

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
**MINISTERE DE L 'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET**  
**DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE**  
**UNIVERSITE FRERES MENTOURI CONSTANTINE 1**  
**FACULTE DES SCIENCES EXACTES**  
**DEPARTEMENT DE PHYSIQUE**

N° d'ordre : .....

Série : .....

**THÈSE**

**PRÉSENTÉE POUR OBTENIR LE DIPLÔME DE DOCTORAT**

**3<sup>ème</sup> CYCLE EN PHYSIQUE**

**SPÉCIALITÉ**

**RAYONNEMENTS ET PHYSIQUE MEDICALE**

**THEME**

***ÉTUDE EXPERIMENTALE DE MESURES DE BASSES  
RADIOACTIVITES DANS LES MATERIAUX DE  
CONSTRUCTION UTILISES EN ALGERIE***

Par

**Esmâ SAADI**

SOUTENUE LE: 18 / 02 / 2021

Devant le jury :

Président : S. BOUDJADAR Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Rapporteur : F. BENRACHI Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

Co-Rapporteur : A. AZBOUCHE M. R. CRNA Alger

Examineurs : M. BELGAID Prof. Univ. USTHB

A. BOUCENNA Prof. Univ. Sétif 1

B. BOUDINE Prof. Univ. Frères Mentouri Constantine 1

## Tables des matières

<b>Tables des matières .....</b>	<b>i</b>
<b>Liste des Figures .....</b>	<b>iv</b>
<b>Liste des Tableaux.....</b>	<b>vii</b>
<b>Introduction Générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre I : La radioactivité dans l'environnement.....</b>	<b>4</b>
I.1. Généralités sur la radioactivité et l'origine des rayonnements .....	4
I.1.1. La radioactivité naturelle	5
I.1.2. Radioactivité artificielle	11
I.1.3. Filiations radioactives	12
I.1.4. Equilibre radioactif	13
I.2. La radioactivité des roches.....	14
I.3. La composition minéralogique des matériaux de construction.....	16
<b>Chapitre II : Interactions rayonnements- matière et spectrométrie <math>\gamma</math>.....</b>	<b>18</b>
II.1. Rayonnements $\gamma$ et leurs interactions avec la matière .....	19
II.1.1. Rayonnements $\gamma$	19
II.1.2. Processus d'interaction des photons $\gamma$ avec la matière	20
II.1.3. Atténuation et libre parcours moyen	24
II.2. Interaction des électrons avec la matière .....	25
II.2.1. Les électrons	25
II.2.2. Interaction avec les électrons atomiques	25
II.2.3. Interaction avec le champ du noyau	26
II.2.4. Parcours des électrons dans la matière	27
II.3. La spectrométrie gamma.....	28
II.3.1. Chaîne de mesures	29
II.3.2. Caractérisation du détecteur	35
<b>Chapitre III : Grandeurs et unités dosimétriques .....</b>	<b>42</b>
III.1. Dosimétrie des rayonnements ionisants.....	43
III.1.1. Evaluation des doses	43

III.1.2.	Paramètres radiologiques	44
III.2.	Les effets des rayonnements $\gamma$ sur la matière vivante.....	47
<b>Chapitre IV : Matériels et Méthodes.....</b>		<b>50</b>
IV.1.	Collection et préparation des échantillons .....	51
IV.2.	Description du système d'acquisition .....	62
IV.3.	Etalonnage de la chaîne de mesures.....	63
IV.3.1.	Etalonnage en énergie	63
IV.3.2.	Etalonnage en efficacité	65
IV.4.	Mesure du bruit de fond.....	69
IV.5.	Analyse du spectre obtenu .....	70
IV.6.	Évaluation des erreurs statistiques .....	73
IV.6.1.	Les incertitudes de mesure	73
IV.6.2.	Incertitudes sur une mesure composée; loi de propagation	73
IV.7.	Analyse statistique .....	74
IV.7.1.	Statistique descriptive univariée	74
IV.7.2.	Statistique descriptive bivariée : Analyse de corrélation	76
IV.7.3.	Statistique descriptive multivariée : Arbre Archaique	77
<b>Chapitre V : Résultats et discussion.....</b>		<b>78</b>
V.1.	Calculs des activités.....	79
V.1.1.	Les activités des radioéléments naturels dans les échantillons étudiés	79
V.1.2.	Les activités de $^{137}\text{Cs}$ dans les échantillons étudiés	84
V.2.	Estimation de doses.....	85
V.2.1.	Débit de Dose Absorbée (ADR)	86
V.2.2.	Équivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE)	86
V.2.3.	Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE)	87
V.3.	Évaluation des effets radiologiques .....	89
V.3.1.	Radium équivalent ( $R_{\text{eq}}$ )	89
V.3.2.	Indices de risque externe et interne ( $H_{\text{ex}}$ , $H_{\text{in}}$ )	90
V.3.3.	Indice gamma ( $I_{\gamma}$ )	90

V.3.4. Indice alpha ( $I\alpha$ )	91
V.3.5. Excès de risque de cancer à vie (ELCR)	92
V.4. Comparaison des résultats obtenus avec les données d'autres pays .....	93
V.5. Analyse statistique .....	95
V.5.1. Statistiques descriptives	95
V.5.2. Étude de corrélation entre les radionucléides naturels	96
V.5.3. Corrélations de Pearson	99
V.5.4. Classification ascendante hiérarchique (Arbre Archaïque)	99
<b>Conclusion Générale .....</b>	<b>101</b>
<b>Références .....</b>	<b>103</b>
<b>Abstract</b>	
<b>ملخص</b>	
<b>Résumé</b>	

## Liste des Figures

Figure I-1. Différents modes de désintégration .....	5
Figure I-2. Schéma du développement des rayonnements cosmiques secondaires dans l'atmosphère provenant d'une particule primaire incidente .....	6
Figure I-3. Schéma de désintégration du $^{40}\text{K}$ .....	7
Figure I-4. Chaîne de désintégration de l' $^{238}\text{U}$ .....	9
Figure I-5. Chaîne de désintégration de l' $^{235}\text{U}$ .....	10
Figure I-6. Chaîne de désintégration de l' $^{232}\text{Th}$ .....	11
Figure I-7. Filiation radioactive au cours du temps .....	12
Figure II-1. Types d'interaction prépondérants en fonction de l'énergie du photon et du numéro atomique Z du matériau traversé .....	20
Figure II-2. (a) Le mécanisme de l'effet photoélectrique, et (b) l'émission de rayons fluorescents X .....	21
Figure II-3. Probabilité d'interaction par effet photoélectrique dans différents matériaux .....	22
Figure II-4. Diffusion Compton .....	22
Figure II-5. Création d'une paire électron-positron .....	23
Figure II-6. Coefficients d'atténuation massique pour le Plomb (a) et le Germanium (b). .....	25
Figure II-7. Différents processus d'interaction des électrons avec la matière .....	27
Figure II-8. Le parcours d'un faisceau d'électrons dans la matière. ....	27
Figure II-9. Exemple d'un spectre gamma mono-énergétique. ....	28
Figure II-10. Schéma d'une chaîne de mesure en spectrométrie gamma. ....	29
Figure II-11. Schéma de principe de fonctionnement des scintillateurs. ....	30
Figure II-12. (a) Schéma des bandes d'énergie dans un solide cristallin semi-conducteur, (b) Schéma des bandes d'énergie dans les cas des dopages de type N et de type P. ....	31
Figure II-13. Schéma des différentes configurations géométriques des détecteurs germanium. ...	34
Figure II-14. Définition de la résolution en énergie pour un pic gaussien. ....	35
Figure II-15. Angle solide de détection. ....	36
Figure II-16. Angle solide pour une source ponctuelle .....	37
Figure II-17. Angle solide pour une source circulaire .....	38
Figure II-18. Schéma représentant le seuil détection SD et la limite de détection LD. ....	39
Figure III-1. Altérations possibles de l'ADN consécutives à une exposition à des rayonnements ionisants. ....	48
Figure IV-1. Carte de localisation des échantillons. ....	51
Figure IV-2. Compresseur (atelier des lames minces, département des sciences géologiques). ..	59

Figure IV-3. Mini concasseur (atelier des lames minces, département des sciences géologiques). .....	60
Figure IV-4. Broyeur grand format (atelier des lames minces, département des sciences géologiques). .....	60
Figure IV-5. (a) Matériels utilisés pour la préparation des échantillons (LPMPS, département de physique) (b) les échantillons avant et après conditionnement. .....	61
Figure IV-6. Chaîne de spectrométrie gamma du Centre de Recherche Nucléaire Alger (CRNA). .....	62
Figure IV-7. Spectre expérimental de la source $^{152}\text{Eu}$ . .....	63
Figure IV-8. Schéma de désintégration de $^{152}\text{Eu}$ . .....	64
Figure IV-9. Courbe d'étalonnage en énergie. .....	65
Figure IV-10. Spectre expérimental du standard d'eau chargée des radionucléides ( $^{214}\text{Am}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{152}\text{Eu}$ ) (spiked water). .....	66
Figure IV-11. Courbe d'efficacité calculée en fonction de l'énergie. .....	68
Figure IV-12. Spectre gamma du bruit de fond mesuré durant 04 jours. .....	69
Figure IV-13. Spectre gamma de l'échantillon SMAS mesuré durant 24 heures. .....	70
Figure V-1. Les activités spécifiques de $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{40}\text{K}$ dans les échantillons étudiés. .....	82
Figure V-2. Les activités spécifiques de $^{226}\text{Ra}$ (a), $^{232}\text{Th}$ (b) et $^{40}\text{K}$ (c) dans les échantillons étudiés. .....	83
Figure V-3. Les activités spécifiques de $^{137}\text{Cs}$ dans les échantillons de matériaux de construction. .....	85
Figure V-4. Le débit de dose absorbée (ADR) calculé pour tous les échantillons étudiés. .....	86
Figure V-5. L'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE) estimé pour différents échantillons de matériaux de construction. .....	87
Figure V-6. L'équivalent de dose annuelle des gonades (AGDE) dans les échantillons étudiés. .....	87
Figure V-7. Le radium équivalent ( $\text{Ra}_{\text{eq}}$ ) pour les échantillons mesurés. .....	89
Figure V-8. Indices de risque externe et interne ( $H_{\text{ex}}$ , $H_{\text{in}}$ ) pour les échantillons étudiés. .....	90
Figure V-9. Indice gamma ( $I_{\gamma}$ ) pour les matériaux de construction étudiés. .....	91
Figure V-10. Indice alpha ( $I_{\alpha}$ ) pour les échantillons mesurés. .....	91
Figure V-11. Excès de risque de cancer à vie (ELCR) pour les échantillons étudiés. .....	92
Figure V-12. Distributions des fréquences des activités spécifiques de $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{40}\text{K}$ pour les matériaux de constructions mesurés. .....	97
Figure V-13. Corrélations entre les concentrations ( $^{226}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ ), ( $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ ) and ( $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ ) dans les échantillons étudiés. .....	98

Figure V-14. Dendrogramme montrant l'association des radionucléides naturels et des paramètres radiologiques dans les échantillons étudiés..... 100

## Liste des Tableaux

Tableau I-1. Autres radionucléides primordiaux d'origine naturelle avec leurs demi-vies, les principales émissions de rayonnement et les activités spécifiques crustales typiques de la Terre...8	8
Tableau II-1. Caractéristiques des semi-conducteurs à 300 K sauf pour le cas du Ge à 77 K .....32	32
Tableau III-1. Valeurs des indices gamma suggérées par la commission européenne pour les matériaux utilisés dans un bâtiment. ....46	46
Tableau III-2. Valeurs des indices alpha suggérées pour les matériaux utilisés dans un bâtiment. ....46	46
Tableau III-3. Effets déterministes décrits pour des expositions aux rayonnements gamma ou X. ....49	49
Tableau IV-1. Tableau des échantillons (origine et codage).....52	52
Tableau IV-2. Pourcentage des éléments constituant les calcaires et les argiles de Djebel Salah. ....53	53
Tableau IV-3. Pourcentage des éléments constituant les argiles brunes. ....54	54
Tableau IV-4. Caractéristiques chimiques de ciment de M'Sila.....54	54
Tableau IV-5. Composition chimique moyenne du gisement de Djebel Meskine.....54	54
Tableau IV-6. Exigence de la composition chimique pour la fabrication de brique et tuile.....56	56
Tableau IV-7. Composition minéralogique et chimique des argiles du gisement d'Ain Kerma. .57	57
Tableau IV-8. Composition minéralogique et chimique des argiles du gisement d'Ibn Ziad. ....57	57
Tableau IV-9. Composition chimique du kaolin du gisement de Tamazert .....57	57
Tableau IV-10. Composition chimique du sable naturel de Boussaâda .....58	58
Tableau IV-11. Analyse chimique des sables de dunes d'Aïn Sefra. ....59	59
Tableau IV-12. Efficacité du détecteur simulée par le logiciel LabSOCS.....67	67
Tableau V-1. Valeurs des activités minimales détectables des radionucléides naturels.....80	80
Tableau V-2. Les activités spécifiques en (Bq.kg <sup>-1</sup> ) des radionucléides naturels présents dans les échantillons.....80	80
Tableau V-3. Doses estimées pour les échantillons de matériaux de construction.....88	88
Tableau V-4. Indices de risque radiologique calculés pour les échantillons de matériaux de construction. ....92	92
Tableau V-5. Les activités spécifiques moyennes dans cette étude par rapport aux résultats bibliographiques.....94	94
Tableau V-6. Statistiques descriptives des activités des radionucléides ( <sup>226</sup> Ra, <sup>232</sup> Th et <sup>40</sup> K) pour les échantillons étudiés.....96	96

Tableau V-7. Corrélation de Pearson entre les radionucléides présents dans les échantillons et les paramètres radiologiques associés. .... 99

## **Introduction Générale**

La population mondiale a toujours été exposée à des rayonnements ionisants émis par différentes sources naturelles qui existent depuis la formation de la terre et artificielle qui a apparu dans l'environnement depuis le début du XX<sup>e</sup> siècle dû aux activités humaines impliquant l'utilisation de rayonnements ionisants et des substances radioactives.

Les sources naturelles constituent la majeure partie de cette exposition. Elles peuvent avoir leurs origines dans les rayons cosmiques et les radionucléides primordiaux. Les radionucléides terrestres (primordiaux) tels que le potassium, l'uranium et le thorium sont présents partout dans la croûte terrestre, l'air, l'eau, le sol, les roches, les aliments et dans le corps humain lui-même.

Les matériaux de construction, souvent appelés matériaux naturellement radioactifs (« Naturally Occurring Radioactive Materials » **NORM**), sont principalement constitués de sols et de roches. Ils contiennent des traces d'éléments radioactifs naturels, comme les séries d'uranium ( $^{238}\text{U}$ ), de thorium ( $^{232}\text{Th}$ ) et d'actinium ( $^{235}\text{U}$ ) en plus du potassium ( $^{40}\text{K}$ ). Le segment de la chaîne de désintégration de l'uranium à partir du radium constitue la partie la plus importante du point de vue radiologique. Par conséquent, le radium est souvent utilisé comme référence à la place de l'uranium. Ces radionucléides terrestres contribuent à la majeure partie du débit de dose de la radioactivité naturelle auquel la plupart des personnes qui passent environ 80 à 90% de leur temps à l'intérieur des habitations, sont exposées. Ils présentent des risques d'exposition externes causés par leur émission de rayons gamma et internes dus à l'inhalation du gaz radioactif inerte radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) et de ses produits de désintégration à courte durée de vie. Parmi les risques d'expositions externe et interne à ces rayonnements ionisants de faible intensité, on peut mentionner le cancer, la diminution de l'espérance de vie et des changements subtils dans la fertilité ou la viabilité des rejets, comme le montrent les données issues de l'étude des survivants irradiés lors des explosions d'Hiroshima et de Nagasaki. Ces effets peuvent être retardés pendant des années ou encore des générations et ne sont pas détectés dans les études toxicologiques à court terme.

Au cours des dernières décennies, l'intérêt pour l'étude de la radioactivité contenue dans les matériaux de construction a connu une évolution dans le monde [1 - 4]. De nombreux travaux de recherche ont été également menés en Algérie [5 - 8].

Le travail réalisé dans cette thèse concerne les mesures de la radioactivité naturelle et artificielle dans des matériaux de construction prélevés sur des sites algériens situés dans différentes villes d'Algérie. L'impact radiologique sur la population Algérienne est le point

essentiel à déterminer. Les principaux objectifs de cette étude, considérée comme une étude générale de la radioactivité dans l'environnement, peuvent être résumés comme suit :

- Détermination des activités spécifiques des radionucléides naturels issus des chaînes  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  ainsi que du  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons de matériaux de construction étudiés.
- Investigation de la présence de la radioactivité artificielle dans ces échantillons.
- Recherche de liens entre la radioactivité, la nature des roches et la pollution issue de l'activité humaine.
- Evaluation des effets radiologiques et des risques sanitaires sur le peuple Algérien dus à son exposition aux rayonnements ionisants provenant des matériaux de construction.
- Comparaison des résultats obtenus avec les données publiées à l'échelle mondiale.
- Etude de la distribution des radionucléides dans les matériaux de construction au moyen de relations statistiques complexes liant les radionucléides aux paramètres radiologiques associés.

Ce manuscrit s'articule sur cinq chapitres. Le premier chapitre rappelle brièvement des notions et des généralités sur la radioactivité et ses différents types. On y mentionne également la relation entre la concentration des éléments radioactifs et le type de roche.

Le second chapitre décrit les processus d'interaction des rayonnements ionisants avec la matière. Il rend compte de la description d'une chaîne de mesures de spectrométrie gamma et des principaux détecteurs utilisés dans les mesures de basses radioactivités.

Le troisième chapitre présente toutes les relations de doses et de paramètres permettant d'évaluer le risque radiologique qu'encourent les individus exposés aux rayonnements ionisants ainsi que leurs effets sur la matière vivante.

Le quatrième chapitre est dédié à la description de la stratégie d'échantillonnage, la méthode de préparation des échantillons, les mesures spectrométriques ainsi que l'analyse et le traitement des spectres gamma (identification et quantification des radionucléides dans les différents échantillons).

Le dernier chapitre est consacré aux résultats de mesures des activités spécifiques des radionucléides naturels et artificiels dans les échantillons étudiés. Une estimation des risques radiologiques sur l'homme dus à la radioactivité naturelle provenant des échantillons de matériaux de construction est faite par la détermination des doses reçues et des paramètres radiologiques. Enfin, des analyses statistiques sont effectuées pour évaluer la distribution spatiale des radionucléides et des paramètres radiologiques associés dans les échantillons étudiés.

Enfin, la conclusion générale est présentée pour rappeler succinctement tous les résultats obtenus et définir les perspectives tirées de ce travail de recherche.

**Chapitre I : La radioactivité dans  
l'environnement**

Ce chapitre présente une brève description de la nature et des notions sur la radioactivité et ses différents types. On y mentionne les familles radioactives naturelles qui existent dans l'environnement. Une partie est également consacrée à l'étude de la radioactivité des roches en relation avec la concentration des éléments radioactifs et les types des roches, ainsi que la composition minéralogique de chaque type de matériaux de construction.

### **I.1. Généralités sur la radioactivité et l'origine des rayonnements**

Le mot radioactivité a été donné pour la première fois suite aux travaux d'Henri Becquerel par Pierre et Marie Curie qui ont travaillé sur l'uranium et ont découvert le polonium et le radium.

La radioactivité est un processus spontané et aléatoire qui trouve son origine dans le noyau atomique contrairement à une réaction chimique qui fait intervenir les cortèges électroniques. Elle se définit par la désintégration d'un élément père vers un élément fils en émettant de l'énergie sous forme de particule ou de rayonnement électromagnétique. On distingue principalement les désintégrations ( $\alpha$ ,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ ) et la capture électronique (CE) (figure I-1).

Suite à la désintégration radioactive ( $\alpha$ ,  $\beta$ , ou fissions spontanée) le noyau fils peut se produire en général dans un état excité; il se désexcite vers son état fondamental, soit par émission radiative d'un photon gamma (transition permise) ou bien par émission non radiative appelée conversion interne (règle de sélection non respectée). La conversion interne est suivie par éjection des électrons des couches atomiques internes, appelés électrons de conversion. Les lacunes, ainsi créées dans les couches internes, seront comblées par les électrons des couches supérieures avec émission des photons de fluorescence X, ou par émission des électrons Auger si la règle de sélection atomique suivante n'est pas respectée.

$$\Delta n > 0, \Delta l = \pm 1$$

$$\Delta s = 0, \Delta j = 0, \pm 1$$

Où :

n : : nombre quantique principal;

l : nombre quantique du moment cinétique orbital;

s : nombre quantique du moment cinétique de spin;

j : nombre quantique du moment cinétique total.

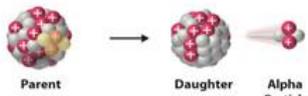
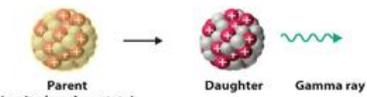
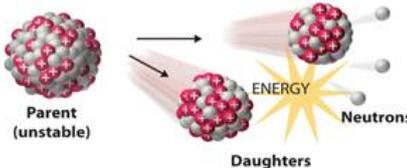
Decay Type	Radiation Emitted	Generic Equation	Model
Alpha decay	${}^4_2\alpha$	${}^A_ZX \longrightarrow {}^{A-4}_{Z-2}X' + {}^4_2\alpha$	
Beta decay	${}^0_{-1}\beta$	${}^A_ZX \longrightarrow {}^A_{Z+1}X' + {}^0_{-1}\beta$	
Positron emission	${}^0_{+1}\beta$	${}^A_ZX \longrightarrow {}^A_{Z-1}X' + {}^0_{+1}\beta$	
Electron capture	X rays	${}^A_ZX + {}^0_{-1}e \longrightarrow {}^A_{Z-1}X' + X\text{ ray}$	
Gamma emission	${}^0_0\gamma$	${}^A_ZX^* \xrightarrow{\text{Relaxation}} {}^A_ZX' + {}^0_0\gamma$	
Spontaneous fission	Neutrons	${}^{A+B+C}_{Z+Y}X \longrightarrow {}^A_ZX' + {}^B_YX' + C{}_0^1n$	

Figure I-1. Différents modes de désintégration [9].

### I.1.1. La radioactivité naturelle

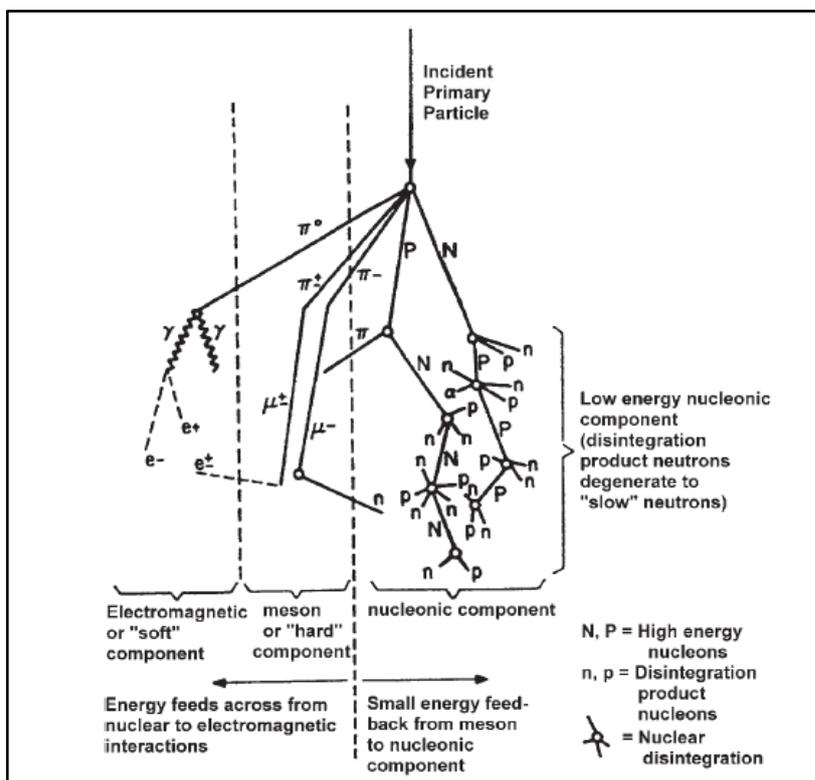
La population mondiale est toujours exposée à des rayonnements ionisants présents dans l'environnement. 85% de cette exposition est due à la radioactivité naturelle [10] et chaque être humain est exposé approximativement à 3 mSv (0.3 rem) annuellement [11]. La radioactivité naturelle existe depuis la naissance de l'univers et est causée par des radioéléments à longues demi-vies, présents dans la croûte terrestre. Cette radioactivité est divisée en deux types : terrestre et extra-terrestre (cosmique).

#### a. La radioactivité cosmique

Le rayonnement cosmique est constitué d'un flux de particules provenant de l'espace (soleil, galaxies et étoiles) qui frappent l'atmosphère puis la surface de la terre en créant des radionucléides cosmiques. Les rayonnements cosmiques primaires sont des particules et des noyaux chargés stables de hautes énergies ( $1 \text{ GeV} < E < 10^{10} \text{ GeV}$ ) [12], principalement des protons 80%, des noyaux d'hélium 15%, des électrons 2% et les noyaux de la plupart des éléments du tableau périodique (le carbone, le fer, l'oxygène, etc...) d'origine stellaire 3%.

Ces rayonnements primaires, interagissant avec les atomes de l'atmosphère, engendrent une gerbe de particules légères comme le lithium, le béryllium et le bore ( $Z=3-5$ ), ainsi que de nombreuses particules fondamentales, y compris les pions ou les hadrons (mésons, protons et neutrons) qui se désintègrent en rayons gamma (figure I-2)[13].

Le débit de dose absorbé dans l'air résultant de l'exposition au rayonnement cosmique est d'environ  $30 \text{ nGy.h}^{-1}$  au niveau de la mer. Il varie légèrement avec la latitude et augmente considérablement avec l'altitude, doublant environ tous les 1500 mètres. L'équivalent de dose annuelle effective par habitant pour la population mondiale est de  $0,36 \text{ mSv.y}^{-1}$ . Le débit de dose du rayonnement cosmique se réduit légèrement à l'intérieur des bâtiments en raison du filtrage de la composante basse énergie (photons et électrons), mais la composante de haute énergie (principalement les muons) n'est pas affectée par les matériaux de construction [14].



**Figure I-2.** Schéma du développement des rayonnements cosmiques secondaires dans l'atmosphère provenant d'une particule primaire incidente [12].

### b. La radioactivité terrestre

La radioactivité terrestre existe dans la terre depuis sa formation. Elle se trouve dans les roches, les sols, les eaux, l'air et même dans le corps humain suite à l'ingestion de denrées alimentaires. La radioactivité tellurique est issue des radionucléides primordiaux de très longues périodes, tel que l'uranium, le thorium et le potassium.

Ces radionucléides lourds ont tendance à se désintégrer en éléments plus légers. Qui peuvent être soit radioactifs ou non radioactifs. Le potassium radioactif se désintègre directement en calcium ou en argon, tous les deux sont stables. Mais la désintégration de l'uranium et du thorium est beaucoup plus intéressante : ces éléments se désintègrent à travers une série d'éléments radioactifs (y compris le radon) jusqu'à atteindre le plomb stable. Les familles radioactives de l'uranium et du thorium, en plus du potassium radioactif représentent une bonne partie du rayonnement sur terre. Ils fournissent environ les trois quarts du rayonnement que les humains reçoivent de la nature [11].

- **Le potassium ( $^{40}\text{K}$ ) et les radionucléides primordiaux**

Le potassium est présent dans la nature sous forme de trois isotopes naturels :  $^{39}\text{K}$  (93,258%),  $^{40}\text{K}$  (0,0117%),  $^{41}\text{K}$  (6,7302%). Le  $^{40}\text{K}$  est le seul isotope radioactif du potassium naturel. Sa demi-vie est de  $1,3 \times 10^9$  ans. Le  $^{40}\text{K}$  se désintègre directement en  $^{40}\text{Ca}$  (89%) et en  $^{40}\text{Ar}$  (11%) par capture électronique et émission  $\beta$ , suivi par une désexcitation  $\gamma$  de 1,46 MeV (figure I-3). Le contenu du  $^{40}\text{K}$  dans la terre varie de 70 à 1400 Bq.kg<sup>-1</sup>. Il se trouve en petites quantités dans certains basaltes et sables. Par contre, il est présent en grandes quantités dans les granites [15].

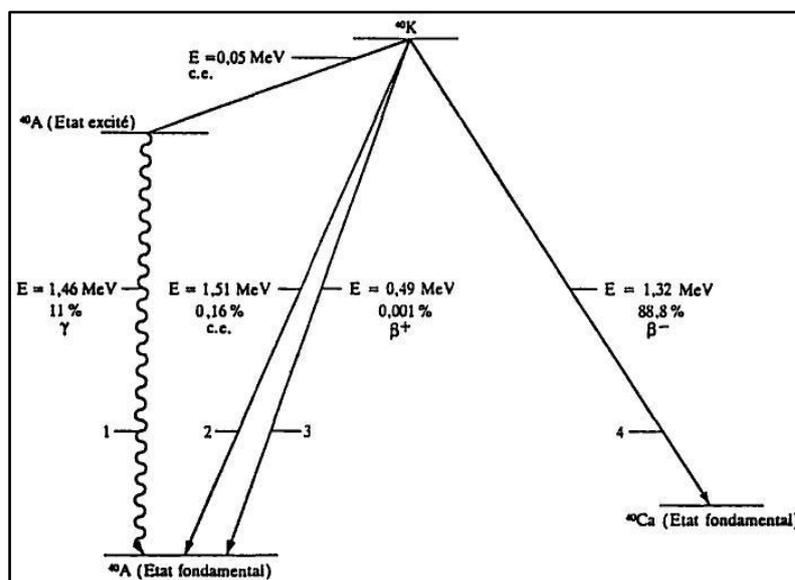


Figure I-3. Schéma de désintégration du  $^{40}\text{K}$  [16].

Le  $^{40}\text{K}$  n'est pas le seul radionucléide naturel qui est présent sur terre. Le rubidium ( $^{87}\text{Rb}$ ) se trouve dans la croûte terrestre en petites quantités (70 Bq.kg<sup>-1</sup>) avec une période de  $4,75 \cdot 10^{10}$  ans [15]. En plus du  $^{40}\text{K}$  et  $^{87}\text{Rb}$ , il existe d'autres radionucléides terrestres (tableau I-1), mais avec de très faibles activités spécifiques dans la croûte terrestre, par conséquent ils n'ont aucune importance du point de vue radiologique [15].

**Tableau I-1.** Autres radionucléides primordiaux d'origine naturelle avec leurs demi-vies, les principales émissions de rayonnement et les activités spécifiques crustales typiques de la Terre [15].

Radionucléide	Demi-vie (année)	Rayonnement majeur	Concentration typique de l'activité crustale terrestre (Bq.kg <sup>-1</sup> )
<sup>40</sup> K	1,28.10 <sup>9</sup>	β,γ	630
<sup>87</sup> Rb	4,75.10 <sup>10</sup>	Gamma	70
<sup>147</sup> Sm	1,06.10 <sup>11</sup>	Alpha	0,7
<sup>176</sup> Lu	3,73.10 <sup>10</sup>	β,γ	0,04
<sup>138</sup> La	1,05.10 <sup>11</sup>	β,γ	0,02
<sup>187</sup> Re	4,3.10 <sup>10</sup>	Beta	1.10 <sup>-3</sup>
<sup>144</sup> Nd	2,29.10 <sup>15</sup>	Alpha	3.10 <sup>-4</sup>
<sup>50</sup> V	1,4.10 <sup>17</sup>	Gamma	2.10 <sup>-5</sup>
<sup>115</sup> In	6.10 <sup>14</sup>	Beta	2.10 <sup>-5</sup>
<sup>142</sup> Ce	>5.10 <sup>16</sup>	Beta	<1.10 <sup>-5</sup>
<sup>152</sup> Gd	1,8.10 <sup>14</sup>	Alpha	7.10 <sup>-6</sup>
<sup>113</sup> Cd	9.10 <sup>15</sup>	Beta	<2.10 <sup>-6</sup>
<sup>123</sup> Te	1,24.10 <sup>15</sup>	rayons X	2.10 <sup>-7</sup>
<sup>174</sup> Hf	2,0.10 <sup>15</sup>	Alpha	2.10 <sup>-7</sup>
<sup>190</sup> Pt	6,5.10 <sup>11</sup>	Alpha	7.10 <sup>-6</sup>

- **L'uranium**

L'uranium est un élément chimique radioactif sous forme d'un métal blanc argenté dur, présent à l'état naturel en quantité significative sur Terre. Il est essentiellement composé de trois isotopes dont les proportions atomiques sont les suivantes : <sup>234</sup>U (0.0055 %), <sup>235</sup>U (0.72 %) et <sup>238</sup>U (99.275 %). Le nom d'uranium a été donné en l'honneur de la planète Uranus, lors de sa découverte en 1789 par le physicien allemand Martin Klaproth.

- **Famille de l'uranium <sup>238</sup>U (4n+2)**

L'uranium (<sup>238</sup>U) a une demi-vie très longue (4.47 × 10<sup>9</sup> années) [15]. Sa décroissance jusqu'au <sup>206</sup>Pb stable est un processus qui s'étale sur 14 désintégrations (<sup>234</sup>Th, <sup>234m</sup>Pa, <sup>234</sup>U, <sup>230</sup>Th, <sup>226</sup>Ra, <sup>222</sup>Rn, <sup>218</sup>Po, <sup>214</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>214</sup>Po, <sup>210</sup>Pb, <sup>210</sup>Bi, <sup>210</sup>Po) avec émission de 8 particules α et 6 particules β, suivi par émission de rayonnement γ (figure I-4).

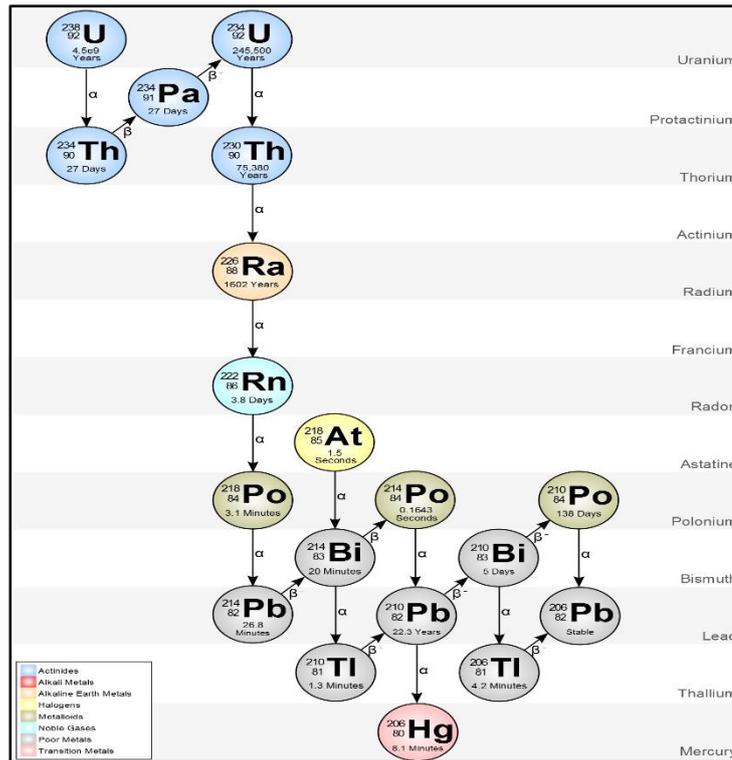


Figure I-4. Chaîne de désintégration de l' $^{238}\text{U}$  [17].

Le radium ( $^{226}\text{Ra}$ ) est le descendant le plus important de la famille de l' $^{238}\text{U}$  de point de vue radiologique, puisqu'il se désintègre en radon ( $^{222}\text{Rn}$ ). Le  $^{222}\text{Rn}$  est un gaz radioactif d'une période de 3.82 jours [15]. Ce gaz radioactif peut s'inhaler par l'homme puisque il est plus lourd que l'air (sept à huit fois) et se trouve généralement à une altitude proche du sol [18]. Le  $^{222}\text{Rn}$  se désintègre par émission des particules alpha ( $\alpha$ ), ces rayonnements peuvent interagir avec les cellules du tissu pulmonaire. Ce qui augmente la probabilité d'induire un cancer des poumons. Selon le rapport du Comité Scientifique des Nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants, le radon et ses produits de désintégration sont responsables d'environ 50% de la dose efficace annuelle reçue par un habitant adulte de la terre qui est de  $2.4 \text{ mSv.y}^{-1}$ . Cette contribution du radon dépasse considérablement celles des rayonnements gamma 19% et les rayonnements cosmique 16% [19].

L'isotope radioactif du polonium  $^{210}\text{Po}$  ( $T_{1/2} = 22 \text{ ans}$ ) est l'un des descendants du  $^{222}\text{Rn}$ . C'est un émetteur de particules  $\alpha$  de hautes énergies (5304,33 keV), suivi par désexcitation  $\gamma$  de faible énergie (46.5 keV). Ces dernières décennies, de nombreuses recherches ont été menées pour déterminer sa présence dans l'environnement, puisqu'il est lié aux cancers des os et des tissus mous et contribue fortement à la dose interne [20]. Outre sa capacité à entrer dans la chaîne alimentaire et sa bioaccumulation, il constitue un danger potentiel pour la santé humaine.

➤ **Famille de l'uranium  $^{235}\text{U}$  ( $4n+3$ )**

Une deuxième série de désintégration de l'uranium commençant par l' $^{235}\text{U}$  (demi-vie =  $7.04 \cdot 10^8$  ans) [15] existe également, mais contribue peu à notre irradiation. Sa décroissance jusqu'au  $^{207}\text{Pb}$  stable est un processus qui s'étale sur 12 désintégrations ( $^{231}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{227}\text{Ac}$ ,  $^{227}\text{Th}$ ,  $^{223}\text{Fr}$ ,  $^{223}\text{Ra}$ ,  $^{219}\text{Rn}$ ,  $^{215}\text{Po}$ ,  $^{211}\text{Pb}$ ,  $^{211}\text{Bi}$ ,  $^{207}\text{Tl}$ ) avec émission de 7 particules  $\alpha$  et 5 particules  $\beta$ , suivi par émission de rayonnement  $\gamma$  (figure I-5). En spectrométrie  $\gamma$ , la mesure de la raie principale de l' $^{235}\text{U}$  (185.72 keV) coïncide avec celle du  $^{226}\text{Ra}$  (186,21 keV) ce qui induit des problèmes d'interférences dans l'analyse des échantillons.

