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

UNIVERSITE MENTOURI CONSTANTINE FACULTE DES SCIENCES EXACTES DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre : Série:

MEMOIRE

PRESENTE POUR OBTENIR LE DIPLOME DE MAGISTER EN PHYSIQUE

SPECIALITE : RAYONNEMENT ET APPLICATIONS

THEME

Détermination de la concentration en uranium et l'émanation du radon à partir de certains matériaux de construction

Par

Ahmed TEDJANI

SOUTENU LE :

Devant le jury :

Président : F. Benrachi

A. Boucenna

Rapporteur : A. Belafrites

Examinateurs : N. Brihi

- Prof. Université de Constantine
- Prof. Université de Jijel
- Prof. Université de Jijel
- Prof. Université de Sétif

Dédicace

Grâce à dieu le tout puissant, qui m'a donné la volonté, la force, et qui m'a éclairé vers le bon chemin, que nul ne peut se faire sans son désir.

Je dédie ce travail :

A mes très chers parents qui ont tout sacrifié pour moi, grâce à vous que je suis la, grâce à vous que je serai très loin, Vous restez toujours dans mon cœur. A mes adorables frères Salah, Ali, Salim, Mohamed Tahar et le petit Haroun A ma sœur Zineb

Pour leurs encouragements, soutien moral, et leur compréhension, Je leur souhaite tout le bonheur du monde.

A toute personne de ma grande famille.

Remerciements

Le travail qui fait l'objet de ce mémoire a été réalisé à l'Université de Jijel.

Je tiens tout d'abord à exprimer mes remerciements les plus chaleureux, ma profonde gratitude et ma reconnaissance infinie à Monsieur A. Belafrites, professeur à l'Université de Jijel, pour m'avoir fait confiance tout au long de ces deux années de magistère et d'avoir encadré mon travail de recherche. Encore un grand merci pour ces encouragements, son aide, ses idées qui m'ont permis d'aller au fond des réflexions.

Je tiens à remercier tout particulièrement et chaleureusement Madame F. Benrachi, Professeur à l'Université Mentouri Constantine, pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de thèse.

Je suis infiniment reconnaissant à remercier, Monsieur A. Boucenna, Professeur à l'Université Abbas Farhat Sétif, d'avoir accepté de participer au jury et d'examiner ce travail.

Monsieur N. Brihi, Professeur à l'Université de Jijel m'a fait l'honneur de s'intéresser à mon travail et apporter ses compétences pour apprécier cette étude, qu'il trouve ici, l'expression de mes plus vifs remerciements.

Il m'est agréable de remercier Mr D. Boumala pour son aide très précieux. J'adresse mes remerciements les plus fraternels à mes chères amis et collègues, de l'université de Jijel et l'université Mentouri de Constantine.

Table des matières

In	Introduction 1					
1	Rec	herche	e bibliographique	2		
	1.1	Intro	duction	2		
	1.2	L'Ura	nium	2		
		1.2.1	Découverte de l'uranium	2		
		1.2.2	L'uranium naturel	3		
		1.2.3	Effets sur l'être humain	4		
	1.3	Le Ra	don	5		
		1.3.1	Propriétés du radon	5		
		1.3.2	Formation du radon	6		
		1.3.3	Les isotopes	7		
		1.3.4	Les sources du radon	9		
		1.3.5	Caractère toxicologique et risque sanitaire du radon	10		
		1.3.6	Principes de réduction du radon	12		
		1.3.7	Techniques de mesure du radon et l'uranium $\ldots \ldots \ldots$	13		
2	Pri	ncines	de détection des rayonnements et caractéristiques des dé-			
-	tect	eurs a	ssociés	14		
	2.1	Classi	fication des rayonnements	14		
		2.1.1	Les rayonnements ionisants	15		
		2.1.2	Les ravonnements non ionisants	16		
	2.2.1.2 Les rayonnements non romsans					
		2.2.1	Transfert linéique d'énergie (TLE)	17		
		2.2.2	Perte d'énergie des particules α	19		
		2.2.3	Parcours des particules chargées	19		
	2.3 Interactions photon-matière					
		2.3.1	La diffusion Rayleigh	22		
		2.3.2	Effet photoélectrique	22		
		2.3.3	Effet Compton	24		
		2.3.4	Effet de création de paires	25		
		2.3.5	Sections efficaces d'interactions	26		
		2.3.6	Atténuation et absorption des photons	26		
	2.4	Détec	tion des rayonnements	28		
		2.4.1	Détecteurs semi-conducteurs	28		

		2.4.2	Détecteur Solide de Traces Nucléaires	31		
3	Tecl	hnique	s et procédures expérimentales	39		
	3.1	u général sur les échantillons	39			
		3.1.1	ciment	40		
		3.1.2	Sable	40		
		3.1.3	Brique	40		
		3.1.4	Faïence	40		
		3.1.5	Plâtre	41		
		3.1.6	Marbre	41		
	3.2	Techni	ques d'analyse	41		
	3.3	Procédures expérimentales				
		3.3.1	Analyse par les DSTN	41		
		3.3.2	Calcul de la densité des traces	45		
		3.3.3	Calcul numérique de l'efficacité de détection	45		
		3.3.4	Le programme SRIM: Stopping and Range of ions in matter	46		
		3.3.5	Analyse par spectrométrie gamma	48		
4	Rés	ultats	et discussions	52		
	4.1	1 Présentation des résultats				
		4.1.1	Les détecteurs solides de traces nucléaires	52		
		4.1.2	Analyse par spectrométrie gamma	55		
		4.1.3	L'évaluation des effets radiologiques	59		
		4.1.4	Estimation des doses	60		
	4.2	Discus	sions	61		
		4.2.1	Analyse par les DSTN	61		
		4.2.2	Analyse par spectrométrie γ	63		
Co	onclu	sion		65		
Références						

Introduction

La radioactivité se présente partout dans l'écorce terrestre avec des quantités différentes, dépendant à la fois de la nature de la terre et des diverses activités nucléaires effectuées par l'homme. Les préoccupations concernant la présence de substances radioactives naturelles justifient des mesures sur les niveaux d'activité des radionucléides dans l'environnement et des évaluations de leurs impacts radiologiques sur la population humaine.

Afin de recenser avec suffisamment de précision les sources de radioactivité naturelles et artificielles, ainsi que les phénomènes régissant leur transfert et leur enrichissement dans l'environnement, des programmes de mesures, des points de prélèvement et des méthodes d'analyses seront choisis et mis en œuvre avec le plus grand soin. La surveillance de la radioactivité dépasse donc les simples contrôles de routine et comprend également des projets de recherches multidisciplinaires (Physique, Chimie, Sciences de l'environnement...).

Ce travail a pour but de mesurer qualitativement et quantitativement les éléments radioactifs des familles ^{138}U , ^{232}Th et le ^{40}K , ainsi que leurs activités spécifiques pour quelques types de matériaux de construction prélevés de différentes régions de l'Algérie.

L'une des techniques utilisées pour la détermination des éléments radioactifs est la spectrométrie gamma. Cette technique de mesure offre un outil d'analyse performant pour identifier et quantifier les éléments de faible concentration présents dans un échantillon. La deuxième technique est l'utilisation d'une méthode passive, avec des détecteurs solides de traces nucléaires pour la détection des particules alpha émises par l'élément radioactif.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres. Le premier chapitre porte sur une recherche bibliographique générale sur l'Uranium et le Radon (propriétés, origine et risques sanitaires). Dans le second chapitre, nous rappelons les principaux types de rayonnements nucléaires et les bases théoriques des mécanismes d'interaction rayonnement-matière. Nous décrivons également les diverses méthodes de détection des rayonnements à base des détecteurs semi-conducteurs et des détecteurs solides de traces nucléaires. Le troisième chapitre fera l'objet d'un aperçu général sur les matériaux de construction en question et d'une brève présentation des diverses techniques de mesure utilisées.

Dans le dernier chapitre nous présenterons les différents résultats obtenus à l'aide des techniques décrites auparavant et nous les discuterons à la lumière d'expériences antérieures. Nous aborderons également les diverses analyses qui devraient permettre de compléter notre étude. Enfin, ce mémoire se termine par une conclusion.

Chapitre 1

Recherche bibliographique

1.1 Introduction

La radioactivité n'a pas été inventée par l'homme. Elle a été découverte en 1896, par le physicien français Henri Becquerel. Ce dernier cherchait à savoir si les rayons qu'émettaient les sels fluorescents d'uranium étaient les mêmes que les rayons X découverts en 1895 par Wilhelm Roentgen, physicien allemand. Il pensait que les sels d'uranium, après avoir été excités par la lumière, émettaient ces rayons X. Quelle ne fut pas sa surprise lorsqu'à Paris, en mars 1896, il découvrit que le film photographique avait été impressionné sans avoir été exposé à la lumière du soleil ! Il en conclut que l'uranium émettait spontanément et sans s'épuiser des rayonnements invisibles, différents des rayons X. Le phénomène découvert est appelé radioactivité (du latin radius : rayon). À la suite des travaux d'Henri Becquerel, en 1898 Pierre et Marie Curie isolèrent le polonium et le radium, des éléments radioactifs inconnus présents dans le minerai d'uranium.

1.2 L'Uranium

1.2.1 Découverte de l'uranium

L'uranium a été mis en évidence en 1789 par le chimiste prussien Martin Heinrich Klaproth en chauffant la pechblende (UO_2) , un minerai d'uranium. Klaproth donna le nom d'« urane » ou « uranite » au composé qu'il venait d'identifier, en référence à la découverte de la planète Uranus faite par William Herschel huit ans plus tôt (1781).[1]

Cinquante ans plus tard que le chimiste français Eugène Péligot établit que l'urane était composé de deux atomes d'oxygène et d'un de métal, métal qu'il isola et nomma uranium. Henri Becquerel ne découvrit la propriété radioactive de l'uranium que beaucoup plus tard, en 1896.

1.2.2 L'uranium naturel

L'uranium naturel est présent dans pratiquement tous les milieux naturels : roches et eau. Il y à en effet 3mg d'uranium par mètre cube d'eau de mer ce qui représente 4, 5 milliards de tonnes d'uranium dissout dans les océans[2]. L'uranium est tout de même relativement répandu dans l'écorce terrestre, notamment dans les terrains granitiques et sédimentaires. La concentration d'uranium dans ces roches est de l'ordre de 3g par tonne. [3]

Caractéristiques

L'uranium est un élément chimique de symbole U et c'est le dernier élément naturel du tableau périodique de Mendeleïev. Chaque atome d'uranium possède 92 protons et entre 135 et 148 neutrons.

A l'état pur, l'uranium solide est un métal radioactif gris à blanc (voire argenté), qui rappelle la couleur du nickel. Il est dur et très dense. De plus, l'uranium est l'atome le plus lourd (qui contient le plus nombre de nucléons) présent naturellement sur la terre.

Les isotopes

L'uranium a dix-sept isotopes, tous radioactifs, dont trois seulement sont présents à l'état naturel : ^{238}U ; ^{235}U et ^{234}U Quelles que soient les teneurs en uranium des milieux, les proportions entre les trois isotopes formant l'uranium naturel sont (presque) exactement les mêmes : ^{238}U : 99, 28% ; ^{235}U : 0, 71% ; ^{234}U : 0, 0054%.

Il est à noter que l'isotope ^{234}U est toujours présent sur terre, bien qu'il ait une demi-vie de seulement 245500 ans, car il est constamment généré par l'isotope ^{238}U (après 3 radioactivités : α , β^- , β^-). L'isotope ^{236}U s'est éteint depuis longtemps bien qu'ayant une demi-vie presque centuple.

Autres propriétés

En raison de son affinité pour l'oxygène, l'uranium s'enflamme spontanément dans l'air à température élevée, voire à température ambiante lorsqu'il se trouve sous forme de microparticules.

De plus, l'élément uranium se retrouve toujours en combinaison avec d'autres éléments tels l'oxygène, l'azote, le soufre, le carbone. On le trouve par exemple en combinaison avec l'oxygène dans l'uranite et la pechblende, deux des principaux minerais d'uranium, constitués d'oxyde uraneux (UO_2) .

1.2.3 Effets sur l'être humain

Les différents isotopes de l'uranium présents dans les résidus de l'industrie nucléaire sont tous des émetteurs alpha avec des périodes très longues, ils donnent du thorium qui est lui même radioactif. La chaîne de désintégration de ^{238}U , le plus abondant, est donnée. Lors de l'extraction du minerai, l'uranium est séparé de ses descendants, tous présents dans la nature. C'est surtout en cas de contamination que l'uranium est dangereux. Le rayonnement alpha peut être arrêté par une feuille de papier, il est donc facile de s'en protéger. Par contre, lors d'une contamination (ingestion ou inhalation) les tissus humains sont très affectés par l'importante énergie rayonnée. C'est aussi, comme tous les métaux lourds, un toxique chimique.

Selon L'OMS, " les effets de l'uranium appauvri sur la santé sont complexes car ils sont liés à la forme chimique du composé qui pénètre dans l'organisme ". Les effets peuvent être chimiques et/ou radiologiques. On ne dispose que d'informations limitées sur les effets sanitaires et environnementaux de l'uranium sur la santé et l'environnement.

Les effets sur la santé dépendent des modalités (ingestion, inhalation, contact ou lésions) et du niveau d'exposition, ainsi que des caractéristiques de l'uranium appauvri (taille et solubilité des particules). Pour ce qui est de la toxicité chimique, l'OMS explique que l'uranium entraîne des lésions rénales chez l'animal de laboratoire et certaines études font apparaître qu'une exposition à long terme pourrait avoir des conséquences sur la fonction rénale chez l'être humain. Les lésions observées sont les suivantes : modifications nodulaires de la surface des reins, lésions de l'épithélium tubulaire et augmentation de la glycémie et de la protéinurie [4].

Quelques chiffres

L'organisme humain contient en moyenne 90mg d'uranium provenant de l'absorption naturelle d'aliments, d'air et d'eau. On en trouve environ 66% dans le squelette, 16% dans le foie, 8% dans les reins et 10% dans les autres tissus [4]. Afin de rassurer la population, il est souvent affirmé que l'uranium appauvri est environ 40% moins radioactif que l'uranium naturel que l'on trouve partout dans l'environnement. En effet, la période de ²³⁸U étant beaucoup plus longue que celle de ²³⁵U, il se désintègre moins vite et est donc moins radioactif, mais dans la nature, on ne trouve pas de l'uranium pur. Le minerai extrait des mines françaises ne contient que 0,5% d'uranium et celui des mines canadiennes, les plus riches, entre 4 et 8%. Quant à l'écorce terrestre, elle contient en moyenne 3g d'uranium par tonne. L'uranium appauvri est donc beaucoup plus radioactif que notre environnement. Et l'uranium de retraitement, du fait de la présence d'impuretés radioactives, est encore plus radiotoxique.

L'activité massique de ²³⁸U pur peut être aisément calculée à partir de sa période : 12, 4.10⁶ Bq/kg. Mais le thorium 234 obtenu se désintègre rapidement (24 jours de période) en protactinium 234 puis en ²³⁴U (1,2 minute de période) par émissions bêta successives. L'uranium 234 a ensuite une période radioactive très longue, on peut donc estimer dans un premier temps que la chaîne s'arrête là. En fait, pour calculer l'activité de l'uranium appauvri, c'est à dire le nombre de désintégrations par seconde, il faut aussi tenir compte de ces deux descendants, ce qui donne une activité environ trois fois supérieure : 37, 3.10^6 Bq/kg. En ajoutant la contribution des autres éléments présents, on arrive à 39.10^6 Bq/kg pour l'uranium appauvri.

L'ingestion d'un gramme de ^{238}U conduit à une dose de 0,57mSv~ et l'inhalation à 99mSv~[5]. Pour le plutonium dont on trouve des traces dans l'uranium de retraitement, ces doses sont de un à trois millions de fois plus élevées. L'ingestion de 1,8 g de ^{238}U par an ou l'inhalation de 0,01g/an conduit à la limite annuelle pour la population qui est de 1mSv par an. Dans la pratique, il faut aussi tenir compte d'autres voies d'exposition à la radioactivité du fait qu'il peut y avoir à la fois ingestion et inhalation. Ces chiffres sont donc des limites supérieures à ne pas atteindre.

