.37	338.4
344.28	26.57	929.3
443.97	3.13	1198.3
778.90	12.97	2102.2
867.39	4.21	2340.8
1112.09	13.54	3001.1
1408.02	20.85	3799.4

TABLE 3.4 – Les raies gamma les plus intenses de la source de ^{152}Eu .

La droite d'étalonnage en énergie pour le détecteur gamma est présentée dans la figure 3.13 suivante :

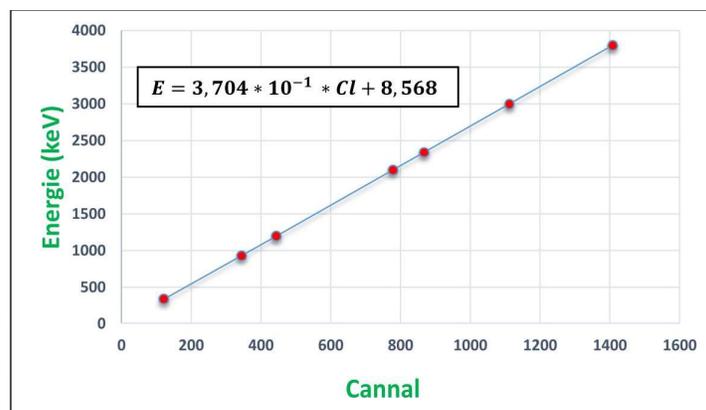


FIGURE 3.13 – Droite d'étalonnage en énergie du détecteur gamma $E = f(\text{nombre de canaux})$.

La droite d'étalonnage en énergie pour le détecteur BeGe est présentée dans la figure 3.14 suivante :

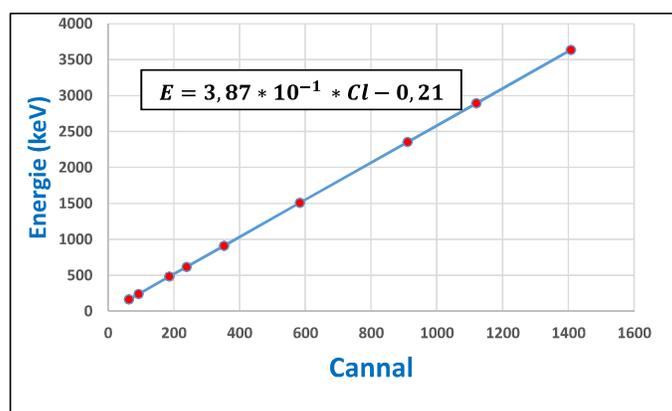


FIGURE 3.14 – Droite d'étalonnage en énergie du détecteur BeGe $E = f(\text{nombre de canaux})$.

La résolution en énergie obtenues dans le cadre de ces mesures pour le détecteur « Gamma » est de 0.85 keV et 1.85 keV pour les raie gamma 122 keV (^{57}Co) et 1332.5 keV (^{60}Co), respectivement. Une fois l'étalonnage en énergie effectué, le logiciel « InterWinner » peut déterminer l'énergie du pic et identifier le radioéléments émetteur en comparant son énergie avec les énergies de sa propre bibliothèque.

3.3.2 Étalonnage en efficacité

En effet pour réaliser les mesures de l'activité des échantillons inconnus, on doit connaître l'efficacité de détection. Et comme nous avons vu aux chapitres précédents l'efficacité d'un détecteur ou la sensibilité, et la mesure de sa capacité à détecter les radiations :

$$efficacité = \frac{\text{nombre de photons détectés}}{\text{nombre de photons émis par la source}} \quad (3.3)$$

Le processus de l'étalonnage en efficacité se fait en plusieurs étapes :

3.3.2.1 Détermination du volume moyen des boites de Pétri

Les boites de pétri ou les portes échantillons transparentes de diamètre 50 mm et de hauteur 14 mm sont utilisées comme conteneur pour la mesure des échantillons au LBA. Il est nécessaire de vérifier le volume de ces derniers pour qu'on puisse à la suite déterminer la masse volumique des échantillons qui sont mesurés, Connaissant leur masse. Sachant que le fournisseur nous donne leur volume. Le protocole à mettre est le suivant :

1. Prendre aléatoirement un nombre de boites dans le lot et le numéroter.
2. Peser chaque boite vide et relever sa masse.
3. Remplir chaque boite d'eau en la plongeant dans un bêcher plein d'eau thermalisée (dont on a noté la température) et vérifier qu'il n'y a aucune bulle d'air.
4. Essuyer délicatement le contour de la boite puis la peser. Relever sa masse.
5. Avec la masse volumique de l'eau à la température relevée, calculer la valeur moyenne du volume des boites, normalement elle doit assez proche de celle donnée par le fournisseur : 25.5 cm^3 .

3.3.2.2 Identification de l'échantillon de référence RGU-1 et RGTh-1

Pour déterminer l'efficacité de détection de nos détecteurs, nous avons utilisé des sources étalons, sous forme de poudre, qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Ces échantillons de références dont on connaît exactement leurs activités massique, fournis par LAIEA (Agence Internationale de l'Énergie Atomique) sont riches en ^{238}U , ^{235}U (RGU-1) et en ^{232}Th (RGTh-1) (figure 3.15). Ces échantillons sont constitués de poudre de SiO_2 mélangées soit a de l'oxyde d'Uranium

naturel soit à de l'oxyde de Thorium car ils ont été préparé par dilution d'un minerai d'uranium BL-5 (7,09% U) et d'un minerai de thorium OKA-2 (2,89% Th), avec de la poudre de silice flottante d'une distribution de granulométrie similaire, respectivement. Aucune preuve d'inhomogénéité entre les bouteilles n'a été détectée après le mélange et l'embouteillage. BL-5 a été certifié pour l'uranium, ^{226}Ra et ^{210}Pb confirmant qu'il est en équilibre radioactif [57].

Et comme tous les éléments de leurs chaînes radioactives sont à l'équilibre séculaire, c'est à dire qu'ils ont tous la même activité. Celles-ci sont référencées sur le site de l'AIEA [57] :

$$A(^{238}\text{U}) = 4940 \pm 30 \text{ Bq/kg}, A(^{235}\text{U}) = 228 \pm 2 \text{ Bq/kg} \text{ et } A(^{232}\text{Th}) = 3250 \pm 90 \text{ Bq/kg}.$$

Ces sources sous forme de poudre, installées dans la même position dans la boîte en plastique ou dans la boîte à pétri que les échantillons, pour éviter la correction géométrique de l'efficacité, ont été utilisées pour déterminer les courbes d'efficacité des détecteurs.



FIGURE 3.15 – Échantillons de référence de Thorium et d'Uranium *RGU-1* et *RGTh-1*, fournis par l'AIEA.

Après avoir fait une acquisition d'environ 1 heure de temps, on obtient les spectres en énergie montrés dans la figure 3.16.

Les figures 3.16, 3.17 spectres obtenus par le détecteur « Gamma » pour les échantillons *RGU-1* et *RGTh-1*.

Le logiciel donne donc accès pour chaque échantillon : les isotopes présents, leur énergie correspondante et leur activité.

A partir des valeurs d'efficacité ε_0 (quelconques au départ, 100% par exemple) pour chaque valeur d'énergie correspondant à un isotope de la chaîne de l'élément père, on calcule une nouvelle valeur de l'efficacité :

$$\varepsilon_1 = \frac{A_{mes}}{A_{ref} \times \varepsilon_0} \quad (3.4)$$

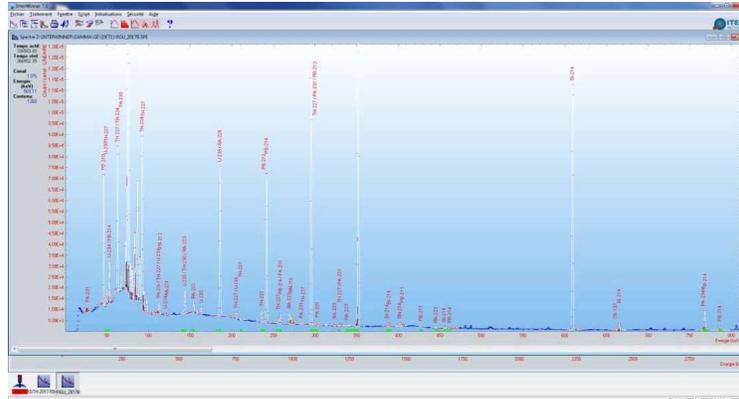


FIGURE 3.16 – Spectre d'étalonnage en efficacité de *RGU-1* pour le détecteur gamma.

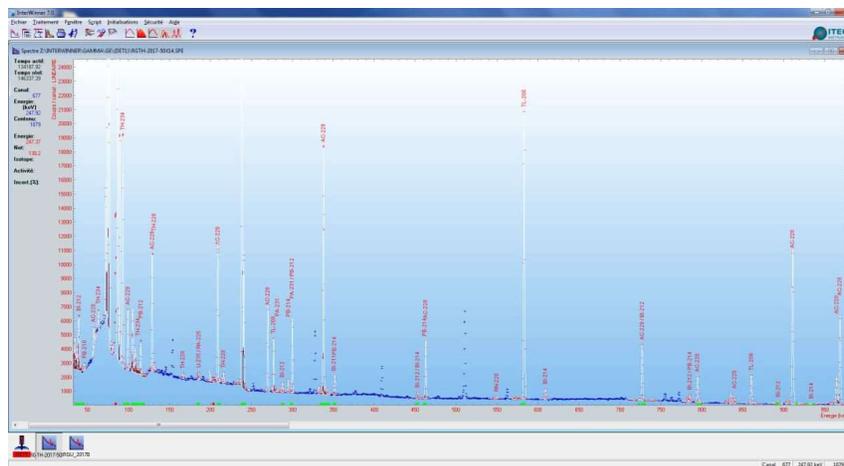


FIGURE 3.17 – Spectre d'étalonnage en efficacité de *RGTh-1* pour le détecteur gamma.

Pour chaque isotope, A_{mes} est l'activité mesurée expérimentalement, celle calculée par le logiciel et A_{ref} correspond à l'activité de référence du père de la chaîne dont il fait partie (^{235}U , ^{238}U ou ^{232}Th).

Il faut ensuite faire la courbe d'efficacité : L'efficacité ε_1 en fonction de l'énergie du gamma de l'isotope correspondant.

La première courbe que nous avons obtenue avait de nombreux points aberrants et avec une trop grande incertitude. Alors on est obligés de faire une seconde et troisième itération, ceci ayant un but de s'approcher au plus près de l'activité de référence.

Les courbes d'efficacités des deux détecteurs obtenues pour la mesure de nos échantillons sont montrées dans les figures 3.18 et 3.19.

Une fois les courbes d'efficacités déterminées, le logiciel d'analyse InterWinner peut

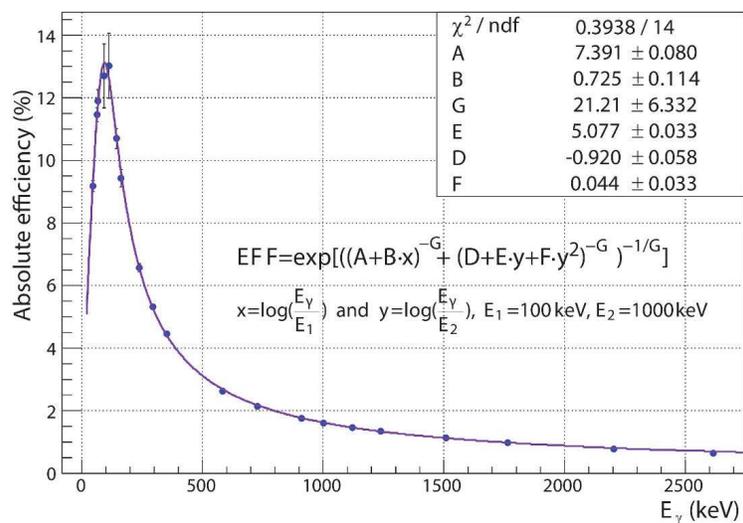


FIGURE 3.18 – Courbe d'efficacité de détecteur Gamma en fonction de l'énergie tracée à partir des spectres RGu-1 et RTh-1 à l'aide de logiciel Root CERN utilisé dans le travail actuel.

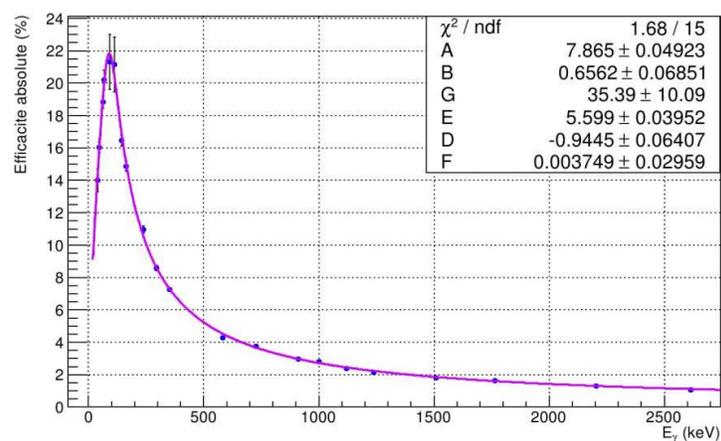


FIGURE 3.19 – Courbe d'efficacité de détecteur BeGe en fonction de l'énergie tracée à partir des spectres RGu-1 et RTh-1 à l'aide de logiciel Root CERN utilisé dans le travail actuel.

quantifier (activité spécifique ou concentration) du radioélément présent dans l'échantillon mesuré.

3.3.2.3 Correction : pic- somme et autoabsorption

L'augmentation de l'angle solide entre le détecteur et l'échantillon améliore la sensibilité du détecteur aux rayonnements γ , mais a comme conséquence l'apparition du

phénomène de pic-somme. Il s'agit de la détection simultanée de deux photons voire plus émis en cascade. Il concerne les niveaux excités qui ont une durée de vie inférieure à la résolution en temps du détecteur et ceci doit être corrigé à l'aide de la simulation avec le code Géant-4 est introduit directement dans le logiciel InterWinner.

Et comme nous avons utilisé dans notre étude des sources de faible activité, les valeurs de facteur somme calculé doit être faible par contre, dans le cas des sources intenses, comme la source de ^{152}Eu ce dernier devient important.

Le phénomène de l'autoabsorption est très visible dans les gammas de faible énergie, qui ne leur permet pas de sortir de la boîte pour cela on a utilisé la même densité pour les échantillons de référence RGU-1 et RGTh-1 que les échantillons de mesures pour pris en compte de ce dernier.

3.4 Procédure et mesures

3.4.1 Bruit de fond

Pour améliorer l'identification et quantification des radioéléments par une chaîne de mesure, il faut essayer de minimiser au maximum le bruit de fond de la chaîne. Pour cela, il élimine au maximum le bruit de fond dû à l'environnement. Les principales sources de bruit sont le rayonnement cosmique, la radioactivité naturelle et le bruit électrique.

A faible radioactivité, On utilise en général deux types de blindage : passif par un château de plomb et actif par des chaînes d'anti-coïncidence (NaI(Tl)) autour du GeHP ou un anti-cosmique (Figure 3.20).

Le rayonnement cosmique est présent au LBA, bien que le laboratoire soit placé au sous-sol. C'est pourquoi on entoure les détecteurs de scintillateur qui ont pour but de détecter les rayonnements cosmiques. Ils sont ensuite éliminés électroniquement.

De même pour minimiser l'impact de la radioactivité naturelle, les détecteurs sont entourés de différentes couches de plomb. Une couche intérieure de 2 cm de plomb archéologique dépourvu de ^{210}Pb et une couche extérieure de plomb naturel de 15 cm.

On distingue aussi un autre bruit de fond provenant du détecteur dû à l'agitation thermique des porteurs de charges entre la bande de conduction et la bande de valence (voir Partie détecteurs semi-conducteur). On peut minimiser ce bruit de fond en refroidissant

3.4.2 Identification et quantification des radionucléides

L'exploitation des spectres avec le logiciel InterWinner permet d'obtenir des informations qualitatives (identification des radionucléides), et quantitative (activités des radionucléides).

L'identification des radionucléides est faite à partir de la mesure des énergies des raies présentes. Une fois les énergies connues, le logiciel parcourt une bibliothèque de correspondance entre énergie et radionucléides qui lui permettent d'associer les énergies trouvés à des radionucléides connus.

L'objectif des mesures consiste à rechercher les radionucléides existants dans le spectre. L'équilibre radioactif dans les chaînes naturelles est rarement réalisé. L'émanation gazeuse des isotopes gazeux du radon ainsi que le comportement géochimique des radionucléides favorisent la migration ou l'accumulation de certains radionucléides de la chaîne et entraînent un déséquilibre radioactif. Les radionucléides suivants sont généralement considérés à l'équilibre compte tenu de leurs périodes respectives, de leurs positions dans la chaîne.

En fait la quantification des radionucléides, ou le calcul de l'activité est également effectué par le logiciel InterWinner à partir du nombre d'évènement présents dans les pics. Ce nombre reflète, à un facteur multiplicatif près, l'activité spécifique du radionucléide mesuré est donné par :

$$A_s(Bq.kg^{-1}) = \frac{N}{\varepsilon \times I \times m \times t} \quad (3.5)$$

$$N = N_{net} - N_{nul} \quad (3.6)$$

$$N_{net} = N_{brut} - N_B \quad (3.7)$$

Avec :

N_{net} : Surface nette du pic de l'échantillon.

N_{brut} : Surface Brut du pic de l'échantillon.

N_B : Surface nette du pic du bruit de fond.

N_{nul} : Nombre de coups correspondant au pic estimé dans le spectre de bruit de fond.

N : Surface du pic.

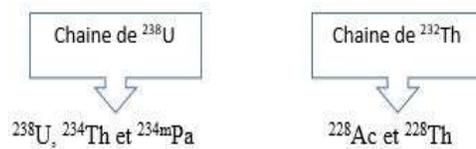
ε : Efficacité de détection de l'énergie de radionucléide.

I : Probabilité d'émission gamma pour chaque raie.

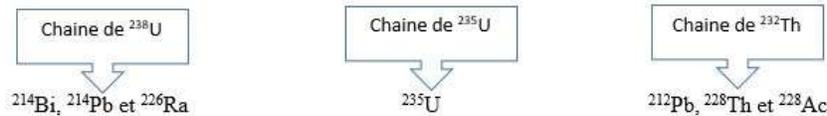
m : Masse de l'échantillon.

t : Temps de comptage de l'échantillon.

Dans la quantification des radionucléides, On considère quelques éléments à l'équilibre compte tenu de leurs périodes respectives, de leurs positions dans la chaîne.



Les radionucléides plus facilement détectables par spectrométrie Gamma dans chaque chaîne naturelle sont :



Les raies des gammas utilisées dans notre travail pour quantifier la concentration des radionucléides pères sont (table 3.5) :

Les concentrations de ²¹⁴Pb (295.2, 351.9) keV, ²¹⁴Bi (609.3, 1120.3) keV, (63.3, 92.6) keV et ^{234m}Pa (1001.0 keV) ont été utilisées pour quantifier l'activité de ²²⁶Ra ou ²³⁸U.

Si la raie de ²³⁴Th (63 keV) manque dans le spectre, il faut utiliser soit les raies de ²¹⁴Pb et ²¹⁴Bi pour calculer l'activité de ²³⁸U ou le rapport à partir de ²³⁵U dans un échantillon en équilibre avec la formule :

$$A(^{238}\text{U}) = 21.7 \times A(^{235}\text{U}) \quad (3.8)$$

S'il manque également la raie gamma ²³⁵U (185.71keV) dans ce cas ce dernier est

Radionucléides	Energie (keV)	Probabilité d'émission
^{235}U	185.71	57.20
^{226}Ra	186.21	3.59
^{212}Pb	238.63	43.30
^{214}Pb	351.93	37.60
^{208}Tl	583.19	84.50
^{214}Bi	609.31	46.10
^{212}Bi	727.33	6.58
^{228}Ac	911.20	25.80
^{234}Pa	1001.03	0.83
^{40}K	1460.83	11.00

TABLE 3.5 – Les différents radionucléides détectés lors de la mesure, Les énergies et les probabilités d'émission Gamma.

faible et il faut essayer de trouver une limite de son activité à partir du ^{238}U . Eq. (3.9)

$$A(^{235}\text{U}) = \frac{A(^{238}\text{U})}{21.7} \quad (3.9)$$

Les concentrations de ^{228}Ac , ^{212}Bi et du ^{212}Pb ont été utilisées pour quantifier l'activité du ^{232}Th en supposant que l'équilibre séculaire est établi au sein de sa filiation au moment de la mesure Eq. 3.10, des fois on utilise les activités du ^{212}Pb , ^{212}Bi et ^{228}Ac , ou des fois deux des 2 si on trouve qu'il y a une erreur importante sur l'un d'eux.

$$A(^{232}\text{Th}) = \frac{A(^{228}\text{Ac}) + A(^{212}\text{Bi}) + A(^{212}\text{Pb})}{3} \quad (3.10)$$

Pour les radionucléides ^{40}K et ^{137}Cs , on a utilisé directement leur raie gamma 1460.8keV et 661.7keV respectivement. On n'a pas besoin d'attendre l'équilibre séculaire pour le mesurer car le détecteur peut le détecté directement (période de vie longue).

3.5 Présentation des résultats

3.5.1 Identification de codage des échantillons

Pour faciliter l'analyse et l'interprétation des échantillons nous avons utilisé plusieurs codage, qui nous a permis de les identifier.

3.5.1.1 Échantillons de sol

Les codages utilisés dans notre travail pour identifier les échantillons de sol sont montrés dans la table [3.6](#).

Code des échantillons de sol	Information	Provenance
B10	Sol de blé de profondeur entre 10 – 20cm.	Provenant d'une ferme Pilote à la région d'El-Athmania en Algérie.
B30	Sol de blé de profondeur entre 20-30 cm.	
B50	Sol de blé de profondeur entre 30-50. cm.	
P10	Sol de Pomme de profondeur entre 10-20 cm.	
P30	Sol de Pomme de profondeur entre 20-30 cm.	
P50	Sol de Pomme de profondeur entre 30-50 cm.	
NP10	Sol non cultivée de profondeur entre 10 et 20 cm.	
NP50	Sol non cultivée de profondeur entre 30 et 50 cm.	
PR surf	Sol de Prune collecté à la surface.	
PR50	Sol de Prune collecté à une profondeur de 50 cm.	
Po surf	Sol de Poire collecté à la surface.	
Po50	Sol de Poire collecté à une profondeur de 50 cm.	
AB surf	Sol d'Abricot collecté à la surface.	
AB50	Sol d'Abricot collecté à une profondeur de 50 cm.	
NF	surf Sol non cultivée collecté à la surface.	

TABLE 3.6 – Quelques informations sur les échantillons de sol collectés.

3.5.1.2 Fertilisant

Les codages utilisés dans notre travail pour identifier les fertilisants sont montrés dans la table 3.7.

Code des fertilisant	Nom commercial	Composition	Provenance
TSP	TSP-Super 45 :Super phosphate triple.	46% Azote total (N) (46% sous forme Uréique).	Provenant d'une ferme privée à la région de Ferdjioua en Algérie.
FU	Urée (46%) (46-0-0).	46% P ₂ O ₅ (dont 44% de P ₂ O ₅ soluble eau)	Provenant d'une ferme Pilote à la région d'El-Athmania en Algérie.
Urée			Provenant d'une ferme privée à la région de Ferdjioua en Algérie.
FM	MAP (12-52-00) : Phosphore mono ammoniacale.	12% Azote total (N) (12% Azote amonical) 52% Acide phosphorique assimilable (P ₂ O ₅).	Provenant d'une ferme Pilote à la région d'El-Athmania en Algérie.
NPK	NPK	Azote (N), Phosphore (P), Potassium (K).	Provenant d'un marché à la région de Constantine en Algérie.

TABLE 3.7 – Quelques informations sur les échantillons d'engrais collectés.

3.5.2 Concentrations des activités

Les résultats des activités pour tous les échantillons étudiés sont illustrés dans les tableaux suivants (tables 3.8, 3.9, 3.10, 3.11, 3.12) :

* LD : La limite de détection.

S	Azote	Potassium	phosphate
²³⁸ U	4.39±0.32	2.68±1.43	2.21±0.21
²²⁶ Ra	4.40±0.32	2.68±1.43	0.59±0.05
²³² Th	1.32±0.20	0.45±0.02	0.007±0.001
²³⁵ U	0.20±0.01	0.13±0.07	0.10±0.01
⁴⁰ K	9.41±2.25	1339.00±89.83	0.02±0.01

TABLE 3.8 – Les activités obtenues en $Bq.kg^{-1}$ pour les fertilisant NPK de provenance du Constantine.

S	B10	B30	B50	P10	P30	P50
⁴⁰ K	220.80±10.01	238.00±9.44	248.60±12.58	254.00±10.30	260.70±8.24	257.10±8.30
²²⁶ Ra	23.72±2.37	46.00±6.89	65.47±5.06	46.14±8.35	55.83±5.80	43.10±7.50
²³² Th	26.60±0.88	26.45±0.78	27.09±1.11	26.56±0.84	27.10±0.80	26.60±0.80
²³⁵ U	2.69±0.60	0.90±0.38	1.80±0.32	1.31±0.47	0.93±0.32	1.44±±0.40
¹³⁷ Cs	3.00±0.29	2.39±0.22	2.36±0.47	4.10±0.27	3.72±0.20	3.17±0.18

TABLE 3.9 – Les activités obtenues en $Bq.kg^{-1}$ pour les échantillons de sol prélevés d'une ferme pilote de provenance du Mila.

S	NF10	NF50	MAP	Uree1
⁴⁰ K	283.50±8.41	290.10±10.50	62.39±10.30	<2
²²⁶ Ra	49.38±5.31	32.48±9.84	2095.00±58.38	< 2
²³² Th	27.56±0.75	28.70±0.90	7.91±0.52	<0.2
²³⁵ U	0.97±0.31	1.74±0.59	105.80±30	<0.1
¹³⁷ Cs	3.42±0.16	2.81±0.25	< LD*	< LD*

TABLE 3.10 – Les activités obtenues en $Bq.kg^{-1}$ pour les fertilisants et les échantillons de sol non fertilisées prélevés d'une ferme pilote de provenance du Mila.

S	PR surf	PR50	PO surf	PO50	AB surf	AB50
^{40}K	232.50±7.35	190.80±7.86	227.80±7.79	178.50±5.64	252.4±8.50	196.50±6.83
^{226}Ra	44.06±7.89	50.43±10.86	61.77±7.34	60.00±5.05	67.72±7.77	58.90±6.66
^{232}Th	27.41±0.47	28.08±0.57	27.08±0.49	26.87±0.46	28.09±0.52	27.92±0.51
^{235}U	2.08±0.47	1.94±0.65	1.25±0.42	1.60±0.27	1.24±0.45	1.74±0.37
^{137}Cs	3.25±0.17	< DL*	3.67±0.21	0.62±0.08	3.97±0.22	0.39±0.09

TABLE 3.11 – Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les échantillons de sol prélevés d'une ferme privée de provenance du Mila.

S	NFsurf	TSP	Uree2
^{40}K	222.2±7.21	4016.00±170.3	1.66
^{226}Ra	65.08±6.48	411.80±13.40	< LD*
^{232}Th	27.38±0.48	4.30±0.27	<LD*
^{235}U	1.15±0.37	25.80±0.66	<LD*
^{137}Cs	3.06±0.18	< DL*	< LD*

TABLE 3.12 – Les activités obtenues en Bq.kg^{-1} pour les fertilisants et les échantillons de sol non fertilisés prélevés d'une ferme privée de provenance du Mila.

3.5.3 Facteurs radiologiques

Selon Kannan [58], environ 87% de la dose de rayonnement reçue par l'humanité est due à des sources de rayonnement naturelles et le reste est dû à la radioactivité anthropique. La radioactivité naturelle est associée principalement aux radionucléides primordiaux, y compris les éléments appartenant aux séries ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K .

Afin d'évaluer le risque d'utiliser des fertilisant dans le sol, il faut d'abord connaître les facteurs radiologiques externes, internes, équivalent radium, la dose absorbée et la dose efficace annuelle ainsi que l'indice gamma.

3.5.3.1 Indice de risque externe H_{ex}

La limite supérieure des doses des différentes radiations dans les matériaux ne doit pas dépasser 1 m Sv.an^{-1} . Krieger [59] propose un modèle où il considère des murs d'épaisseur infinie, sans fenêtres et sans portes pour calculer l'indice de risque externe donné par la

relation : Eq. (3.11)

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{(370Bq/kg)} + \frac{A_{Th}}{(259Bq/kg)} + \frac{A_K}{(4810Bq/kg)} < 1 \quad (3.11)$$

3.5.3.2 Indice de risque interne H_{in}

La décroissance du ^{226}Ra aboutit au ^{222}Rn et ses descendants avec différentes proportions en tenant compte de l'équilibre radioactif. Ils constituent un risque permanent pour le système respiratoire. Ce risque est quantifié par la relation ci-après qui doit être inférieur ou égal à 1 :

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{(185Bq/kg)} + \frac{A_{Th}}{(259Bq/kg)} + \frac{A_K}{(4810Bq/kg)} < 1 \quad (3.12)$$

Ce facteur d'équilibre dans les habitations est compris entre 0.3 et 0.6, la CIPR préconisant la valeur 0.4 [3].

Le tableau 3.13 montre les indices de risque interne et externe des échantillons étudiés.