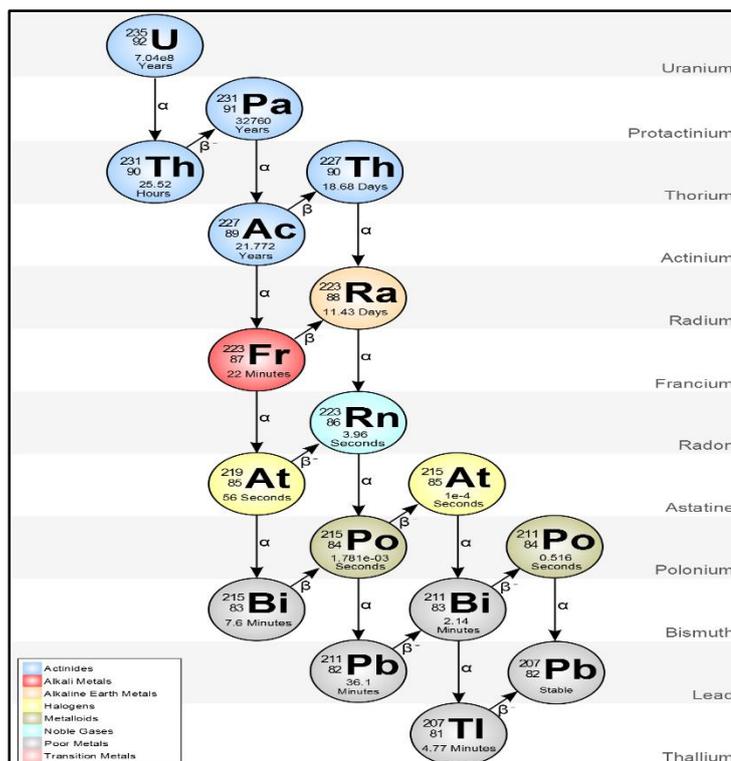


Figure I-5. Chaîne de désintégration de l' $^{235}\text{U}$  [17].

• **Le Thorium**

Le thorium est un métal gris découvert en 1828 par le chimiste suédois Berzelius. C'est le deuxième élément de la série des actinides. Certaines de ses propriétés le rapprochent, soit du titane, soit du cérium, soit du plutonium. Pratiquement 100% du thorium naturel est constitué de l'isotope  $^{232}\text{Th}$ .

➤ **Famille du thorium  $^{232}\text{Th}$  ( $4n$ )**

La demi-vie du  $^{232}\text{Th}$  est très longue ( $4.47 \times 10^9$  années) [15]. Sa décroissance jusqu'au  $^{206}\text{Pb}$  stable produit 10 nucléides radioactifs significatifs ( $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{216}\text{Po}$ ,

$^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Po}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ ), avec émission de 7 particules  $\alpha$  et 5 particules  $\beta$ , suivi par émission de rayonnement  $\gamma$  (figure I-6).

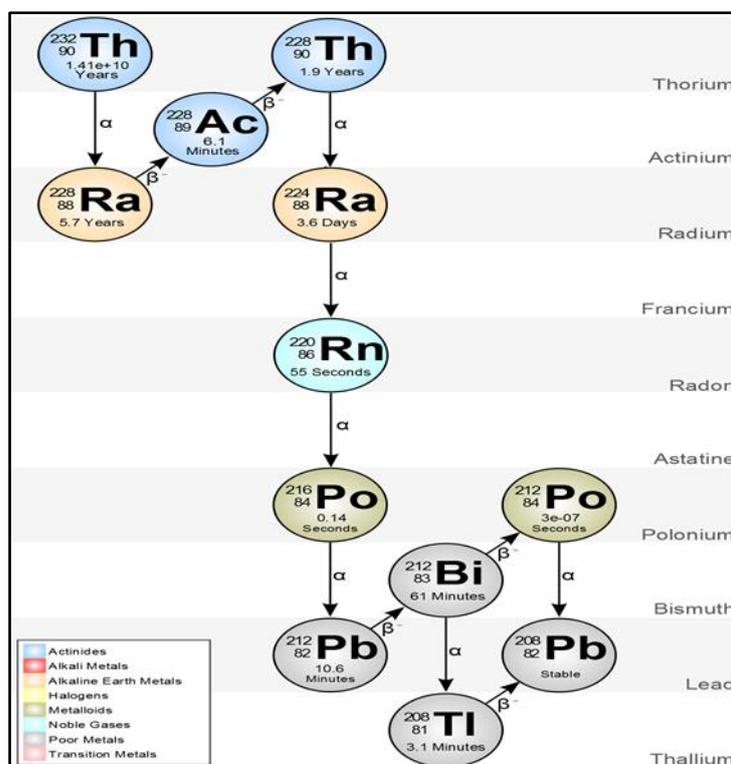


Figure I-6. Chaîne de désintégration de  $^{232}\text{Th}$  [17].

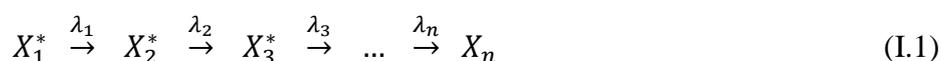
### I.1.2. Radioactivité artificielle

Les sources radioactives sont devenues un facteur important dans notre vie quotidienne après la découverte de la radioactivité artificielle par Irène et Frédéric Joliot-Curie en 1934. La qualité et la quantité de nos aliments, notre santé, et par conséquent notre bien-être est due en grande partie aux sources radioactives et leurs nombreuses applications en médecine, biologie, agriculture, industrie et dans le secteur militaire [13]. Toutes ces applications exposent la population mondiale aux sources de rayonnements. En effet, les installations nucléaires rejettent des radio-isotopes sous formes gazeuses, liquides ou diffuses. Les principaux radioéléments rejetés sont  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ , les isotopes de l'iode, des gaz rares et quelques produits d'activation et de fission. La médecine nucléaire contribue aussi aux déchets nucléaires dans l'environnement sous forme de sources liquides ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ,  $^{201}\text{Tl}$ ,  $^{123}\text{I}$  et  $^{18}\text{F}$ ). Les essais nucléaires militaires ont conduit à l'apparition de nombreux radionucléides dans l'environnement, essentiellement le  $^{137}\text{Cs}$  [21].

Des accidents peuvent malheureusement se produire, Comme ceux de Fukushima (2011) et de Tchernobyl (1986), entraînant parfois l'exposition aigue d'une ou de plusieurs personnes et pouvant aussi avoir un impact sanitaire sur la population et l'environnement à plus long terme.

### I.1.3. Filiations radioactives

On appelle filiation radioactive la série de désintégrations successives que subissent certains noyaux lourds dont le temps de vie est de l'ordre du milliard d'années comme l' $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , et  $^{232}\text{Th}$ ; dans laquelle l'atome instable se transforme en un atome moins instable moyennant une redistribution de l'énergie de liaison entre les différents nucléons du noyau de cet atome. Le réaménagement interne du noyau père conduit à un noyau fils qui s'il est lui-même radioactif conduit à un nouveau noyau, et ainsi de suite jusqu'à atteindre un noyau stable. Chaque réarrangement donne lieu à l'émission d'un rayonnement. Le passage du noyau père au noyau fils est caractérisé par les équations d'évolution comme l'indique la relation (I.1).



où  $X_n$  est l'isotope stable de la filiation radioactive,  $\lambda_i$  est la constante désintégration qui est liée à la période :

$$\lambda_i = \frac{\ln 2}{T_i} \quad (\text{I.2})$$

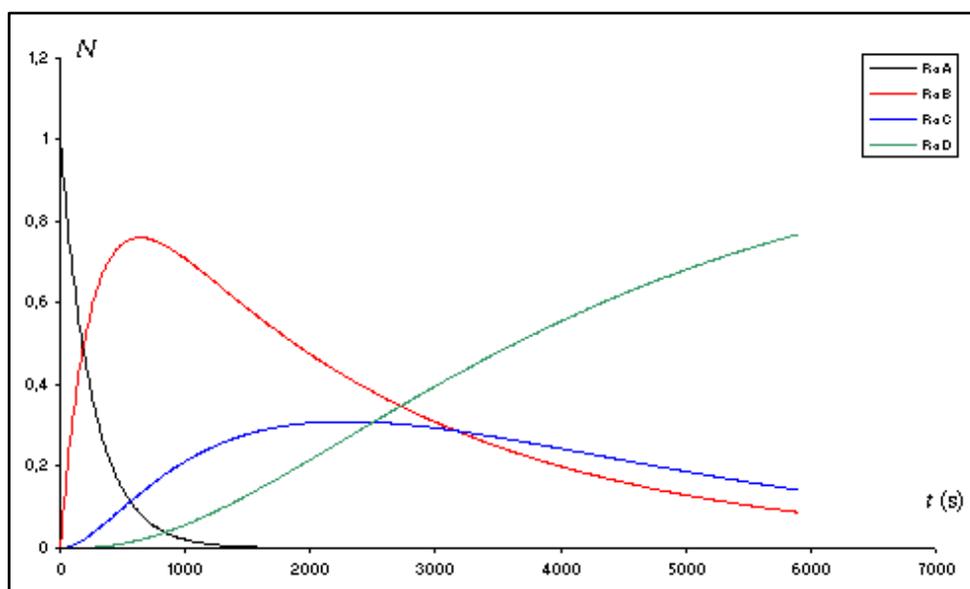


Figure I-7. Filiation radioactive au cours du temps [22].

Les équations différentielles régissent l'évolution des populations des noyaux pères et des noyaux fils en fonction du temps :

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_{i-1}N_{i-1} - \lambda_iN_i \quad (\text{I.3})$$

La solution générale d'une filiation de n corps est donnée par la relation suivante [23] :

$$N_n(t) = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + \dots + C_n e^{-\lambda_n t} \quad (\text{I.4})$$

Les coefficients  $C_1, C_2 \dots C_n$  sont donnés par les relations suivantes :

$$C_i = \frac{\lambda_i}{\lambda_n - \lambda_i} \prod_{j \neq n}^{j \neq i} \frac{\lambda_j}{\lambda_j - \lambda_i}, \quad i = 1, 2, 3, \dots, n - 1 \quad (\text{I.5})$$

$$C_n = \prod_{j \neq n} \frac{\lambda_j}{\lambda_j - \lambda_n} \quad (\text{I.6})$$

#### I.1.4. Equilibre radioactif

Un équilibre radioactif existe quand un élément radioactif se désintègre à la même vitesse à laquelle il est produit. La concentration des noyaux fils dans l'équilibre radioactif dépend principalement des constantes de désintégration des noyaux pères et fils. Un équilibre radioactif ne s'établit pas immédiatement, mais il n'a lieu qu'après une période de transition qui est de l'ordre de quelques demi-vies du noyau le plus long de la chaîne de désintégration. On distingue trois types d'équilibre radioactif :

- **Equilibre idéal** : Les noyaux père et fils sont en équilibre idéal lorsque leurs activités sont égales et celle du noyau fils atteint son maximum :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 = 0 \Rightarrow \lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 \quad (\text{I.7})$$

$$\text{D'où} \quad A_1(t) = A_2(t) = A_{2max} \quad (\text{I.8})$$

Le temps maximum nécessaire pour atteindre cet équilibre est donné par la relation suivante :

$$t_m = \frac{\ln \left( \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)}{(\lambda_1 - \lambda_2)} \quad (\text{I.9})$$

- **Equilibre de régime** : Cet équilibre est atteint lorsque la période du noyau père est légèrement supérieure à celle du noyau fils. L'évolution des activités des deux nucléides reste dans un rapport constant sachant que l'activité du noyau fils est reliée à celle du père par :

$$A_2 \approx A_1 \frac{(\lambda_2 - \lambda_1)}{\lambda_2} \quad (\text{I.10})$$

- **Equilibre séculaire** : Cet équilibre se manifeste lorsque la période du noyau père est très longue par rapport à celle du noyau fils et que l'activité du noyau père est quasi-constante. L'activité du noyau fils augmente jusqu'à arriver au même niveau que celle du noyau père et reste constante.

$$A_1(t) \approx A_2(t) \quad (1.11)$$

## I.2. La radioactivité des roches

L'uranium et le thorium sont largement distribués à travers la croûte terrestre. L'uranium, avec une abondance moyenne de 2,4 ppm est plus abondant que des éléments fréquents comme l'argent, l'or, l'arsenic, le mercure, le molybdène, l'antimoine et l'étain. Le thorium, à 12 ppm, est à peu près aussi abondant que le plomb et le bore [24].

L'uranium, le thorium et leurs descendants ainsi que le potassium se trouvent sous forme d'ions qui s'insèrent dans des minéraux à grande ouverture de structure cristalline. Ces minéraux sont les plus communs dans certains types de roches évoluant à travers différents processus dans la croûte terrestre [25]. Les radionucléides naturels que l'on trouve dans différentes roches sont à l'origine des inclusions, des fissures et de dispersion dans les minéraux. Pratiquement, toutes les roches contiennent des éléments radioactifs. Ce sont pour la majeure partie, le  $^{232}\text{Th}$  ( $1,6 \cdot 10^{14}$  tonnes), l' $^{238}\text{U}$  ( $5 \cdot 10^{13}$  tonnes), le  $^{40}\text{K}$  qui représente environ 2.5% du poids de la croûte terrestre et dans une moindre mesure l' $^{235}\text{U}$  ( $3,5 \cdot 10^{11}$  tonnes). Les teneurs des roches en différents radionucléides dépendent en fait de la manière dont s'est formée la roche, et de la composition minéralogique de celle-ci [26].

- **Les roches sédimentaires** Les roches sédimentaires sont composées principalement d'éléments clastiques ou détritiques, qui proviennent de la désagrégation, par différents procédés d'érosion, de roches préexistantes : roches magmatiques, métamorphiques et même sédimentaires.

Ce type de roches se forme généralement en milieu aqueux (lacs, mers, océans). La densité de l'uranium et du thorium des roches sédimentaires est élevée (U = 18,95 ; Th = 11,72), vu qu'elles proviennent directement ou indirectement des roches magmatiques. Les éléments radioactifs se déposeront partiellement au pied de la roche-mère, ou pendant le transport, ou atteindront le bassin de sédimentation donc ils sont fortement dispersés, les roches sédimentaires en contiendront moins que la roche-mère. Une roche sédimentaire, déjà pauvre en U et Th, désagrégée à son tour par l'érosion, donnera des sédiments encore

moins riches en ces éléments [26]. Les roches sédimentaires peuvent être classés sur la base du critère « radioactivité » en :

**1- Roches à radioactivité élevée :**

- La plupart des argiles ;
- Les schistes noirs ;
- Les évaporites potassiques ;
- Les phosphates ;
- Certains sables et grès riches en minéraux accessoires à uranium et thorium ;
- Les granites potassiques et les roches qui en découlent par érosion [26].

**2- Roches à radioactivité moyenne:**

- Les grès et les sables ;
- Les gneiss [26].

**3- Roches à radioactivité faible :**

- Les calcaires et les dolomies ;
- Les charbons en général ;
- Les évaporites sans potassium, l'halite et l'anhydrite ;
- Les roches basiques et ultrabasiques [26].

- **Les roches magmatiques :** les roches magmatiques (ignée) se forment par refroidissement et solidification d'un magma qui peut être considéré comme étant un mélange de liquide, de gaz et de cristaux, plus ou moins visqueux et susceptible de se déplacer. La radioactivité de ces roches est très élevée par rapport aux autres types de roches grâce à la présence des minéraux accessoires (zircon, titanite, apatite, allanite, xenotime et monazite). Les teneurs moyennes en uranium, thorium et potassium sont de l'ordre de 3.50 ppm, 18 ppm et 3.34%, successivement, pour les roches acides qui contiennent plus de 60% de silice ( $\text{SiO}_2$ ) et de 0.5 ppm, 3 ppm et 0.83% pour les roches basiques, contenant moins de 50% de silice [27].
- **Les roches métamorphiques :** Les roches métamorphiques sont issues de la transformation de roches ignées ou sédimentaires en raison des modifications des paramètres physico-chimiques du milieu dans lequel elles évoluent (notamment la pression et la température). Sous l'influence d'agents internes, la teneur en uranium, thorium et potassium de ces roches est le résultat du contenu original du matériau primaire et peut avoir été modifiée par des processus métamorphiques. Le marbre est l'une des roches métamorphiques, il contient 0.4% de potassium, 1.1% d'uranium et 1.8% de thorium [27].

### I.3. La composition minéralogique des matériaux de construction

Les matériaux de construction sont considérés comme une source d'exposition externe et interne aux rayonnements ionisants vu qu'ils sont constitués principalement de roches et sols, qui sont composés de minéraux contenant des radionucléides naturels et parfois artificiels. Les concentrations de ces radionucléides dans les divers matériaux de construction varient selon la nature de la roche et sa composition minéralogique.

- **Le sable** est un matériau granulaire composé de particules minérales et de fragments de roches dont la dimension est comprise entre 0,063 mm et 2 mm selon les géologues. Il provient de l'érosion, des cailloux cassés et de l'altération des roches. Sa composition peut révéler jusqu'à 180 minéraux, cependant il est principalement constitué de silica (silicon dioxide  $\text{SiO}_2$ ) sous forme de quartz.
- **Le ciment** est un liant hydraulique qui se présente sous forme d'une poudre de grains anhydres essentiellement composée de clinker et de sulfate de calcium dans un rapport massique d'environ 95-5 %. Le clinker est obtenu par cuisson à 1450°C du cru (mélange d'argile et de calcaire). La composition minérale du cru peut varier d'une cimenterie à une autre, en fonction de la qualité du gisement exploité. Cependant, elle reste dans des proportions bien définies :
  - Carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ) : 67 %
  - Silice ( $\text{SiO}_2$ ) : 22 %
  - Alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) : 5 %
  - Oxyde ferrique ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) : 3%
  - Autres composants : 3% [28]
- **Le gypse** est l'un des minéraux sulfatés commun qui est composé de sulfate de calcium hydraté ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ).
- **La céramique** à base d'argile est largement utilisée pour fabriquer des briques, des carreaux de sols et des murs, des canalisations, des carrelages, etc.... Un produit céramique est constitué principalement de matières premières plastiques et non plastiques.
  - Matières premières plastiques [29]
    - La Kaolinite ou Argile Kaolin  $\text{Si}_2\text{Al}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ .
    - Montmorillonite ou Argile bentonite  $4\text{SiO}_2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ .

- Illite  $[\text{Si}_{3,4} \text{Al}_{0,6}][\text{Al}_2]\text{O}_{10}(\text{OH}_2)\text{K}_{0,6}$ .
- Chlorites  $(\text{Fe}, \text{Mg}, \text{Al})_6(\text{Si}, \text{Al})_4\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ .

➤ Matières premières non plastiques [29]

- Sable.
- Chamotte.
- La craie, le minéral de cette roche est le carbonate de calcium  $\text{CaCO}_3$ .
- Les feldspaths potassiques  $6\text{SiO}_2\text{Al}_2\text{O}_3\text{K}_2\text{O}$ .
- Micas  $6\text{SiO}_2, 3\text{Al}_2\text{O}_3, \text{K}_2\text{O}, 2\text{H}_2\text{O}$ .
- Le talc  $4\text{SiO}_2, 3\text{MgO H}_2\text{O}$ .

**a) La brique** est un produit céramique qui est constitué principalement d'argile. Ce matériau très léger est composé de plusieurs types de roches. Les composants les plus utilisés sont l'alumine (8 à 25 %), l'oxyde de fer (2 à 10 %), l'oxyde de titane (0,3 à 2 %), la chaux (2 à 10 %), la silice (35 à 80 %), la soude (0,1 à 1 %), la potasse (0,5 à 4,5 %), l'anhydride carbonique (0 à 15 %). Les propriétés de certaines argiles et notamment les argiles naturelles les rendent très élastiques, rendant nécessaire l'ajout de dégraissants pour faciliter le façonnage (sable, argile cuite broyée, etc...) [30].

**b) La faïence** est un produit céramique qui est composé principalement d'un mélange d'argile, des feldspaths, de la silice, du talc, de kaolin et du sable recouverte en surface d'un émail en zircon ( $\text{ZrSiO}_4$ ) qui la rend imperméables aux liquides.

**Chapitre II : Interactions rayonnements-  
matière et spectrométrie  $\gamma$**

D'une manière générale, on peut définir un rayonnement ou une radiation comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme d'ondes électromagnétiques ou de particules. Les rayonnements ne peuvent être détectés et caractérisés que grâce à leur interaction avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu qu'ils traversent, la totalité ou une partie de leur énergie au cours de ces interactions. Parmi les rayonnements ionisants, on distingue ceux qui sont directement ionisants et sont constitués de particules chargées ( $\alpha$ ,  $\beta$ , muons, fragments de fission, ions, . . .). Ils transfèrent leur énergie directement à la matière, par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant entre eux et les atomes du milieu. Les transferts d'énergie dépendent des masses des particules en mouvement et il y a lieu de distinguer entre particules chargées lourdes (proton, deuton, alpha, ions lourds) et électrons. Ou ceux indirectement ionisants (photons (X,  $\gamma$ ) et les neutrons), qui sont électriquement neutres et sont susceptibles de transférer une importante fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction aux particules chargées du milieu. Ce sont ensuite ces particules secondaires qui ionisent à leur tour le milieu.

Ce chapitre passe en revue les diverses manières dont s'effectuent ces transferts d'énergie. Nous nous limiterons aux processus d'interactions des photons et des électrons avec la matière dans la première partie de ce chapitre. La deuxième partie du chapitre décrit le principe de la spectroscopie gamma en utilisant un détecteur à semi-conducteur dans le cadre de l'analyse de la radioactivité environnementale. On présente alors une introduction au principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteur (germanium hyper pure) et les critères utilisés pour caractériser leurs performances (efficacité, résolution, sensibilité).

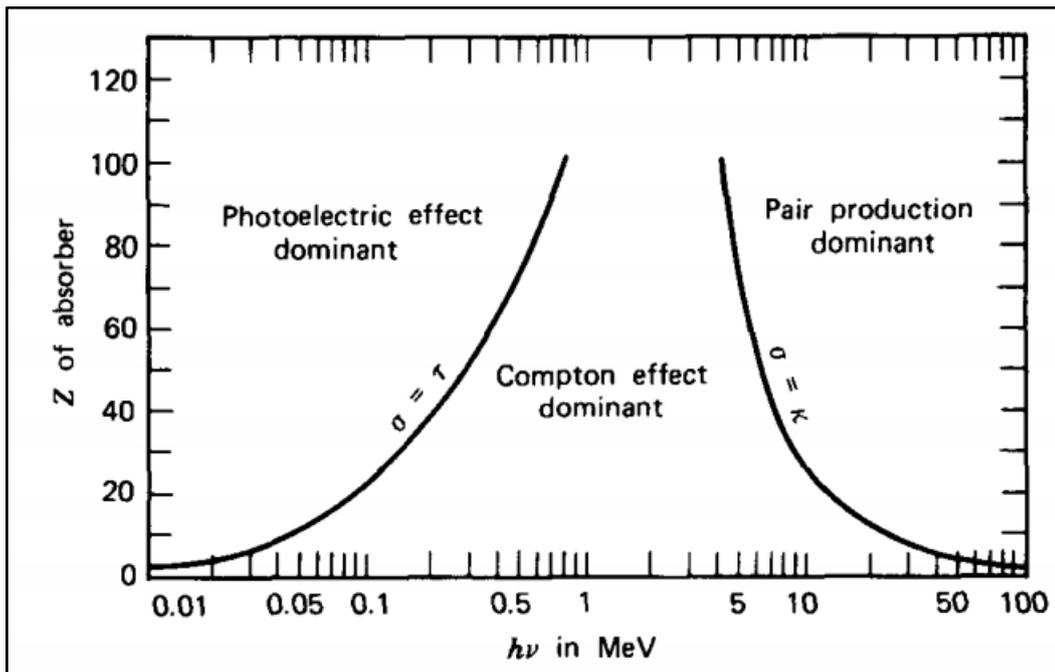
## **II.1. Rayonnements $\gamma$ et leurs interactions avec la matière**

### **II.1.1. Rayonnements $\gamma$**

Le rayonnement  $\gamma$ , mis en évidence par le physicien français Paul Villard en 1900, se trouve à l'extrême du spectre électromagnétique, à des énergies typiquement comprise entre 0.1 et 10 MeV [21]. Les photons gamma proviennent du noyau et contrairement aux particules alpha et beta, ils n'ont ni masse ni charge. Le rayonnement gamma est une quantité d'énergie électromagnétique qui se déplace à la vitesse de la lumière en traversant des centaines de mètres dans l'air avant d'être atténué.

### II.1.2. Processus d'interaction des photons $\gamma$ avec la matière

Lorsque les rayons  $\gamma$  traversent la matière, ils peuvent subir différents types d'interactions en fonction de leur énergie et du milieu traversé (figure II-1). Parmi le nombre de processus d'interactions possibles des rayons gamma avec la matière, trois mécanismes jouent les rôles les plus importants : l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la création de paires.



**Figure II-1.** Types d'interaction prépondérants en fonction de l'énergie du photon et du numéro atomique  $Z$  du matériau traversé [31].

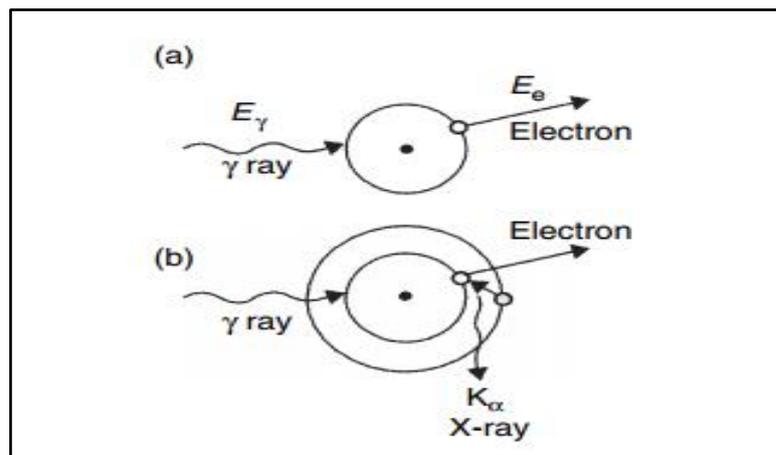
#### a. Effet photoélectrique

Dans ce processus, lors d'une interaction d'un photon avec la matière, il transfère toute son énergie à un électron du cortège électronique de l'atome. Par conséquent, le photon disparaît complètement et un photoélectron est éjecté par l'atome (figure II-2). Ce processus est prépondérant en-dessous d'une centaine de ( $E_\gamma \leq 200$  keV) [31]. L'énergie de l'électron émis peut être décrite par l'équation photoélectrique d'Einstein.

$$E_e = h\nu - E_L \quad (\text{II.1})$$

où  $E_e$  est l'énergie de l'électron émis,  $h\nu$  est l'énergie du photon incident, et  $E_L$  est l'énergie de liaison de l'électron ou l'énergie nécessaire pour éjecter l'électron de l'atome.

Lorsqu'un électron d'une couche profonde K ou L est éjecté d'un atome par effet photoélectrique, un autre électron d'une couche supérieure descend pour combler l'écart résultant. Cette transition électronique produit alors soit purement un rayon X caractéristique, soit l'émission d'un autre électron de l'atome ayant absorbé ce photon X. C'est qu'on appelle un électron Auger.



**Figure II-2.** (a) Le mécanisme de l'effet photoélectrique, et (b) l'émission de rayons fluorescents X [32].

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 [31] :

$$\sigma_{pe} = cste \cdot \frac{Z^n}{E_\gamma^{3.5}} \quad (\text{II.2})$$

où l'exposant  $n$  varie entre 4 et 5.

La forte dépendance à l'énergie des photons et du numéro atomique  $Z$  du matériau est la raison pour laquelle le processus photoélectrique est prédominant à basse énergie des photons et est favorisé dans les matériaux lourds (figure II-3).

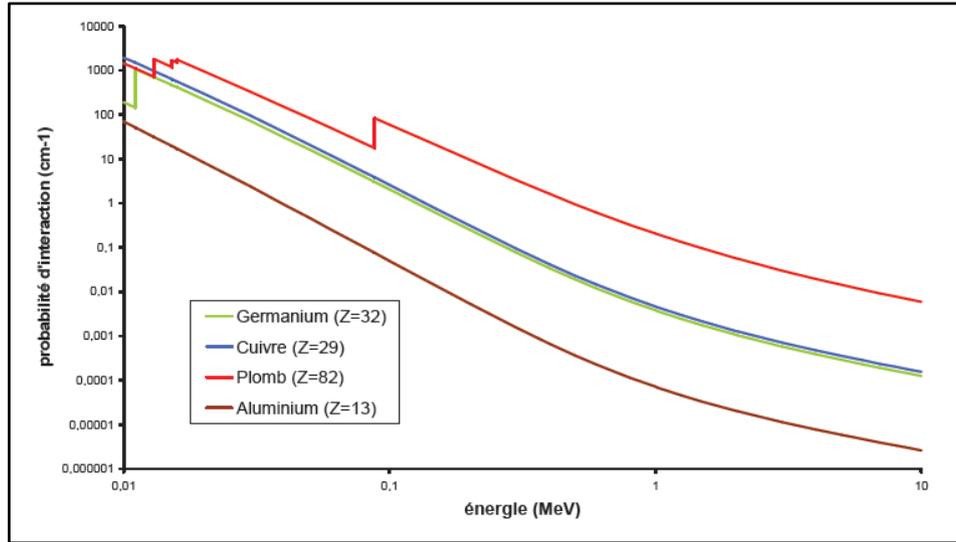


Figure II-3. Probabilité d'interaction par effet photoélectrique dans différents matériaux [33].

**b. Effet Compton**

Ce processus est une collision inélastique entre un photon gamma incident et un électron libre ou peu liée (énergie de liaison inférieure à l'énergie du photon incident). Contrairement à l'effet photoélectrique, le photon  $\gamma$  transfère une fraction de son énergie à l'électron périphérique. Par conséquent, le photon est diffusé d'un angle  $0 \leq \theta \leq \pi$  par rapport à sa direction d'origine avec une énergie  $E'_\gamma$  et l'électron recule selon l'angle  $0 \leq \varphi \leq \frac{\pi}{2}$  avec une énergie cinétique  $E_e$  (Figure II-4). Les lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion totales donnent les relations suivantes [32] :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e c^2} (1 - \cos\theta)} \tag{II.3}$$

$$E_e = E_\gamma - E'_\gamma = \frac{m_e c^2 (1 - \cos\theta)}{1 + m_e c^2 (1 - \cos\theta)} E_\gamma \tag{II.4}$$

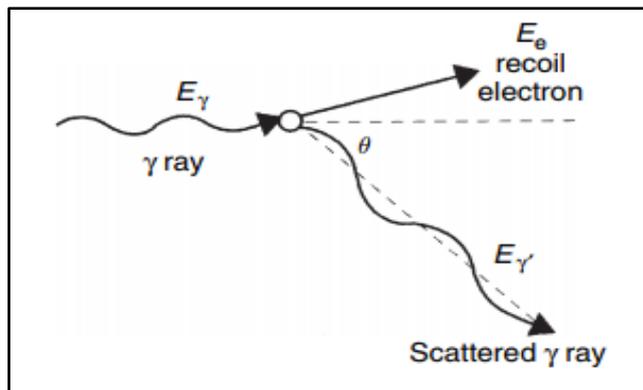


Figure II-4. Diffusion Compton [32].

La distribution angulaire des rayons gamma diffusés est prédite par l'équation de Klein et Nishina où la section efficace différentielle par angle solide est exprimée en fonction de l'énergie du photon incident  $E_\gamma$  et de l'angle de diffusion  $\theta$  [34].

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{r_0^2}{2} \frac{1}{(1+m_e c^2(1-\cos\theta))^2} \left(1 + \cos^2\theta + \frac{(m_e c^2)^2(1-\cos\theta)^2}{1+m_e c^2(1-\cos\theta)}\right) \quad (\text{II.5})$$

La section efficace de diffusion Compton dépend du nombre d'électrons disponibles comme cibles de diffusion et augmente donc linéairement avec  $Z$ , et diminue progressivement avec l'augmentation de l'énergie [31].

$$\sigma_c = \frac{Z}{E_\gamma} \quad (\text{II.6})$$

### c. Production de paires

Le processus de production de paires ou matérialisation du photon incident peut se produire si l'énergie du photon gamma dépasse le double de la masse d'un électron au repos ( $E_\gamma \geq 2E_0 = 1,02 \text{ MeV}$ ). Dans ce type d'interaction qui se produit dans le champ coulombien du noyau, le photon gamma disparaît et est remplacé par une paire électron-positon. Toute l'énergie excédentaire transportée par le photon au-dessus des 1,02 MeV nécessaires pour créer la paire entre en énergie cinétique partagée entre le positron et l'électron. D'après la conservation de l'énergie :

$$E_\gamma = E_- + E_+ + 2E_0 \quad (\text{II.7})$$

avec  $E_-$  et  $E_+$  les énergies cinétiques de l'électron et du positron respectivement.

En fin de ralentissement, le positron s'annihile avec un électron au repos, qui donne lieu à l'émission de deux photons d'annihilation d'énergie 511 keV chacun (Figure II-5).

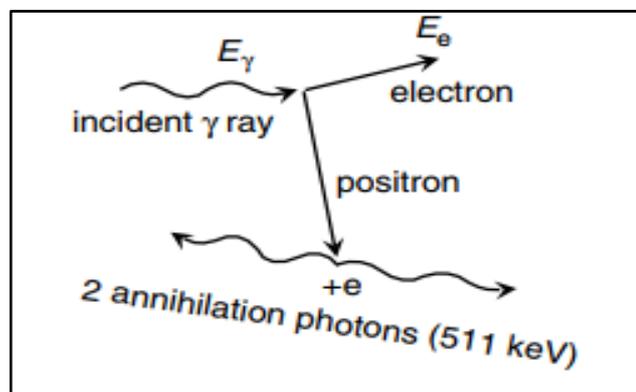


Figure II-5. Création d'une paire électron-positron [32].

La section efficace du processus de création de paires dépend de l'énergie du photon incident et de Z du milieu traversé. Elle est donnée par les relations suivantes :

$$\sigma_{pair} = \begin{cases} \alpha r_0^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \log\left(\frac{2E_\gamma}{E_0}\right) - \frac{218}{27} \right] & \text{si } 2E_0 < E < \frac{E_0 Z^{-1/3}}{\alpha} \\ \alpha r_0^2 Z^2 \left[ \frac{28}{9} \log(183Z^{-1/3}) - \frac{2}{27} \right] & \text{si } E \geq \frac{E_0 Z^{-1/3}}{\alpha} \end{cases} \quad (\text{II.8})$$

avec  $\alpha = 1/137$  est la constante de la structure fine.

### II.1.3. Atténuation et libre parcours moyen

Lorsqu'un faisceau de photons traverse la matière, son intensité diminue due au phénomène de son atténuation dans le milieu traversé. Cette atténuation suit une loi exponentielle décroissante entre le nombre de photons incidents  $I_0$  et le nombre de photons transmis  $I$  à travers l'épaisseur  $x$  du milieu, comme l'indique la relation (II.9).

$$I(x) = I_0 \cdot e^{-\mu x} \quad (\text{II.9})$$

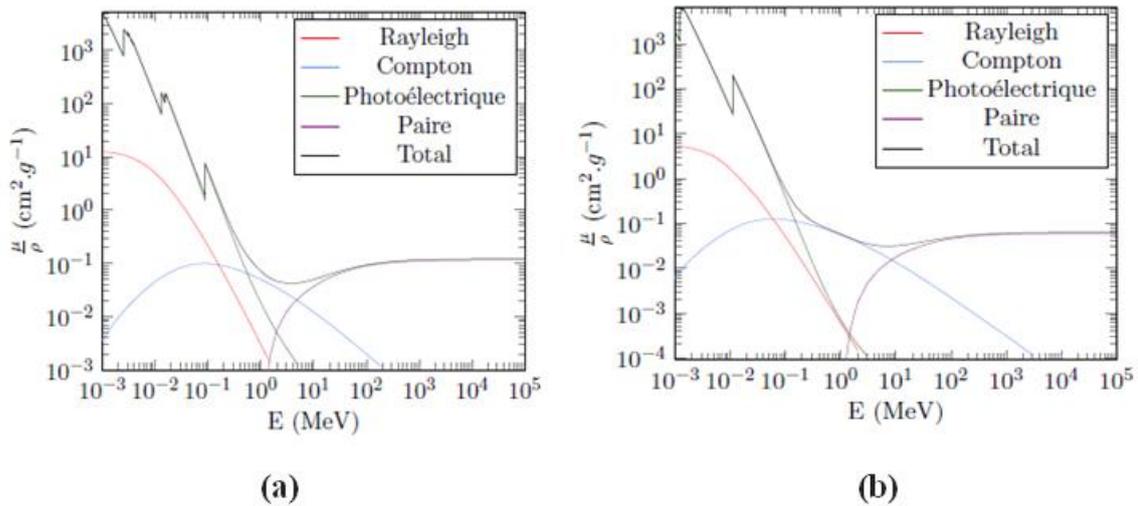
$\mu$  étant le coefficient d'atténuation linéique total qui dépend de l'énergie du photon incident et de la nature du milieu traversé. Il est défini par l'équation (II.10).

$$\mu(\text{cm}^{-1}) = n \sigma_{tot} = \frac{N_A \rho}{M} \sigma_{tot} \quad (\text{II.10})$$

avec  $N_A$  le nombre d'Avogadro,  $\rho$  la masse volumique et  $M$  la masse molaire. On définit le coefficient d'atténuation massique par le rapport du coefficient d'atténuation linéique total sur la masse volumique du milieu.

$$\mu_m(\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}) = \frac{\mu}{\rho} \quad (\text{II.11})$$

Les coefficients d'atténuation massique sont disponibles dans la littérature. La figure II-6 montre les atténuations dans les deux matériaux généralement utilisés en spectrométrie  $\gamma$ , le plomb qui forme le blindage du système de détection et le germanium qui constitue le cristal du détecteur.