1.3 Le Radon

Après la découverte du radium par Pierre et Marie Curie d'autres radioéléments naturels sont découverts. Parmi eux, le radon. En 1900 Friedrich Ernst Dorn (Allemagne) met en évidence que l'air au contact de composés du radium devient radioactif et que ce phénomène est dû à une émanation gazeuse issue du radium, c'est le radon. La même année, Rutherford montre que ce gaz se forme lors de la désintégration du radium avec l'émission d'une particule alpha $\binom{4}{2}He$.

La mesure du radon et de ses descendants dans l'environnement est devenue depuis quelques années une mission importante pour les laboratoires d'analyses et de mesures de la radioactivité environnementale. On estime que cet élément est la source principale d'exposition radiologique naturelle pour l'homme.

1.3.1 Propriétés du radon

Étymologie du nom : vient du radium. Le radon été appelé nitens, ce qui signifie brillant, Inodore, incolore, insipide et radioactif. Il est invisible, qui s'est appelé historiquement émanation. Le radon ${}^{222}_{86}Rn$ est un gaz rare inerte, d'origine naturelle, c'est le gaz le plus lourd (densité 9,72 kg. m à 273 K, soit 8 fois plus que l'air). Il se liquéfie à $-68 \,^{\circ}\text{C}$ et se solidifie à $-71 \,^{\circ}\text{C}$. Le radon est soluble dans l'eau et il s'adsorbe facilement sur les solides : charbon actif, silicagel, paraffine, etc. . . . Cette propriété est d'ailleurs mise à profit dans certaines méthodes de dosage

1.3.2 Formation du radon

Les éléments radioactifs du sol, présents en proportions variables dans la plupart des roches sont notamment ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th . Ces éléments sont instables et se désintègrent progressivement jusqu'à l'élément stable Pb. En se désintégrant, ces éléments donnent naissance à des descendants eux-mêmes radioactifs comme le radium et le radon (figure1-1).

La formation du ^{222}Rn dans un endroit donné se déroule en deux étapes. Dans un premier temps, le radon, formé par désintégration alpha du radium présent dans les grains du sol, ces particules libérées gagnent l'espace des pores du réseau cristallin, en effet, lors de cette désintégration sur l'action de l'énergie libérée, l'atome du radon subit un recul de longueur d dans le réseau [6]. Dans un deuxième temps, les atomes du radon migrent à travers l'espace des pores jusqu'à ce qu'ils atteignent l'atmosphère ou jusqu'à ce qu'ils se désintègrent.



Figure (1.1): Mécanisme de décroissance du radon et descendants.

La proportion d'atomes de radon qui parviennent jusqu'à l'air extérieur est finalement plus faible que celle des atomes de ^{222}Rn se désintègrent avant d'avoir atteint les interfaces sol-air. Cela se traduit par un coefficient d'émanation qui peut varier d'un matériau à l'autre. Cette proportion du radon atteignant l'atmosphère libre dépend de la distance entre le lieu de formation et l'interface sol-air. Seul le radon produit à une certaine profondeur du sol arrivera.

1.3.3 Les isotopes

Le radon a une vingtaine d'isotopes radioactifs, dont trois seulement sont à l'état naturel :

- Radon : ${}^{222}Rn \ (T_{1/2}=3, 8jours),$
- Thoron : ${}^{220}Rn \ (T_{1/2} = 54, 2secondes),$
- Actinon : ${}^{219}Rn \ (T_{1/2}=3, 92 secondes),$

Il est important de mentionner que le paramètre physique qui différencie ces isotopes est leur période radioactive $(T_{1/2})$. La désintégration de ces isotopes se fait par l'émission d'une particule alpha pour donner un isotope instable du polonium.

$$\begin{array}{rcl} ^{226}_{88}Ra & \to & ^{222}_{86}Rn + ^{4}_{2}He\left(\alpha\right) + Energie\left(4,8\,{\rm MeV}\right) \\ ^{222}_{86}Rn & \to & ^{218}_{84}Po + ^{4}_{2}He\left(\alpha\right) + Energie\left(4,5\,{\rm MeV}\right) \end{array}$$

Nom	Isotope	Période (T)	Constante de désintération (s^{-1})	$E_{\alpha}(MeV)$
Radon	$\frac{222}{86}Rn$	3.82 jours	$2.1 * 10^{-6}$	5.5
Thoron	$\frac{220}{86}Rn$	54.2 secondes	$1.28 * 10^{-2}$	6.3
Actinon	$\frac{219}{86}Rn$	3.92 secondes	$1.77 * 10^{-1}$	6.8

Tableau (1-1) : Caractéristiques des isotopes du radon

Les trois isotopes du radon (radon, thoron et actinon) appartiennent respectivement aux familles radioactives naturelles de ^{238}U , du ^{232}Th et de ^{235}U .



Figure 1-2 : ^{238}U et ses descendants



Figure 1 -3: ^{232}Th et ses descendants



Figure 1-4 : ${}^{235}U$ et ses descendants

Dans ces trois familles, les trois éléments pères possèdent une période très longue et engendrent des séries de descendants radioactifs jusqu'à l'apparition d'un élément stable: isotope du plomb. Les différents radioéléments formés sont des solides (à température et pression normales) à l'exception d'un par famille qui est l'isotope du radon.

On admet que le ^{222}Rn est le plus important pour l'émanation. La quantité du ^{222}Rn est directement proportionnelle à la teneur du sol en ^{226}Ra . Cependant, seule une fraction arrive à s'en échapper (pouvoir d'émanation d'un sol) alors qu'un nombre important d'atomes produits reste prisonniers dans le réseau cristallin où ils se désintègrent. Dans l'atmosphère libre, ce gaz radioactif est dispersé. Il se trouve en concentration généralement plus importante dans les maisons en raison des faibles temps de renouvellement de l'air qui y règnent. Par sa période radioactive de 3, 8*jours*, le ^{222}Rn est l'isotope le plus présent dans l'atmosphère.

1.3.4 Les sources du radon

La source principale du radon est le sol et dans certains cas, les matériaux de construction. Les concentrations en radon rencontrées dépendent également des caractéristiques de l'habitat :

• Nature du soubassement (terre battue, chape, vide sanitaire ...),

• Voies de transfert existantes entre les différents étages (passage de canalisation, escalier, . .),



• Taux de ventilation (renouvellement d'air) et habitudes de vie des occupants.

Figure (1.5): Voies d'entrées du radon dans les habitations.

La concentration en radon varie fortement d'une région à l'autre, d'une maison à l'autre en fonction de la nature géologique du sous-sol. Elle varie aussi en fonction du moment de la journée, des saisons, des conditions météorologiques. Dans l'habitation, plus on s'éloigne de la cave, plus la concentration diminue [7].

1.3.5 Caractère toxicologique et risque sanitaire du radon

S'il n'y avait pas eu un gaz (le radon) au milieu de la famille radioactive de l'uranium, la radioactivité naturelle n'aurait posé aucun problème sanitaire. Plus rare, le gaz thoron, son isotope, est négligé par la législation, mais ses descendants peuvent parfois devenir dangereux, souvent à cause de certains matériaux de construction [8]. Généralement, le gaz radon diffuse dans l'air à partir du sol ou de l'eau où il peut être dissous. A l'air libre, sa concentration est faible : il est dilué par les vents. Mais dans l'atmosphère plus confinée d'un bâtiment, il peut s'accumuler et atteindre des concentrations élevées. Le seuil d'alerte est égal à $1000 \text{ Bq}/m^3$, dans les normes internationales. Les matériaux de construction constituent la deuxième source de radon. Mais elle ne dépasse généralement pas quelques dizaines de Bq/m^3 alors que le sol de l'habitation peut être la source de concentrations de radon de quelques centaines de Bq/m^3 . La concentration de radon que nous respirons est généralement très faible : moins de $10 Bq/m^3$ en moyenne.

Les produits de filiation du radon sont des particules solides. La plupart des produits de filiation du radon se fixent sur des particules de poussière infimes (aérosols) contenues dans l'air intérieur. Une fraction variable reste libre. Lorsque les produits de filiation du radon sont inhalés, une fraction des particules fixées et des particules libres se dépose dans les poumons [9]. À l'intérieur des poumons, les produits de filiation du radon émettent des particules alpha qui sont absorbées dans les tissus pulmonaires avoisinants. Comme les particules alpha ne peuvent pas pénétrer à plus d'une fraction de millimètre dans le tissu, le dommage est confiné au tissu pulmonaire de la zone située à proximité immédiate.

Les produits de filiation du radon émettent aussi des particules bêta et des rayons gamma de faible intensité qui pénètrent plus profondément dans les tissus pulmonaires [9]. Comme les particules bêta et les rayons gamma sont absorbés dans un grand volume du poumon (c-à-d non concentrés dans une petite zone), leur effet nocif est présumé minime.

A fin d'estimer le risque du radon, des études sur les mines d'uranium ont prouvé que a 15% des cancers des poumons sont dus au radon et à ses descendant [10]. Il est noté aussi que la cigarette peut augmenter ce risque d'un facteur 10 chez les miniers fumeurs [11]. Le tabac est considéré dans ce cas comme un agent chimique qui favorise l'action cancérogène de la radioactivité alpha. Les données actuellement disponibles tendent à prouver que la dose annuelle due au radon et ses descendant représente prés de 70% du bilan radiologique des populations a partir des sources radioactives naturelles ([12], [13]).

Les personnes exposées à des concentrations élevées du radon présentent un risque accru d'être atteintes de cancer du poumon. Le degré de risque dépend de la teneur en radon de l'air et de la durée de l'exposition. En 1987, l'OMS a reconnu le radon comme cancérigène pulmonaire. Trois seuils de toxicité ont été retenus :

• Au dessous de $400 \text{ Bq}/m^3$, la situation ne justifie pas d'actions particulières

 \bullet Entre 400 et 1000 Bq/m³, il est souhaitable d'entreprendre des actions correctrices simples.

• Au delà de $1000 \text{ Bq}/m^3$, des actions correctrices doivent être impérativement conduites.



Figure 1-6 : De la concentration de radon au risque sanitaire.

1.3.6 Principes de réduction du radon

Pour réduire les teneurs en radon dans un bâtiment, une première solution c'est l'étanchéité du sol d'un bâtiment. Ceci implique de colmater toutes les voies de passage : les fissures, les espaces autour des tuyaux, mais aussi les matériaux poreux et les sols de terre battue. Comme si les matériaux de construction est une source notable de radon, il est recommandé d'appliquer des peintures étanches permettant de réduire les émissions. L'étanchéité n'est souvent pas suffisante, surtout pour des niveaux de radon élevés, mais elle est généralement nécessaire pour conférer aux autres techniques toute leur efficacité.

On peut également diluer les concentrations de radon par des apports d'air extérieur, nettement moins chargé en radon que l'air confiné d'un bâtiment, où le radon issu du sol se concentre. Par exemple, l'aération naturelle peut être très efficace, mais difficile à maintenir pour des raisons de température ou de sécurité. Une première étape peut consister à créer des ouvertures sur au moins deux côtés au niveau du sous-sol ou le vide sanitaire du bâtiment. Dans les pièces d'habitation il importe de vérifier la présence et l'ouverture correcte des grilles d'aération.

Dans les cas plus graves, la mise en place d'un système de ventilation performant, associé à une isolation du bâtiment, permet de réduire à un niveau acceptable le taux de radon. La ventilation mécanique permet de mieux maîtriser le taux de renouvellement d'air et les dépenditions thermiques. Il faut veiller à ne pas utiliser d'extracteur d'air qui pourrait accroître le problème en accentuant la dépression de l'habitat : il faut souffler l'air extérieur vers l'intérieur. La ventilation peut être réglée afin de mettre l'habitat en légère surpression.

Une autre solution consiste à drainer le radon présent dans le sol vers l'extérieur de l'habitation : il s'agit de creuser un puisard sous les fondations et de le relier à un tuyau équipé d'un ventilateur qui va permettre d'extraire l'air chargé de radon et de le rejeter à l'extérieur, au niveau du toit. Ce dispositif est souvent présenté comme le plus efficace pour les niveaux de radon les plus élevés. Il agit doublement en retirant le radon avant qu'il ne s'infiltre et en créant une zone de dépression, ce qui stoppe la remontée du gaz vers les pièces intérieures.

1.3.7 Techniques de mesure du radon et l'uranium

Dans la littérature, plusieurs méthodes actives et passives ont été développées pour mesurer les concentrations volumiques du radon et de ses descendants :

• Méthode passive : DSTN (LR115 et CR39),

• Méthode active : chambre d'ionisation impulsionnelle (AlphaGUARD), détecteurs à semi-conducteur (GeLi, Si).

Les DSTN sont des plastiques, sélectionnés pour leur sensibilité aux particules alpha. Un simple traitement alcalin permet d'agrandir, de visualiser, donc de compter les traces obtenues [8].

Chapitre 2

Principes de détection des rayonnements et caractéristiques des détecteurs associés

La détection des particules subatomiques impliquées dans la physique nucléaire est basée plutôt sur leurs interactions avec la matière, ou en général une partie de l'énergie d'une particule déposée signalant sa présence.

les moyens de détection de ces particule sont les détecteurs qui ont vraiment joués un rôle déterminant dans le développement de la physique nucléaires et des particules.

Le principe de détection est de mesurer la perte d énergie dans une interaction entre la particule et le milieu de détection.

Dans cette partie nous allons parler sur les rayonnements et leurs voies d'interaction avec la matière, avec les détecteurs associés à la détection de ces rayonnements ou particules.

2.1 Classification des rayonnements

On peut définir un rayonnement comme un mode de propagation de l'énergie dans l'espace, sous forme de particules ou de photons. Les rayonnements ne peuvent être caractérisés et détectés qu'à travers leurs interactions avec la matière dans laquelle ils se propagent. Ils peuvent céder au milieu traversé, une partie ou la totalité de leur énergie. Sauf pour l'effet photoélectrique toute l'énergie n'est pas déposée sur une cible unique, des phénomènes d'excitation de la matière ont lieu et conduisent à une perte d'énergie incidente. Le milieu absorbant subit donc des modifications dues à l'absorption des rayonnements. On peut classer les rayonnements en deux catégories selon leur nature et selon leurs effets sur la matière. La figure ci-dessous résume les différents types de rayonnements.

On peut classer les rayonnements selon leur mode d'interaction avec la matière en deux catégories :



Figure (2.1): Classification des rayonnements.

2.1.1 Les rayonnements ionisants

dont l'énergie est suffisante pour arracher un électron aux atomes du milieu absorbant et les transformer en ions positifs. L'atome le plus facilement ionisable est le potassium, avec une énergie d'ionisation de 4, 3 eV. L'énergie de liaison des électrons les moins liés des atomes de la matière vivante (H, C, N, O) est 12, 4 eV. Tout rayonnement d'une longueur d'onde inférieure à 288 nm peut donc être considéré comme ionisant

Les rayonnements ionisants sont constitués, soit d'ondes électromagnétiques, soit de particules massives. Ces rayonnements peuvent être, selon leur nature, directement ou indirectement ionisants.

Les rayonnements directement ionisants

sont des particules chargées qui délivrent leur énergie directement à la matière, par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant avec les atomes du milieu. Les transferts d'énergie dépendent des masses des particules en mouvement et il y a lieu de distinguer les particules chargées lourdes (proton, deuton, alpha, ions lourds) des électrons.

Les rayonnements indirectement ionisants

électriquement neutres, sont susceptibles de transférer une fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées. Ce sont ensuite ces particules secondaires qui ionisent le milieu. Dans ce cas, l'ionisation se fait en deux étapes.

Les rayonnements électromagnétiques $(X \text{ et } \gamma)$ et les neutrons entrent dans cette catégorie, mais leurs modes d'interaction sont différents.

L'étude quantitative de l'action des rayonnements ionisants entre dans le domaine de la radioprotection et de la dosimétrie. Elle est fondée sur la mesure de l'ionisation que ces rayonnements produisent dans le milieu traversé, par le biais de l'exposition, soit par la mesure de l'énergie qu'ils communiquent à la matière en la traversant soit par la dose absorbée. Si les rayonnements ionisants cèdent, en totalité ou en partie, leur énergie à la matière traversée, cette dernière subit en retour des modifications physiques, chimiques et thermiques.