Échantillons	$H_{ex}(Bq.kg^{-1})$	$H_{in}(Bq.kg^{-1})$
Fertilisants		
Azote	0.02 ± 0.001	0.03 ± 0.002
Potassium	106.43 ± 7.06	0.29 ± 0.01
Phosphate	0.73 ± 0.07	0.003 ± 0.0003
MAP	0.73 ± 0.07	1.41 ± 0.14
UREE1	< 0.01	< 0.01
TSP	2.06 ± 0.04	3.17 ± 0.07
UREE2	-	-
Sol non fertilisé		
NF10	0.30 ± 0.01	0.43 ± 0.03
NF50	0.26 ± 0.03	0.35 ± 0.05
NF surf	0.33 ± 0.02	0.50 ± 0.04
Sol fertilisé		
B10	0.21 ± 0.01	0.28 ± 0.01
B30	0.28 ± 0.02	0.40 ± 0.04
B50	0.33 ± 0.01	0.51 ± 0.03
P10	0.28 ± 0.02	0.40 ± 0.05
P30	0.31 ± 0.02	0.46 ± 0.03
P50	0.27 ± 0.02	0.39 ± 0.04
PR surf	0.27 ± 0.02	0.39 ± 0.04
PR50	0.28 ± 0.03	0.42 ± 0.06
PO surf	0.32 ± 0.02	0.49 ± 0.04
PO50	0.30 ± 0.01	0.47 ± 0.03
AB surf	0.34 ± 0.02	0.53 ± 0.04
AB50	0.31 ± 0.02	0.47 ± 0.04

TABLE 3.13 – Les indices de risque pour les échantillons étudiés.

3.5.3.3 Activité de radium équivalent

Par le calcul des activités expérimentales spécifiques, il est possible d'évaluer le taux de dose équivalente efficace à 1 m de la surface par le calcul du Radium Équivalent (Ra_{eq}), également appelé activité équivalente au radium [60].

Pour le calcul du Radium équivalent, il est nécessaire de prendre en considération le fait que la répartition des radionucléides analysés n'est pas uniforme. Le calcul de la Ra_{eq} est effectué par la mesure des principaux radionucléides naturels qui produisent une exposition externe émis par les émetteurs gamma.

L'activité équivalente du radium, ou simplement l'équivalent radium (Ra_{eq}), est un paramètre utilisé pour estimer l'exposition externe en raison de la contribution des émetteurs gamma des séries ^{238}U (^{226}Ra), ^{232}Th et ^{40}K . Eq. 3.13 a été utilisé pour le calcul du Ra_{eq} [60] :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1.43A_{Th} + 0.077A_K \quad (3.13)$$

Où A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les concentrations d'activité spécifiques de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K en $Bq.kg^{-1}$, respectivement. Cette formule est basée sur l'estimation que 1 $Bq.kg^{-1}$ de ^{238}U , 0,7 $Bq.kg^{-1}$ de ^{232}Th et 13 $Bq.kg^{-1}$ de ^{40}K produisent les mêmes taux de dose de rayons gamma. Cet indice (Ra_{eq}) est lié aux deux doses internes en raison du radon et des doses gamma externes [61]. Alors, Cette relation est obtenue en considérant que les activités de 370 $Bq.kg^{-1}$ de ^{226}Ra , 259 $Bq.kg^{-1}$ de ^{232}Th et 4810 $Bq.kg^{-1}$ de ^{40}K représentent exactement la même dose équivalente de rayonnement γ .

On considère que 370 $Bq.kg^{-1}$ d'activité Ra_{eq} produit un taux de dose équivalente efficace de 1,5 $mSv.an^{-1}$ [60], [62].

Les valeurs de Ra_{eq} pour les échantillons en provenance de la région de Constantine et Mila en Algérie ont été calculées après avoir déterminé les activités des différents radionucléides. La table 3.14 récapitule les valeurs de Ra_{eq} pour chaque échantillon.

Le paramètre international le plus utilisé dans la protection radiologique pour l'évaluation des risques radiologiques est la dose équivalente effective l'objectif dans la présente étude était de calculer l'activité équivalente au radium dans des fertilisant et dans des sols fertilisé et non fertilisé prélevé de deux ferme pilote et privé, dans la région de El Athmania Mila, visant à estimer le taux de dose externe auquel les êtres vivants sont soumis dans cette zone.

Échantillons	$Ra_{eq}(Bq.kg^{-1})$
Fertilisants	
Azote	7.01 ± 0.46
Potassium	106.43 ± 7.06
Phosphate	0.60 ± 0.01
MAP	269.52 ± 25.02
UREE1	< 2.50
TSP	762.07 ± 18.79
UREE2	-
Sol non fertilisé	
NF10	110.62 ± 5.46
NF50	95.86 ± 9.92
NF surf	121.60 ± 6.59
Sol fertilisé	
B10	78.76 ± 2.79
B30	102.15 ± 7.03
B50	123.35 ± 5.39
P10	103.68 ± 8.52
P30	114.66 ± 5.95
P50	100.93 ± 7.61
PR surf	101.16 ± 7.94
PR50	105.28 ± 10.91
PO surf	118.04 ± 7.40
PO 50	112.17 ± 5.11
AB surf	127.32 ± 7.83
AB50	113.96 ± 6.72

TABLE 3.14 – Valeurs de Ra_{eq} pour tous les échantillons étudiés.

3.5.3.4 La dose absorbée

La dose est le facteur le plus important pour estimer l'impact radiologique des échantillons de sol fertilisés. Le taux de dose gamma externe \dot{D} ($nGy.h^{-1}$) dans l'air à 1 m au-dessus du niveau du sol provoqué par la présence de radionucléides naturels a été calculé selon la formule (Eq. 3.14) :

$$\dot{D} = 0.462C_{Ra} + 0.604C_{Th} + 0.0417C_K \quad (3.14)$$

3.5.3.5 La dose efficace annuelle

Les taux de dose absorbés calculés ont été utilisés pour Calculer l'équivalent de dose efficace annuel (AEDE) Reçu par les résidents vivant dans la zone d'étude. Pour le Calcul de l'AEDE, Pour cela, on applique un facteur de conversion de la dose absorbée dans l'air à la dose efficace reçue par un adulte qui est de $c = 0.7 \mu Sv.Gy^{-1}$ recommandé par UNSCEAR et Un facteur d'occupation de $p = 0.2$ pour l'exposition extérieure, environ $t = 19$ h par jour, permet de prendre en considération le temps passé à l'intérieur d'une pièce [63] :

$$D_E = c \times \dot{D} \times t \times p \times 10^{-3} \quad (3.15)$$

3.5.3.6 Indice gamma

Pour faciliter le calcul des débits de dose dans l'air à partir de différentes combinaisons des trois radionucléides dans les matériaux et en appliquant les facteurs de conversion appropriés, on introduit un indice d'utilisation d'activité (I) qui est donné par l'expression suivante (Eq. 3.16) [61], c'est aussi un moyen de contrôle de l'excès de la dose du à les isotopes naturelle.

$$I_{\gamma r} = \frac{A_{Ra}}{(150Bq/kg)} + \frac{A_{Th}}{(100Bq/kg)} + \frac{A_K}{(1500Bq/kg)} \quad (3.16)$$

Ou A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les activités spécifiques correspondantes au ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K respectivement en $Bq.kg^{-1}$ et 150, 100 et 15000 sont des facteurs calculés pour une dose limite égale à $1 mSv.an^{-1}$.

3.5.3.7 Le risque de cancer dans la vie

Lors de l'exposition aux rayonnements ionisants, la probabilité de développer un cancer tout au long de la vie peut être estimée en calculant le risque de cancer excédentaire à vie, ELCR ($mSv.an^{-1}$), selon l'équation suivante (Eq. 3.17) [64].

$$ELCR = D_E \times D_L \times PC \quad (3.17)$$

Où D_E est la dose efficace annuelle à l'extérieur, D_L est l'espérance de vie à l'Algérie (75 ans) (Statistiques mondiales 2015) et PC est le facteur de risque de cancer fatal par Sievert, déterminé stochastiquement par la CIPR [?] à 0.05 pour le public.

La table 3.15 indique le débit de dose absorbée dans l'air, La dose efficace annuelle, l'indice gamma et le risque de cancer dans la vie pour les échantillons.

Echantillons	\dot{D}	D_E	$I_{\gamma r}$	ELCR (10^{-4})
	($nGy.h^{-1}$)	($\mu Sv.y^{-1}$)		(μSv)
Fertilisants				
Azote	4.43±0.21	3.95 ± 0.21	0.05 ± 0.002	0.15 ± 0.008
Potassium	105.28±3.80	70.33 ± 18.02	0.92 ± 0.01	2.71 ± 0.69
Phosphate	0.28±0.01	0.34 ± 0.03	0.004 ± 0.0003	0.013± 0.0011
MAP	124.45 ± 11.71	152.63 ± 14.37	1.81 ± 0.17	5.88 ± 0.55
UREE1	<1.13	<1.38	<0.02	<0.05
TSP	375.05 ± 56.92	459.97 ± 69.80	5.71 ± 0.10	17.71 ± 2.69
UREE2	-	-	-	-
Sol non fertilisé				
NF10	51.28 ± 2.78	62.89 ± 3.41	0.79 ± 0.04	2.42 ± 0.13
NF50	44.44 ± 5.01	54.50 ± 6.15	0.70 ± 0.07	2.10 ± 0.24
NF surf	55.98 ± 3.29	68.65 ± 4.03	0.86 ± 0.04	2.64 ± 0.16
Sol fertilisé				
B10	36.23 ± 1.55	44.44 ± 1.90	0.57 ± 0.02	1.71 ± 0.07
B30	47.15 ± 3.56	57.83 ± 4.37	0.73 ± 0.05	2.23 ± 0.17
B50	56.98 ± 3.06	69.88 ± 3.76	0.87 ± 0.03	2.69 ± 0.14
P10	47.95 ± 4.32	58.81 ± 5.30	0.74 ± 0.06	2.26 ± 0.20
P30	53.03 ± 3.03	65.04 ± 3.72	0.82 ± 0.04	2.50 ± 0.14
P50	46.70 ± 3.82	57.27 ± 4.68	0.72 ± 0.05	2.20 ± 0.18
PR surf	46.61 ± 3.82	57.16 ± 4.68	0.72 ± 0.05	2.20 ± 0.18
PR50	48.22 ± 5.24	59.13 ± 6.43	0.74 ± 0.07	2.28 ± 0.25
PO surf	54.39 ± 3.58	66.71 ± 4.40	0.83 ± 0.05	2.57 ± 0.17
PO 50	51.39 ± 2.47	63.03 ± 3.02	0.79 ± 0.03	2.43 ± 0.12
AB surf	58.78 ± 3.81	72.09 ± 4.68	0.90 ± 0.05	2.78 ± 0.18
AB50	52.27 ± 3.25	64.10 ± 3.99	0.80 ± 0.04	2.47 ± 0.15

TABLE 3.15 – Valeurs de débit de dose absorbée, dose efficace annuelle, indice de niveau gamma et le risque excessif de cancer à vie pour tous les échantillons étudiées.

Chapitre 4

Interprétation et Discussion

4.1 Description générale des résultats

Tous les échantillons du sol et tous les fertilisants choisis ont été analysés par spectrométrie gamma au laboratoire des basses activités à Grenoble (LPSC/LBA). Les résultats que nous avons obtenus, leurs interprétations et confrontation à d'autres résultats sont exposés dans ce chapitre.

4.1.1 Les échantillons de sol

La figure 4.1 montre une présentation graphique des résultats pour les échantillons de sol étudié dans ce travail, Il est clair qu'il existe une grande différence entre le ^{40}K et les autres radionucléides dans les échantillons étudié. Dans les radionucléides naturels, le ^{226}Ra montre des valeurs légèrement supérieures par rapport au ^{232}Th .

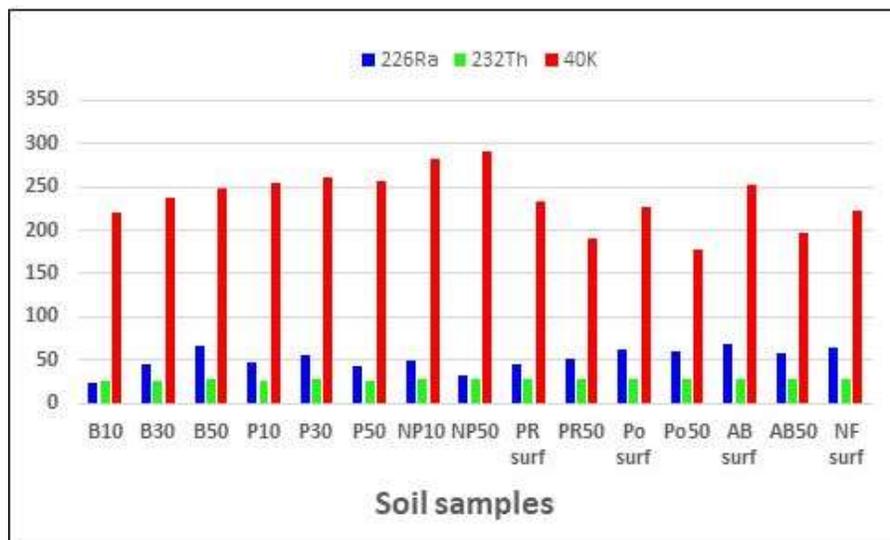


FIGURE 4.1 – Les activités de différents radionucléides dans les échantillons de sol étudié

Comme il a été indiqué dans le chapitre 3, les échantillons de sol que nous avons analysés ont été prélevés de trois régions différentes en Algérie. La première région est une ferme pilote à El Athmania Wilaya de Mila, la deuxième région est une ferme privé à Ferdjioua Wilaya de Mila et la troisième région est dans la Wilaya de Constantine.

En analysant les résultats obtenus pour les échantillons de sol. On peut tirer les conclusions préliminaires suivantes : l'activité moyenne la plus haute a été obtenue pour un

échantillon de sol qui est (NP50) $290.1 \pm 10.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{40}K (NP50 prélevé d'une ferme pilote à Oued El Athmania à une profondeur comprise entre 30-50 cm dans un endroit non cultivé), alors que la plus basse est de l'ordre de $23.72 \pm 2.37 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le ^{226}Ra Trouvée dans un échantillon de sol provenant de la même ferme que le (NP50) mais avec une profondeur comprise entre 10-20 cm.

Examinons maintenant les échantillons en fonction de type de Sol (cultivés, non cultivés, profondeur), tous les échantillons de sol montrent la présence de radionucléides naturels ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th , ainsi que ^{40}K et ^{137}Cs . D'après la figure 4.1 et la table 3.9 nous voyons que pour les échantillons cultivés avec du Blé provenant de la ferme pilote de El Athmania, les concentrations de ^{226}Ra changent avec la profondeur. Pour tous les autres échantillons, les concentrations des radionucléides ne change pas vraiment verticalement. Sauf pour le ^{40}K prévenant des échantillons cultivé de prune, pomme et abricot prélevé d'une ferme privé a la région de Mila présentent des basses activités pour la profondeur 50 cm (PR50, Po50, AB50) avec une valeur minimale $178.5 \pm 5.64 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le Po50, cette activité est faible par rapport à la valeur maximale obtenus à la surface pour AB surf.

Les concentrations d'activité des sols fertilisés et non fertilisés provenant des deux fermes vont de 23.72 ± 2.37 (B10) à 67.72 ± 7.77 (AB surf) Bq.Kg^{-1} ; 32.48 ± 9.80 (NP50) à 65.08 ± 6.48 (NF surf) Bq.kg^{-1} pour ^{226}Ra , de 26.45 ± 0.78 (B30) à 28.09 ± 0.52 (AB surf) Bq.kg^{-1} ; 27.56 ± 8.24 (P30) à 178.50 ± 5.64 (Po50) Bq.kg^{-1} Pour ^{40}K respectivement. 0.75 (NP10, NF surf) à 28.70 ± 0.90 (NP50) Bq.kg^{-1} pour ^{232}Th et de 260.70 ± 8.24 (P30) à 178.50 ± 5.64 (Po50) Bq.kg^{-1} Pour ^{40}K respectivement.

Les concentrations d'activité de ^{40}K étaient relativement supérieures à celles des autres radionucléides pour les échantillons du sol étudiés dans les deux fermes avec une moyenne de $229.81 \text{ Bq.Kg}^{-1}$, $256.27 \text{ Bq.kg}^{-1}$ pour le sol fertilisé et non fertilisé, respectivement. Une concentration d'activité plus élevée de ^{40}K par rapport à celle de ^{226}Ra et ^{232}Th pourrait être due à la teneur en silice plus élevée qui se produit généralement dans les sols.

Pour ^{235}U , la concentration moyenne d'activité dans les échantillons de sols fertilisés et non fertilisés était 1.57 Bq.kg^{-1} ; 1.27 Bq.kg^{-1} respectivement. Cela indique une faible présence de ^{235}U dans les échantillons de sol, car l'abondance naturelle de ^{235}U est seulement de 0.72% de la teneur totale en Uranium [65].

Les résultats des activités des radionucléides montrent également qu'il n'y a pas de différence entre les concentrations de radio-isotopes dans les sols fertilisés et non fertilisés. Ceci est probablement dû à une très faible quantité d'engrais ajouté (2 qx / ha pour MAP

et 1,5 qx / ha pour l'urée). Malgré cette petite quantité, un petit changement de l'activité peut être observé [66].

L'activité ^{232}Th est inférieure à celle de ^{226}Ra , alors que l'activité de ^{40}K est la plus élevée et représente la plus grande contribution à l'activité totale du sol. Boukhenfouf et Boucena, ont déclaré des niveaux plus élevés de ^{40}K pour les sols vierges et fertilisés dans la région de Sétif en Algérie avec les valeurs correspondantes : 329.4 ± 19.7 et $311.4 \pm 18.7 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectivement [2].

Les résultats de l'étude actuelle ont été comparés aux concentrations moyennes mondiales d'activité dans le sol, comme le montre la figure 4.2. Selon le rapport de l'UNSCEAR 2000, les concentrations d'activité mondiales de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K étaient censées être $17 \rightarrow 60$, $11 \rightarrow 64$ et $140 \rightarrow 850 \text{ Bq.kg}^{-1}$ avec les concentrations moyennes de 35, 30 et 400 Bq.kg^{-1} , respectivement.

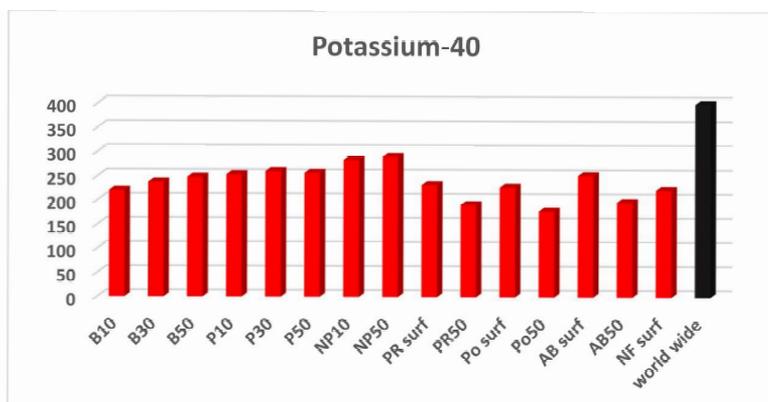
Les résultats obtenus montrent que les intervalles des concentrations d'activité de ^{226}Ra varient de 23.72 ± 2.37 (B10) à 67.72 ± 7.77 (AB surf) Bq.kg^{-1} . Ces concentrations sont supérieures à la gamme supérieure des valeurs mondiales en raison des valeurs de concentration élevées trouvées dans certains échantillons de sol comme le B50, Po surf, AB surf et NF surf.

Les concentrations d'activité de ^{40}K et ^{232}Th dans tous les échantillons de sol vont de 178.5 ± 5.64 à $290.1 \pm 10.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et 26.45 ± 0.78 à $28.70 \pm 0.90 \text{ Bq.kg}^{-1}$ respectivement et se situent dans la gamme mondiale avec des valeurs moyennes de 236.9 ; 27.31 Bq.kg^{-1} respectivement, ce qui est inférieur à les valeurs moyenne mondiale.

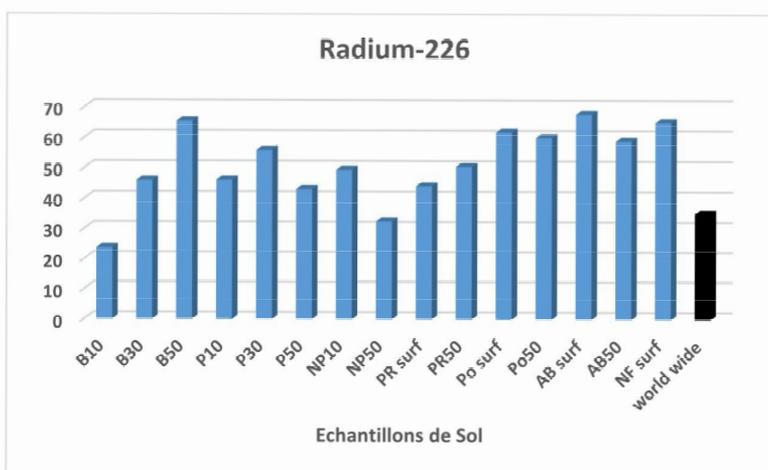
Les résultats présentés à la figure 4.2 révèlent que tous les échantillons de sol des deux fermes d'Oued El Athmania et Ferdjioua contiennent des valeurs élevées de ^{226}Ra . Ces derniers peuvent être influencés en partie par une variation de la structure géologique ou une utilisation élevée des engrais dans les régions étudiées.

Les valeurs moyennes des concentrations d'activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons de sol des zones étudiées ont été comparées à celles d'études similaires menées dans d'autres pays et des résultats sommaires ont été donnés dans la table 4.1. La comparaison montre que les valeurs obtenues dans le présent travail sont dans l'intervalle établi par UNSCEAR 2000 [63].

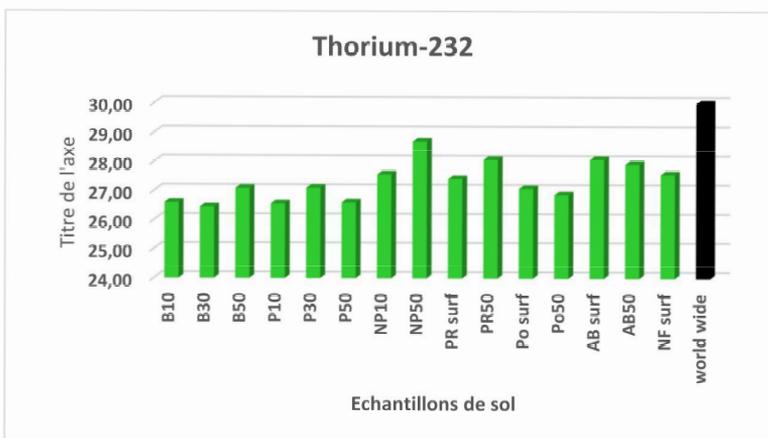
Nos résultats montrent la présence de ^{137}Cs dans le sol avec de faibles concentrations, avec une valeur moyenne dans les échantillons de sol $2,66 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Les niveaux d'activité de ^{137}Cs semblent être très faibles dans les échantillons PR50, Po50 et AB50. Les accidents



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.2 – Les concentrations d'activité de ^{40}K , ^{226}Ra et ^{232}Th mesurée dans le travail en cours, ainsi que les valeurs moyennes mondiales rapportées dans le rapport 2000 de l'UNSCEAR, sont également présentées à titre de comparaison.

Country	Activity ($Bq.kg^{-1}$)			References
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
Algeria	51.3	27.3	236.9	Present work
world wide	17 – 60	11 – 64	140 – 850	[63]
Algeria	53.2	50	311	[2]
Egypt (Farm soil)	13.7	12.3	1233	[67]
India	-	48.5	1146.8	[68]
Jordan	57.7	18.1	138.1	[69]
Nigeria	41	29.7	412.5	[70]
Spain	39	41	578	[71]
Iran	19.2	17.9	337.5	[72]
Saudi Arabia	4.5	3.3	71	[73]

TABLE 4.1 – Les valeurs moyennes de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K pour les échantillons de sol étudiés comparés à d'autres pays.

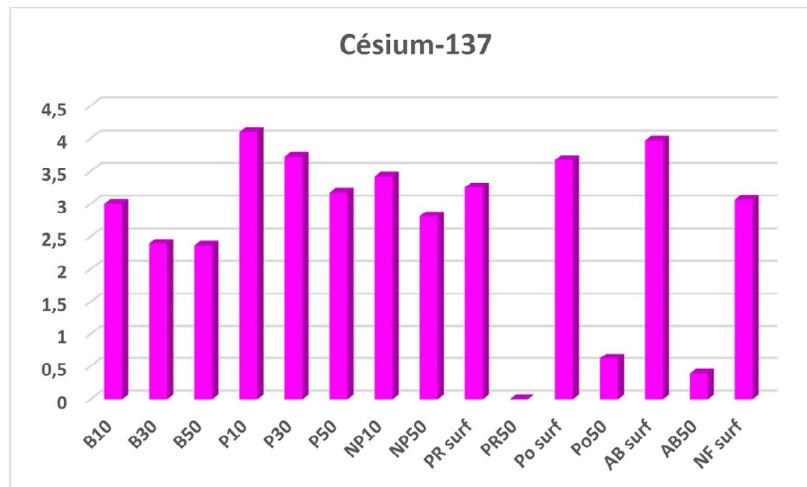


FIGURE 4.3 – Les activités du ^{137}Cs dans les échantillons de sol étudié.

nucléaires, les essais de bombes et les armes nucléaires sont à l'origine de la contamination de ^{137}Cs . Le ^{137}Cs a une demi-vie d'environ 30 ans, il peut être tracé pendant plusieurs

années.

Bien que la migration de ^{137}Cs soit relativement faible dans le sol, sa demi-vie est relativement longue, ce qui permet de surveiller à long terme la concentration de l'activité.

Les retombées de ^{137}Cs sont rapidement et fortement adsorbées par des particules fines du sol, en particulier des minéraux argileux et des matières humiques. Cela fait de ^{137}Cs un très bon traceur environnemental pour étudier les érosions et les dépositions des sols [?]. La présence de retombées de ^{137}Cs dans le sol entraîne une dose de radiation à long terme pour l'homme qui dépend essentiellement de la migration verticale du radionucléide dans les couches superficielles du sol. La dose gamma externe diminue avec le temps en raison d'une protection croissante du rayonnement gamma par le sol qui se superpose si les radionucléides sont transportés plus profondément dans le sol. L'exposition interne du radionucléide incorporé par ingestion d'aliments contaminés est également affectée par leur migration verticale, car elle détermine le temps de séjour du radionucléide dans les couches de sol pertinentes pour l'absorption par les racines des plantes. Par conséquent, la migration des radionucléides dans le sol est considérée comme très cruciale pour évaluer l'exposition aux rayonnements de la population [74].

Examinons maintenant tous les échantillons de sol en fonction de la profondeur. Nous remarquons la décroissance des concentrations des activités de ^{137}Cs verticalement ou nous concluons l'ordre suivant :

$$\begin{aligned} A^{137}\text{Cs}(\text{B10}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{B30}) > A^{137}\text{Cs}(\text{B50}). \\ A^{137}\text{Cs}(\text{P10}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{P30}) > A^{137}\text{Cs}(\text{P50}). \\ A^{137}\text{Cs}(\text{NP10}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{NP50}). \\ A^{137}\text{Cs}(\text{PR surf}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{PR50}). \\ A^{137}\text{Cs}(\text{Po surf}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{Po50}). \\ A^{137}\text{Cs}(\text{AB surf}) &> A^{137}\text{Cs}(\text{AB50}). \end{aligned}$$

La figure 4.4 montre la répartition en profondeur de ^{137}Cs dans notre travail. Les concentrations d'activité de ce dernier dans les zones étudiées dans les deux fermes de la Wilaya de Mila ont montré que les valeurs les plus élevées trouvées en surface et les concentrations d'activité ont diminuées progressivement avec la profondeur. Dans la plupart des sols, le ^{137}Cs a généralement une faible mobilité et la plus grande partie de la rétention se trouve dans les couches superficielles. La matière organique dans les sols joue un rôle important dans l'adsorption du ^{137}Cs . Cette relation a été bien étudiée dans divers environnements dans les références [75], [76], [77]. Dans la plupart des types de sols, le ^{137}Cs est sélectivement fixé dans les minéraux argileux. Dans les sols contenant

quelques pourcents de matière organique, la solution du sol de la partition ionique Cs^+ est contrôlée principalement par un mécanisme d'échange d'ions avec les minéraux argileux en particulier l'illite. Cependant, dans les sols organiques, le ^{137}Cs est généralement plus mobile ; en raison de la haute capacité d'échange cationique de la matière organique [78].