**Figure II-6.** Coefficients d'atténuation massique pour le Plomb (a) et le Germanium (b) [33].

Le libre parcours moyen est la distance moyenne parcourue par un photon d'énergie donnée avant la première interaction dans un matériau. Contrairement aux particules chargées, les photons n'interagissent que très peu avec le milieu traversé. De plus, il existe une probabilité élevée pour qu'un photon traverse une épaisseur de matière sans interagir : un photon de 1 MeV a 74 % de chances de ne subir aucune interaction en traversant 1 cm de germanium. Le libre parcours moyen peut être défini par l'inverse du coefficient d'atténuation linéique.

$$\lambda(\text{cm}) = \frac{1}{\mu} \quad (\text{II.12})$$

## II.2. Interaction des électrons avec la matière

### II.2.1. Les électrons

L'électron est une particule légère porteuse d'une charge électrique élémentaire, négative pour les négatons ( $\beta^-$ ) et positive pour les positons ( $\beta^+$ ). Il a été découvert en 1897 par Sir Joseph John Thomson. Lors de leur passage dans la matière, les électrons perdent leurs énergies par collisions élastiques et inélastiques avec les électrons et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur.

### II.2.2. Interaction avec les électrons atomiques

Il s'agit d'un mécanisme de collisions élastique et inélastique d'un électron ou d'un positron de basse énergie avec les électrons du cortège atomique.

Dans le premier processus, les électrons sont fortement déviés, sans pratiquement perdre de l'énergie. Concernant le deuxième processus, c'est l'effet principal responsable de la perte d'énergie des électrons dans le milieu traversé. Dans ce type de collision, l'énergie est transférée de l'électron à l'atome en produisant une ionisation suivie par l'éjection d'un électron secondaire qui peut interagir à son tour avec le milieu traversé ou une excitation de l'atome qui donne naissance à un rayon X ou un électron Auger. La quantité d'énergie transférée lors de chaque collision est une très faible portion de l'énergie cinétique de l'électron incident. Tandis que le nombre de collisions par unité de parcours est tellement grand que l'on peut observer une perte d'énergie substantielle même dans des matériaux de faibles épaisseurs. La perte d'énergie par collision inélastique est donnée par la formule de Bethe et Bloch [31]:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{coll} = \frac{2\pi e^4 NZ}{m_e v^2} \left( \ln\left(\frac{m_e v^2 E}{2I^2(1-\beta^2)}\right) - (\ln 2)(2\sqrt{1-\beta^2} - 1 + \beta^2) + (1-\beta^2) + \frac{1}{8}(1-\sqrt{1-\beta^2})^2 \right) \quad (\text{II.13})$$

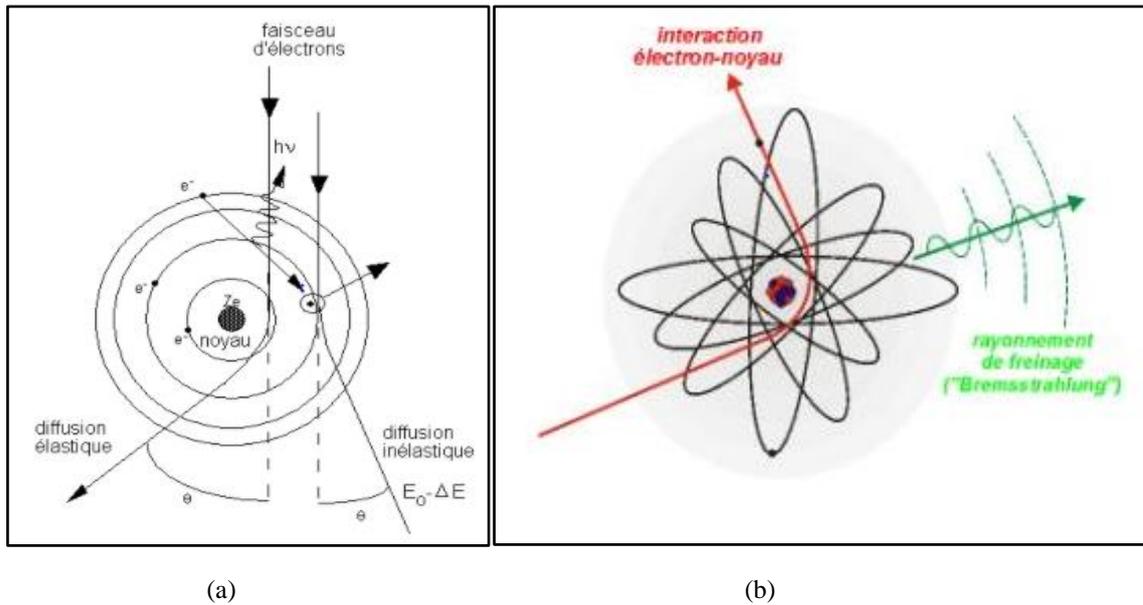
où  $\beta = \frac{v}{c}$  la vitesse réduite et  $I$  le potentiel moyen d'excitation qui dépend de la nature du matériau et  $c$  est la vitesse de la lumière dans le vide.

### II.2.3. Interaction avec le champ du noyau

Dans le champ du noyau, la particule chargée (électron, positron) subit une forte décélération, qui engendre une émission d'un rayonnement X de freinage appelé (Bremsstrahlung). Il est caractérisé par le pouvoir d'arrêt radiatif qui est la fraction d'énergie perdue par les électrons et les positrons par freinage.

Ce processus est plus dominant pour les électrons (et les positrons) de haute énergie. La perte d'énergie linéique par rayonnement de freinage s'écrit :

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_{Brem} = S_{rad} = \frac{NEZ(Z+1)}{137m_e c^2} \left( 4 \ln\left(\frac{2E}{m_e c^2}\right) - \frac{4}{3} \right) \quad (\text{II.14})$$



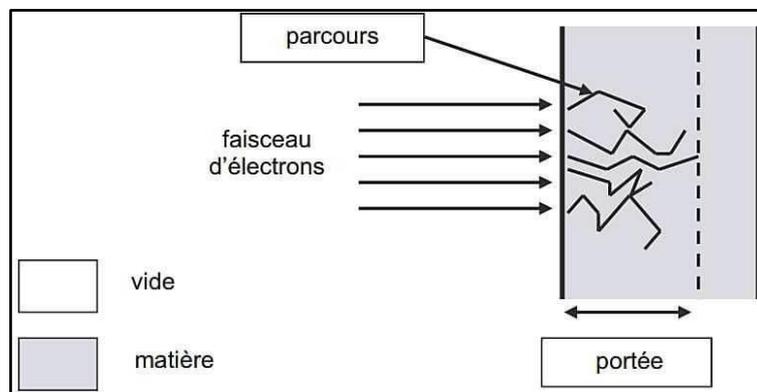
**Figure II-7.** Différents processus d'interaction des électrons avec la matière  
 (a) interaction électron-électron, (b) interaction électron-noyau [35].

### II.2.4. Parcours des électrons dans la matière

Il s'agit de la distance maximale parcourue par un électron dans un matériau jusqu'à ce qu'il perde toute son énergie. Le parcours peut donc être relié à la perte d'énergie :

$$R = \int_E^0 \left(\frac{dE}{dx}\right)^{-1} dE \tag{II.15}$$

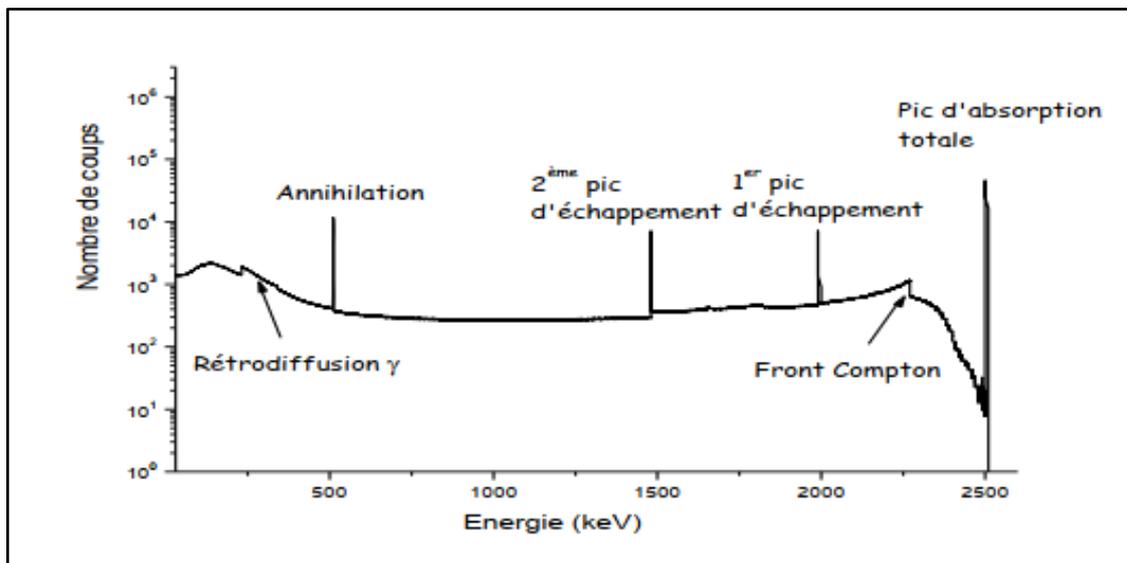
Les trajectoires des électrons dans la matière sont des lignes brisées et les parcours individuels ne sont plus distribués symétriquement autour du parcours le plus probable. Il en résulte que la distance parcourue réelle est bien plus grande que la distance séparant le point d'entrée du point d'arrivée (où l'électron a perdu toute son énergie). La figure II-8 représente le parcours d'un faisceau d'électrons dans la matière.



**Figure II-8.** Le parcours d'un faisceau d'électrons dans la matière.

### II.3. La spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique de mesure rapide, non destructive [32] et performante qui a été utilisée pendant des décennies pour l'identification et la mesure des activités spécifiques des radioéléments naturels et artificiels présents dans l'environnement. Elle consiste à compter le nombre de photons gamma émis spontanément d'un échantillon pendant une durée de temps donnée. Le principe de cette technique est basé sur la détection de l'interaction de ces rayonnements  $\gamma$  avec le matériau constituant le détecteur, en déposant toute ou une partie de leur énergie. Les différents événements produits (photo-électrique, Compton et création des paires) seront classés dans un spectre en fonction de l'énergie déposée. À partir de ce spectre, il est possible d'identifier les différents radionucléides (analyse qualitative) et de déterminer leurs activités spécifiques dans l'échantillon (analyse quantitative). La figure II-9 présente un exemple de spectre  $\gamma$  d'une source mono-énergétique.

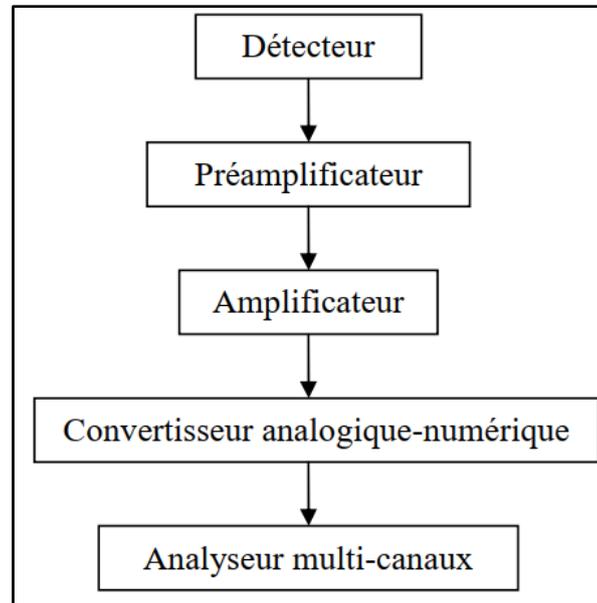


**Figure II-9.** Exemple d'un spectre gamma mono-énergétique [36].

Le spectre obtenu est constitué d'un ensemble de pics qui sont le résultat des différents processus d'interaction des photons avec le matériau du détecteur. Citant les pics de rétrodiffusion, d'annihilation et d'échappement situés au-dessus du plateau Compton, suivi par le pic d'absorption total qui est le plus important vu qu'il représente le dépôt total de l'énergie du photon dans le détecteur. Ce qui permet de remonter à l'activité des radionucléides présents dans l'échantillon à mesurer.

### II.3.1. Chaîne de mesures

Une chaîne de mesures en spectrométrie gamma est composée essentiellement d'un détecteur suivi par une électronique d'acquisition (préamplificateur, amplificateur, convertisseur analogique-numérique (ADC), analyseur multicanaux (AMC) et logiciels d'acquisition et d'analyse) comme l'indique la figure II-10.



**Figure II-10.** Schéma d'une chaîne de mesure en spectrométrie gamma [37].

#### a. Détecteurs de photons

Il existe deux principaux types de détecteurs utilisés en spectrométrie gamma, (les scintillateurs et les semi-conducteurs), qui sont employés dans le domaine d'énergie s'étalant de 20 keV à quelques MeV.

- **Les scintillateurs**

Les détecteurs à scintillation se basent dans leur fonctionnement sur l'émission de rayonnement de fluorescence à partir de l'excitation du matériau scintillant par les photons  $\gamma$  à détecter. Ces photons lumineux sont ensuite convertis en un signal électrique exploitable en passant à travers un photomultiplicateur, où ils sont transformés en électrons par effet photoélectrique au moyen d'une photocathode, puis amplifiés à l'aide d'une série de dynodes et enfin recueillis par une anode (Figure II-11). Pour les mesures en spectrométrie  $\gamma$ , le scintillateur le plus utilisé est l'iodure de sodium dopé au Thallium (NaI(Tl)) grâce à son rendement intrinsèque de détection élevé ( $6.10^{-2}$  à 1332 keV) et son coût moindre. Mais son domaine d'application se

limite à la mesure des radionucléides émetteurs  $\gamma$  mono-énergétiques à cause de sa faible résolution en énergie (80 keV à 1332 keV).

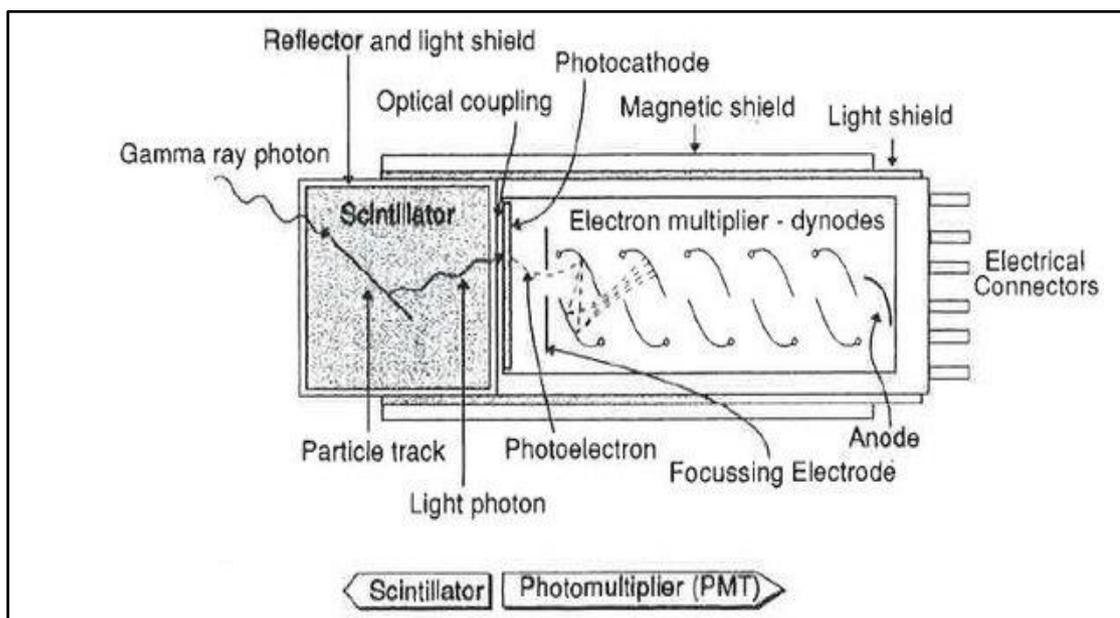


Figure II-11. Schéma de principe de fonctionnement des scintillateurs [38].

- **Les semi-conducteurs**

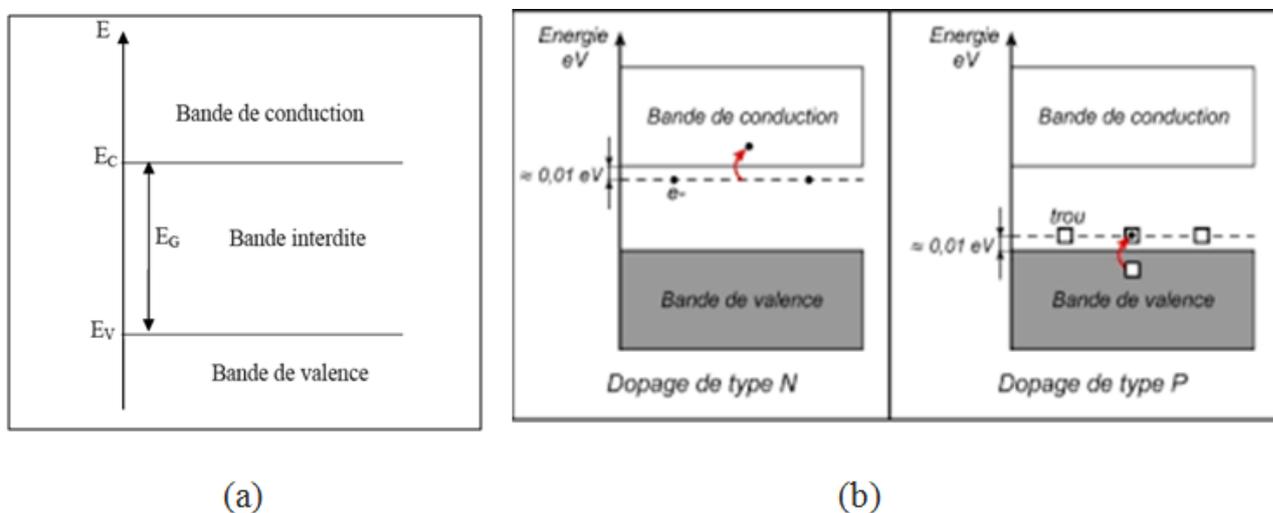
Les semi-conducteurs sont des matériaux qui possèdent les propriétés d'un isolant et d'un conducteur en même temps. Autrement dit, ils sont des isolants à très basse température et suite à l'agitation thermique ils deviennent conducteurs.

L'écart entre la bande de valence et la bande de conduction est appelé la bande interdite (figure II-12 (a)), qui est typiquement de l'ordre de l'électronvolt pour un semi-conducteur. Dans ce type de détecteurs, les rayonnements à détecter créent dans le cristal, par interaction un grand nombre de porteurs de charges; ils arrachent aux atomes des électrons de valence, créant des charges négatives. Les atomes primitivement dans un état moyen d'équilibre électrique deviennent, par la perte d'électrons de valence, des charges positives qu'on appelle « trous ». L'interaction des rayonnements avec la matière constituant le cristal crée autant d'électrons que de trous. On dit qu'il y a production de paires (électron-trou).

Du fait du champ électrique qui règne dans le semi-conducteur, des électrons se dirigent vers l'électrode positive avec une vitesse qui dépend de leur mobilité dans ce milieu. Les trous étant en fait les atomes du réseau cristallin ne se déplacent pas physiquement, mais tout se passe comme s'ils le faisaient. En fait, les électrons libres, libérés par l'agitation thermique viennent occuper les trous vacants et se déplacent d'un atome à l'autre, créant ainsi un déplacement apparent de trous. Ces trous se dirigent vers l'électrode négative.

A tout instant, des paires électrons-trous se recombinent et d'autres se créent. Tous les porteurs de charges créés par l'interaction du rayonnement parviennent aux électrodes avant de se recombiner. Il apparaît alors une impulsion ayant une amplitude proportionnelle à l'énergie perdue par le rayonnement dans le cristal.

Afin d'augmenter la conductivité au sein d'un semi-conducteur, il faut introduire des impuretés, ou dopage. Si les impuretés introduites possèdent un électron périphérique de plus que les atomes du semi-conducteur, on dit que c'est un dopage de type N, auquel cas il reste un électron qui n'est pas lié aux autres atomes du réseau. Ce qui engendre la création d'un niveau énergétique discret dans la bande interdite proche de la bande de conduction appelé niveau donneur (Figure II-12 (b)). Un électron, occupant ce niveau, peut passer dans la bande de conduction et participer à la conduction. Dans l'autre type de dopage, les impuretés introduites possèdent un électron périphérique de moins que les atomes du cristal, on dit que c'est un dopage de type P. Il manque alors au réseau un électron de liaison, d'où l'apparition dans le cristal d'un trou. Ce qui engendre la création d'un niveau énergétique discret dans la bande interdite proche de la bande de valence appelé niveau accepteur (Figure II-12 (b)). Un électron de la bande de valence peut alors passer dans le niveau accepteur créant ainsi un trou mobile dans la bande de valence qui participera à la conductivité [37].



**Figure II-12.** (a) Schéma des bandes d'énergie dans un solide cristallin semi-conducteur, (b) Schéma des bandes d'énergie dans les cas des dopages de type N et de type P [37, 39].

Les semi-conducteurs sont les détecteurs les plus utilisés en spectrométrie gamma grâce à leur grande densité qui favorise l'interaction des photons dans le milieu, et leurs sensibilités aux faibles énergies. C'est-à-dire, s'il faut 26 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon dans un scintillatpircureur et de environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ

3 eV suffise largement pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur [40]. Les semi-conducteurs possèdent aussi une très bonne résolution en énergie. Par exemple, si on obtient une résolution de 6% à 660 keV avec un scintillateur, dans le cas du germanium (refroidi) on atteint le keV, soit moins de 0,2%. L'avantage d'un détecteur semi-conducteur est que pour un dépôt en énergie identique, le nombre de porteurs de charges (paires électrons-trous) est plus important que pour les scintillateurs (nombre de photoélectrons). Donc, l'incertitude relative sur l'énergie mesurée s'en trouve réduite.

Il existe différents types de semi-conducteurs qui peuvent être utilisés pour la détection des rayonnements ionisants. Les plus communs sont le germanium (Ge), le silicium (Si), la famille du tellure de cadmium (CdTe et  $Cd_xZn_{1-x}Te$  alias CZT) et l'arséniure de gallium (GaAs). Il existe aussi quelques détecteurs à base d'iodure de mercure (HgI<sub>2</sub>). Les potentialités de ces matériaux pour la détection des photons  $\gamma$  dépendent des paramètres cités dans le tableau II.1. En effet, ils influent sur la résistivité (R), le temps de collecte et l'efficacité de détection [41].

Le détecteur semi-conducteur à base de germanium est couramment le plus utilisé en spectrométrie  $\gamma$ , grâce à sa bande interdite la plus étroite, la possibilité de créer le plus grand nombre de porteurs de charge pour un dépôt d'énergie donné et sa capacité de minimiser les fluctuations statistiques dans la mesure. De plus, c'est le seul détecteur qui peut être fabriqué avec des volumes importants (plusieurs dizaines de cm<sup>3</sup>). C'est 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 grâce à sa densité et son nombre atomique élevés.

**Tableau II-1.** Caractéristiques des semi-conducteurs à 300 K sauf pour le cas du Ge à 77 K [31, 32].

Matériaux	Numéro atomique Z	Gap (eV)	W (eV)	Densité (g cm <sup>-3</sup> )	Mobilités cm <sup>2</sup> V <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup>	
					e <sup>-</sup>	trou
Si	14	1.11	3.62	2.33	1350	480
Ge	32	0.67	2.96	5.32	3.6×10 <sup>4</sup>	4.2×10 <sup>4</sup>
CdTe	48.52	1.47	4.43	6.06	1000	80
HgI <sub>2</sub>	80.53	2.13	4.64	5.78	1000	50-80
GaAs	31.33	1.45	4.51	5.35	8000	400

### - Détecteurs GeHP

Il existe deux types de détecteurs germanium; Soit les détecteurs compensés au lithium Ge(Li) qui sont fabriqués de la même façon que les détecteurs silicium compensés au lithium Si(Li) ou les détecteurs au germanium hyper pur GeHP. Le type de détecteur Ge(Li) a été commercialisé entre le début des années 60 jusqu'au début des années 80 [31]. Il a été remplacé par le détecteur au germanium hyper pur dont les performances sont équivalentes pour un même volume actif mais qui permet notamment d'être ramené à température ambiante entre des mesures. En effet, tous les types de détecteurs germanium doivent être refroidis de manière à réduire l'agitation thermique des porteurs de charge qui influence la résolution en énergie du détecteur. On distingue trois configurations géométriques des détecteurs germanium : planaire, coaxiale et puits (Figure II-13).

#### a) Détecteur planaire

Le détecteur planaire possède une fine fenêtre d'entrée à base de carbone époxy ou de béryllium, avec une épaisseur du volume actif qui va jusqu'à  $3 \text{ cm}^3$ . Ce type de détecteurs est bien adapté aux mesures des basses énergies (de 1 keV à 1 MeV) et il a la meilleure résolution [28].

#### b) Détecteur coaxial

Le détecteur coaxial est de forme cylindrique avec une partie centrale creuse, il possède une fenêtre d'entrée en aluminium, qui peut être remplacée par du béryllium ou carbone époxy pour les mesures de basses énergies. Il est bien adapté pour les mesures de hautes énergies (de 10 keV à 10 MeV), grâce à son gros volume actif qui est de l'ordre de  $750 \text{ cm}^3$ . Ce qui permet l'optimisation des efficacités pour les hautes énergies [34].

#### c) Détecteur puits

Le détecteur puits a la même forme que le coaxial sauf que le puits joue le rôle de réceptacle de l'échantillon ce qui augmente l'efficacité de détection dans un angle solide proche des  $4\pi$ . Ce type de détecteurs est plus adapté aux mesures de faibles quantités d'échantillons à basses activités et aux basses énergies comme le cas de l'énergie gamma 46.5 keV du Pb-210. Le détecteur puits possède un inconvénient majeur qui est sa grande sensibilité aux effets de sommation due à l'angle solide de détection qui est proche de  $4\pi$  stéradian.

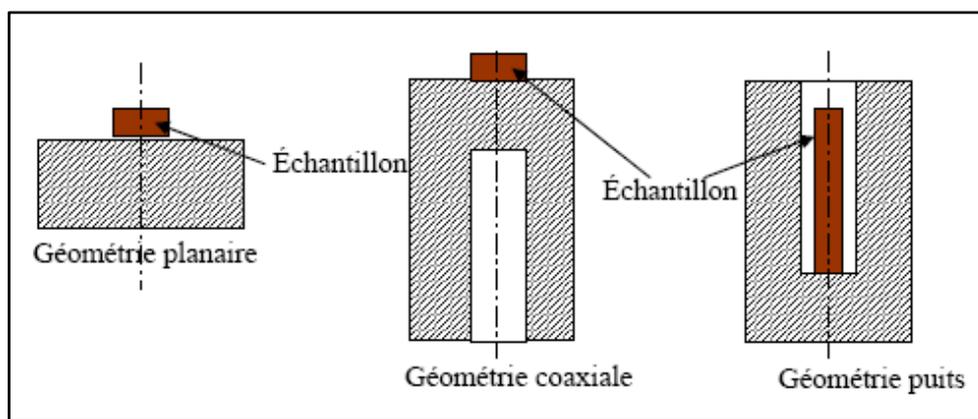


Figure II-13. Schéma des différentes configurations géométriques des détecteurs germanium [37].

### b. Chaîne de mesure associée

Le rôle essentiel de l'électronique est d'assurer l'amplification, la mise en forme et l'acquisition du signal délivré par le détecteur.

- La haute tension (HT) est une alimentation de l'ordre de quelques milliers de Volts qui sert à collecter les charges créées par le détecteur en produisant un champ électrique qui met en mouvement les charges vers les électrodes.
- Le préamplificateur assure la conversion de la charge en tension électrique. Il est placé dans le même capot que le cristal pour diminuer le bruit thermique.
- L'amplificateur réalise la mise en forme du signal, le plus souvent quasiment gaussienne et son amplification. Cela a pour effet de permettre la quantification de la hauteur du signal de manière précise. Il filtre le signal des parasites de manière à optimiser le rapport signal sur bruit afin préserver uniquement l'information relative aux caractéristiques du détecteur contenue dans la constante de temps de montée du signal.
- Le convertisseur analogique-numérique (ADC) transforme les impulsions (signal analogique) en un signal numérique (signal logique) qui constituera des adresses auxquelles l'électronique d'acquisition associe des canaux de l'analyseur servant à découper le spectre final.
- L'analyseur multi-canaux collecte et enregistre les événements issus du convertisseur analogique-numérique en les classant grâce à sa mémoire dans des canaux correspondants à des intervalles de tension et les transmet en ligne vers un ordinateur. Cela permet d'obtenir un histogramme qu'on appelle « spectre différentiel de hauteur d'impulsion ». Dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est reliée au numéro de canal et le nombre de coups dans un canal donné est proportionnel au nombre de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal.
- Le logiciel de traitement et d'analyse du signal permet de réaliser une première analyse qualitative et quantitative des spectres obtenus.

### II.3.2. Caractérisation du détecteur

#### a. Résolution en énergie

La résolution en énergie est un paramètre très important en spectrométrie  $\gamma$ . Elle détermine la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans un spectre. La résolution  $\delta E$  (exprimée en keV) se caractérise habituellement par la Largeur Totale à Mi-Hauteur (LTMH ou FWHM pour Full Width at Half Maximum) (Figure II-14). Idéalement, la forme du pic d'un gamma absorbé doit être parfaitement gaussienne et étroite, la résolution absolue est liée à l'écart-type  $\sigma(E)$  de la distribution comme l'indique la relation (II.16) :

$$\text{FWHM} = \sqrt{8\ln 2} \times \sigma_E = 2.35 \times \sigma_E \quad (\text{II.16})$$

La résolution relative  $R$  (exprimé en %) peut être définie comme étant le rapport de la résolution absolue  $\delta E$  à l'énergie du pic par l'équation (II.17) :

$$R(E) = \frac{\delta E}{E} \quad (\text{II.17})$$

La résolution  $\delta E$  varie avec l'énergie de la raie  $\gamma$  et dépend de trois composantes : les fluctuations de production de charges, les défauts de collection de charges et le bruit électronique.

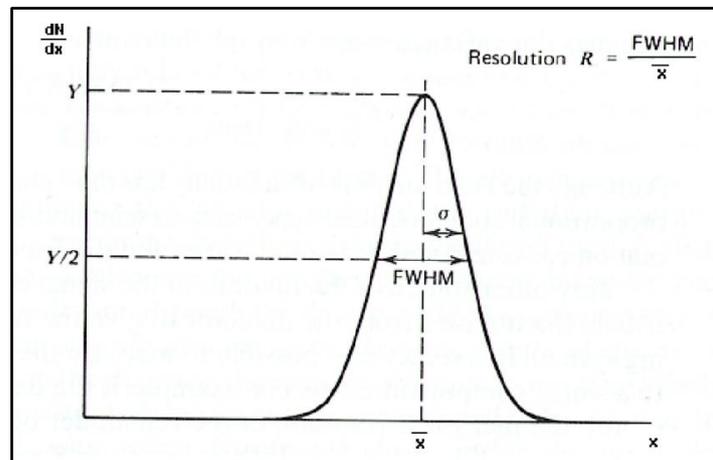


Figure II-14. Définition de la résolution en énergie pour un pic gaussien.

#### b. Efficacité de détection

L'efficacité de détection est un paramètre important dans l'analyse quantitative d'une mesure. Expérimentalement en spectrométrie  $\gamma$ , on mesure l'aire du pic d'absorption totale déposé au niveau du détecteur par un flux de photons issu d'une source radioactive. Et afin de remonter

au nombre de photons contenus dans ce flux, il est nécessaire de connaître la relation liant à l'aire du pic. Cette relation représente l'efficacité de détection. Celle-ci peut être définie de différentes manières : absolue et intrinsèque.

L'efficacité de détection dépend de la géométrie et de la probabilité d'interaction du photon dans le détecteur, du type de radiation, de son énergie et du matériau constituant le détecteur. L'efficacité absolue et l'efficacité intrinsèque sont calculées avec les équations (II.18) et (II.19) :

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\text{nombre de rayonnement détectés}}{\text{nombre de rayonnement émis par la source}} \quad (\text{II.18})$$

$$\epsilon_{\text{int}} = \frac{\text{nombre de rayonnement détectés}}{\text{nombre de rayonnement arrivant sur le détecteur}} \quad (\text{II.19})$$

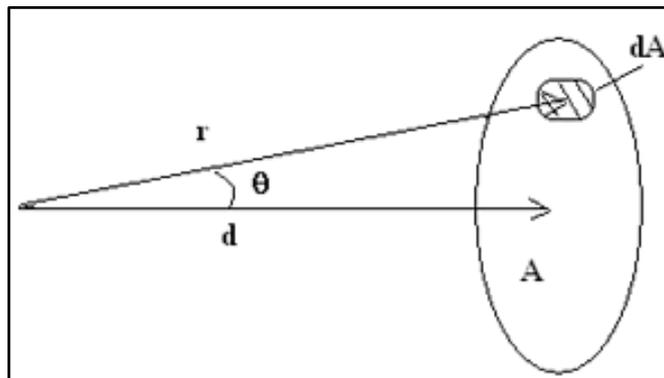
L'efficacité absolue est liée à l'efficacité intrinsèque par la relation (II.20) :

$$\epsilon_{\text{abs}} = \frac{\Omega}{4\pi} \epsilon_{\text{int}} \quad (\text{II.20})$$

avec  $\Omega$  est l'angle solide de détection, qui est défini par une intégrale sur la surface du détecteur qui fait face à la source tel que :

$$\Omega = \int_A \frac{\cos \theta}{r^2} dA \quad (\text{II.21})$$

où  $r$  représente la distance entre la source et l'élément de surface  $dA$ ,  $\theta$  est l'angle entre la normale à l'élément de surface et la direction de la source. Si le volume de la source n'est pas négligeable, alors une deuxième intégration doit être effectuée sur tous les éléments de volume de la source.



**Figure II-15.** Angle solide de détection.

- Pour une source ponctuelle placée sur l'axe de symétrie du détecteur cylindrique, à une distance  $d$ , l'angle-solide sous lequel la source voit le détecteur est :

$$\Omega = 2\pi \left( 1 - \frac{d}{\sqrt{a^2 + d^2}} \right) \quad (\text{II.22})$$

d : La distance entre la source ponctuelle et le détecteur.

a : Le rayon de détecteur.

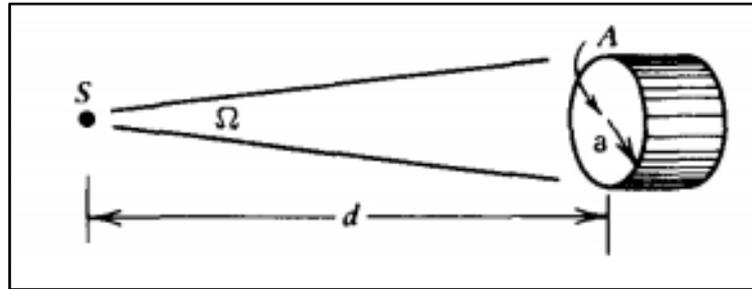


Figure II-16. Angle solide pour une source ponctuelle [31].

- Si la source radioactive (ou l'échantillon) est volumineuse (non ponctuelle), le calcul de l'angle solide est complexe. Dans le cas où la source possède une forme géométrique circulaire, l'angle solide peut être obtenu par la formule approximative suivante [31]:

$$\Omega_{abs} \cong 2 \cdot \Pi \left[ 1 - \frac{1}{(1+\beta)^{\frac{1}{2}}} - \frac{3}{8} \frac{\alpha \cdot \beta}{(1+\beta)^{\frac{5}{2}}} + \alpha^2 [F1] - \alpha^3 [F2] \right] \quad (\text{II.23})$$

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

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

où

$$\alpha = \left( \frac{a}{d} \right)^2 \quad \beta = \left( \frac{s}{d} \right)^2$$

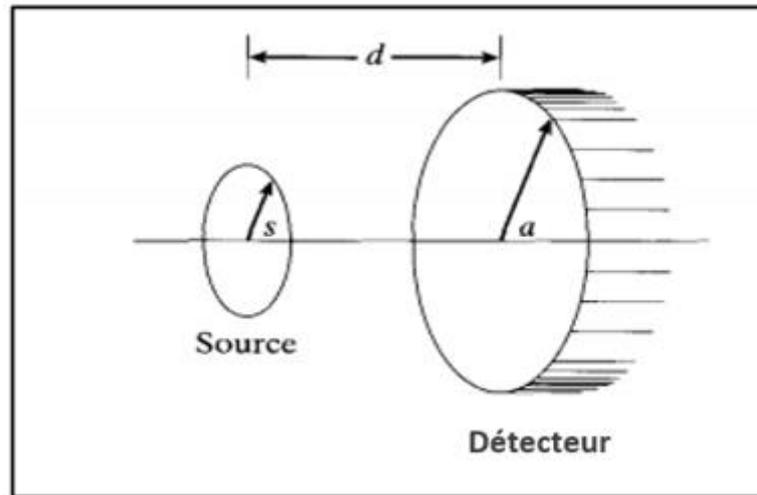


Figure II-17. Angle solide pour une source circulaire [31].

### c. Bruit de fond

Le bruit de fond est un facteur très important dans les mesures de basses radioactivités. Sa mesure correspond au comptage ou à l'enregistrement d'un spectre dans des conditions normales d'utilisation de la chaîne de mesure en l'absence de source de rayonnement. La connaissance de ce bruit de fond est utile pour améliorer la justesse des résultats de mesures notamment dans le cas de basses radioactivités ou de traces. Il peut avoir plusieurs origines : radioactivité propre des matériaux composants le détecteur et l'électronique associée, rayonnements (tellurique, cosmique radon). Citons aussi que le fond continu Compton de l'échantillon est source de bruit de fond dans ce type de mesures.