2.1.2 Les rayonnements non ionisants

Un rayonnement non-ionisant désigne un type de rayonnement pour lequel l'énergie électromagnétique transportée par chaque quantum est insuffisante pour provoquer l'ionisation d'atomes ou de molécules. Ces radiations peuvent cependant avoir suffisamment d'énergie pour provoquer le passage d'un électron sur un niveau d'énergie plus élevé. Certains de ces rayonnements peuvent avoir des effets biologiques.

Parmi les rayonnements non-ionisants, on compte les rayonnements du proche ultraviolet, la lumière visible, l'infrarouge, les micro-ondes, les ondes radio et les champs statiques.

2.2 Interaction des particules chargées avec la matière

Lors de leur passage dans la matière, les particules chargées perdent leur énergie par collisions inélastiques et élastiques avec les électrons et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur. La perte d'énergie totale est la somme de ces deux contributions : pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire [14].

Le premier processus est l'effet principal responsable de la perte d'énergie des particules chargées lourdes. Dans ce type de collisions, l'énergie est transférée de la particule à l'atome en produisant une ionisation ou une excitation de l'atome. La quantité d'énergie transférée lors de chaque collision est une très faible portion de l'énergie cinétique de la particule incidente. Cependant 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 figure 2-2 représente les pouvoirs d'arrêt électronique et nucléaire pour des particules alpha [15].



Figure (2.2): Pouvoir d'arrêt électronique et nucléaire des particules α dans l'air.

2.2.1 Transfert linéique d'énergie (TLE)

En traversant la matière, les particules chargées perdent leur énergie selon différents types d'interactions : les interactions élastiques et inélastiques se font avec les électrons orbitaux et les noyaux atomiques du milieu ralentisseur.

Pour étudier le ralentissement des particules chargées, on introduit la notion de Transfert Linéique d'Energie (TLE) qui représente la perte d'énergie par unité de longueur de trajectoire des particules incidentes consécutivement à leurs chocs avec les électrons. Son expression en mécanique relativiste, est donnée par la formule de Bethe-Bloch [16] :

$$TLE = \left|\frac{dE}{dx}\right| = nZ \frac{z^2 e^4}{8\pi\varepsilon_0 m_e c^2 \beta^2} \left[\frac{1}{2}\ln\frac{2m_0 c^2 \beta^2 \gamma^2 T_{\max}}{I^2} - \beta^2 - \frac{\delta}{2}\right]$$
(2.1)

n : nombre des noyaux cibles par unité de volume de numéro atomique Z,

Z et β sont respectivement la charge et la vitesse réduite du projectile,

 m_0 et e : masse au repos et charge de l'électron,

 ε_0 : permittivité du vide : 8,854.10⁻¹⁰ F.cm⁻¹,

 γ : correction relativiste : $1/(1-\beta^2)^{1/2}$,

 T_{max} : énergie cinétique maximale transférée à un électron libre,

 δ : correction due à l'effet de densité,

 ${\cal I}$: la valeur moyenne du potentiel tenant compte de l'ionisation et de l'excitation des atomes.

ralentisseurs. Il est donné par la formule semi empirique (en eV) :

$$I = 9, 1\left(1 + 1, 9Z^{\frac{2}{3}}\right) \tag{2.2}$$

Notons que la particule chargée peut s'approprier un ou deux électrons au cours de son ralentissement. Dans la formule (2.1) la charge est alors remplacée par la charge effective Z^* . Cette charge effective est calculée par la relation empirique [17]:

$$Z^* = Z \left[1 - \exp\left(-\frac{125\beta}{Z^{\frac{2}{3}}}\right) \right]$$
(2.3)

Pour un milieu composé de N éléments, la loi de Bragg permet de calculer le TEL dans ces milieux :

$$\left(\frac{dE}{dx}\right)_{compos\acute{e}} = \sum_{i=1}^{4} m_i \left(\frac{dE}{dx}\right)_i \tag{2.4}$$

Avec $\left(\frac{dE}{dx}\right)_i$ est le pouvoir d'arrêt de l'élément *i* de fraction massique m_i .

A partir de cette étude, on peut aussi montrer que la perte d'énergie en fonction de la distance de pénétration d'une particule dans la matière. Ce type de courbe est connu sous le nom de courbe de Bragg. Etant donné que la perte d'énergie en fonction de l'énergie cinétique, la particule ne perdra pas la même quantité d'énergie à chaque étape de son parcours. Elle est beaucoup plus ionisante vers la fin de sa trajectoire. Ce comportement est particulièrement utilisé dans les applications médicales où l'on désire donner une grande dose de radiation à une certaine distance de la surface. Bien que les effets biologiques varient d'un rayonnement à un autre, en règle générale, l'effet d'une particule chargée croît proportionnellement au TLE [18].



Figure 2-3: Variation du TLE en fonction de la vitesse de l'ion incident.

2.2.2 Perte d'énergie des particules α

Pour le cas des particules α de vitesse V_1 , émises durant la désintégration des noyaux et d'énergie comprise entre 2 et 10 MeV, la perte d'énergie se réduit à :

$$TLE = \frac{16\pi e^4}{m_e V_1^2} NZ \left[\log \frac{2m_e V_1^2}{I} - \frac{C_K}{Z} \right]$$
(2.5)

Cette expression est valable si les trois conditions suivantes sont réunies :

• Il n'y a pas de capture ou de perte d'électrons pendant le passage de la particule,

• Le terme $\frac{Z_1e^2}{m_eV_1^2}$ est assez petit pour que la diffusion nucléaire et le rayonnement de freinage puissent être négligés,

• Il n'y a pas de polarisation du milieu traversé.

Cette formule donne de bons résultats pour l'évaluation des pertes d'énergie par unité de longueur lorsque l'énergie est supérieure à 1 MeV/u.m.a. Cependant, lorsque la vitesse de la particule devient très faible devant la vitesse de l'électron orbital, par exemple en fin de parcours, la perte d'énergie par interaction dite nucléaire n'est plus négligeable.

2.2.3 Parcours des particules chargées

Le parcours d'une particule chargée dans un matériau donné est le trajet nécessaire pour que cette particule perde complètement son énergie cinétique. Considérons un faisceau de particules chargées initialement monocinétiques d'énergie E_0 qui pénètre dans un matériau absorbant. Chaque particule incidente a un parcours individuel. Les parcours individuels diffèrent et fluctuent autour d'un parcours moyen \overline{R} , qui est défini par la relation :

$$\overline{R} = \int_0^{\overline{R}} dr \tag{2.6}$$

Puisque l'énergie incidente de la particule et l'épaisseur du matériau cible sont interdépendantes, alors on peut les interchanger dans l'équation 2-6 ; on aura donc :

$$\overline{R} = \int_{E_0}^0 \frac{dr}{dE} dE = \int_0^{E_0} \left(-\frac{dE}{dr} \right)^{-1} dE = \int_0^{E_0} \frac{1}{TLE} dE$$
(2.7)

 \overline{R} s'exprime en cm.

La distribution des parcours individuels autour de \overline{R} pour des particules de même énergie cinétique est due aux variations statistiques du nombre total de paires d'ions formées : c'est le phénomène de straggling.

Dans les figures ci-dessous on donne les parcours moyens des particules α dans l'air et dans le polyéthylène [15].



Figure (2.4): Parcours des particules α dans le polyéthylène.



Figure (2.5): Parcours des particules α dans l'air

La perte d'énergie dans la traversée d'une épaisseur Δx calculée à partir de la formule (2-1), simplifiée dans le cas non relativiste, est une valeur moyenne. Pour chaque particule prise individuellement, on observe des fluctuations autour de cette valeur moyenne, car statistiquement ces particules n'auront pas subi le même nombre

de collisions durant leur parcours. Il en résulte que pour une perte d'énergie donnée, le parcours fluctue lui aussi autour d'une valeur moyenne. Ces fluctuations sont habituellement appelées « straggling » énergique [19].

2.3 Interactions photon-matière

Le terme « photon » s'applique aux rayonnements électromagnétiques émis soit dans les transitions nucléaires « rayons γ », soit dans les transitions atomiques « rayons X ». Lors de la traversée d'un milieu matériel quelconque, tout photon a une certaine probabilité d'interagir avec ce milieu. Cette interaction peut être classée selon :

• La nature d'interaction : photon/électron ou photon/noyau,

• Le type de l'événement produit : l'absorption, la diffusion ou la production des paires.

D'autres processus d'interaction moins importants peuvent se produire avec un photon, en l'occurrence la diffusion Rayleigh avec un électron lié, la diffusion Thomson avec un électron libre ou la diffusion Delbruck avec le champ Coulombien du noyau[20].

Dans les trois principaux processus (Figure 2.6), il y a toujours émission d'électrons. Le ralentissement de ces électrons le long de leur parcours à travers la matière se traduit par la création de paires de charges électron-trou ou électron-ion. C'est la détection de ces charges qui permet de remonter à l'énergie du photon impliqué dans l'interaction.



Figure (2.6): Pricipaux processus d'interaction photon-matière.

2.3.1 La diffusion Rayleigh

Lorsque le photon d'énergie E=hv rencontre un atome dans un milieu donné, il va interagir avec lui sans aucun transfert d'énergie, mais seulement avec un changement dans la direction du photon incident avec un angle θ , comme il est illustré dans la figure ci-dessous.



Figure (2.7): La diffusion Rayleigh.

2.3.2 Effet photoélectrique

Lors de cette interaction, le photon incident est complètement absorbé en cédant toute son énergie à un électron de l'atome cible (figure 2-6) ; c'est tout l'atome qui participe à l'interaction. Un électron isolé ne peut pas interagir de cette façon. L'énergie du photon incident E est converti en énergie de liaison Ui, en énergie cinétique du photoélectron Ee et en énergie de recul de l'atome $E_r : E=U_i + E_e + E_r$. Pour qu'il y ait ionisation, il faut que l'énergie du photon incident soit supérieure à l'énergie de liaison de l'électron U_i .

La figure2-8 représente la variation de U_i en fonction du numéro atomique Z pour les différentes couches atomiques. La masse du noyau étant de plusieurs milliers de fois supérieure à celle de l'électron, l'énergie de recul de l'atome Er est donc négligeable par rapport à celle emportée par le photo-électron. La direction du photo-électron est liée à la direction et à l'énergie du photon incident. Plus les électrons sont liés à l'atome, plus ils ont une section efficace grande d'être éjectés lors de l'interaction. L'atome ionisé a une énergie d'excitation égale à Ui qui va être dispersée sous forme de fluorescence ou par éjection d'un électron Auger. Le processus photoélectrique est d'autant plus important que le numéro atomique (Z) du milieu est élevé et l'énergie du photon est faible.



Figure 2-8: Energie d'ionisation en fonction du numéro atomique Z pour les différentes couches atomiques K, Let M [21]

La probabilité d'interaction d'un photon avec un atome est donnée par la relation suivante [22]:

$$\sigma_{ph} = \frac{8\pi r_0^2}{3} \frac{Z^2}{(137)^4} 4\sqrt{2} \left(\alpha\right)^{-\frac{7}{2}}$$
(2.8)

Avec

$$\alpha = \frac{E_{\gamma}}{E_0}$$

 E_{γ} : énergie du photon incident,

 E_0 : énergie d'électron au repos,

 r_0 : rayon classique d'électron (2,818 fm),

Z : numéro atomique de la cible.

D'une façon générale, et quelle que soit la couche :

$$\sigma_{ph} \propto \frac{Z^{4,35}}{E_{\gamma}^3}$$



Figure (2.9): Section efficace atomique de l'effet photoélectrique pour trois matériaux (C, Fe et U) [23].

2.3.3 Effet Compton

Ce processus consiste en une diffusion élastique d'un photon incident sur un électron faiblement lié. En effet, un photon incident éjecte un électron du cortège électronique de l'atome en lui cédant une partie de son énergie.

Pour la suite de cette étude on considère que l'électron est libre. Cette approximation se justifie par le fait que l'énergie de liaison des électrons est faible devant l'énergie des photons incidents. L'étude cinématique de cette diffusion, nous donne la relation qui lie l'angle θ de diffusion de l'électron à l'énergie du photon incident E_{γ} et du photon Compton \acute{E}_{γ} :

$$\frac{\dot{E}_{\gamma}}{E_{\gamma}} = \frac{1}{1 + \alpha \left(1 - \cos\theta\right)} \tag{2.9}$$

Klein et Nishina (1928) [24] ont donné une formulation de la section efficace adaptée à la plupart des applications courantes. Cette formulation permet de déterminer la section efficace différentielle par angle solide en fonction de l'énergie E_{γ} du photon incident et de l'angle de diffusion θ .

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} r_0^2 \left\{ \frac{1}{\left[1 + \alpha \left(1 - \cos \theta\right)\right]^2} \right\}$$
(2.10)

2. Principes de détection des rayonnements et caractéristiques des détecteurs associés

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2} r_0^2 \left\{ \frac{1}{\left[1 + \alpha \left(1 - \cos \theta\right)\right]^2} \left[1 + \cos^2 \theta + \frac{\alpha^2 \left(1 - \cos \theta\right)^2}{1 + \alpha \left(1 + \cos \theta\right)} \right] \right\}$$
(2.11)

L'énergie de l'électron de recul est rapidement perdue dans la matière tandis que le photon Compton a une probabilité importante de s'échapper. Ainsi, dans la gamme d'énergie où l'effet Compton est prédominant, la distribution d'énergie (2-9) va être une composante importante du spectre d'énergie déposée dans le milieu absorbant.

La probabilité pour qu'un photon γ interagisse avec un atome est donc proportionnelle au nombre de charge Z du milieu. Pour un matériau donné, la probabilité qu'un photon interagisse est proportionnelle à la densité d'électrons. Or le nombre de masse atomique A est approximativement proportionnel au nombre atomique Z. L'effet Compton, pour une énergie donnée, est donc approximativement proportionnel à la densité du matériau.

$$\sigma_c = 2\pi r_0^2 Z^2 \frac{\alpha^2 + 2\alpha}{2\alpha^3} \ln(1 + 2\alpha) + \frac{\alpha^3 + 9\alpha^2 + 8\alpha + 3}{\alpha^2 (1 + 2\alpha)}$$
(2.12)

2.3.4 Effet de création de paires

L'effet de production de paire ou matérialisation consiste à la création d'une paire électron-positron ($\gamma \rightarrow e^+, e^-$) lorsqu'un photon γ pénètre dans le champ coulombien d'un noyau.

Le photon disparaît et son énergie est utilisée pour créer la paire et communiquer de l'énergie cinétique à l'électron et au positron, d'après la conservation de l'énergie :

$$E = E_{-} + E_{+} + 2E_{0} \tag{2.13}$$

 E_{-} et E_{+} sont respectivement les énergies cinétiques de l'électron et du positron.

L'équation (2-13) montre que la création de paire n'est possible que si l'énergie du photon et au moins égale à l'énergie nécessaire pour créer la paire. Le phénomène de matérialisation ne peut se produire dans le vide parce que les principes de conservation de l'énergie et de l'impulsion ne seraient pas alors simultanément satisfaits. Elle devient possible au voisinage d'un noyau qui, lors du processus, récupère de l'impulsion et, une quantité faible de l'énergie. L'effet de production de paire donne lieu à l'émission de rayonnements secondaires. En effet, en fin de ralentissement, le positron s'annihile avec un électron au repos du milieu, en émettant deux photons d'annihilation d'énergie 511 keV. La section efficace pour la création de paire est :

$$\sigma_{pair} = \begin{cases} \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \log \left(\frac{2E_{\gamma}}{E_0} \right) - \frac{218}{27} \right] & si \ 2E_0 \prec E_{\gamma} \prec \frac{E_0}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \\ \alpha r_0^2 Z^2 \left[\frac{28}{9} \log \left(183Z^{-\frac{1}{3}} \right) - \frac{2}{27} \right] & si \ E_{\gamma} \succ \frac{E_0}{\alpha} Z^{-\frac{1}{3}} \end{cases}$$
(2.14)

2.3.5 Sections efficaces d'interactions

A chacun de ces modes d'interaction est associé une section efficace, qui dépend de l'énergie des photons incidents et du numéro atomique Z du matériau traversé [22]. L'importance relative de ces trois modes en fonction de E et Z est représentée sur la figure 2-10, avec σ_{ph} , σ_c et σ_{pair} les sections efficaces des effets photoélectrique, Comptons et création de paires respectivement.