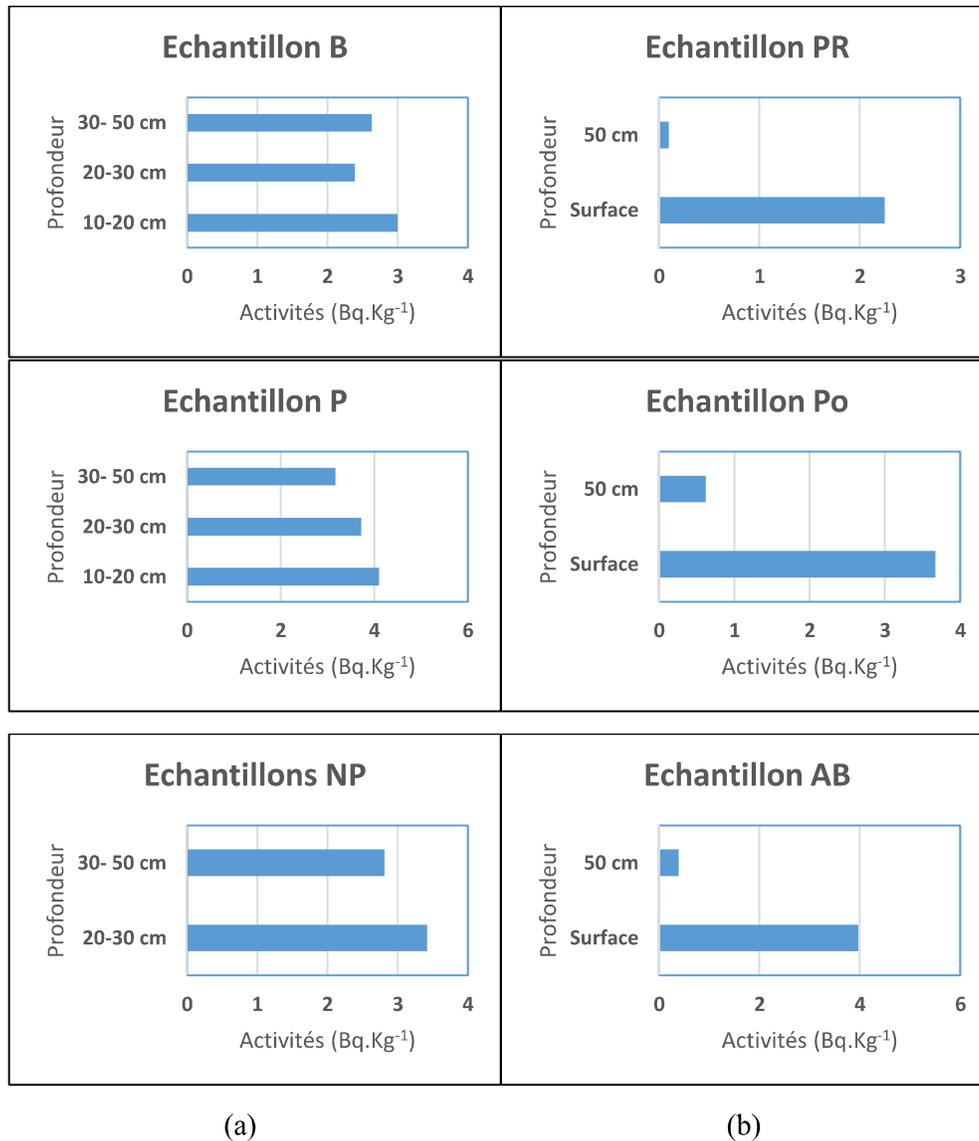


FIGURE 4.4 – Distribution de la profondeur de la concentration d'activité de ^{137}Cs dans les échantillons de sols étudiés (a) Région El Athmania (b) Région Ferdjioua.

Lubis a trouvé que la répartition de la concentration de ^{137}Cs en fonction de la profondeur du sol a été variée en raison de la composition du sol et de la topographie du sol de surface [79].

La décroissance de ^{137}Cs en fonction de la profondeur est confirmée par Lubis [79] et

S Syarbaini suhariyono [80].

La valeur moyenne des concentrations de ^{137}Cs est $2,66 \text{ Bq.kg}^{-1}$ rapportées dans cette étude. Cette valeur est élevée par rapport à la recherche effectuée sur le ^{137}Cs dans le monde pour Abu Bakar et al [81], Lubis [79], Syarbaini et suhariyono [80] (table 4.2).

Cependant, les résultats de l'étude actuelle présentent des valeurs inférieures par rapport à : (Zhao [82], Tsukada [83], Jabbar [84], Damla [85], Al Hamarneh [86], Mabit et Bernard [87]).

Region	Activité moyenne (Bq.kg^{-1})	Référence
Mila (Algérie)	2.66	Cette étude
Région de Jing-Jin-Ji (Chine du nord)	3.7	[82]
Aomori (Japon du Nord)	12	[83]
Rechna (Pakistan)	3.1	[84]
Jordan	88	[86]
Québec (Est du Canada)	2034	[87]
Malaisie	1.59	[81]
Jakarta (Indonésie)	0.80	[79]
Indonésie	2.09	[80]
Batman (Turquie du sud-est)	12	[85]

TABLE 4.2 – Comparaison de l'activité moyenne de ^{137}Cs des échantillons de sol étudiés avec les résultats trouvés dans les pays du monde.

Les activités de ^{137}Cs dans le sol proviendraient des retombées mondiales des essais d'armes nucléaires atmosphériques et des accidents. Les essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère ont été effectués dans le monde entier principalement par les États-Unis et l'Union soviétique avec les périodes les plus intenses en 1961-1962. Après l'entrée en vigueur du Traité d'interdiction des essais limités en 1963, les débris provenant des détonations à faible rendement effectuées par la Chine et la France ont dominé jusqu'en 1980.

À ce stade, il est difficile de confirmer l'origine de toute source de contamination de ^{137}Cs dans le sol Algérien. D'autres analyses et investigations détaillées sont nécessaires pour déterminer son origine.

4.1.2 les fertilisants

Les engrais sont des composés chimiques qui fournissent les éléments chimiques et nutritifs nécessaires aux plantes. Les engrais sont devenus essentiels pour le secteur agricole partout dans le monde. Les engrais phosphatés utilisés à des fins agricoles sont des éléments essentiels des activités agricoles qui contribuent à augmenter la production agricole et d'améliorer les propriétés des terres pauvres en nutriments.

Afin d'approfondir notre étude sur la radioactivité dans le sol, nous avons analysé aussi sept échantillons d'engrais utilisés pour les traiter : FM, FU, TSP, Urée, Azote, Potassium, Phosphate. Les engrais : FM, FU ont été utilisée pour traiter le sol de la ferme pilote dans la région El Athmania, tandis que le sol de la ferme privé dans la région de Ferdjioua a été traité avec : TSP, Urée, et les trois derniers engrais ont été pris de la région de Constantine en Algérie pour comparer avec les précédents.

La figure 4.5 montre une présentation graphique des résultats pour les Fertilisant étudié dans ce travail. Au premier coup d'œil de la représentation, la concentration de ^{232}Th est faible dans tous les échantillons. Suivis par le ^{226}Ra , avec une forte concentration en Urée et une faible concentration dans le TSP et le FM à la fois. Tandis que le ^{40}K est le prédominant, avec une concentration élevée dans le TSP, moyenne dans l'engrais de potassium et très faible dans le reste des échantillons.

En comparant maintenant les fertilisant provenant de la région de Constantine à celles provenant de la région de Mila, on remarque une faible concentration des radionucléides avec une valeur moyenne de 0.59, 2.56 et 449.48 $Bq.Kg^{-1}$ pour le ^{232}Th , ^{226}Ra et ^{40}K respectivement.

Lorsqu'on compare les échantillons d'engrais des deux fermes, on constate que les concentrations de ^{232}Th sont faibles dans tous les échantillons avec une valeur moyenne 11.2 $Bq.kg^{-1}$, alors que les concentrations de ^{226}Ra et ^{40}K sont élevés dans les fertilisant provenant de la ferme privé dans la région de Ferdjioua avec une valeur moyenne 1253.4 et 2039.2 $Bq.kg^{-1}$ respectivement. Nous pouvons conclure que les engrais utilisé pour traiter le sol dans la ferme privé de Ferdjioua sont les plus radioactives (figure 4.6).

4.1.2.1 Engrais Phosphore

Les engrais phosphatés courants généralement utilisés sur les terres agricoles sont le superphosphate triple (TSP), le superphosphate simple (SSP), le phosphate mono am-

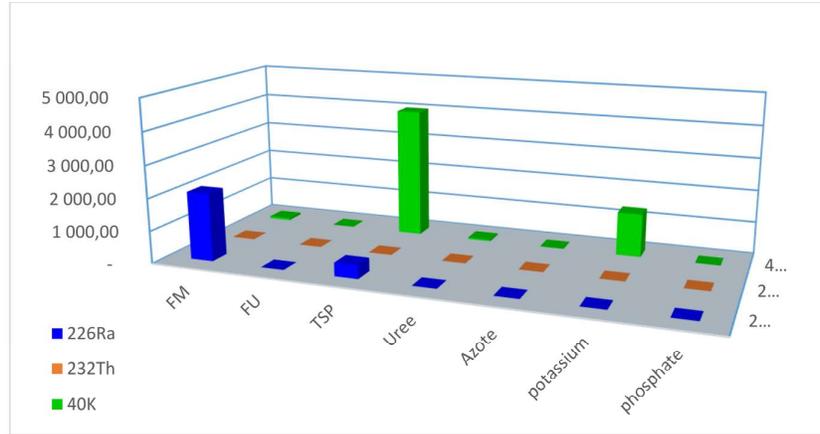


FIGURE 4.5 – Les concentrations en $Bq.kg^{-1}$ de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les fertilisants étudiés.

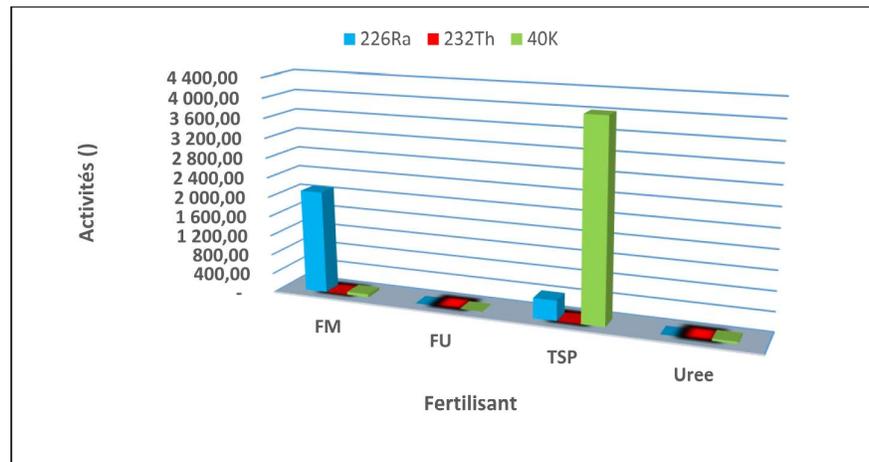
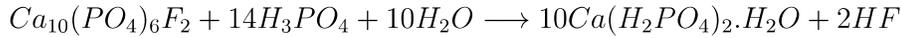


FIGURE 4.6 – Les concentrations d'activités en $Bq.kg^{-1}$ de différents radionucléides dans les fertilisants des deux fermes étudiées.

monium (MAP) et le phosphate diammonique (DAP). La roche phosphatée ignée est le matériau de départ pour la production de tous les engrais phosphatés. Leur production implique le broyage de la roche phosphatée, l'attaque chimique avec de l'acide sulfurique et enfin la préparation de mélanges commerciaux. La matière première de base utilisée dans l'industrie des engrais est l'apatite, que l'on trouve dans les roches phosphatées enrichies en P_2O_5 .

4.1.2.1.1 Le Triple Super phosphate Les superphosphates simples et triples sont des engrais simples contenant un seul élément nutritif, le phosphore. Ils sont une excellente source de phosphore pour la nutrition des plantes ; la partie entière de P_2O_5 contenue

dans ces engrais est soluble dans l'eau car son composé principal est le phosphate de calcium monohydraté [88]. Dans la production de superphosphate triple (TSP), l'acide phosphorique réagit avec l'apatite selon la réaction [89] :



Plusieurs publications ont été préoccupées par la radioactivité des phosphates et des engrais phosphatés dans le monde entier [90], [67], [61], [91].

Des préoccupations accrues concernant la contamination des sols et des ressources en eau par des métaux lourds se sont produites ces dernières années. Les effets nocifs de la consommation d'aliments contaminés sur la santé ont également fait l'objet de beaucoup d'attention. Les métaux lourds se retrouvent naturellement dans tous les sols en quantités infimes, mais peuvent s'accumuler dans les sols agricoles de diverses sources, tels que les engrais, les compléments organiques, les dépôts atmosphériques et les activités urbaines et industrielles. Certains de ces métaux ne sont pas des nutriments essentiels pour les plantes et les animaux. Cependant, des concentrations suffisamment élevées peuvent devenir toxiques et constituer de sérieux problèmes de santé dès qu'elles entrent dans la chaîne alimentaire humaine [92].

La table 4.3 présente les concentrations de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans l'engrais Triple super-phosphate de différentes parties du monde pour comparaison avec le présent travail. Dans le cas de la concentration de ^{226}Ra , les résultats du présent travail sont plus élevés que dans d'autres études dans le Brésil, Arabie Saoudite et Bangladesh. Les différences observées peuvent être dues aux différentes origines géologiques du minerai de phosphate. La concentration de ^{232}Th dans la présente étude était la plus faible par rapport aux Saueia [89] et Khan [93] et la plus élevée par rapport aux Mourad [94] et El-Taher Althoyaib [92]. La seule exception concerne les concentrations de ^{40}K , qui sont plus élevées que dans d'autres études.

4.1.2.1.2 Phosphate mono ammonium (12-52-00 MAP) Les engrais chimiques avec l'ammonium, le phosphate monoammonium (MAP) et le phosphate diammonique (DAP) sont obtenus en faisant réagir de l'acide phosphorique avec différentes quantités de NH_3 [89] :



Les valeurs moyennes des activités de rayons gamma mesurées dues aux ^{40}K , ^{226}Ra

Type de fertilisant	Country	Activity ($Bq.kg^{-1}$)			References
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
Triple super-phosphate TSP	Algérie	411.80	4.3	4016	Cette étude
	world wide	1000	1000	4000	[63]
	Egypte	516	6.5	107	[94]
	Brésil	122	538	147	[89]
	Pakistan	558	84.8	143	[93]
	Bangladesh	324	-	241	[95]
	Arabie Saoudite	100.4	6.26	546	[92]

TABLE 4.3 – Moyenne de la concentration de la radioactivité dans le superphosphate triple (TSP) provenant de différentes parties du monde, à comparer avec la présente étude.

et ^{232}Th dans les échantillons de roche phosphatée et d'engrais sont énumérées dans la Table 4.4. La concentration en ^{226}Ra dans tous les échantillons est très élevée par rapport à ^{232}Th . Les activités mesurées dues à ^{40}K , ^{226}Ra et ^{232}Th dans les roches phosphatées de Hazara et les roches phosphatées.

Il ressort clairement de ce tableau que la concentration de ^{226}Ra dans la roche phosphatée de Hazara est supérieure à celle des phosphates disponibles en Finlande et à Kola (Russie) mais inférieure de 24 à celle des phosphates disponibles dans d'autres régions du monde.

L'activité spécifique due au ^{226}Ra dans les engrais simples superphosphatés disponibles au Pakistan est approximativement égale à celle de l'Allemagne. Cependant, comparé au Pakistan, les engrais de la Finlande et des Etats-Unis montrent des teneurs en ^{226}Ra beaucoup plus faibles et plus élevées, respectivement. Les activités spécifiques de ^{232}Th en engrais simples superphosphatés disponibles au Pakistan sont approximativement égales à celles des Etats-Unis, mais les engrais de la Finlande et de l'Allemagne montrent des teneurs en ^{232}Th beaucoup plus faibles que celles du Pakistan. Les activités spécifiques observées de ^{40}K dans les engrais à superphosphate unique disponibles au Pakistan sont très faibles par rapport à celles d'autres pays.

Type de fertilisant	Country	Activity ($Bq.kg^{-1}$)			References
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
	Algérie	2095.0	7.91	62.39	cette étude
Phosphate mono ammonium MAP	world wide	1000	1000	4000	[63]
	Pakistan	693.2	85.1	137.7	[93]
	États Unis	0.19	0.06	-	[96]
	Brazil	17	231	118	[89]
	Arabie Saoudite	100.4	6.26	546	[92]

TABLE 4.4 – Moyenne de la concentration de la radioactivité dans le Phosphate mono ammonium (MAP) provenant de différentes parties du monde, à comparer avec la présente étude.

4.1.2.2 Urée 46% (46% sous forme Uréique)

L'azote (N), le nutriment végétal le plus largement utilisé et un facteur clé de la productivité agricole. Parmi les engrais azotés, l'urée est largement utilisée en raison de sa teneur élevée en N, de son faible coût et de sa facilité d'application. Cependant, l'urée a une faible stabilité thermique, une grande solubilité et un faible poids moléculaire, et a tendance à migrer dans l'air et les systèmes aquatiques par volatilisation, ruissellement et lessivage [97].

La table 4.5 présente les concentrations de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans l'engrais Urée de différentes parties du monde pour comparaison avec le présent travail.

Dans notre travail, nous avons trouvé que l'engrais Urée a une forte concentration de ^{226}Ra $1048.5 Bq.kg^{-1}$, cette valeur dépasse la valeur mondiale, et une valeur moyenne pour ^{40}K qui est $32.19 Bq.kg^{-1}$, Alors que la plus basse valeur est de l'ordre de $4.05 Bq.kg^{-1}$ pour le ^{232}Th .

Lorsqu'on compare les résultats des recherches dans d'autres pays, ils diffèrent d'un pays à l'autre : Chauhan en Inde, constate que la concentration de ^{232}Th est estimée à $202 Bq.kg^{-1}$ et de $73 Bq.kg^{-1}$ pour le ^{226}Ra [98], Alors que .Uosif en Egypte a trouvé une faible concentration de ^{232}Th semblable à ce que nous avons trouvé dans notre étude [99]. Dans le même Pays (Egypte), Mourad a trouvé une concentration faible de ^{226}Ra par

rapport à celles d'autres pays qui est 8.3 Bq.kg^{-1} [94]. Cette différence de concentrations des noyaux peut être due à la composition d'engrais (Urée) et à la qualité des composants dans un pays à l'autre.

Type de fertilisant	Country	Activity (Bq.kg^{-1})			References
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
	Algérie	1048.5	4.05	32.19	cette étude
Fertilisant Urée	world wide	17– 60	11 – 64	140– 850	[63]
	India	73	202	3	[98]
	Egypte	41.4	9.1	184.7	[99]
	Egypte	8.3	-	-	[94]

TABLE 4.5 – Comparaison de la concentration moyenne de la radioactivité dans l'engrais Urée étudiés avec ceux d'autres pays.

4.1.2.3 Fertilisant NPK

Les engrais et l'eau sont deux facteurs fondamentaux pour les cultures qui limitent la production agricole. La croissance exponentielle de la population et la diminution des terres arables ont incité la société à utiliser de plus grandes quantités de nutriments, notamment l'azote (N), le phosphore (P) et le potassium (K) pour améliorer les rendements agricoles [100].

D'après la table 4.6, L'utilisation d'engrais dans une large mesure a affecté la concentration en radionucléides et en particulier pour le potassium. C'est l'une des causes de la présence d'une activité élevée de ^{40}K dans le sol. La table 4.6 montre que les concentrations d'activité de ^{238}U , ^{235}U et ^{226}Ra dans les trois engrais sont faibles mais la concentration de ^{40}K est très importante dans l'engrais potassique par rapport aux deux autres. La concentration d'activité la plus élevée de ^{238}U (4.39 ± 0.32) Bq.kg^{-1} a été notée dans l'engrais azoté (table 3.8), tandis que la plus faible valeur de (2.21 ± 0.21) Bq.kg^{-1} a été enregistrée dans l'engrais Phosphate.

Les concentrations d'activité moyenne des trois radionucléides ^{40}K , ^{238}U , ^{232}Th sont dans l'ordre de $^{232}\text{Th} < ^{238}\text{U} < ^{40}\text{K}$ ($0,59 \text{ Bq.kg}^{-1} < 3,09 \text{ Bq.kg}^{-1} < 449,48 \text{ Bq.kg}^{-1}$). Pour ^{226}Ra , la concentration est comprise entre ($0,59 \pm 0,05$) Bq.kg^{-1} et ($4,40 \pm 0,32$)

$Bq.kg^{-1}$; la tendance de concentration de ce radionucléide est la suivante : en azote > en potassium > en phosphate. Pour ^{235}U est compris entre $(0,10 \pm 0,01) Bq.kg^{-1}$ et $(0,20 \pm 0,01) Bq.kg^{-1}$. Les résultats montrent la faible présence de ^{235}U dans les trois échantillons.

Les concentrations d'activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , dans les engrais NPK ont été comparées avec des études similaires dans d'autres pays.

Les valeurs de concentration de l'activité pour les engrais NPK pour ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K étaient inférieures aux valeurs des engrais NPK dans la région de Sétif, telles que déterminées par Boukhenfouf Boucenna [2].

Comme le montre la table 4.6, la radioactivité dans les engrais varie d'un pays à l'autre. Il est important de souligner que ces valeurs ne sont pas des valeurs représentatives pour les pays mentionnés mais pour la région d'où les échantillons ont été collectés.

Type de fertilisant	Country	Activity ($Bq.kg^{-1}$)			References
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	
Fertilisant NPK	Algérie	2.56	0.59	449.48	cette étude
		126.5	124.5	8478	[2]
	world wide	17 – 60	11 – 64	140 – 850	[63]
	India	79	28	1024	[98]
	Nigeria	143	9	4729	[101]
	Egypte	442.52	-	87.61	[102]
	Arabie Saoudite	70	25	2700	[103]

TABLE 4.6 – Comparaison de la concentration moyenne de la radioactivité dans l'engrais NPK étudiés avec ceux d'autres pays.

Nous pouvons conclure que l'utilisation d'engrais dans une large mesure peut affecter la concentration des radionucléides, en particulier les engrais contenant du phosphore et du potassium sont la cause de la présence d'une activité élevée de ^{226}Ra et ^{40}K dans le sol. L'application de ces engrais a pour effet d'accumuler de la radioactivité dans les sols qui peuvent être nocifs pour la santé des agriculteurs, des travailleurs et des consommateurs des produits.

4.1.3 Facteurs radiologique

4.1.3.1 L'activité équivalente au radium

L'activité équivalente au radium donne un indice unique, qui exprime le rendement gamma à partir de divers mélanges de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans l'échantillon (UNSCEAR, 2000). L'indice d'activité de l'équivalent-radium dans les échantillons de sol et les fertilisants étudiés a été représenté par des histogrammes comme suit (figure 4.7).

L'équivalent en radium (Ra_{eq}) dans les échantillons de sol de la zone d'étude varie de 78,76 à 127,32 $Bq.kg^{-1}$ avec une valeur moyenne de 108,64 $Bq.kg^{-1}$, ce qui se situe dans la limite permise 370 $Bq.kg^{-1}$ recommandée par OCDE, 1979 [104] (figure 4.7).

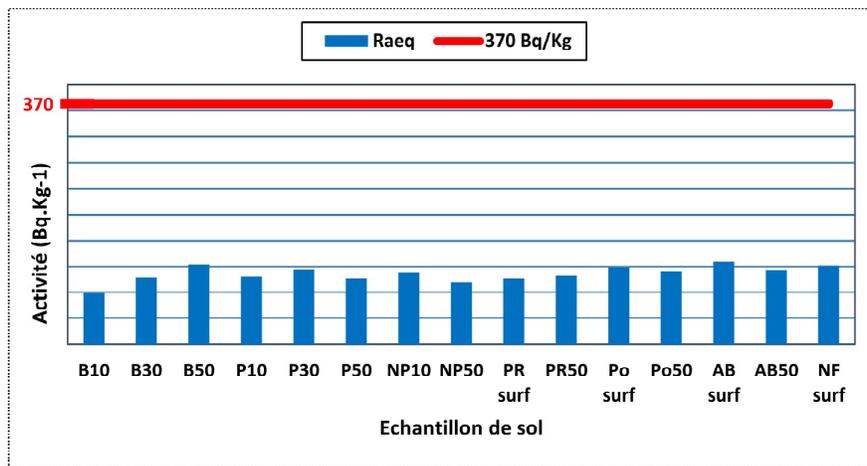


FIGURE 4.7 – Les activités de Ra_{eq} dans les échantillons de sol étudié.

On remarque dans la figure 4.8, l'existence de deux échantillons possédant un indice supérieur à 370 $Bq.kg^{-1}$. Ces échantillons sont le FM avec un indice $Ra_{eq}=2111.12 Bq.kg^{-1}$ et le TSP avec $Ra_{eq}=727.18 Bq.kg^{-1}$.

Les échantillons dépassant la limite autorisée pour le radium équivalent sont considérés dangereux et doivent être mis à d'autres contrôles plus précis.

Les indices les plus élevés se trouvent dans les fertilisants FM et TSP provenant d'une ferme pilote à la région d'El Athmania et d'une ferme privée à la région de Ferdjioua respectivement. Ceci explique le danger dans les deux fermes à la wilaya de Mila.

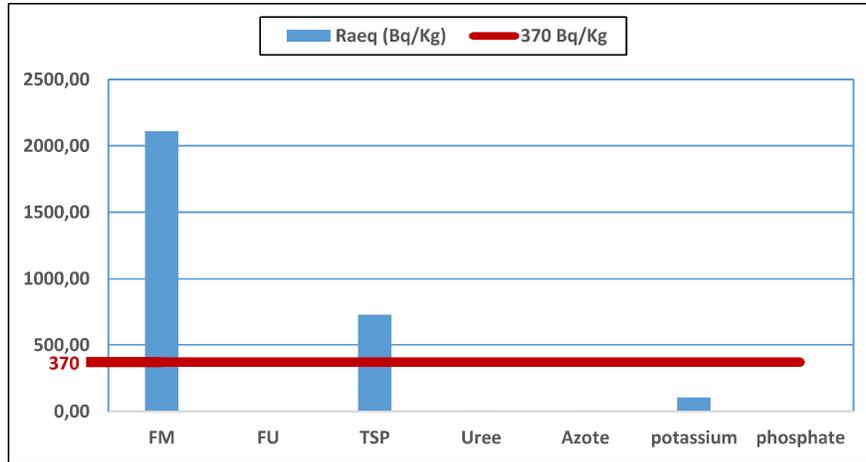


FIGURE 4.8 – Les activités de Raeq dans les Fertilisants étudiés.

4.1.3.2 Les indices de risque externe, interne et indice gamma

L'indice de risque externe et interne dans la zone d'étude varie de 0.234 à 0.339 et de 0.207 à 0.286 avec des valeurs moyennes de 0.239 et 0.290 < 1, respectivement.

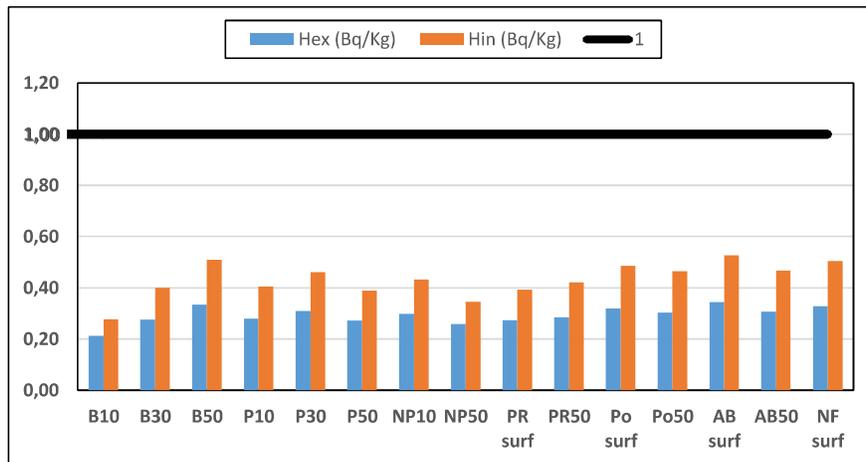


FIGURE 4.9 – Les activités des indices H_{in} et H_{ex} dans les échantillons de sol étudié.

L'indice gamma (I_γ) estime le niveau de radiation gamma. C'est un moyen de contrôle de l'excès de la dose due à ces radionucléides qui ne doit pas dépasser 1 (figure 4.9).

Les valeurs moyennes de l'indice de niveau représentatif I_γ des échantillons de sol dans les deux régions varient de 0.57 à 0.90 avec une valeur moyenne de 0,8 < 1 (figure 4.10).

Pour les échantillons mesurés, la contribution à I_γ due à l'élément de la série ^{232}Th était plus élevée que les contributions dues à ^{226}Ra et ^{40}K . La contribution de ^{232}Th de

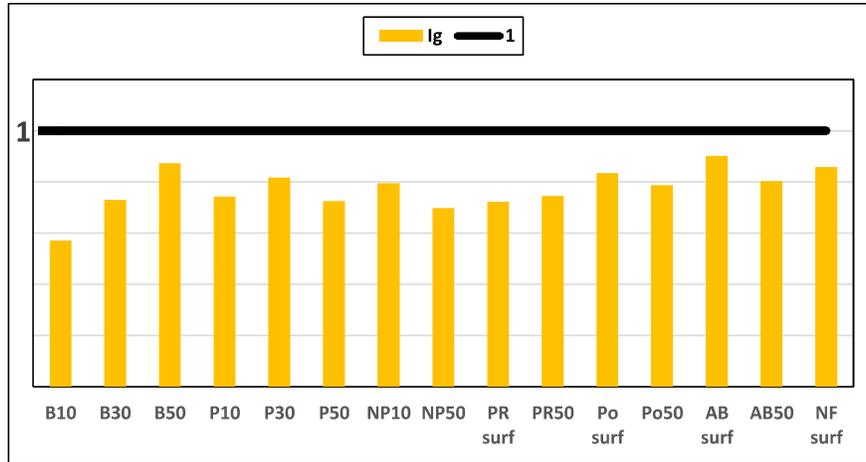
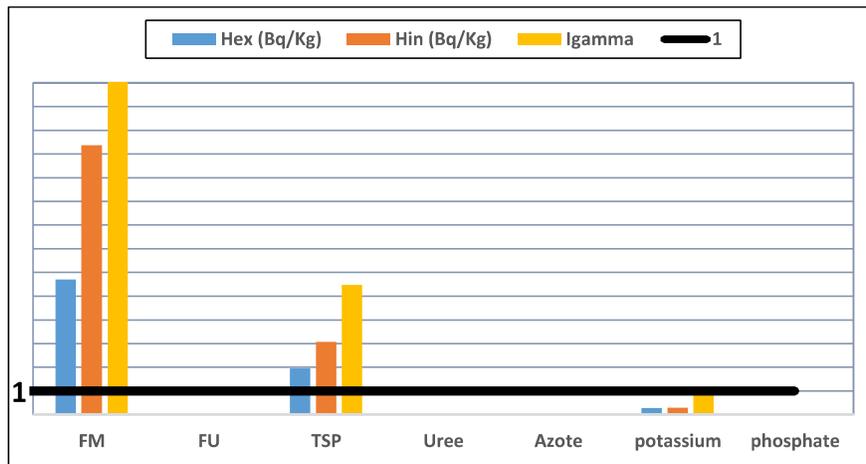


FIGURE 4.10 – Indice gamma dans les échantillons de sol étudiés.