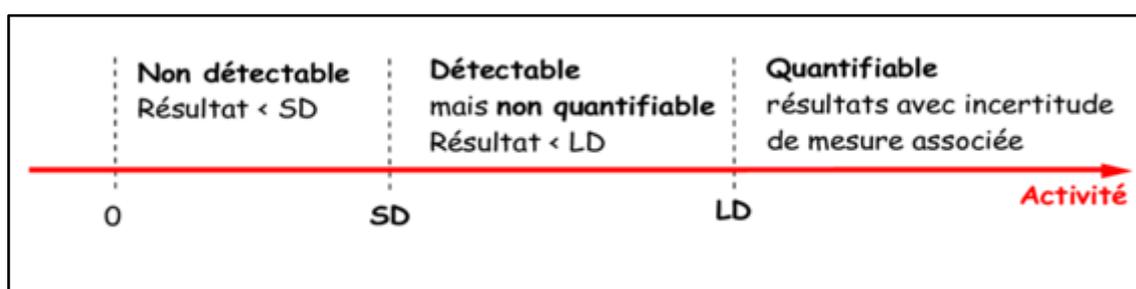
- Le bruit intrinsèque du détecteur peut être diminué en utilisant des matériaux bas bruit, ils sont choisis pour leur faible radioactivité.
- Le bruit de fond dû au rayonnement terrestre est amélioré à l'aide de blindages, généralement en plomb bas bruit (faible concentration de  $^{210}\text{Pb}$ ), afin de limiter leur radioactivité intrinsèque. Un blindage de 10 cm de plomb diminue d'un facteur 100 le bruit de fond provenant la radioactivité terrestre.
- Le radon et ces descendants émettent de multiples photons  $\gamma$  qui peuplent les spectres. Donc, pour diminuer et stabiliser la quantité de photons, il est utile de réduire le radon au sein du blindage en purgeant l'air qui se trouve à l'intérieur à l'aide d'un balayage d'azote. En effet, l'azote gazeux crée une légère surpression à l'intérieur du blindage et limite l'apport de l'air ambiant contenant du radon.

- Le bruit de fond provenant de rayonnement cosmique peut être réduit en utilisant des laboratoires souterrains ou semi-enterrés. Il peut être aussi réduit en utilisant des systèmes anti-cosmiques basés par exemple sur l'utilisation de scintillateurs plastiques en veto.
- Enfin, l'échantillon lui-même peut influencer le spectre. En fait, il contient des radionucléides naturels qui peuplent le spectre de multiples pics ainsi que de leur fond Compton associé. Donc pour diminuer ce fond Compton, l'utilisation de scintillateurs en veto est nécessaire.

Toutes ces méthodes de réduction du bruit de fond sont utilisées et optimisées aux laboratoires de mesures de radioactivité. Cependant, certaines montrent leurs limites.

#### d. Seuil et limite de détection

Lors de la mesure d'un échantillon de faible activité, les fluctuations statistiques du signal et du bruit de fond amènent à avoir des résultats de mesures qui peuvent être proches des valeurs du bruit de fond. Pour cette raison, les limites d'activité pour lesquelles un pic apparaît dans le spectre doivent être connues et les valeurs minimales d'activité doivent être déterminées. Le seuil de détection (SD) se trouve entre les événements non détectables et détectables mais non quantifiables alors que la limite de détection (LD) se localise entre les événements détectables non quantifiables et quantifiables (Figure II-18). Les notions de seuil et limite de détection ont été formulées par Currie [42] et sont toujours utilisées par les laboratoires d'essais.



**Figure II-18.** Schéma représentant le seuil de détection SD et la limite de détection LD [36].

Quantitativement, le seuil SD et la limite LD sont basées sur la théorie du test d'hypothèse. Ils sont quantifiés respectivement, par la probabilité du risque  $\alpha$ , que l'on pourrait appeler risque de « faux positif » ; il s'agit de la probabilité de déclarer que le résultat est significatif alors qu'il ne l'est pas, et donc de rendre une activité au lieu d'une limite de détection. Et par la probabilité du risque  $\beta$ , que l'on pourrait appeler risque de « faux négatif » ; il s'agit de la probabilité de

conclure à tort que l'échantillon n'est pas radioactif, ou du moins que son activité est inférieure à LD.

Le seuil de détection (SD) représente les fluctuations maximales du bruit de fond au-delà desquelles l'activité mesurée est considérée comme vraie. Il est défini dans l'algorithme d'analyse de Genie 2000 (ISO 11929 LD) par la relation suivante :

$$SD = k_{\alpha}\sigma_0 \quad (\text{II.24})$$

Où  $k_{\alpha}$  est le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance  $(1-\alpha)$  de la loi de probabilité.  $\sigma_0$  est l'écart-type en rapport avec la surface nette du pic considéré dans laquelle il n'y a aucun coup signal.

Selon la norme, la limite de détection (LD) correspond au risque de ne pas détecter d'activité, alors que celle-ci est réellement présente. Elle correspond aux fluctuations maximales que pourrait avoir un échantillon d'activité nulle. La LD est définie par la formule (II.25) qui est introduite dans le logiciel Genie 2000.

$$LD = SD + k_{\beta}\sigma_D \quad (\text{II.25})$$

Où  $k_{\beta}$  est le facteur d'élargissement correspondant au niveau de confiance  $(1-\beta)$  de la loi normale de probabilité.  $\sigma_D$  est l'écart-type en rapport avec la surface nette du pic considéré lorsque la surface est équivalente à LD.

Lorsqu'il y a présence d'un pic, la procédure prévoit que l'expérimentateur choisit deux niveaux de confiance  $(1-\alpha)$  et  $(1-\beta)$  qui sont en général de 95% avec les quantités correspondantes  $k_{\alpha} = k_{\beta} = 1,645$ . Pour simplifier, sachant que  $\sigma_0, \sigma_D$  sont du même ordre de grandeur ; pour cela, on fixe  $k = k_{\alpha} = k_{\beta}$ , ce qui simplifie l'expression dans Génie2000. Alors, on obtient la relation (II.26).

$$LD = 2SD \quad (\text{II.26})$$

### e. Activité minimale détectable

L'activité minimale détectable (MDA) est la quantité minimale d'un radioélément que nous pouvons détecter dans les mesures de basses activités. Elle peut être déterminée à un niveau de confiance de 95% [32] et en utilisant la relation (II.27) qui a été introduite pour la première fois par Currie [42].

$$MDA = \frac{LD}{\varepsilon_E \times t_c \times P_E \times m} \quad (\text{II.27})$$

où LD est la limite de détection donnée par:  $LD = 2,71 + 4,65 \sqrt{B}$ , avec B le bruit de fond.

$\epsilon_E$  est l'efficacité absolue de détection pour une énergie E donnée,

$t_c$  est le temps de comptage exprimé en seconde,

$P_E$  est la probabilité d'émission d'un rayonnement  $\gamma$  d'énergie E par désintégration,

m est la masse de l'échantillon mesuré exprimée en kg.

**Chapitre III : Grandeurs et unités  
dosimétriques**

Ce chapitre est constitué de deux parties. La première est consacrée à la métrologie et la dosimétrie des rayonnements gamma. La radioprotection a pour objectif de déterminer le risque potentiel de ces rayonnements de façon à s'en protéger efficacement. La surveillance de la radioactivité de l'environnement a été mise en place avec l'avènement de l'ère nucléaire et en particulier après l'accident de Tchernobyl, 1986. Les expositions à la radioactivité naturelle du fait des activités humaines font désormais l'objet de dispositions spécifiques.

La deuxième partie du chapitre comprend une description des différents effets des rayonnements ionisants sur l'organisme humain.

### III.1. Dosimétrie des rayonnements ionisants

En métrologie des rayonnements ionisants, la dosimétrie est une étape très importante, puisqu'elle quantifie et estime le danger généré par l'utilisation de ces rayonnements. Afin d'évaluer ce risque, il est nécessaire de calculer plusieurs paramètres tels que les doses de rayonnements reçus par le public et les paramètres radiologiques associés.

#### III.1.1. Evaluation des doses

##### a. Débit de Dose Absorbée (ADR)

Le débit de dose absorbée détermine l'intensité d'irradiation (énergie cédée par le rayonnement ionisant et absorbée par la matière par unité de masse et de temps). Il s'exprime en Gray par seconde ( $\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$ ) dans le système international mais l'unité couramment utilisée est le Gray par heure ( $\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ ). Il est utilisé en physique et en radioprotection.

Le débit de dose absorbée dans l'air (ADR) à 1 mètre au-dessus du sol, qui sert à évaluer l'exposition externe au rayonnement provenant des radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , peut être calculé en utilisant la relation empirique (III.1) [10].

$$D(n\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}) = 0.462A_{\text{Ra}} + 0.621A_{\text{Th}} + 0.041A_{\text{K}} \quad (\text{III.1})$$

Où  $A_{\text{Ra}}$ ,  $A_{\text{Th}}$  et  $A_{\text{K}}$  sont les activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ .

**b. Équivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE)**

L'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE) estime la dose reçue par les adultes suite à une exposition externe aux rayonnements gamma. Il s'exprime en  $\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}$ . Il peut être calculé à l'aide de l'équation (III.2) [10].

$$\text{AEDE}(\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}) = D(\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}) \times 8760 \text{ h} \times 0.2 \times 0.7\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1} \times 10^{-3} \quad (\text{III.2})$$

Où  $0.7 \text{ Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$  est le facteur de conversion d'une dose absorbée en une dose effective, 0.2 est le facteur de pondération (ou facteur d'occupation), qui implique que 20% du temps est dépensé en plein air.

**c. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE)**

La thyroïde, les poumons, la moelle osseuse, les cellules des surfaces osseuses, les seins et les gonades sont parmi les organes les plus radiosensibles du corps humain. Ils sont considérés comme des organes d'intérêt par l'UNSCEAR [43]. Par conséquent, la dose absorbée annuelle par ces organes à la suite de l'exposition aux rayons gamma s'exprime à travers l'Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE). Il peut être déterminé à partir des concentrations des activités du  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  en utilisant l'équation (III.3) [44].

$$\text{AGDE}(\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}) = 3.09A_{Ra} + 4.18A_{Th} + 0.314A_K \quad (\text{III.3})$$

**III.1.2. Paramètres radiologiques****a. Radium équivalent ( $Ra_{eq}$ )**

La distribution des radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  n'est pas uniforme dans les matériaux de constructions. Par conséquent, le Radium équivalent ( $Ra_{eq}$ ) a été introduit pour estimer le niveau d'activité réel de ces radionucléides et pour évaluer les risques des rayonnements associés à leur présence dans les matériaux de construction. Il est défini par l'équation (III.4) [1].

$$Ra_q = A_{Ra} + 1.43A_{Th} + 0.077A_K \quad (\text{III.4})$$

où  $A_{Ra}$ ,  $A_{Th}$  et  $A_K$  sont les activités spécifiques de  $^{226}Ra$ ,  $^{232}Th$  et  $^{40}K$ , respectivement en  $Bq.kg^{-1}$ . Cette formule est obtenue en considérant que  $370 Bq.kg^{-1}$  de  $^{226}Ra$ ,  $259 Bq.kg^{-1}$  de  $^{232}Th$  et  $4810 Bq.kg^{-1}$  de  $^{40}K$  produisent la même dose équivalente de rayonnement  $\gamma$ .

### b. Indices de risques externe et interne ( $H_{ex}$ , $H_{in}$ )

Afin d'évaluer les effets des rayonnements gamma externes issues des matériaux de construction, l'indice de risque externe ( $H_{ex}$ ) a été introduit par Beretka et Mathew comme l'indique la relation (III.5) [1]. La valeur de  $H_{ex}$  doit être inférieure à 1 pour garantir une utilisation sûre des matériaux de construction, qui correspond à l'activité maximum du radium-équivalent  $Ra_{eq}$  ( $370 Bq.kg^{-1}$ ).

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad (III.5)$$

En plus de l'exposition externe, le radon ( $^{222}Rn$ ) et ces descendants sont également dangereux pour le système respiratoire. L'indice de risque interne ( $H_{in}$ ) est utilisé pour quantifier ce risque par la formule (III.6) [1] qui doit être en dessous de l'unité.

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \quad (III.6)$$

### c. Indice gamma ( $I_\gamma$ )

Selon la Commission européenne [45], les matériaux de construction devraient être exemptés de toutes restrictions concernant leur radioactivité. En revanche, les doses dépassant le critère de dose de  $1 mSv.y^{-1}$  ne devraient être acceptées que dans quelques cas où les matériaux sont utilisés localement. Par conséquent, il est recommandé que les contrôles soient basés sur une gamme de doses ( $0,3 - 1$ )  $mSv.y^{-1}$ , qui est la contribution de l'excès de dose gamma à la dose reçue à l'extérieur. L'indice gamma ( $I_\gamma$ ) peut être calculé à l'aide de la formule (III.7) [45].

$$I_\gamma = \frac{A_{Ra}}{300} + \frac{A_{Th}}{200} + \frac{A_K}{3000} \quad (III.7)$$

L'indice gamma ne doit pas dépasser les valeurs indiquées dans le tableau III-1.

**Tableau III-1.** Valeurs des indices gamma suggérées par la commission européenne [45, 46] pour les matériaux utilisés dans un bâtiment.

Critère de dose	0.3 mSv.y <sup>-1</sup>	1 mSv.y <sup>-1</sup>
Matériaux utilisés en grandes quantités, e.g. béton	$I_\gamma \leq 0.5$	$I_\gamma \leq 1$
Matériaux superficiels avec utilisations limitées : carreaux, planches, etc.	$I_\gamma \leq 2$	$I_\gamma \leq 6$

**d. L'indice alpha ( $I_\alpha$ )**

Le niveau d'exposition interne au rayonnement gamma associé à l'inhalation de radon provenant des matériaux de construction est évalué à l'aide de l'indice alpha ( $I_\alpha$ ), en considérant la concentration d'activité du <sup>226</sup>Ra, par la relation (III.8).

$$I_\alpha = \frac{A_{Ra}}{200} \quad (III.8)$$

Dans les matériaux de construction, le niveau d'exemption recommandé ( $I_\alpha = 0,5$ ) pour l'activité est de 100 Bq.kg<sup>-1</sup> tandis que le niveau maximum recommandé ( $I_\alpha = 1$ ) correspond à une activité de radium ( $A_{Ra}$ ) de 200 Bq.kg<sup>-1</sup>. La valeur de  $I_\alpha$  doit être inférieure à l'unité pour éviter que les concentrations de radon ne dépassent 200 Bq.m<sup>-3</sup> (tableau III-2) [46].

**Tableau III-2.** Valeurs des indices alpha suggérées [45, 46] pour les matériaux utilisés dans un bâtiment.

Matériaux avec $A_{Ra} > 200$ Bq.kg <sup>-1</sup>	$I_\alpha > 1$	La concentration du radon à l'intérieur peut dépasser 200 Bq.m <sup>-3</sup>
Matériaux avec $A_{Ra} < 100$ Bq.kg <sup>-1</sup>	$I_\alpha < 0.5$	La concentration du radon à l'intérieur ne dépasse pas 200 Bq.m <sup>-3</sup>

**e. L'excès de risque de cancer à vie (ELCR)**

L'exposition aux rayonnements ionisants est la principale cause de cancer, même les faibles doses peuvent augmenter le risque de développer une maladie aussi dangereuse. Au fil du temps, l'exposition à un Sievert augmente à vie le risque d'un cancer mortel de 4% et le risque d'anomalies héréditaires à l'avenir de 0,8% [47]. L'excès de risque de cancer à vie (ELCR) peut être calculé en utilisant l'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE), la durée de vie (DL) estimée à 70 ans et

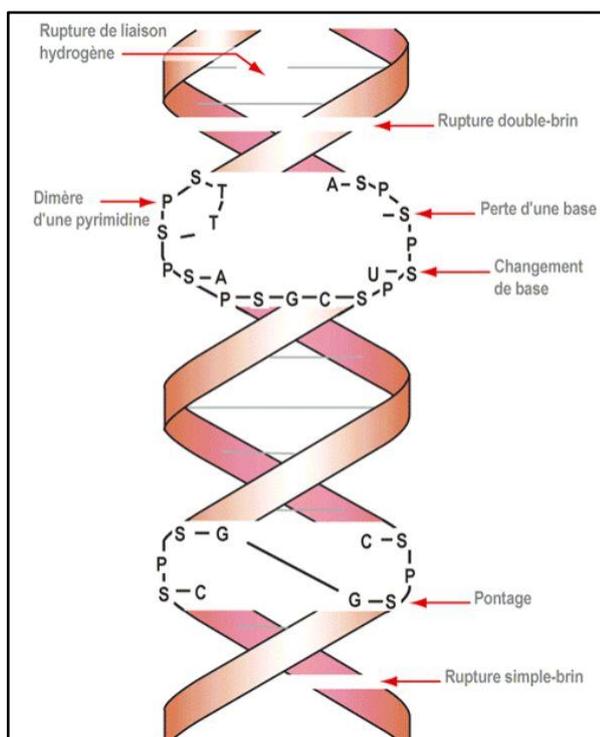
le facteur de risque (RF) qui correspond aux effets stochastiques, et qui est estimé à  $0.05 \text{ Sv}^{-1}$  pour le public selon la CIPR 60, en utilisant la relation (III.9)[48].

$$\text{ELCR} = \text{AEDE} \times \text{DL} \times \text{RF} \quad (\text{III.9})$$

### III.2. Les effets des rayonnements $\gamma$ sur la matière vivante

L'exposition d'un tissu vivant à des rayonnements ionisants conduit à un transfert d'énergie aux atomes du tissu, ce qui peut déclencher une altération des fonctions normales. Il peut y avoir une destruction de la cellule et une nécrose du tissu si la quantité d'énergie atteint un seuil. L'irradiation du système biologique génère une succession d'événements qui varient énormément dans le temps et qui peuvent être résumées en trois phases :

- **La phase physique** comprend toutes les ionisations et excitations moléculaires sur une très courte durée (10 -18 secondes). En effet, une dose absorbée de 1 Gy crée plus de  $10^5$  ionisations dans un volume cellulaire de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre [49].
- **La phase physico-chimique** décrit la période pendant laquelle les molécules ionisées et excitées réagissent entre elles et avec les molécules voisines. Elle dure quelques secondes à quelques minutes. Les effets de ces réactions peuvent être directs où la cible est représentée par les macromolécules cellulaires, notamment l'ADN, ou indirects avec la conséquence d'une attaque des macromolécules par les radicaux libres issus de la radiolyse de l'eau et qui survient de façon prépondérante dans 70 à 80% des cas.
- **La phase biologique** comprend la réparation enzymatique des dommages qui se fait en quelques dizaines de minutes. Parfois, il existe des types de lésions qui se réparent rapidement (les cassures simple-brin). Dans d'autres cas, la réparation peut être incomplète ou fautive (les cassures double-brin), ce qui peut entraîner ou favoriser le développement d'un cancer. Ces lésions d'ADN, mal réparées, peuvent, dans certains cas, empêcher la reproduction cellulaire ou entraîner la mort de la cellule. Cette mortalité cellulaire est liée à l'importance de l'irradiation : le nombre de cellules tuées est directement proportionnel à la dose reçue par la matière vivante.



**Figure III-1.** Altérations possibles de l'ADN consécutives à une exposition à des rayonnements ionisants [50].

Les effets des rayonnements ionisants sur l'organisme sont de deux types ; les effets à court terme dits déterministes et les effets à long terme et aléatoires dits stochastiques.

- **Les effets déterministes :**

En cas d'exposition à des doses de rayonnement élevées de l'ordre du Gray, des effets pathologiques directement liés aux lésions cellulaires apparaissent peu de temps après l'exposition, dont la gravité est liée à l'étendue de l'exposition. La gravité de ces effets augmente au-dessus du seuil où ils commencent à apparaître (tableau III-3), reflétant plus de perte de cellules et par conséquent des dommages aux fonctions des tissus. Cela dépend également de la radiosensibilité de chaque tissu [51].

- **Les effets stochastiques:**

Les expositions à des faibles doses de rayonnements ionisants peuvent avoir des effets à long terme sous la forme de cancers et des anomalies génétiques (mutations). La probabilité de leur apparition, mais pas leur gravité, dépend de la dose de rayonnement. Dans la terminologie de la radioprotection, ces effets sont appelés effets stochastiques. Le délai d'apparition de ces effets après l'exposition est de plusieurs années. Une pathologie d'origine radioactive est difficile à distinguer de celles dues à d'autres causes que la radioactivité. Il n'existe pas de marqueur biologique permettant de différencier, par exemple, un cancer pulmonaire radio-induit d'un cancer pulmonaire dû au tabac [51].

**Tableau III-3.** Effets déterministes décrits pour des expositions aux rayonnements gamma ou X [50].

<b>Effets déterministes recensés</b>	<b>Dose d'irradiation</b>
Diminution temporaire des spermatozoïdes.	à partir de 0.15 Gy
Diminution temporaire des leucocytes (globules blancs).	à partir de 1 Gy
Atteinte oculaire : opacités du cristallin.	à partir de 0.5 Gy
Nausée, asthénie Modification de la formule sanguine Effet immunodépresseur (risque d'infection) Sous surveillance médicale, le retour à la normale se produit rapidement.	de 1 à 2 Gy
Stérilité féminine.	à partir de 2.5 Gy
Lésions cutanées.	à partir de 1 Gy
Stérilité masculine définitive.	5 Gy
Aplasie En l'absence de traitement, au moins la moitié des personnes irradiées meurent et il existe des risques de séquelles.	à partir de 4.5 Gy
Atteinte gastro-intestinale	4-6 Gy
Coma, mort cérébrale Mort inévitable.	au-delà de 15 Gy

## **Chapitre IV : Matériels et Méthodes**

Dans ce chapitre nous allons décrire les matériels et méthodes utilisés pour effectuer ce travail de recherche, qui consiste en la mesure de la radioactivité naturelle et artificielle dans les matériaux de construction prélevés dans les différentes régions d'Algérie et leurs impacts radiologiques sur la population.

#### IV.1. Collection et préparation des échantillons

Afin de déterminer les radioéléments naturels et artificiels présents dans les matériaux de construction, 31 échantillons de différents types de matériaux utilisés dans la construction en Algérie ont été collectés des usines, des concessionnaires et des sites de constructions dans une période allant de juin 2016 à février 2019.

Nous avons choisi les matériaux les plus répandus dans la construction de l'urbanisme Algérien tels que le sable (neuf échantillons), la céramique (sept échantillons), la brique rouge (six échantillons), le gypse (quatre échantillons), le ciment gris (trois échantillon) et les composantes essentielles dans la fabrication du ciment qui sont le cru ou farine (un échantillon) et le clinker (un échantillon). La figure (IV-1) et le tableau (IV-1) présentent les sites où ont été collectés tous ces échantillons, Chaque échantillon a été étiqueté selon son type et son origine, les premières lettres du code représentent le type de l'échantillon et le reste caractérise son origine.

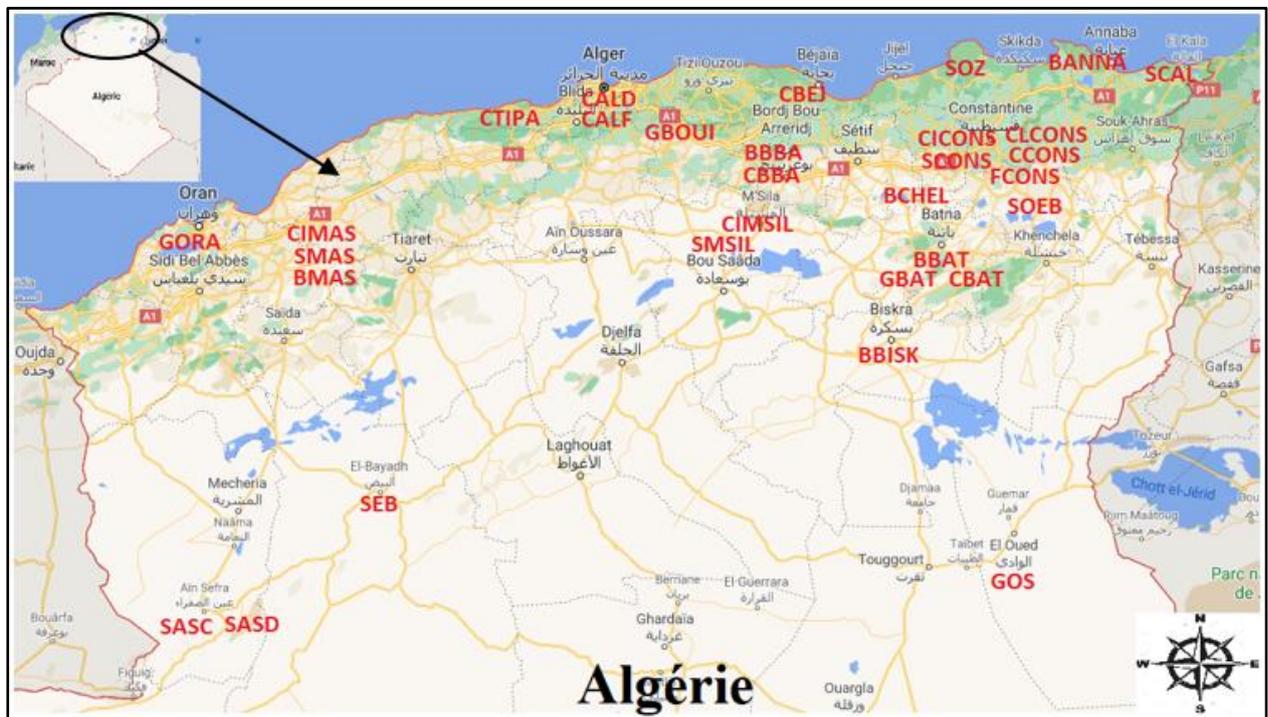


Figure IV-1. Carte de localisation des échantillons.

Tableau IV-1. Tableau des échantillons (origine et codage).

Type	Origine	Code
<b>Sable</b>	La Calle	SCAL
	Oued Zhour	SOZ
	Constantine	SCONS
	Oum El Bouaghi	SOEB
	M'sila	SMSIL
	Mascara	SMAS
	El Bayed	SEB
	Aïn Sefra	SASC
	Aïn Sefra	SASD
<b>Farine</b>	Constantine	FCONS
<b>Clinker</b>	Constantine	CLCONS
<b>Ciment</b>	Constantine	CICONS
	M'sila	CIMSIL
	Mascara	CIMAS
<b>Brique</b>	Annaba	BANNA
	Chelghoum El Laid	BCHEL
	Biskra	BBISK
	Batna	BBAT
	Bordj Bou Arreridj	BBBA
	Mascara	BMAS
<b>Gypse</b>	Oued Souf	GOS
	Batna	GBAT
	Bouira	GBOUI
	Oran	GORA
<b>Céramique</b>	Batna	CBAT
	Bordj Bou Arreridj	CBBA
	Béjaia	CBEJ
	Alger	CALD (Dalle de sol)
	Alger	CALF (Faïence)
	Constantine	CCONS
	Tipaza	CTIPA

- **Description des différents matériaux analysés dans cette étude**

L'évolution du secteur de la construction, qui a enregistré un essor important en Algérie, constitue l'un des principaux objectifs de réaliser cette recherche. Le secteur de la construction et celui des travaux publics présentent un fort potentiel de l'économie du pays. Grâce à sa capacité géologique et minérale : riche et variée, l'Algérie possède un important tissu industriel composé de centaines d'entreprises, qui sont regroupées en cimenteries, briqueteries et entreprises de produits céramiques et sanitaires.

**a. Le Ciment gris**

La production du ciment en Algérie est d'environ 40 millions de tonnes/an en 2020. Le pays compte 17 installations de cimenteries, 15 publiques et 2 privées, réparties à travers le nord du territoire. Dans ce présent travail, nous nous sommes intéressés particulièrement au ciment portland qui est le matériau le plus utilisé dans notre pays. Nous avons étudiés trois échantillons de ciment portland issus de différentes régions du pays.

- Le premier échantillon utilisé pour la mesure de la radioactivité naturelle est le ciment de la Société des Ciments de Hamma Bouziane (SCHB) du Groupe Industriel des Ciments d'Algérie (GICA). La fabrication de ciment SCHB est basée essentiellement sur deux matières premières issues de gisement de Djebel Salah qui sont des calcaires d'âge turonien et des argiles rouges de recouvrement d'âge miocène. La composition chimique des calcaires et des argiles de ce gisement est reprise dans le tableau suivant [52] :

**Tableau IV-2.** Pourcentage des éléments constituant les calcaires et les argiles de Djebel Salah [52].

Calcaires		Argile rouge	
Eléments constituant	Teneur en %	Eléments constituant	Teneur en %
CaO	55.30	CaO	9.20
SiO <sub>2</sub>	0.13	SiO <sub>2</sub>	64.75
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.20	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	8.80
MgO	1.35	MgO	0.55
Na <sub>2</sub> O	0.01	Na <sub>2</sub> O	0.05
SO <sub>3</sub>	0.02	SO <sub>3</sub>	0.04
Cl	0.01	Cl	0.01
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.05	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.52
-	-	K <sub>2</sub> O	0.53
-	-	TiO <sub>2</sub>	0.52
-	-	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.07

Les argiles brunes sont également considérées comme composantes essentielles dans la production du ciment. Les argiles brunes de Hamma forment un petit gisement autonome au nord du gisement de calcaire de Djebel Salah. L'argile brune de Hamma présente un faciès brun, plastique et légèrement sableux (2 à 3 % de sable et grès). Elle est moins siliceuse que l'argile rouge du Djebel Salah. Sa composition chimique est rappelée dans le tableau suivant [52] :

**Tableau IV-3.** Pourcentage des éléments constituant les argiles brunes [52].

Éléments	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	Cl
Teneur en %	56.10	16.90	6.00	3.60	0.02 à 0.06 (augmente avec la profondeur)

- L'autre échantillon de ciment est fabriqué par la cimenterie Lafarge Holcim de Hammam El-Dalaâ. Cette usine utilise les matières premières suivantes : 70% de calcaire de la carrière des montagnes de Hammam El-Dalaâ, 29% d'argile du gisement de Bir Madhi et 1% du sable de Boussaâda. Ses caractéristiques chimiques sont données dans le tableau suivant [53] :

**Tableau IV-4.** Caractéristiques chimiques de ciment de M'Sila [53].

Élément	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	Cl	Paf	Résidus insolubles
Teneur (%)	21.92	4.09	4.78	62.72	1.58	2.30	0.54	-	0.016	2.56	0.60

- Le dernier échantillon provient de la Société des Ciments de Zahana (SCIZ) située à Mascara. Le gisement de calcaire et d'argiles de Djebel Meskine est exploité par la cimenterie de Zahana, il est constitué par une série calcaire allant du dur au crayeux en intercalation avec des marnes à tripolis d'âge miocène supérieur. Sa composition moyenne chimique est donnée dans le tableau (IV-5) [54].

**Tableau IV-5.** Composition chimique moyenne du gisement de Djebel Meskine [54].

Types	Résultats analyses (%)									
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	Cl <sup>-</sup>	Pf
Calcaire	4.64	0.99	0.70	50.79	1.00	0.03	0.17	0.23	0.005	41.12
Marnes à tripolis	27.83	4.07	1.78	33.07	1.42	-	0.40	0.82	0.098	29.81

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés aussi à la mesure de la radioactivité contenue dans les différentes étapes de production de ciment, pour cela nous avons choisi un échantillon de cru (farine) et un autre de clinker de l'usine de Hamma Bouziane (SCHB).

#### **b. Le cru (farine)**

La poudre crue (farine) est la première étape dans la production du ciment. Elle sert à extraire et mélanger les matières premières. Un premier mélange comprend : 75% de calcaire, 12,5% d'argile rouge, et 12,5% d'argile brune. Un deuxième mélange est effectué ; il est composé de 99% de matières premières (mélange précédent), +1% de minerai de fer. Les produits de carrière sont séchés (voie sèche), broyés, dosés et homogénéisés après contrôle. Le cru est ainsi obtenu [55].

#### **c. Le clinker**

La deuxième étape se résume dans la décomposition du carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ) en oxyde de calcium ( $\text{CaO}$ , chaux) accompagnée d'un dégagement de gaz carbonique ( $\text{CO}_2$ ), à environ 900 °C. Ce procédé appelé calcination est suivi de la cuisson du clinker, ou clinkérisation, pendant laquelle l'oxyde de calcium réagit à une haute température (entre 1 400 et 1 500 °C) avec la silice, l'alumine et l'oxyde ferreux pour former des silico-aluminates de calcium composant le clinker. La composition minéralogique du clinker obtenu après traitement thermique des matières crues introduites dans le four rotatif est fonction de la composition du mélange introduit mais, aussi de la température à laquelle la cuisson est réalisée et des conditions de refroidissement [55].

#### **d. Le gypse**

Les sols gypseux sont largement répandus dans les zones arides et semi arides du monde là où la pluviométrie est inférieure à 400 mm. En Algérie, ils constituent 3,3% de la surface totale du pays et 12,2 % de la superficie totale des sols gypseux du monde, soit une superficie de 7966,3 km<sup>2</sup> [56]. Ces sols sont peu abondants dans les régions du nord et se localisent généralement dans les zones de dépressions et autour des formations géologiques gypsifères de l'étage bioclimatique aride. Dans les régions de l'intérieur où l'aridité devient plus importante, ils représentent une superficie importante principalement au niveau des oasis. Globalement, la présence des sols gypseux est signalée dans les régions suivantes : Oran, Mostaganem, Saida, Tiaret, Ksar-Echellala, Bouira, Djelfa, M'sila, les bordures des chotts et des Zahrez, Boussaâda, Hodna, Mechria, El-Bayadh, Khenchela, Batna, Adrar, Ouargla Ain Sefra, Laghouat, Biskra, El-Oued (Le souf), Touggourt (Oued R'hir) [57].

Dans cette thèse, nous avons évalués la radioactivité dans quatre échantillons de gypse. Un échantillon issu de la carrière de Sidi Boutbal, sise à 22 km à l'Est de la ville d'Oran, elle est installée au sein du plateau de Boufatis (Saint Louis). Cette carrière est constituée essentiellement par des terrains du miocène supérieur et du plioquaternaire. C'est une structure anticlinale à cœur messinien formé par de puissantes couches de gypse qui dépassent les 50 m. Le gypse de cette carrière constitue le cœur de l'anticlinal. C'est des bancs métriques (dépassant par endroit les 10 m) de gypse en fer de lance, macrocristallin et de couleur gris. Le gypse se présente sous forme de couches stratifiées et continues sur des très grandes surfaces [58]. Un autre échantillon prélevé de gisement d'Ain yagout wilaya de Batna. Ce gisement est riche de réserves de gypses blanc et rouge d'une superficie de 10 hectares. Le troisième échantillon de la carrière Manahar de Bouira et le dernier échantillon est originaire de l'Oued.

#### e. Les produits céramiques

Les tuiles et les briques en terre cuite sont les matériaux préférés en Algérie, en raison de la facilité de leur utilisation dans la construction, les bonnes caractéristiques techniques et l'adaptabilité au climat, malgré l'existence et le développement de produits concurrentiels (parpaings, plaques de plâtre, panneaux en bois ou autres, pierre, ...).

Les briques rouges sont utilisées pour la construction des murs et les carreaux en céramiques sont utilisés comme élément décoratif, surtout dans la cuisine, la salle de bain et le hall de la maison. Pour cette raison nous nous sommes intéressés à étudier la radioactivité contenue dans ce matériau. Nous avons choisi 13 échantillons : 6 de brique et 7 de tuiles en céramique.

La principale matière première du processus de production des briques et des carreaux en céramique est l'argile. L'élaboration de matériaux céramiques destinés à la construction fait appel à une grande variété des argiles qui doivent répondre aux plusieurs exigences, parmi lesquelles ils doivent être exempts d'inclusions grossières de gypse, de carbonates et autres impuretés. Ils doivent avoir la composition chimique suivante :

**Tableau IV-6.** Exigence de la composition chimique pour la fabrication de brique et tuile [57].

Eléments	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>3</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O+NaO <sub>2</sub>	P.F
Teneur (%)	35-80	7-23	2.5-9	0.02-4	<20	0.5-3	1-4	<14

En Algérie, il existe plusieurs gisements d'argile de différents types, qui sont utilisés pour la fabrication des produits céramiques. Les trois classes d'argiles les plus employées sont les kaolinites, les illites et les montmorillonites ou smectites.

Nous avons choisi d'étudier la composition minéralogique des gisements les plus utilisés dans l'Est Algérien tels que celui d'Ain Kerma et Ibn Ziad (Constantine) et Tamazert (Jijel).

Les gisements d'Ain Kerma et Ibn Ziad : ces deux sites sont situés dans le bassin Mila-Constantine. Ils sont représentés par des argiles, d'origine sédimentaire type kaolitique, dont les compositions minéralogiques et chimiques sont présentées dans les tableaux suivants [57] :

**Tableau IV-7.** Composition minéralogique et chimique des argiles du gisement d'Ain Kerma [57].

Minéraux	Kaolinite		Quartz		Feldspaths			Muscovité		
Teneur (%)	32.76		29.02		1.34			/		
Eléments	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	PF
Teneur (%)	45.12	13.20	4.29	/	16.93	0.60	0.20	0.02	0.75	18.47

**Tableau IV-8.** Composition minéralogique et chimique des argiles du gisement d'Ibn Ziad [57].

Minéraux	Kaolonite		Quartz		Feldspath			Muscovite		
Teneur (%)	31,02		27,36		8,39			/		
Eléments	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	PF
Teneur (%)	51.2	16.98	4.96	/	9.25	1.99	1.02	0.28	1.26	13.22

- Le gisement de kaolin de Tamazert- Jijel est situé à l'Est Algérien, il est formé lors d'un processus d'altération hydrothermale de feldspaths riches en potassium. Le kaolin, exploité au niveau de la mine, contient principalement les minéraux suivants : la kaolinite, la muscovite, le quartz, la dolomite, l'albite et l'orthoclase. Sa composition chimique se présente dans le tableau suivant :

**Tableau IV-9.** Composition chimique du kaolin du gisement de Tamazert [57].

Eléments	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	PAF
Teneur (%)	68.13	19.72	1.65	0.35	0.14	0.38	4.34	0.43	0.01	0.08	9.29

### f. Le sable

Toute construction et tout ouvrage de travaux publics nécessitent pour leurs réalisations, outre le ciment, les agrégats et l'eau, du sable en proportion adaptée, selon l'ouvrage envisagé. Il existe différents types de sables qui ont différentes utilisations en construction.

Dans cette étude nous avons choisi d'évaluer les niveaux de radioactivité présente dans neuf échantillons de sable de différentes régions d'Algérie.