Ainsi, l'interaction des photons γ avec la matière a comme section efficace la somme des trois sections efficaces des différents processus. Elle est donnée par :



$$\sigma_{totale} = \sigma_{ph} + \sigma_c + \sigma_{pair} \tag{2.15}$$

Figure (2.10): Importance relative des modes d'interaction des rayonnements γ avec la matière.

2.3.6 Atténuation et absorption des photons

L'atténuation et l'absorption des photons s'expriment par le coefficient d'atténuation qui présente la fraction des photons incidents interagissant par unité de longueur. Ce coefficient tient compte des sections efficaces des trois processus de pertes d'énergie. Ainsi, pour N_0 photons incidents, le nombre N de photons qui traversent une épaisseur x de matériau sans interagir est donnée par la relation suivante :

$$N(x) = N_0 e^{-\mu x} \tag{2.16}$$

avec μ coefficient d'atténuation total défini par :

$$\mu = n\sigma_{totale} \tag{2.17}$$

où $n=N_A\rho/M$, N_A nombre d'Avogadro, ρ la densité et M la masse molaire.

Pour des photons traversant un milieu donné, les trois effets peuvent se produire, mais avec diverses probabilités selon l'énergie des photons et la nature du milieu. Schématiquement, l'effet photoélectrique est nettement prépondérant pour des photons γ de basse énergie ($E \leq 100 keV$)et la création de paire est l'effet principal pour les photons de haute énergie ($E \geq quelques$ MeV). L'effet Compton se produit principalement dans le domaine d'énergie intermédiaire. Les limites entre ces domaines énergétiques dépendent des propriétés du matériau traversé (A, Z).

On peut définir, pour chacune des interactions mentionnées, un coefficient d'atténuation particulier; la somme de ces coefficients est égale au coefficient global. De même, il existe un coefficient d'absorption correspondant à l'intensité absorbée par la matière traversée et un coefficient de diffusion correspondant à l'intensité diffusée sans absorption (effet Compton).

Pour des photons γ dont l'énergie est inferieure à quelques centaines de keV, les matériaux peuvent être divisés en deux familles, selon l'importance relative des réactions produites par effet Compton par rapport à l'effet photoélectrique. Dans les matériaux diffusifs, l'effet Compton l'emporte sur l'effet photoélectrique. Il s'agit d'éléments simples dont les numéros atomiques sont petits (éléments dits légers), comme l'aluminium (Z=13), et de matériaux absorbants, ceux où les réactions par effet photoélectrique dominent celles par effet Compton, sont au contraire des éléments simples à Z élèves, comme le plomb (Z=82), et des cristaux incorporant des éléments lourds tels l'iode (Z=53) ou le bismuth (Z=83).

Les contributions respectives de l'effet photoélectrique et de l'effet Compton au coefficient massique d'atténuation sont représentées sur la figure 2-11 dans le cas du matériau à la fois peu diffusif et absorbant qu'est le germanium (Ge, Z=32). En raison de leur transparence, les matériaux diffusifs sont rarement choisis comme milieux détecteurs. Ils n'en jouent pas moins un rôle déterminant dans la mise en œuvre des télescopes gamma, dans la mesure où ils constituent la grande majorité de l'environnement immédiat des surfaces sensibles. Ils sont ainsi en mesure de diffuser vers les milieux détecteurs, les photons ayant traversé sans interagir les couches détectrices, contribuant ainsi à accroitre un bruit de fond déjà préoccupant. Que les matériaux soient diffusifs ou absorbants, on constate (Fig. 2.11) que l'effet Compton l'emporte largement dans la bande spectrale qui s'étend de quelques centaines de keV à quelques MeV. Comme dans le cas de l'absorption photoélectrique, un photon est également émis par

recombinaison de l'atome. Mais, dans la mesure où la diffusion Compton intervient sans distinction sur toutes les couches de l'atome, ce photon est généralement de basse énergie et a donc moins de chance de s'échapper du milieu détecteur.



Figure (2.11): Coéfficient d'atténuation linéaire caractérisant la proportion des différents processus d'interaction des photons avec le germanium.

2.4 Détection des rayonnements

Le principe physique de la détection des rayonnements est basé sur leur interaction avec la matière constituant le détecteur. On classe ces détecteurs en deux grandes catégories :

• Les détecteurs visuels pour lesquels une interaction conduit directement à la création de traces individuelles observables par perte d'énergie et par changement local de l'organisation structurelle du matériau.

• Les détecteurs électroniques qui exploitent l'ionisation ou l'excitation atomique lors de l'interaction avec la matière permettant l'analyse électronique de l'énergie des rayonnements.

Dans ce travail nos détecteurs sont à la base des semi-conducteurs au germanium hyper-pur et des polycarbonates (Détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN)).

2.4.1 Détecteurs semi-conducteurs

Dans les années 50, on a observé la détection de particules α au moyen d'une jonction dans un cristal de germanium. Dès lors, de nombreux laboratoires ont consacré leurs recherches au développement de détecteurs semi-conducteurs. Ceux-ci sont environ mille fois plus denses que les détecteurs à gaz. Ils ont un excellent avantage pour la détection des particules de haute énergie. S'il faut 20 eV au minimum d'énergie déposée pour créer un photon dans un scintillateur et environ 30 eV dans un gaz pour créer une paire électron-ion, environ 3 eV sont suffisants pour créer une paire électron-trou dans un semi-conducteur. Les semi-conducteurs sont donc des détecteurs sensibles pour la spectrométrie. Ainsi, si avec un scintillateur en NaI(Tl) on obtient une résolution de 6% à 660 eV, la résolution avec du germanium (refroidi) atteint le keV, soit moins de 0, 2%. Cette différence est due à l'erreur statistique relativement plus faible sur le plus grand nombre d'ionisations produites.

Il existe plus d'une vingtaine de semi-conducteurs susceptibles d'être utilisés pour la détection des particules ionisantes. Les plus couramment utilisés sont le silicium (Si), le germanium (Ge), la famille du tellurure de cadmium de $(CdTe \ et \ Cd_x Zn_{1-x}Te$ alias CZT) et l'arsénure de gallium (GaAs). On trouve aussi quelques détecteurs à base d'iodure de mercure (HgI_2) . Les potentialités de ces matériaux pour la détection des photons γ dépendent des paramètres suivants (Tableau 2-1) : le numéro atomique, l'énergie d'activation intrinsèque (la largeur de la bande interdite, ou gap), l'énergie de création de paires électron-trou, la mobilité et le temps de vie des porteurs, la résistivité. Ces paramètres vont influer sur les propriétés du substrat : la résistivité (R), l'efficacité et le temps de collecte, et enfin l'efficacité de détection [23].

Semi-conducteur	Ζ	$\rho(m gcm^3)$	GAP(eV)	$E_{paire}(MeV)$	$\mu_{e_{-}}$	μ_{t_+}	R à $25^{\circ}\mathrm{C}$
Ge	32	5.33	0.67	2.96	3900	1900	50
Si	14	2.33	1.12	3.62	1400	480	106
CdTe	48/52	6.2	1.44	4.43	1100	100	109
CdZnTe	48/30/52	6	1.5	5	1350	120	1011
HgI_2	80/53	6.4	2.13	4.2	100	4	1013
GaAs	31/33	5.32	1.43	4.2	8000	400	107

Tableau (2.1): Caractéristiques des principaux semi-conducteurs.

 μ éxprimé en $(c m^2 / V.s)$ et R en $(\Omega.c m)$.

Afin de mettre en évidence les effets qui influent sur la résistivité, nous allons survoler rapidement la physique des semi-conducteurs. Dans la structure cristalline

2. Principes de détection des rayonnements et caractéristiques des détecteurs associés

d'un semi-conducteur, les niveaux d'énergie se composent d'une succession de bandes d'énergies interdites et de bandes d'énergies permises totalement peuplées à l'exception de la dernière, la bande de conduction, dont le remplissage partiel varie en fonction de la nature du semi-conducteur et de la température. La bande de valence (l'avantdernière bande permise) et la bande de conduction sont séparées par une bande interdite dont la hauteur corresponde au gap. Au zéro absolue (0° K), la bande de valence est complètement peuplée, le semi-conducteur est isolant. Lorsque la température croît, les électrons sont excités par agitation thermique et peuvent ainsi acquérir une énergie suffisante pour sauter la bande interdite. Ils passent alors de la bande de valence à la bande de conduction, il y a génération d'électrons libres et de trous libres qui sont les porteurs de charge responsables de la conduction. La probabilité par unité de temps de la génération d'une paire électron-trou dépend de l'agitation thermique, donc de la température. Elle est donnée par :

$$p(T) \propto T^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{gap}}{2kT}\right)$$
 (2.18)

Avec $T(^{\circ}K)$, E le gap de la bande interdite et k la constante de Boltzmann. Un matériau de faible gap, comme le germanium, a une faible résistivité à température ambiante. Les fluctuations du courant d'obscurité sont alors trop importantes pour qu'il soit utilisé comme détecteur sans être refroidi.

Le modèle des bandes décrit précédemment correspond au cas idéal d'un matériau intrinsèque et pur. Théoriquement on peut décrire les propriétés d'un tel matériau, mais en pratique, elles dépendent fortement des défauts présents dans le matériau. Ces défauts, de structures ou d'impuretés, engendrent la création d'états d'énergie discrets localisés dans la bande interdite. Ces niveaux forment des pièges qui agissent sur le processus de transport des charges. Ces défauts peuvent être introduits volontairement dans le cas d'un dopage [26].

Si on introduit des niveaux accepteurs proches de la bande de valence (semiconducteur dopé P) à l'aide d'atomes trivalents en position interstitielle dans le réseau, les porteurs majoritaires sont alors les trous. On peut aussi introduire des niveaux donneurs près de la bande de conduction à l'aide d'atomes pentavalents (semi-conducteur dopé N) : les porteurs majoritaires sont alors les électrons. Un dopage revient en fait à créer un semi-conducteur avec un gap réduit. Le dopage permet de créer des structures à jonction couramment utilisées pour les détecteurs de rayonnements. Ces structures P-N polarisées en inverse présentent une haute résistivité apparente, supérieure à celle du matériau de base. D'autres structures permettent d'obtenir des effets similaires : détecteur semi-conducteur à barrière de surface, à jonction diffusée. La résistivité d'un semi-conducteur va donc être liée à son gap, à la structure employée et à la température. Une forte résistivité est recherchée pour les détecteurs de rayonnements afin

2. Principes de détection des rayonnements et caractéristiques des détecteurs associés

de minimiser le bruit lié aux fluctuations du courant d'obscurité.

Le CdTe, le GaAs, le Si et le HgI_2 ont un gap suffisant pour être utilisés à température ambiante. Le Si de plus faible gap est alors généralement utilisé dans une structure à jonction (P - N, P - I - N, ...). Pour les particules chargées, α , p, deutons et ion-lourds, on utilise des détecteurs au silicium, de volume assez faible, ils ne dépassent pas $5cm^3$ (quelques mm d'épaisseur suffisant pour arrêter des particules de plusieurs dizaines de MeV).On peut également les utiliser pour les rayons X dans le domaine de 1 à 50 keV ou les rayons γ de basse énergie jusqu'à 100keV.

Nous avons vu avant que la section efficace de l'effet photoélectrique dépendait de Z^2 , alors la détection des rayonnements γ s'effectue avec une meilleure efficacité si l'on utilise l'homologue supérieur du Si qui est le Germanium (Z=34, au lieu de Z=14 pour Si).



Figure (2.12): Schéma d'un détecteur Ge(Hp) de rayonnement γ .

Ces détecteurs sont très efficaces pour la détection des rayonnements électromagnétiques de faible énergie, ils sont maintenus dans une enceinte sous vide de 10^{-3} Pa et refroidis à la température de d'azote liquide (77 K) pour diminuer le bruit thermique (passage des électrons à travers du gap). Leur volume peut aller jusqu'à $200cm^3$, la haute tension de polarisation de ces détecteurs va de 1500 à 4000V.

2.4.2 Détecteur Solide de Traces Nucléaires

Les particules chargées peuvent être également détectées par l'observation de traces nucléaires, zone de dommage créée le long des trajectoires de ces particules dans le matériau détecteur. Toutefois, l'enregistrement du passage d'une particule chargée dans un solide n'est pas réalisé d'une façon systématique pour toute particule et pour tous les matériaux. Seuls certains Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) mémorisent le passage de particules chargées, lorsque ses propriétés sont en corrélation avec les seuils de détection.
Historiquement, Price et Walker en 1962 [27], [28], [29] ont mis au point la technique d'observation en microscopie optique de traces individuelles des fragments de fission créés en profondeur dans les milieux condensés. Ils ont montré qu'une attaque chimique différentielle par un acide ou par une base s'effectue préférentiellement le long de la trajectoire des particules dans le détecteur. Ces traitements élargissent les traces jusqu'à atteindre 0, 5micron et les rendent ainsi observables au microscope. Les premiers travaux de Fleischer, Price et Walker en 1975 [30] ont donné une description des mécanismes du développement chimique et de la formation des traces. Ils ont ainsi étendu le champ d'application de l'étude des traces nucléaires à des domaines aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, la physique nucléaire, l'étude des météorites ou des échantillons lunaires [31]. On distingue deux grandes différences entre les traces latentes présentes dans deux classes majeures de solides qui sont, soit des minéraux (verre, mica, apatite, quartz, feldspath, ...) soit des matériaux organiques polymériques tels que les dérivés cellulosiques (nitrate de cellulose, di-acétate et triacétate de cellulose) et les polycarbonates (CR39, Lexan, ...).

Tous les résultats (nombre de traces, diamètres, bruit de fond, ...) d'un DSTN dépendent principalement des conditions de traitement et de comptage. Dans tous les cas, une densité de traces bien homogène est le signe d'une bonne maîtrise de la mesure et il s'en suit une moindre fluctuation des résultats. Dans la pratique, on distingue deux sortes de DSTN.

DSTN massifs

Historiquement de très nombreux DSTN massifs ont été utilisés. Les plus répandus aujourd'hui sont des polycarbonates (CR39, Makrofol, ...). Il s'agit de feuilles en Plexiglas, plus ou moins souples, de l'ordre du millimètre d'épaisseur. Les traces ressemblent à des cônes de différentes tailles dont les vertex se situent dans la masse du détecteur. Le DSTN massif utilisé au cours de notre étude est le CR39. C'est un polymère de carbonate d'allyldiglycol ($C_{12}H_{18}O_7$) [32] transparent, amorphe et sensible aux particules ionisantes. Il se présente souvent sous forme de feuilles de 0,5 mm d'épaisseur pour les applications nucléaires. Ce polymère est également utilisé pour la fabrication des verres de lunettes. Un développement chimique est nécessaire à la révélation des traces produites par le passage des particules α . Ce détecteur a l'avantage d'enregistrer des particules α ayant un angle d'incidence allant jusqu'à 75° et une énergie comprise entre 0 et 20 MeV. La figure2-13 montre des traces alpha révélées dans le CR39; les formes plus ou moins elliptiques de ces traces sont représentatives des différents angles et énergies des particules incidentes. Ces conditions d'attaque chimique se résument à une durée de 6 heures dans une solution de NaOH de molarité 7M à une température de 70 °C.



Figure (2.13): Traces de particules α révélées dans les DSTN CR39

DSTN en couches minces

Il s'agit du film Kodak type LR115. Il est constitué d'une couche de nitrocellulose $(C_6H_8N_2O_9)$, fortement teintée en rouge, de $12\mu m$ d'épaisseur moyenne, sur un support inerte de $100\mu m$ en polyester. Le nitrate de cellulose est parmi les DSTN les plus sensibles aux particules alpha. Il peut enregistrer des particules α d'énergie comprise entre 1, 4 et 4, 7 MeV avec un angle d'incidence allant jusqu'à 50°[33]. L'insensibilité du LR115 aux rayonnements électromagnétiques et aux électrons présente un grand intérêt pour son utilisation en champs mixte de rayonnements. Sa révélation chimique se fait pendant 2 heures dans une solution de NaOH de molarité 2, 5M à une température de 60°C.

Après traitement chimique, chaque impact de particule α laisse un micro-trou dans la couche rouge, de 1 à $15\mu m$ de diamètre. La figure2-14 montre des traces alpha révélées dans le LR115.