29.7 $Bq.kg^{-1}$ est de 35.3%, ^{226}Ra de 41 $Bq.kg^{-1}$ est de 31.8% tandis que ^{40}K de 412.5 $Bq.kg^{-1}$ est de 32.9%. La valeur la plus élevée d' I_{γ} était 1.8 $Bq.kg^{-1}$ est au-dessus de la limite permise de l'unité, mais la valeur moyenne de 0.8 $Bq.kg^{-1}$ est dans la limite.

FIGURE 4.11 – Les indices H_{in} , H_{ex} et I_{γ} dans les fertilisants étudiés.

Afin d'évaluer les effets sur la santé de l'exposition humaine aux rayonnements ionisants des fertilisants contenant des rayonnements ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K et ^{137}Cs , les sources de rayonnements internes et externes sont importantes. L'objectif principal de danger est de limiter la limite équivalente de dose de rayonnement de 1 $\mu Sv.an^{-1}$ [105]. La représentation de H_{in} H_{ex} est donnée dans la figure 4.11. La valeur de l'indice doit être inférieure à l'unité afin de garder le risque d'irradiation insignifiant. Les valeurs de risque externe calculées sont comprises entre 0.001 \leftrightarrow 5,71 avec une valeur moyenne de 1.14 (table 3.13). Les valeurs calculées de l'indice de risque interne variaient de 0.003

←→ 11.37 (table 3.13) avec une valeur moyenne de 2.12.

Les valeurs des indices de risque externe (H_{ex}) et interne (H_{in}) et l'indice de niveau représentatif (I_γ) pour les fertilisants collectés de la région de Constantine et ceux collectés de deux fermes comme le FU et Uree est inférieure à l'unité. Il n'y a donc pas de risque radiologique émanant de l'exposition externe des habitants ou des personnes travaillant / vivant autour des décharges à ces radionucléides naturels délétères. Les valeurs des indices de risque externe (H_{ex}) et interne (H_{in}) et l'indice de niveau représentatif (I_γ) pour les fertilisants FM et TSP provenant des deux fermes pilote et privé respectivement dépassent la limite recommandée. Par conséquent, les fertilisants de ces deux zones présentent un risque radiologique interne pour les habitants et les personnes qui travaillent ou vivent autour des sites d'étude en raison des effets nocifs des rayonnements ionisants des substances radioactives nocives dans les sols des déchets.

4.1.3.3 Le débit de dose absorbée et la dose efficace annuelle

Les valeurs de débit de dose absorbée (D) ont varié dans les échantillons de sol de 36.23 ←→ 58.78 $nGy.h^{-1}$ avec une valeur moyenne de 50.09 $nGy.h^{-1}$ (table 3.15, figure 4.12). De la présente étude, il est clairement révélé que le débit de dose absorbée moyenne (D) était inférieur aux limites recommandées de 55 $nGy.h^{-1}$ par UNSCEAR, 2000 mais plus élevé d'un facteur de 1.98 ←→ 3.78 $nGy.h^{-1}$ dans plusieurs points d'échantillonnage (B50, AB surf et NF surf) (figure 4.12).

Évolution de la dose efficace annuelle dans la présente étude est représentée dans la figure 4.12. Elle varie de 44.44 à 69.88 $\mu Sv.an^{-1}$ avec une valeur moyenne de 61.43 $\mu Sv.an^{-1}$, inférieure à 70 $\mu Sv.an^{-1}$ comme recommandé par UNSCEAR pour chaque membre du public [63]).

Examinons maintenant évolution de la dose absorbée et la dose efficace annuelle dans les fertilisants. En remarquant dans la figure 4.13 Les valeurs les plus élevées ont été obtenues à FM et TSP (975.27, 360.32 $\mu Sv.an^{-1}$, et 1196.07, 441.89 $\mu Sv.an^{-1}$ respectivement), qui sont environ plus de 10 fois élevées que le niveau recommandé de 55 $nGy.h^{-1}$ (UNSCEAR, 2000) pour la dose absorbée, les valeurs sont environ 5 fois plus élevées que le niveau recommandé par CIPR, 1990, UNSCEAR, 2000 de 70 $\mu Sv.an^{-1}$ pour le (D_E). Seuls ces deux engrais ont des valeurs supérieures à la valeur moyenne mondiale, ceci est dû à une distribution de radionucléides à forte concentration d'activité dans ces derniers.

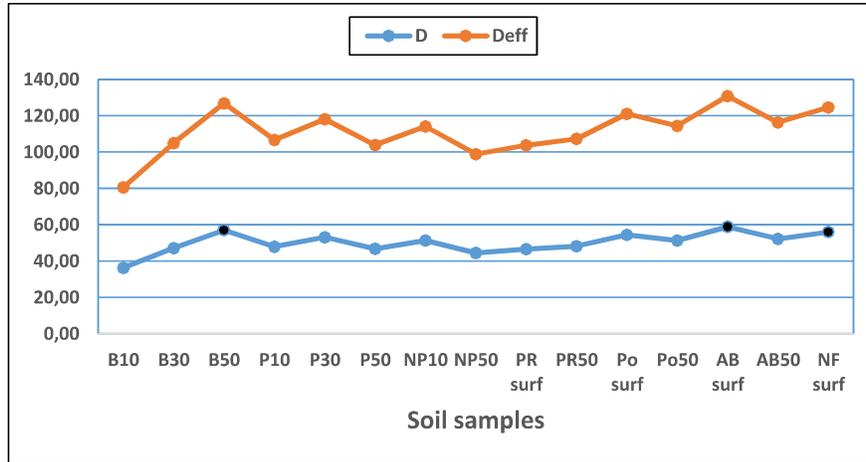


FIGURE 4.12 – Evolution de la dose absorbée et la dose efficace annuelle dans les échantillons de sol étudié.

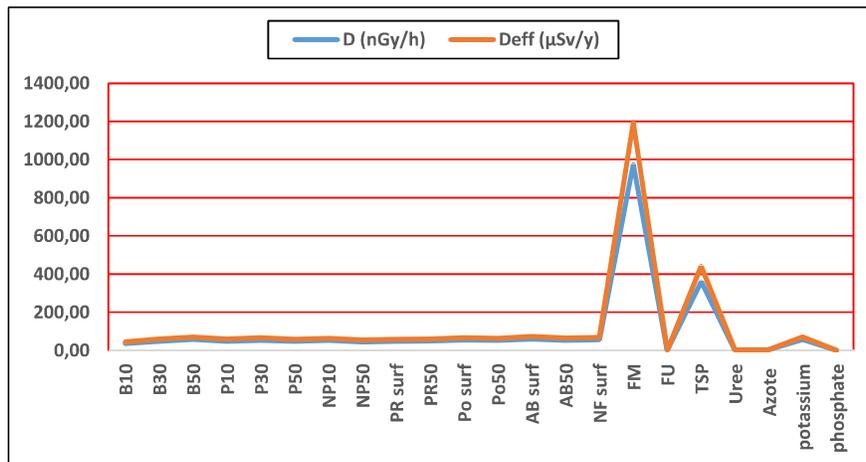


FIGURE 4.13 – Evolution de la dose absorbée et la dose efficace annuelle dans tous les échantillons étudiés.

4.1.3.4 Le Risque excessif de cancer à vie (ELCR)

Les effets cancérigènes et mutagènes potentiels sont caractérisés en évaluant la probabilité d'incidence du cancer dans une population d'individus pour une durée de vie spécifique à partir des absorptions projetées et de l'exposition avec des données dose-réponse spécifiques aux produits chimiques (facteurs de pente). Le risque de cancer à vie est la probabilité ou le risque pour une personne de développer une cellule cancéreuse en raison d'une exposition à des substances toxiques et délétères provenant d'une exposition multiple au fil du temps [106].

Le risque excessif de cancer à vie a été calculé en utilisant l'équation présentée dans

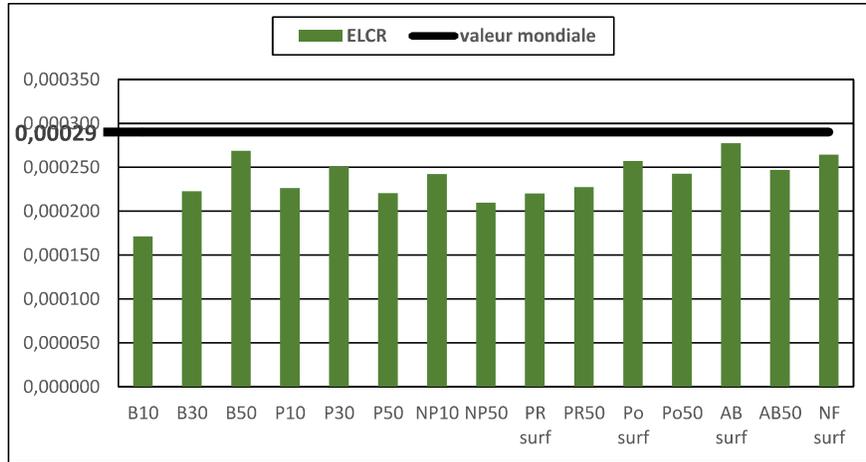


FIGURE 4.14 – *Le risque excessif de cancer à vie dans les échantillons de sol étudié.*

le chapitre III et les valeurs calculées pour les échantillons de sol variaient de $1,71 \times 10^{-4} \longleftrightarrow 2,78 \times 10^{-4}$ avec une valeur moyenne de $2,36 \times 10^{-4}$ (table 3.15). La valeur moyenne actuelle de l'ELCR est inférieure à la valeur moyenne mondiale de $2,9 \times 10^{-4}$ (UNSCEAR, 2000) (figure 4.14).

La valeur moyenne de facteur de risque excessif de cancer à vie pour les fertilisants étudiée est de $9,45 \times 10^{-4}$. Deux (2) des points d'échantillonnage (FM et TSP) ont des valeurs ELCR supérieures à la valeur moyenne mondiale. Ces résultats montrent que le risque de cancer à vie lié à l'exposition à ces fertilisants pendant une durée maximale de 70 ans est élevé dans ces deux endroits. Par conséquent, l'utilisation subséquente de ce produit pour l'agriculture ou pour des études d'assainissement du sol et d'autres fins devrait être découragée. Plus encore, les personnes travaillant ou vivant autour de ces fermes devraient éviter l'utilisation de ces engrais pour l'un des buts susmentionnés.

4.1.3.5 Comparaison des facteurs radiologiques avec ceux dans d'autre payé

4.1.4 Comparaison entre la radioactivité des deux fermes pilote et privé

Pour évaluer le risque de la radioactivité naturelle et artificiel dans les deux fermes étudiées de la région d'El-Athmania et de Ferdjioua, nous avons comparés les concentrations moyennes des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K (figure 4.15(a, b, c)) and ^{137}Cs (figure 4.16) pour tous les échantillons de sol fertilisés et non fertilisés ainsi que les facteurs radiologique et les dose.

Echantillons	Country	Facteurs radiologiques					References	
		Ra_{eq} ($Bq.Kg^{-1}$)	H_{ex}	H_{in}	I_{γ}	\dot{D} ($nGy.h^{-1}$)		D_E ($\mu Sv.an^{-1}$)
	Algérie	108.64	0.29	0.43	0.77	50.09	61.43	cette étude
	Moyenne mondiale	370	<1	<1	<1	59	300	[63]
	Algerie	138.5	-	-	0.98	-	-	[2]
Sol	Inde	93.41	0.24	0.29	-	44.16	54.00	[89]
	turque	161.24	0.55	0.44	-	76.90	94.31	[107]
	Nigeria	132.14	0.36	0.51	0.97	66.30	81.30	[108]
	Arabie Saoudite	69.52	0.20	0.20	0.50	-	40.00	[109]
	Tunisia	38.60	0.10	0.13	-	18.50	22.00	[110]

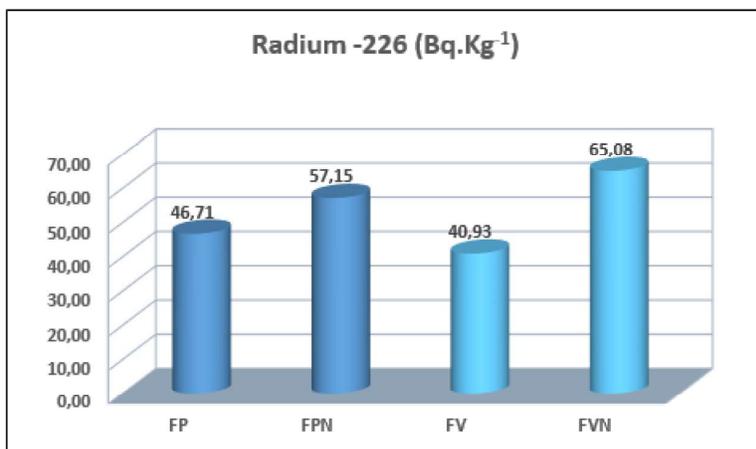
TABLE 4.7 – Comparaison des facteurs radiologiques des échantillons de sol étudiés avec les résultats trouvés dans les pays du monde.

Examinons les graphiques de comparaison (figure 4.15, 4.16, 4.17, 4.18, 4.19), en remarquant l'utilisation du codage pour les noms des échantillons FP, FPN, FV et FVN et sa signification :

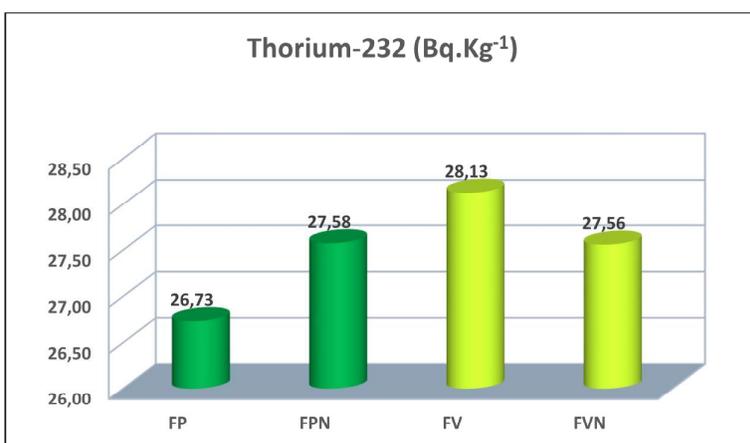
Codage	Identification
FP	Echantillons de sol fertilisés provenant de la ferme pilote de la région d'El Athmania, Mila.
FPN	Echantillons de sol non fertilisés provenant de la ferme pilote de la région d'El Athmania, Mila.
FV	Echantillons de sol fertilisés provenant de la ferme privé de la région de Ferdjioua, Mila.
FVN	Echantillons de sol non fertilisés provenant de la ferme privé de la région de Ferdjioua, Mila.

TABLE 4.8 – Identification de codage des échantillons pour comparer les deux fermes étudiées.

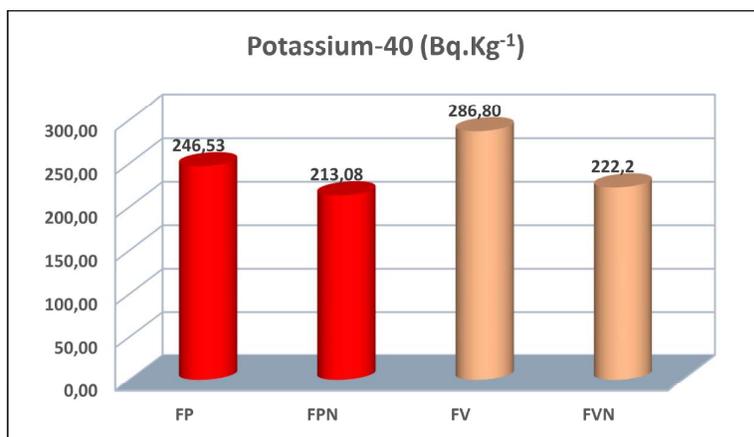
Les concentrations moyennes de ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K pour le FP et FV sont $46.71 Bq.kg^{-1}$ et $40.93 Bq.kg^{-1}$, $26.73 Bq.kg^{-1}$ et $28.13 Bq.kg^{-1}$, $246.53 Bq.kg^{-1}$ et $286.80 Bq.kg^{-1}$ res-



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.15 – Graphique de la comparaison entre la radioactivité naturelle des deux fermes étudiés (a) ²²⁶Ra (b) ²³²Th (c) ⁴⁰K.

pectivement et pour le FPN et FVN sont 57.15 Bq.kg^{-1} et 65.08 Bq.kg^{-1} , 27.58 Bq.kg^{-1} et 27.56 Bq.kg^{-1} , $213.08 \text{ Bq.kg}^{-1}$ et 222.2 Bq.kg^{-1} respectivement.

Les résultats de ^{226}Ra sont semblables pour les deux espèces fertilisés et non fertilisés de deux fermes (FP, FV) et (FPN, FVN), mais la concentration de ^{226}Ra est élevée dans les échantillons non fertilisés comparativement aux échantillons fertilisés dans les deux endroits. Les différences, peut être, sont attribuables à la composition géochimique et à l'origine des types de sols dans une zone particulière.

Les résultats de ^{232}Th sont les plus faibles, Nous observons une discordance dans les résultats en comparant les groupes (FP, FPN) et (FV, FVN) des deux fermes. D'après l'étude précédente sur les engrais utilisés dans les deux fermes, nous avons trouvé que la concentration de ^{232}Th est faible est donc nous pouvons conclure que la concentration de ^{232}Th est contrôlée par la qualité du sol dans la région.

Les concentrations de ^{40}K sont les plus dominantes, elles dépassaient nettement les valeurs du radium et du thorium. Nous remarquons des valeurs élevées dans les deux espèces (FP, FV) et (FPN, FVN) car le potassium (K) est un élément crucial de la nutrition des plantes et le deuxième plus gros nutriment assimilé par les plantes après l'azote. Il est généralement abondant dans le sol, puisqu'il constitue environ 2% de la croûte terrestre [111].

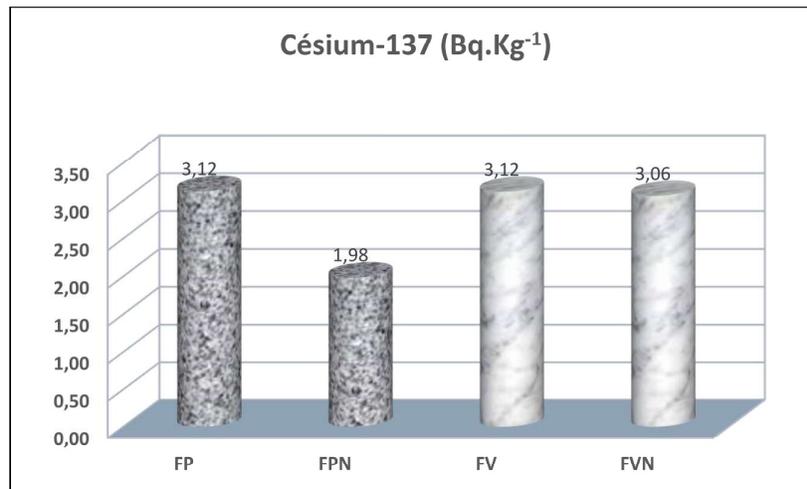


FIGURE 4.16 – Graphique de la comparaison entre la radioactivité artificielle (^{137}Cs) des deux fermes étudiées.

Le radionucléide ^{137}Cs a également été présent à des concentrations mesurables dans tous les échantillons de sol de deux fermes. Il a été trouvé à des concentrations moyennes variant de 1.98 à 3.12 Bq.kg^{-1} (FPN, FP) respectivement et de 3.06 à 3.12 Bq.kg^{-1} dans le groupe (FVN, FV). Sachant que, dans les fertilisants, l'activité a été jugée inférieure à

la limite de détection.

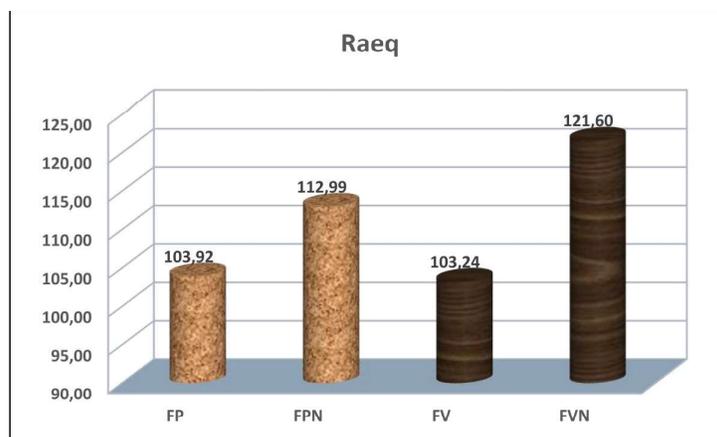
Dans le sol non cultivés provenant de la région de Ferdjioua, des concentrations élevées de ^{137}Cs comparant à celle de la région d'El Athmania. Mesrar et al. a été trouvé les sols cultivés enregistrent des profils ^{137}Cs perturbés et hétérogènes [78]. Notre étude expérimentale a montré que plus de 45 ans après les premiers essais d'armes nucléaires effectués par la France à Reganne dans la région du Sahara au sud de l'Algérie entre 1960 et 1961, le ^{137}Cs reste encore dans la couche supérieure des sols du Nord-Est du l'Algérie. Mais la présence de ^{137}Cs peut être dûe aussi aux derniers accidents nucléaires comme celui de Tchernobille (URSS- 26 avril 1986).

L'activité équivalente au radium exprime le rendement gamma dans les deux fermes étudiées à partir de divers mélanges de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans l'échantillon. L'indice d'activité équivalent radium a été représenté dans la figure 4.17 (a). Les valeurs moyennes calculées de Ra_{eq} dans les deux groupes (FP, FPN) et (FV, FVN) sont inférieure à la valeur maximale recommandée de 370 Bq.kg^{-1} .

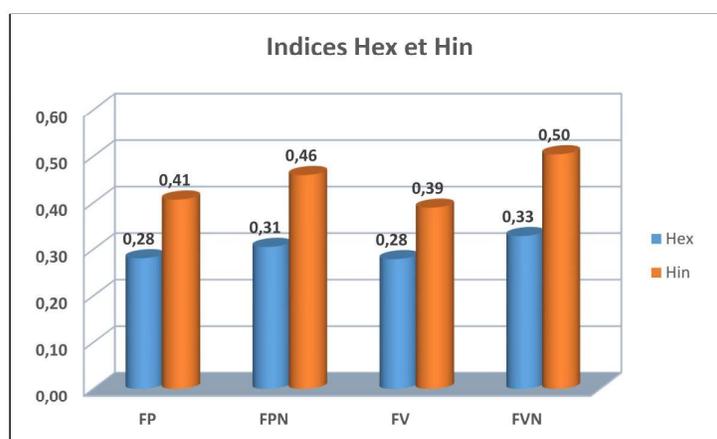
L'exposition externe est causée par le rayonnement gamma direct alors que l'exposition interne est causée par l'inhalation de radon (^{222}Rn), de thoron (^{220}Rn) et de leurs produits de désintégration à courte durée de vie, et comme le radon et le thoron provoquent du cancer des poumons lorsqu'ils sont inhalés par les habitants. Alors, c'est intéressant de représenté les deux indice H_{ex} et H_{in} des échantillons de sol étudiés dans la figure 4.17 (b). Elle montre que les valeurs calculées de H_{ex} et H_{in} dans les deux fermes sont inférieure à l'unité, comme on le souhaite.

Un autre indice de risque de rayonnement radioactif appelé indice ($I_{\gamma r}$), est représenté dans la figure 4.17 (c). Il est clair que les valeurs des échantillons de sol cultivés ou non cultivés dans les deux fermes ne dépassent pas la limite supérieure de ($I_{\gamma r}$) qui est l'unité. Le débit de dose gamma absorbée dans l'air et la dose annuelle efficace pour les groupes (FP, FPN) et (FV, FVN) sont représenté graphiquement dans la figure. Sachant que, Les adultes passent environ 80% de leur temps à l'intérieur des fermes, tandis que les 20% restants passent à l'extérieur.

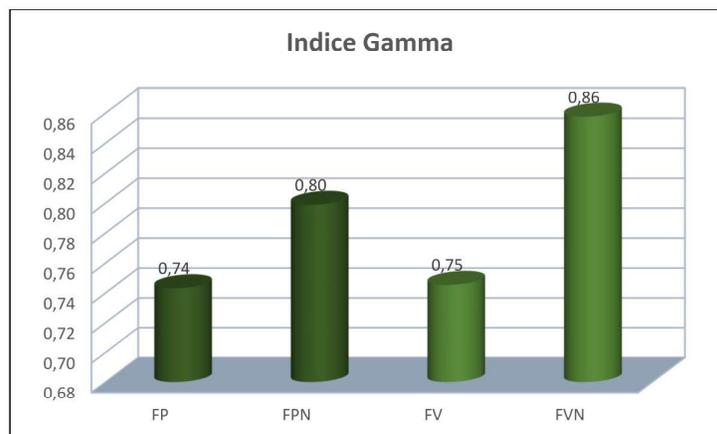
La figure 4.18 montre que les valeurs de débit de dose gamma absorbée sont inférieures aux valeurs de dose annuelle efficace dans tous les échantillons de les zones d'étude, on remarque aussi que les échantillons non cultivés dans les deux fermes représentent des valeurs supérieurs comparant à celles des échantillons cultivés, mais selon le toutes les valeurs reste inférieure à la valeur limites moyenne mondiale le rapport de l'UNSCEAR (2000).



(a)



(b)



(c)

FIGURE 4.17 – Graphique de la comparaison entre les indices de risques dans les deux fermes étudiés (a) Équivalent radium (b) Indices de risque externe et interne (c) Indice gamma.

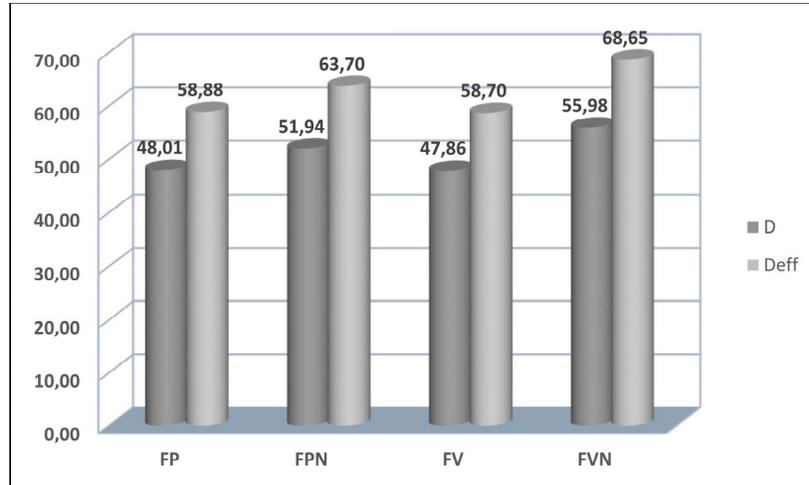


FIGURE 4.18 – Graphique de la comparaison entre le débit de dose gamma absorbée et la dose annuelle efficace dans les deux fermes étudiés.

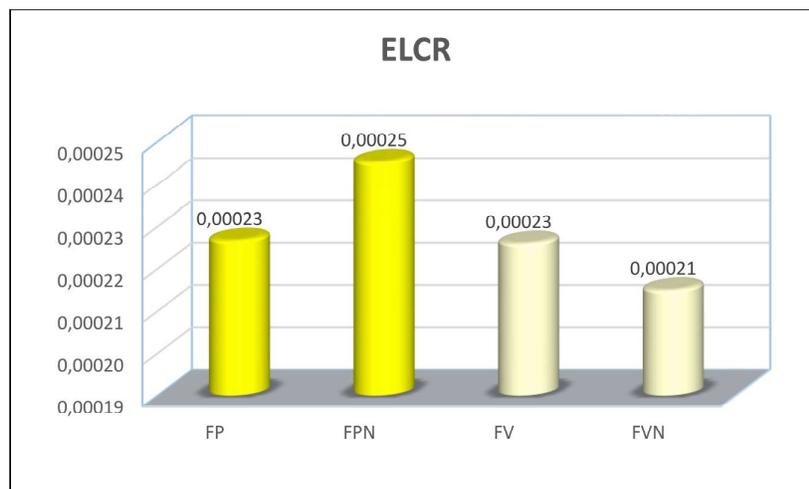


FIGURE 4.19 – Graphique de la comparaison entre le facteur d'excès de risque de cancer à vie dans les deux fermes étudiés.

L'exposition à long terme aux rayonnements est supposée avoir certains risques de causer le cancer. Cela signifie que toutes les personnes ont un risque de cancer. Selon la Revue des statistiques du cancer sur la surveillance, l'épidémiologie et les résultats finaux (SEER), les hommes américains ont un risque de cancer à vie de 44%, tandis que les femmes ont un risque à vie de 38% (National Cancer Institute, 2009). Cela signifie qu'il y a une chance que 33% (ou 0.33) qu'une personne souffre d'un type de cancer à un moment de sa vie. «L'excès de risque de cancer à vie» (ELCR) est un risque supplémentaire que quelqu'un pourrait avoir de contracter un cancer si cette personne est exposée à des substances cancérogènes pendant plus longtemps [112]. Le facteur (ELCR) évalué au cours de la présente étude dans les deux fermes, sur la base de la dose annuelle extérieure

(E_{out}) a été représenté dans la figure 4.19. La moyenne de (ELCR) était varié de $0,23 \times 10^{-3}$ à $0,25 \times 10^{-3}$ dans la ferme pilote et de $0,21 \times 10^{-3}$ à $0,23 \times 10^{-3}$, ce qui est inférieur à la moyenne mondiale $0,29 \times 10^{-3}$.