- Un échantillon a été prélevé d'une carrière qui se situe au Sud Est de Constantine (El-Khroub). Cette carrière est formée essentiellement de calcaires néritiques crayeux blanchâtres et de quelques bancs de gypse.
- Un échantillon de la carrière de Sigus (Oum El Bouaghi).
- Un échantillon dunaire de Oued Zhour (Jijel), l'analyse à la loupe binoculaire a révélé que les sables dunaires de Oued Zhour sont constitués principalement des quartz, des tourmalines, des zircons, de la muscovite, des grenats et de fragments de roches [59].
- Un échantillon de Boussaâda (M'sila). C'est un sable très fin d'origine siliceuse dont la composition chimique est présentée au tableau suivant :

**Tableau IV-10.** Composition chimique du sable naturel de Boussaâda [60].

Elément	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	Cl <sup>-</sup>
Teneur (%)	89.67	0.90	0.91	5.96	0.2	0.05	0.3	0.01	0.019

- Deux échantillons d'Aïn Sefra, Un sable de construction et l'autre est un sable des dunes. Les sables des dunes, que l'on trouve dans les dunes mouvantes, sont composés de particules siliceuses pratiquement de même taille et de petites dimensions. Ces sables sont accumulés sous forme de dunes mouvantes de hauteur très variable. Le Sahara est constituée d'environ 30 % des dunes. Les sables des dunes sont un élément essentiel du processus sédimentaire et représentent une ressource très importante du point de vue économique: remblais, granulats pour béton, matériaux de construction et des sables siliceux pour l'industrie (comme la fabrication des céramiques). Selon une étude, la composition chimique des sables des dunes de Aïn Sefra est montrée dans le tableau (IV-1) [61].

**Tableau IV-11.** Analyse chimique des sables de dunes d'Aïn Sefra [61].

Eléments	La silice brute (HCl et NH <sub>4</sub> Cl)	Dosage de l'oxyde de calcium (CaO)	Dosage de l'oxyde de fer (FeO <sub>3</sub> )	Dosage de l'oxyde d'alumine (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	L'anhydride sulfurique (SO <sub>3</sub> )	Evaluation des carbonates (CaCO <sub>3</sub> )
(%)	89.7	1.63	0.35	0.30	-	1.87

- Les trois échantillons restants proviennent de Mascara, d'El Bayedh et de la Calle.

Pour pouvoir effectuer les mesures de spectrométrie gamma et avoir les meilleurs résultats, les échantillons de brique et de céramique ont été préparés au département des sciences géologiques. L'opération consiste à les transformer en de petits grains de taille inférieure à 2 mm d'épaisseur en passant par trois étapes essentielles:

- **1<sup>ère</sup> étape** : élimination de toute contamination du mini-concasseur à mâchoire en utilisant un compresseur (Figure IV-2).

**Figure IV-2.** Compresseur (atelier des lames minces, département des sciences géologiques).

- **2<sup>ème</sup> étape** : briser les matériaux en petits fragments de 5 mm de taille en utilisant le mini-concasseur (Figure IV-3).



**Figure IV-3.** Mini concasseur (atelier des lames minces, département des sciences géologiques).

- **3<sup>ème</sup> étape :** écraser les grains dans un broyeur grand format afin d'obtenir une poudre (Figure IV-4).



**Figure IV-4.** Broyeur grand format (atelier des lames minces, département des sciences géologiques).

Après avoir été écrasés, les matériaux de construction sont séchés dans un four à une température de 110 °C pendant 24 heures afin d'éliminer le contenu hydratant et obtenir un poids constant. Les échantillons ont été conditionnés dans de fines boîtes en plexiglas de 60 ml pour éviter l'auto-absorption des rayons gamma de faibles énergies (Figure IV-5). Ces boîtes ont été pesées, scellées et stockés durant une période de 35 jours (~ 10 demi-vies) pour assurer l'équilibre séculaire ( $^{226}\text{Ra}$ - $^{222}\text{Rn}$ ) entre le radon émis par les échantillons et celui provenant de l'environnement lors de la préparation des échantillons afin que toute contamination au radon soit éliminée.



(a)



(b)

**Figure IV-5.** (a) Matériels utilisés pour la préparation des échantillons (LPMPS, département de physique) (b) les échantillons avant et après conditionnement.

## IV.2. Description du système d'acquisition

La mesure de la radioactivité contenue dans les échantillons a été effectuée à l'aide de la chaîne de spectrométrie gamma de la division des techniques nucléaires du CRNA (Centre de Recherche Nucléaire Alger).

On s'attend à mesurer les habituels radioéléments naturels tels que le  $^{40}\text{K}$ , les chaînes de désintégrations de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$ , et éventuellement le  $^{137}\text{Cs}$  radioélément d'origine artificielle. Au plus près, la chaîne de spectrométrie gamma du CRNA est constituée d'un détecteur germanium hyper pur (HPGe) de type P, avec une géométrie coaxiale muni d'une fenêtre en carbone-époxy (model GX4020-7500SL) fabriqué par Canberra. Il est caractérisé par une efficacité relative de 40% par rapport au scintillateur NaI(Tl) de dimension du cristal 3"x3", et une résolution en énergie (FWHM) de 1.8 keV à la raie 1332,5 keV du  $^{60}\text{Co}$ , de 0,86 keV à la raie gamma 122 keV du  $^{57}\text{Co}$ .

Le détecteur est entouré d'un blindage en plomb de 100 mm d'épaisseur (Canberra 747 Series Lead Shield) avec des revêtements des couches d'étain de 1 mm et de 1,6 mm de cuivre d'épaisseurs pour réduire la fluorescence des rayons X due à ce blindage et obtenir un bruit de fond nécessaire pour les applications environnementales [53, 54].

Un inspecteur DSA 1000 de marque Canberra a été utilisé pour amplifier, ajuster et traiter les impulsions délivrées par le détecteur. L'acquisition de données a été effectuée au moyen du logiciel Génie 2000, qui sert, en plus de l'acquisition des données, au traitement de celles-ci. Chaque échantillon a été mesuré pendant une durée moyenne de 24 heures. La figure (IV-6) montre le dispositif expérimental utilisé pour la mesure des échantillons.



**Figure IV-6.** Chaîne de spectrométrie gamma du Centre de Recherche Nucléaire Alger (CRNA).

### IV.3. Etalonnage de la chaîne de mesures

Dans les processus des mesures de radioactivité par spectrométrie  $\gamma$ , il est nécessaire d'établir un étalonnage en énergie (analyse qualitative) et un étalonnage en efficacité de la chaîne de détection (analyse quantitative) [64].

#### IV.3.1. Etalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie d'une chaîne de spectrométrie gamma a pour objectif d'identifier les radionucléides présents dans l'échantillon étudié. Il se performe en utilisant des sources étalons certifiées dont les raies d'émission  $\gamma$  principales sont connues avec une excellente précision. Dans cette étude, l'étalonnage en énergie du système a été effectué en utilisant les pics d'absorption totale d'énergie (pics photoélectriques) de la source étalon ( $^{152}\text{Eu}$ ). Cette source de rayonnements multi-gamma (figure IV-7) est généralement choisie grâce à sa disponibilité, sa longue demi-vie, sa large gamme d'énergie (120-1600 keV) et du fait de son prix moins coûteux que d'autres sources étalons. Le spectre gamma collecté est représenté sur la figure IV-8 avec les principales énergies gamma utilisées en étalonnage en énergie.

La courbe de calibration (figure IV-9) donnant l'énergie en fonction du numéro de canal a été déterminée en associant à chaque canal une énergie connue. Le rapport entre les canaux et les énergies est donnée par une fonction polynomiale du deuxième ordre comme le montre la relation (IV.1) :

$$E(\text{keV}) = A + B_1C + B_2C^2 \quad (\text{IV.1})$$

Où  $A$ ,  $B_1$  et  $B_2$  sont des constantes et  $C$  est le numéro de canal.

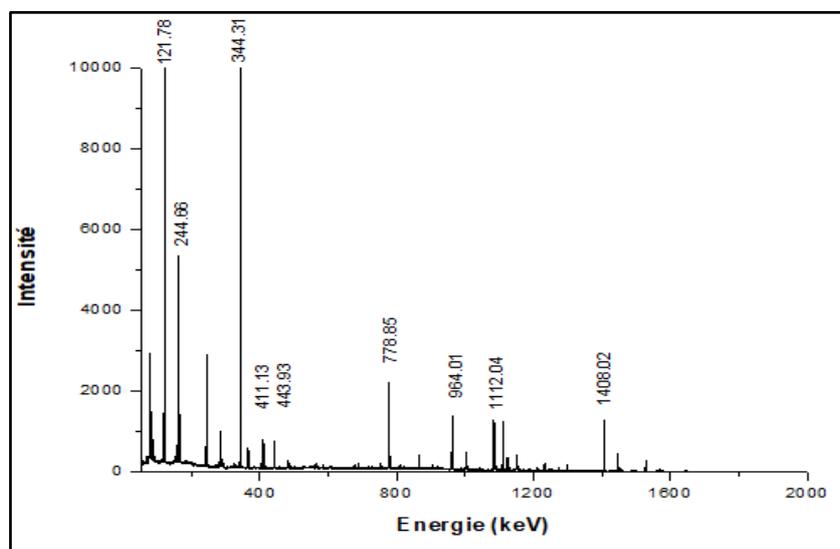


Figure IV-7. Spectre expérimental de la source  $^{152}\text{Eu}$ .

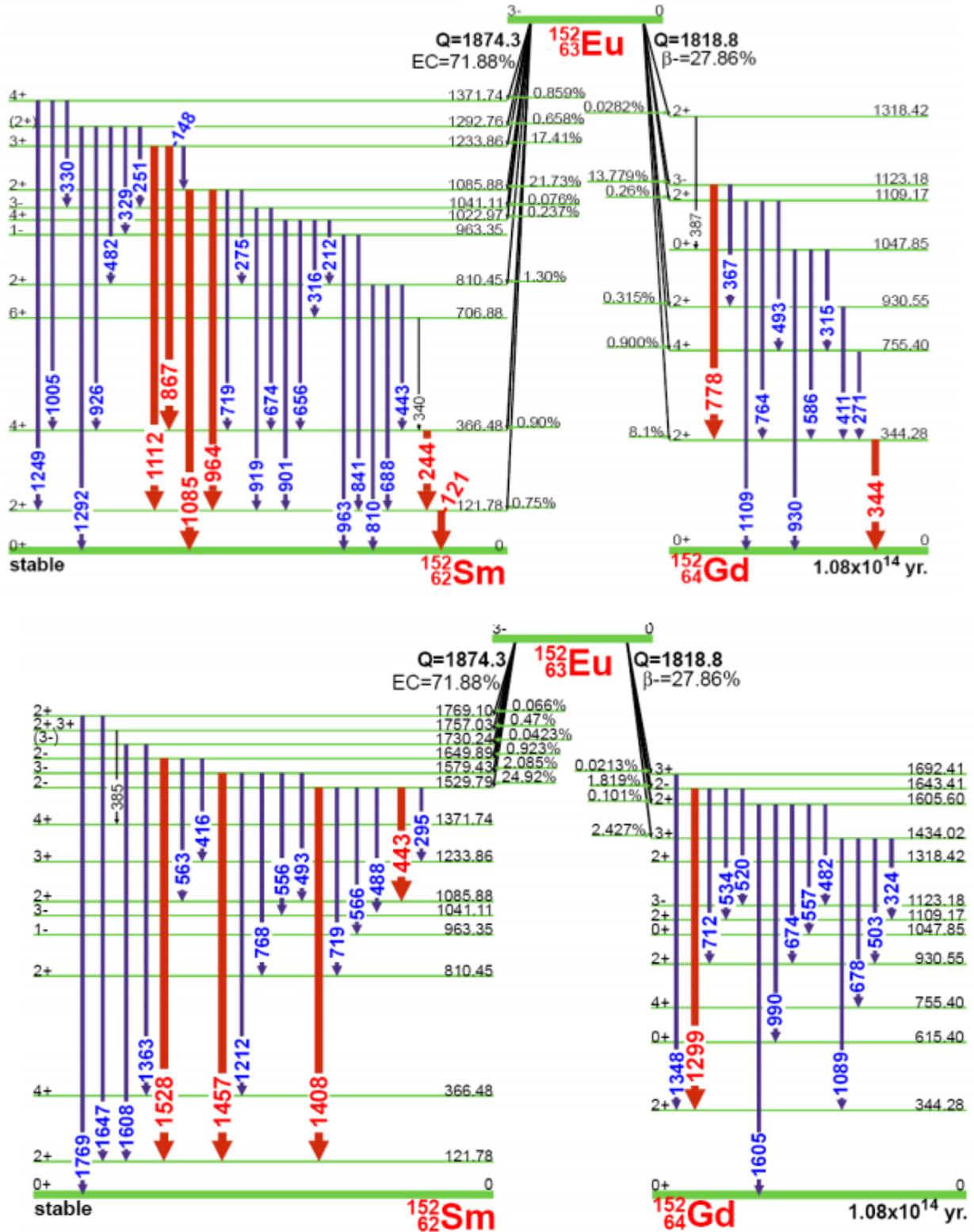


Figure IV-8. Schéma de désintégration de  $^{152}\text{Eu}$  [65].

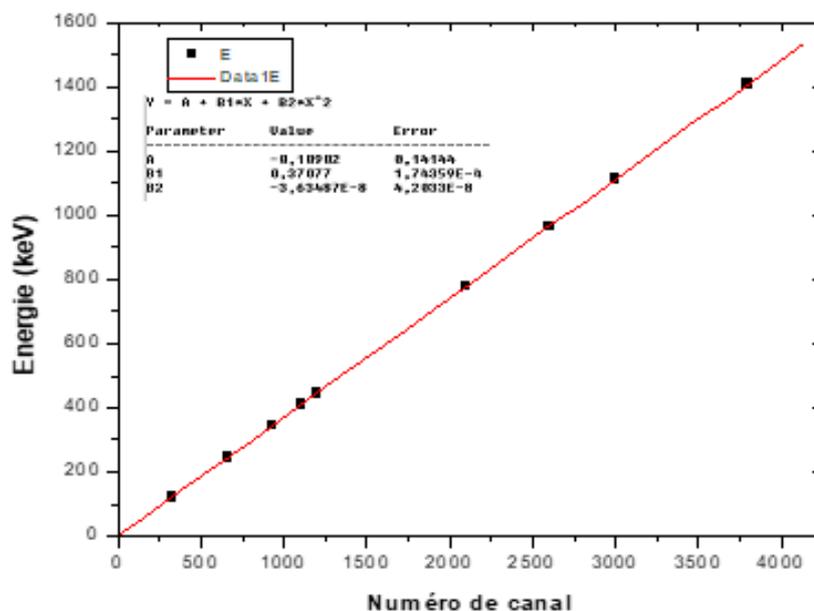


Figure IV-9. Courbe d'étalonnage en énergie.

### IV.3.2. Etalonnage en efficacité

L'efficacité de détection pour une géométrie volumineuse est une tâche complexe, elle est déterminée par le détecteur (ses dimensions et sa composition), la source (sa composition et sa géométrie) et la configuration de mesures.

Le but de l'étalonnage en efficacité du détecteur est d'établir le rapport entre l'aire nette du pic de radionucléide d'intérêt et sa concentration d'activité dans l'échantillon mesuré. L'étalonnage en efficacité du détecteur associe généralement les mesures expérimentales et les simulations Monte-Carlo pour déterminer l'efficacité de détection avec plus de précision en prenant en considération les effets de coïncidences et de l'auto-atténuation.

#### a. Etalonnage expérimental

L'étalonnage expérimental en efficacité du système de détection a été réalisé au niveau du laboratoire en utilisant un standard d'eau chargée de radionucléides formés de ( $^{214}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ) de géométrie cylindrique (diamètre de 7,5 cm et hauteur de 19,5 mm) rempli à une masse  $m=48.77\text{g}$ , mélangé dans une matrice sol.

Les activités des sources  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{241}\text{Am}$  sont de  $49.9\text{Bq.kg}^{-1}$ ,  $50.9\text{Bq.kg}^{-1}$ ,  $40.2\text{Bq.kg}^{-1}$  respectivement à la date de référence (1-1-2013). Le temps écoulé à la date de mesure (27-3-2017) est égale à 1546 jours. L'activité au temps de collection est alors corrigée par le temps de décroissance de la source  $t_d$  depuis la date de fabrication

Les demi-vies et les constantes radioactives des sources sont :

- $^{152}\text{Eu}$  ( $T = 13,2$  ans et  $\lambda = 1,4386 \cdot 10^{-4}$  jour $^{-1}$ ).
- $^{60}\text{Co}$  ( $T = 5,26$  ans et  $\lambda = 3,6103 \cdot 10^{-4}$  jour $^{-1}$ ).
- $^{241}\text{Am}$  ( $T = 433$  ans et  $\lambda = 0,0438 \cdot 10^{-4}$  jour $^{-1}$ ).

A partir du spectre des raies gamma obtenu (exemple figure IV-10), l'efficacité absolue est calculée pour chaque pic d'énergie en utilisant l'équation (IV.2).

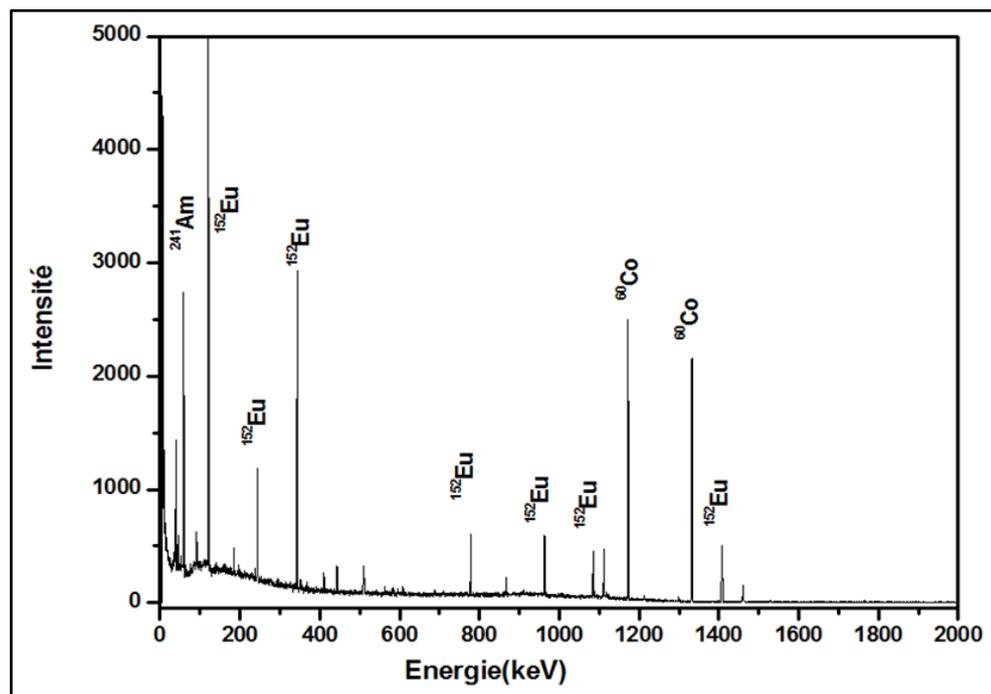
$$\varepsilon_{abs} = \frac{C_{net}}{A \times P_E \times t_c} \quad (\text{IV.2})$$

Où  $C_{net}$  est la surface nette du pic d'énergie  $E_\gamma$ ,

$A$  est l'activité de la source à la date de la mesure,

$P_E$  est la probabilité d'émission du rayonnement gamma d'énergie  $E_\gamma$ ,

$t_c$  est le temps réel de comptage.



**Figure IV-10.** Spectre expérimental du standard d'eau chargée des radionucléides ( $^{241}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ) (spiked water).

Ces valeurs des efficacités expérimentales sont alors corrigées par les effets de coïncidences et de l'auto-atténuation des rayons gamma ensuite elles sont validées par un calcul par simulation au moyen de code Monte Carlo.

### b. Simulation Monte-Carlo

La simulation basée sur la méthode Monte Carlo peut être exploitée lorsque des informations détaillées sur la composition du détecteur et de la géométrie de la source sont disponibles. Il faut créer un modèle géométrique du système exploité en utilisant les dimensions nominales et définir les caractéristiques des matériaux de chacun de ses volumes. Il est nécessaire de modéliser les volumes cibles dans lesquels sont susceptibles d'interagir les particules. Le modèle est validé une fois la simulation des radioéléments présents dans les sources étalons permet d'avoir des points de comparaison dans la courbe d'étalonnage. L'ajustement du modèle pour qu'il donne des résultats les plus proches possibles des valeurs expérimentales est l'étape la plus longue et la plus difficile. Les écarts entre les valeurs expérimentales et celles simulées varient de 1 à 15% ; tout dépend de la complexité du système.

Le logiciel de simulation Monte Carlo utilisé dans le calcul de l'efficacité au CRNA est LabSOCS (Laboratory Sourceless Object Calibration Software). Ce logiciel développé par la société Canberra, est basé sur les modèles de simulation et les géométries construites par le code MCNP. LabSOCS performe des étalonnages en efficacité pour des systèmes de détection sans utiliser de source radioactive. Il permet aussi d'établir des étalonnages rapides et précis de nombreuses géométries difficiles à réaliser. LabSOCS comprend des exemples de modèles de géométries de mesure communes avec des temps d'exécutions courts. Ce logiciel nécessite de connaître l'efficacité de détection intrinsèque au détecteur (présence de zones mortes, impuretés dans le cristal, épaisseur ou densité...). Cette efficacité est obtenue avec des sources étalons disposées autour du détecteur. Une fois les caractéristiques du détecteur utilisé renseignées et la géométrie de mesure implémentée, l'algorithme de LabSOCS calcule l'efficacité sans atténuation, le trajet vers le centre du détecteur et les facteurs d'atténuation. A la fin, une courbe d'étalonnage en rendement est obtenue. L'utilisateur doit saisir des incertitudes sur les courbes d'étalonnage des efficacités calculées. Les incertitudes standard relatives suggérées par le fabricant pour les conditions standard de laboratoire sont de l'ordre de 7% aux basses énergies (50-100 keV), 6% aux moyennes énergies (100-400 keV) et 4% à hautes énergies (400-7000 keV)[56, 57].

Les valeurs des efficacités calculées sont montrées dans le tableau IV-12.

**Tableau IV-12.** Efficacité du détecteur simulée par le logiciel LabSOCS.

Energie (keV)	Efficacité calculée
40	0.185±0.027
45	0.189±0.028

60	0.195±0.019
80	0.194±0.019
100	0.185±0.018
150	0.154±0.015
200	0.127±0.010
300	0.090±0.007
500	0.057±0.003
700	0.043±0.002
1000	0.032±0.001
1400	0.025±0.001
2000	0.018±0.001

A partir de ces valeurs, un fit a permis de déduire la courbe de l'efficacité (figure IV-11) et l'équation associée à cette courbe (IV.3) en fonction de l'énergie.

$$\varepsilon_E = y_0 + (A_1 \times e^{\left(\frac{-E_\gamma}{t_1}\right)}) + (A_2 \times e^{\left(\frac{-E_\gamma}{t_2}\right)}) \quad (IV.3)$$

où  $y_0$ ,  $A_1$ ,  $t_1$ ,  $A_2$ ,  $t_2$  sont des constantes.  $E_\gamma$  est l'énergie du radionucléide présent dans l'échantillon.

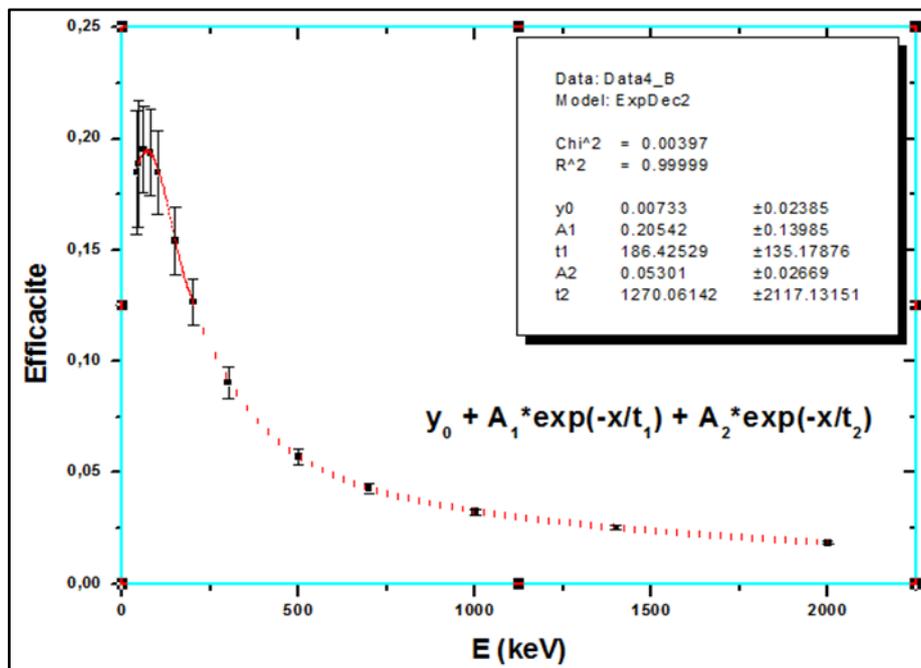


Figure IV-11. Courbe d'efficacité calculée en fonction de l'énergie.

Cette relation a servi à évaluer les valeurs des efficacités utilisées pour toutes les énergies des radionucléides présents dans les échantillons étudiés dans ce travail.

#### IV.4. Mesure du bruit de fond

La mesure du bruit de fond est une étape nécessaire en spectrométrie gamma car elle nous permet d'éliminer toute contamination présente dans l'ensemble du système de détection, tels que les radionucléides environnementaux et les rayonnements cosmiques. En effet, comme expliqué dans le chapitre II, ils existent plusieurs paramètres qui ont une influence sur la qualité du spectre de mesures. Pour cela, une mesure du bruit de fond doit être effectuée dans chaque laboratoire de mesures et plus spécifiquement dans les mesures de faibles activités afin d'atteindre des limites de détection aussi basses que possible. Car, un bas bruit de fond amène à des faibles valeurs de limite de détection dans la chaîne de mesures et permet d'obtenir des activités plus précises des radionucléides dans les échantillons.

La figure IV-12 montre le spectre de bruit de fond obtenu au niveau du laboratoire durant 4 jours.

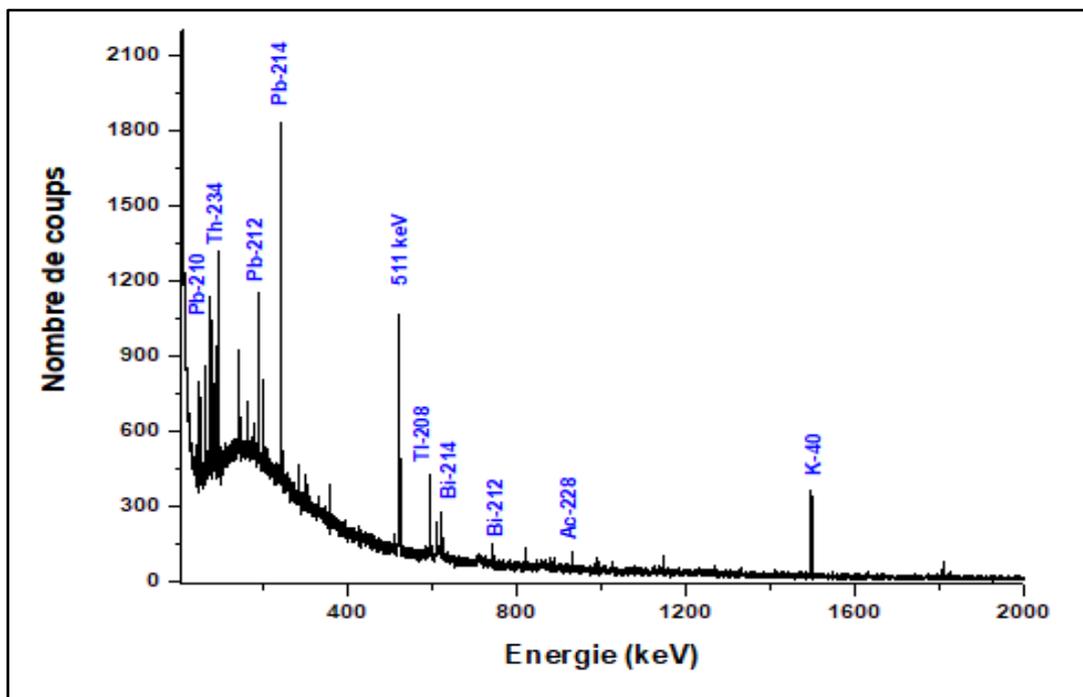


Figure IV-12. Spectre gamma du bruit de fond mesuré durant 04 jours.

Le spectre de bruit de fond montre la présence de différentes composantes, un fond cosmique continu et de multiples pics naturels. La plupart de ces pics sont les radioéléments descendants des familles radioactives naturelles  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  avec le radionucléide primordial  $^{40}\text{K}$ .

#### IV.5. Analyse du spectre obtenu

Après mesure de la radioactivité de chaque échantillon qui dure au moins 24 heures, on obtient un spectre donnant le nombre de coups enregistrés en fonction de l'énergie des rayons gamma émis par les radionucléides (figure IV-13). A partir de ce spectre, l'identification de tous les pics des radionucléides naturels et artificiels présents dans les échantillons peut être établie. L'activité d'un élément donné est proportionnelle à la surface du pic sélectionné c'est-à-dire au nombre de coups total collecté durant le temps complet d'acquisition. L'activité est exprimée en Bq (1 Bq = 1 désintégration par seconde). Selon la norme internationale (Organisation Internationale de normalisation) NF ISO 18589-3 de 2007, elle est définie par la relation (IV.4). Prenant en compte l'aire nette  $C_{net}$  de pic d'absorption totale (après soustraction du bruit de fond), la probabilité d'émission  $P_E$  d'un rayonnement  $\gamma$  d'énergie  $E$  par désintégration, l'efficacité absolue  $\epsilon_E$ , corrigée par les effets de coïncidences et de l'auto-atténuation des rayons gamma pour une énergie  $E$  donnée, le temps de comptage  $t_c$  exprimé en seconde et la masse  $m$  de l'échantillon mesuré exprimée en kg.

$$A = \frac{C_{net}}{P_E \cdot \epsilon_E \cdot t_c \cdot m} \quad (\text{IV.4})$$

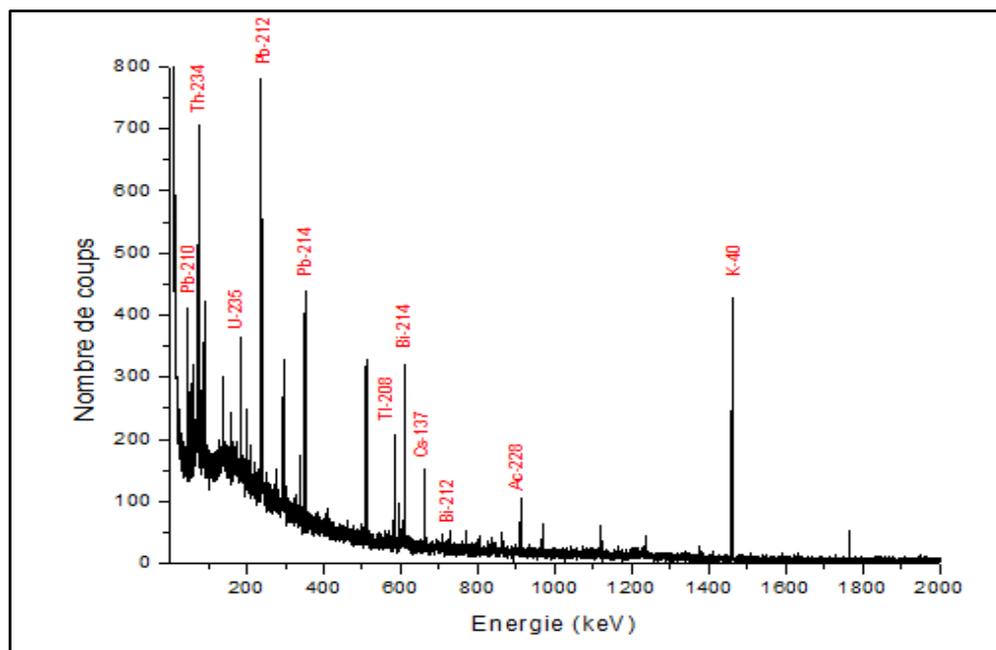


Figure IV-13. Spectre gamma de l'échantillon SMAS mesuré durant 24 heures.

Les radionucléides  $^{235}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  et  $^{137}\text{Cs}$  sont des émetteurs des rayons gamma qui peuvent être détectés directement. Par contre, l' $^{238}\text{U}$ , le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{232}\text{Th}$  ne sont pas émetteurs de rayons gamma. Dans le cas de ces radionucléides non émetteurs de rayons gamma directs, on peut les déduire à partir de certains de leur descendants émetteurs gamma qui possèdent une probabilité d'émission gamma significative, à condition qu'ils soient capables d'entrer en équilibre avec leurs parents au cours d'une période temporelle raisonnable. Pour ces radionucléides, on procède de la manière suivante :

- **L'identification de l'Uranium 238 ( $^{238}\text{U}$ )**

L'uranium 238 n'émet que des photons de faibles énergies (49.55 keV) avec une très faible probabilité d'émission (0.064%). Pour cette raison, il est généralement déterminé indirectement par ses descendants après que l'ensemble soit en équilibre séculaire. Les radioéléments les plus utilisés sont le  $^{234}\text{Th}$  et le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ .

Le  $^{234}\text{Th}$  est presque toujours en équilibre séculaire avec l' $^{238}\text{U}$  grâce à sa courte demi-vie (24 jours) dans l'environnement. Il émet des photons de faibles énergies avec des faibles probabilités d'émission: 63,29 keV (3,8%), 92,35 keV (2,72%) et 92,78 keV (2,69%). Les photons d'énergies 92,35 et 92,78 keV sont très proches, ce qui se traduit par un double photo-pic qui est très difficile à analyser, raison pour laquelle ces deux pics sont rarement utilisés.

Le  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  a une courte demi-vie (6,7 heures) et il est pratiquement toujours en équilibre avec son parent ( $^{234}\text{Th}$ ). Cependant, il émet des photons de 766.36 keV et 1001,03 keV avec de très faibles probabilités d'émission. L'activité obtenue à cette énergie présente une grande incertitude en raison de sa faible intensité et de sa faible efficacité dans les détecteurs de germanium. Donc, ils ne peuvent pas être utilisés pour la détermination de l' $^{238}\text{U}$  dans des échantillons de faible activité.

Compte tenu de ce qui précède, les photons de  $^{234}\text{Th}$  à 63,29keV (3,75%) ont été utilisés pour la détermination de l' $^{238}\text{U}$  dans le présent travail.

- **L'identification du Radium 226 ( $^{226}\text{Ra}$ )**

La quantification du radium 226 représente un cas difficile dans la spectrométrie des rayonnements gamma due à son seul pic d'énergie 186.2 keV et l'existence simultanée du pic d'énergie 185.7 keV de l'uranium 235 ce qui crée un problème d'interférence. La situation est encore compliquée puisque l' $^{235}\text{U}$  est difficile à déterminer avec précision à cause de sa faible intensité. Pour cette raison, il est préférable de le déterminer à partir de ses descendants après équilibre. En particulier, le pic du photon d'énergie 351.93 keV avec une probabilité d'émission

de 35.6 % issu du plomb 214 et le pic du photon d'énergie 609.3 keV avec une probabilité d'émission de 45.49 % issu du bismuth 214 sont utilisés.

#### - L'identification du Thorium 232 ( $^{232}\text{Th}$ )

Les radionucléides les plus intéressants dans la chaîne radioactive du thorium 232, d'un point de vue études environnementales, sont le  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  et  $^{228}\text{Th}$ . Ces radionucléides ne peuvent pas être déterminés par spectrométrie gamma, par contre, ils peuvent être estimés à partir de leurs produits de désintégration après équilibre avec les descendants. Dans la nature, ceci n'est pas toujours le cas pour le  $^{232}\text{Th}$ . Mais, la détermination du  $^{228}\text{Ra}$  peut être établie par l' $^{228}\text{Ac}$  et celle du  $^{228}\text{Th}$  par ses descendants le  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  et  $^{208}\text{Tl}$ .

Les rayons gamma les plus intenses de l'actinium 228 sont 911.2 keV (26.2 %) et 969 keV (15.9 %). Concernant le plomb 212 et le bismuth 212, leurs émissions les plus utilisées sont 321,95 keV (43.6 %) et 727.3 keV (6.65 %), respectivement. Pour le thallium 208, qui est en équilibre avec le  $^{212}\text{Bi}$ , les principales raies d'émission gamma apparaissent à 583.3 keV (85 %) et 2614.5 keV (99.76 %). La contribution du  $^{208}\text{Tl}$  dans l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  est de 35.94% car le  $^{212}\text{Bi}$  se désintègre en  $^{208}\text{Tl}$  (35.94%) et  $^{212}\text{Po}$  (64.06%). La moyenne des activités de ces quatre radionucléides a été utilisée dans cette étude pour déterminer les activités du  $^{232}\text{Th}$  des échantillons étudiés.

#### - L'identification de l'Uranium 235 ( $^{235}\text{U}$ )

L'activité de l' $^{235}\text{U}$  n'est pas souvent rapportée dans les échantillons de l'environnement, due aux difficultés dans sa détermination. L'uranium 235 émet plusieurs photons gamma d'énergies : 143.76keV (10.96%), 163.33 keV (5.08%), 185.72 keV (57.2%) et 205.31keV (5.01%). Cependant, grâce à sa longue demi-vie ( $7.04 \times 10^8$  ans) et les faibles probabilités d'émission de ses photons dans les échantillons de l'environnement, les photons d'énergie 185.72 keV sont les seuls qui peuvent être utilisés pour la détermination de  $^{235}\text{U}$ . Donc, pour résoudre le problème de leur interférence avec ceux émis par le  $^{226}\text{Ra}$ , on peut calculer l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  à partir de ses descendants à l'équilibre et soustraire sa contribution du double photo-pic pour déduire l'activité de l' $^{235}\text{U}$ . En utilisant cette approche, chaque incertitude dans la détermination du  $^{226}\text{Ra}$  influence la détermination de  $^{235}\text{U}$ . Pour cette raison, la raie 185.72 keV ne peut pas être fiable dans la détermination de l'uranium 235. Il existe une autre méthode qui consiste à calculer l'activité de l' $^{235}\text{U}$  à partir de l'activité de l' $^{238}\text{U}$  en utilisant le rapport d'abondance ( $^{238}\text{U}/^{235}\text{U} = 21.7$ ).