Figure (2.14): Traces de particules α révélées dans les DSTN LR115

Critères d'enregistrement des traces

La visualisation d'une trace latente ne se réalise qu'à travers des conditions de plusieurs paramètres. Chaque type de détecteur est caractérisé par une perte d'énergie critique

à la surface du détecteur en dessous de laquelle la détection des traces n'est pas observable [30]. Ce critère a été rejeté car on a remarqué que les ions de fer relativistes n'étaient pas détectés dans le nitrate de cellulose tandis que le TEL est supérieur à $(dE/dx)_c$ qui est la perte d'énergie critique. Cela a prouvé que l'enregistrement des traces dépend non seulement de la nature du matériau mais aussi de la nature des particules incidentes. L'apparition d'une trace dépend des trois paramètres complémentaires suivants :

- L'angle d'incidence,
- L'énergie de la particule incidente,
- Les conditions de développement, comme nous l'avons signalé auparavant.

Formation des traces latentes

Durant les cinq dernières décennies, plusieurs travaux [34] ont été effectués afin d'expliquer et de comprendre la distribution spatiale du dépôt d'énergie et les modèles de formation d'une trace dans un DSTN.

Parmi ces modèles nous citons plus particulièrement le modèle de la pointe thermique et le modèle d'explosion ionique. Ces modèles indiquent que la zone entourant l'axe de la trajectoire de la particule subit un maximum de dégâts créés par l'ionisation primaire. Les électrons issus de cette ionisation créent à leur tour des dommages le long de leur parcours. La trace est constituée de deux zones de perturbations :

• Une zone cylindrique de rayon r_0 dite cœur de la trace, dans laquelle les perturbations sont créées par le passage de la particule chargée (ionisation primaire),

• Une zone appelée halo de dommages, où les perturbations créées au coeur de la trace se propagent par les électrons issus de l'ionisation primaire.

La figure 2-15 propose la structure d'une trace latente dans le cas d'un ion d'Ar de 7 MeV/uma dans l'acétate de cellulose. La trace latente n'est donc que la mémorisation d'une perturbation créée par la particule chargée dans le matériau.



Figure (2.15): Structure d'une trace latente dans l'acétate de cellulose.

L'ensemble des dégâts, dans un polymère peut provoquer une réduction de la masse molaire, une augmentation du nombre de chaînes par cassure induite, une modification de la masse volumique et la formation de nouvelles espèces chimiques. Ces modifications structurales rendent possible la mise en évidence des traces par développement chimique.

En fait, la structure d'une trace révélée est complexe et difficile à quantifier même au microscope électronique. Elle peut être assimilée à un volume de révolution autour d'un axe de rayon r compris entre 1 à 150 angströms et de 105 angströms de longueur pour les fragments de fissions dans les polymères. Pour les particules α , les dimensions radiales sont de l'ordre de l'angströms, nous pouvons donc assimiler la trace latente à un segment puisque le diamètre de la trace est petit par rapport à sa longueur.

Révélation des traces latentes

L'attaque du matériau irradié se fait par un réactif chimique tel qu'un acide ou une base et s'effectue particulièrement au niveau des dommages qui constituent l'environnement immédiat de la trajectoire géométrie de la particule incidente. En immergeant le matériau irradie dans un réactif chimique convenable, ce dernier diffuse dans les zones endommagées pendant un temps dit « temps d'induction de l'attaque ». Ensuite; le réactif pénètre dans les zones endommagées et crée un canal le long de la trajectoire de la particule voir figure 2-16. En même temps, les surfaces non irradiées du détecteur sont aussi attaquées mais avec un taux moindre. En érodant l'intérieur du canal, le réactif permet d'élargir ses dimensions pour donner une trace visible. Les traces latentes sont ainsi agrandies et deviennent visibles au microscope optique ordinaire.

Le développement chimique est caractérisé par trois facteurs essentiels:

- normalité de la solution de développement,
- température du bain de développement ;
- temps de développement.



Figure 2-16: Formation de la trace latente durant la révélation chimique [10].

C'est selon les conditions spécifiques des expériences et aussi selon les informations qu'on veut tirer de ces expériences qu'on fixe ces paramètres.

Géométries des traces enregistrées dans les DSTN

La forme des traces révélées est régie par l'effet de la dissolution chimique du matériau le long du canal selon les deux paramètres suivants:

• La vitesse d'attaque surfacique chimique V_B du détecteur vierge, qui correspond à la vitesse avec laquelle l'épaisseur du détecteur a été décapé lorsqu'il est soumis à un traitement chimique,

• La vitesse d'attaque chimique V_T propre aux traces latentes, qui traduit l'érosion interne de la trace.



Figure (2.17): Géométrie d'une trace à incidence normale pour le modèle à VG et VT constantes.



Figure (2.18): Géométrie d'une trace à incidence oblique pour le modèle à VG et VT constantes.

Plusieurs études ont été effectuées sur ces deux paramètres qui permettent d'interpréter l'évolution de la forme des traces dans le DSTN [35], [36], [37]. Les figures 2-17 et 2-18 donnent respectivement les deux types d'incidence normale et inclinée des particules alpha incidentes.

Angle critique d'enregistrement

Quand un DSTN est irradié par des particules chargées, les traces dues aux particules, d'incidence inclinés ne sont pas toutes observables après révélation chimique (une partie du film est décapée) même si les dégâts créés sont importants. Ceci est lié à la contrainte de l'angle critique d'enregistrement θ_c [38], [39], [40], engendré par la trajectoire de la particule incidente et la normale à la surface du détecteur (figure 2-19).



Figure (2.19): Conditions d'existence d'une trace révélée.

Comme il a été cité précédemment, l'apparition d'une trace révélée résulte des effets simultanés de la dissolution du détecteur non irradié caractérisée par la vitesse V_G et de celle des dégâts le long de la trace caractérisée par V_T . Ce qui se traduit par la condition suivante :

$$\cos\theta \int_{0}^{t} V_T dt \succ V_G t \tag{2.19}$$

d'où :

$$\theta_c = \arccos \frac{V_G t}{\int\limits_0^t V_T dt}$$
(2.20)

D'après cette expression, l'angle critique dépend de plusieurs paramètres tels que la nature du DSTN, l'énergie de la particule chargée incidente et le temps de développement t.

Efficacité de détection

Pour chaque type de détecteur pour des conditions de développement données, l'efficacité de détection dépend de la variation de l'angle critique d'enregistrement θ_c en fonction de l'énergie.

Utilisation des DSTN

Les Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) sont utilisés depuis les années 1960 dans des secteurs aussi variés que la géologie, la biologie, l'archéologie, science des matériaux, analyse élémentaire, géochronologie, cosmologie, la physique nucléaire, l'environnement, les prévisions volcaniques et sismiques par le suivi de l'émanation du radon ([31], [41]).

• Détection de fond librement des fragments de fission dans les doses élevées de des particules chargées par lumière, des rayons gamma et des neutrons.

• L'étude du type rare de produits chargés lourds de réaction émis dans des réactions nucléaires

• Employés dans la mesure de la constante d'affaiblissement spontanée de fission d'un certain nombre de nuclides lourds, et d'autres paramètres de grande importance en science nucléaire.

• Mesure le dosage d'uranium et l'émanation du radon.

Chapitre 3

Techniques et procédures expérimentales

Dans la littérature, plusieurs techniques ont été développées pour mesurer les concentrations volumiques d'uranium, du radon et de leurs descendants : détecteurs à semiconducteur (GeLi, Si), détecteurs solides de traces nucléaires (DSTN), photostimulables, chambres d'ionisation, Dans cette étude nous avons utilisé deux techniques

- Méthode passive : DSTN (LR115 et CR39),
- La spectrométrie gamma.

:

Le principe physique de fonctionnement des DSTN et des semi-conducteurs utilisés en spectrométrie gamma est déjà présenté au chapitre 2. Dans la suite de ce chapitre nous présenterons un aperçu général sur les échantillons à analyser, les techniques d'analyse et les différentes étapes d'élaboration du travail expérimental.

3.1 Aperçu général sur les échantillons

Les échantillons utilisés dans ce travail sont les matériaux de construction d'origine de l'est algérien et on a six :

Ciment (origine de Constantine) Sable (origine de Constantine) Brique (origine de Constantine) Faïence (origine de Constantine) Plâtre (origine de Mila) Marbre (origine de Skikda)

3.1.1 ciment

Le ciment (du latin caementum, signifiant moellon, pierre de construction) est une matière pulvérulente, formant avec l'eau ou avec une solution saline une pâte plastique liante, capable d'agglomérer, en durcissant, des substances variées. Il désigne également, dans un sens plus large, tout matériau interposé entre deux corps durs pour les lier[42].

La composition de base des ciments actuels est un mélange de silicates et d'aluminates de calcium, résultant de la combinaison de la chaux (CaO)avec de la silice (SiO_2) , de l'alumine (Al_2O_3) , et de l'oxyde de fer (Fe_2O_3) . La densité du ciment est environ $de3.1 \text{ g/cm}^3$

3.1.2 Sable

Sable est un matériau qui compose principalement à des grains de quartz (plus que 93%) avec l'aluminine et des silicates. La taille des grains du sable est entre0.06 et2 mm. Le sable est très utilisé dans les constructions surtout un mélange avec le ciment. La formule chimique du sable est la combinaison de silice (SiO_2) , avec l'alumine (Al_2O_3) , et (K_2O) .Ladensitédusableestenvironde 2 g/cm^3

3.1.3 Brique

Brique (Clay bricks) est un matériau argileux qui est composé principalement de l'argile avec d'autres composants (Kaolin). Dans l'Asie (Middle East) il existe jusqu'à aujourd'hui les brique de 4000 année passée [43]. Alors les briques sont utilisées dès longtemps. La formule chimique des briques est différente selon la région de l'argile utilisé dans la préparation et nous supposons que la formule est la suivante : (Al_2O_3) , $(Fe_2O_3), (CaO), (MgO), (K_2O)$ et (Na_2O) .La densité est environ de 1.85 g/cm^3

3.1.4 Faïence

Faïence ou il s'appelle céramique est un mot dérivé du mot grec « Kramos » qui se signifie substance brûlée [44].Céramique est définie comme un art et science de faire et d'employer les articles pleins qui sont produits par les matériaux terreux non métalliques et inorganiques (un élément argileux). Faïence est un mélange de quartz $(SiO_2Al_2O_3Fe_2O_3)$, craie $(CaCO_2)$, talc $(Mg_3Si_4O_{10}(OH)_2)$ et feldspath(Ba, Ca, Na, K, NH4) $(Al, B, Si)_4O_8$. La densité de la faïence est de l'ordre de 1.8 g/cm^3

3.1.5 Plâtre

Le plâtre (Gypsium) est un matériau de construction ignifuge. Il est utilisé sous forme de pâte constituée d'un mélange de poudre et d'eau, ou préparé sous forme de plaques. La matière première est, à l'origine, un sulfate de calcium semi hydraté. Maintenant, de nombreux adjuvants entrent dans la composition du plâtre. Alors la formule chimique du plâtre est ($CaSO_4$)avec la densité est de l'ordre de 2.79 g/ cm^3

3.1.6 Marbre

Le mot vient du latin marmor [45]. Le marbre est une roche métamorphique dérivée du calcaire, existant dans une grande diversité de coloris, pouvant présenter des veines, ou marbrures (veines et coloris sont dus à des inclusions d'oxydes métalliques, le plus souvent). Certains types de marbres portent des noms particuliers, par exemple le cipolin ou la griotte. Certains marbres, comme le vert antique, composés de calcaire et de serpentines, sont des ophicalces . Alors la formule chimique du marbre est ($CaCO_3$) et la densité est environ 2.7 et 2.8 g/ cm^3

3.2 Techniques d'analyse

Dans ce travail nous avons utilisé deux techniques pour déterminer la radioactivité dans des matériaux de construction, Premièrement, il s'agit d'utiliser des détecteurs solides de traces nucléaires de type (LR115 et CR39), en se basant sur la connaissance du pouvoir d'arrêt des particules alpha dans les échantillons étudiés et de l'efficacité de détection du détecteur. La seconde est la technique de spectrométrie γ qui représente une méthode d'analyse assez rapide qui ne nécessite pas de préparations particulières des échantillons et à l'avantage de ne pas requérir une séparation chimique. Elle est praticable sur des échantillons de dimensions relativement grandes et la détection se fait dans des conditions normales.

3.3 Procédures expérimentales

3.3.1 Analyse par les DSTN

Nous avons utilisé dans ce travail deux types des DSTN de très grande sensibilité à l'énergie des particules alpha (LR115 et CR39). La procédure expérimentale est faite selon le schéma ci-dessous (Figure 3-1). L'irradiation a été faite pendant 30 jours par contact autoradiographie, cette méthode consiste à mettre en contact direct environ de 20 g d'échantillon avec des détecteurs de $1, 5 * 1, 5cm^2$ dans des enceintes cylin-

drique de 3cm de diamètre et de 10cm de hauteur. Les échantillons des matériaux de construction à analyser sont sous forme des poudres.



Figure 3-1 : Schéma de mesure du dosage de l'uranium et l'émanation du radon.

Procédures de développement de DSTN

Afin de révéler les traces produites par les particules incidentes, les DSTN doivent être développés chimiquement avant toute analyse. Les solutions de développement chimique est l'hydroxyde de sodium(NaOH). La révélation des traces dans les DSTN constitue l'étape essentielle de leurs exploitations.

Développement chimique

Le développement chimique des DSTN constitue l'étape la plus fastidieuse dans l'utilisation des détecteurs. Il s'agit d'une étape importante, puisque sans développement les images délivrées par le système de lecture ne sont pas exploitables.

Matériel de développement

Pour le développement chimique le matériel consiste de :

• Trois ensembles de révélation résistants aux produits chimiques qui peuvent être chauffés à une température constante et qui munis d'agitateur magnétique.

• Des carrousels qui permettent le traitement simultanément de plusieurs dosimètres et surtout qui permettent de changer les dosimètres entre les bains pendant de les trois étapes de développement (prédéveloppement, développement et nettoyage) sans savoir les manipuler individuellement.



Figure 3-1: Carrousel et bain de développement

Le protocole de développement que nous avons utilisé est constitué des trois étapes qui sont le prédéveloppement, le développement et le rinçage.

Le prédéveloppement

Le prédéveloppement des détecteurs est réalisé dans un bain composé d'un mélange de solutions par volume (60% de Méthanol CH_3OH et 40% de soude NaOH à 6.25 $mol.l^{-1}$) à une température de70±1 °C pendant une durée d'une heure. L'intérêt de ce prédéveloppement est d'éliminer la plupart des traces parasites en supprimant 50 à 70 µm de chaque coté du détecteur. Cette pellicule comprend notamment les traces laissées par les particules α et les défauts de fabrication. Les détecteurs, ayant subi ce prédéveloppement, sont immédiatement plongés dans le bain de développement.

Le développement

Le développement est la partie la plus longue du traitement. Les détecteurs sont plongés dans un bain de Hydroxyde de sodium (NaOH) à $6.25mol.l^{-1}$ à 70 °C pendant une durée de 6 heures. L'attaque chimique se fait préférentiellement autour des traces laissées par le passage des protons de recul puisque le matériau est fragilisé à cet endroit.

Nettoyage des détecteurs

Après avoir accompli le processus de développement, il faut neutraliser la soude restant à la surface des détecteurs et à l'intérieur des traces. Pour le faire les détecteurs sont transférés dans le bain contenant de l'acide chlorhydrique HCl à $0.1mol.l^{-1}$ pendant 15 minutes. Ensuite pour éliminer toute trace qui pourrait être due au séchage les dosimètres sont plongés dans un bain remplit de l'eau distillée avec quelques gouttes de détergent pendant 15 minutes à 60 °C, puis dans un bain de liquide de rinçage pour lave-vaisselle pendant 15 minutes à température ambiante. Notons que durant toutes les étapes de développement chimiques un agitateur magnétique de 6cm a été utilisé. Ces rinçages effectués, il ne reste plus qu'à laisser sécher les dosimètres à l'air durant une dizaine d'heures avant leur lecture à l'abri de la poussière.