Un certain nombre d'études ont été réalisées dans le monde entier pour la détermination de (ELCR) due à la radiation gamma. Dans certaines études, seule la dose annuelle extérieure (E_{out}) a été prise en compte pour évaluer le (ELCR). Dans la détermination de (ELCR) dans et autour de Warri Refining and Petrochemical Company dans le delta du Niger, au Nigeria, par Emelue [113]. Selon leur rapport, le risque de développer un cancer est inférieur à la norme. Dans une autre étude de Ramasamy et al. (2013), dans la zone de rayonnement de fond élevé, Kerala, Inde, la valeur moyenne (ELCR) calculée est de $1,7 \times 10^{-3}$, ce qui est six fois plus élevé que la moyenne mondiale ($0,29 \times 10^{-3}$). Taskin et al., ont signalé que la valeur (ELCR) était de $0,50 \times 10^{-3}$ à Kirklareli, en Turquie [114]. Ramasamy et al., ont réalisé l'évaluation de (ELCR) dans les sédiments fluviaux du Karnataka et du Tamilnadu, en Inde. La moyenne de (ELCR) était de $0,20 \times 10^{-3}$, ce qui est inférieur à la moyenne mondiale [105].

Les effets radiologiques des échantillons de sol sont examinés à l'aide de divers indices de risque radiologique et de la dose efficace annuelle. Les valeurs obtenues pour les échantillons de sol dans les deux fermes étudiées tombent en dessous des limites de ces indices dans la présente étude, qui est un risque de rayonnement insignifiant pour la communauté tout compris.

4.2 Analyses statistiques des données

4.2.1 Statistiques descriptives

Statistiques descriptives générale dans le sol étudié :

Les statistiques descriptives des radionucléides dans les échantillons de sol étudiés sont données dans la table 4.9. Des statistiques de base ont été utilisées pour décrire les caractéristiques statistiques des activités de radionucléides. Les activités des radionucléides dans ces échantillons variaient par des facteurs allant jusqu'à 23.72-67.72 pour ^{226}Ra , 26.45–28.70 pour ^{232}Th et 178.50–290.10 pour ^{40}K .

L'écart type était le plus grand pour ^{40}K et était le plus petit pour ^{232}Th . La moyenne arithmétique et l'écart type des activités pour tous les échantillons de sol ont été utilisés

pour décrire la tendance centrale et la variation des données.

Dans la théorie des probabilités et les statistiques, Skewness est une mesure de l'asymétrie de la distribution de probabilité d'une variable aléatoire à valeur réelle. De nombreux modèles supposent une distribution normale, c'est-à-dire que les données sont distribuées symétriquement par rapport à la moyenne. La distribution normale a une Skewness égale zéro. Cependant, en réalité, les points de données peuvent ne pas être parfaitement symétriques [115]. Par conséquent, une compréhension de l'asymétrie de l'ensemble de données indique si les écarts par rapport à la moyenne sont susceptibles d'être positifs ou négatifs. L'asymétrie caractérise le degré d'asymétrie d'une distribution autour de sa moyenne. L'asymétrie positive indique une distribution avec une queue asymétrique s'étendant vers des valeurs plus positives. L'asymétrie négative indique une distribution avec une queue asymétrique s'étendant vers des valeurs plus négatives. Les valeurs d'asymétrie faibles indiquent des distributions généralement normales [61].

Les concentrations d'activité de tous les radionucléides de cette étude ont des valeurs d'asymétrie positives (table 4.6), ce qui indique que les distributions sont de nature asymétrique. Raghu a trouvé des valeurs de Skewness positive similaire à notre travail [61].

Kurtosis est une mesure de la pointe de la distribution de probabilité d'une variable aléatoire à valeur réelle. Kurtosis caractérise les pics relatifs ou la planéité d'une distribution par rapport à la distribution normale. L'aplatissement positif indique une distribution relativement pointue. L'aplatissement négatif indique une distribution relativement plate. Un kurtosis plus élevé signifie qu'une plus grande partie de la variance est le résultat d'écarts extrêmes peu fréquents, par opposition à de fréquentes déviations de taille modeste [61].

Dans notre étude, les distributions associées aux radionucléides ^{232}Th et ^{40}K ont des valeurs de kurtosis négatives, indiquant des distributions plates, et les radionucléides ^{226}Ra ont des valeurs de kurtosis positives, indiquant des distributions de pointe. Bien que d'autres études aient montré des résultats opposées à celles trouvées dans notre travail [61].

Variables	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K
Moyenne	51.34	27.31	236.90
Ecart type	12.59	0.67	32.06
Variance	158.39	0.45	1028.03
Skewness	-0.69	0.54	-0.22
Kurtosis	0.11	-0.49	-0.41
Plage	44.00	2.25	111.60
Minimum	23.72	26.45	178.5
Maximum	67.72	28.70	290.10

TABLE 4.9 – *Statistiques descriptives des échantillons de sol des deux fermes de Mila, Algérie.*

4.2.2 Corrélations entre les concentrations des radionucléides naturels ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K dans les échantillons de sol

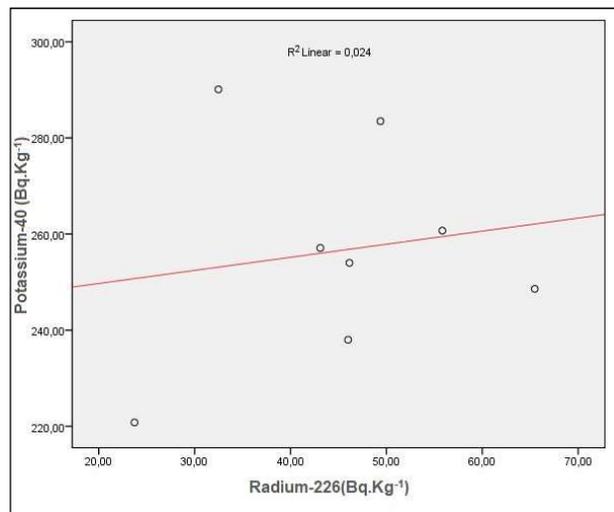
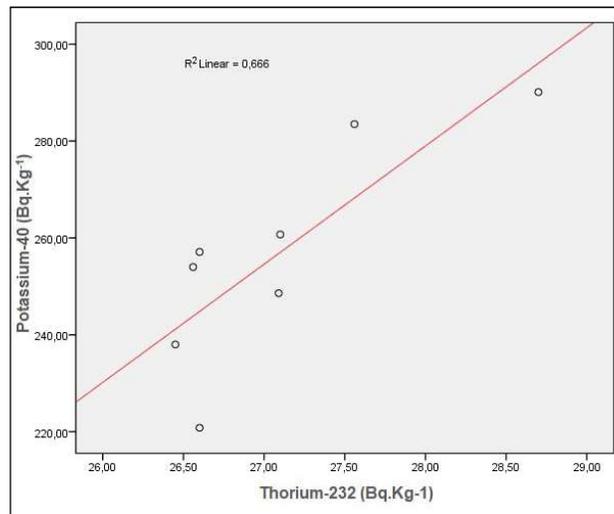
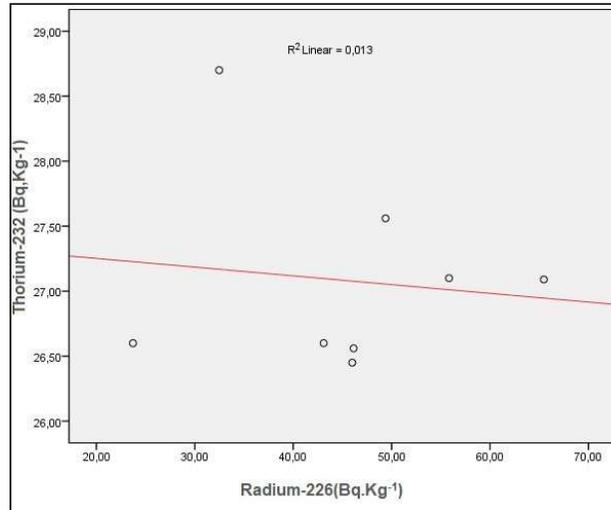
La figure 4.20 (a, b) montre les graphiques obtenus à partir de la comparaison entre les activités enregistrées dans les échantillons de sol fertilisés et non fertilisés respectivement dans les deux fermes étudiées de la région d'El Athmania et Ferdjioua pour les nucléides des deux principales séries de désintégrations naturelles ²²⁶Ra, ²³²Th et pour le ⁴⁰K.

Le Thorium et le Radium ont une faible corrélation négative avec $R^2 = 0.013$ dans les échantillons de sol dans la ferme pilote, pendant que la figure montre une faible corrélation entre ces deux derniers dans le sol de la ferme privée $R^2 = 2.95 \times 10^{-4}$. Bien que d'autres études aient montré des tendances opposées à celles trouvées dans notre travail [116], [117]. (figure 4.21).

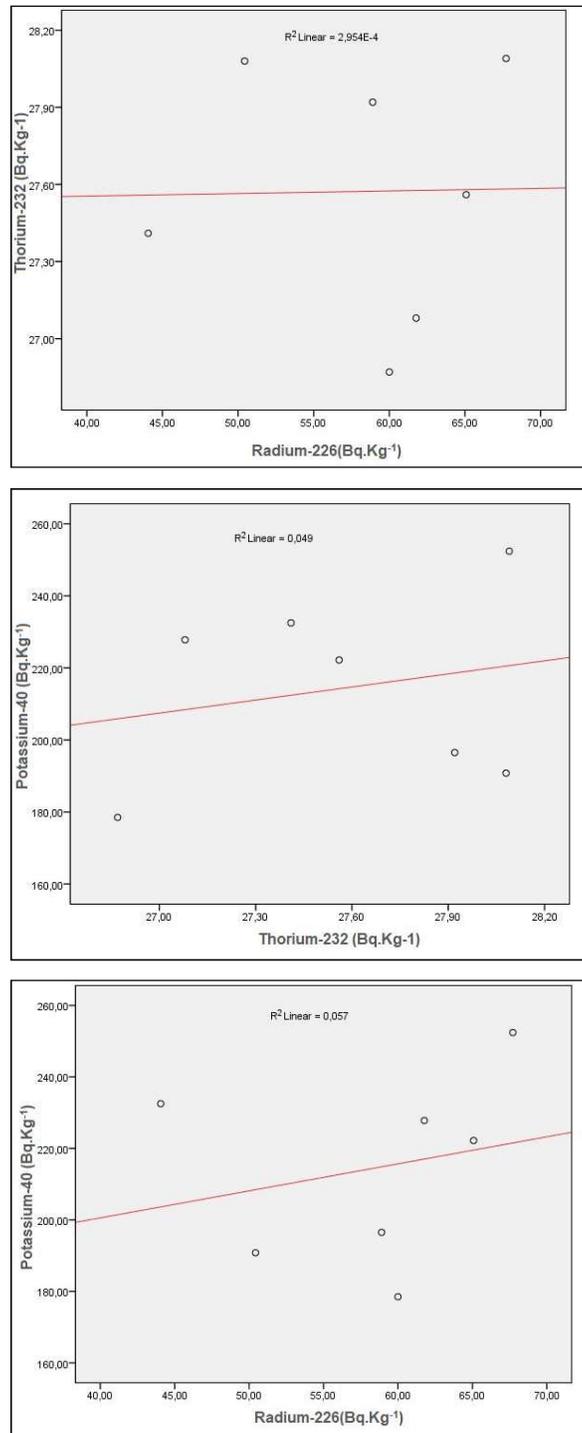
Le coefficient de corrélation entre le potassium et le Thorium apparaît également faible dans les échantillons de sol fertilisés et non fertilisés provenant de la ferme privé. Pendant qu'ils ont une bonne corrélation positive dans les échantillons de la ferme pilote avec un coefficient de corrélation $R^2 = 0,049, 0.666$ respectivement. (figure 4.20 (a, b)).

Le Potassium et le Radium n'ont montré aucune corrélation linéaire significative dans les échantillons de sol, indépendamment des emplacements géographiques avec $R^2 = 0.024, 0.057$ respectivement. Bajoga et al.ont trouvé une corrélation similaire à celle trouvée dans notre travail avec une tendance positive [117](Figure 4.22).

Les interactions entre les radionucléides primordiaux pourraient être dues au fait que



(a)



(b)

FIGURE 4.20 – Tracé de corrélation d'activité pour (^{232}Th , ^{226}Ra), (^{40}K , ^{232}Th) et (^{40}K , ^{226}Ra) dans les deux fermes étudiées (a) Ferme pilote (b) Ferme privé à l'aide du logiciel SPSS (version 17).

ces éléments sont présents dans le sol depuis la formation de la terre. Une fois que la croûte terrestre s'est solidifiée, ces radionucléides sont restés piégés dans les roches.

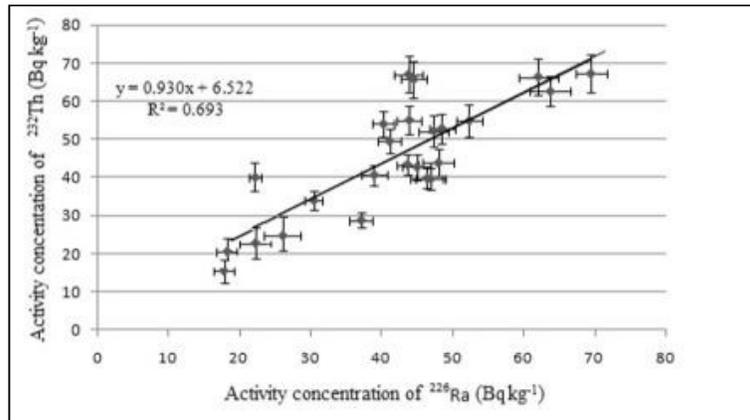


FIGURE 4.21 – Tracé de corrélation d'activité (^{232}Th , ^{226}Ra) [116].

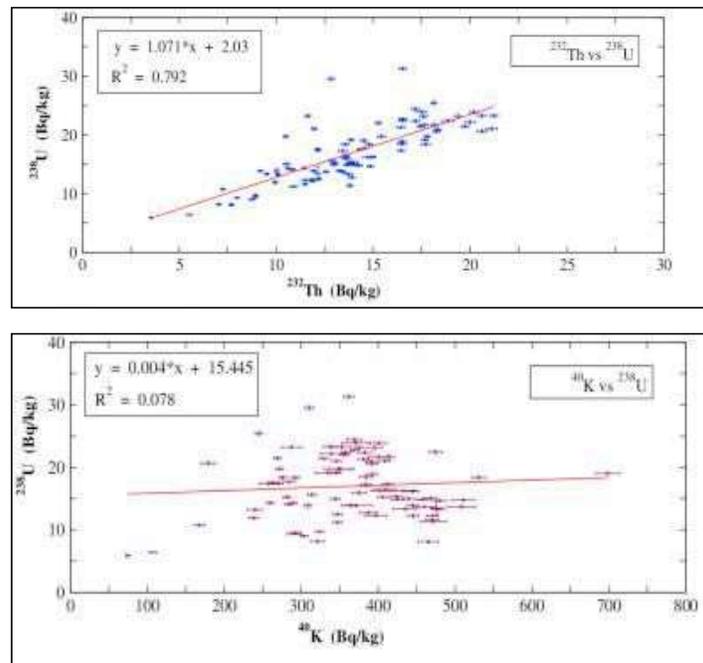


FIGURE 4.22 – Tracé de corrélation d'activité pour (^{238}U , ^{232}Th) et (^{238}U , ^{40}K) [117].

4.2.3 Histogramme des distributions des fréquences des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K .

Un histogramme est une estimation de la distribution de probabilité d'une variable continue. La distribution de fréquence pour toutes les variables radioactives dans les échan-

tillons de sol de deux fermes pilote et privé a été analysée. Comme on le voit sur les figures 4.23, 4.24, 4.25. Les graphiques de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K montrent que ces radionucléides ont été distribués dans une distribution normale (en forme de cloche).

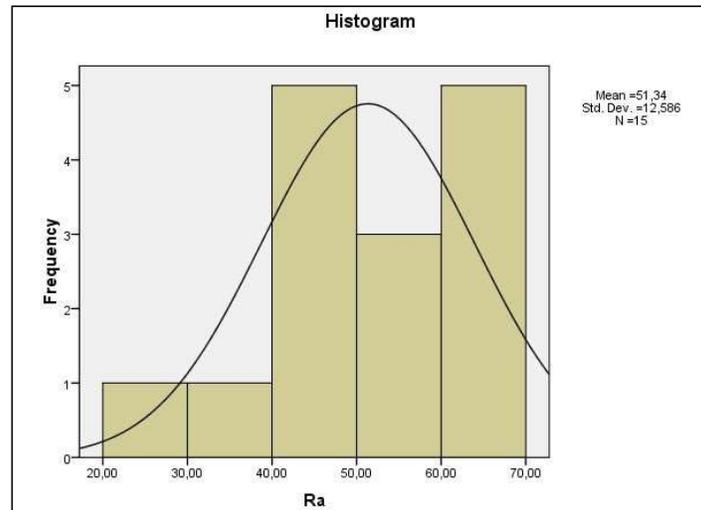


FIGURE 4.23 – Distribution de la fréquence en Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).

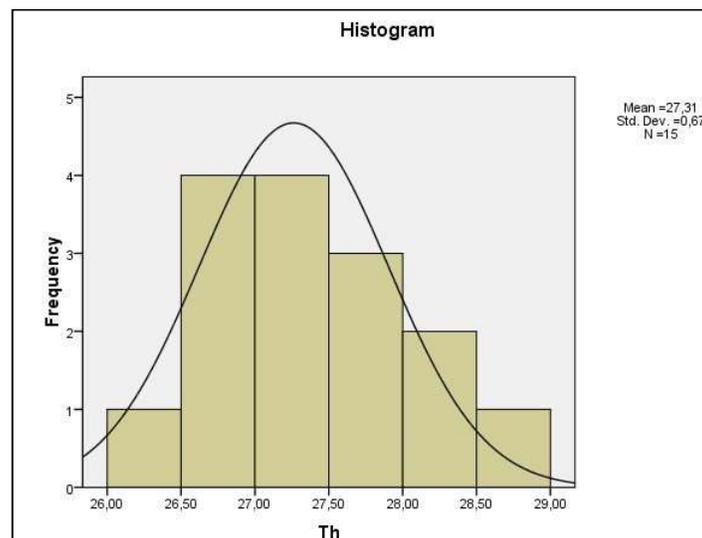


FIGURE 4.24 – Distribution de la fréquence en Bq.kg^{-1} de ^{232}Th dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).

4.2.4 Le coefficient de corrélation de Pearson (PCC)

Le coefficient de corrélation de Pearson (PCC) est une mesure statistique qui mesure la force et la direction d'une relation linéaire entre deux variables aléatoires. Pour com-

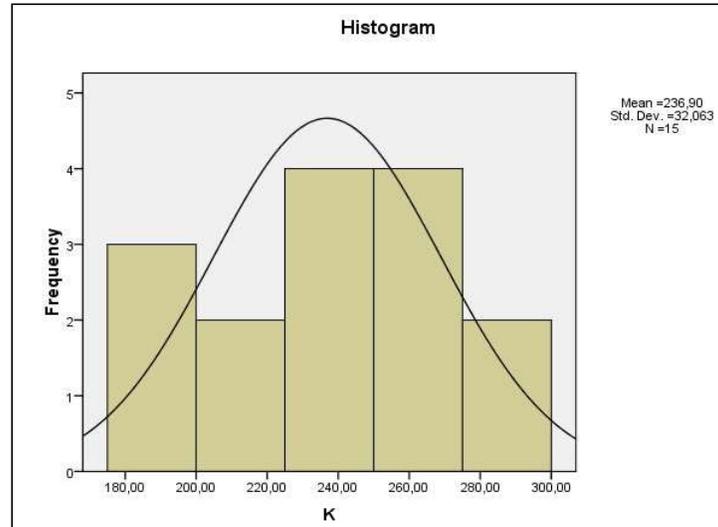


FIGURE 4.25 – Distribution de la fréquence en $Bq.kg^{-1}$ de ^{40}K dans les échantillons de sol étudié à l'aide du logiciel SPSS (version 17).

prendre le degré d'association qui peut exister entre les paramètres radiologiques mesurés, en utilisant l'analyse des coefficients de corrélation de Pearson et les résultats sont donnés dans le tableau IV-9 en tant que matrice de corrélation linéaire [66].

Toutes les variables évaluées ont été soumises à l'analyse de corrélation de Pearson, on peut voir dans le tableau qu'il y a une corrélation positive élevée entre la plupart des variables. La valeur du coefficient de corrélation de Pearson de 1 dans la matrice est le reflet de la relation monotone parfaite qui existe entre les paires. ^{226}Ra (série ^{238}U) a une très forte corrélation avec toutes les autres variables sauf ^{232}Th et ^{40}K où elles ont une faible corrélation. Nous avons également trouvé que ^{226}Ra (série ^{238}U) est corrélée négativement avec ^{40}K et qu'il y a une corrélation très faible entre ^{226}Ra et ^{232}Th [?].

4.2.5 Classification ascendante hiérarchique (CAH)

La classification ascendante hiérarchique est une méthode statistique de segmentation permettant de trouver des sous-groupes de cas relativement homogènes et de profils similaire en fonction des caractéristiques mesurées. Il commence par chaque cas dans un segment séparé, puis combine les segments séquentiellement, en réduisant le nombre de classe à chaque étape jusqu'à ce qu'il ne reste qu'une seule classe et la structure obtenue appelé Dendrogramme (figure 4.26).

La similarité est une mesure de la distance entre les groupes relativement à la plus

	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	H_{ex}	H_{in}	Ra_{eq}	$\text{I}_{\gamma r}$	\dot{D}	D_E	ELCR
^{226}Ra	1									
^{232}Th	0.14	1								
^{40}K	- 0.25	0.12	1							
H_{ex}	0.98	0.24	-0.05	1						
H_{in}	0.99	0.19	-0.15	0.99	1					
Ra_{eq}	0.98	0.24	-0.05	1.00	0.99	1				
$\text{I}_{\gamma r}$	0.96	0.25	0.01	1.00	0.99	1.00	1			
\dot{D}	0.97	0.24	-0.01	1.00	0.99	1.00	1.00	1		
D_E	0.97	0.24	-0.01	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1	
ELCR	0.97	0.24	-0.01	1.00	0.99	1.00	1.00	1.00	1.00	1

Toutes les valeurs en gras mettent en évidence la forte corrélation entre les paramètres.

TABLE 4.10 – Matrice des coefficients de corrélation entre les radionucléides primordiaux et les paramètres radiologiques pour les échantillons de sol étudiés.

grande distance entre deux variables individuelles. Une similarité de cent pour cent signifie que les classes étaient à une distance nulle dans leurs mesures d'échantillons, alors qu'une similitude de 0% signifie que les zones de classes étaient aussi disparates que la région la moins similaire [61].

Le niveau de similarité entre la radioactivité et les paramètres de risque radiologique calculés a été déterminé à partir de l'analyse en groupe à l'aide du logiciel SPSS (version 17). Le segment-I est constitué de ^{226}Ra , ^{232}Th , H_{ex} , H_{in} , ELCR, I_{γ} et D_E . Ce résultat indique que les principaux paramètres de risque radiologique pour la santé existent en raison des concentrations de ^{226}Ra et de ^{232}Th . Le segment- II comprend Ra_{eq} . Le segment- III se compose de ^{40}K , ce qui montre que la concentration de potassium ne contribue pas beaucoup à la radioactivité naturelle.

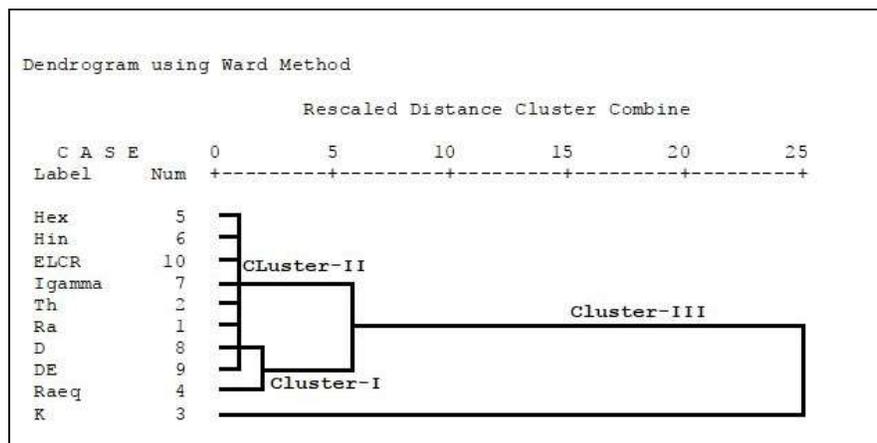


FIGURE 4.26 – Dendrogramme montre la similarité entre la radioactivité mesurée et les paramètres de risque radiologique calculés dans les échantillons de sol.

Conclusion

Le niveau de la radioactivité naturelle dans le sol et les fertilisants recueillis de différentes régions de deux fermes une pilote l'autre privée a été évalué à l'aide de la spectrométrie gamma à haute résolution avec la collaboration du laboratoire des basses activités à Grenoble LBA/ LPSC. Dans la présente étude, les mesures ont montré que les radionucléides primordiaux, à savoir les chaînes de désintégration ^{238}U et ^{232}Th et ^{40}K sont présents dans tous les échantillons étudiés. Le radionucléide ^{137}Cs (radioélément artificiel) a également été détecté avec des concentrations mesurables dans tous les échantillons de sol des deux fermes, avec une valeur moyenne de $2,66 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Cette concentration diminue en fonction de la profondeur. Par contre, dans le cas des fertilisants, sa concentration a été trouvée inférieure à la limite de détection. Sa présence dans le sol est sûrement due aux accidents et aux tests nucléaires réalisés dans le passé.

Les concentrations mesurées de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K dans tous les échantillons de sol varient entre $23.72 \longleftrightarrow 67.72$, $26.45 \longleftrightarrow 28.70$ et $178.5 \longleftrightarrow 290.1 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectivement. Ces concentrations d'activité de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K se situent dans la plage de valeurs mondiales de $17 \longleftrightarrow 60$, $11 \longleftrightarrow 64$, $140 \longleftrightarrow 850 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectivement, rapportée par l'UNSCEAR (2000). Cette étude a montré que la structure géologique et une forte utilisation d'engrais peut entraîner des concentrations élevées de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K dans certains échantillons de sol étudié.

Les concentrations d'activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , dans les engrais étudiés ont été comparées avec des études similaires dans d'autres pays. Nous pouvons conclure que l'utilisation d'engrais dans une large mesure peut affecter la concentration des radionucléides, en particulier les engrais contenant du phosphore et du potassium sont la cause de la présence d'une activité élevée de ^{226}Ra et ^{40}K dans le sol. L'application de ces engrais a pour effet d'accumuler de la radioactivité dans les sols qui peuvent être nocifs pour la santé des agriculteurs, des travailleurs et des consommateurs des produits.

Dans le chapitre quatre, nous avons calculé la dosimétrie des rayonnements γ pour les échantillons de sol étudiés. En se basant sur les modèles existants dans la littérature, on a

pu calculer les grandeurs de la dosimétrie en l'occurrence le radium équivalent, les indices de risque interne et externe, Indice gamma, la dose absorbée et la dose efficace annuelle.

Les indices gamma et les indices de risque interne et externe, sont inférieurs à l'unité, ce qui signifie que les échantillons de sol n'excèdent pas la limite annuelle de 1 mSv . La dose absorbée se situe entre $36.23 \pm 0,4$ et $58.78 \pm 2,2 \text{ nGy.h}^{-1}$. L'équivalent de dose efficace annuel extérieur (D_E) varie de $44.44 \pm 0,4$ à $69.88 \pm 2,7 \mu\text{Sv.an}^{-1}$. Les variations de radium-équivalent et la dose absorbée d'un échantillon à une autre montre la variation de la radioactivité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K . Malgré cette dispersion des valeurs d'un échantillon à un autre, le radium-équivalent reste en dessous de la valeur recommandée de 370 Bq.kg^{-1} . Concernant la dose absorbée dans l'air, les valeurs obtenues sont comparables à celles obtenues dans d'autres pays. D'ailleurs plusieurs travaux dans le monde ont été publiés à ce sujet.

En revanche, la valeur moyenne de facteur de risque excessif de cancer à vie pour les fertilisants étudiée est de $9,45 \times 10^{-4}$. Deux (2) des points d'échantillonnage (FM et TSP) ont des valeurs ELCR supérieures à la valeur moyenne mondiale. Ces résultats montrent que le risque de cancer à vie lié à l'exposition à ces fertilisants pendant une durée maximale de 70 ans est élevé dans ces deux endroits. Par conséquent, l'utilisation subséquente de ce produit pour l'agriculture ou pour des études d'assainissement du sol et d'autres fins devrait être découragée.

Dans la dernière partie de la thèse, nous avons analysé nos résultats pour décrire les caractéristiques statistiques des activités de radionucléides, ainsi nous avons représenté les histogrammes de la distribution de probabilité des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons de sol. La distribution de fréquence était normale en forme de cloche.

Les résultats de cette étude actuelle peuvent être utilisés comme point de référence pour l'observation de tout changement possible dans le futur.