- **L'identification du Potassium 40 ( $^{40}\text{K}$ ), Plomb 210 ( $^{210}\text{Pb}$ ) et Césium 137 ( $^{137}\text{Cs}$ )**

Le radionucléide primordial  $^{40}\text{K}$  a été déterminé directement à partir de sa raie gamma d'énergie 1460.8 keV avec une probabilité d'émission de 10.55%. Le plomb 210 a été déterminé aussi à partir de sa raie gamma d'énergie 46.5 keV avec une probabilité d'émission de 4.25 %. Enfin, la présence du radionucléide anthropogénique Césium 137 a été également déterminée directement à partir de sa raie gamma d'énergie 661.7 keV avec une probabilité d'émission de 84.99 %.

## IV.6. Évaluation des erreurs statistiques

### IV.6.1. Les incertitudes de mesure

La désintégration radioactive est un processus aléatoire. Par conséquent, chaque mesure basée sur l'observation des radiations émises dans la désintégration nucléaire est soumise à un certain degré de fluctuations statistiques. Ces fluctuations inhérentes représentent une source inévitable d'incertitudes dans toutes les mesures nucléaires et souvent elle peut être une source prédominante d'imprécisions et d'erreurs [31]. On distingue deux sortes d'erreurs dont toute mesure peut être affectée: les erreurs systématiques et les erreurs statistiques.

- Les erreurs systématiques liées à l'instrument de mesure influencent l'exactitude ou la justesse de la mesure et sont prises en considération par une correction apportée au résultat de cette mesure.
- Les erreurs statistiques par contre ne peuvent en principe pas être évitées. Elles affectent la précision ou fidélité de la mesure. Leur cause se trouve dans l'expérimentateur lui-même. Il faut les maintenir aussi faibles que possible et estimer ou calculer leur influence sur le résultat obtenu.

### IV.6.2. Incertitudes sur une mesure composée; loi de propagation

Généralement, un résultat  $u$  d'une mesure dépend de plusieurs grandeurs mesurées  $x$ ,  $y$ ,  $z$  ...etc.  $u$  est alors une grandeur composée. Chaque grandeur mesurée a une certaine incertitude  $\sigma_x$ ,  $\sigma_y$ ,  $\sigma_z$ ... et ces dernières produisent ensemble l'incertitude totale  $\sigma_u$  sur le résultat  $u$ . La façon dont l'incertitude de chaque paramètre individuel participe à l'incertitude totale est décrite par la propagation des incertitudes qui est définie par la formule générale décrite ci-dessous [31] :

$$\sigma_u^2 = \frac{\delta u^2}{\delta x^2} \sigma_x^2 + \frac{\delta u^2}{\delta y^2} \sigma_y^2 + \frac{\delta u^2}{\delta z^2} \sigma_z^2 + \dots \quad (\text{IV.5})$$

Les variables  $x, y, z, \dots$  doivent être indépendantes afin d'éviter les effets de corrélation [31].

A l'aide de cette relation, nous avons estimé les incertitudes sur les activités spécifiques, sur l'efficacité et toutes les grandeurs physiques calculées dans ce travail.

## IV.7. Analyse statistique

L'analyse statistique univariée a généralement été utilisée pour traiter les données sur les éléments radioactifs dans des échantillons environnementaux. La simplicité de l'analyse statistique univariée est évidente et de même l'erreur de réduction pourrait être apparente. Afin d'éviter ce problème, l'analyse multivariée est utilisée pour expliquer la corrélation entre un grand nombre de variables en termes d'un petit nombre de facteurs sous-jacents sans perdre beaucoup d'informations. L'intention sous-jacente à l'utilisation de l'analyse multivariée est d'obtenir une grande efficacité de compression des données à partir des données d'origine, et d'obtenir des informations utiles à l'interprétation de l'origine géochimique environnementale. Cette méthode peut également aider à simplifier et organiser de grands ensembles de données pour fournir des informations significatives, et peut aider à indiquer les associations naturelles entre échantillons et/ou variables [68]. Dans ce travail, les mesures radioactives acquises par spectrométrie gamma ont été soumises à des analyses statistiques quantitatives afin de tirer une conclusion valable concernant la nature et l'importance des éléments radioactifs. Le principal logiciel statistique utilisé est SPSS «Statistical Package for Social Sciences».

### IV.7.1. Statistique descriptive univariée

- **La moyenne :**

La moyenne ne peut être définie que sur une variable quantitative. C'est la somme des valeurs observées divisée par leur nombre, elle est notée  $\bar{x}$  :

$$\bar{x} = \frac{x_1 + x_2 + \dots + x_i + \dots + x_n}{n} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i \quad (\text{IV.6})$$

- **La variance :**

La variance est la mesure de la dispersion des données dans une distribution autour de la moyenne. Elle est définie par la somme des carrés des écarts à la moyenne divisée par le nombre d'observations :

$$S_x^2 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \quad (\text{IV.7})$$

- **L'écart-type :**

L'écart-type est une mesure de la façon de répartir les nombres dans une distribution. Il indique à quel point, en moyenne, chacune des valeurs de la distribution s'écarte de la moyenne, ou du centre de la distribution. Il est calculé en prenant la racine carrée de la variance :

$$S_x = \sqrt{S_x^2} \quad (\text{IV.8})$$

- **Coefficient d'asymétrie de Fisher (skewness)**

Dans la théorie des probabilités 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. 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 [69]. 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 [68].

L'asymétrie se mesure au moyen du coefficient d'asymétrie de Fisher :

$$g_1 = \frac{m_3}{s_x^3} \quad (\text{IV.9})$$

où le moment centré d'ordre trois est défini par :

$$m_3 = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^3 \quad (\text{IV.10})$$

$s_x^3$  est le cube de l'écart-type.

- **Paramètre d'aplatissement (kurtosis)**

Le paramètre d'aplatissement ou kurtosis est une mesure de la pointe de la distribution de probabilité d'une variable aléatoire à valeur réelle. Il caractérise le pic relatif ou la planéité d'une

distribution par rapport à la distribution normale. Un kurtosis positif indique une distribution relativement pointue. Un kurtosis négatif indique une distribution relativement plate [68].

Le kurtosis se mesure au moyen du coefficient d'aplatissement de Fisher :

$$g_2 = \beta_2 - 3 \quad (\text{IV.11})$$

où  $\beta_2$  est le coefficient d'aplatissement de Pearson :

$$\beta_2 = \frac{m_4}{s_x^4} \quad (\text{IV.12})$$

avec  $m_4$  : le moment centré d'ordre 4,

$s_x^4$  : le carré de la variance.

La courbe obtenue est une courbe mésokurtique si  $g_2 \approx 0$ , une courbe leptokurtique (plus pointue et possède des queues plus longues) si  $g_2 > 0$  et une courbe platykurtique (plus arrondie et possède des queues plus courtes) si  $g_2 < 0$ .

#### IV.7.2. Statistique descriptive bivariée : Analyse de corrélation

La corrélation est une quantification de la relation linéaire entre des variables continues. Le calcul du coefficient de corrélation de Pearson repose sur le calcul de la covariance entre deux variables continues. Le coefficient de corrélation est en fait la standardisation de la covariance. Cette standardisation permet d'obtenir une valeur qui varie toujours entre -1 et +1. Le coefficient de corrélation de Pearson entre deux variable x et y est obtenu par l'équation ci-dessous:

$$r_{xy} = \frac{S_{xy}}{S_x S_y} \quad (\text{IV.13})$$

où la covariance  $S_{xy}$  est défini par la relation suivante :

$$S_{xy} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y}) \quad (\text{IV.14})$$

$S_x$  et  $S_y$  sont les écarts types de x et y, respectivement.

Un coefficient de 1 indique une corrélation positive parfaite entre les deux variables. À l'inverse, un coefficient de - 1 indique une corrélation négative parfaite: lorsque la variable x augmente, la variable y diminue dans la même proportion. Dans les deux cas, les points tombent

parfaitement sur la droite. Un coefficient de 0 indique qu'il n'y a aucune relation entre les deux variables. Ainsi, la variation de l'une n'est aucunement associée à la variation de l'autre.

Plus la valeur du coefficient de corrélation est proche de + 1 ou de - 1, plus les deux variables sont associées fortement. Au contraire, plus le coefficient est près de 0, moins les variables partagent de covariance, moins l'association est forte.

### **IV.7.3. Statistique descriptive multivariée : Arbre Archaïque**

En raison du grand nombre de variables, les résultats des analyses de corrélation semblent compliqués et les corrélations trouvées entre toutes les variables radioactives peuvent être mieux observées et visualisées qualitativement à l'aide d'une analyse par classification ascendante hiérarchique. L'analyse par classifications hiérarchiques (ou Hierarchical Cluster Analysis : HCA) est une méthode statistique multivariée et la technique de segmentation des données la plus appliquée en sciences de la terre [70]. Le principe consiste à former des sous-groupes de cas relativement homogènes et de profils similaires en fonction des caractéristiques mesurées. Elle 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 est appelé dendrogramme [68].

La similarité est une mesure de la distance entre les groupes relativement à la plus grande distance entre deux variables individuelles. Une similarité de cent pour cent signifie que les classes sont à une distance nulle dans leurs mesures d'échantillons, alors qu'une similitude de 0% signifie que les zones de classes sont aussi disparates que la région la moins similaire.

## **Chapitre V : Résultats et discussion**

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats de mesures des activités spécifiques des radionucléides naturels et artificiels présents dans plusieurs types de matériaux de construction collectés de différentes régions d'Algérie ainsi que leurs impacts radiologiques sur la santé du peuple Algérien. Nous allons également comparer ces résultats à ceux obtenus dans d'autres pays. Finalement, une étude statistique sera réalisée pour définir la distribution des radionucléides dans les échantillons et comprendre les relations complexes entre les radionucléides et les paramètres radiologiques associés. Ces résultats ont également fait l'objet d'un article publié dans la revue International Journal of Environmental Analytical Chemistry [71].

## V.1. Calculs des activités

Nous avons analysé les résultats de mesures des 31 échantillons de matériaux de construction effectués par spectrométrie gamma au moyen du détecteur germanium hyper-pur (HPGe) de la division des techniques nucléaires du CRNA (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger). Les détails des calculs sont présentés et discutés ci-dessous.

### V.1.1. Les activités des radioéléments naturels dans les échantillons étudiés

Les activités spécifiques des radioéléments naturels présents dans les échantillons sont sélectionnées selon la limite de détection de la chaîne de mesure. Seules les activités supérieures à cette limite sont prises en considération. L'activité minimale détectable (MDA) du détecteur est calculée en utilisant la relation (II.27) du chapitre II. Les valeurs obtenues sont présentées dans le tableau (V-1).

Les concentrations des activités de l' $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  présents dans les matériaux de construction étudiés sont données dans le tableau (V-2).

Elles varient de  $4.75 \pm 1.77 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $30.79 \pm 4.44 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , de  $3.46 \pm 0.35 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $30.98 \pm 0.73 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et de  $2.69 \pm 1.10 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $20.93 \pm 2.72 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , avec des activités spécifiques moyennes de  $15.40 \pm 2.87 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ;  $16.05 \pm 0.53 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et  $10.34 \pm 2.03 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ; respectivement pour l' $^{238}\text{U}$  et ses descendants les plus importants de point de vue radiologique  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{210}\text{Pb}$ .

Elles varient aussi de  $0.22 \pm 0.08 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $1.42 \pm 0.20 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , de  $2.51 \pm 0.62 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $41.73 \pm 1.57 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et de  $31.33 \pm 2.71 \text{ Bq.kg}^{-1}$  à  $655.11 \pm 11.03 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , avec des activités spécifiques moyennes de  $0.71 \pm 0.13 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ;  $17.44 \pm 0.97 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et  $260.31 \pm 6.81 \text{ Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  respectivement.

Tableau V-1. Valeurs des activités minimales détectables des radionucléides naturels.

Radionucléide d'intérêt	Radionucléide détecté	Demi-vie	Type de désintégration (%)	Energie de la raie $\gamma$ $E_\gamma$ (keV)	Intensité de la raie $\gamma$ $I_\gamma$ (%)	Sources/origine	MDA ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ )
$^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	$^{234}\text{Th}$	24.1 j	$\beta^-$ (100)	63.3	3.75	Séries $^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	<b>0.49</b>
	$^{214}\text{Pb}$	26.80 m	$\beta^-$ (100)	351.93	35.60	Séries $^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	<b>0.31</b>
	$^{214}\text{Bi}$	19.90 m	$\alpha$ (0.02) $\beta^-$ (99.98)	609.32	45.49	Séries $^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	<b>0.45</b>
	$^{210}\text{Pb}$	22 a	$\beta^-$ (100)	46.5	4.25	Séries $^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ )	<b>0.43</b>
$^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Ac}$	6.15 h	$\alpha+\beta^-$ (100)	911.21	26.20	Séries $^{232}\text{Th}$	<b>0.62</b>
	$^{208}\text{Tl}$	3.053 m	$\beta^-$ (100)	583.187	85	Séries $^{232}\text{Th}$ ( $^{228}\text{Ra}$ )	<b>0.09</b>
	$^{212}\text{Pb}$	10.64 h	$\beta^-$ (100)	238.63	43.60	Séries $^{232}\text{Th}$	<b>0.31</b>
	$^{212}\text{Bi}$	60.6 m	$\alpha$ (36) $\beta^-$ (64)	727.33	6.65	Séries $^{232}\text{Th}$	<b>0.53</b>
$^{40}\text{K}$	$^{40}\text{K}$	$1.248 \times 10^9$ a	EC (10.72) $\beta^-$ (89.28)	1460.82	10.55	$^{40}\text{K}$	<b>0.62</b>
$^{137}\text{Cs}$	$^{137}\text{Cs}$	30.17 a	$\beta^-$ (100)	661.6	84.99	$^{137}\text{Cs}$	<b>0.10</b>

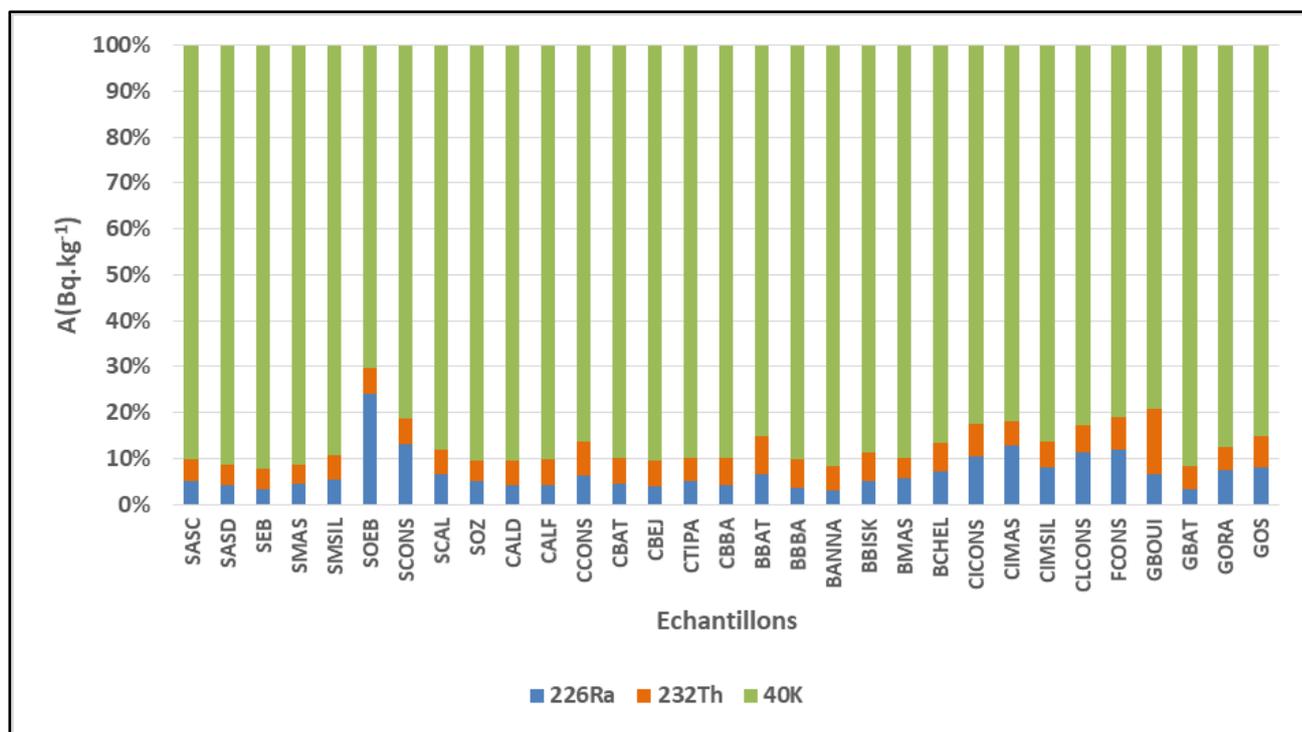
Tableau V-2. Les activités spécifiques en ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) des radionucléides naturels présents dans les échantillons.

Radionucléides	$^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}$	$^{210}\text{Pb}$	$^{235}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$
Echantillon						
SASC	5.31±1.69	5.41±0.41	7.62±1.64	0.24±0.08	5.28±0.68	99.55±4.46
SASD	7.21±2.25	4.63±0.34	5.39±1.68	0.33±0.10	4.69±0.75	100.12±4.61
SEB	5.59±1.70	3.46±0.35	6.46±1.53	0.26±0.08	4.88±0.76	98.48±4.87
SMAS	6.39±1.84	5.88±0.37	8.48±1.58	0.29±0.09	5.65±0.75	122.44±4.85
SMSIL	4.75±1.77	3.51±0.33	2.69±1.10	0.22±0.08	3.52±0.62	59.26±3.27
SOEB	9.89±1.94	10.78±0.39	6.22±1.19	0.46±0.09	2.51±0.54	31.33±2.71
SCONS	12.05±2.27	15.91±0.45	8.18±1.51	0.56±0.10	6.75±0.53	97.95±4.21
SCAL	6.19±1.58	6.57±0.33	3.30±1.08	0.29±0.07	5.28±0.63	87.94±3.82
SOZ	9.19±2.38	10.81±0.41	5.98±1.82	0.42±0.11	8.97±0.63	188.79±5.88

CALD	22.41±3.79	23.97±0.65	15.57±2.73	1.03±0.17	31.54±1.53	532.83±10.29
CALF	25.44±3.99	30.38±0.71	20.93±2.72	1.17±0.18	40.71±1.25	655.11±11.03
CCONS	24.97±4.18	25.42±0.69	16.49±2.23	1.15±0.19	28.98±1.30	346.99±8.73
CBAT	30.79±4.44	30.98±0.73	17.23±2.55	1.42±0.20	41.73±1.57	640.66±10.81
CBEJ	25.18±3.83	23.08±0.68	16.45±2.65	1.16±0.18	34.58±1.33	542.37±10.59
CTIPA	26.94±4.01	25.58±0.68	14.78±2.54	1.24±0.18	26.27±1.26	458.17±9.84
CBBA	27.18±4.36	27.28±0.72	16.96±3.15	1.25±0.20	40.76±1.46	600.03±11.16
BBAT	21.20±3.64	20.18±0.59	13.67±2.44	0.98±0.17	24.97±1.02	257.91±7.35
BBBA	20.46±3.51	18.13±0.60	12.63±2.14	0.94±0.16	33.14±1.33	464.79±9.86
BANNA	16.69±3.23	16.04±0.64	11.16±2.78	0.77±0.15	27.69±1.32	483.65±10.19
BBISK	17.06±3.29	16.73±0.52	13.24±2.13	0.79±0.15	21.41±1.07	297.20±8.07
BMAS	22.25±3.43	25.43±0.66	12.85±2.35	1.03±0.16	20.69±1.06	415.77±8.95
BCHEL	20.95±3.64	25.66±0.61	14.15±2.16	0.97±0.17	23.59±1.06	317.25±7.84
CICONS	19.95±3.14	23.17±0.60	13.41±2.39	0.92±0.14	15.52±1.09	183.85±6.18
CIMAS	17.14±2.55	14.18±0.48	8.00±1.56	0.79±0.12	5.89±0.70	90.68±4.74
CIMSIL	14.40±2.75	18.42±0.61	8.70±2.28	0.66±0.13	12.15±0.99	195.11±6.69
CLCONS	13.50±2.01	18.48±0.44	8.27±1.45	0.62±0.09	10.07±0.74	136.08±4.65
FCONS	11.84±2.21	13.40±0.37	9.48±2.05	0.55±0.10	7.71±0.62	90.95±3.23
GBOUI	8.36±2.58	12.37±0.55	6.74±2.04	0.39±0.12	26.74±0.89	148.58±6.41
GBAT	7.45±1.83	4.72±0.45	5.91±1.88	0.34±0.08	6.63±0.89	127.35±5.55
GORA	8.94±3.08	13.10±0.57	5.23±1.88	0.41±0.14	9.01±0.98	155.76±6.77
GOS	7.79±2.19	3.98±0.41	4.31±1.57	0.36±0.10	3.37±0.69	42.54±3.57
<b>Valeur moyenne</b>	<b>15.40±2.87</b>	<b>16.05±0.53</b>	<b>10.34±2.03</b>	<b>0.71±0.13</b>	<b>17.44±0.97</b>	<b>260.31±6.81</b>

Les résultats obtenus dans cette étude montrent que les concentrations des radionucléides naturels varient selon le type de matériau de construction utilisé. Elles varient aussi pour le même type de matériau d'une région à une autre, en raison de la grande variation de la composition géologique de chaque région. Celles issues des radionucléides de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  sont responsables des effets radiologiques des rayonnements émis par les matériaux de constructions étudiés et des doses reçues par la population Algérienne.

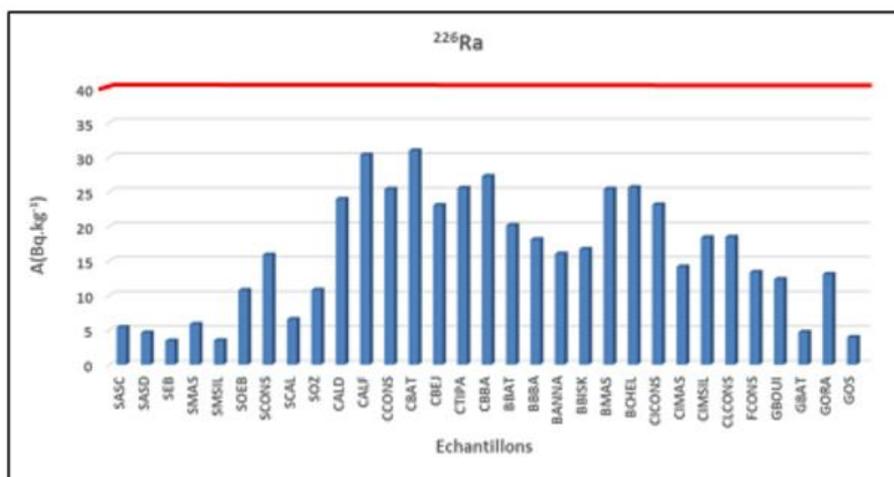
Ces concentrations sont présentées sur la figure (V-1). On remarque que les concentrations de  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{232}\text{Th}$  sont inférieures à celle du  $^{40}\text{K}$  dans tous les matériaux de construction. Cela est dû à l'abondance de  $^{40}\text{K}$  dans l'environnement naturel.



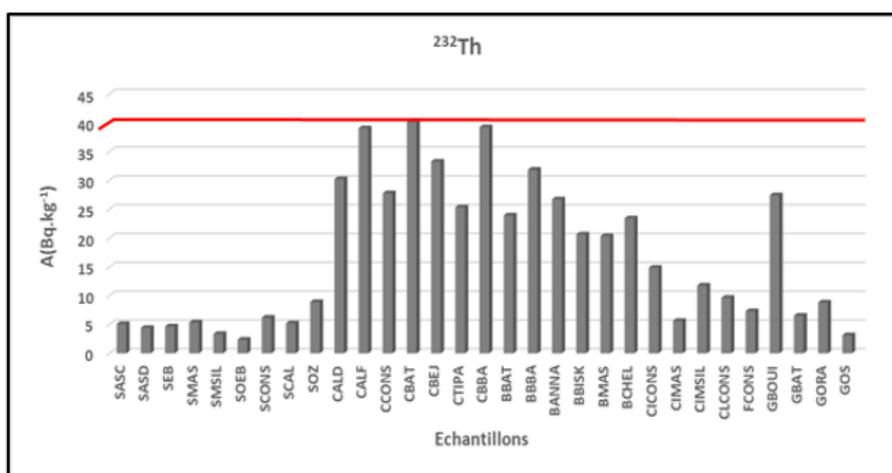
**Figure V-1.** Les activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons étudiés.

Les valeurs d'activités spécifiques trouvées dans cette étude sont inférieures aux valeurs moyennes mondiales de 40, 40 et 400  $\text{Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , respectivement. Comme il est rapporté dans les recommandations européennes basées sur une étude de la littérature [45][72]. Cependant, les concentrations dans les échantillons de briques BBBA, BANNA et BMAS et tous les échantillons de céramique (à l'exclusion de CCONS) sont supérieures à la valeur moyenne mondiale de 400  $\text{Bq.kg}^{-1}$  pour le  $^{40}\text{K}$  (figure IV-2.c).

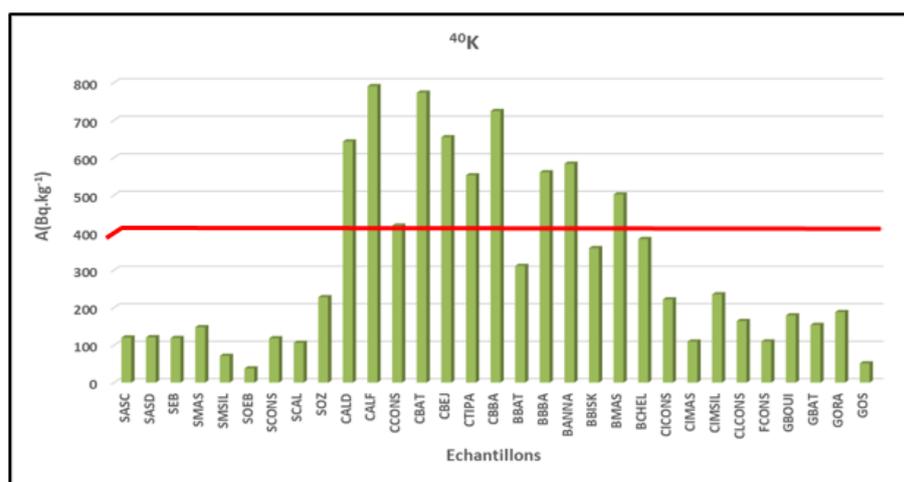
On constate aussi que les concentrations des activités les plus élevées des radionucléides primordiaux sont observées dans les carreaux de céramique et les briques car ils sont principalement produits en utilisant de l'argile, qui est classée comme l'une des roches les plus riches en éléments radioactifs [26]. L'argile est un absorbeur d'uranium et de thorium en raison de ses charges électrostatiques de surface qui attirent et retiennent les ions. Il contient principalement de la silice et de l'alumine en plus des impuretés telles que le fer, les sels de magnésie, les alcalins (soude  $\text{Na}_2\text{O}$  et potasse  $\text{K}_2\text{O}$ ), le titane  $\text{TiO}_2$  et les matières organiques [29].



(a)



(b)



(c)

Figure V-2. Les activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$  (a),  $^{232}\text{Th}$  (b) et  $^{40}\text{K}$ (c) dans les échantillons étudiés.

Les carreaux de céramique présentent des concentrations plus élevées que celles dans les briques, cela peut être lié au silicate de zirconium ( $ZrSiO_4$ ) utilisé dans l'émail de décoration. Ce dernier est la principale source de radioactivité présente dans les carreaux de céramique d'après des études précédentes [63, 64]. Il est bien connu que les atomes d'uranium et de thorium s'intègrent facilement dans la structure cristalline du zirconium. De plus, lors du traitement du sable, les minerais de zirconium subissent un enrichissement qui produit du silicate de zirconium presque pur. Les minéraux de zirconium, utilisés dans l'industrie de la céramique, sont généralement classés comme sources de radioactivités naturelles technologiquement améliorées [73]. En gardant à l'esprit que le zirconium est l'un des composants principaux pour produire des carreaux de céramique, il n'y a aucune restriction légale en terme de radioactivité dans leur circulation et peuvent être utilisés s'ils contiennent seulement 3% du zirconium [75].

On observe également que les échantillons de ciment ont des activités spécifiques moyennes, car ils contiennent approximativement un mélange de 80% de calcaire (chaux  $CaCO_3$ ) et 20% d'argile (silice  $SiO_2$ , alumine  $Al_2O_3$  et  $Fe_2O_3$ ) [76]. Les calcaires sont classés comme des roches de faibles radioactivités.

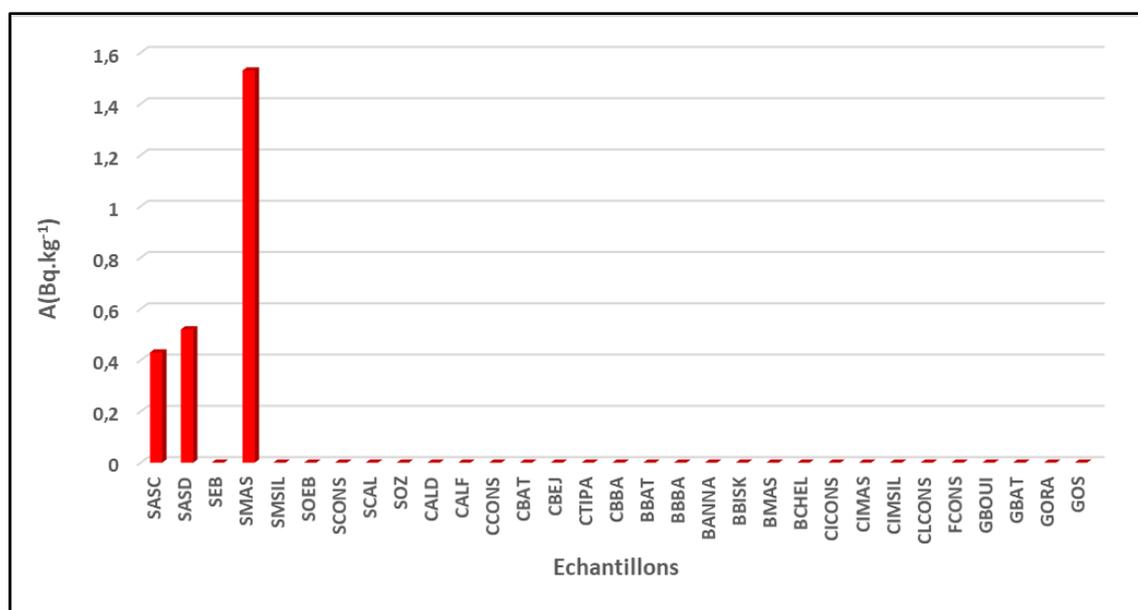
On remarque aussi que les activités spécifiques de tous les radionucléides dans l'échantillon de farine (FCON) sont inférieures à celles dans l'échantillon de clinker (CLCON). Ce qui peut être liée au traitement thermique de la farine pour obtenir le clinker, sachant que la composition minéralogique du clinker dépend de la composition du mélange introduit, mais aussi de la température à laquelle la cuisson est réalisée et des conditions de refroidissement. On remarque également que les échantillons de farine et de clinker possèdent des activités spécifiques inférieures à celle de l'échantillon du ciment (CCON), car ce dernier est obtenu par l'ajout de gypse au clinker.

Enfin, on observe que les échantillons de sable et de gypse présentent les activités spécifiques les plus faibles. Le gypse est un minéral sulfaté composé de sulfate de calcium déshydraté ( $CaSO_4 \cdot 2H_2O$ ), qui est classé comme un minéral à faible radioactivité. Le sable est un mélange de différents minéraux dépendants de la source et de la nature de la roche mère. Il est principalement constitué de quartz qui est également classé comme un minéral à faible radioactivité.

### V.1.2. Les activités de $^{137}Cs$ dans les échantillons étudiés

En plus de la radioactivité naturelle, la présence de la radioactivité artificielle a été aussi observée dans les échantillons étudiés. En effet, le radionucléide anthropogénique  $^{137}Cs$  a été

défecté dans trois échantillons de sable SASC, SASD et SMAS avec de très faible activité spécifique de valeur  $0.43 \pm 0.16 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ,  $0.52 \pm 0.19 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et  $1.53 \pm 0.23 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , respectivement. Comme il est montré dans la figure (V-3).



**Figure V-3.** Les activités spécifiques de  $^{137}\text{Cs}$  dans les échantillons de matériaux de construction.

La présence de ce radioélément artificiel dans les échantillons de sable spécifiquement peut être expliquée par le fait que le sable est un produit de désagrégation des roches due à l'érosion. Il se caractérise par sa capacité à s'écouler d'un endroit à un autre par le vent ou par l'eau. Il peut alors être transporté facilement à partir des endroits où il y a de l'activité nucléaire.

## V.2. Estimation de doses

La décroissance des radionucléides naturels dans les matériaux de construction amène les habitants à une exposition interne et externe aux doses de rayonnements émis. En radioprotection, ces doses doivent être quantifiées pour estimer le risque qu'elles apportent sur la santé de la population. Dans cette étude, le débit de dose absorbée (ADR), l'équivalent de dose annuelle efficace (AEDE) et l'équivalent de dose annuelle des gonades (AGDE) ont été définies et calculées selon les relations montrées dans le chapitre III. Les résultats de ces calculs sont présentés dans le tableau (V-3).

### V.2.1. Débit de Dose Absorbée (ADR)

Le débit de dose absorbée a été défini dans le chapitre III et calculé à partir de la relation (III.1). Les résultats de ces débits sont présentés dans la figure (V-4). Ils varient de  $5.68 \pm 0.49$  nGy.h<sup>-1</sup> à  $66.50 \pm 1.12$  nGy.h<sup>-1</sup>, avec une valeur moyenne de  $28.92 \pm 0.71$  nGy.h<sup>-1</sup>. Ces résultats sont inférieurs à la valeur limite de sécurité recommandée de 59 nGy.h<sup>-1</sup> [10] sauf pour certains échantillons de céramique, à savoir CFAL, CBAT et CBBA.

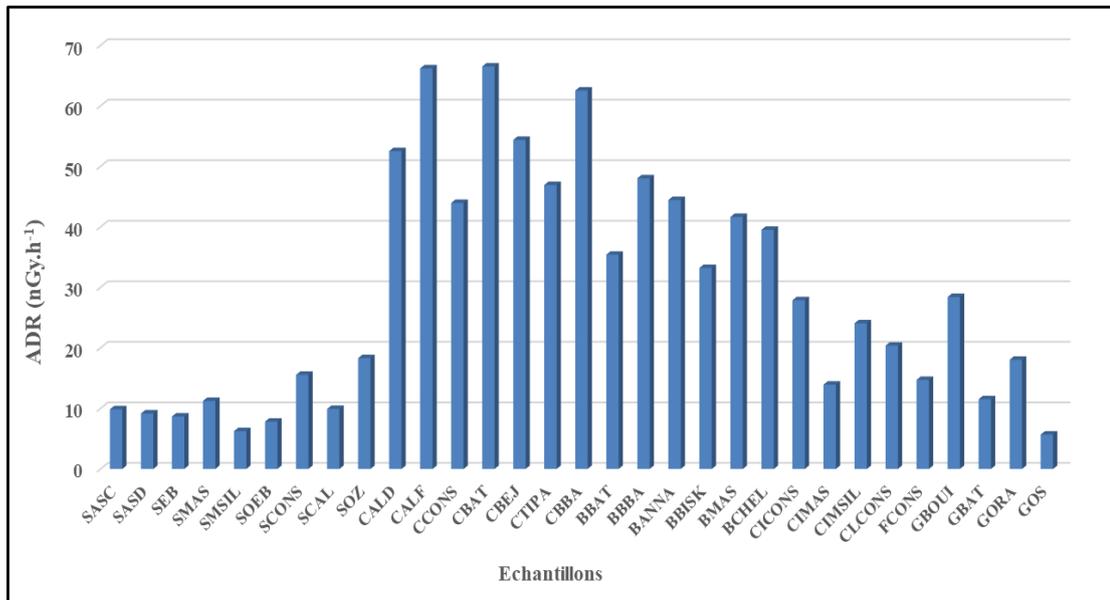


Figure V-4. Le débit de dose absorbée (ADR) calculé pour tous les échantillons étudiés.

### V.2.2. Équivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE)

Les valeurs de l'équivalent de dose efficace annuelle ont été estimées en utilisant la formule (III.2). Rappelons que cette dose biologique est très importante du point de vu radioprotection, grâce à sa capacité d'évaluer l'exposition d'une personne individuelle aux rayonnements ionisants. La figure (V-5) montre les valeurs calculées de l'équivalent de dose efficace annuelle. Celles-ci varient de  $6.96 \pm 0.60$  μSv.y<sup>-1</sup> à  $81.55 \pm 1.38$  μSv.y<sup>-1</sup> avec une valeur moyenne de  $35.47 \pm 0.87$  μSv.y<sup>-1</sup> et sont inférieures à la valeur maximale recommandée de 70 μSv.y<sup>-1</sup> [10] à l'exclusion des échantillons de céramique CFAL, CBAT et CBBA.