Après la lecture, les détecteurs doivent être stockés dans un containeur propre et étanche. Si l'un des détecteurs donne des lectures élevées de façon inattendue, cela peut être dû à des taches ou marques causées par l'évaporation de l'eau durant le séchage. Ces effets sont plus communément observés sur les bords des détecteurs. Un tel détecteur doit être essuyé avec un chiffon trempé dans du méthanol puis relu. Dans le tableau 3-1, on résume les conditions de traitement chimique utilisées dans notre travail :

Nature du détecteur	Solution aqueuse $(NaOH)$	t	Т
LR115	$2.5\mathrm{mol}$	$2\mathrm{h}$	60 °C
CR39	7 mol	$6 \mathrm{h}$	70 °C

Tableau (3-1) : Conditions de développement chimique des LR115 et CR 39

Avec: t est le temps de développement,

T est la température du bain de développement.

Lecture des traces

Après le traitement chimique, le dénombrement des traces sur chaque détecteur a été déterminé à l'aide d'un microscope optique ordinaire. Alors le dénombrement est fait seulement à l'aide d'oïl de l'expérimentateur.



Figure 3-2 :Le Moyen de lecture des traces

3.3.2 Calcul de la densité des traces

La densité des traces est le nombre de traces enregistrées sur le détecteur DSTN divisé par la surface de ce dernier et par le temps d'irradiation. Donc la densité des traces (D) dans un DSTN de surface (S) exposé pendant un temps (t)est donnée par la relation suivante :

$$D = \frac{N}{S * t} \tag{3.1}$$

Avec: N est le nombre des traces des particules alpha émises.

3.3.3 Calcul numérique de l'efficacité de détection

Pour chaque sorte de détecteur et conditions de développement, l'efficacité de détection dépend de la variation de l'angle critique d'enregistrement θ_C en fonction de l'énergie [46], [47]. Dans ce paragraphe, nous étudions une méthode de calcul de l'efficacité de détection des DSTN de CR-39 et de LR115 en fonction de θ_C . La densité de trace Dobservée dans le DSTN par unité de temps et l'activité volumique A du radionucléide considéré sont liées par :

$$D = \varepsilon(\theta_C, E_\alpha) A \tag{3.2}$$

Où $\varepsilon(\theta_C, E_\alpha)$ est l'efficacité de détection en fonction de l'angle critique d'enregistrement θ_C et de l'énergie de la particule alpha E_α [48] :

$$\varepsilon(\theta_C, E_\alpha) = \frac{1}{2} \int_{R_\alpha(E_{\min})}^{R_\alpha(E_{\max})} \int_0^{\theta_C} \sin\theta \cos\theta dR_\alpha d\theta$$
(3.3)

 E_{min} et E_{max} sont les limites des énergies détectées, $R_{\alpha}(E_{\min})$ et $R_{\alpha}(E_{\max})$ sont les parcours des particules α correspondant à ces énergies.

Pour calculer l'efficacité de détection $\varepsilon(\theta_C, E_\alpha)$, nous avons utilisé une méthode de calculs numériques basés sur l'intégration de l'équation 3-3 en fonction de l'angle θ_C et du parcours R_α . Ces calculs ont été appliqués aux LR115 et aux CR-39 respectivement sensibles aux particules α dont les énergies sont comprises entre 1, 4 et 4, 7 MeV et 0, 5 et 20 MeV et dont l'angle critique θ_C est conditionné par les relations :

$$\theta_C^{LR} = \sum_{i=0}^3 c_i E_\alpha^i \tag{3.4}$$

$$\theta_C^{CR} = \sum_{i=0}^3 d_i E^i_\alpha \tag{3.5}$$

Avec les coefficients c_i et d_i donnés par :

 $c_0 = -108.22, c_1 = 126.13, c_2 = -30.69, c_3 = 2.15$ pour le LR115,

 $d_0=38.81, d_1=26.78, d_2=-7.28, d_3=0.47$ pour le CR39.

Pour les deux détecteurs, le maximum de θ_C est observé pour des énergies α de l'ordre de 3 MeV et il vaut respectivement environ 50° et 70° pour le LR115 et le CR39 [49].

La relation entre le parcours R_{α} des particules α dans l'échantillon et leurs énergies E_{α} peut être décrite par l'équation :

$$R_{\alpha} = aE_{\alpha}^2 + bE_{\alpha} + c \tag{3.6}$$

Où a, b et c sont les coefficients déterminés par l'ajustement des points énergieparcours (E_{α}, R_{α}) [50] dans l'échantillon à analyser. R_{α} est exprimé en m.

Après l'intégration numérique de $\varepsilon(\theta_C, E_\alpha)$, l'équation 3-3 devient respectivement pour le LR115 et pour le CR-39 [48], [49] :

$$D^{LR} = \varepsilon_{LR} A = (2.518a + 0.413b)A \tag{3.7}$$

$$D^{CR} = \varepsilon_{CR} A = (5.578a + 0.904b)A \tag{3.8}$$

 D^{LR} et D^{CR} sont respectivement les densités de traces dans LR115 et CR-39 exprimées en nombre de traces par m².s, A est l'activité de l'échantillon en Bq/m³.

Les valeurs a, b et c sont calculées à partir des parcours fournis par le logiciel SRIM 2008 et dans les calculs de ce logiciel nous avons supposé les formules chimiques et les densités des échantillons citées dans les généralités sur les matériaux de construction mentionées précédemment.

3.3.4 Le programme SRIM: Stopping and Range of ions in matter

Le programme SRIM existe depuis 1985. C'est un groupe de programmes qui calcule le pouvoir d'arrêt et le parcours de particules chargées dans la matière de 10 eV à 2 GeV/nucléon. Les collisions sont traitées en prenant en compte les potentiels coulombiens du projectile et de la cible ainsi que leur modification par les nuages électroniques et leurs interactions. L'état de charge du projectile dans la cible utilise le principe de la charge effective, ce qui implique une dépendance de la charge par rapport à la vitesse et une influence de l'ensemble des électrons de la cible. La cible peut contenir jusqu'à 8 couches composées de 12 éléments. Une bibliothèque de matériaux composés tel que le mylar ou le plexiglas est accessible avec notamment les corrections à apporter à l'additivité des pouvoirs d'arrêt. La cible peut être solide ou gazeuse mais seuls certains éléments sont traités différemment suivant qu'ils sont en phase solide ou gazeuse (H, He, N, O, Ne, Ar, Kr et Xe). Par exemple dans un mélange d'hélium/isobutane, l'hélium et l'hydrogène sont en phase gazeuse alors que le carbone est considéré comme solide. Les pouvoirs d'arrêt nucléaires et électroniques sont traités d'une manière indépendante avec une perte d'énergie continue pour les interactions électroniques et discrète pour les collisions nucléaires. La sortie du programme consiste en une table dont un exemple est donné dans ce paragraphe. Les pouvoirs d'arrêt sont donnés en fonction de l'énergie avec la distance parcourue et les diffusions longitudinales et transverse. Le trajet est précis à quelques pourcents alors que les diffusions sont précises à 20%.

Les parcours des particules alphas dans les échantillons en fonction de leurs énergies incidentes sont tracées par Origine 8 et montrés ci-dessous



Figure 3-3: Parcours des particules α dans les matériaux de construction en fonction de leurs énergies.

Les coefficients a, b et c sont donnés dans le tableau 3-2, ainsi que les valeurs de l'efficacité de détection dans le LR115 et CR39, pour les énergies des particules α dans

Echantillons	<i>a</i> (m)	b(m)	c(m)	ε_{LR}	ε_{CR}
Air	$0.762 * 10^{-3}$	$2.577 * 10^{-3}$	$1.921 * 10^{-3}$	$2.983 * 10^{-3}$	$6.580 * 10^{-3}$
Ciment	$0.37 * 10^{-6}$	$2.15 * 10^{-6}$	$0.87 * 10^{-6}$	$1.92 * 10^{-6}$	$4.00 * 10^{-6}$
Sable	$0.59 * 10^{-6}$	$3.32 * 10^{-6}$	$1.19 * 10^{-6}$	$2.86 * 10^{-6}$	$6.28 * 10^{-6}$
Brique	$0.5 * 10^{-6}$	$2.5 * 10^{-6}$	$1.24 * 10^{-6}$	$2.29 * 10^{-6}$	$5.04 * 10^{-6}$
Faïence	$0.35 * 10^{-6}$	$3.48 * 10^{-6}$	$0.7 * 10^{-6}$	$2.32 * 10^{-6}$	$5.08 * 10^{-6}$
Plâtre	$0.33 * 10^{-6}$	$1.78 * 10^{-6}$	$0.66 * 10^{-6}$	$1.57 * 10^{-6}$	$3.44 * 10^{-6}$
Marbre	$0.35 * 10^{-6}$	$1.77 * 10^{-6}$	$0.91 * 10^{-6}$	$1.61 * 10^{-6}$	$3.54 * 10^{-6}$

l'air et dans les six échantillons:

Tableau (3-2) : Coefficients a , b et c déterminés à partir des parcours fournis par le logiciel

SRIM et efficacité de détection ε de LR115 et CR39.

 ε est exprimé en $(tr/m^2.s)(Bqm^{-3})^{-1}$.

3.3.5 Analyse par spectrométrie gamma

Pour évaluer les concentrations de ^{238}U déterminées par les DSTN, nous les avons mesurées par spectrométrie γ .

La spectrométrie gamma est une discipline qui permet d'une part la mesure des énergies de photons émis par une source radioactive et d'autre part le compatge du nombre de ces photons pendant une durée donnée. Ces deux mesures permettent l'identification et la quantification des radionucléides émetteurs des rayonnements gamma.

Cette méthode d'analyse est assez rapide, ne nécessite pas de préparations particulières des échantillons et a l'avantage de ne pas requérir une séparation chimique. Elle est praticable sur des échantillons de dimensions relativement grandes et la détection se fait dans des conditions normales. Dans cette partie, nous présentons le mode opérai de la mesure de l'activité des radioéléments dans des échantillons de matériaux de construction par cette méthode.

Le dispositif expérimental utilisé pour la détection des rayonnements gamma est une chaîne spectrométrique constituée d'un détecteur Germanium de haute pureté auquel est associe un ensemble de modules électroniques permettant la mise en forme des impulsions, l'amplification et la mise en mémoire des impulsions délivrées lors du passage de ces rayonnements à travers le détecteur. Les analyses des spectres γ ont été effectuées à l'aide d'un logiciel de dépouillement automatique *Génie* – 2000 permettant de donner directement l'activité massique de chaque radioélément présent dans l'échantillon. Il est noté que, afin de réduire le bruit de fond de la radioactivité ambiante au cours de l'acquisition, le détecteur est placé dans un château de plomb.

Détecteurs Ge de haute pureté HPGe

Le détecteur germanium a été le premier a être utilisé pour faire la détection des rayonnements gamma avec une bonne résolution. C'était d'ailleurs les détecteurs Germanium Lithium (GeLi). On est ensuite passé à la technologie des germanium hyper purs. Le silicium est assez cher, même par rapport à un Germanium et il demande un refroidissement plus complexe que les détecteurs germaniums (qui en ont besoin aussi) pour réduire le "bruit de fond".

La chaine de mesure

La chaîne électronique associée permet de réaliser le traitement du signal. Elle se compose de préamplificateur, de l'amplificateur, du convertisseur analogique-numérique et de l'analyseur multi-canal. La fonction de ce dernier est d'additionner les impulsions (précédemment codées) de même amplitude dans un canal. On obtient ainsi un spectre qui représente le nombre de coups reçus en fonction de l'énergie. Enfin, un ordinateur et un logiciel, le « Genie 2000 », permettent de recueillir le spectre en temps réel.



Fig. 3.4: Schéma du dispositif de spéctrometrie gamma

Calcul des activités

Pour tous les pics, l'activité volumique de chaque radionucléide i présent dans l'échantillon est calculée à partir de la relation définie dans la norme suivante :

$$A_i = \frac{R_{n,i} \cdot f_{d,i}}{\varepsilon_i \cdot V} \tag{3.9}$$

Où :

 $R_{n,i}$: est le taux de comptage net du pic du radioélément i (coups/s),

 ε_i : est l'efficacité du comptage pour le radioélément *i* à l'énergie *E*,

V: est le volume de l'échantillon,

 $f_{d,i}$: est le facteur de correction permettant de corriger la décroissance radioactive du

radionucléide i entre le moment de l'échantillonnage et celui du mesurage. Dans le logiciel d'exploitation Genie 2000, l'activité volumique est :

$$A_i = \frac{S}{\varepsilon.I.T_1.K_c.K_w.V} \tag{3.10}$$

Avec:

:

S: l'aire nette du pic,

V: le volume,

 ε_i : l'efficacité de détection pour le radionucléide i à l'énergie E,

I: le pourcentage d'embranchement,

 T_1 : temps actif de l'acquisition du pic,

 K_c : le coefficient de correction de la décroissance de l'échantillon durant l'acquisition

$$K_c = \frac{1 - \exp(-\lambda t_m)}{\lambda t_m} \tag{3.11}$$

 t_m : est le temps réel de comptage,

 K_w : est le facteur de correction de la décroissance du radionucléide entre l'échantillonnage et l'acquisition ($K_w = \exp(-\lambda t_w)$ avec t_w , temps écoulé entre l'échantillonnage et l'acquisition).

Analyse des échantillons

Nous avons analysé les échantillons de 4 matériaux de construction ,avec une géométrie BEGE SG50 où les masses sont: 61.8 g de brique, 55 g de faïence, 57.7 g du plâtre et 67.4 g pour le marbre. Les échantillons sont mis dans un conteneur de forme cylindrique de 50 ml. Pour tenir en compte du bruit de fond au cours du comptage, la même capsule, remplie d'eau déminéralisée, a été analysée dans les mêmes conditions de volume et géométrie.

Limite de détection

La limite de détection est une propriété inhérente de la mesure, c'est la plus petite activité et au delà la concentration du radionuclide ne peut pas être déterminée.

Éch	^{40}K	^{232}Th	^{226}Ra	^{235}U
Brique	LD = 36	LD = 3.2	LD = 18	LD = 7
Faïence	LD = 36	LD = 7.2	LD = 21	LD = 7
Plâtre	LD = 15	LD = 3	LD = 8	LD = 5
Marbre	LD = 27	LD = 4	LD = 14	LD = 8

Dans notre travail les limites de détection pour chaque échantillon sont données au tableau suivant:

Tableau (3-2) : Limites de détection pour les échantillons.

Les résultats LD sont éxprimés en (${\rm Bq.\,kg^{-1}})$

Chapitre 4

Résultats et discussions

Dans ce travail nous avons utilisé deux techniques de mesure pour déterminer la radioactivité dans certains matériaux de construction. Comme première technique nous avons utilisé les détecteurs solides de traces nucléaires dont nous avons choisi deux types de détecteurs: LR115 et CR39 pour déterminer la teneur en uranium et l'émanation du radon.

La deuxième technique est la spectrométrie gamma qu'elle nous permet de déterminer les radionucléides présents dans nos échantillons.

4.1 Présentation des résultats

4.1.1 Les détecteurs solides de traces nucléaires

Après la révélation des traces enregistrées sur les DSTN par un développement chimique, nous avons utilisé un microscope optique comme un moyen de lecture et de comptage. Pour la statistique nous avons fait deux mesures pour chaque échantillon selon les moyens disponibles avec une soustraction du bruit de font qu'il est mesuré par les deux types du détecteurs non irradiés et développés dans les même conditions que les autres détecteurs.

Mesure de la teneur en uranium

Le nombre de traces enregistrées sur les DSTN nous permet de calculer la densité selon l'équation (3-1)

Pour trouver l'activité spécifique nous avons utilisé les formules (3-7, 3-8) en utilisant les efficacités de détection pour chaque type de détecteurs. Dans les calculs, la contribution de la famille du thorium est négligée. Dans ce cas, l'activité de ²³⁸U est estimée à partir de la densité de traces lues par le rapport suivant ($A_U = A/8$). Les résultats obtenus par LR115 et CR39 sont regroupés dans les deux tableaux ci-dessous respectivement :

Échantillon	Nombre de traces (N)	densité $(traces/m^2.s)$	Activité (Bq/kg)
Ciment (Ech1)	14.5	1.78 ± 0.30	37 ± 7
Ciment (Ech2)	13.1	1.61 ± 0.28	34 ± 6
Sable (Ech1)	11.5	1.41 ± 0.26	31 ± 6
Sable (Ech2)	8.8	1.08 ± 0.23	24 ± 5
Faïence (Ech1)	30.2	3.71 ± 0.49	111 ± 16
Faïence (Ech2)	31.1	3.82 ± 0.50	114 ± 16
Brique (Ech1)	19.9	2.44 ± 0.37	72 ± 12
Brique (Ech2)	20.2	2.48 ± 0.37	73 ± 12
Plâtre (Ech1)	5.5	0.67 ± 0.19	19 ± 6
Plâtre (Ech2)	3.1	0.38 ± 0.16	11 ± 5
Marbre (Ech1)	3.2	0.39 ± 0.16	11 ± 5
Marbre (Ech2)	2.4	0.29 ± 0.15	8 ± 4

Tableau 4-1: Les activités spécifiques de U dans les échantillons en utilis ant LR115.