Bibliographie

- [1] Ch. Lakehal, M. Ramdhane, and A. Boucenna. Natural radionuclide concentrations in two phosphate ores of east algeria. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 101 :377–379, (2010).
- [2] W. Boukhenfouf. *Concentration de l'uranium : Application aux fertilisants agricoles.* PhD thesis, Université de Setif, (2011).
- [3] S. Dziri. *Etudces expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie γ : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales.* PhD thesis, Université de Strasbourg, (2013).
- [4] A. Papadopoulos, G. Christofides, A. Koroneos, S. Stoulos, and C. Papastefanou. Radioactive secular equilibrium in ^{238}u and ^{232}th series in granitoids from greece. *Applied Radiation and Isotopes.*, 75 :95–104, (2013).
- [5] P. Bérard, B. Le Guen, M.L. Perrin, E. Gaillard-Lecanu, V. Chambrette, and J. Brenot. Guide méthodologique de gestion des sites potentiellement pollués par des substances radioactives. Technical report, irsn, (2011).
- [6] N. Horemans, M. Van Hees, E. Saenen, A. Van Hoeck, V. Smolders, R. Blust, and H. Vandenhove. Influence of nutrient medium composition on uranium toxicity and choice of the most sensitive growth related endpoint in lemna minor. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 151 :427–437, (2016).
- [7] S. Hidouri. Possible domestication of uranium oxides using biological assistance reduction. *Saudi Journal of Biological Sciences.*, 24 :1–10, (2015).
- [8] Centre d'expertise en analyse environnementale Du Québec. Toxicité chimique de l'uranium sur les organismes terrestres. *Revue de littérature, Québec, Ministère du Développement durable, de l'environnement, de la Faune et des Parcs*, pages 1–131, (2014).

- [9] N. Theodorakopoulos. *Analyse de la biodiversité bactérienne d'un sol contaminé de la zone d'exclusion de Tchernobyl et caractérisation de l'interaction engagée par une souche de Microbacterium avec l'uranium*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille, (2013).
- [10] S. C. Sheppard, M. I. Sheppard, M.O. Gallerandb, and B. Sanipelli. Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 79 :55–83, (2005).
- [11] C. Murray. *Etudies expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie γ : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales*. PhD thesis, Université de Strasbourg, (2013).
- [12] G. Ciotoli, M. Voltaggio, P. Tuccimei, M. Soligo, A. Pasculli, S.E. Beaubien, and S. Bigi. Geographically weighted regression and geostatistical techniques to construct the geogenic radon potential map of the lazio region : A methodological proposal for the european atlas of natural radiation. *Journal of Environmental Radioactivity.*, pages 1–21, (2016).
- [13] M. Zalewski, M. Karpińska, Z. Mnich, and J. Kapała. Radon concentrations in buildings in the north-eastern region of poland. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 40 :147–154, (1998).
- [14] V. Amabili – Rivet. *Essai présenté au centre universitaire de formation en environnement en vue de l'obtention du grade de maître en environnement*. PhD thesis, Université de Sherbrook, (2013).
- [15] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. rapport À l'assemblée générale. Technical report, (1993).
- [16] H. Lindner and E. Schneider. Energy review of cost estimates for uranium recovery from seawater. *Energy Economics.*, 49 :9–22, (2015).
- [17] G. Untereiner. *Etude de l'impact de bactéries environnementales sur la spéciation de l'uranium en vue de processus de bioremediation, thèse de doctorat*. PhD thesis, l'Institut des Sciences et Industries du Vivant et de l'Environnement (Agro Paris Tech), (2008).
- [18] X. Li, J. Wu, J. Liao, D. Zhang, J. Yang, Y. Feng, J. Zeng, W. Wen, Y. Yang, J. Tang, and N. Liu. Adsorption and desorption of uranium (vi) in aerated zone soil. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 115 :143–150, (2013).

- [19] A.J. Bednar, V.F. Medina, D.S. Ulmer – Scholle, B.A. Frey, B.L. Johnson, W.N. Brostoff, and S.L. Larson. Effects of organic matter on the distribution of uranium in soil and plant matrices. *Chemosphere.*, 70 :237–247, (2007).
- [20] S. Garboś and D. ŚwiĄcicka. Application of bimodal distribution to the detection of changes in uranium concentration in drinking water collected by random daytime sampling method from a large water supply zone. *Chemosphere.*, 138 :377–382, (2015).
- [21] N. Martin – Burtart. *Développement d'algorithmes d'analyse spectrale en spectrométrie gamma embarquée*. PhD thesis, Université de Strasbourg, (2012).
- [22] N. Yamaguchi, A. Kawasaki, and I. Iiyama. Distribution of uranium in soil components of agricultural fields after long-term application of phosphate fertilizers. *Chemosphere.*, 407 :1383–1390, (2009).
- [23] A.M. Arogunjo, V. Höllriegl, A. Giussani, K. Leopold, U. Gerstmann, I. Veronese, and U. Oeh. Uranium and thorium in soils, mineral sands, water and food samples in a tin mining area in nigeria with elevated activity. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 100 :232–240, (2009).
- [24] N. Vanhoudt, H. Vandenhove, N. Horemans, J. Wannijn, M. V. Hees, J. Vangronsveld, and A. Cuypers. The combined effect of uranium and gamma radiation on biological responses and oxidative stress induced in arabidopsis thaliana. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 101 :923–930, (2010).
- [25] Annexes du guide. Gestion des sites potentiellement pollués par des substances radioactives. *Institut de radioprotection et de sureté nucléaire, Autorité de sureté nucléaire*, (2011).
- [26] M. Lung and O. Gremm. Perspectives of the thorium fuel cycle. *Nuclear Engineering and Design.*, 180 :133–14, (1998).
- [27] G.R. Choppin and P.J. Wong. The chemistry of actinide behavior in marine systems. *Aquatic Geochemistry.*, 4 :7–101, (1998).
- [28] K.B. Krauskopf. Thorium and rare – earth metals as analogs for actinide elements. *Chemical Geologie.*, 4 :7–101, (1998).
- [29] H. Michel, J. Gasparro, G. Barci-Funel, J. Dalmasso, G. Ardisson, and G. Sharovarov. Radioanalytical determination of actinides and fission products in belarus soils. *Talanta.*, 48 :821–825, (1999).

- [30] Fiche radionucléide. Thorium 232 et environnement, institut de radioprotection et de sureté nucléaire. *Institut de radioprotection et de sureté nucléaire, Autorité de sureté nucléaire*, (2002).
- [31] Centre d'expertise en Analyse environnementale Du Québec. Toxicité du thorium vis a vis des organismes terrestres et aquatiques. *Revue de littérature, Québec, Ministère du développement durable, de l'environnement, de la Faune et des Parcs*, pages 1–33, (2014).
- [32] T. P.Mernagh and Y. Mieztis. A review of the geochemical processes controlling the distribution of thorium in the earth's crust and australia's thorium resources. *G. A. r.*, 77 :05–48, (2008).
- [33] P. Guo, T. Duan, X.Song, J. Xu, and H. Chen. Effects of soil ph and organic matter on distribution of thorium fractions in soil contaminated by rare-earth industries. *Talanta.*, 77 :624–627, (2008).
- [34] O. Frindic and S. Vollmer. Particle-size dependent distribution of thorium and uranium isotopes in soil. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 241 :291–296, (1999).
- [35] C.Y. Tai, S.J. Jiang, and A.C. Sahayam. Determination of as, hg and pb in herbs using slurry sampling flow injection chemical vapor generation inductively coupled plasma mass spectrometry. *Food Chemistry.*, 192 :274–279, (2016).
- [36] M.S. Fantle, T.D. Bullen, and Aregbe. Essentials of iron, chromium, and calcium isotope analysis of natural materials by thermal ionization mass spectrometry. *Chemical Geology.*, 258 :50–64, (2009).
- [37] M. Kraiem, S. Richter, H. Kühn, and Y. Aregbe. Development of an improved method to perform single particle analysis by TIMS for nuclear safeguards. *Chemical Geology.*, 688 :1–7, (2011).
- [38] T. Vigineix. *Exploitation des spectres gamma par méthode non paramétrique et indépendante d'a priori formules par l'opérateur*. PhD thesis, Université de de Caen, (2011).
- [39] F. Jallu. *Exploitation des spectres gamma par méthode non paramétrique et indépendante d'a priori formules par l'opérateur*. PhD thesis, Université de Blaise Pascal, (1999).
- [40] G. Baudry. *Correction des effets de matrice par spectrométrie des rayonnements gamma de capture :application à la mesure par Interrogation Neutronique Active(I.N.A.)*. PhD thesis, Université de Caen, (2003).

- [41] S. Andola, R. Niranjana, T.C. Kaushik, R.K. Rout, A. Kumar, D.B. Paranjape, P. Kumar, B.S. Tomar, K.L. Ramakumar, and S.C. Gupta. Use of delayed gamma rays for active non – destructive assay of ^{235}U irradiated by pulsed neutron source (plasma focus). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*, 753 :138–142, (2014).
- [42] C. Dubi, A. Ocherashvili, H. Ettegui, and B. Pedersen. Variance estimation in neutron coincidence counting using the bootstrap method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A.*, 794 :160–163, (2015).
- [43] M. Bickel, L. Holmes, C. Janzon, G. Koulouris, R. Pilvioè, B. Slowikowski, and C. Hill. Radiochemistry : inconvenient but indispensable, applied radiation and isotopes. *Applied Radiation and Isotopes.*, 53 :5–11, (2000).
- [44] G.F. Knoll. *Radiation detection and measurement*. Wiley Son, Ltd. (1999).
- [45] E. Gasser. *Spectrométrie γ au laboratoire et in situ : Développements et applications environnementales*. PhD thesis, Université de Strasbourg, (2014).
- [46] G. Gilmore. *Practical gamma-ray spectrometry*. Wiley Son, Ltd. (2008).
- [47] M. Xhixha. *New gamma-ray spectrometry methods for estimating K, U, Th concentrations in rocks of the Sardinia Batholith*. PhD thesis, Université de Sassari, (2013).
- [48] F. Panza. *Développement de la spectrométrie gamma in situ pour la cartographie de site*. PhD thesis, Université de Strasbourg, (2012).
- [49] T. Santawamaitre. *An evaluation of the level of naturally occurring radioactive materials in soil samples along the chao phraya river basin*. PhD thesis, Université de surrey, (2012).
- [50] B. Pirard. *Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires*. PhD thesis, Université de Toulouse III-Paul Sabatier, (2006).
- [51] E.G. Jackson, E.L. Hull, C.J. Lister, and R.H. Pehl. Ameliorating neutron damage in orthogonal-strip planar germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*, 774 :34–41, (2015).
- [52] E.L. Hull, E.G. Jackson, C.J. Lister, and R.H. Pehl. Charge-trap correction and radiation damage in orthogonal-strip planar germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*, 762 :125–129, (2014).

- [53] N. Larson, S.N. Liddick, M. Bennett, A. Bowe, et al. High efficiency beta-decay spectroscopy using a planar germanium double-sided strip detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*, 727 :59–64, (2013).
- [54] A.S. Adekola, J. Colaresi, J. Douwen, W.F. Mueller, and K.M. Yocum. Performance of a small anode germanium well detector. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment.*, 784 :124–130, (2015).
- [55] R. Bouchama. *Détermination de la radioactivité gamma d'un sol contaminé par une explosion nucléaire*. PhD thesis, Université de SETIF–Ferhat Abbas, (2009).
- [56] O. Baykara and M. DoÄru. Measurements of radon and uranium concentration in water and soil samples from east anatolian active fault systems (turkey). *Radiation Measurements.*, 41 :362–367, (2005).
- [57] Preparation of gamma– ray spectrometry reference materials rgu–1, rgth–1 and rgk–1 report–iaea/rl/148,vienna. Technical report, (1987).
- [58] V. Kannan, M.P. Rajan, M.A.R. Iyengar, and R. Ramesh. Natural radionuclide content in building materials and gamma dose rate in dwellings in cuba. *Applied Radiation and Isotopes.*, 57 :109–119, (2002).
- [59] J. Beretka and P.J. Matthew. Natural radioactivity of australian building materials, industrial wastes and by-products. *Health Physics.*, 48 :87–95, (1985).
- [60] O.B. Flores, A.M. Estrada, R.R. Suárez, J.T. Zerquera, and A.H. Pérez. Natural radionuclide content in building materials and gamma dose rate in dwellings in cuba. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 99 :1834–1837, (2008).
- [61] Y. Raghu, R. Ravisankar, A. Chandrasekaran, P. Vijayagopal, and B. Venkatraman. Radioactivity and heavy metal composition of nigerian phosphate rocks : possible environmental implications. *Journal of Taibah University for Science.*, 11 :523–533, (2017).
- [62] J.A.S. Júnior, R.S. Amaral, C.M. Silva, and R.S.C. Menezes. Radium equivalent and annual effective dose from geological sample s from pedra - pernam buco brazil. *Radiation Measurements.*, 45 :861–864, (2010).
- [63] United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. rapport À l'assemblée générale. Technical report, (2000).

- [64] J.M. Stajic, B. Milenkovic, M. Pucarevic, N. Stojic, I. Vasiljevic, and D. Nikezic. Exposure of school children to polycyclic aromatic hydrocarbons, heavy metals and radionuclides in the urban soil of kragujevac city, central serbia. *Chemosphere.*, 146 :68–74, (2016).
- [65] A.M. El-Arabi. ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K concentrations in igneous rocks from eastern desert, egypt and its radiological implications. *Radiation Measurements.*, 42 :94–100, (2007).
- [66] A. Bramki, M. Ramdhane, and F. Benrachi. Natural radioelement concentrations in fertilizers and the soil of the mila region of algeria. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.*, 11 :49–55, (2018).
- [67] N. K. Ahmed, A. Gabar, and M. El-Arabi. Natural radioactivity in farm soil and phosphate fertilizer and its environmental implications in qena governorate, upper egypt. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 84 :51–64, (2005).
- [68] R. Ravisankar, A. Chandrasekaran, P. Vijayagopal, B. Venkatraman, G. Senthilkumar, and P. Eswaran. Natural radioactivity in soil samples of yelagiri hills, tamil nadu, india and the associated radiation hazards. *Radiation Physics and Chemistry.*, 81 :1789–1795, (2012).
- [69] H. Saleh and M. Abu Shayeb. Natural radioactivity distribution of southern part of jordan (ma'an) soil. *Annals of Nuclear Energy.*, 2014 :184–189, (2014).
- [70] E.O. Agbalagba, G.O. Avwiri, and Y.E. Chad – Umoh. γ – spectroscopy measurement of natural radioactivity and assessment of radiation hazard indices in soil samples from oil fields environment of delta state, nigeria. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 109 :64–70, (2012).
- [71] L.S.Quindós, P.L. Fernández, J .Soto, C .Ródenas, and J.Gómez. Natural radioactivity in spanish soils. *Health Phys.*, 7 :29–200, (2014).
- [72] M. Tari, S. A. M. Zarandi, K. Mohammadi, and M. R. Zare. The measurement of gamma-emitting radionuclides in beach sand cores of coastal regions of ramsar, iran using hpge detectors. *Marine Pollution Bulletin.*, 74 :425–434, (2013).
- [73] W. Alharbi. Measurements of natural radionuclides in soil samples from tourbh governorate, saudi arabia. *Life Science Journal.*, 9 :3573–3577, (2012).
- [74] I.R. Ajayi. Residence half-times of ^{137}Cs in undisturbed surface soil in nigeria. *Modern Applied Science.*, 4 :31–40, (2010).

- [75] A. Navas, J. Machin, and J. Soto. Mobility of natural radionuclides and selected major and trace elements along a soil toposequence in the central spanish pyrenees. *Soil Science.*, 170 :743–757, (2005).
- [76] C. Martinez, G.R. Hancock, and J.D. Kalma. Relationships between ^{137}cs and soil organic carbon (soc) in cultivated and never-cultivated soils, an australian example. *Geoderma.*, 158 :137–147, (2010).
- [77] L. Gaspar and A. Navas. Vertical and lateral distributions of ^{137}cs in cultivated and uncultivated soils on mediterranean hillslopes. *Geoderma.*, 207-208 :131–143, (2013).
- [78] H. Mesrar adn A. Sadiki, A. Faleh, L. Quijano, L. Gaspar, and A. Navas. Vertical and lateral distribution of fallout ^{137}cs and soil properties along representative toposequences of central rif, morocco. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 169-170 :27–39, (2017).
- [79] E. Lubis. Distribution of ^{137}cs in the surface soil of serpong nuclear site. *Atom Indonesia.*, 37 :57–61, (2011).
- [80] S Syarbaini and G. Suhariyono. The investigation of ^{137}cs contamination in soils of aceh after the tsunami. *Atom Indonesia.*, 42 :47–51, (2016).
- [81] A. S. Abu Bakar, Z. Hamzah, and A. Saat. Distribution of ^{137}cs in surface soil of fraser’s hill, pahang, malaysia. In *AIP Conference Proceedings 1799.*, (2017).
- [82] Y. Zhao, D. Yan, Q. Zhang, J. Zhan, and H. Hu. Spatial distributions of ^{137}cs in surface soil in jing – jin – ji region, north china. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 113 :1–7, (2012).
- [83] H. Tsukada, H. Hasegawa, S. Hisamatsu, and S. Yamasaki. Transfer of ^{137}cs and stable cs from paddy soil to polished rice in aomori, japan. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 59 :351–363, (2002).
- [84] A. Jabbar, W. Arshed, A. S. Bhatti, S. S. Ahmad, P. Akhter, S. U. Rehman, and M. I. Anjum. Measurement of soil radioactivity levels and radiation hazard assessment in southern rechna interfluvial region, pakistan. *Environmental Monitoring and Assessment.*, 169 :429–438, (2010).
- [85] N. Damla, U. Cevik, A.I. Kobya, A. Celik, and N. Celik. Assessment of natural radiation exposure levels and mass attenuation coefficients of lime and gypsum samples used in turkey. *Environmental Monitoring and Assessment.*, 170 :457–466, (2010).

- [86] I. Al Hamarneh, A. Wreikat, and K. Toukan. Radioactivity concentrations of ^{40}K , ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am , ^{238}Pu and $^{239+240}\text{Pu}$ radionuclides in Jordanian soil samples. *Journal of Environmental Radioactivity*, 67 :53–67, (2003).
- [87] L. Mabit and C. Bernard. Assessment of spatial distribution of fallout radionuclides through geostatistics concept. *Journal of Environmental Radioactivity*, 97 :206–219, (2007).
- [88] A. Hakam, M. Khoulood, and Y. Zeroual. Manufacturing of superphosphates ssp tsp from down stream phosphates. *Procedia Engineering*, 46 :154–158, (2012).
- [89] C.H.R. Saueia and B.P. Mazzilli. Distribution of natural radionuclides in the production and use of phosphate fertilizers in Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 89 :229–239, (2006).
- [90] P.O. Ogunleye, M.C. Mayaki, and I.Y. Amapu. Radioactivity and heavy metal composition of Nigerian phosphate rocks : possible environmental implications. *Journal of Environmental Radioactivity*, 62 :39–48, (2002).
- [91] A.G. Abbady, M.A. Uosif, and A. El-Taher. Natural radioactivity and dose assessment for phosphate rocks from Wadi el-Mashash and el-Mahamid mines, Egypt. *Journal of Taibah University for Science*, 84 :65–78, (2005).
- [92] A. El-Taher and S.S. Althoyaib. Natural radioactivity levels and heavy metals in chemical and organic fertilizers used in Kingdom of Saudi Arabia. *Applied Radiation and Isotopes*, 70 :290–295, (2012).
- [93] K. Khan, H.M. Khan, M. Tufail, A.J.A.H. Khatibeh, and N.Ahmad. Radiometric analysis of Hazara phosphate rock and fertilizers in Pakistan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 38 :77–84, (1998).
- [94] N.M. Mourad, T. Sharshar, T. Elnimr, and M.A. Mousa. Radiometric analysis of Hazara phosphate rock and fertilizers in Pakistan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 67 :1259–1268, (2009).
- [95] M.N. Alam, M.I. Chowdhury, M. Kamal, S. Ghose, H. Banu, and D. Chakraborty. Radioactivity in chemical fertilizers used in Bangladesh. *Applied Radiation and Isotopes*, 48 :1165–1168, (1997).
- [96] R.J. Guimond and J.M.Hardin. Radioactivity released from phosphate-containing fertilizers and from gypsum. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation Part C Radiation Physics and Chemistry*, 34 :309–315, (1989).

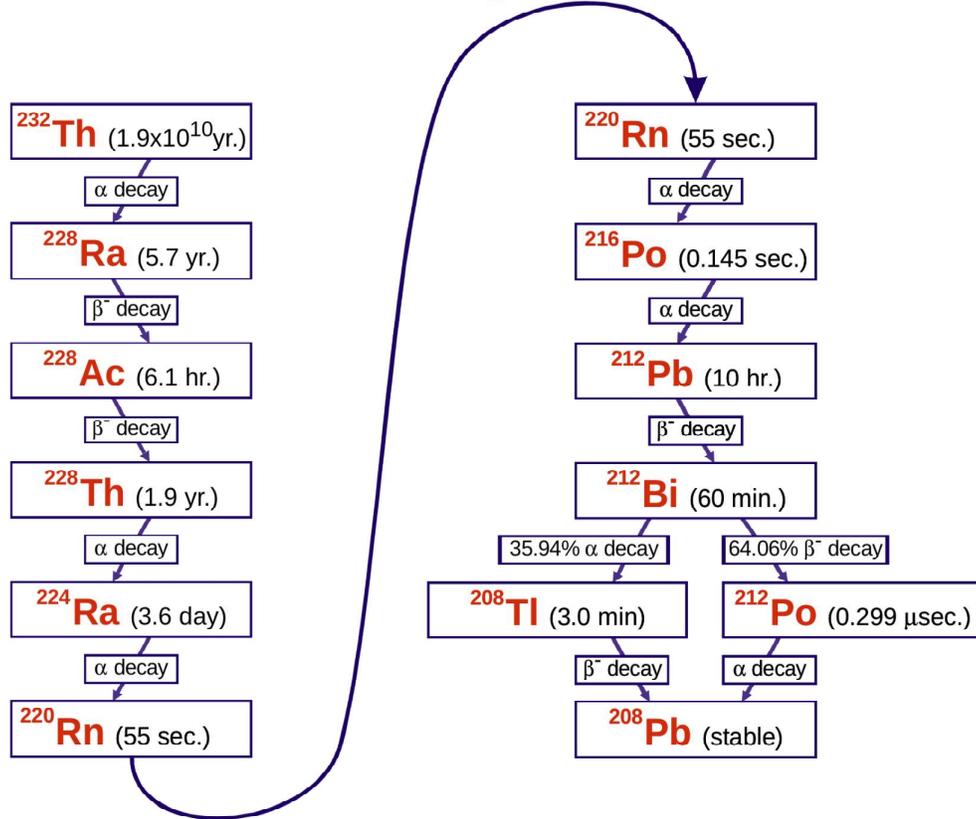
- [97] T. Zhou, Y. Wang, S. Huang, and Y. Zhao. Synthesis composite hydrogels from inorganic-organic hybrids based on leftover rice for environment-friendly controlled-release urea fertilizers. *Science of The Total Environment.*, 615 :422–430, (2018).
- [98] P. Chauhan, R.P. Chauhan, and M. Gupta. Estimation of naturally occurring radionuclides in fertilizers using gamma spectrometry and elemental analysis by xrf and xrd techniques. *Microchemical Journal.*, 106 :73–78, (2013).
- [99] M.A.M. Uosif, A.M.A. Mostafa, R. Elsaman, and E. Moustafa. Natural radioactivity levels and radiological hazards indices of chemical fertilizers commonly used in upper egypt. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.*, 7 :430–437, (2014).
- [100] B. Azeem, K. KuShaari, and Z. Man. Effect of coating thickness on release characteristics of controlled release urea produced in fluidized bed using waterborne starch biopolymer as coating material. *Procedia Engineering.*, 148 :282–2898, (2016).
- [101] N.N. Jibiri and K.P. Fasae. Natural radioactivity levels and radiological hazards indices of chemical fertilizers commonly used in upper egypt. *Radiation Protection Dosimetry.*, 2012 :132–137, (2012).
- [102] N.M. Hassan, N.A. Mansour, M. Fayez-Hassan, and E. Sedqy. Assessment of natural radioactivity in fertilizers and phosphate ores in egypt. *Journal of Taibah University for Science.*, 10 :296–306, (2016).
- [103] A. El-Taher and M.A.K. Abdelhalim. Elemental analysis of phosphate fertilizer consumed in saudi arabia. *Life Science Journal.*, 10 :701–708, (2013).
- [104] Exposure to radiation from natural radioactivity in building materials. Report by NEA group of Experts of the nuclear energy agency. Technical report, (1979).
- [105] V. Ramasamy, M. Sundarrajan, K. Paramasivam, V. Meenakshisundaram, and G. Suresh. Assessment of spatial distribution and radiological hazardous nature of radionuclides in high background radiation area, kerala, india. *Applied Radiation and Isotopes.*, 73 :21–31, (2013).
- [106] M.R. Gbadamosi, O.O. Banjoko, K.A. Abudu, O.O. Ogunbanjo, and A.L. Ogunneye. Radiometric evaluation of excessive lifetime cancer probability due to naturally occurring radionuclides in wastes dumpsites soils in agbara, southwest, nigeria. *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences.*, 24 :315–324, (2017).
- [107] A. Durusoy and M. Yildirim. Determination of radioactivity concentrations in soil samples and dose assessment for rize province, turkey. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.*, 10 :348–352, (2017).

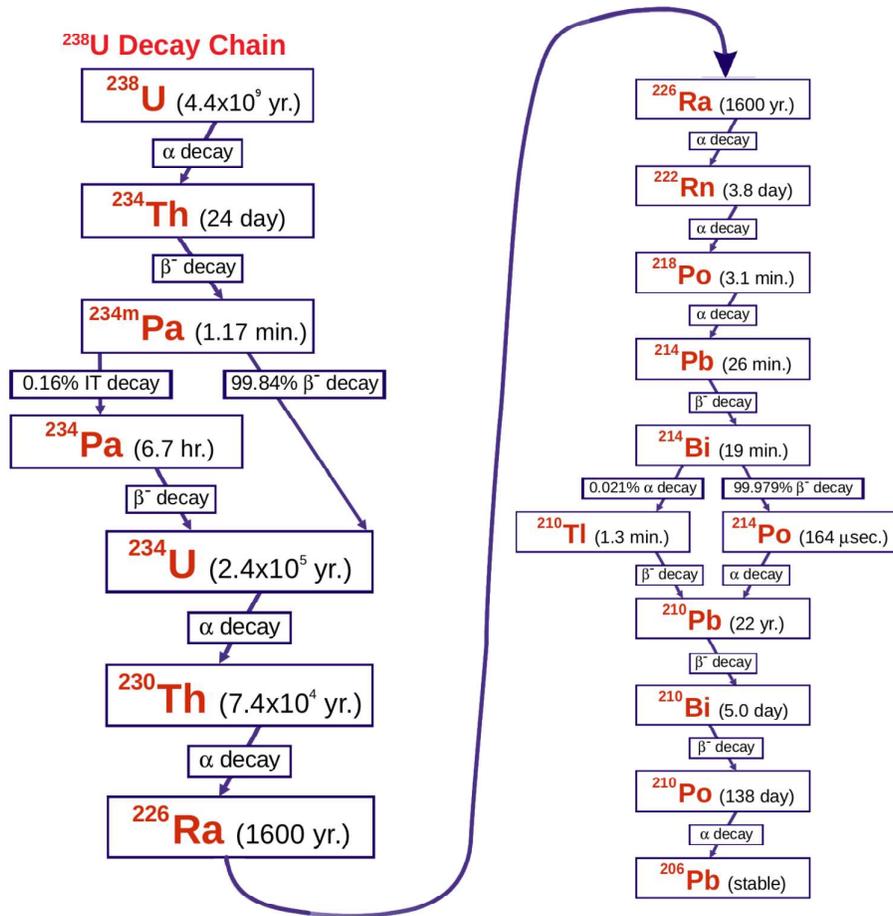
- [108] Amanjeet, A. Kumar, S. Kumar, J. Singh, P. Singh, and B.S. Bajwa. Assessment of natural radioactivity levels and associated dose rates in soil samples from historical city panipat, india. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.*, 10 :283–288, (2017).
- [109] K. Al Mugren. Assessment of natural radioactivity levels and radiation dose rate in some soil samples from historical area, al-rakkah, saudi arabia. *Natural Science.*, 7 :238–247, (2015).
- [110] H. Hrichi, S. Baccouche, and J.E. Belgaied. Evaluation of radiological impacts of tenorm in the tunisian petroleum industry. *Natural Science.*, 115 :107–113, (2015).
- [111] G. Blanchet, Z. Libohova, S. Joost, N. Rossier, A. Schneider, B. Jeangros, and S. Sinaj. Spatial variability of potassium in agricultural soils of the canton of fribourg, switzerland. *Geoderma.*, 290 :107–121, (2017).
- [112] A.A. Qureshi, S. Tariq, K.U. Din, S. Manzoor, C. Calligaris, and A. Waheed. Evaluation of excessive lifetime cancer risk due to natural radioactivity in the rivers sediments of northern pakistan. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.*, 7 :438–447, (2014).
- [113] H.U. Emelue, N.N. Jibiri, and B.C. Eke. Excess lifetime cancer risk due to gamma radiation in and around warri refining and petrochemical company in niger delta. *Nigeria British Journal of Medicine Medical Research.*, 13 :2590–2598, (2014).
- [114] H. Taskin, M. Karavus, P. Ay, A. Topuzoglu, S. Hindiroglu, and G. Karahan. Radionuclide concentrations in soil and lifetime cancer risk due to the gamma radioactivity in kirklareli turkey. *Journal of Environmental Radioactivity.*, 100 :49–53, (2009).
- [115] R. Ravisankar, K. Vanasundari, M. Suganya, Y. Raghu, A. Rajalakshmi, A. Chandrasekaran, S. Sivakumar, J. Chandramohan, P.Vijayagopal, and B. Venkatraman. Multivariate statistical analysis of radiological data of building materials used in tiruvannamalai, tamilnadu, india. *Applied Radiation and Isotopes.*, 85 :114–127, (2014).
- [116] H. Kayakökü and M. Dođru. Radioactivity analysis of soil samples taken from the western and northern shores of lake van, turkey. *Applied Radiation and Isotopes.*, 128 :231–236, (2017).
- [117] A.D. Bajoga, N. Alazemi, H. Shams, P.H. Regan, and D.A. Bradley. Evaluation of naturally occurring radioactivity across the state of kuwait using high-resolution gamma-ray spectrometry. *Radiation Physics and Chemistry.*, 137 :203–209, (2017).