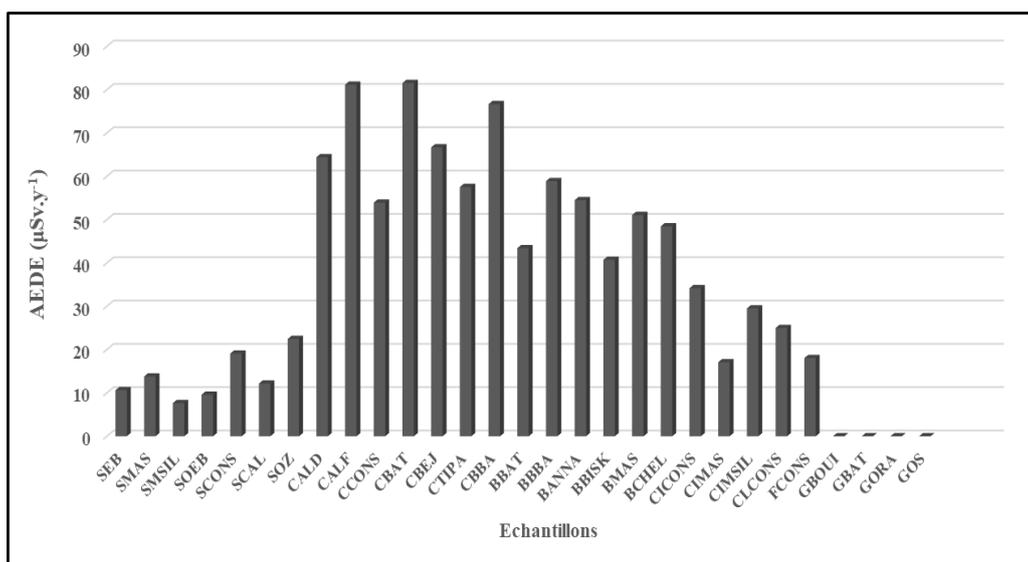


Figure V-5. L'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE) estimé pour différents échantillons de matériaux de construction.

### V.2.3. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE)

Comme, on a indiqué précédemment dans le chapitre III, l'équivalent de dose annuelle des gonades évalue la dose reçue par les organes reproducteurs d'une population exposée aux rayonnements ionisants. Les valeurs de l'équivalent de dose annuelle des gonades ont été calculées par l'équation (III.3), et sont présentées dans la figure (V-6). Elles vont de  $39.74 \pm 3.34 \mu\text{Sv.y}^{-1}$  à  $471.33 \pm 7.72 \mu\text{Sv.y}^{-1}$  avec une valeur moyenne de  $204.25 \pm 4.88 \mu\text{Sv.y}^{-1}$ , qui indique clairement que les données obtenues dans cette étude sont inférieures à la valeur moyenne standard de  $300 \mu\text{Sv.y}^{-1}$  [44]. Cependant, les échantillons de brique BBBA, BANNA et toutes les valeurs des échantillons de céramique sont supérieures à la valeur standard.

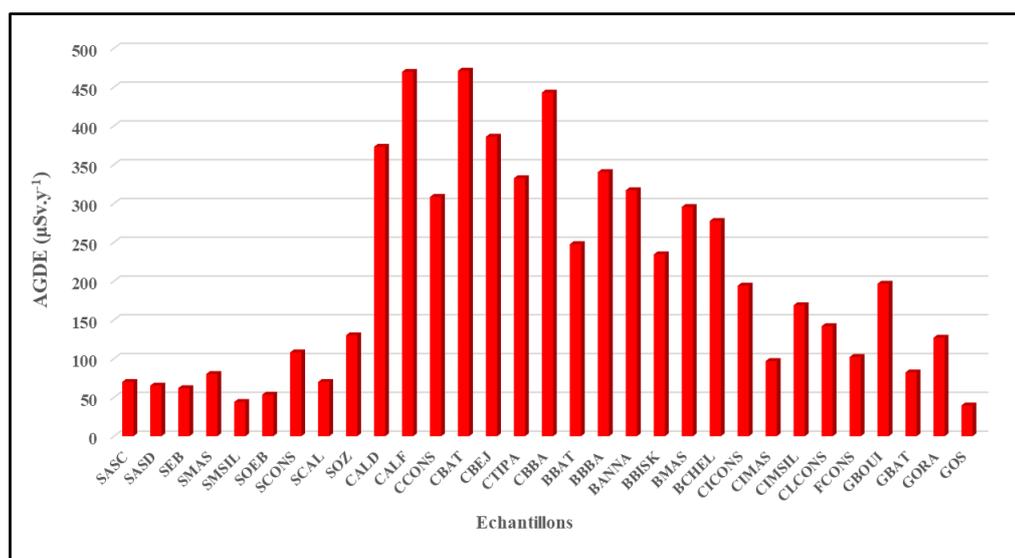


Figure V-6. L'équivalent de dose annuelle des gonades (AGDE) dans les échantillons étudiés.

Tableau V-3. Doses estimées pour les échantillons de matériaux de construction.

Echantillon	D (nGy.h <sup>-1</sup> )	AEDE (μSv.y <sup>-1</sup> )	AGDE (μSv.y <sup>-1</sup> )
SASC	9.86±0.50	12.10±0.61	70.06±3.42
SASD	9.16±0.52	11.23±0.64	65.34±3.60
SEB	8.67±0.54	10.63±0.66	62.03±3.70
SMAS	11.24±0.54	13.79±0.66	80.22±3.68
SMSIL	6.24±0.44	7.65±0.53	44.18±2.97
SOEB	7.82±0.40	9.59±0.49	53.63±2.70
SCONS	15.55±0.42	19.08±0.52	108.11±2.92
SCAL	9.92±0.45	12.17±0.55	69.99±3.07
SOZ	18.30±0.50	22.45±0.61	130.17±3.46
CALD	52.51±1.08	64.40±1.33	373.23±7.46
CALF	66.18±0.96	81.16±1.17	469.77±6.64
CCONS	43.96±0.94	53.92±1.15	308.61±6.43
CBAT	66.50±1.12	81.55±1.38	471.33±7.72
CBEJ	54.37±0.99	66.69±1.21	386.17±6.83
CTIPA	46.92±0.94	57.54±1.15	332.71±6.47
CBBA	62.52±1.07	76.67±1.31	443.11±7.39
BBAT	35.40±0.75	43.41±0.92	247.68±5.19
BBBA	48.02±0.96	58.89±1.18	340.52±6.61
BANNA	44.44±0.97	54.50±1.19	317.17±6.69
BBISK	33.21±0.78	40.73±0.96	234.51±5.38
BMAS	41.64±0.81	51.07±0.99	295.61±5.61
BCHEL	39.51±0.79	48.46±0.96	277.52±5.42
CICONS	27.88±0.77	34.19±0.95	194.21±5.28
CIMAS	13.93±0.53	17.08±0.65	96.92±3.61
CIMSIL	24.06±0.73	29.50±0.90	168.98±5.03
CLCONS	20.37±0.54	24.98±0.66	141.92±3.70
FCONS	14.71±0.44	18.04±0.54	102.19±3.02
GBOUI	28.41±0.66	34.84±0.81	196.63±4.57
GBAT	11.52±0.63	14.13±0.77	82.30±4.33
GORA	18.03±0.72	22.12±0.88	127.06±4.95

GOS	5.68±0.49	6.96±0.60	39.74±3.34
<b>Moyenne</b>	<b>28.92±0.71</b>	<b>35.47±0.87</b>	<b>204.25±4.88</b>
<b>Moyenne mondiale</b>	<b>59</b>	<b>70</b>	<b>300</b>

### V.3. Évaluation des effets radiologiques

Afin d'estimer le risque d'exposition aux rayonnements gamma émis par les matériaux de construction, les paramètres de risque radiologique tels que, le radium équivalent ( $Ra_{eq}$ ), les indices de risque externe et interne ( $H_{ex}$ ,  $H_{in}$ ), l'indice gamma ( $I_\gamma$ ), l'indice alpha ( $I_\alpha$ ) et l'excès de risque de cancer à vie (ELCR) ont été également définis et calculés à partir des équations montrées dans le chapitre III. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau (V-4).

#### V.3.1. Radium équivalent ( $Ra_{eq}$ )

Afin d'évaluer le danger associé aux matériaux de construction contenant les radionucléides naturels ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ), le radium équivalent a été calculé en utilisant la relation (III.4). Les valeurs estimées du radium équivalent sont indiquées dans la figure (V-7), elles se situent entre 12.07  $\text{Bq.kg}^{-1}$  et 139.99  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , avec une valeur moyenne de 61.04  $\text{Bq.kg}^{-1}$  qui est inférieure à la limite autorisée de 370  $\text{Bq.kg}^{-1}$  [77]. Cela signifie que les matériaux de construction étudiés ne présentent pas d'effets dangereux issus de ces rayonnements ionisants.

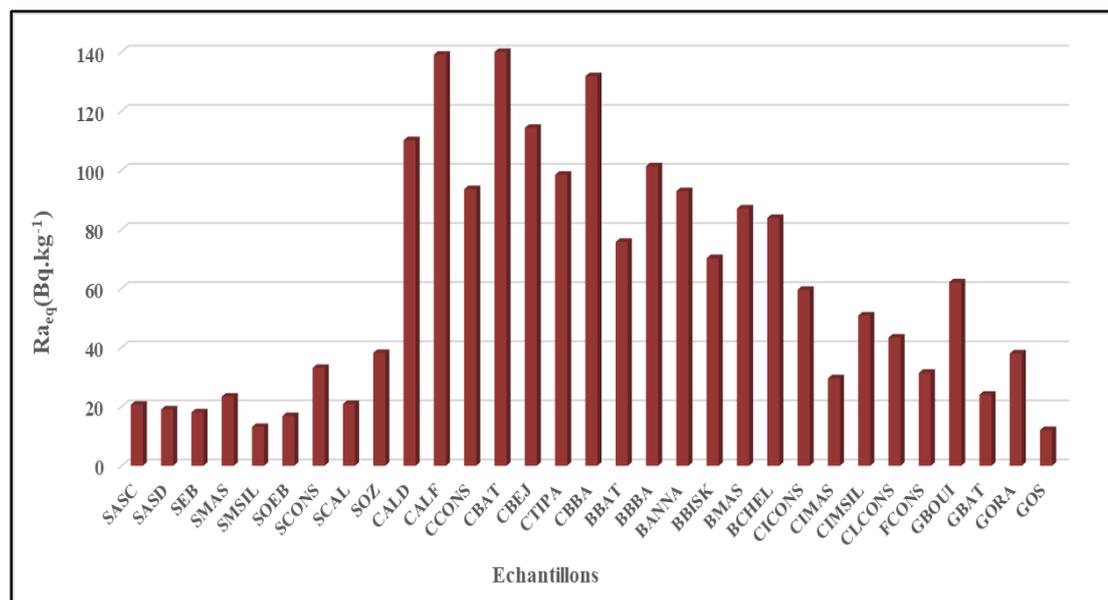


Figure V-7. Le radium équivalent ( $Ra_{eq}$ ) pour les échantillons mesurés.

### V.3.2. Indices de risque externe et interne ( $H_{ex}$ , $H_{in}$ )

Comme on a expliqué précédemment dans le chapitre III, l'objectif du calcul des indices de risque externe et interne permet de vérifier si la dose de rayonnement maximum autorisée limitée à  $1 \text{ mSv.y}^{-1}$  n'est dépassée pour que le risque d'irradiation par rayonnement soit négligeable. Ces deux indices ont été calculés en utilisant les relations (III.5) et (III.6). Les résultats obtenus sont montrés sur la figure (V-8), on remarque que les valeurs calculées de  $H_{ex}$  et  $H_{in}$  varient de 0.033 à 0.378 et de 0.043 à 0.462 avec des valeurs moyennes de 0.165 et 0.208, respectivement. Les données obtenues dans cette étude sont largement inférieures à la valeur maximale qui est l'unité.

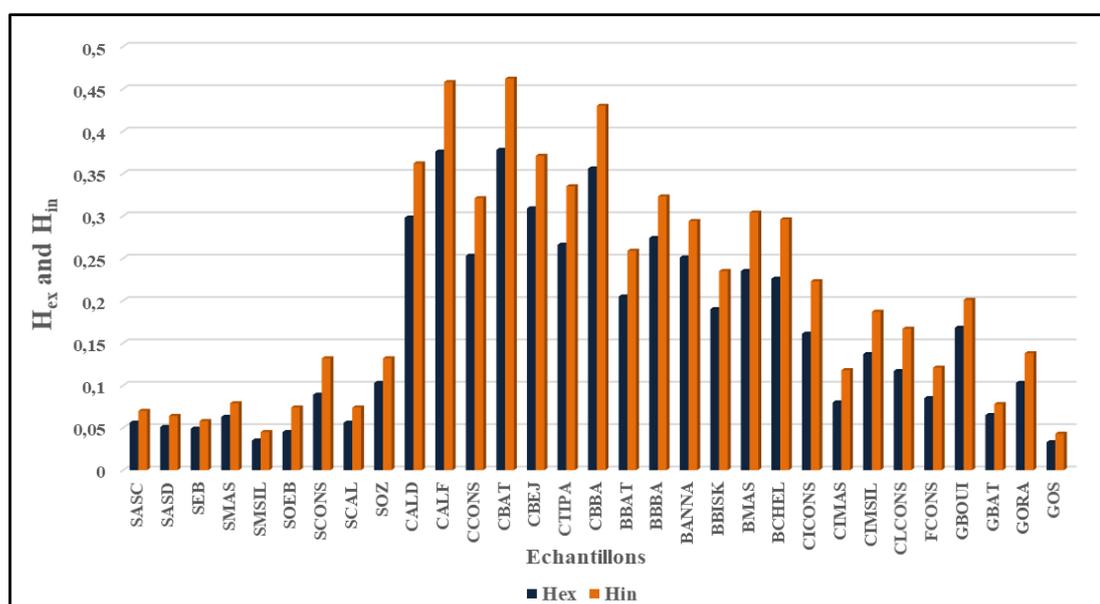


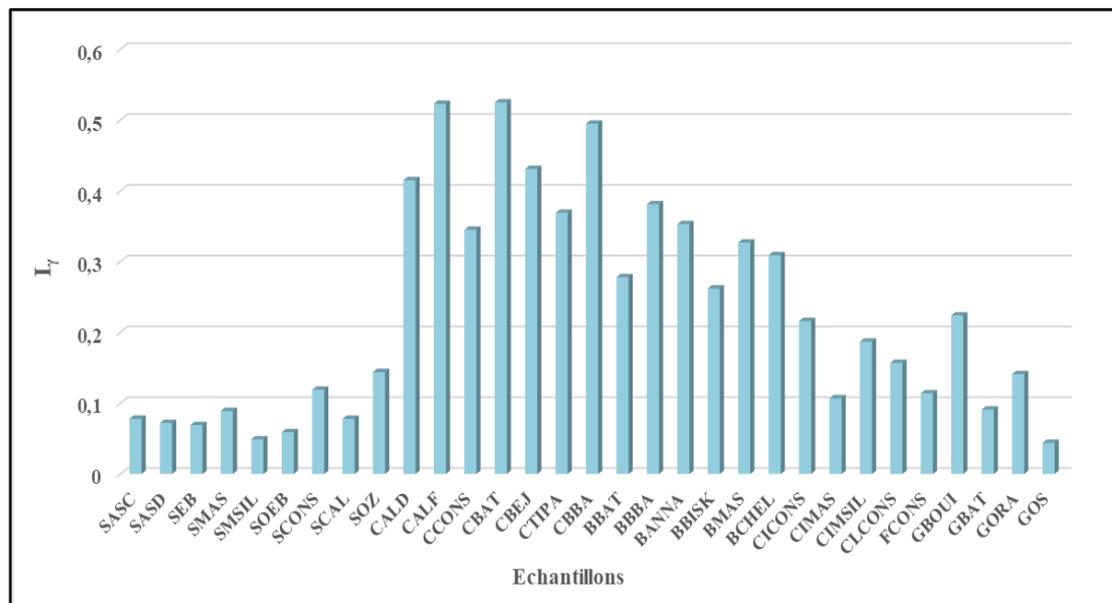
Figure V-8. Indices de risque externe et interne ( $H_{ex}$ ,  $H_{in}$ ) pour les échantillons étudiés.

### V.3.3. Indice gamma ( $I_\gamma$ )

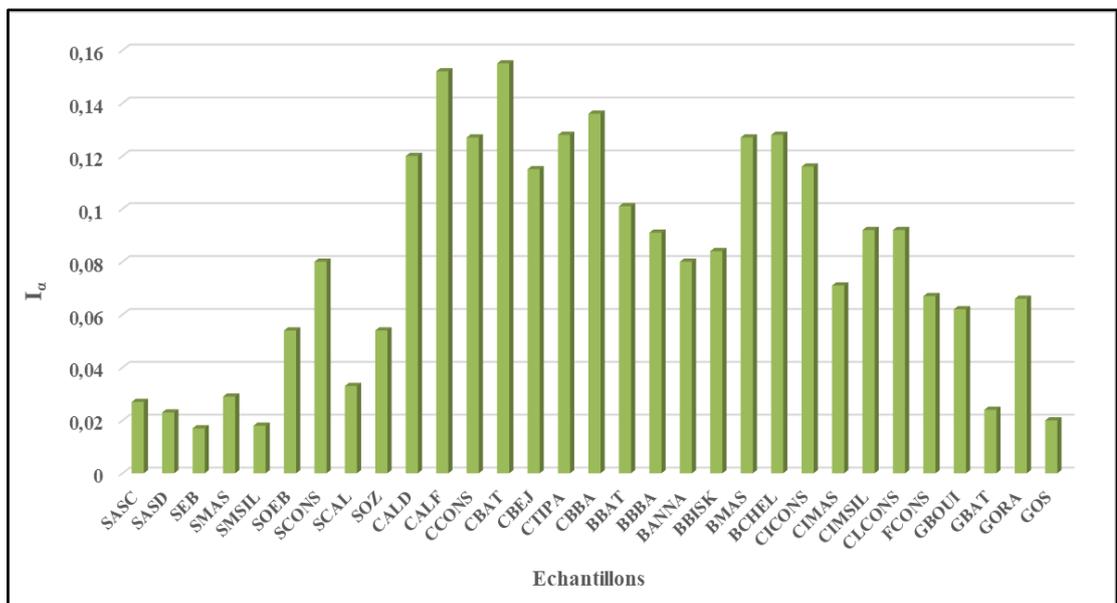
Un autre indice permettant d'évaluer le danger d'irradiation gamma a été défini dans le chapitre III. Celui-ci est appelé indice gamma et estime le niveau de risque aux rayonnements gamma associés aux radionucléides naturels. Il a été calculé par l'équation (III.7). Les résultats sont affichés sur la figure (V-9). Ils varient de 0.044 à 0.525 avec une valeur moyenne de 0.227. Les valeurs obtenues en dessous des deux limites recommandées de  $I \leq 0.5$  pour les matériaux utilisés en grande quantité et  $I \leq 2$  pour les matériaux superficiels ou autres à usage restreint (tableau III-1). Les valeurs obtenues indiquent que l'équivalent de dose efficace annuelle délivrée par les échantillons étudiés est inférieur à la limite recommandée de  $0.3 \text{ mSv.y}^{-1}$ .

**V.3.4. Indice alpha ( $I_\alpha$ )**

L'indice alpha est utilisé pour estimer les niveaux d'exposition interne qui résultent de l'inhalation du radon provenant des matériaux de construction. Il a été calculé au moyen de l'équation (III.8). Les valeurs obtenues sont présentées dans la figure (V-10). On voit clairement sur cette figure, que les valeurs de l'indice alpha fluctuent entre 0.017 et 0.155 avec une valeur moyenne de 0.080. Ces valeurs sont inférieures à l'exemption recommandée ( $I_\alpha < 0.5$ ) et à la limite supérieure ( $I_\alpha < 1$ ). En conséquence, l'inhalation de radon à partir des échantillons étudiés n'est pas importante pour restreindre leur utilisation dans la construction de bâtiment.



**Figure V-9.** Indice gamma ( $I_\gamma$ ) pour les matériaux de construction étudiés.



**Figure V-10.** Indice alpha ( $I_\alpha$ ) pour les échantillons mesurés.

### V.3.5. Excès de risque de cancer à vie (ELCR)

L'excès de risque de cancer à vie (ELCR) est un paramètre radiologique qui décrit le risque additionnel de développement d'un cancer durant la vie d'une personne exposée aux rayonnements gamma issus des matériaux de construction. Cet indice a été calculé à partir de la formule (III.9). Les valeurs estimées d'excès de risque de cancer à vie pour les échantillons étudiés sont présentées dans la figure (V-11). Elles varient de  $0.024 \times 10^{-3}$  à  $0.285 \times 10^{-3}$  avec une valeur médiane de  $0.124 \times 10^{-3}$ . Ces valeurs sont inférieures à la valeur moyenne globale de  $0.29 \times 10^{-3}$  [10]. Les résultats montrent que la probabilité de développer un cancer dû à l'exposition aux rayonnements gamma provenant des matériaux de construction étudiés est quasiment nulle.

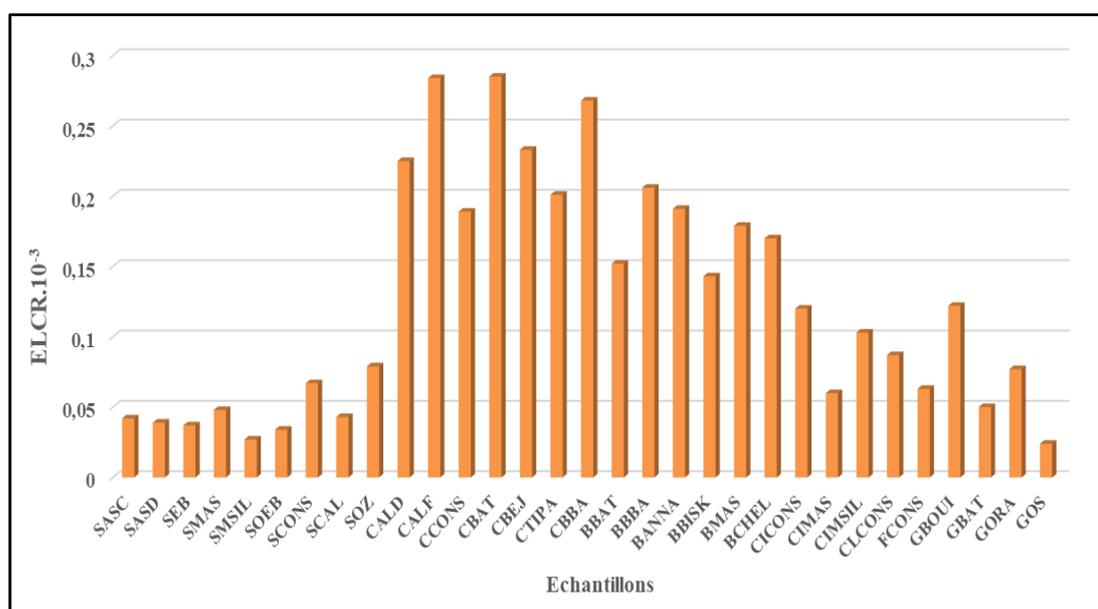


Figure V-11. Excès de risque de cancer à vie (ELCR) pour les échantillons étudiés.

Tableau V-4. Indices de risque radiologique calculés pour les échantillons de matériaux de construction.

Echantillon	R <sub>aeq</sub> (Bq.kg <sup>-1</sup> )	H <sub>ex</sub>	H <sub>in</sub>	I <sub>γ</sub>	I <sub>α</sub>	ELCR × 10 <sup>-3</sup>
SASC	20.63±1.11	0.056±0.0030	0.070±0.0432	0.078±0.0461	0.027±0.0020	0.042±0.0021
SASD	19.04±1.18	0.051±0.0032	0.064±0.0439	0.072±0.0436	0.023±0.0017	0.039±0.0023
SEB	18.03±1.20	0.049±0.0033	0.058±0.0451	0.069±0.0425	0.017±0.0018	0.037±0.0023
SMAS	23.38±1.99	0.063±0.0032	0.079±0.0450	0.089±0.0534	0.029±0.0019	0.048±0.0023
SMSIL	13.11±0.98	0.035±0.0027	0.045±0.0370	0.049±0.0289	0.018±0.0016	0.027±0.0019
SOEB	16.78±0.89	0.045±0.0024	0.074±0.0337	0.059±0.0395	0.054±0.0020	0.034±0.0017
SCONS	33.10±0.94	0.089±0.0025	0.132±0.0419	0.119±0.0708	0.080±0.0022	0.067±0.0018
SCAL	20.89±1.01	0.056±0.0027	0.074±0.0399	0.078±0.0451	0.033±0.0016	0.043±0.0019

SOZ	38.17±1.09	0.103±0.0029	0.132±0.0495	0.144±0.0853	0.054±0.0020	0.079±0.0021
CALD	110.11±2.42	0.298±0.0066	0.362±0.0658	0.415±0.2506	0.120±0.0032	0.225±0.0047
CALF	139.05±2.10	0.376±0.0057	0.458±0.0680	0.523±0.3152	0.152±0.0036	0.284±0.0041
CCONS	93.57±2.09	0.253±0.0056	0.321±0.0606	0.345±0.2038	0.127±0.0034	0.189±0.0040
CBAT	139.99±2.50	0.378±0.0068	0.462±0.0674	0.525±0.3159	0.155±0.0036	0.285±0.0048
CBEJ	114.29±2.18	0.309±0.0059	0.371±0.0667	0.431±0.2617	0.115±0.0034	0.233±0.0042
CTIPA	98.42±2.08	0.266±0.0056	0.335±0.0643	0.369±0.2187	0.128±0.0034	0.201±0.0040
CBBA	131.78±2.37	0,356±0.0064	0.430±0.0685	0.495±0.2997	0.136±0.0036	0.268±0.0046
BBAT	75.74±1.68	0.205±0.0045	0.259±0.0556	0.278±0.1658	0.101±0.0030	0.152±0.0032
BBBA	101.32±2.13	0.274±0.0058	0.323±0.0643	0.381±0.2348	0.091±0.0030	0.206±0.0041
BANNA	92.88±2.15	0.251±0.0058	0.294±0.0654	0.353±0.2191	0.080±0.0032	0.191±0.0042
BBISK	70.23±1.73	0.190±0.0047	0.235±0.0581	0.262±0.1562	0.084±0.0026	0.143±0.0034
BMAS	87.03±1.79	0.235±0.0048	0.304±0.0612	0.327±0.1926	0.127±0.0033	0.179±0.0035
BCHEL	83.82±1.74	0.226±0.0047	0.296±0.0574	0.309±0.1800	0.128±0.0030	0.170±0.0034
CICONS	59.52±1.73	0.161±0.0047	0.223±0.0510	0.216±0.1255	0.116±0.0030	0.120±0.0033
CIMAS	29.59±1.17	0.080±0.0032	0.118±0.0446	0.107±0.0634	0.071±0.0024	0.060±0.0023
CIMSIL	50.82±1.63	0.137±0.0044	0.187±0.0530	0.187±0.1081	0.092±0.0031	0.103±0.0032
CLCONS	43.36±1.21	0.117±0.0033	0.167±0.0441	0.157±0.0916	0.092±0.0022	0.087±0.0023
FCONS	31.43±0.99	0.085±0.0027	0.121±0.0368	0.114±0.0663	0.067±0.0018	0.063±0.0019
GBOUI	62.04±1.48	0.168±0.0040	0.201±0.0518	0.224±0.1484	0.062±0.0027	0.122±0.0029
GBAT	24.01±1.41	0.065±0.0038	0.078±0.0482	0.091±0.0561	0.024±0.0022	0.050±0.0027
GORA	37.98±1.60	0.103±0.0043	0.138±0.0533	0.141±0.0814	0.066±0.0029	0.077±0.0031
GOS	12.07±1.10	0.033±0.0029	0.043±0.0387	0.044±0.0257	0.020±0.0020	0.024±0.0021
<b>Moyenne</b>	<b>61.04±1.60</b>	<b>0.165±0.0041</b>	<b>0.208±0.052</b>	<b>0.227±0.1199</b>	<b>0.080±0.0026</b>	<b>0.124±0.0030</b>
<b>Moyenne mondiale</b>	<b>370</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>1</b>	<b>0.29</b>

#### V.4. Comparaison des résultats obtenus avec les données d'autres pays

Le tableau (V-5) présente les résultats bibliographiques disponibles publiés dans de travaux de recherche similaire. Ils sont rapportés ici pour avoir une perspective plus large des matériaux de construction utilisés en Algérie et dans le monde. Nous les avons comparées aux valeurs obtenues dans cette étude.

**Tableau V-5.** Les activités spécifiques moyennes dans cette étude par rapport aux résultats bibliographiques.

Auteur de l'étude	Pays	<sup>40</sup> K(Bq.Kg <sup>-1</sup> )	<sup>226</sup> Ra(Bq.Kg <sup>-1</sup> )	<sup>232</sup> Th(Bq.Kg <sup>-1</sup> )
<b>Sable</b>				
[71]	Algérie	<b>98.43</b>	<b>8.79</b>	<b>7.44</b>
[78]	Turquie	527.2	22.90	26.40
[79]	Inde	302.68	8.71	83.49
[4]	Malaisie	451.31	42.60	44.70
[3]	Arabie Saoudite	260.00	12.70	19.70
[80]	Italie	156.00	9.00	9.00
<b>Céramique</b>				
[71]	Algérie	<b>539.45</b>	<b>26.67</b>	<b>34.94</b>
[81]	Espagne	1040.00	100.00	60.00
[82]	Inde	24.00	28.00	64.00
[83]	Jordanie	411.00	33.86	28.82
[84]	Egypte	569.00	77.00	64.00
[85]	Chine	768.00	91.00	87.00
<b>Brique</b>				
[71]	Algérie	<b>372.76</b>	<b>20.36</b>	<b>25.25</b>
[86]	Albanie	644.10	33.40	42.20
[78]	Turquie	775.8	31.20	37.20
[79]	Inde	366.95	8.95	60.93
[4]	Malaisie	518.52	32.64	55.66
[18]	Brésil	178.60	29.90	36.50
<b>Ciment</b>				
[71]	Algérie	<b>156.55</b>	<b>18.59</b>	<b>11.19</b>
[87]	Inde	159.83	35.73	37.75
[88]	Pakistan	23.00	20.75	200.75
[78]	Turquie	316.5	39.90	26.40
[89]	Ghana	233.00	35.94	25.44
[2]	Cuba	467.00	23.00	11.00
<b>Gypse</b>				
[71]	Algérie	<b>118.55</b>	<b>8.54</b>	<b>11.44</b>
[90]	Brésil	Non détectable	1.91	1.14
[91]	Turquie	72.5	5.40	2.60
[3]	Arabie Saoudite	88.00	33.28	47.20
[80]	Italie	32.00	6.00	2.00

A partir des résultats des échantillons du sable, on remarque que les valeurs des activités spécifiques en Algérie pour les trois radionucléides naturels ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ) sont inférieures à celles trouvées dans d'autres pays. Par contre, les résultats des échantillons de céramique algériens sont moyens par rapport aux autres pays pour le  $^{40}\text{K}$  et ils sont plus faibles pour le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{232}\text{Th}$ . Concernant la brique, les échantillons algériens ont des activités moyennes par rapport à d'autres études pour le  $^{40}\text{K}$  et le  $^{226}\text{Ra}$ , mais elles sont inférieures à eux pour le  $^{232}\text{Th}$ .

Dans le cas des échantillons du ciment, toutes les valeurs des activités spécifiques trouvées dans cette étude sont moyennes par rapport aux autres études. Enfin, en ce qui concerne le gypse, les concentrations dans les échantillons algériens sont supérieures à celles trouvées dans d'autres pays pour le  $^{40}\text{K}$ . Contrairement aux autres radioéléments qui possèdent des activités moyennes en Algérie par rapport à d'autres pays

A partir de ce qui a été discuté précédemment, on peut conclure que les activités spécifiques des radionucléides primordiaux  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  changent d'une région à l'autre et cela dépend de la variation de la structure géologique de chaque région. Ces différences peuvent également dépendre de nombreux facteurs tels que les sites de collection, les conditions de mesures, le dispositif expérimental utilisé, etc...

## V.5. Analyse statistique

L'analyse statistique est un moyen efficace pour comprendre les relations complexes liant les différents radioéléments naturels présents dans les échantillons. Celle-ci est réalisée en utilisant les méthodes statistiques multi-variées telles les statistiques descriptives, les corrélations de Pearson et l'arbre archaïque.

### V.5.1. Statistiques descriptives

Dans les statistiques, un histogramme est une représentation graphique de la distribution des données. La distribution de fréquences des activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons étudiés a été analysée et les histogrammes sont représentés sur la figure (V-12). Ces graphiques montrent que toutes les variables radioactives présentent un certain degré de multi-modalité, Ce qui indique la complexité de la distribution de la radioactivité dans les matériaux de construction.

Le tableau (V-6) montre les valeurs des statistiques descriptives des radionucléides dans les échantillons de matériaux de constructions étudiés telles que la moyenne, l'écart type ( $\sigma$ ), la variance, kurtosis, skewness, la plage, le minimum et le maximum. Ils ont été calculés pour les

concentrations de radio-isotopes naturels ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ) présents dans les échantillons étudiés. On remarque que les valeurs des écarts types sont inférieures aux valeurs moyennes pour les trois radionucléides, ce qui indique le degré élevé de cohérence dans les distributions des échantillons étudiés. On observe également que les variables radioactives présentent un ordre de variance plus élevé, ce qui implique un degré d'homogénéité plus faible et un degré de mobilité plus élevé [68].

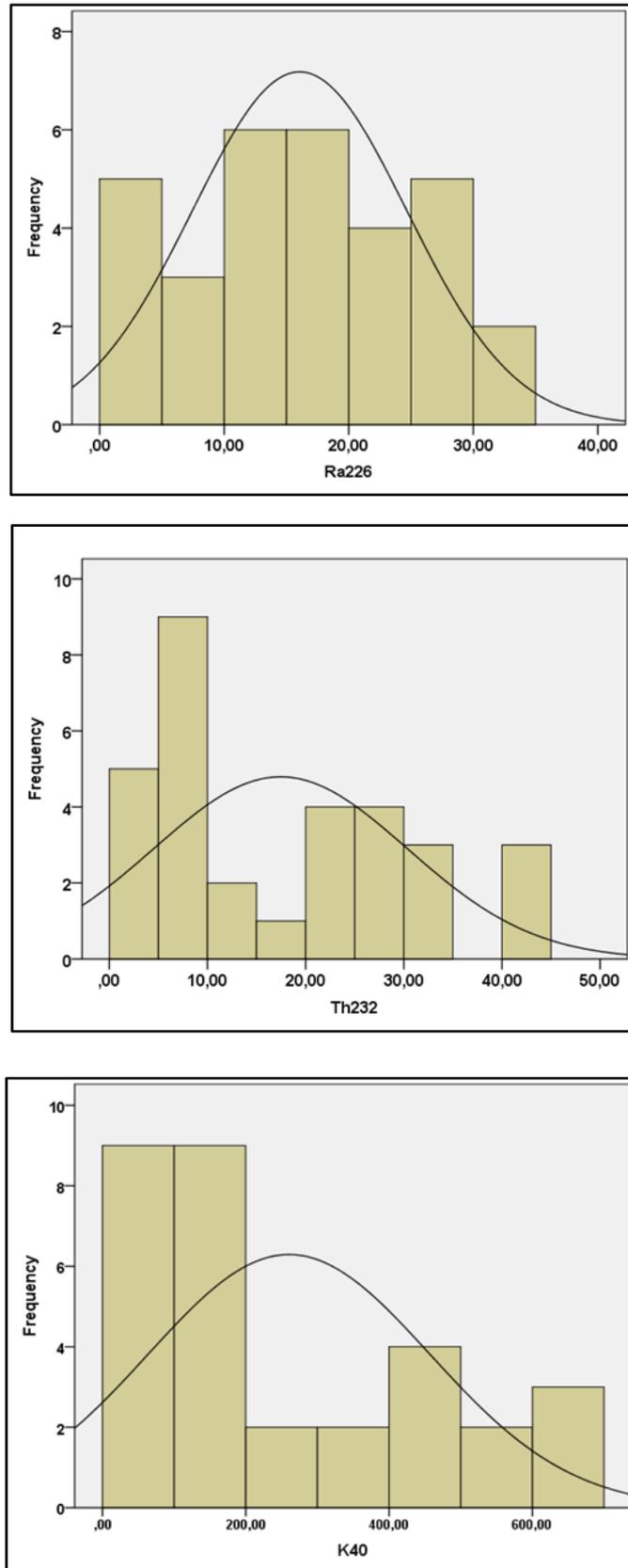
**Tableau V-6.** Statistiques descriptives des activités des radionucléides ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ) pour les échantillons étudiés.