Échantillon	Nombre de traces (N)	densité $(traces/m^2.s)$	Activité (Bq/kg)
Ciment (Ech1)	68	8.35 ± 0.96	84 ± 10
Ciment (Ech2)	—	—	_
Sable (Ech1)	45	5.53 ± 0.67	55 ± 7
Sable (Ech2)	52	6.39 ± 0.76	64 ± 8
Faïence (Ech1)	85	10.44 ± 1.17	143 ± 17
Faïence (Ech2)	88	10.81 ± 1.20	148 ± 17
Brique (Ech1)	71	8.72 ± 0.99	117 ± 14
Brique (Ech2)	66	8.11 ± 0.93	109 ± 13
Plâtre (Ech1)	31	3.81 ± 0.50	50 ± 10
Plâtre (Ech2)	27	3.32 ± 0.45	43 ± 8
Marbre (Ech1)	-	_	-
Marbre (Ech2)	_	_	—

Tableau 4-2: Les activités spécifiques de U dans les échantillons en utilisant CR39.

Dans le deuxième tableau qui correspond les résultats obtenus par CR39, les cellules vides sont des résultats perdus ou endommagés.

Mesure de l'émanation du radon

Après la soustraction du bruit de fond par les valeurs mesurées, les densités de traces du radon sont déterminées en utilisant la relation (3-1). Les activités volumiques sont déterminées selon les formules (3-7, 3-8) avec les efficacités de détection sont prises pour l'air. Les résultats obtenus sont regroupés dans les tableaux suivants :

Échantillon	Nombre de traces (N)	densité $(traces/m^2.s)$	Activité (Bq/ m^3)
Ciment (Ech1)	3.5	0.43 ± 0.16	144 ± 55
Ciment (Ech2)	5.5	0.67 ± 0.19	225 ± 66
Sable (Ech1)	3.4	0.42 ± 0.16	141 ± 55
Sable (Ech2)	2.1	0.26 ± 0.15	87 ± 51
Faïence (Ech1)	6.5	0.80 ± 0.2	268 ± 69
Faïence (Ech2)	4.6	0.56 ± 0.18	188 ± 62
Brique (Ech1)	10.5	1.29 ± 0.25	432 ± 87
Brique (Ech2)	11.8	1.45 ± 0.27	486 ± 95
Plâtre (Ech1)	2	0.25 ± 0.15	84 ± 51
Plâtre (Ech2)	1	0.12 ± 0.13	40 ± 44
Marbre (Ech1)	1	0.12 ± 0.13	40 ± 44
Marbre (Ech2)	1.1	0.13 ± 0.13	44 ± 44

Tableau 4-3: Les activités volumiques du Rn dans les échantillons en utilisant LR 115.

Échantillon	Nombre de traces (N)	densité $(traces/m^2.s)$	Activité (Bq/ m^3)
Ciment (Ech1)	—	—	—
Ciment (Ech2)	—	—	_
Sable (Ech1)	24	2.95 ± 0.42	448 ± 65
Sable (Ech2)	-	-	_
Faïence (Ech1)	14	1.72 ± 0.29	261 ± 45
Faïence (Ech2)	—	—	—
Brique (Ech1)	45	5.53 ± 0.67	840 ± 105
Brique (Ech2)	—	—	_
Plâtre (Ech1)	12	1.47 ± 0.27	223 ± 42
Plâtre (Ech2)	11	1.35 ± 0.26	205 ± 41
Marbre (Ech1)	8	0.98 ± 0.22	149 ± 34
Marbre (Ech2)	_	_	_

Tableau4-4: Les activités volumiques du Rn dans les échantillons en utilisant CR39.

Les cellules vides sont des résultats perdus ou endommagés.

4.1.2 Analyse par spectrométrie gamma

L'analyse des spectres

L'analyse d'un échantillon par spectrométrie gamma donne naissance à un spectre : histogramme du nombre de photons détectés en fonction de leurs énergies. Le spectre est caractérisé par la présence de plusieurs pics. Chaque pic correspond à une énergie de rayonnement gamma issu de la désexcitation des noyaux instables ou atomes radioactifs présents dans l'échantillon.

L'analyse des spectres se fait à partir aux caractéres des pics:

 Par la position des pics (ou énergie des photons), on entreprend l'analyse qualitative du spectre : on détermine les radioéléments présents dans l'échantillon analysé.

– Par la surface des pics (ou nombre d'impulsions), on entreprend l'analyse quantitative du spectre : on détermine pour chaque radioélément (présent dans l'échantillon) son activité en becquerels ramenée à la masse ou au volume de l'échantillon (Bq/kg ou Bq/m^3).

Le dépouillement du spectre obtenu à partir les échantillons des matériaux de construction est réalisé à l'aide du logiciel Génie – 2000, qui calcule l'activité massique de chaque radioélément dans l'échantillon. Les familles radioactives naturelles auxquelles on s'intéresse sont celles du ²³⁸U et ²³⁵U ainsi que ²³²Th. Les teneurs en ²³⁸U sont déterminées à partir des raies de 1001 K eV de ^{234m}Pa, descendant direct de ²³⁸U.

Analyse qualitative Le spectre gamma est un histogramme, représentant le nombre des rayons γ comptés en fonction de leurs énergies. Une fois la détection réalisée, le spectre obtenu, représente des pics des niveaux d'énergies spécifiques, de chaque décroissance radioactive enregistrée.

D'abors nous allons représenter les courbes d'étalonnage en énergie et de l'efficacité de détection du détecteur utilisé respectivement dans les figures ci-dessous tracées par Origine8:



Figure 4-1 : Courbe d'étalonnage en énergie.



Figure 4-2 : Courbe d'efficacité du détecteur à germanium hyper pur en fonction de l'énergie.

Les figures (4-3, 4-4, 4-5, et 4-6), présentent les spectres obtenus par la spectométrie γ :



Fig
4-3 : Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de la brique.



Fig
4-4 : Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon de la faï
ence.



Fig4-6: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du plâtre.



Fig4-5: Spectre des rayonnements γ émis par l'échantillon du marbre.

Analyse quantitative Les activités obtenues pour les radioéléments présentés dans les 4 échantillons analysés par la spectrométrie gamma sont regroupées dans le tableau ci-dessous:

Origine	Nucléide	$E(K \mathrm{eV})$	A_b	A_f	A_p	A_m
Famille ²³⁸ U	^{234}Th	63.3	32.12 ± 10.0	50.63 ± 12.3	_	_
^{238}U	^{226}Ra	186.2	65.23 ± 10.6	136.05 ± 15.2	_	_
^{238}U	^{214}Pb	351.9	29.29 ± 2.5	66.62 ± 3.5	2.43 ± 1.3	_
^{238}U	^{214}Bi	609.3	28.56 ± 2.1	62.99 ± 3.3	_	_
^{238}U	^{210}Pb	46.5	43.65 ± 19.7	46.33 ± 9.1	_	_
$Famille^{235}U$	^{235}U	185.7	4.09 ± 0.6	_	—	_
^{235}U	^{223}Ra	269.9	_	16.48 ± 2.8	_	_
^{235}U	^{219}Rn	271.2	_	20.90 ± 3.7	_	_
$Famille^{232}Th$	^{228}Ac	911.2	50.5 ± 3.2	50.5 ± 3.2	_	_
^{232}Th	^{224}Ra	241	47.55 ± 9.6	_	_	_
^{232}Th	^{212}Bi	727.3	55.02 ± 9.6	55.40 ± 9.5	_	_
^{232}Th	^{212}Pb	238.6	44.95 ± 6.6	45.54 ± 3.6	_	_
^{232}Th	^{208}Tl	583.2	41.93 ± 3.6	43.73 ± 3.2	—	_
Naturel	^{40}K	1460.8	560.06 ± 41.1	490.68 ± 32.2	17.08 ± 16.8	14.61 ± 9.1

Tableau4-5 : Les activités spécifiques mesurées pour les 4 échantillons des matériaux
de construction.

Acec A_b , A_f , A_p , A_m sont respectivement les activités mésurées pour les échantillons de brique, faïence, plâtre et le marbre éxprimer en Bq/kg.

4.1.3 L'évaluation des effets radiologiques

Pour évaluer les effets radiologiques de ces matériaux de construction nous allons calculer certaines valeurs :

Le radium équivalent

Le radium équivalent (Ra_{eq}) est l'indice commun exigé pour comparer les activités spécifiques des matériaux contenant différentes concentrations des échantillons qui contiennent le ²²⁶Ra, le ²³²Th et le ⁴⁰K, qui prend les risques des rayonnements liés à eux[51]. Le Ra_{eq} est défini comme :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + (10/7)A_{Th} + (10/130)A_K \tag{4.1}$$

Où A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les activités spécifiques pour ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K en Bq/kg respectivement. La même chose pour ce qui suit.

Les valeurs de Ra_{eq} doivent être inférieures à 370 Bq/kg pour une utilisatuon sûre[52].

Indice du risque externe (H_{ex})

L'indice du risque externe est défini par la relation suivante[53]:

$$H_{ex} = (A_{Ra}/370) + (A_{Th}/259) + (A_K/4810)$$
(4.2)

Indice du risque interne (H_{in})

En plus du risque externe, le radon et ses produits de courte durée sont également dangereux aux organes respiratoires. L'exposition interne au radon et à ses descendants est quantifiée par l'indice du risque interne H_{in} , qui est défini par[53]:

$$H_{in} = (A_{Ra}/185) + (A_{Th}/259) + (A_K/4810)$$
(4.3)

Indice du niveau représentatif $(I_{\gamma r})$

Afin d'examiner si les échantillons répondent à ces limites de dose critères, un indice utilisé pour estimer le niveau de risque des rayonnements γ associés aux radionucléides naturels dans les matériaux, l'indice du niveau représentatif, $I_{\gamma r}$ défini comme[54]:

$$I_{\gamma r} = (A_{Ra}/150) + (A_{Th}/100) + (A_K/1500)$$
(4.4)

Les résultats obtenus pour toutes ces valeurs sont regroupés dans le tableau cidessous où LD sont les limites de détection dont elles sont données avant:

Échan	A_{226Ra}	A_{232Th}	$A_{40}K$	Ra_{eq}	H_{ex}	H_{in}	$I_{\gamma r}$
Brique	65 ± 11	55 ± 9.6	560 ± 41	187 ± 28	0.5 ± 0.07	0.68 ± 0.1	1.36 ± 0.2
Faïence	136 ± 15	55.4 ± 9.5	491 ± 32	252 ± 31	0.7 ± 0.05	1.05 ± 0.1	1.78 ± 0.2
Plâtre	$\prec LD$	$\prec LD$	17 ± 17	-	-	-	-
Marbre	$\prec LD$	$\prec LD$	15 ± 9	_	_	_	_

Tableau 4-6: Les valeurs évaluent les éffets radiologiques.

4.1.4 Estimation des doses

Taux de la dose absorbée (ADR)

La dose absorbée est la quantité d'énergie absorbée dans un volume dV de masse. Si les nucléides radioactifs qui se produisent naturellement sont répartis uniformément dans le sol, les taux de dose absorbée externe D, dans l'air extérieur au-dessus du niveau de sol à 1 m, à la population peut être calculée à partir des activités des radionucléides terrestres selon la formule[55]:

$$ADR(nGy/h) = 0.462A_{Ba} + 0.604A_{Th} + 0.0417A_K$$
(4.5)

La dose efficace Annuelle (AED)

C'est la somme des doses équivalentes pondérées délivrées aux différents tissus et organes du corps où la dose équivalente est la dose absorbée par le tissu ou l'organe, pondérée suivant le type et l'énergie du rayonnement.

L'équation générale pour l'équivalent de dose efficace annuelle à partir des rayonnements gamma terrestres extérieurs en unités de mSv est calculée par la formule suivante[55]:

$$AED(mSv) = ADR(nGy/h) * (365.25 * 24) h*0.2 * 0.7Sv/Gy * 10^{-6}$$
(4.6)

Avec 0.2 et 0.7 sont respectivement le facteur d'occupationet le coefficient de conversion.

Equivalent de dose Annuelle des Gonades (AGDE)

Les gonades, la moelle osseuse active et les cellules de surface osseuse sont considérés comme des organes d'intérêt par l'UNSCEAR [55]. Par conséquent, AGDE (mSv/an) en raison de l'activité spécifique de ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K ont été calculés en utilisant la formule suivante:

$$AGDE = (3.09 * A_{Ba} + 4.18 * A_{Th} + 0.314 * A_K) \times 10^{-3}$$
(4.7)

Les résultats des doses calculées sont regroupés dans le tableau suivant:

Échantillon	ADR (nGy/h)	AED(mSv)	$AGDE \ (mSv)$
Brique	86.6 ± 12.6	0.11 ± 0.02	0.6 ± 0.09
Faïence	116.8 ± 14	0.14 ± 0.02	0.8 ± 0.1
Plâtre	_	_	—
Marbre	_	_	_

Tableau 4-7: Les doses dues aux échantillons.

4.2 Discussions

4.2.1 Analyse par les DSTN

Dosage en Uranium

Les résultats obtenus par les DSTN de type LR115 montre que les activités spécifiques du dosage de l'uranium par le contact autoradiographique sont en bon accord avec ceux des travaux antérieurs. La valeur moyenne a été évaluée à 35.5 ± 6.5 Bq/kg pour l'échantillon du ciment et celle de l'échantillon du sable est 27.5 ± 5.5 Bq/kg; pour l'échantillon de faïence les mesures nous donne une activité égale à 112.5 ± 16 Bq/kg; l'activité pour la brique était de 72.5 ± 12 Bq/kg; le plâtre nous donne 28 ± 14 Bq/kg, on termine par l'échantillon du marbre qui nous donne 86 ± 25 Bq/kg.

Pour les DSTN de type CR39 les valeurs des activités spécifiques obtenus sont: $84 \pm 10 \text{ Bq/kg}$ pour l'échantillon du ciment et celle de l'échantillon du sable est de $58.5 \pm 7.5 \text{ Bq/kg}$; pour l'échantillon de faïence les mesures nous donne une activité égale à $145.5 \pm 17 \text{ Bq/kg}$; la brique nous donne $113 \pm 13.5 \text{ Bq/kg}$; le plâtre nous donne $46.5 \pm 9 \text{ Bq/kg}$. Pour l'échantillon du marbre les résultats sont endommagés. Ces valeurs sont en bonne concordance avec celles trouvés dans la littérature [56].

Si on compare les activités mesurées, en utilisant les deux types de détecteurs on trouve que celles des matériaux d'origine argileux (faïence et brique) sont plus élevées que les autres.

L'émanation du radon

En utilisant DSTN LR115, nous avons mesurés des activités volumiques moyennes : $184.5 \pm 60.5 \,\text{Bq/m}^3$ pour le ciment et $114 \pm 53 \,\text{Bq/m}^3$ pour le sable; l'échantillon de faïence nous donne une activité volumique de l'émanation de radon égale à $228 \pm 65 \,\text{Bq/m}^3$; pour la brique on a trouvé $459 \pm 91 \,\text{Bq/m}^3$. Concernant l'échantillon du plâtre l'activité est de $62 \pm 47 \,\text{Bq/m}^3$, on termine par l'échantillon du marbre avec $42 \pm 44 \,\text{Bq/m}^3$.

Pour le deuxième détecteur CR39 les activités volumiques mesurées sont de:

 $448 \pm 65 \text{ Bq/m}^3$ pour le sable, $261 \pm 45 \text{ Bq/m}^3$ pour l'échantillon de la faïence, ce qui concerne la brique on trouve que l'activité est de $840 \pm 105 \text{ Bq/m}^3$, pour le platre on trouve $214 \pm 42 \text{ Bq/m}^3$, à la fin le marbre nous donne $149 \pm 34 \text{ Bq/m}^3$.