Annexes

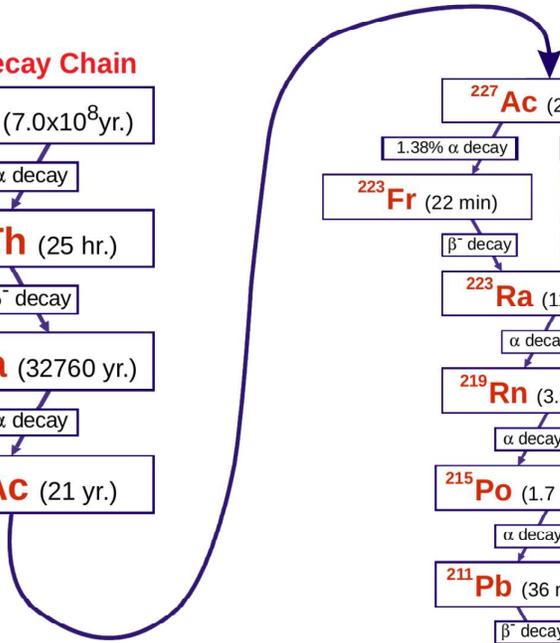
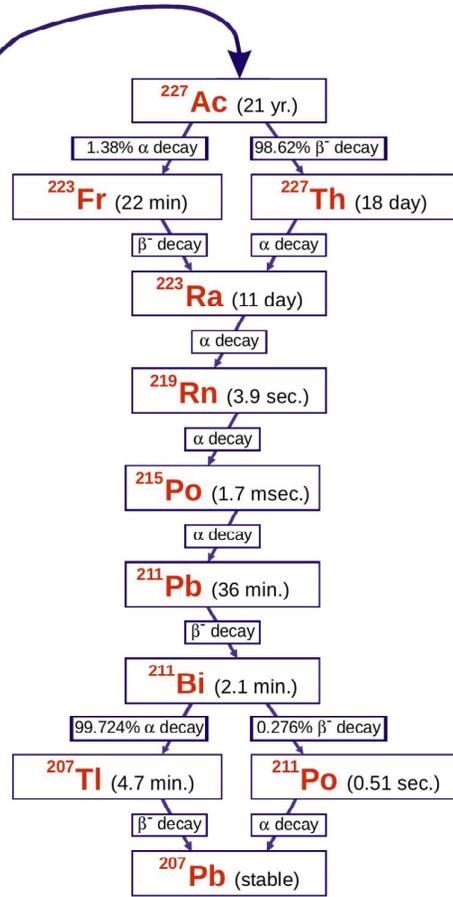
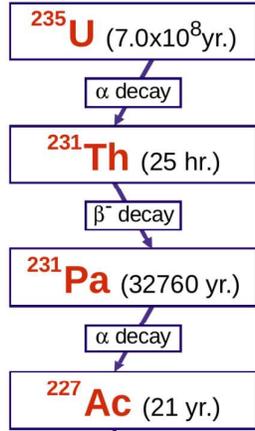
La filiation des radionucléides naturelles

Th Ore Decay Chain





²³⁵U Decay Chain



Le calcul de la moyenne et les erreurs

La Moyenne

La moyenne est donnée par :

$$M_w = \frac{\sum_i w_i M_i}{\sum_i w_i}$$

où M_i est les données du i -ème échantillon

Les erreurs

x est défini comme une fonction de u et v , alors que a et b sont des constantes.

1^{er} Cas : Addition et soustraction

$$x = au + bv$$

Ensuite, l'incertitude de x est donnée par

$$\sigma_x = \sqrt{a^2 \sigma_u^2 + b^2 \sigma_v^2}$$

2^{ème} Cas : Multiplication et division

$$x = auv$$

ou

$$x = a \frac{u}{v}$$

Ensuite, l'erreur fonctionnelle en u est obtenue par

$$\frac{\sigma_x}{x} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_u}{u}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_v}{v}\right)^2}$$

3^{ème} Cas : Logarithmes

$$x = a \ln bu$$

Ensuite, la dérivée par rapport à u est donnée par

$$\sigma_x = a b \frac{\sigma_u}{u}$$

4^{ème} Cas : Exponentielles

$$x = a e^{bu}$$

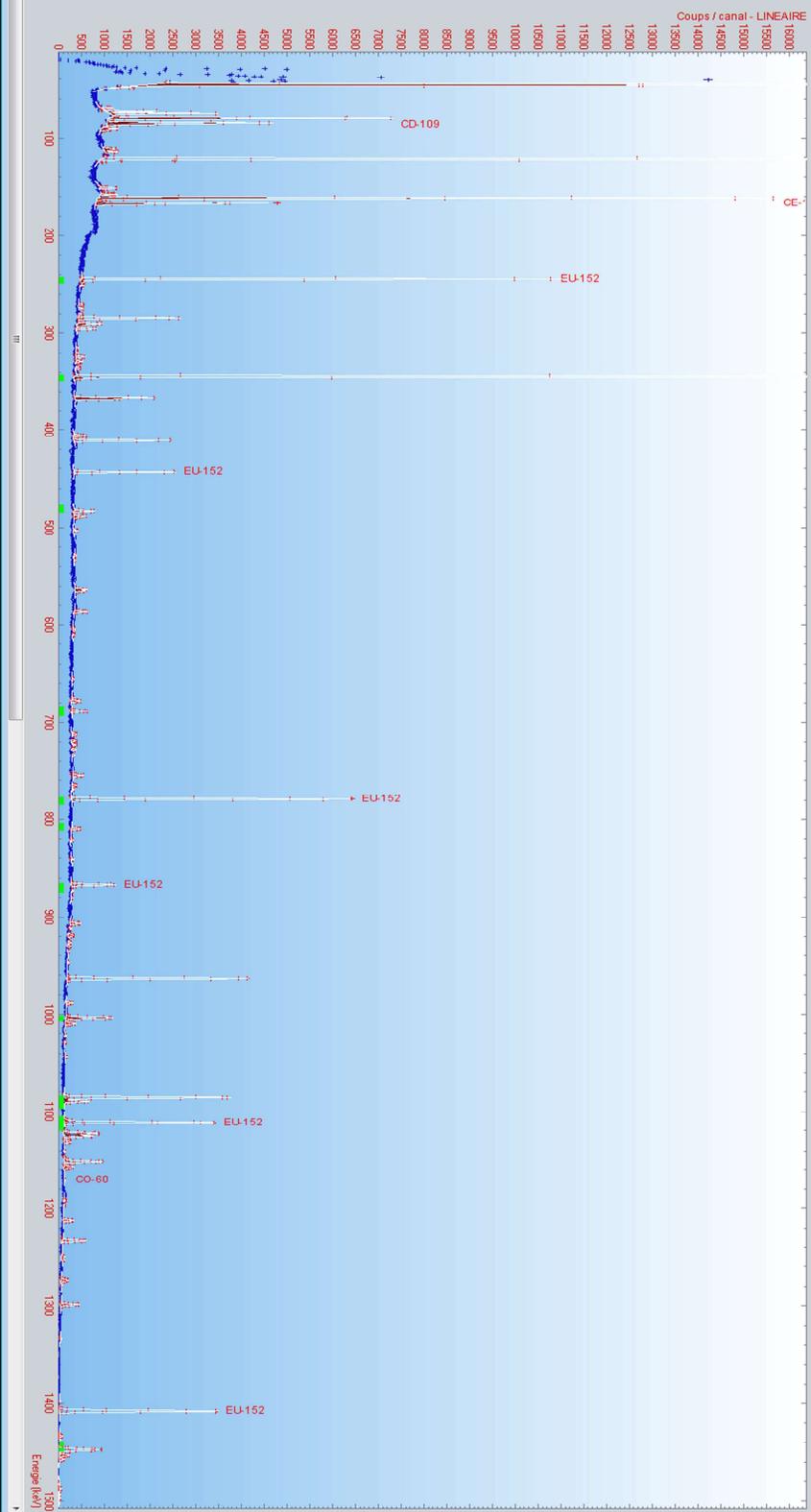
Ensuite, l'incertitude relative devient

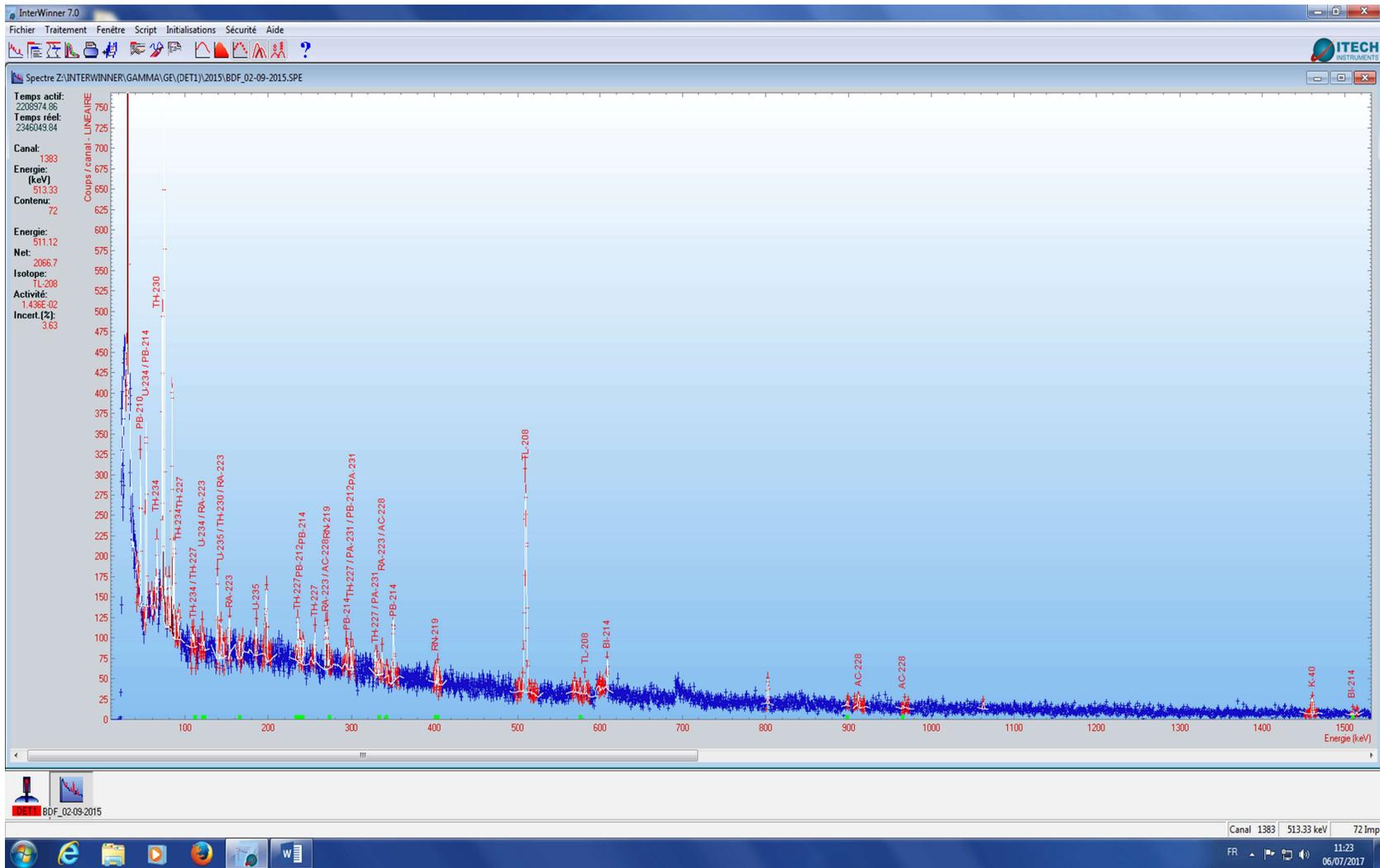
$$\frac{\sigma_x}{x} = b \sigma_u$$

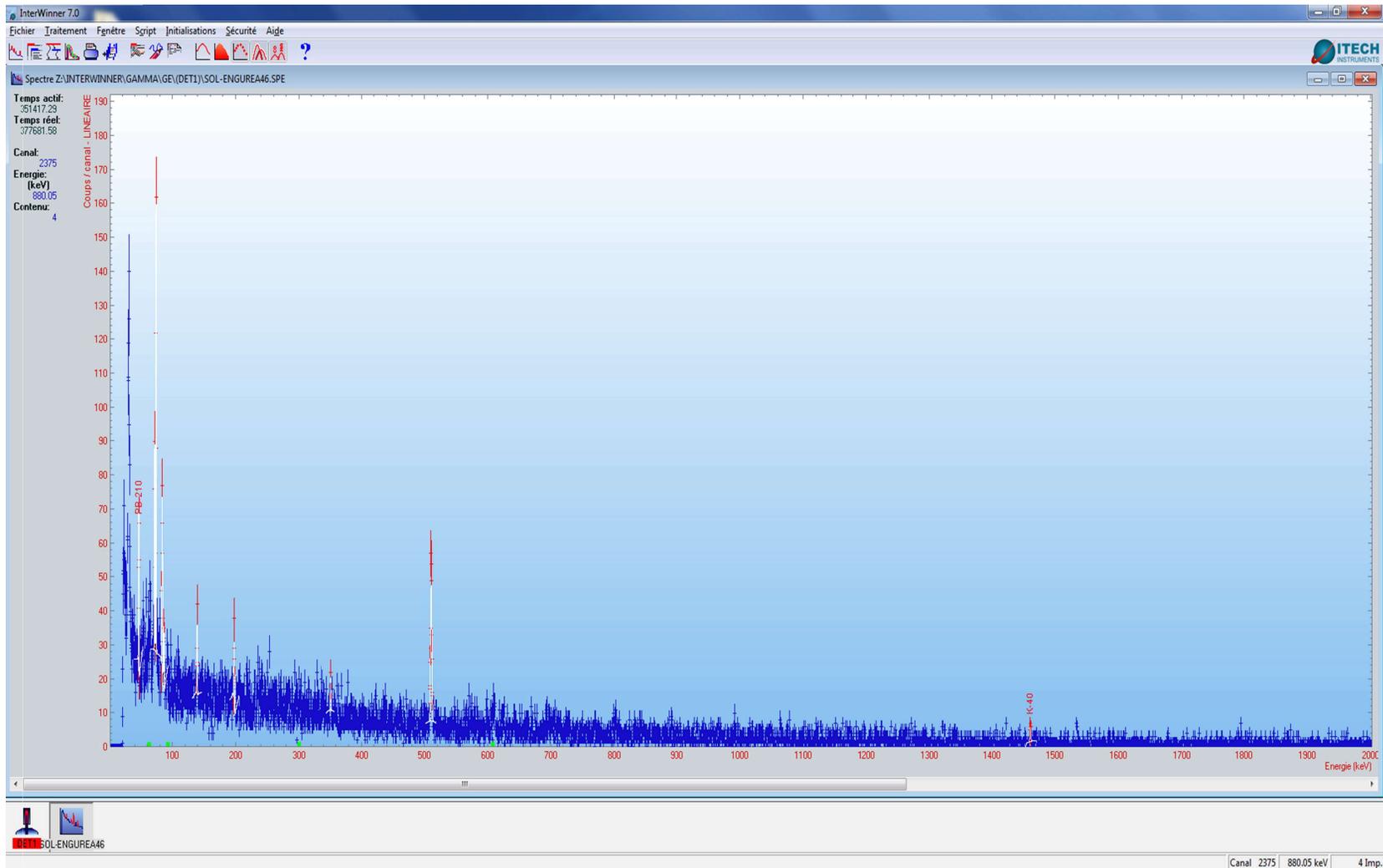
Quelques spectres et résultats des
échantillons donnés par le logiciel
InterWinner

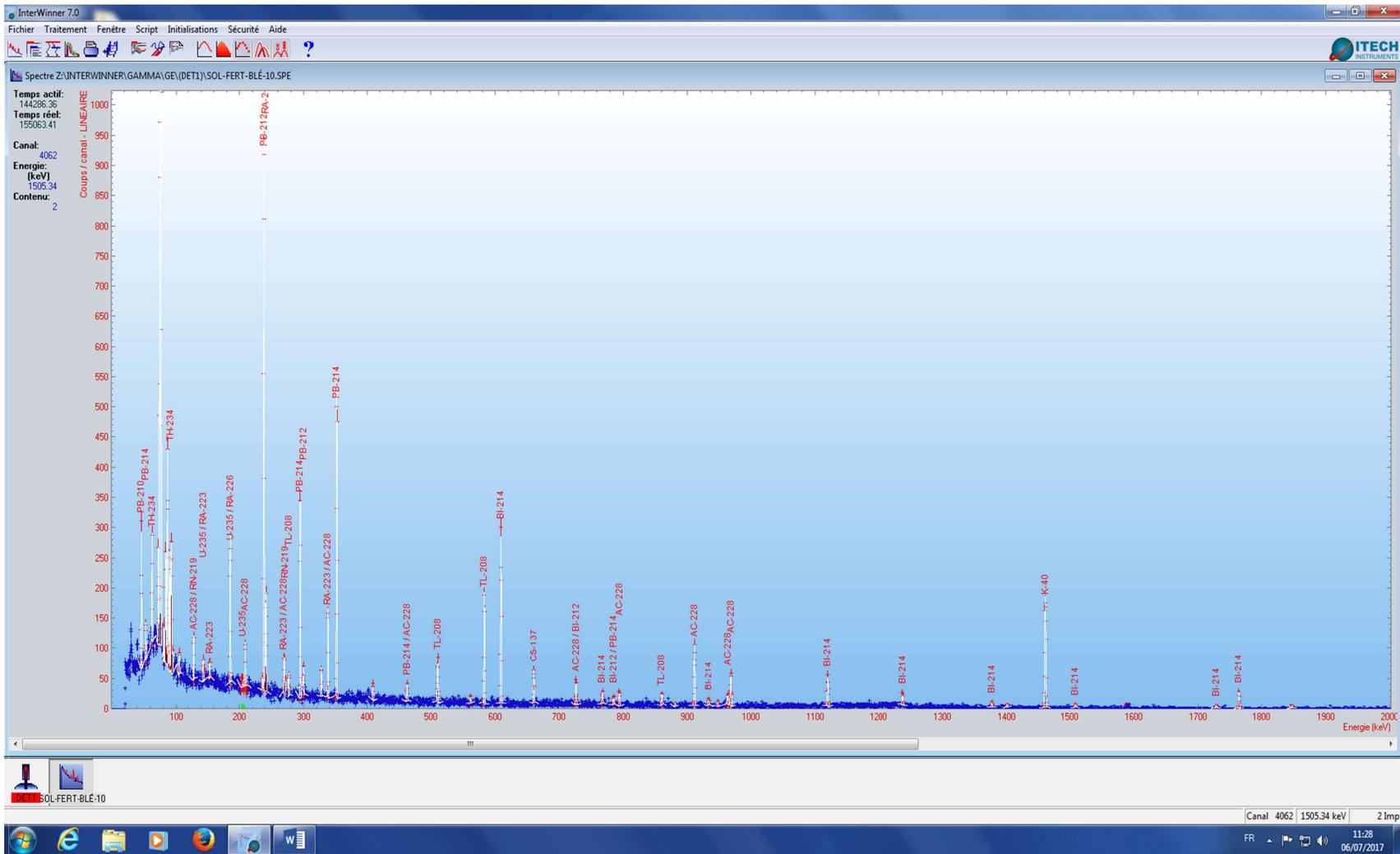
Spécifiez l'INTERVENIR (GAMMA (GE (DET1)) EUIS2_03_16.SPE

Temps acq: 1629.83
Temps tot: 1773.40
Canal: 2522
Energie: 14400
Conteur: 191

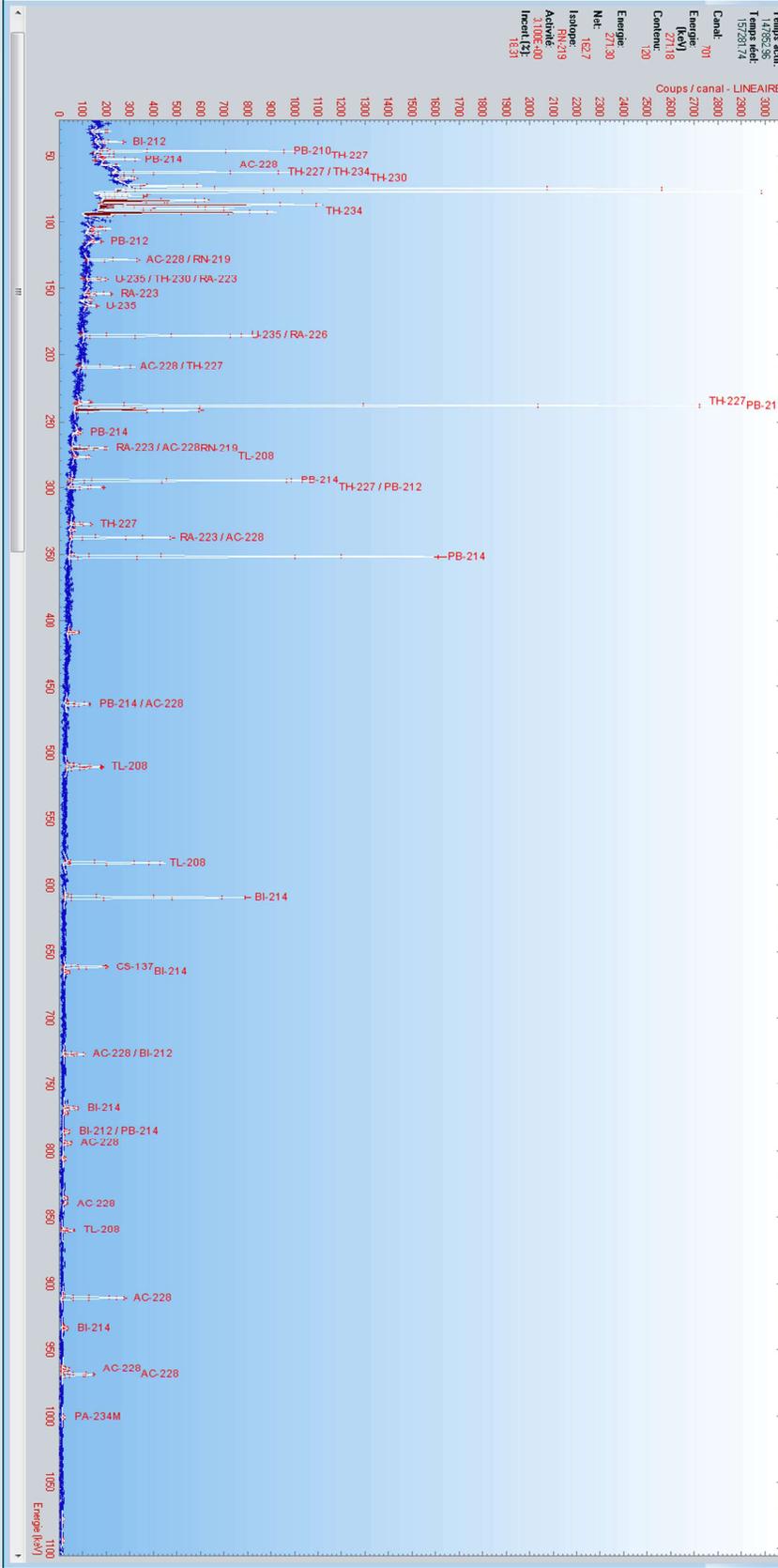


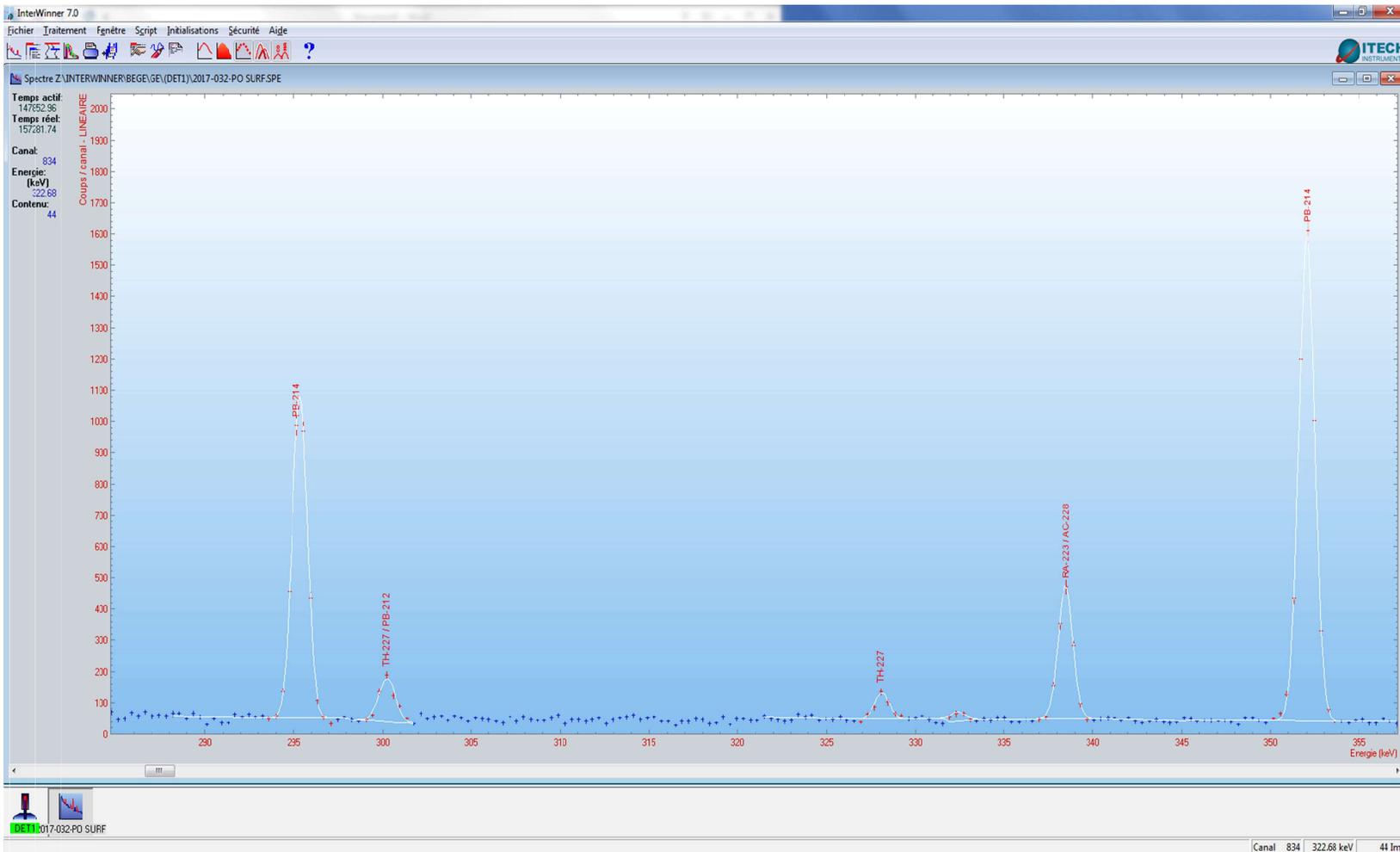


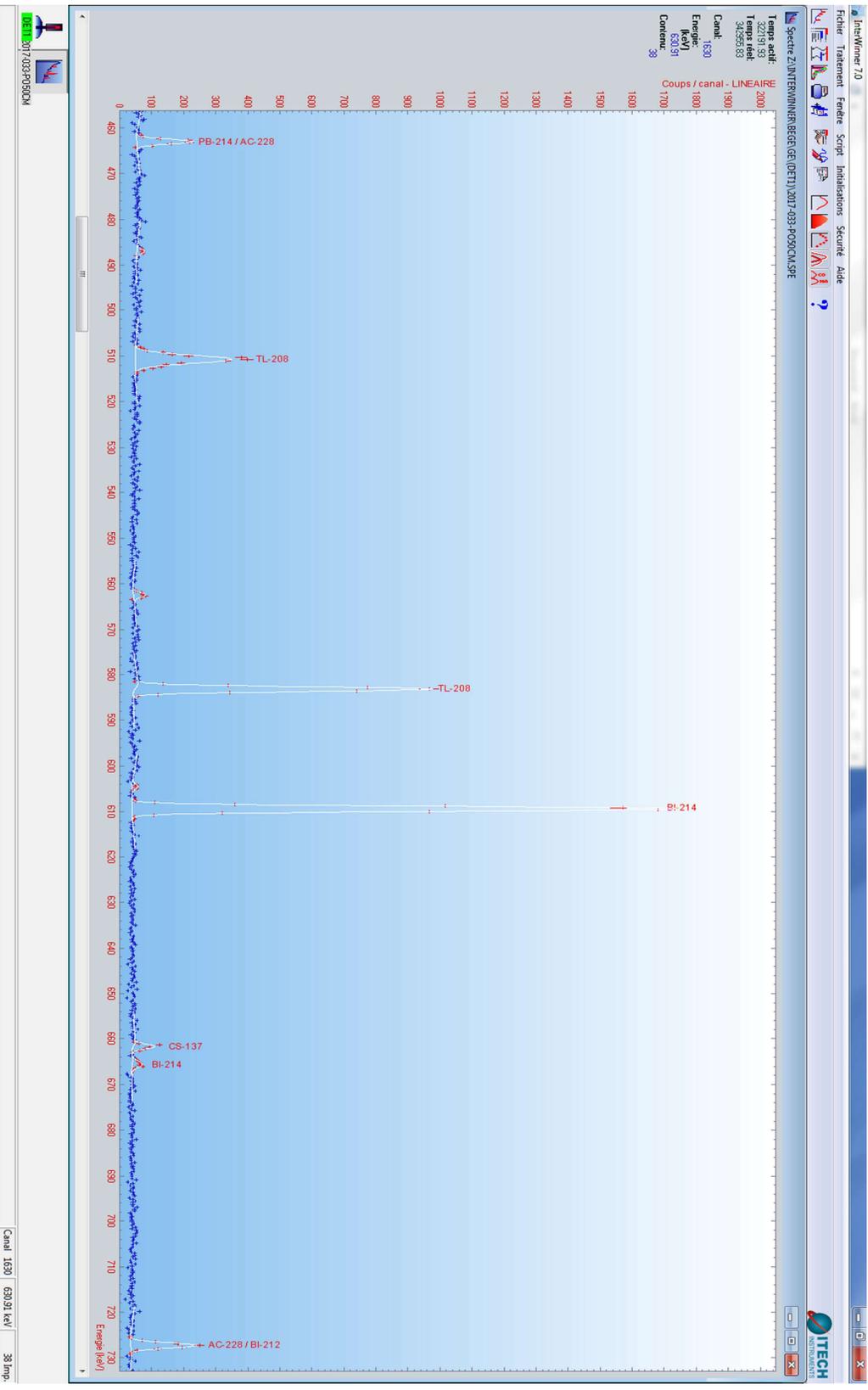




Temps actif: 9
Temps réel: 14782.95
Temps de calcul: 19728.74
Canal: 701
Energie: 2718
Energie max: 2718
Centre: 120
Energie: 271.30
Nat: 1627
Isotope: 210
Activité: 310E+00
Incert: 1E31