Radionuclides Concentrations (Bq.kg <sup>-1</sup> )	Descriptive statistics			
	Moyenne	$\Sigma$	Variance	Kurtosis
$^{226}\text{Ra}$	16.05	8.61	74.14	-1.20
$^{232}\text{Th}$	17.44	12.90	166.52	-1.15
$^{40}\text{K}$	260.31	196.57	38638.17	-0.87
	Skewness	range	Minimum	Maximum
$^{226}\text{Ra}$	0.012	27.52	3.46	30.98
$^{232}\text{Th}$	0.520	39.22	2.51	41.73
$^{40}\text{K}$	0.741	623.78	31.33	655.11

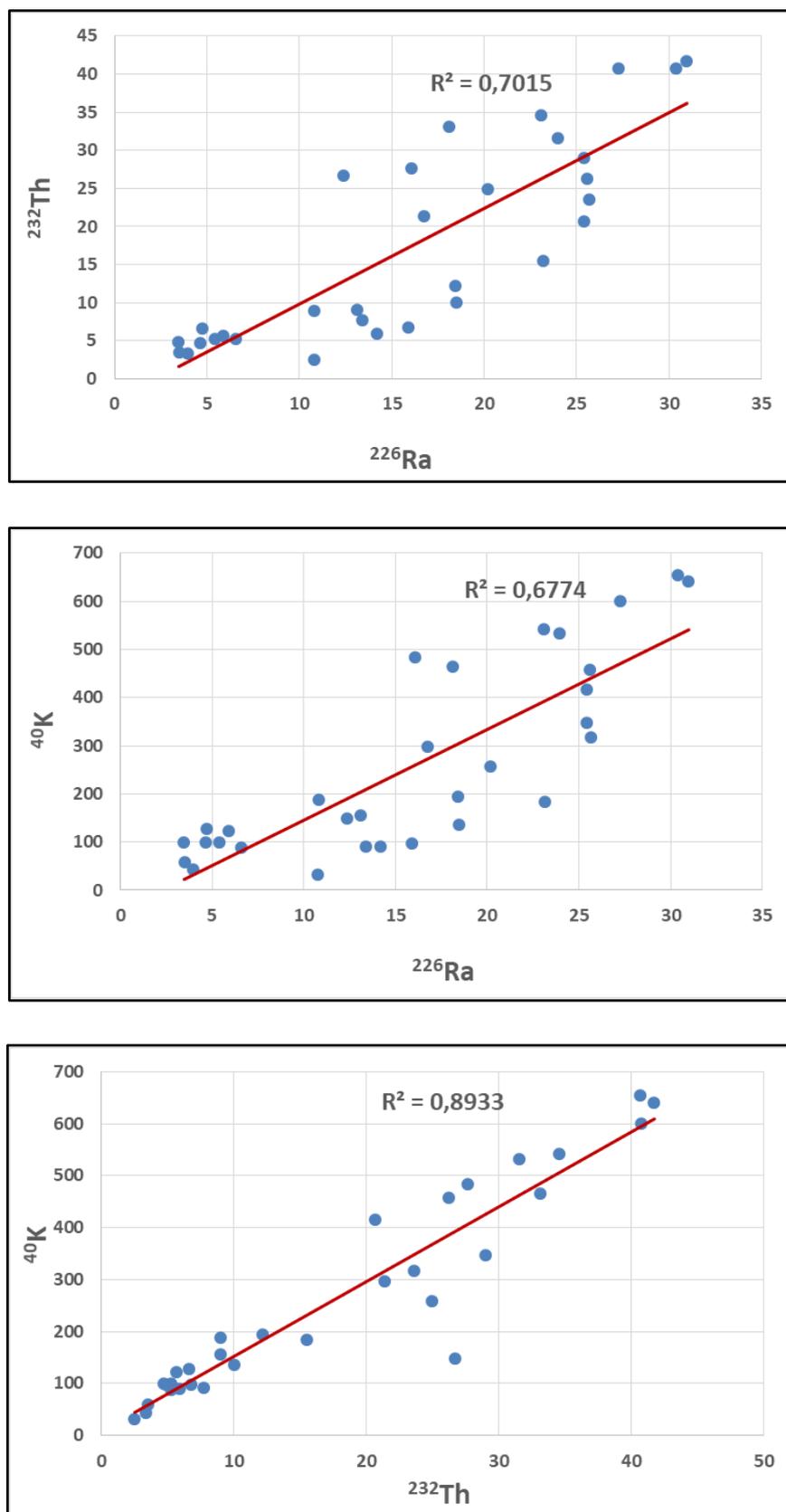
Le kurtosis est une caractérisation de la planéité relative d'une distribution (coefficient d'aplatissement). Les résultats de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$  et  $^{232}\text{Th}$  montrent un kurtosis négatif indiquant des distributions relativement plates, surtout celles de  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{40}\text{K}$ . Le degré d'asymétrie de la distribution d'une valeur réelle de variables aléatoires peut être caractérisé par skewness. Les résultats de cette étude montrent des valeurs de skewness positives pour les trois radionucléides  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ; ce qui explique que la queue d'asymétrie s'étend vers des valeurs plus positives dans leurs distributions (Figure V-12).

### V.5.2. Étude de corrélation entre les radionucléides naturels

Afin de trouver l'étendue de la coexistence de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons de matériaux de construction, des études de corrélation ont été faites comme illustré sur la figure (V-13). On peut clairement remarquer qu'il existe une forte corrélation entre les trois paires ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ), ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) et ( $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$ ) avec des coefficients de corrélation  $R^2 = 0.7015$ ,  $0.6774$  et  $0.8933$ , respectivement. Cette forte corrélation indique que le résultat individuel de l'une des concentrations de radionucléides dans chaque paire est un bon prédicteur de la concentration de l'autre [92].



**Figure V-12.** Distributions des fréquences des activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  pour les matériaux de constructions mesurés.



**Figure V-13.** Corrélations entre les concentrations ( $^{226}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ ), ( $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ ) and ( $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ ) dans les échantillons étudiés.

### V.5.3. Corrélations de Pearson

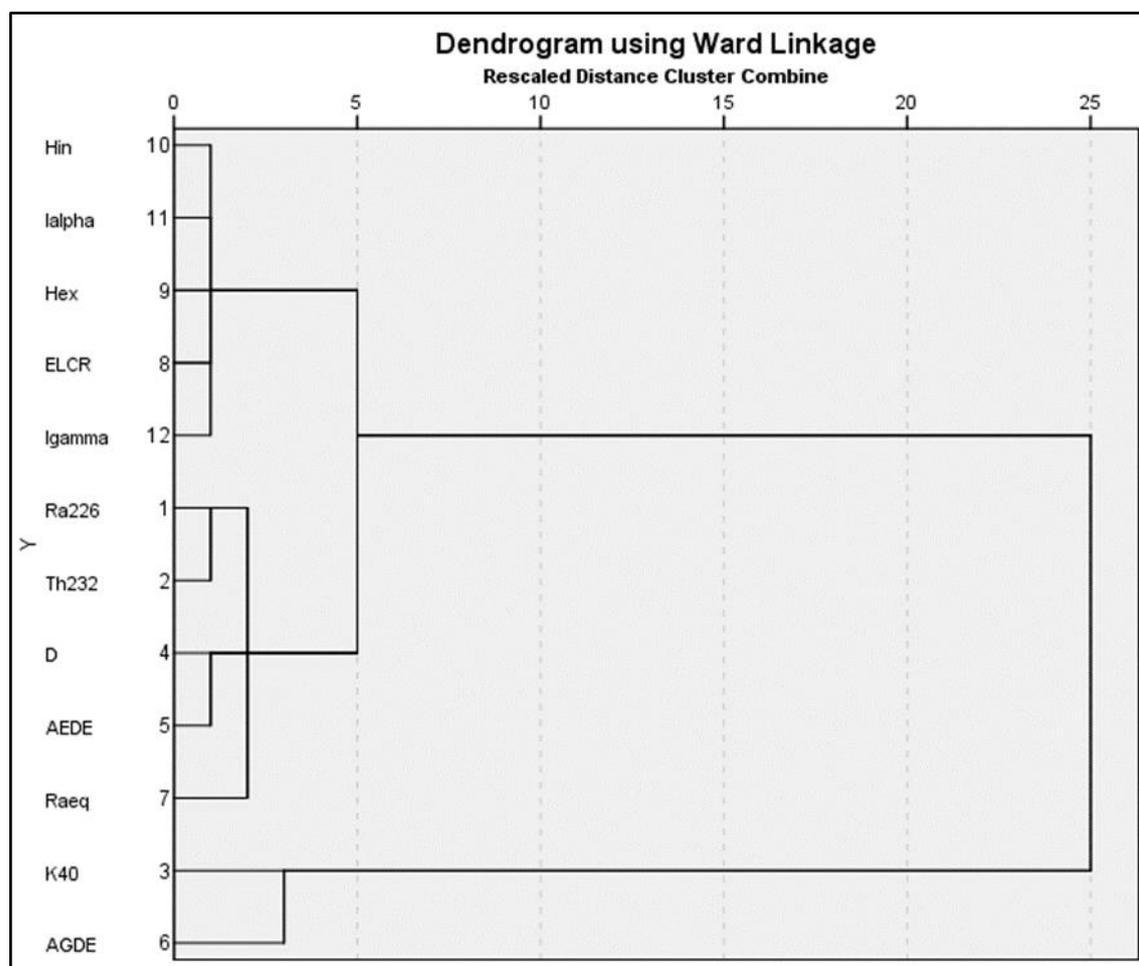
Le coefficient de corrélation de Pearson est une métrique statistique utilisée pour mesurer la force d'une relation linéaire qui peut exister entre deux variables continues [93]. Le tableau (V-7) présente les résultats d'une matrice de corrélation linéaire des activités spécifiques des radionucléides naturels ( $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ ) ainsi que les doses et les paramètres radiologiques de cette étude. A partir de ce tableau, on peut remarquer que le  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  ont un coefficient de corrélation positif élevé avec toutes les doses et les paramètres radiologiques associés, c'est-à-dire qu'il existe une forte corrélation entre les radionucléides, les doses et les paramètres radiologiques dans les échantillons étudiés.

**Tableau V-7.** Corrélation de Pearson entre les radionucléides présents dans les échantillons et les paramètres radiologiques associés.

	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	$\text{Ra}_{\text{eq}}$	ELCR	$\text{H}_{\text{ex}}$	$\text{H}_{\text{in}}$	$\text{I}_{\alpha}$	$\text{I}_{\gamma}$	D	AEDE	AGDE
$^{226}\text{Ra}$	<b>1.00</b>											
$^{232}\text{Th}$	0.84	<b>1.00</b>										
$^{40}\text{K}$	0.82	0.95	<b>1.00</b>									
$\text{Ra}_{\text{eq}}$	0.90	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>								
ELCR	0.90	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>							
$\text{H}_{\text{ex}}$	0.90	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>						
$\text{H}_{\text{in}}$	0.93	0.97	0.96	1.00	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>					
$\text{I}_{\alpha}$	0.89	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>				
$\text{I}_{\gamma}$	<b>1.00</b>	0.84	0.82	0.90	0.90	0.90	0.93	0.89	<b>1.00</b>			
D	0.90	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	0.90	<b>1.00</b>		
AEDE	0.90	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	0.90	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	
AGDE	0.89	<b>0.98</b>	<b>0.98</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	0.89	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>	<b>1.00</b>

### V.5.4. Classification ascendante hiérarchique (Arbre Archaïque)

Dans cette étude, l'HCA basée sur la méthode Ward, comme méthode de couplage pour calculer la distance euclidienne entre la moyenne des variables, est utilisée. Comme on peut le voir sur le Dendogramme figure (V-14), il existe deux segments : le premier segment est composé de ( $\text{H}_{\text{ex}}$ ,  $\text{H}_{\text{in}}$ ,  $\text{I}_{\alpha}$ ,  $\text{I}_{\gamma}$ , ELCR, D, AEDE,  $\text{Ra}_{\text{eq}}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{232}\text{Th}$ ) et le deuxième contient le  $^{40}\text{K}$  et AGDE. Cette analyse en segments a révélé que l'ensemble des doses et des paramètres radiologiques (sauf AGDE) de l'étude sont dus aux activités de  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{232}\text{Th}$ . La concentration de  $^{40}\text{K}$  ne contribue à aucune dose ou paramètre radiologique à l'exception de l'AGDE.



**Figure V-14.** Dendrogramme montrant l'association des radionucléides naturels et des paramètres radiologiques dans les échantillons étudiés.

## Conclusion Générale

L'évaluation des niveaux de radioactivité contenue dans l'environnement, et plus spécifiquement dans les matériaux de constructions, est devenue une procédure nécessaire afin de pouvoir estimer le risque radiologique des rayonnements ionisants émis par les radionucléides naturels et artificiels présents dans les matériaux de construction sur la population mondiale.

Ce travail a porté principalement sur la mesure de la radioactivité naturelle et artificielle dans 31 échantillons de différents types de matériaux de construction : sable, céramique, brique, ciment, clinker, farine et gypse utilisés dans l'urbanisme Algérien. Nous avons mesuré les concentrations des activités dans les échantillons étudiés en utilisant la technique de spectrométrie  $\gamma$  au moyen d'un détecteur semi-conducteur coaxial hyper pure (GeHP) à haute résolution,

Les résultats obtenus montrent que les radionucléides naturels  $^{238}\text{U}$ ( $^{226}\text{Ra}$ ),  $^{232}\text{Th}$  et leurs descendants ainsi que le  $^{40}\text{K}$  sont présents dans tous les échantillons, avec des concentrations inférieures aux limites autorisées identifiées par la commission européenne, et qui sont 40, 40 et 400 Bq kg<sup>-1</sup> pour le  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , respectivement. À l'exception, les activités spécifiques du  $^{40}\text{K}$  dans certains échantillons de brique et tous les échantillons de céramique qui étaient au-dessus de la limite recommandée. La présence du radionucléide anthropique  $^{137}\text{Cs}$  a été trouvée dans trois échantillons de sable avec de très faibles activités. Les résultats de mesures montrent également que les valeurs des activités spécifiques des échantillons étudiés changent d'un matériau à un autre en fonction des composantes de ces matériaux. Pour le même type de matériau, les activités spécifiques des radionucléides varient selon la composition géologique de chaque région.

Les doses reçues, tels que le débit de dose absorbé (ADR), l'équivalent de dose annuelle effective (AEDE) et l'équivalent de dose annuelle des gonades (AGDE), ont été trouvées bien en dessous des valeurs moyennes globales dans presque tous les échantillons, à l'exception de certains échantillons de céramique. Des paramètres radiologiques ont été également calculés afin d'évaluer les effets radiologiques sur les habitants. Comme le radium équivalent ( $\text{Ra}_{\text{eq}}$ ), l'indice de risque externe et interne ( $H_{\text{ex}}$ ,  $H_{\text{in}}$ ), l'indice  $\gamma$ , l'indice  $\alpha$  et l'excès de risque de cancer à vie (ELCR). Les résultats reflètent un fond de rayonnement normal.

Les activités des radionucléides naturels mesurées dans l'ensemble des échantillons de matériaux de construction ont été comparées à des données obtenues par d'autres études de différents pays du monde. Cette comparaison montre que les concentrations des radioéléments dans les matériaux de construction utilisés en Algérie sont en dessous de limites autorisées et ne présentent pas une pollution radioactive significative par rapport à celles de certains pays.

Les analyses statistiques ont montré de fortes corrélations entre les radionucléides primordiaux et les paramètres radiologiques. Elles ont également révélé que l'existence des risques radiologiques est due aux activités spécifiques du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{232}\text{Th}$ .

Enfin, on peut conclure que les matériaux étudiés ne présentent pas de risque radiologique significatif et peuvent être utilisés en toute sécurité dans la construction de bâtiments. Cependant, l'utilisation généralisée des céramiques doit être faite avec prudence car elles présentent un risque radiologique élevé mais il n'y a pas de réglementations ni de restrictions dans leur utilisation.

Il est important de noter que le ciment, la brique et la céramique sont en production continue, il existe donc une possibilité d'accumulation de NORM dans l'environnement après une longue période de fonctionnement. Cela nécessite une surveillance continue du rayonnement ambiant et la mise en œuvre de politiques qui maintiendront la dose de rayonnement délivrée aux travailleurs et au grand public aussi bas que raisonnablement possible (principe ALARA : 'As Low As Reasonably Achievable').

## Références

- [1] J. Beretka and P. J. Mathew, “Natural radioactivity of australian building materials, industrial wastes and by-products,” *Health Phys.*, vol. 48, no. 1, pp. 87–95, 1985, doi: 10.1097/00004032-198501000-00007.
- [2] O. B. Flores, A. M. Estrada, R. R. Suarez, J. T. Zerquera, and A. H. Perez, “Natural radionuclide content in building materials and gamma dose rate in dwellings in Cuba,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 99, pp. 1834–1837, 2008, doi: 10.1016/j.jenvrad.2008.08.001.
- [3] A. El-Taher, “Assessment of natural radioactivity levels and radiation hazards for building materials used in qassim area, saudi arabia,” *Rom. Journ. Phys*, vol. 57, pp. 726–735, 2012.
- [4] S. Abdullahi, A. F. Ismail, and M. S. Yasir, “Radioactive investigation of Malaysia’s building materials containing NORM and potential radiological risks analysis using RESRAD-BUILD computer code,” *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, pp. 1–13, 2020, doi: 10.1080/03067319.2020.1746778.
- [5] D. Amrani and M. Tahtat, “Natural radioactivity in Algerian building materials,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 54, pp. 687–689, 2000, doi: 10.1016/S0969-8043(00)00304-3.
- [6] A. Kadum, A. H. Bensaoula, and B. Dahmani, “Natural Radioactivity in Red Clay Brick Manufactured in Tlemcen-Algeria , Using Well-Shape NaI ( TI ) Detector,” *Adv. Phys. Theor. Appl.*, vol. 25, pp. 120–128, 2013.
- [7] E. Saadi, A. Azbouche, and F. Benrachi, “Assessment of radioactivity levels in some building materials used in Algeria,” in *AIP Conference Proceedings*, 2018, vol. 1994, doi: 10.1063/1.5048176.
- [8] E. Saadi, A. Azbouche, and F. Benrachi, “Spatial distribution of natural radioactivity and statistical analyses of radioactive variables in Algerian ceramic products,” *J. New Technol. Mater.*, vol. 10, no. 2, pp. 47–54, 2020.
- [9] “Home - Chemistry LibreTexts.” <https://chem.libretexts.org/> .
- [10] UNSCEAR, “Sources and effects of ionizing radiation,” New York, 2000.
- [11] P. A. Karam and B. P. Stein, *Radioactivity*. New York: Chelsea House, 2009.
- [12] J. C. Gosse and F. M. Phillips, “Terrestrial in situ cosmogenic nuclides : theory and application,” *Quat. Sci. Rev.*, vol. 20, pp. 1475–1560, 2001.

- [13] M. F. L'Annunziata, *Radioactivity, Introduction and history*. The Netherlands: Elsevier, 2007.
- [14] F. W. Spiers, J. A. B. Gibson, and I. M. G. Thompson, *A guide to the measurement of environmental gamma-ray dose rate*. United Kingdom: National Physical Laboratory, 1981.
- [15] A. S. Paschoa and F. Steinhausler, *Technologically enhanced natural radiation*. United Kingdom: Elsevier Ltd, 2010.
- [16] C. M. Lederer, J. M. Hollander, and I. Perlman, *Table of Isotopes*, 6th ed. New York: Wiley, 1967.
- [17] “Nuclear Forensic Search Project.” <https://metadata.berkeley.edu/nuclear-forensics/DecayChains.html> .
- [18] F. Del Claro, S. A. Paschuk, J. N. Corrêa, V. Denyak, J. Kappke, and A. F. N. Perna, “Radioisotopes present in building materials of workplaces,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 140, pp. 1–5, 2017, doi: 10.1016/j.radphyschem.2017.02.037.
- [19] M. Zalewski, M. Karpin, Z. Mnich, and J. Kapala, “Radon Concentrations in Buildings in the North-eastern Region of Poland,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 40, no. 2, pp. 147–154, 1998.
- [20] V. V Athalye and K. B. Mistry, “Foliar retention, transport and leaching of polonium- 210 and lead-210,” *Radiat. Bot.*, vol. 12, pp. 287–290, 1972.
- [21] M. H. Paradis, “Développement de la mesure par spectrométrie gamma en coïncidence,” Thèse de Doctorat, Université Paris-Saclay, 2016.
- [22] “Désintégrations radioactives.” <http://promenadesmaths.free.fr/desintegration.htm>.
- [23] R. D. Evans, *The atomic nucleus*. New Delhi: Tata McGraw-Hill Publishing Company Ltd., 1955.
- [24] R. Lauf, *Introduction to radioactive minerals*. Pennsylvania: Schiffer Publishing Ltd, 2008.
- [25] B. W. Hurley, “Natural radioactivity in the geologic environment,” in *Environmental management program*, 2009, p. 17.
- [26] “La radioactivité des roches (3) | robertsix.” <https://robertsix.wordpress.com/2016/02/14/la-radioactivite-des-roches-3/>

- [27] S. Mareš and M. Tvrđý, *Introduction to Applied Geophysics*, 1st ed. Netherlands: Springer, 1984.
- [28] H. F. W. Taylor, *Cement chemistry*, 2nd ed. London: Thomas Telford Publishing, 1997.
- [29] H. Boussak, “Effet de la température sur les performances des céramiques contenant la bentonite de Maghnia,” Thèse de Doctorat, Université M’hamed Bougara-Boumerdes, 2015.
- [30] “Brique : composition, mise en œuvre, entretien, prix - Ooreka.” <https://construction-maison.ooreka.fr/astuce/voir/601339/brique>.
- [31] G. F. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, 3rd ed. USA: John Wiley & Sons, Inc, 2000.
- [32] G. Gilmore, *Practical gamma-ray spectrometry*, 2nd ed. UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2008.
- [33] “Physics.nist.gov.” <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/Text/XCOM.html>.
- [34] D. Blanc, *les rayonnements ionisants détection, dosimétrie, spectrométrie*, 2nd ed. Elsevier Masson, 1997.
- [35] “Les interactions électron-matière.” <http://www.gn-meba.org/tutorial/interactions.htm>.
- [36] E. Gasser, “Spectrométrie  $\gamma$  au laboratoire et in situ : Développements et applications environnementales,” Thèse de Doctorat, Université de Strasbourg, 2014.
- [37] F. Courtine, “Étalonnage d’un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo,” Thèse de Doctorat, Université Blaise Pascal, 2007.
- [38] G. Gilmore and J. D. Hemingway, *Practical gamma-ray spectrometry*. Chichester ; New York: Wiley, 1995.
- [39] “Conducteurs, semi-conducteurs, supraconducteurs - Maxicours.” <https://www.maxicours.com/se/cours/conducteurs-semi-conducteurs-supraconducteurs/>.
- [40] A. Nachab, “Études expérimentales et modélisations Monte Carlo de l’auto-absorption gamma et de la dosimétrie active par capteurs CMOS,” Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur - Strasbourg I, France, 2003.
- [41] S. M. Sze, *Semiconductor sensors*, 1st ed. New York, USA: John Wiley & Sons, 1994.

- [42] L. A. Currie, “Limits for qualitative detection and quantitative determination application to radiochemistry,” *Anal. Chem.*, vol. 40, no. 3, pp. 586–593, 1968, doi: 10.1021/ac60259a007.
- [43] UNSCEAR, “Sources, effects and risks of ionizing radiation,” New York, 1988.
- [44] J. H. Zaidi, M. Arif, S. Ahmad, I. Fatima, and I. H. Qureshi, “Determination of natural radioactivity in building materials used in the Rawalpindi / Islamabad area by g -ray spectrometry and instrumental neutron activation analysis,” *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 51, pp. 559–564, 1999.
- [45] (EC) European commission, “Radiation protection 112, radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials,” 1999.
- [46] “Naturally occurring radioactivity in the Nordic countries – recommendations,” 2000.
- [47] R. D. Senthilkumar and R. Narayanaswamy, “Assessment of radiological hazards in the industrial effluent disposed soil with statistical analyses,” *J. Radiat. Res. Appl. Sci.*, vol. 9, no. 4, pp. 449–456, 2016, doi: 10.1016/j.jrras.2016.07.002.
- [48] G. Buonanno, G. Giovinco, L. Morawska, and L. Stabile, “Lung cancer risk of airborne particles for Italian population,” *Environ. Res.*, vol. 142, pp. 443–451, 2015, doi: 10.1016/j.envres.2015.07.019.
- [49] M. C. Joiner and A. J. van der Kogel, *Basic clinical radiobiology*, 5th ed. New York: Taylor & Francis Group, LLC, 2019.
- [50] “Rayonnements ionisants. Effets sur la santé - Risques - INRS.” <https://www.inrs.fr/risques/rayonnements-ionisants/effets-sur-la-sante.html>.
- [51] A. Almén *et al.*, *Medical Radiological Physics*. Berlin: Springer, 2012.
- [52] M. Aliouche, “Exploitation des substances utiles à ciel ouvert et impact sur l’environnement ; Etude de cas dans l’Est Algérien (Les gisements de Djebel Salah , Région de Constantine),” Mémoire de Magister, Université Mentouri de Constantine, 2008.
- [53] A. Houiche and S. Souici, “Etude expérimentale d’un mortier et d’un béton à base de ciment CRS (Performance, Caractérisation),” Mémoire de Master, Université Mohamed Boudiaf - M’sila, 2017.
- [54] M. N. Rekab and S. Omari, “Amélioration du plan de tir (cas de la cimenterie de Zahana w

- mascara),” Mémoire de Magister, Université Abderrahmane Mira de Bejaïa, 2017.
- [55] S. Rebouh and B. Benrachi, *La pollution atmosphérique et son impact sur l’environnement. Cas de la cimenterie «Tahar Djouad» de Hamma Bouziane – Algérie*. Editions Universitaires Européennes: ISSN 978-613-1-55294-6, 2013.
- [56] S. Abdesselam and M. L. Timechbache, “Sur la nature et l’origine de la croute gypseuse dite ‘Deb Deb’ dans les palmerais de l’ouest des Ziban,” *Alger. J. Arid Environ.*, vol. 6, no. 1, pp. 87–95, 2016.
- [57] K. Ouamer-Ali, “Contribution à l’étude des sols gypseux d’Algerie,” Mémoire de Magister, Institut National Agronomique El-Harrach (Alger) (I.N.A), 2009.
- [58] B. Boussaid, “Caractéristiques d’un massif rocheux et anomalies de tir. Carrière de Gypse de Sidi Boutbal, plateau de Boufatis, Oran. (Entreprise Knauf plâtres),” Mémoire d’Ingénieur, Université Abou Bekr Blkaid – Tlemcen, 2015.
- [59] A. Baghdad, R Bouazi, A. Lekoui, E. H. Boukaoud, and Y. Bouftouha, “Caracterisation mineralogique et physico-mecanique des sables de dunes pour une meilleure valorisation « cas du sable d’Oued Zhour, wilaya de Jijel Algerie Nord Orientale »,” in *3ème Colloque International sur la Géologie du Sahara*, 2015, pp. 94–97.
- [60] L. Zeghichi, “Etude des betons basiques a base des différents granulats,” Thèse de Doctorat, Université Mohamed Khider Biskra, 2006.
- [61] S. Balhachemi and F. I. Berrafa, “La valorisation de sable de dune ( sable de Naama ) Durabilité et comportement mécanique,” Mémoire de Master, Centre Universitaire Belhadj Bouchaib d’Ain Témouchent, 2017.
- [62] A. Azbouche, M. Belgaid, and H. Mazrou, “Monte Carlo calculations of the HPGe detector efficiency for radioactivity measurement of large volume environmental samples,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 146, pp. 119–124, 2015, doi: 10.1016/j.jenvrad.2015.04.015.
- [63] A. Azbouche, M. Belamri, and T. Tchakoua, “Study of the germanium dead layer influence on HP(Ge) detector efficiency by Monte Carlo simulation,” *Radiat. Detect. Technol. Methods*, vol. 2, pp. 1–6, 2018, doi: 10.1007/s41605-018-0074-y.
- [64] S. KAIM, “Détermination des caractéristiques de détecteurs par spectrométrie gamma,” Mémoire de Magister, Université Mentouri Constantine, 2003.
- [65] [https://www.rpcirkus.org/images/pdf/donneesdebase/DOC-DB-12\\_1\\_Spectre\\_gamma.pdf](https://www.rpcirkus.org/images/pdf/donneesdebase/DOC-DB-12_1_Spectre_gamma.pdf).

- [66] F. L. Bronson, “Validation of the accuracy of the LabSOCS software for mathematical efficiency calibration of Ge detectors for typical laboratory samples,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 255, no. 1, pp. 137–141, 2003, doi: 10.1023/A:1022248318741.
- [67] S. Hurtado and M. Villa, “An intercomparison of Monte Carlo codes used for in-situ gamma-ray spectrometry,” *Radiat. Meas.*, vol. 45, pp. 923–927, 2010, doi: 10.1016/j.radmeas.2010.06.001.
- [68] A. M. A. Adam and M A H. Eltayeb, “Multivariate statistical analysis of radioactive variables in two phosphate ores from Sudan,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 107, pp. 23–43, 2012, doi: 10.1016/j.jenvrad.2011.11.021.
- [69] R. A. Groeneveld and G. Meeden, “Measuring Skewness and Kurtosis,” *J. R. Stat. Soc. Ser. D "The Stat.*, vol. 33, pp. 391–399, 1984.
- [70] J. C. Davis, *Statistics and data analysis in geology*, 3rd ed. USA: John Wiley & Sons, 2002.
- [71] E. Saadi, F. Benrachi, and A. Azbouche, “An overview of natural and anthropogenic radioactivity distribution in various building materials used in Algerian dwellings,” *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, pp. 1–18, 2020, doi: 10.1080/03067319.2020.1817907.
- [72] (EC) European commission, “Radiation protection 96, Enhanced radioactivity of building materials,” Luxembourg, 1997.
- [73] L. Bruzzi, M. Baroni, G. Mazzotti, R. Mele, and S. Righi, “Radioactivity in raw materials and end products in the Italian ceramics industry,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 47, pp. 171–181, 2000, doi: 10.1016/S0265-931X(99)00026-0.
- [74] S. Righi, R. Guerra, M. Jeyapandian, S. Verità, and A. Albertazzi, “Natural radioactivity in Italian ceramic tiles,” *Radioprotection*, vol. 44, no. 5, pp. 413–419, 2009, doi: 10.1051/radiopro/20095078.
- [75] M. M. Janković and D. J. Todorović, “Concentrations of natural radionuclides in imported zirconium minerals,” *Nucl. Technol. Radiat. Prot.*, vol. 26, no. 2, pp. 110–114, 2011, doi: 10.2298/NTRP1102110J.
- [76] P. Lalan, “Influence d’une température de 70°C sur la géochimie, la microstructure et la diffusion aux interfaces béton/ argile: expérimentations en laboratoire, in situ et modélisation,” Thèse de Doctorat, Université de recherche Paris Sciences et Lettres, 2016.
- [77] NEA, “Exposure to radiation from the natural radioactivity in building materials,” Paris,

1979.

- [78] S. Turhan, U. N. Bayken, and K. Sen, "Measurement of the natural radioactivity in building materials used in Ankara and assessment of external doses," *J. Radiol. Prot.*, vol. 28, 2008, doi: 10.1088/0952-4746/28/1/005.
- [79] K. Vanasundari, R. Ravisankar, D. Durgadevi, R. Kavita, and M. Karthikeyan, "Measurement of natural radioactivity in building material used in Chengam of Tiruvannamalai district, Tamilnadu by Gamma-Ray Spectrometry," *Indian J. Adv. Chem. Sci.*, vol. 1, pp. 22–27, 2012.
- [80] S. Rizzo, M. Brai, S. Basile, S. Bellia, and S. Hauser, "Gamma activity and geochemical features of building materials: estimation of gamma dose rate and indoor radon levels in Sicily," *Appl. Radiat. Isot.*, vol. 55, pp. 259–265, 2001.
- [81] M. M. Janković, M. M. Rajačić, T. M. Rakić, and D. J. Todorović, "Natural radioactivity in imported ceramic tiles used in Serbia," *Process. Appl. Ceram.*, vol. 7, no. 3, pp. 123–127, 2013, doi: 10.2298/PAC1303123J.
- [82] A. Kumar, M. Kumar, B. Singh, and S. Singh, "Natural activities of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  in some Indian building materials," *Radiat. Meas.*, vol. 36, pp. 465–469, 2003, doi: 10.1016/S1350-4487(03)00173-2.
- [83] M. S. Hamideen, O. M. Bdair, A. Chandrasekaran, H. Saleh, and Z. M. Elimat, "Multivariate statistical investigations of natural radioactivity and radiological hazards in building materials mainly used in Amman Province, Jordan," *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, pp. 1–15, 2019, doi: 10.1080/03067319.2019.1635123.
- [84] R. H. Higgy, "Radionuclide content of building materials and associated gamma dose rates in Egyptian dwellings," *J. Environ. Radioact.*, vol. 50, pp. 253–261, 2000.
- [85] L. Xinwei, "Radioactivity level in Chinese building ceramic tile," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 112, no. 2, pp. 323–327, 2004, doi: 10.1093/rpd/nch396.
- [86] G. Xhixha *et al.*, "First characterisation of natural radioactivity in building materials manufactured in Albania," *Radiat. Prot. Dosimetry*, vol. 155, no. 2, pp. 217–223, 2013, doi: 10.1093/rpd/ncs334.
- [87] G. Senthilkumar, R. Ravisankar, K. Vanasundari, I. Vijayalakshmi, P. Vijayagopal, and M. T. Jose, "Assessment of radioactivity and the associated hazards in local cement types used

- in Tamilnadu, India,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 88, pp. 45–48, 2013, doi: 10.1016/j.radphyschem.2013.03.002.
- [88] N. Ahmad, T. Nasir, M. Rafique, S. Rizwan, and N. Ahmad, “Natural radioactivity and associated radiological hazards in limestone used as raw material in cement of Lucky Cement Factory , Pezu , Pakistan,” *Int. J. Environ. Anal. Chem.*, pp. 1–12, 2019, doi: 10.1080/03067319.2019.1651303.
- [89] D. O. Kpeglo *et al.*, “Natural radioactivity and its associated radiological hazards in Ghanaian cement,” *Res. J. Environ. Earth Sci.*, vol. 3, no. 2, pp. 160–166, 2011.
- [90] D. C. Narloch *et al.*, “Characterization of radionuclides present in portland cement , gypsum and phosphogypsum mortars,” *Radiat. Phys. Chem.*, vol. 155, pp. 315–319, 2018, doi: 10.1016/j.radphyschem.2018.07.011.
- [91] S. Solak *et al.*, “Evaluation of potential exposure risks of natural radioactivity levels emitted from building materials used in Adana , Turkey,” *Indoor Built Environ.*, vol. 23, no. 4, pp. 594–602, 2014, doi: 10.1177/1420326X12448075.
- [92] S. M. Darwish, S. M. El-bahi, A. T. Sroor, and N. F. Arhoma, “Natural radioactivity assessment and radiological hazards in soils from Qarun lake and Wadi El Rayan in Faiyum, Egypt,” *Open J. Soil Sci.*, vol. 3, pp. 289–296, 2013.
- [93] M. Ngachin, M. Garavaglia, C. Giovani, M. G. K. Njock, and A. Nourreddine, “Radioactivity level and soil radon measurement of a volcanic area in Cameroon,” *J. Environ. Radioact.*, vol. 99, pp. 1056–1060, 2008, doi: 10.1016/j.jenvrad.2007.12.022.

# Experimental study of low radioactivity measurements in construction materials used in Algeria

## Abstract

Building materials are classified as a source of radioactive contamination because of their content of natural radionuclides, mainly uranium, thorium and their progeny products besides potassium. This may be related to their natural composition of soil and rocks. In order to estimate the harmful effects of ionizing radiation emitted by building materials, a broad research on the levels of natural radioactivity must be developed.

The objective of this work is to study the distribution of natural radioactivity in construction materials used in Algeria. 31 samples of different types of materials were collected. The concentration measurements of activities resulting from the decay of  $^{238}\text{U}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ),  $^{235}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$ , as well as the primordial isotope  $^{40}\text{K}$  in these samples were carried out using gamma spectrometry technique, by means of a high purity germanium detector (HPGe). The average activities of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  are  $16.05 \pm 0.53 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ,  $17.44 \pm 0.97 \text{ Bq.kg}^{-1}$  and  $260.31 \pm 6.81 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , respectively. These values are lower than the global average values. The presence of  $^{137}\text{Cs}$  the anthropogenic radionuclide was found in three sand samples with very low activities. Received doses and radiological hazard parameters were calculated and compared to the global average values. A comparison of the results obtained in this study with the literature was made. In addition, a statistical analysis was performed and discussed for the obtained data.

**Keywords:** Construction materials, natural Radioactivity, HPGe Detector, radiological hazard, statistical analysis.

## دراسة تجريبية لقياسات النشاط الإشعاعي المنخفض في مواد البناء المستخدمة في الجزائر

### ملخص

تصنف مواد البناء على أنها مصدر للتلوث الإشعاعي بسبب محتواها من النويدات المشعة الطبيعية، وخاصة اليورانيوم والثوريوم ومنتجاتها وكذلك البوتاسيوم. قد يكون هذا مرتبطاً بتكوينها الطبيعي للتربة والصخور. من أجل تقدير الآثار الضارة للإشعاع المؤين المنبعث من مواد البناء، يجب إجراء بحث مكثف حول مستويات النشاط الإشعاعي الطبيعي.

الهدف من هذا العمل هو دراسة توزيع النشاط الإشعاعي الطبيعي في مواد البناء المستخدمة في الجزائر. تم جمع 31 عينة من أنواع مختلفة من المواد. تم إجراء قياسات تركيز الأنشطة الناتجة عن اضمحلال (226Ra) وU238 وU235 وTh 232، بالإضافة إلى النظير البدائي K40 في هذه العينات باستخدام تقنية قياس طيف جاما، باستخدام كاشف الجرمانيوم عالي النقاء (GeHP). يبلغ متوسط أنشطة Ra226 وTh232 وK40  $16.05 \pm 0.53$  بيكرال/كغ،  $0.97 \pm 17.44$  بيكرال/كغ و260.31  $\pm 6.81$  بيكرال/كغ على التوالي. هذه القيم أقل من قيم المتوسط العالمي. تم العثور على وجود النويدات المشعة البشرية المنشأ Cs137 في ثلاث عينات رملية منخفضة النشاط للغاية. تم حساب الجرعات المتلقاة ومعلومات الخطر الإشعاعي ومقارنتها بمتوسط القيم الإجمالية. تم إجراء مقارنة بين النتائج التي تم الحصول عليها في هذه الدراسة مع دراسات أخرى. بالإضافة إلى ذلك، تم إجراء تحليل إحصائي ومناقشة البيانات التي تم الحصول عليها.

### الكلمات المفتاحية:

مواد البناء، نشاط إشعاعي طبيعي، كاشف GeHP، مخاطر إشعاعية، تحليل إحصائي.

## Résumé

Les matériaux de construction sont classés comme une source de contamination radioactive en raison de leur teneur en radionucléides naturels, principalement l'uranium, le thorium et leurs produits de filiations ainsi que le potassium. Cela peut être lié à leur composition naturelle du sol et des roches. Afin d'estimer les effets néfastes des rayonnements ionisants émis par les matériaux de construction, une vaste recherche sur les niveaux de radioactivité naturelle doit être développée.

L'objectif de ce travail est d'étudier la distribution de la radioactivité naturelle dans les matériaux de construction utilisés en Algérie. 31 échantillons de différents types de matériaux ont été collectés. Les mesures de concentration d'activités issues de la désintégration de l' $^{238}\text{U}$  ( $^{226}\text{Ra}$ ), l' $^{235}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$ , ainsi que l'isotope primordial  $^{40}\text{K}$  dans ces échantillons ont été réalisés par la technique de spectrométrie gamma, en utilisant un détecteur germanium de haute pureté (GeHP). Les activités moyennes de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  sont  $16,05 \pm 0,53 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ,  $17,44 \pm 0,97 \text{ Bq.kg}^{-1}$  et  $260,31 \pm 6,81 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , respectivement. Ces valeurs sont inférieures aux valeurs moyennes mondiales. La présence du radionucléide anthropique  $^{137}\text{Cs}$  a été trouvée dans trois échantillons de sable à très faible activité. Les doses reçues et les paramètres de risques radiologiques ont été calculés et comparés aux valeurs moyennes globales. Une comparaison des résultats obtenus dans cette étude avec la littérature a été faite. De plus, une analyse statistique a été réalisée et discutée pour les données obtenues.

**Mots-clés:** Matériaux de construction, radioactivité naturelle, détecteur GeHP, risques radiologiques, analyse statistique.