Ces valeurs sont en bon accord avec à ceux trouvées par d'autres auteurs ([57], [58] [59], [60]).

Par la comparaison de ces résultats nous observons que l'échantillon de brique est le plus émanant au radon, par contre le marbre est le moins émanant.

Nous constatons que les résultats obtenus par le détecteur CR39 sont plus grand à ceux trouvés par LR115 à la mesure des activités pour l'uranium comme pour l'émanation du radon, on peut dire alors que la sensibilité du CR39 est plus grande donc une gamme d'énergie large.

4.2.2 Analyse par spectrométrie γ

Les échantillons analysés par la spectrométrie gamma sont: brique, faïence, plâtre et le marbre

D'après l'analyse qualitative des spectres obtenus pour les deux échantillons de brique et de faïence on constate la présence des trois familles radioactives naturelles, $Uranium - 238 \ (^{234}Th, \ ^{226}Ra, \ ^{214}Pb, \ ^{214}Bi, \ ^{210}Pb); \ Uranium - 235 \ (^{235}U)$ pour la brique et ($^{223}Ra, \ ^{219}Rn$) pour la faïence; $Thorium - 232 \ (^{228}Ac, \ ^{224}Ra, \ ^{212}Bi, \ ^{212}Pb, \ ^{208}Tl)$, avec l'absence du ^{224}Ra dans la faïence. La présence de l'élément primordial le Potassium - 40 est dans les deux échantillons.

Ce qui concerne le plâtre nous constatons la présence de la famille de l'*uranium* – 238 avec l'élément ^{214}Pb et l'absence des autres familles radioactives. Pour l'échantillon du marbre aucune famille radioactive ne présente.

La présence de l'élément primordial le Potassium - 40 est dans les deux échantillons.

On constate l'absence également de tous les radioéléments naturels d'origine cosmique comme le *Béryllium* -7, le *Sodium* -22 etc.Cette absence peut être expliquée par leurs faibles concentrations dans les échantillons et leurs faibles demi-vies. Leurs gammas n'arrivent pas à émerger du bruit de fond.

C'est le même cas pour les radioéléments d'origine artificielle, où nous n'avons trouvé aucune trace de leurs pics dans les spectres, ce qui explique la non contamination des sites de prélèvement d'échantillons par des radionucléides d'origine artificielle comme le ^{137}Cs par exemple.

Concernant l'analyse quantitative, nous avons trouvé des valeurs différentes d'un échantillon à un autre. Dans le tableau ci-dessous sont données les valeurs maximales et minimales des activités pour chaque famille radioactive présente dans nos échantillons:

Éch	$A_{U_{238}}$	$A_{U_{235}}$	$A_{Th_{232}}$
Brique	$\binom{A_{\max} = 65}{A_{\min} = 4}$	$\begin{pmatrix} A_{\max} = 4 \\ A_{\min} = 0 \end{pmatrix}$	$\binom{A_{\rm max}=55}{A_{\rm min}=41}$
faience	$\binom{A_{\max}=136}{A_{\min}=46}$	$\begin{pmatrix} A_{\max} = 20\\ A_{\min} = 16 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} A_{\max} = 55\\ A_{\min} = 43 \end{pmatrix}$
platre		_	
marbre	_	_	_

Les activités sont exprimées en Bq/kg.

On constate que pour les deux échantillons de brique et de faïence les activités spécifiques des trois familles radioactives et l'élément ${}^{40}K$ sont plus élevées par rapport au plâtre et le marbre dont ces derniers nous donnent des activités très faible ou négligeable.

Les résultats trouvés sont en bon accord avec la littérature ([57], [61]).

Pour évaluer les effets radiologiques de ces échantillons nous avons calculé le Ra_{eq} dont ce dérnier doit être inférieur à 370 et les résultats obtenus sont tous inférieur à cette valeur.

En ce qui concerne les indices de risque externe les résultats sont inférieur à 1 mais pour les indices de risque interne la valeur qui correspond l'échantillon de faïence est supérieur à 1 et c'est une valeur peut poser un problème de santé.

Les valeur des doses calculées sont des valeurs en accord avec d'autres calculées dans la littérature.

Conclusion

Dans ce mémoire, le travail proposé porte sur l'étude de certains matériaux de construction prélevés de l'est Algérien. L'objectif est de déterminer qualitativement et quantitativement leur radioactivité en utilisant deux méthodes. Pour cela, nous avons utilisé deux technique d'analyse, la première est basée sur le calcul des probabilités d'enregistrement des particules alpha dans les DSTN. La deuxième est la spectrométrie gamma, cette dernière est considérée comme étant une technique très puissante pour déterminer l'activité spécifique de chaque radionucléide.

Les teneurs obtenus de l'Uranium et du Radon nous montrent que le CR39 et plus sensible aux particules alpha que le LR115. Concernant les mesures de la radioactivité des échantillons obtenues par la spectrométrie gamma. Nous avons constaté à partir des spectres des deux échantillons (brique et faïence), la présence des éléments des trois familles radioactives ^{238}U , ^{232}Th , et ^{235}U . Par contre dans les deux autres (plâtre et marbre), nous avons constaté l'absence des radionucléides des trois familles sauf une faible trace de l'élément ^{238}U dans le plâtre. L'élément primordial ^{40}K est présent dans tous les spectres. L'absence des éléments d'origine cosmique est due à leurs faibles concentrations et leurs courtes demi-vies. Les valeurs des activités de ces radionucléides ne reflètent pas clairement le risque des rayonnements ce qui nous oblige de calculer d'autres valeurs comme les activités de radium équivalent, les indices de risque, externes et internes (H_{ex} et H_{in}) et l'indice du niveau représentatif ($I_{\gamma r}$) quelles nous indiquent que nos échantillons ne sont pas des éléments dangereux sauf qu'il y a certains parmi eux qui nous demande des techniques pour réduire leur radioactivité naturelle.

De ces différentes méthodes, nous concluons qu'il est possible d'obtenir une analyse qualitative et quantitative correcte de l'activité d'un échantillon donné en utilisant les détecteurs visuels dont le coût reste très modéré par rapport aux détecteurs semiconducteur.

Références

- [1] André Bonne Paris, coll. « L'homme et l'univers », Paris, 15, 225 (1960).
- [2] O. Donnars. Les défis du CEA ;N°94, 4-5 (2002).
- [3] CNDP Commission particulière du débat public Gestion des DéchetsRadioac.
 Débat public sur les déchets radioactifs; Réponses aux questions.
- [4] Organisation Mondiale de Santé, Aide-Mémoire N° 257, (2001).
- [5] EURATOM 96. Directive européenne EURATOM 96/29 publiée au JOCE N° L159 (1996).
- [6] A.B. Tanner, et al. The nat. Rad. Env. II, US ERDA, Sprinfield, 5 (1980).
- [7] B.K. Nachab, thèse de doctorat, Université Chouaib Doukkali, El Jadida Maroc, (2003).
- [8] Jean Andru, la pratique des méthodes de détection du radon par les plastiques détecteurs des traces nucléaires. RADIOPROTECTION, Vol.33, n°4, 501 à 513, (1998).
- [9] K. Singh, S. Singh, R. Mehra, M. Singh, H.S. Sahota, Z. Papp. Radiation measurement 41, 108-111(2006).
- [10] K. Azkour, thèse de doctorat, Université Chouaib Doukkali, El Jadida Maroc, (1999).
- [11] F.N. Al Doorie, et al. J. Envuron. Radioactivity, 18, 163-173 (1993).
- [12] H.A. Khan, Nucl. Tracks Radiat.Meas, 19, Nos 1-4, 353-362 (1991).
- [13] J. Singh, L. Singh, S. Singh & H.S. Virk, Nucl. Tracks Radiat. Meas, Vol 19, Nos 1-4, 415-416 (1991).
- [14] V.V. Balashov Interaction of particles and radiation with matter, Springer, (1997).
- [15] J.P.Biersack, J.F.Ziegler Code SRIM-2003.
- [16] H. A. Bethe Stosstheorie, Handbuch der Physik, 24, 49 (1933).
- [17] H.H. Hekmann, B.L. Perkins, W.B. Simon, F.M. Smith & WH. Barkas Phys. Rev.117, 544 (1960).
- [18] H.Frank, Attix, Introduction to radiological physics and radiation dosimetry. New York Chichester Brisbane Toronto Singapore (1986).
- [19] W.K. Chu, J.W. Mayer & Nicolet Backscatering Spectrometry and radiation.
- [20] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, Processus d'interaction entre photons et atomes. Savoirs Actuels (1988).
- [21] C.M. Lederer & V.S. Shirley eds., Table of Isotopes, 7th edition (Wiley, New York) appendix III, (1978).
- [22] K. Siegbahn Alpha, beta and gamma-ray spectroscopy, North Holland Publishing Company (1965).

- [23] J.M. Fernandez-Vera, et al. code for System for Monte Carl Simulation of Electron and Photon Transport. Issy-les-Moulineaux, France, (2003).
- [24] L. Koblinger Nucl. Sci. Eng., 56, 218 (1975).
- [25] john Weiley & Sons. S. M. Sze Semiconductor Sensors, New York, USA, (1994).
- [26] J. Wiley and Sons.G.F KnolL Radiation detection and measurement, 3rd edition (2000).
- [27] R.L. Fleischer & P.B. Price Science 140, 1221 (1963).
- [28] R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M Walker & E.L Hubbard Phys. Rev. 133A, 1443 (1964).
- [29] R.L Fleischer, P. B Price & R.M Walker J. Appl. Phys. 36, (1965) 3645.
- [30] S.A. Durrani & R.K. Bull Solid State Nuclear Track Detection Pergamon Press (1987).
- [31] R.L. Fleischer Tracks to innovation, nuclear track in science and technology Springer (1998).
- [32] R.M. Casson & E.V. Benton Nucl. Track Detection. 2, 173, (1978).
- [33] M. Lferde, these d'état Université Clermont Ferrand (France), (1983).
- [34] L. Wielopolski Nucl. Inst. Meth. Phys. Res, 143, 577 (1977).
- [35] R.P. Henke & E.V. Benton Nucl. Instr. Meth. 97, 483 (1971).
- [36] G. Somogyi Nucl. Inst. Meth. 173, 21 (1980).
- [37] P. Meyer, M. Jouffroy, F. Membry, M; Fromm & A. Chambaudet Rad. Prot. Dosim 7, 75 (1997).
- [38] F. Membery, A. Chambaudet, M. Fromm & R. Saouli Nucl. Tracks Radiat. Meas. 17, 183 (1990).
- [39] M. Fromm, F. Membery, A. Chambaudet & R. Saouli Nucl.Tracks Radiat. Meas. 19 n°1- 4, 163 (1991).
- [40] R. Barillon, M. Fromm, A. Chambaudet, H. Marah & A. Sabir Radiat. Meas. 28, 619 (1997).
- [41] S. A. Durrani, R. K. Bull, Solid state nuc. track det, Pergamon Press (1987).
- [42] Bruno Rosier. Ciment naturel Cédric Avenier ss. dir. Denis Sommain, Grenoble, Glénat, 176, 2007.
- [43] M.A.A et al. Investigation on building materials (part 2):Evaluation of red brick in Lahore Region. pak. 521 (1989).
- [44] D.M. Considine (Ed); Van Nostrand's Scientific Encyclopedia: Van Nostrand Reinhol company, New York, USA, 476 (1976).
- [45] Le Petit Robert de la langue française, s. v. marbre 2006.
- [46] A. Gisbertz, D. Hasselkamp, I. Kohler, E. Pitt, A. Scharmann, Radiat. Meas. 27, 457-459 (1997).
- [47] G. Jonsson, R. Hellborg, Nucl. Inst and Methods in Physics Research, B63, 399-406 (1992).
- [48] A. Pape, et al, Nucl. Instr. Meth. B143, 557-560 (1998).
- [49] A. Boukhair, Thèse de doctorat, Université Chouaib Doukkali, El Jadida Maroc, (2000).
- [50] http://www.research.ibm.com/ionbeams/SRIM/SRIMLEGL.HTM.
- [51] R.Viega, N. Sanches, et al; 2005 Mesurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands. Radiation measurements 41, 189-196 (2006).
- [52] J. Beretka, P.J. Mathew; Natural radioactivity of Australian build. mat, industrial wates and by products. Health physics 48, 87-95 (1985).
- [53] A. Nada; Evaluation of natural radionuclides at Um-Greifat area, eastern desert of Egypt. Applied Radiation and isotopes 58, 275-280 (2003).
- [54] EC (European Commission), . Radiation protection 112, radiological protection principles concerning the natural radioactivity of build. mat. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection (1999).
- [55] UNSCEAR, United Nations Scientif Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and Effects of Ionizing Radiat.New York, USA (2000).
- [56] M.I. Jarallah, et al. Correlation between radon exhalation and radium in granite sample used as construction material in Saudi Arabia (2005).
- [57] M.A. Misdaq, A. Amghar. Radon and thoron emanation from various marble materials: impact on the workers. Radiation measurements (2004).
- [58] Munazza Faheema, Matiullahb. Radon exhalation and its dependence on moisture content from samples of soil and building materials (2008).
- [59] S.Rahman, et al. Radon exhalation rate from the soil, sand and brick samples collected from NWFP and FATA. Pakistan (2007).
- [60] Righi, S., Bruzzi, L. Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings. J. Environ. Radioact. 88, 158–17 (2006).
- [61] D. Amrani, M. Tahtat. Natural radioactivity in Algerian building materials (2000)

<u>Résumé</u> :

L'objectif de ce travail est de déterminer l'émanation du radon et la concentration d'uranium dans certains matériaux de construction prélevés des différentes régions de l'est algérien, en utilisant les Détecteurs Solides de Traces Nucléaires (DSTN) et la spectrométrie gamma. Les risques associés aux rayonnements gamma émis par ces matériaux sont également présentés. Les résultats des mesures par les DSTN de la radioactivité naturelle en utilisant le contact auto-radiographique pour la détermination de la concentration de l'uranium et de non contact auto-radiographique pour l'exhalation de radon sont présentés avec des considérations théoriques.

Les activités des rayonnements gamma des radionucléides naturels sont représenté principalement par trois séries radioactives naturelles ²³⁸U, ²³⁵U, ²³²Th et l'élément primordial ⁴⁰K dans les échantillons de matériaux de construction, elles ont été mesurées en utilisant la spectrométrie gamma. Les valeurs des activités de ces radionucléides ne reflètent pas clairement le risque des rayonnements liés à ces matériaux. La concentration du radium équivalent (Ra_{eq}) est, donc définie, dont on considère l'effet de ces isotopes en produisant le risque des rayonnements. Les activités de radium équivalent, les indices de risque externes et internes (H_{ex} et H_{in}) ont été calculés à partir des activités du ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K. Les résultats montrent un bon accord avec les valeurs autorisées.

<u>Mots clés</u>: Radioactivité ; DSTN ; Spectrométrie Gamma ; Radium équivalent Ra_{eq} ; risque externes et internes (H_{ex}, H_{in}) .

Abstract:

The objective of this work is to determinate the emanation of radon and uranium contents in some building materials collected from different regions of eastern Algeria, using solid state nuclear track detectors (SSNTD) and gamma ray spectrometry. The hazards associated with gamma radiation emitted by these materials are also presented. The results of measurements by SSNTD of natural radioactivity using the auto-radiography contact to determinate the concentration of uranium and non-contact auto-radiography for the exhalation of radon are presented with theoretical considerations.

The activities of gamma radiation of natural radionuclide were mainly represented by three natural radioactive series ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th and the primordial element ^{40}K in samples of building materials; they have been measured using gamma ray spectrometry. The radium equivalent (Ra_{eq}) concentration is, therefore, defined which takes into account the effectiveness of these isotopes in creating the radiation hazard. Radium equivalent activities, external and internal hazard indices (H_{ex} and H_{in}) have been calculated from of the activities of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K for suitability of the materials. The results show good agreement with the allowed values.

<u>Keywords</u>: Radioactivity; SSNTD; Gamma spectrometry; The radium equivalent Ra_{eq} ; external and internal hazard (H_{ex} , H_{in}).