Jonction BEGE

Traitement du spectre 2017-035-AB 50 CM.SPE

Chemin d'accès: Z:\INTERWINNER\BEGE\GE\ (DET1)
 Détecteur: DET1
 Temps actif: 178658.11 s
 Temps réel: 190254.56 s
 Temps mort: 6.10 %
 Taux de comptage: 1.399 cps
 Date d'acquisition: 05/07/2017 10:21:18
 Quantité échantillon: 31.150 g ± 1.00 %
 Date de calibration: 23/05/2017 16:55:38
 Table d'isotopes: CEZUS50X14.ISO du 07/03/2017 09:26:59
 Courbe d'efficacité: \50X14_AIEAD1.3.EFF du 24/03/2015 12:45:56
 Fichier bruit de fond: BDF_acout2016.NUL du 08/09/2016 13:41:14
 Méthode de calcul des LD: ISO11929 2.5%
 Décroissance: 10 périodes max.
 Résolution: 0.53 keV - 2.74 keV
 Paramètres recherche de pics: 3.00 / 2.00 (20 keV - 2700 keV)

Commentaire: boite 50x14

Date de traitement: 07/07/2017 15:18:31
 Traitement: Version 7.00.3063 - GE/Déconvolution (1.00*SIGMA)

Edition par énergies (isotopes confirmés)

N°	Energie	LMH	LDH	BRUT	NET	NET-NUL	INCERT [%]	EFF [%]	ISOTOPE
1	36.71	*	0.98	753	55.9		68.14	13.491	
2	39.65	*	1.59	1275	206.1		23.49	14.599	BI-212
3	46.39	*	1.30	2566	1430.6	1418.0	4.30	16.597	PB-210
4	49.88	*	*	943	151.4	144.4	28.90	17.413	TH-227
5	53.13	0.81	*	1114	480.6	439.4	9.03	18.065	U-234 PB-214
6	54.16	*	*	742	102.8	96.6	35.45	18.252	
7	63.17	0.80	1.45	3798	1822.3	1799.2	4.23	19.523	TH-227 TH-234
8	67.48	*	*	1387	263.0	217.7	23.07	19.925	TH-230
9	72.70	*	*	2010	706.1	646.2	8.24	20.259	
10	74.77	0.84	1.58	7533	6437.7	6303.9	1.54	20.349	
11	77.03	0.89	1.66	9628	8920.1	8889.6	1.24	20.422	
12	79.25	*	*	1214	493.7	481.4	8.55	20.470	
13	80.97	0.87	*	1277	506.6	498.6	8.48	20.492	
14	83.63	*	*	1374	361.8	341.6	27.88	20.501	
15	84.07	*	*	1754	842.6	822.5	12.65	20.500	
16	84.82	*	*	1294	484.7	430.6	12.07	20.496	
17	86.86	*	*	2191	1346.7	1316.5	7.31	20.475	
18	87.37	*	2.00	2598	1832.8	1802.6	5.44	20.468	
19	89.80	0.99	1.97	2196	1492.3		4.63	20.420	
20	90.44	*	*	958	261.9		21.10	20.404	
21	92.53	*	*	2985	2377.4	2344.3	2.82	20.345	TH-234
22	93.39	*	*	1656	1113.4	1106.7	4.80	20.317	
23	94.69	*	*	916	362.3	357.3	10.11	20.270	
24	104.42	*	*	672	135.0		23.64	19.801	
25	105.49	0.88	*	800	247.2		14.04	19.739	
26	129.06	0.71	1.37	1076	376.2		11.20	18.053	AC-228 RN-219
27	143.94	1.04	1.57	1071	225.9		19.37	16.870	U-235 TH-230
28	154.21	1.06	1.96	1158	303.2		14.80	16.062	RA-223
29	163.72	0.91	*	722	127.3		28.50	15.340	U-235
30	186.08	1.09	1.98	3415	2365.2	2347.1	2.85	13.770	U-235 RA-226
31	205.51	*	*	498	91.8		32.74	12.571	TH-227 U-235
32	209.37	0.97	1.72	1365	657.7		6.92	12.351	AC-228 TH-227
33	236.09	0.76	1.42	570	112.0		25.62	10.982	TH-227
34	238.75	0.92	1.73	7617	7232.9	7222.3	1.26	10.859	PB-212
35	241.13	*	2.86	1046	713.0	700.9	5.72	10.752	RA-224
36	242.12	1.18	2.48	2002	1691.6	1679.4	3.05	10.708	PB-214
37	256.44	1.00	1.40	430	87.4		30.72	10.100	TH-227
38	259.16	0.87	*	430	118.6		23.79	9.992	PB-214
39	270.06	1.55	3.07	917	521.9		7.79	9.578	RA-223 AC-228
40	271.12	*	3.21	571	161.9		21.80	9.539	RN-219
41	275.00	0.52	*	339	67.3		36.70	9.400	
42	277.50	0.93	1.64	621	234.2		13.55	9.312	TL-208
43	295.36	0.99	1.83	4066	3528.7	3499.4	1.94	8.728	PB-214
44	300.15	0.89	1.83	843	421.0		8.45	8.583	TH-227 PB-212
45	328.12	0.93	1.49	655	242.3		13.48	7.821	TH-227
46	338.46	0.97	1.82	1770	1305.4	1301.6	3.64	7.572	RA-223 AC-228
47	352.07	1.08	2.02	6463	5883.9	5845.3	1.44	7.268	PB-214
48	409.58	1.00	*	501	192.4		14.79	6.218	
49	463.16	1.14	2.57	597	332.8		8.82	5.493	PB-214 AC-228
50	510.95	1.49	3.87	1522	1022.6	799.8	5.67	4.986	TL-208
51	562.66	0.99	*	241	81.3		24.63	4.544	
52	583.32	1.17	2.26	2096	1739.1	1735.7	2.86	4.391	TL-208
53	609.43	1.24	2.38	3953	3625.6	3601.4	1.82	4.214	BI-214
54	661.99	*	*	187	74.7	72.2	24.13	3.904	CS-137

Edition par énergies (isotopes confirmés)

N°	Energie	LMH	LDH	BRUT	NET	NET-NUL	INCERT[%]	EFF[%]	ISOTOPE
55	665.91	0.51	*	220	52.5		37.50	3.883	BI-214
56	727.33	1.16	2.61	616	406.7		7.06	3.584	AC-228 BI-212
57	768.42	1.35	2.95	560	307.3		9.28	3.413	BI-214
58	786.08	1.59	2.82	289	113.5		18.99	3.344	BI-212 PB-214
59	795.11	1.04	2.00	278	137.6		14.86	3.311	AC-228
60	802.48	*	*	120	46.0	31.0	45.35	3.284	
61	806.31	1.51	2.21	213	86.2		21.38	3.270	
62	835.76	1.83	*	212	101.5		17.69	3.168	
63	860.54	1.32	*	330	203.7		10.49	3.088	TL-208
64	911.21	1.41	2.81	1275	1105.8	1100.0	3.46	2.938	AC-228
65	934.17	1.35	2.41	257	117.4		16.96	2.875	BI-214
66	964.62	1.38	3.28	312	213.6	209.6	9.94	2.796	AC-228
67	968.98	1.50	3.13	791	694.5		4.72	2.785	AC-228
68	1001.35	*	*	141	53.1		28.52	2.707	PA-234M
69	1120.32	1.89	3.61	840	648.3	644.2	4.99	2.456	BI-214
70	1155.08	1.62	*	190	99.6		16.80	2.391	
71	1238.08	2.06	3.17	398	256.3		9.06	2.250	BI-214
72	1280.73	1.60	*	144	70.9		20.80	2.184	
73	1377.64	1.66	3.43	278	209.4		8.89	2.047	BI-214
74	1401.99	*	*	81	37.9		29.40	2.015	
75	1408.13	1.16	1.81	107	40.2		32.82	2.007	
76	1460.79	1.88	3.40	2374	2265.3	2240.4	2.23	1.942	K-40
77	1509.36	1.60	2.58	121	90.6		14.95	1.885	BI-214
78	1512.71	1.63	*	69	42.7		25.78	1.881	
79	1588.52	1.52	*	105	62.6		19.40	1.798	AC-228
80	1592.88	1.23	*	77	38.1		28.30	1.794	
81	1631.36	*	*	84	54.9		19.38	1.755	
82	1661.36	1.27	2.98	75	39.2		26.89	1.725	
83	1729.54	2.01	3.15	187	137.5		11.19	1.661	BI-214
84	1764.42	1.52	3.44	537	511.3	507.8	5.52	1.630	BI-214
85	1765.91	3.22	5.05	76	50.7	47.1	33.38	1.629	
86	1847.63	1.17	*	100	75.7		14.74	1.561	
87	2118.83	2.05	3.31	63	33.9		28.32	1.368	
88	2204.09	2.19	4.15	185	142.0	140.4	10.78	1.316	BI-214
89	2447.74	0.73	1.80	55	40.1		20.82	1.189	
90	2614.74	2.29	4.67	500	478.4	469.8	4.87	1.117	TL-208

Edition par isotopes confirmés

K-40 Période: 126000000.00 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	1460.82	0.03	10.550	1.965E+02	3.47

CS-137 Période: 30.05 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	661.66	-0.33	84.990	3.907E-01	24.29

TL-208 Période: 3.05 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	277.37	-0.13	1.719	2.630E+01	13.80
2	510.60	-0.35	5.820	4.952E+01	6.27
3	583.19	-0.13	24.616	2.887E+01	3.94
4	860.53	-0.01	4.183	2.835E+01	10.84
5	2614.51	-0.23	27.598	2.741E+01	5.38

PB-210 Période: 22.20 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	46.54	0.15	4.250	3.604E+01	6.54

PB-212 Période: 10.64 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	115.18		0.497	<2.935E+01	
2	238.53	-0.12	43.556	2.743E+01	2.89 m
3	300.09	-0.06	2.487	3.307E+01	

PB-214 Période: 26.80 années

N°	ETAB(keV)	DE(keV)	GAMMA%	ACTIV(Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	53.23	0.10	0.836	3.972E+01	m
2	242.00	-0.12	7.108	3.963E+01	3.98 m
3	258.87	-0.29	0.429	4.963E+01	23.93 m
4	295.22	-0.14	18.598	3.872E+01	3.22
5	351.93	-0.14	35.529	4.066E+01	2.97
6	462.00	-1.16	0.167	4.252E+01	

PB-214 Période: 26.80 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
7	785.96	-0.12	1.096	3.442E+01	

BI-212 Période: 60.55 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	39.86	0.21	1.063	2.376E+01	24.07
2	288.18		0.316	<7.562E+01	
3	452.98		0.337	<9.676E+01	
4	727.33	0.00	6.304	3.003E+01	
5	785.37	-0.71	0.930	2.499E+01	
6	893.41		0.318	<1.558E+02	
7	1620.74		1.531	<3.644E+01	

BI-214 Période: 19.90 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	386.77		0.227	<1.291E+02	
2	388.88		0.289	<1.084E+02	
3	454.77		0.198	<1.613E+02	
4	609.32	-0.11	38.348	4.004E+01	3.26
5	665.45	-0.46	1.063	2.284E+01	37.59
6	768.36	-0.06	3.954	4.092E+01	9.67
7	934.06	-0.11	2.530	2.901E+01	17.18
8	1120.29	-0.03	12.301	3.832E+01	5.69
9	1238.12	0.04	4.851	4.219E+01	9.46
10	1377.67	0.03	4.206	4.372E+01	9.29
11	1509.23	-0.13	1.822	4.743E+01	15.19 m
12	1729.60	0.06	3.754	3.962E+01	11.48
13	1764.50	0.08	15.390	3.637E+01	6.10 m
14	2204.21	0.12	4.933	3.886E+01	11.05

RN-219 Période: 1000000.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	130.58	1.52	0.106	1.995E+00	
2	271.23	0.11	10.948	2.787E+00	21.95 m
3	401.81		6.777	<4.594E+00	

RA-223 Période: 1000000.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	122.32		1.233	<1.137E+01	
2	144.27	0.33	3.347	2.041E+00	
3	154.21	-0.00	5.817	5.831E+00	15.03 m
4	269.46	-0.60	14.216	2.130E+00	
5	323.87		4.040	<6.267E+00	
6	338.28	-0.18	2.836	2.555E+00	
7	445.03		1.280	<2.261E+01	

RA-224 Période: 10000.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	240.99	-0.14	4.120	2.841E+01	6.26 m

RA-226 Période: 1600.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	186.21	0.13	3.555	5.890E+01	

AC-228 Période: 6.15 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	57.75		0.372	<4.732E+01	
2	99.51		0.861	<1.758E+01	
3	129.07	0.01	1.935	1.925E+01	
4	209.25	-0.12	3.446	2.712E+01	
5	270.25	0.19	2.971	2.276E+01	m
6	338.32	-0.14	11.047	2.730E+01	
7	463.00	-0.16	3.573	2.848E+01	
8	726.88	-0.45	0.526	2.771E+01	
9	794.94	0.17	3.396	2.199E+01	15.11
10	840.37		0.760	<6.617E+01	
11	911.20	-0.01	24.576	2.739E+01	4.49
12	964.76	0.14	4.531	2.977E+01	10.31 m
13	968.96	-0.02	14.962	2.996E+01	5.48 m
14	1508.20	-0.32	3.103	2.016E+01	19.57

TH-227 Période: 100000.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	43.78		0.188	<9.479E+01	
2	50.12	0.24	6.690	2.220E+00	29.22
3	62.45	-0.72	1.775	2.125E+00	
4	113.11		0.690	<2.127E+01	
5	204.49	-1.02	0.358	2.975E+00	
6	206.08	0.57	0.197	2.997E+00	
7	210.62	1.25	0.960	2.308E+00	
8	235.96	-0.13	10.724	1.709E+00	25.76 m
9	256.23	-0.21	6.679	2.327E+00	30.83 m
10	286.08		3.042	<7.831E+00	
11	299.98	-0.17	2.187	2.697E+00	
12	329.85	1.73	2.869	1.938E+01	13.73

TH-230 Période: 75380.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	67.67	0.19	0.380	5.163E+01	23.32
2	143.87	-0.07	4.90E-02	4.094E+01	

TH-234 Période: 24.10 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	63.30	0.13	3.630	4.456E+01	
2	92.59	0.06	4.200	4.931E+01	4.11 m
3	112.81		0.209	<7.016E+01	

PA-234M Période: 1.17 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	766.36		0.321	<1.385E+02	
2	1001.03	-0.32	0.850	4.147E+01	28.65

U-234 Période: 245700.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	53.20	0.07	0.125	8.373E+01	m
2	120.90		3.89E-02	<3.526E+02	

U-235 Période: 70400000.00 années

N°	ETAB (keV)	DE (keV)	GAMMA%	ACTIV (Bq/kg)	1.00*SIGMA(%)
1	143.77	-0.17	10.677	1.426E+00	
2	163.36	-0.35	5.044	2.952E+00	28.62
3	185.72	-0.35	55.689	1.739E+00	
4	205.32	-0.19	5.000	2.292E+00	

Edition des activités

N°	Isotope	Activ (Bq/kg)	Incert. (%)	Incert. (Bq/kg)
1	K-40	1.965E+02	3.5	6.827E+00
2	CS-137	3.907E-01	24.3	9.487E-02
3	TL-208	2.846E+01	3.6	1.017E+00
4	PB-210	3.604E+01	6.5	2.359E+00
5	PB-212	2.743E+01	2.9	7.935E-01
6	PB-214	3.883E+01	2.8	1.078E+00
7	BI-212	2.705E+01	6.1	1.642E+00
8	BI-214	3.939E+01	3.1	1.225E+00
9	RN-219	2.756E+00	22.2	6.117E-01
10	RA-223	2.084E+00	13.7	2.854E-01
11	RA-224	2.841E+01	6.3	1.780E+00
12	RA-226	5.890E+01	11.3	6.655E+00
13	AC-228	2.786E+01	3.0	8.369E-01
14	TH-227	2.334E+00	7.2	1.677E-01
15	TH-230	4.993E+01	24.1	1.201E+01
16	TH-234	4.456E+01	4.8	2.151E+00
17	PA-234M	4.147E+01	28.7	1.188E+01
18	U-234	8.373E+01	41.5	3.476E+01
19	U-235	1.739E+00	21.3	3.703E-01
	SOMME	7.379E+02	5.4	4.008E+01

Edition des activités et des limites de détection

N°	Isotope	Activ (Bq/kg)	Incert. (%)	Incert. (Bq/kg)	SD (Bq/kg)	LD (Bq/kg)
1	K-40	1.965E+02	3.5	6.827E+00	2.294E+00	4.939E+00
2	CO-60				2.552E-01	5.505E-01
3	CS-137	3.907E-01	24.3	9.487E-02		
4	TL-208	2.846E+01	3.6	1.017E+00	5.879E-01	1.444E+00

Edition des activités et des limites de détection

N°	Isotope	Activ (Bq/kg)	Incert. (%)	Incert. (Bq/kg)	SD (Bq/kg)	LD (Bq/kg)
5	PB-210	3.604E+01	6.5	2.359E+00	1.938E+00	4.012E+00
6	PB-211				4.168E+00	8.685E+00
7	PB-212	2.743E+01	2.9	7.935E-01	2.400E-01	4.958E-01
8	PB-214	3.883E+01	2.8	1.078E+00	3.748E-01	7.783E-01
9	BI-211				1.084E+00	2.247E+00
10	BI-212	2.705E+01	6.1	1.642E+00	2.906E+00	6.136E+00
11	BI-214	3.939E+01	3.1	1.225E+00	4.849E-01	1.015E+00
12	RN-219	2.756E+00	22.2	6.117E-01		
13	RN-220				1.463E+02	3.064E+02
14	RA-223	2.004E+00	13.7	2.854E-01	7.397E-01	1.534E+00
15	RA-224	2.841E-01	6.3	1.780E+00	2.362E+00	4.892E+00
16	RA-226	5.890E+01	11.3	6.655E+00	2.593E+00	5.340E+00
17	AC-228	2.786E+01	3.0	8.369E-01	8.376E-01	1.776E+00
18	TH-227	2.334E+00	7.2	1.677E-01	1.029E+00	2.122E+00
19	TH-230	4.993E+01	24.1	1.201E+01	2.316E+01	4.745E+01
20	TH-234	4.456E+01	4.8	2.151E+00	2.433E+00	4.988E+00
21	PA-231				4.863E+00	1.008E+01
22	PA-234M	4.147E+01	28.7	1.188E+01	2.681E+01	5.679E+01
23	U-234	8.373E+01	41.5	3.476E+01	5.937E+01	1.226E+02
24	U-235	1.739E+00	21.3	3.703E-01	1.654E-01	3.406E-01
25	U-238				1.174E+02	2.422E+02
	SOMME	7.379E+02	5.4	4.008E+01		

Messages d'alarme

RA-223: Taux de comptage des raies incompatibles. Raie à 154.2 keV supprimée!
 TH-227: Taux de comptage des raies incompatibles. Raie à 329.9 keV supprimée!

دراسة النشاط الإشعاعي الطبيعي والاصطناعي في الأسمدة والتربة في شرق الجزائر بواسطة المطيافية غاما.

ملخص:

الهدف من هذه الدراسة هو تقييم مستوى النشاط الإشعاعي في سبعة أسمدة أخذت من منطقتين مختلفتين قسنطينة وميلة في الجزائر، وفي عينات التربة المسمدة والغير مسمدة التي جمعت من أعماق مختلفة في مزرعتين في الجزائر، واحدة نموذجية والأخرى تابعة للقطاع الخاص في العثمانية وفرجوية على التوالي، باستخدام المطيافية غاما ذات الكاشف (HPGe) عالي الدقة.

مجالات تراكيز النشاط الإشعاعي لكل من ^{232}Th ^{226}Ra و ^{40}K في عينات التربة تراوحت بين 2.37 ± 23.72 و 67.72 و 7.77 و 28.70 ± 0.90 و 26.45 ± 0.78 و 290.1 ± 10.5 و 178.5 ± 5.64 Bq.kg^{-1} على التوالي. وتمت مقارنة نتائج هذه الدراسة بمتوسط القيم العالمية البالغ 35، 30 و 400 بيكريل على التوالي، الذي حدد من طرف UNSCEAR(2000). في جميع عينات التربة التي تم قياسها، عثر على ^{137}Cs وكان متوسط نشاطه 2.66Bq.kg^{-1} . بالإضافة إلى ذلك، تمت دراسة التوزيع العمودي لتراكيز نشاط عنصر ^{137}Cs ، ومن خلال النتائج يمكن استنتاج تناقص نشاطه عموديا.

فيما يتعلق بالخطر الإشعاعي على صحة الإنسان، يقدر معدل الجرعة الممتصة لأشعة جاما (D) في الهواء بين 36.23 ± 0.4 و 58.78 ± 2.2 nGy.h^{-1} ؛ وتم تقييم ما يعادل الجرعة الفعالة السنوية الخارجية (D_E) على أنها تتغير من 44.44 ± 0.4 إلى 69.88 ± 2.7 $\mu\text{Sv.an}^{-1}$ ، مع متوسط حسابي قيمته 33.23 ± 61.43 $\mu\text{Sv.an}^{-1}$ وهو ما يقارن بالجرعة الفعالة العالمية $70 \mu\text{Sv.y}^{-1}$. بالإضافة إلى ذلك، فإن قيم R_{eq} و H_{in} و H_{ex} و I_{γ} لجميع عينات التربة في هذا العمل هي أقل من الحد الأدنى المقبول البالغ 370Bq.kg^{-1} وأقل من حد الوحدة، على التوالي. وتشير النتائج إلى أن خطر الإشعاع الناتج عن النويدات المشعة في جميع عينات التربة في المناطق التي تمت دراستها في هذا العمل الحالي ليس كبيرا. في المقابل، فإن متوسط قيمة عامل خطر الإصابة بالسرطان خلال العمر ELCR بالنسبة للأسمدة هي 9.45×10^{-4} . هناك نقطتان (2) أخذت منهما العينات (FM و TSP) تحتويان على قيم ELCR أكبر من القيمة المتوسطة العالمية. تظهر هذه النتائج أن خطر الإصابة بالسرطان مدى الحياة عند التعرض لهذه الأسمدة لمدة تصل إلى 70 سنة مرتفع في كلا الموقعين. ولذلك، ينبغي عدم تشجيع الاستخدام المستمر لهذه الأسمدة في الزراعة أو في دراسات إصلاح التربة وغيرها من الأغراض.

الكلمات المفتاحية: المطيافية غاما؛ تراكيز النشاط؛ السماد؛ عينات التربة؛ المخاطر الإشعاعية؛ عامل خطر الإصابة بالسرطان خلال العمر.

Study of natural and artificial radioactivity in fertilizers and soil of eastern Algeria by gamma spectrometry.

Abstract

The aim of this study is to evaluate the level of natural radioactivity in seven fertilizers from two different regions, Constantine and Mila in Algeria, and in fertilized and unfertilized soil samples collected at different depths in two pilot and private Algerian farms, from El-Athmania and Ferdjioua, Mila, respectively. Using gamma spectroscopy with a hyper-pure germanium detector (HPGe), a low background configuration and high-resolution.

The activity concentration ranges of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in the soil samples were found at $23.72 \pm 2.37 \leftrightarrow 67.72 \pm 7.77$, $26.45 \pm 0.78 \leftrightarrow 28.70 \pm 0.90$ and $178.5 \pm 5.64 \leftrightarrow 290.1 \pm 10.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectively. The results of this current study have been compared with the world mean values of 35, 30 and 400 Bq.kg^{-1} , respectively, specified by the UNSCEAR (2000). The artificial radionuclide, ^{137}Cs was found in all measured soil samples and its mean activity was 2.66 Bq.Kg^{-1} . Additionally, the vertical distribution of ^{137}Cs soil activity concentrations was studied in this current study. It can assumed from the results the decrease of ^{137}Cs as a function of depth.

Concerning radiological risk to human health, the absorbed gamma dose rate (D) in air is estimated to be between 36.23 ± 0.4 and $58.78 \pm 2.2 \text{ nGy.h}^{-1}$; the outdoor annual effective dose equivalent (D_E) was evaluated to vary from 44.44 ± 0.4 to $69.88 \pm 2.7 \text{ } \mu\text{Sv.y}^{-1}$, with the arithmetic mean value of $61.43 \pm 33.23 \text{ } \mu\text{Sv.y}^{-1}$, which is comparable to the worldwide effective dose of $70 \text{ } \mu\text{Sv.y}^{-1}$. Also, the R_{eq} , H_{ex} , H_{in} and I_{y} values for all soil samples in this work are lower than the accepted safety limit of 370 Bq.kg^{-1} and below the unit limit, respectively. The results indicate that the radiation hazard of primordial radionuclides in all soil samples of the regions studied in this current work is not significant. On the other hand, the mean value of the lifetime cancer risk factor for fertilizers studied is 9.45×10^{-4} . Two (2) sampling points (FM and TSP) have ELCR values greater than the worldwide average value. These results show that lifetime cancer risk from exposure to these fertilizers for up to 70 years is high in both locations. Therefore, subsequent use of this product for agriculture or for soil remediation studies and other purposes should be discouraged.

Key words: gamma spectroscopy; activity concentrations; fertilizer; soil samples; radiological risk; excessive risk factor for lifetime cancer.

Résumé :

Le but de cette étude est d'évaluer le niveau de la radioactivité naturelle dans sept engrais provenant de deux régions différentes, Constantine et Mila en Algérie, et dans des échantillons de sol fertilisés et non fertilisés collectés à différentes profondeurs de deux ferme algériennes pilote et privé d'El-Athmania et de Ferdjioua, Mila, respectivement, en utilisant la spectroscopie gamma avec un détecteur de germanium hyper-pur (HPGe), une configuration de bas bruit de fond et haute résolution.

Les plages de concentrations d'activité de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons de sol ont été à $23.72 \pm 2.37 \leftrightarrow 67.72 \pm 7.77$, $26.45 \pm 0.78 \leftrightarrow 28.70 \pm 0.90$ et $178.5 \pm 5.64 \leftrightarrow 290.1 \pm 10.5$ Bq.kg⁻¹, respectivement. Les résultats de cette étude ont été comparés aux valeurs moyennes mondiales de 35, 30 et 400 Bq.kg⁻¹, respectivement, spécifiées par l'UNSCEAR (2000). La présence de ^{137}Cs est retrouvée dans tous les échantillons de sol mesurés et son activité moyenne était de 2,66 Bq.Kg⁻¹. De plus, la distribution verticale des concentrations d'activité de sol de ^{137}Cs a été étudiée dans cette étude actuelle. On peut supposer d'après les résultats la décroissance de ^{137}Cs en fonction de la profondeur.

En ce qui concerne le risque radiologique pour la santé humaine, le débit de dose gamma absorbé (D) dans l'air est estimé entre $36.23 \pm 0,4$ et $58.78 \pm 2,2$ nGy.h⁻¹ ; l'équivalent de dose efficace annuel extérieur (D_E) a été évalué à varier de $44.44 \pm 0,4$ à $69.88 \pm 2,7$ μSv.an⁻¹, avec la valeur moyenne arithmétique de $61.43 \pm 33,23$ μSv.an⁻¹, qui est comparable à la dose efficace mondiale de 70 μSv.y⁻¹. En outre, les valeurs du Ra_{eq}, H_{ex}, H_{in} et I_γ pour tous les échantillons de sol dans le présent travail sont inférieures à la valeur limite de sécurité acceptée de 370 Bq.kg⁻¹ et en dessous de la limite d'unité, respectivement. Les résultats indiquent que le danger d'irradiation des radionucléides primordiaux dans tous les échantillons de sol des régions étudiées dans ce travail actuel n'est pas significatif. En revanche, la valeur moyenne de facteur de risque excessif de cancer à vie pour les fertilisants étudiée est de $9,45 \times 10^{-4}$. Deux (2) des points d'échantillonnage (FM et TSP) ont des valeurs ELCR supérieures à la valeur moyenne mondiale. Ces résultats montrent que le risque de cancer à vie lié à l'exposition à ces fertilisants pendant une durée maximale de 70 ans est élevé dans ces deux endroits. Par conséquent, l'utilisation subséquente de ce produit pour l'agriculture ou pour des études d'assainissement du sol et d'autres fins devrait être découragée.

Mots clés : La spectroscopie gamma ; concentrations d'activité ; Fertilisant ; échantillons de sol ; le risque radiologique ; facteur de risque excessif de cancer à vie.